

Oliver Richter

Untersuchung der Makro- und Mikromischung in kontinuierlich durchströmten Taylor-Vortex Reaktoren mit modifizierter Rotorgeometrie

Oliver Richter

**Untersuchung der Makro- und Mikromischung
in kontinuierlich durchströmten Taylor-Vortex Reaktoren
mit modifizierter Rotorgeometrie**

Untersuchung der Makro- und Mikromischung in kontinuierlich durchströmten Taylor-Vortex Reaktoren mit modifizierter Rotorgeometrie

von
Oliver Richter

Dissertation, Universität Karlsruhe (TH)
Fakultät für Chemieingenieurwesen und Verfahrenstechnik, 2009
Tag der mündlichen Prüfung: 11.09.2009

Impressum

Karlsruher Institut für Technologie (KIT)
KIT Scientific Publishing
Straße am Forum 2
D-76131 Karlsruhe
www.uvka.de

KIT – Universität des Landes Baden-Württemberg und nationales
Forschungszentrum in der Helmholtz-Gemeinschaft



Diese Veröffentlichung ist im Internet unter folgender Creative Commons-Lizenz
publiziert: <http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/3.0/de/>

KIT Scientific Publishing 2009
Print on Demand

ISBN 978-3-86644-430-0

Untersuchung der Makro- und Mikromischung in kontinuierlich durchströmten Taylor-Vortex Reaktoren mit modifizierter Rotorgeometrie

zur Erlangung des akademischen Grades eines
DOKTORS DER INGENIEURWISSENSCHAFTEN (Dr.-Ing.)

der Fakultät für Chemieingenieurwesen und Verfahrenstechnik der
Universität Fridericiana Karlsruhe (TH)

genehmigte
DISSERTATION

von
Dipl.-Ing. Oliver Richter
aus Karlsruhe

Referent: Prof. Dr. Bettina Kraushaar-Czarnetzki

Korreferent: Prof. Dr.-Ing. Clemens Posten

Tag der mündlichen Prüfung: 11. September 2009

Vorwort

Die mit dieser schriftlichen Fassung beendete Arbeit entstand während der Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Chemische Verfahrenstechnik der Universität Karlsruhe (TH) in der Zeit von Oktober 2004 bis Dezember 2008.

Mein besonderer Dank gilt Frau Prof. Dr. Bettina Kraushaar-Czarnetzki, die mir die Bearbeitung dieses interessanten, abwechslungsreichen und herausfordernden Themas ermöglichte. Sie gewährte einerseits großen Freiraum, wodurch eigene Ideen und Entscheidungen eingebracht werden konnte, andererseits prägte sie die Arbeit durch ihre fachlichen Anregungen.

Herrn Prof. Dr. Clemens Posten danke ich für die Übernahme des Korreferats.

Besonders möchte ich mich bei Herrn Prof. Dr. Hans-Günther Lintz für die fachliche Diskussion bei der Fertigstellung des Manuskripts bedanken.

Durch das offene und konstruktive Klima am Institut erlebte ich die vier Jahre dort als eine produktive und angenehme Zeit, die durch Hilfsbereitschaft und den freundlichen Umgang der Kollegen untereinander geprägt war. Euch allen herzlichen Dank für zahlreiche nicht nur fachliche Diskussionen und Anregungen. Insbesondere möchte ich Herrn Dipl.-Ing. Thomas Thömmes danken, der die vier Jahre über mit mir ein Büro teilte und stets ein offenes Ohr für nicht nur fachliche Gespräche hatte.

Ebenfalls Danken möchte ich Frau Dipl.-Ing. Heike Hoffmann und Herrn Dipl.-Ing. Markus Menges, die durch ihre Diplomarbeiten wichtige Beiträge zu dieser Arbeit geliefert haben.

Nicht zuletzt möchte ich meine Eltern, meinen Bruder Thorsten und meine Freundin Mirjam erwähnen, die mir diesen Lebensweg ermöglicht haben und durch die ich Rückhalt und Unterstützung erfahren habe. Ihnen bin ich besonders zu Dank verpflichtet.

**„Was wir wissen ist ein Tropfen;
was wir nicht wissen ein Ozean.“**

Sir Isaac Newton (1643-1727)

für meinen Vater

INHALTSVERZEICHNIS

| | | |
|------------|---|-----------|
| 1 | EINLEITUNG UND MOTIVATION | 1 |
| 2 | DAS TAYLOR-VORTEX SYSTEM | 7 |
| 2.1 | Aufbau und Strömungskennzahlen | 7 |
| 2.2 | Charakteristik der Ringspaltströmung | 9 |
| 2.2.1 | Strömungsformen im System ohne axialen Fluss | 9 |
| 2.2.2 | Strömungsformen im System mit axialem Fluss | 12 |
| 2.3 | Auftreten und Berechnung von Strömungsinstabilitäten | 17 |
| 3 | MISCHEN IN REAGIERENDEN SYSTEMEN | 21 |
| 3.1 | Grundprinzipien und Größenskalen des Mischens | 21 |
| 3.2 | Makromischung im Taylor-Vortex System | 24 |
| 3.2.1 | Theorie der Verweilzeitverteilung | 24 |
| 3.2.2 | Messmethoden der Verweilzeitverteilung | 28 |
| 3.2.3 | Makromischung im System ohne axialen Fluss | 31 |
| 3.2.4 | Makromischung im System mit axialem Fluss | 34 |
| 3.2.5 | Korrelation der Makromischung im System mit axialem Fluss | 41 |
| 3.3 | Mikromischung im Taylor-Vortex System | 44 |
| 3.3.1 | Theorie der Mikromischung | 44 |
| 3.3.2 | Messmethoden der Mikromischung | 49 |
| 3.3.3 | Mikromischung im System ohne axialen Fluss | 54 |
| 4 | UNTERSUCHUNGEN ZUR MISCHCHARAKTERISTIK | 59 |
| 4.1 | Beschreibung der Versuchsanlage | 59 |

| | | |
|------------|---|------------|
| 4.2 | Versuchsdurchführung und Auswertung | 61 |
| 4.2.1 | Strömungsvisualisierung | 61 |
| 4.2.2 | Verweilzeitverteilung eines Spurstoffes | 61 |
| 4.2.3 | Spezifischer Energieeintrag des Rotors..... | 62 |
| 4.3 | Modellierung der Makromischung | 63 |
| 4.3.1 | Modellwahl und Kenngrößen..... | 63 |
| 4.3.2 | Modell für einen zylindrischen Rotor | 64 |
| 4.3.3 | Modell für einen rippenförmigen Rotor..... | 66 |
| 4.3.4 | Numerische Modellparameteranpassung mittels MATLAB®..... | 69 |
| 4.4 | Ergebnisse und Diskussion | 71 |
| 4.4.1 | Strömungsvisualisierung | 71 |
| 4.4.2 | Validierung der Makromischungsmodelle | 74 |
| 4.4.3 | Makromischung mit einem zylindrischen Rotor | 75 |
| 4.4.4 | Makromischung mit rippenförmigen Rotoren | 78 |
| 4.4.5 | Einfluss der Rotorgeometrie auf die Makromischung | 80 |
| 4.4.6 | Integrale Mikromischung | 81 |
| 4.5 | Zwischenfazit | 83 |
| 5 | ALKALISCHE VERSEIFUNG ALS TESTREAKTION | 85 |
| 5.1 | Beschreibung der Versuchsanlage und Versuchsdurchführung | 85 |
| 5.2 | Versuchsauswertung | 89 |
| 5.3 | Ergebnisse und Diskussion | 93 |
| 5.3.1 | Vorherrschaft der Makromischung bei langsamer Reaktion | 93 |
| 5.3.2 | Zunehmender Einfluss der Mikromischung bei schneller Reaktion | 95 |
| 5.3.3 | Einfluss der Einströmungsgeschwindigkeit..... | 98 |
| 5.4 | Fazit | 101 |
| 6 | ZUSAMMENFASSUNG | 103 |
| 7 | SUMMARY | 107 |

| | |
|--|------------|
| LITERATURVERZEICHNIS | 109 |
| ABKÜRZUNGSVERZEICHNIS | 119 |
| SYMBOLVERZEICHNIS | 121 |
| ANHANG | 127 |
| A1 Navier-Stokes Gleichungen und Kontinuitätsgleichung | 127 |
| A2 Lineare Stabilitätsanalyse | 128 |
| A3 Erweiterte lineare Stabilitätsanalyse | 131 |
| A4 Nichtlineare Stabilitätsanalyse | 132 |
| A5 Randbedingungen des axialen Dispersionsmodells | 134 |
| A6 Alkalische Verseifung von Ethylacetat | 136 |
| A7 Technische Zeichnungen der Taylor-Vortex Systeme | 137 |
| A8 MATLAB® Programmcode zylindrischer Rotor C | 139 |
| A9 MATLAB® Programmcode rippenförmige Rotoren A und B | 147 |
| A10 Abschätzung der Dispersionszahl \mathcal{D} einer Rührkesselkaskade | 153 |
| A11 Bestimmung der spezifischen Grenzleitfähigkeiten κ_0 und κ_∞ | 154 |
| A12 Zusammenhang Umsatz und Dispersionszahl | 156 |

1 EINLEITUNG UND MOTIVATION

Die Strömung im Spalt zwischen zwei konzentrischen Zylindern beschäftigt schon seit über drei Jahrhunderten Mathematiker, Physiker und seit neuerer Zeit auch Ingenieure. Erstmals wurde die Fluidbewegung im Ringspalt von Sir Isaac Newton im Jahre 1687 in seinem Hauptwerk „*Philosophiae Naturalis Principia Mathematica*“ beschrieben, worin er auch die Grundsteine der klassischen Mechanik festlegte. Eine weitere Pionierarbeit erfolgte später von Max Margules, welcher 1881 als erster vorschlug, Viskositäten von Fluiden in einem konzentrischen Zylindersystem zu messen. Im Jahre 1888 konstruierten dann von einander unabhängig Henry Mallock und Maurice Couette die ersten zylindrischen Rotationsviskosimeter, wie sie prinzipiell bis heute noch verwendet werden. Der Durchbruch in der mathematischen Beschreibung der Strömungsinstabilität und dem Auftreten von torusförmigen Strömungswirbeln gelang allerdings erst Geoffrey Ingram Taylor mit seiner 1923 veröffentlichten Arbeit (Donnelly, 1991).

Bei allen verfahrenstechnischen Anwendungen des einführend erwähnten Zylindersystems, hier Taylor-Vortex System genannt, steht der äußere Hohlzylinder (Stator) still, und der gleichmäßig rotierende Innenzylinder (Rotor) dient als Rührwerk (siehe Bild 1-1, links).

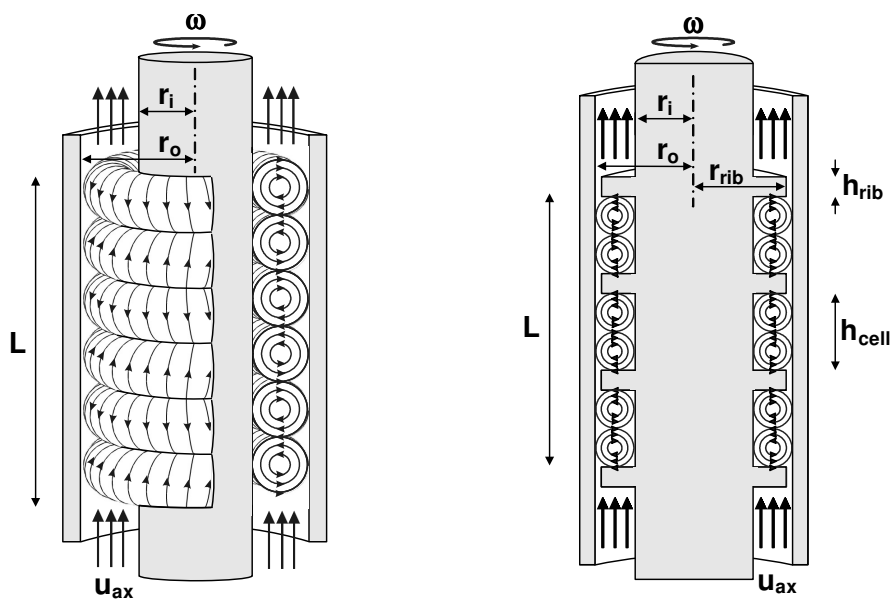


Bild 1-1: Schematischer Aufbau eines axial durchströmten Taylor-Vortex Systems mit konventionellem, zylindrischem Rotor (*links*) oder neuartigem, rippenförmigem Rotor (*rechts*).

Aufgrund der Rotation wirken im Ringspalt Zentrifugalkräfte auf das Fluid, wodurch sich mit steigender Drehgeschwindigkeit eine Vielzahl von charakteristischen Ringwirbelströmungen ausbildet, bis letztendlich vollständige Turbulenz erreicht wird (Andereck et al., 1986). Soll

zusätzlich das Taylor-Vortex System kontinuierlich betrieben werden, kann der Ringspalt axial durchströmt werden. Bei moderaten Volumenströmen driften hierbei die unverformten Ringwirbel entlang des Ringspaltes (Lueptow et al., 1992).

Ein Taylor-Vortex System bietet aufgrund dieser einzigartigen Strömungsstrukturen sowie der konstruktiv bedingten Ringspaltgeometrie die im Folgenden erläuterten Vorteile gegenüber klassischen, verfahrenstechnischen Systemen (z. B. Rührkessel). Eine Vielzahl von kontinuierlich und diskontinuierlich betriebenen Anwendungen werden daher in der Literatur diskutiert, seit Kataoka et al. (1975) erstmals die Ringwirbelströmung für die Verfahrenstechnik entdeckten.

So untersuchten Kataoka et al. (1995) und Wei et al. (2001) die Emulsionspolymerisation von Styrol. Sie konnten in einem Taylor-Vortex Reaktor eine durch Scherung verursachte Koagulation und somit Polymerablagerungen verhindern, wie sie sonst aufgrund hoher Schergradienten bei Rührkesseln auftreten.

Im weiteren sind die bei den laminaren Ringwirbelströmungen herrschenden geringen Scherkräfte existentiell für scherempfindliche Güter bei biotechnische Anwendungen wie der Enzymkatalyse (Iosilevskii et al., 1993; Giordano et al., 2000b) oder Zellkultivierung (Haut et al., 2003).

Aber auch bei der flüssig-flüssig Extraktion von sehr leicht emulgierbaren und daher wieder nur sehr schwer in getrennte Phasen zerfallenden Stoffsystemen bieten die laminaren Ringwirbel Vorteile. Entsprechend der Flüssigkeitsdichten existieren im Spalt bei geringer Rotordrehzahl parallel nach außen geschichtete Ringwirbelphasen. Ein feines Dispergieren der Phasen ineinander entfällt, da aufgrund der Ringwirbelrotation eine effektive Extraktion über die bereits vorhandene Phasengrenzfläche erreicht werden kann (Baier et al., 2000; Forney et al., 2002).

Mit Steigerung der Rotordrehzahl und Übergang zu turbulenten Ringwirbelformen wird in einem Taylor-Vortex System aber auch eine sehr intensive und relativ homogene Vermischung realisiert, was Vorzüge in der Fällung von z. B. Calciumcarbonat (Jung et al., 2000) oder Bariumsulfat (Judat et al., 2004) sowie bei der Flokkulation in der Abwasseraufbereitung (Grohmann et al., 1981; Reiter et al., 1984) ergibt.

Der Einsatz der Zylinderoberflächen als katalytische Träger z. B. bei der partiellen Oxidation von Isopropanol (Cohen und Moalem Maron, 1983; Cohen und Moalem Maron, 1990) oder auch als Elektroden für elektrochemische Anwendungen (Coeuret und Legrand, 1981) bietet ebenfalls interessante Möglichkeiten. Der Nutzen hierbei ist eine durch die

Ringwirbelströmung verursachte Intensivierung des Stoff- und Wärmetransfers an die aktiven Zylinderflächen.

Ebenso kann der Rotor und/oder Stator als Lichtquelle gestaltet werden, was den Einsatz für photochemische Reaktionen ermöglicht (Haim und Pismen, 1994; Forney und Pierson, 2003). Die Effizienz, z. B. der heterogen photokatalysierten Wasserreinigung, kann gesteigert werden, da eine periodische Illumination durch die Strömungseigenschaften eines Taylor-Vortex Reaktors erreicht wird (Sczechowski et al., 1995).

Weitere Vorteile bieten die charakteristischen Ringwirbelströmungen aber auch in der dynamischen Tangential- und Membranfiltration. Hierdurch wird der Aufbau eines Filterkuchens bzw. ein Verstopfen der Poren vermindert, wodurch hohe Filtratströme über lange Standzeiten realisiert werden können (Schwille et al., 2002; Lee und Lueptow, 2004).

Als abschließendes Beispiel sei die Klassierung von Mikropartikeln aufgeführt. Aufgrund der im rotierenden Ringwirbel wirkenden Zentrifugalkräfte und der Scherung können in einem Taylor-Vortex System mikroskalige Teilchen ihrer Größe nach aufgetrennt werden (Ohmura et al., 2005).

Doch nur sehr wenige Applikationen wurden bisher kommerziell angewandt. Beispiele hierfür sind lediglich Bioreaktoren zur Zellkultivierung (Synthecon Incorporation), Separatoren von Blutplasma (Baxter Healthcare Corporation) oder rotierende Filtrationseinheiten (Membrex Incorporation).

Ein Grund dafür, warum gerade auch Anwendungen aus der chemischen Reaktionstechnik bisher noch kommerziell unbeachtet blieben, liegt in den hierfür eher ungünstigen Mischeigenschaften eines Taylor-Vortex Reaktors. So erfordert die Kinetik bei vielen chemischen Reaktionen (Reaktionsordnung $n > 0$) in kontinuierlich betriebenen Reaktoren eine möglichst geringe makroskopische Rückvermischung in Strömungsrichtung (Makromischung), um hohe Raum-Zeit-Ausbeuten ($RZA = \text{Massenstrom Produkt} / \text{Volumen Reaktor}$) zu erzielen (vergleiche Bild 1-2). Gleichzeitig müssen aber die oftmals getrennt zugeführten Reaktanten auf molekularer Ebene in Kontakt gebracht werden, was besonders bei sehr schnellen Reaktionen und/oder mehrphasigen Systemen hier eine sehr intensive Vermischung (Mikromischung) erfordert.

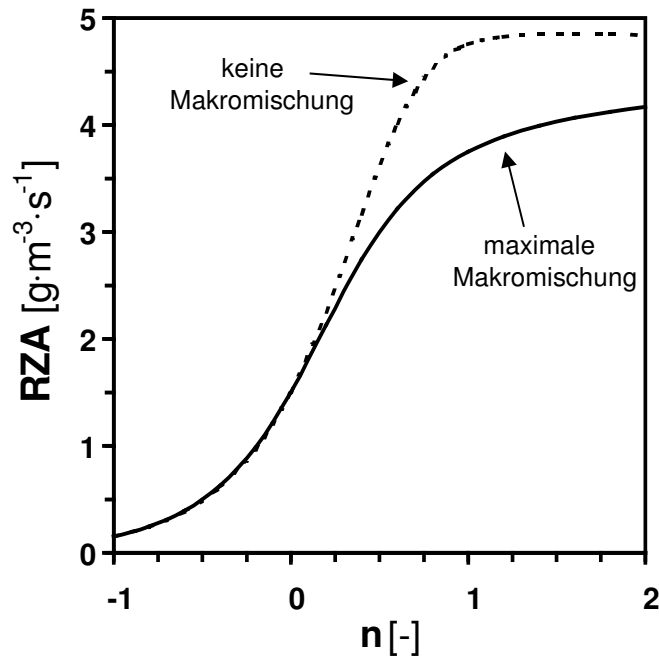


Bild 1-2: Einfluss der Makromischung auf die Raum-Zeit-Ausbeute (RZA) einer beliebigen Reaktion $A \rightarrow P$ n-ter Ordnung. Die RZA wurde hierfür anhand der idealen Grenzfälle der Makromischung (keine Makromischung: kontinuierlich durchströmter idealer Kolbenstromreaktor; maximale Makromischung: kontinuierlich durchströmter idealer Rührkessel) exemplarisch mit $c_{A0}=10 \text{ mol/m}^3$, $k_n=0,05 \text{ m}^{3(n-1)}/(\text{s mol}^{(n-1)})$, $T_k=60 \text{ s}$ und $M_p=30 \text{ g/mol}$ berechnet.

In einem Taylor-Vortex System ist nun die axiale Vermischung über die Ringwirbelgrenzen (Makromischung) bei niedrigen Rotordrehzahlen und der hier auftretenden laminaren Ringwirbelströmung praktisch nicht existent. Gleichzeitig ist aber auch die Mischintensität im Kern der Ringwirbel äußerst gering, so dass hier eine Mikromischung hauptsächlich durch molekulare Diffusion vonstatten geht. Mit Steigerung der Drehzahl und den damit verbundenen Übergängen bis zu turbulenten Strömungsformen kann die Mikromischintensität deutlich erhöht und homogenisiert werden. Leider steigt aber auch die Makromischung so stark an, dass letztendlich die Strömungscharakteristik eines nahezu idealen Rührkessels erreicht wird (Moore und Cooney, 1995; Desmet et al., 1996b; Racina und Kind, 2006; Liu und Lee, 1999).

Ein Ansatz, diese ungünstige Mischcharakteristik eines Taylor-Vortex Reaktors zu beeinflussen, ist es, von der klassischen, rein zylindrischen Geometrie Abstand zu nehmen. So haben beispielsweise Rotz und Suh (1976, 1979) V-förmig gerillte Rotoren verwendet, um die laminare, lokale Vermischung (Mikromischung) in hochviskosen Medien gegenüber zylindrischen Rotoren zu intensivieren.

Ein Rotor mit gelapptem, kleeblattähnlichem Querschnitt ergibt einen in Umfangsrichtung ungleichmäßig ausgedehnten Spalt zwischen Innen- und Außenzylinder. Durch diese Modifikation werden die Ringwirbel deformiert, was schon bei geringen Rotordrehzahlen zu

einer weitgehenden Homogenisierung der Scherkräfte über dem Reaktorvolumen führt. Hierdurch können effektiver als im Vergleich zu einem Taylor-Vortex System mit zylindrischem Rotor oder einem Rührkessel die Bereiche mit sehr hohen oder sehr geringen Schergradienten verringert werden und somit eine unerwünschte Agglomeration oder Zerschneiden des Rührgutes reduziert werden (Soos et al., 2007).

Im weiteren untersuchte Drozdov (2002) die Ringspaltströmung für in Längsrichtung wellenförmige Rotoren und Statoren. Seine Ergebnisse zeigten, dass es hiermit möglich ist, eine Separation von Mischungskomponenten unterschiedlicher Dichte zu minimieren.

Konische Bauformen sollen hingegen bei der Polymerisation ein Kollabieren der Ringwirbelströmung aufgrund des reaktionsbedingten Viskositätsanstieges verhindern (Moritz et al., 1999). Andererseits kann mit dieser Geometrie aber auch die Rückvermischung der laminaren Ringwirbelströmung im diskontinuierlichen Betrieb erhöht werden (Ohmura et al., 2004).

Weitere in der Literatur beschriebenen Rotorgeometrien sind sogenannte „Sanduhr“-Geometrien, womit aber lediglich chaotische Strömungsstrukturen aus hydrodynamischer Sicht untersucht wurden (Wiener et al., 1997).

In allen hier aufgeführten Studien zur Modifikation der Rotorgeometrie wurde allerdings niemals eine Reduzierung der Makromischung beabsichtigt noch beobachtet. Hieraus ergibt sich das Ziel dieser Arbeit, eine Rotorgeometrie zu finden, welche eine geringe Makromischung bei kontinuierlichem, moderatem Durchfluss erzielt, selbst bei hohen Rotordrehzahlen, welche notwendig sind für eine intensive Mikromischung. Vielversprechend erscheinen hierfür neuartige Rotoren, welche mit Rippen versehen den Ringspalt axial segmentieren (siehe Bild 1-1, rechts).

Es sollte in dieser Arbeit die Frage geklärt werden, ob mit diesen rippenförmigen Rotoren das erwünschte Mischungsverhalten im kontinuierlichen Betrieb, im Gegensatz zu zylindrischen Rotoren, erzielt werden kann.

Hierfür wurden im ersten Teil der vorliegenden Arbeit die Ringspaltströmung durch ein rheoskopisches Fluid visualisiert und die Makromischung mittels Spurstoffexperimenten untersucht. Anhand eigens entwickelter phänomenologischer Verweilzeitmodelle konnten die Tracerversuche letztendlich quantitativ ausgewertet werden.

Da im ersten Teil die über den Ringspalt gemittelte (integrale) Mikromischung anhand der Messung des Rührenergieeintrages der Rotoren quantifiziert wurde, kam abschließend im zweiten Teil der Arbeit eine einfache chemische Testreaktion (alkalische Verseifung von Ethylacetat) als Messsonde der Mikromischung auf molekularem Maßstab zur Anwendung.

2 DAS TAYLOR-VORTEX SYSTEM

2.1 Aufbau und Strömungskennzahlen

Wie in Kapitel 1 beschrieben ist ein Taylor-Vortex System grundlegend aus einem Zylinder und einem dazu konzentrisch angeordneten Hohlzylinder aufgebaut. Hierbei kann entweder nur einer der beiden Zylinder oder es können beide Zylinder (gleich- oder gegensinnig) in Rotation versetzt werden, wobei eine Vielzahl von teilweise sehr komplexen Strömungen möglich sind (Andereck et al., 1986). Es ist jedoch die Betriebsweise mit rotierendem Innenzylinder (Rotor) und fest stehenden Hohlzylinder (Stator) bei verfahrenstechnischen Anwendungen üblich (siehe Bild 1-1, links). Daher beschränkt sich die vorliegende Arbeit im weiteren auf diesen Fall.

Die mit steigender Rotation des Rotors und daher zunehmenden Zentrifugalkräften auf das Fluid entstehenden Ringspaltströmungen können mit der dimensionslosen Taylor-Zahl (Ta-Zahl) charakterisiert werden. Je nach fachlichem Hintergrund des Autors wird die Ta-Zahl in der Literatur nicht einheitlich verwendet (siehe Tabelle 2-1). In der vorliegenden Arbeit wird die Ta-Zahl entsprechend Andereck et al. (1986) analog einer Reynolds-Zahl definiert.

$$Ta = \frac{r_i \omega d}{\nu} \quad (2-1)$$

mit $d=r_o-r_i$ Spaltbreite in m ν kinematische Viskosität in m^2/s
 r_o Radius Stator in m r_i Radius Rotor in m
 ω Winkelgeschwindigkeit Rotor in 1/s

Soll das Taylor-Vortex System, um einen kontinuierlichen Betrieb zu ermöglichen, axial durchströmt werden, ist eine weitere dimensionslose Größe zur Beschreibung der Strömung notwendig. Es wird hierfür die Reynolds-Zahl (Re-Zahl) verwendet, welche das Kräfteverhältnis von Trägheitskräften zu viskosen Kräften ausdrückt.

$$Re = \frac{u_{ax} d}{\nu} \quad (2-2)$$

mit $d=r_o-r_i$ Spaltbreite in m ν kinematische Viskosität in m^2/s
 r_o Radius Stator in m r_i Radius Rotor in m
 u_{ax} axiale Leerspaltgeschwindigkeit in m/s

Tabelle 2-1: Übersicht über die in der Literatur verwendeten Definitionen der Ta-Zahl.

| | |
|--|-----------------------------------|
| $\text{Ta} = \frac{r_i \omega d}{\nu}$ | Andereck et al. (1986) |
| $\text{Ta} = \frac{2 r_i^2 \omega^2 d^4}{(r_o^2 - r_i^2) \nu^2}$ | Burkhalter und Koschmieder (1974) |
| $\text{Ta} = \frac{4 r_i^2 \omega^2 d^3}{(r_i + r_o) \nu^2}$ | DiPrima und Swinney (1981) |
| $\text{Ta} = \frac{r_i^2 \omega}{\nu}$ | Hasoon und Martin (1977) |
| $\text{Ta} = \frac{r_i \omega d}{\nu} \sqrt{\frac{d}{r_i}}$ | Kataoka et al. (1975) |
| $\text{Ta} = \frac{r_i^2 \omega (r_o^2 - r_i^2)}{2 r_o^2 \nu}$ | Reiter et al. (1984) |

2.2 Charakteristik der Ringspaltströmung

2.2.1 Strömungsformen im System ohne axialen Fluss

Die Ringspaltströmung zwischen zwei konzentrischen Zylindern wurde oftmals untersucht und ist bis heute Gegenstand der Forschung, wobei viele Arbeiten keinen axialen Fluss berücksichtigten. Da die auftretenden Strömungsmuster durch einen moderaten axialen Fluss kaum beeinflusst werden, sind in diesem Kapitel einführend die Strömungsformen ohne axiale Durchströmung beschrieben und mit Strömungsabbildungen von rheoskopischen Fluiden sowie vektoriellen Strömungsfeldern veranschaulicht. Der spezielle Einfluss eines axialen Flusses auf die Ringspaltströmung wird gesondert im folgenden Kapitel 2.2.2 betrachtet.

Ein zur Strömungsvisualisierung verwendetes rheoskopisches Fluid besteht aus einer Suspension von mikroskopisch kleinen, Licht reflektierenden Plättchen. Diese Plättchen richten sich aufgrund von Scherkräften in einer Strömung aus und erlauben so eine Visualisierung derselben (siehe Bild 2-1). Die Interpretation der Strömungsabbildungen ist, dass in einem dunklen Bereich die Strömung entlang der Blickrichtung des Betrachters fließt, hingegen in einem hellen Bereich senkrecht dazu (Savas, 1985).

Die erste Strömungsform im Ringspalt, welche bei sehr kleiner Rotation des Innenzylinders bzw. sehr kleinen Ta-Zahlen auftritt, ist eine laminare, zeitlich stationäre Scherströmung (Couette Strömung, CS, Bild 2-1 a). Nur für diesen Strömungsfall ist es möglich, die Navier-Stokes Gleichungen und die Kontinuitätsgleichung analytisch zu lösen. Das Ergebnis für den Geschwindigkeitsvektor $(u_r, u_\Theta, u_z)^T$ in Zylinderkoordinaten (r, Θ, z) ergibt folgenden Zusammenhang (2-3), wobei die Annahmen eines unendlich langen Spaltes ($L \rightarrow \infty$) und der Haftbedingung ($u_\Theta = \omega \cdot r_i$ bei $r = r_i$; $u_\Theta = 0$ bei $r = r_o$) getroffen wurde (siehe Bild 2-2 a).

$$u_r = 0 \quad ; \quad u_\Theta = A r + \frac{B}{r} \quad ; \quad u_z = 0 \quad (2-3)$$

mit $A = -\omega \eta^2 / (1 - \eta^2)$; $B = \omega r_i^2 / (1 - \eta^2)$; $\eta = r_i / r_o$

r_o Radius Stator in m

r_i Radius Rotor in m

ω Winkelgeschwindigkeit in 1/s

Mit steigender Drehzahl des Rotors (steigender Ta-Zahl) wird die CS instabil und es formieren sich ab einer ersten kritischen Taylor-Zahl Ta_{C1} achsensymmetrische und gegeneinander rotierende Ringwirbel. Sie weisen einen Durchmesser auf, welcher in etwa der Spaltbreite d entspricht. Diese laminare, zeitlich stationäre Ringwirbelströmung (laminare

Taylor-Vortex Strömung, LTVS, Bild 2-1 b) zeichnet sich dadurch aus, dass die Wirbelzellen deutlich voneinander abgegrenzt sind und kein Fluidtransfer zwischen ihnen stattfindet (siehe Bild 2-2 b).

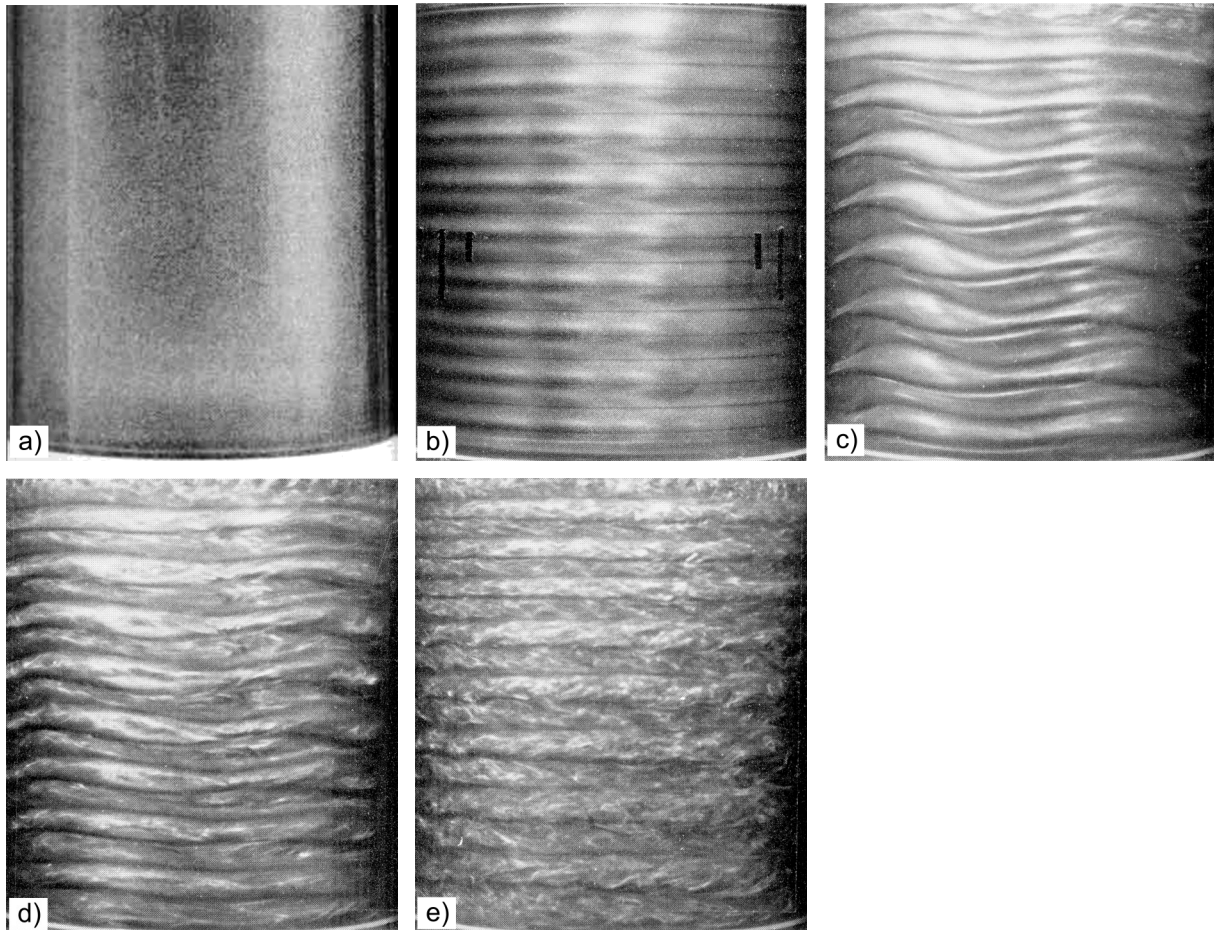


Bild 2-1: Mittels rheoskopischer Fluide visualisierte Vorderansichten verschiedener Ringspaltströmungen ohne axialen Fluss; a) Couette Strömung (Donnelly, 1991). b) laminare Taylor-Vortex Strömung bei $Ta=131$ (Fenstermacher et al., 1979); c) Wavy-Vortex Strömung bei $Ta=715$ (Fenstermacher et al., 1979); d) turbulente Vortex Strömung bei $Ta=1906$ (Fenstermacher et al., 1979); e) turbulente Vortex Strömung bei $Ta=2799$ (Fenstermacher et al., 1979)

Wird die Ta -Zahl weiter erhöht tritt in einem Ringspalt mit dem Radienverhältnis $r_o/r_i < 1,4$ (Coles, 1965) ab einer zweiten kritischen Taylor-Zahl Ta_{C2} die nächste Strömungsinstabilität auf. Hierbei beginnen die laminaren Ringwirbel in Umfangsrichtung zu oszillieren (Wavy-Vortex Strömung, WVS, Bild 2-1 c). Im Gegensatz zur LTVS kommt es hier zu einer periodischen Strömung zwischen den einzelnen Wirbelzellen (siehe Bild 2-2 c). Je nach Höhe der Ta -Zahl kann die azimutale Oszillation allerdings nicht mehr eindeutig mit einer einzigen Frequenz beschrieben werden, da die Amplitude sich ebenfalls mit der Zeit periodisch ändert. In der Literatur untergliedern daher manche Autoren die WVS, wobei die Bezeichnungen

voneinander abweichen können (siehe Tabelle 2-2). In der vorliegenden Arbeit wurde allerdings auf eine Untergliederung der WVS verzichtet.

Große Rotordrehzahlen bzw. Ta-Zahlen führen schließlich dazu, dass die Oszillationen der Ringwirbel ab einer dritten kritischen Ta-Zahl Ta_{C3} mit turbulenten Strukturen überlagert werden (turbulente Vortex Strömung, TVS, Bild 2-1 d und e). Hierbei durchsetzen sich die Ringwirbel allmählich mit chaotischen Strukturen, so dass eine turbulente Ringwirbelströmung mit weiterhin zellulärem Charakter entsteht (siehe Bild 2-2 d). Im Gegensatz zur vorliegenden Arbeit, wird teilweise in der Literatur die TVS wiederum in Unterkategorien aufgeteilt (siehe Tabelle 2-2).

Letztendlich geht die TVS, bei immer weiterer Steigerung der Ta-Zahl, in eine vollständig turbulente Strömung über. Hierbei verlieren die Ringwirbel vollständig ihr Identität und keine zelluläre Ordnung ist mehr zu erkennen (siehe Bild 2-2 e).

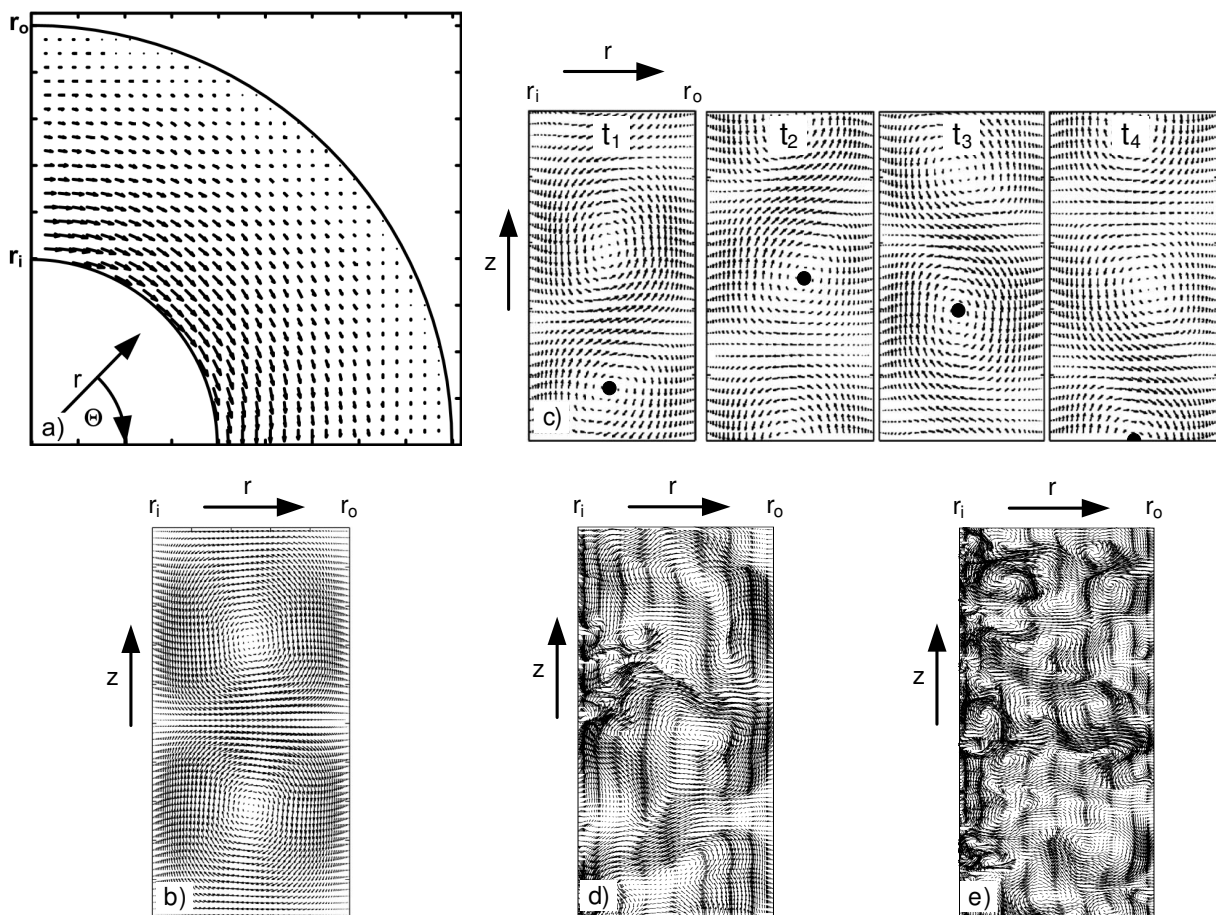


Bild 2-2: a) Mittels (2-3) berechnetes Geschwindigkeitsfeld im Ringspaltquerschnitt ($r-\theta$ Ebene) der Couette Strömung bei $Ta=50$. Anhand numerischer Strömungssimulation berechnete Geschwindigkeitsfelder im Ringspaltlängsschnitt ($r-z$ Ebene) ohne axialen Fluss: b) laminare Taylor-Vortex Strömung bei $Ta=125$ (Climent et al., 2007); c) Wavy-Vortex Strömung bei $Ta=167$ und zu verschiedenen Zeitpunkten t_i , der schwarze Punkt kennzeichnet ein Ringwirbelzentrum (Climent et al., 2007); d) turbulente Vortex Strömung bei $Ta=3000$ (Dong, 2007); e) turbulente Strömung bei $Ta=8000$ (Dong, 2007)

Tabelle 2-2: Übersicht über die in der Literatur verwendeten Untergliederungen der Strömungsregimes ohne axialen Fluss.

| diese Arbeit | Kataoka, 1986 | Andereck et al., 1986 | Lueptow et al., 1992 |
|----------------------------|--|---------------------------------|--|
| Wavy-Vortex Strömung | einfach periodische Wavy-Vortex Strömung | Wavy-Vortex Strömung | Wavy-Vortex Strömung |
| | doppelt periodische Wavy-Vortex Strömung | Modulierte Wavy-Vortex Strömung | Modulierte Wavy-Vortex Strömung |
| turbulente Vortex Strömung | schwach turbulente Wavy-Vortex Strömung | turbulente Vortex Strömung | turbulente modulierte Wavy-Vortex Strömung |
| | turbulente Vortex Strömung | | turbulente Wavy-Vortex Strömung |
| | | | turbulente Vortex Strömung |

2.2.2 Strömungsformen im System mit axialem Fluss

Für den Fall, dass der Ringspalt zusätzlich axial durchströmt wird, können weitere Strömungsmuster (vergleiche Kapitel 2.2.1) generiert werden. Bei moderaten axialen Flüssen bzw. Re-Zahlen ($Re < 5$) bleiben jedoch die bisherigen Strömungsformen erhalten (siehe Bild 2-3) bis auf die Tatsache, dass die Ringwirbel mit einer Driftgeschwindigkeit u_d in axialer Richtung durch den Spalt wandern (Lueptow et al., 1992).

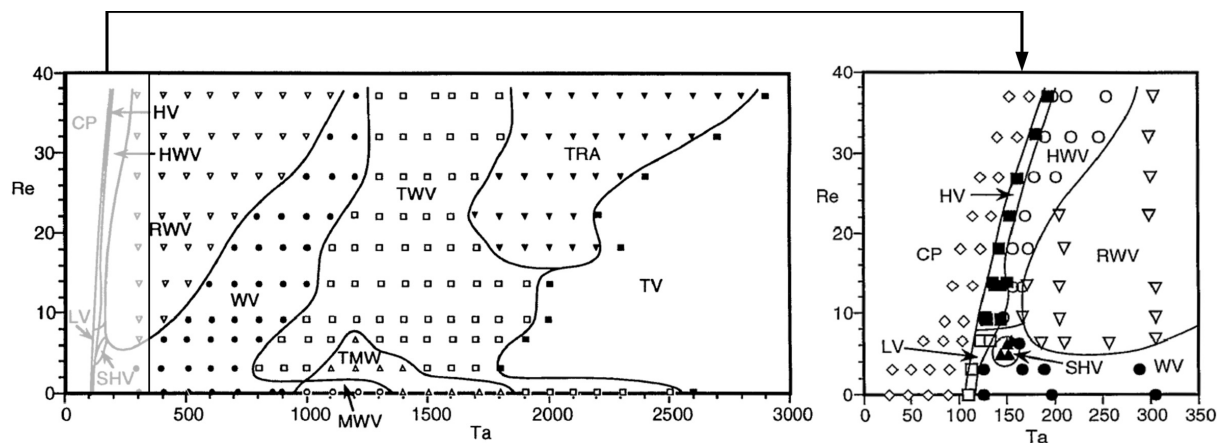


Bild 2-3: Experimentell bestimmtes Zustandsdiagramm der Ringspaltströmung in einem Taylor-Vortex System mit axialem Fluss (Lueptow et al., 1992). CP (◇): Couette-Poiseuille Strömung; HV (■): helixförmige Taylor-Vortex Strömung; HWV (○): helixförmige Wavy-Vortex Strömung; LV=LTVS (□): laminare Taylor-Vortex Strömung; MWV (◊): modulierte Wavy-Vortex Strömung; RMV (▽): chaotische Wavy-Vortex Strömung; SHV (▲): stationäre helixförmige Ringwirbelströmung; TMW (△): turbulente modulierte Wavy-Vortex Strömung; TRA (▼): Übergangsströmungsregime; TV=TVS (■): turbulente Vortex Strömung; TWV (◻): turbulente Wavy-Vortex Strömung; WV=WVS (●): Wavy-Vortex Strömung

Hingegen werden die Ringwirbel bei hohen Re-Zahlen ($Re > 5$) deformiert (siehe Bild 2-3) und es entstehen spiralförmige Strömungsmuster (siehe Bild 2-4), wie die helixförmige Taylor-Vortex Strömung (HV), die helixförmige Wavy-Vortex Strömung (HWV), die chaotische

Wavy-Vortex Strömung (RMV) oder die stationäre helixförmige Ringwirbelströmung (SHV) (Lueptow et al., 1992). Außer bei der SHV, driften die spiralförmigen Wirbel hierbei analog den nicht deformierten Ringwirbeln axial durch den Spalt. Bei sehr hohen Ta- und Re-Zahlen ist zusätzlich ein Übergangströmungsregime (TRA) möglich, bei dem turbulente, turbulente wellenförmige und turbulente helixförmige Ringwirbel innerhalb von kurzen Zeitperioden sequenziell entstehen.

Neben der Generierung weiterer Strömungsmuster hat die axiale Strömung auch einen stabilisierenden Einfluss auf die Strömung. Diese Stabilisierung bedeutet, dass prinzipiell alle Strömungsübergänge mit steigender Re-Zahl geringfügig zu höheren Ta-Zahlen verschoben werden. Dieses Verhalten konnte für den ersten Strömungsübergang (CS→LTVS) theoretisch mit Hilfe der linearen Stabilitätsanalyse der Strömung (siehe Kapitel 2.3, Bild 2-9) bestimmt, sowie auch experimentell bestätigt werden (Lueptow et al., 1992; siehe Bild 2-3).

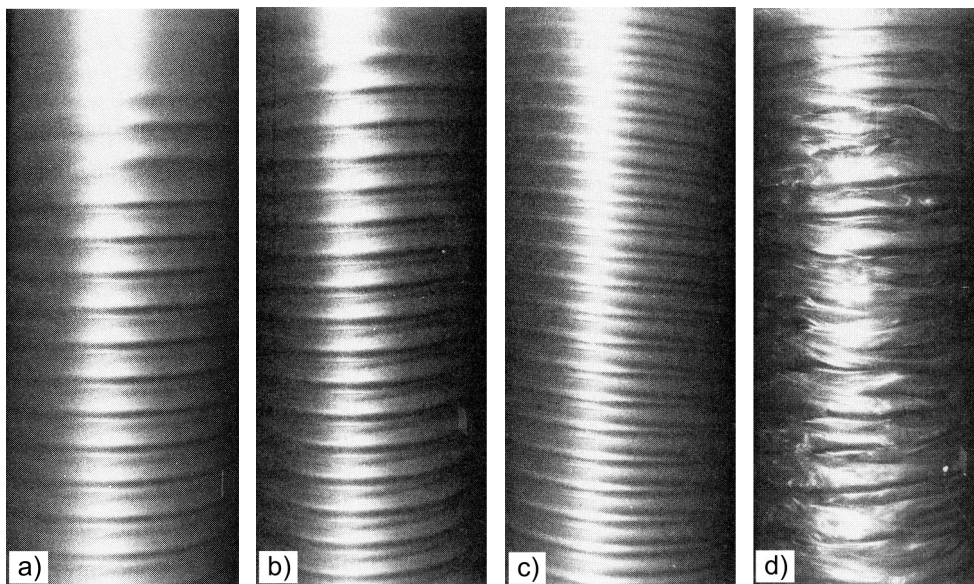


Bild 2-4: Mittels rheoskopischer Fluide visualisierte Vorderansichten der deformierten Ringspaltströmungen bei hohen axialen Flüssen (Lueptow et al., 1992). a) helixförmige Taylor-Vortex Strömung (HV), $Ta=130$, $Re=10$; b) helixförmige Wavy-Vortex Strömung (HWV), $Ta=150$, $Re=10$; c) stationäre helixförmige Ringwirbelströmung (SHV), $Ta=150$, $Re=5$; d) chaotische Wavy-Vortex Strömung (RMV), $Ta=600$, $Re=40$

Im folgenden werden nur die Geschwindigkeitsfelder bei moderatem axialen Fluss diskutiert, da in der vorliegenden Arbeit moderate Re-Zahlen ($Re \leq 2$) untersucht wurden. Die Strömungsfelder ergeben sich generell anhand des Superpositionsprinzips, wobei diejenigen ohne axialen Fluss (siehe Bild 2-2) jeweils mit dem der Poiseuille Strömung (PS) vektoriell überlagert werden (Wereley und Lueptow, 1999).

Das axiale Strömungsfeld $(u_r, u_\theta, u_z)^T$ der PS in Zylinderkoordinaten (r, Θ, z) (siehe Bild 2-5) kann analytisch aus den Navier-Stokes Gleichungen und der Kontinuitätsgleichung hergeleitet

werden. Hierbei werden ein unendlich langer Spalt ($L \rightarrow \infty$) sowie die Haftbedingung ($u_z=0$ bei $r=r_i$ und $r=r_o$) angenommen.

$$u_r = 0 \quad ; \quad u_\theta = 0 \quad ; \quad u_z = \frac{2}{C} u_{ax} \left[1 - \left(\frac{r}{r_o} \right)^2 - D \ln \left(\frac{r_o}{r} \right) \right] \quad (2-4)$$

mit $C = (1-\eta^4)/(1-\eta^2) - (1-\eta^2)/\ln(1/\eta)$; $D = (1-\eta^2)/\ln(1/\eta)$; $\eta = r_i/r_o$

r_o Radius Stator in m

r_i Radius Rotor in m

u_{ax} axiale Leerspaltgeschwindigkeit in m/s

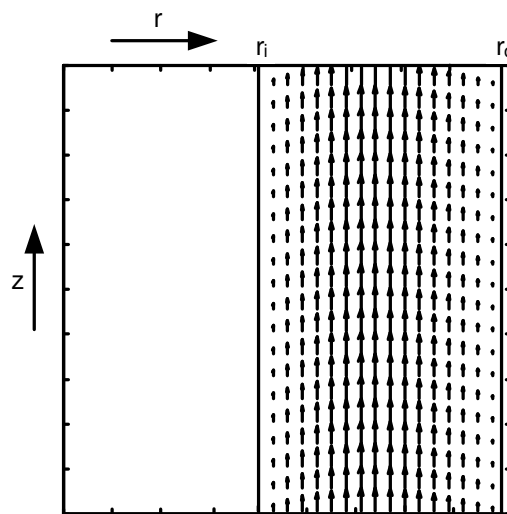


Bild 2-5: Mittels (2-4) berechnetes Geschwindigkeitsfeld im Ringspaltlängsschnitt (r-z Ebene) der Poiseuille-Strömung; $Re=2,0$.

Die Geschwindigkeitsfelder, wie sie sich nach dem Superpositionsprinzip aus der Überlagerung der rotationsbedingten Ringwirbelströmungen mit moderater, axialer Strömung ergeben, sind im folgendem Bild 2-6 exemplarisch anhand der axial propagierenden WVS dargestellt.

Charakteristisch bei allen propagierenden Ringwirbelströmungen ist, dass sich jeweils ein Bypassstrom um die einzelnen Wirbelzentren windet. Dieser ist je nach Stärke des axialen Flusses mehr oder weniger stark ausgeprägt, muss aber aufgrund der Superposition auch schon bei sehr geringen Flüssen auftreten. Im weiteren ist in Bild 2-6 das Driften der Wirbelzentren entlang des Ringspaltes zu erkennen, was aufgrund der Oszillationen der WVS hier nicht gleichmäßig stattfindet. Im Falle der LTVS würden die Wirbelzentren mit einer konstanten Driftgeschwindigkeit u_d durch den Ringspalt strömen (Wereley und Lueptow, 1999; Hwang und Yang, 2004).

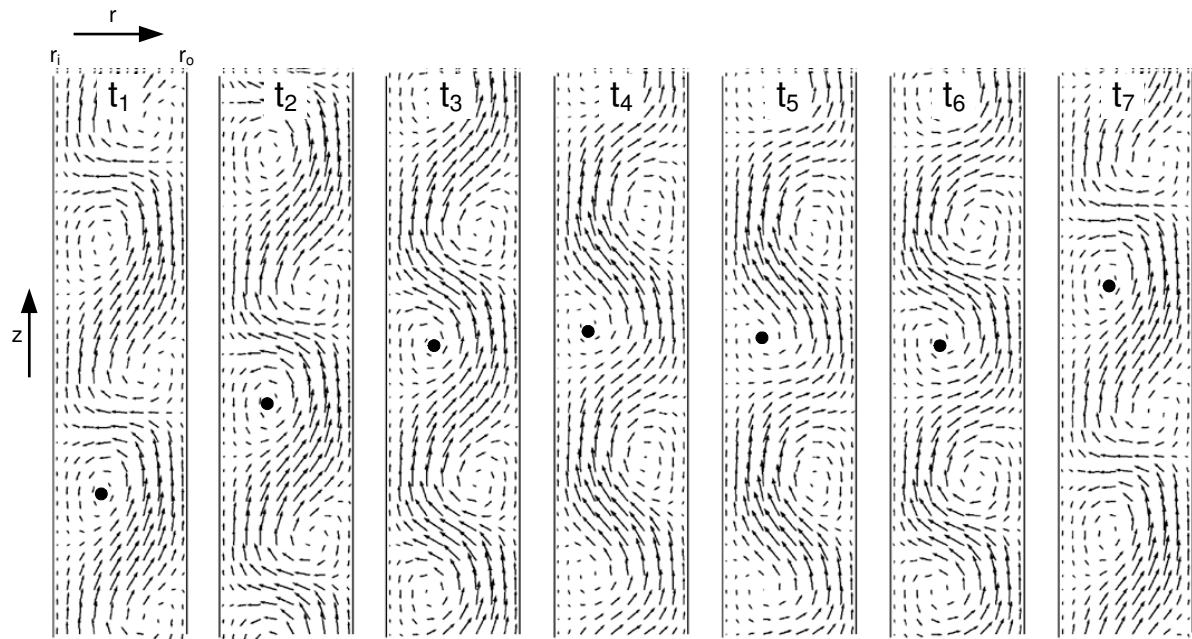


Bild 2-6: Anhand numerischer Strömungssimulation berechnete Geschwindigkeitsfelder im Ringspaltlängsschnitt (r - z Ebene) mit axialem Fluss für die Wavy-Vortex Strömung zu verschiedenen Zeitpunkten t_i ; $Ta=139$, $Re=4,9$. Der schwarze Punkt kennzeichnet das Zentrum eines durch den Ringspalt driftenden Ringwirbel; $u_d/u_{ax}=1,15$ (Hwang und Yang, 2004).

Die Driftgeschwindigkeit u_d , mit welcher die Wirbelkerne der LTVS bei Ta_{C1} , durch den Spalt wandern, ist mit Hilfe der linearen Stabilitätsanalyse berechenbar. Sie fällt hierbei etwas höher aus als die axiale Leerspaltgeschwindigkeit u_{ax} ($u_d/u_{ax} \approx 1,2$; Recktenwald et al., 1993). Eine theoretische Vorhersage der Driftgeschwindigkeit u_d für höhere Ta -Zahlen ($Ta > Ta_{C1}$) und Strömungsmoden ist nicht möglich. Ebenso sind bisher nur wenige experimentelle Daten der Ringwirbel driftgeschwindigkeit u_d in den verschiedenen Regimes verfügbar (siehe Bild 2-7). Es konnte jedoch beobachtet werden, dass die Ringwirbel der LTVS sowie der WVS teilweise sehr langsam durch den Ringspalt driften und bis zur vollständigen Stagnation kommen. Ebenso ist kein Trend in der Abhängigkeit der Driftgeschwindigkeit u_d bzw. relativen Driftgeschwindigkeit u_d/u_{ax} von den Strömungskennzahlen (Ta/Re) zu erkennen (siehe Bild 2-7), was auf ein mögliches Bifurkationsverhalten der Strömung hinweist (Wereley und Lueptow, 1999).

Jedoch konnte bisher eine Bifurkation der Ringspaltströmung nur für ein nicht axial durchströmtes System theoretisch vorhergesagt (Kogelman und DiPrima, 1970) und experimentell nachgewiesen werden (Coles, 1965; Burkhalter und Koschmieder, 1973, 1974; siehe Bild 2-8). Aufgrund der Bifurkation bilden sich je nach Spaltlänge, Startbeschleunigung des Rotors, Randbedingungen des Spaltes, Art und Weise der Ringspaltfüllung mit Fluid oder Weg, über welchen der Strömungszustand eingestellt wird, bei ein und der selben Ta -Zahl

verschiedene stabile Strömungszustände. Hierbei bleibt die grundlegende Strömungsform zwar erhalten, aber die axiale Ausdehnung l_{WP} der einzelnen Wirbelpaare (siehe Bild 2-8), sowie die Anzahl der azimuthalen Wellen bei der WVS kann variieren.

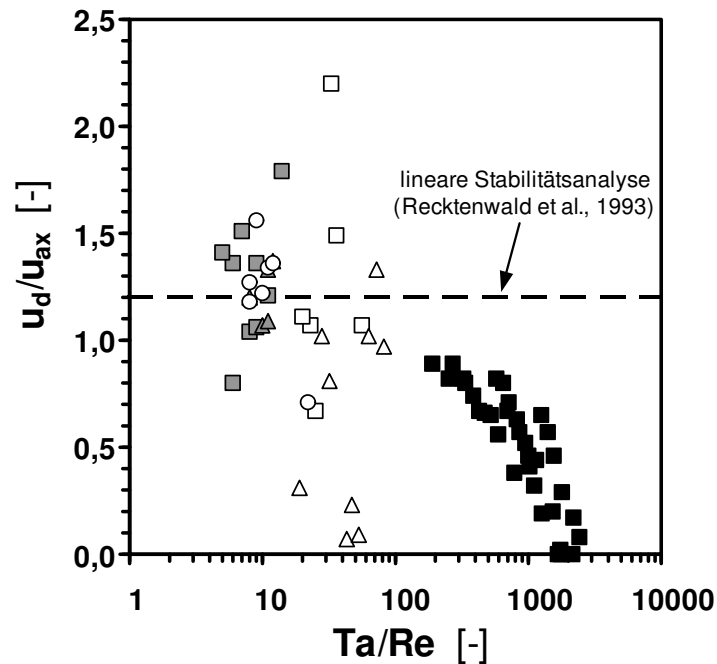


Bild 2-7: Literaturdaten der relativen Ringwirbel driftgeschwindigkeit u_d/u_{ax} dargestellt für verschiedene Strömungsregime als Funktion von Ta/Re (Giordano et al., 1998; Wereley und Lueptow, 1999). laminare Taylor-Vortex Strömung (■, □); Wavy-Vortex Strömung (△); helixförmige Taylor-Vortex Strömung (■); helixförmige Wavy-Vortex Strömung (△); chaotische Wavy-Vortex Strömung (○); aus der linearen Stabilitätsanalyse (— —; $u_d/u_{ax} \approx 1,2$; Recktenwald et al., 1993)

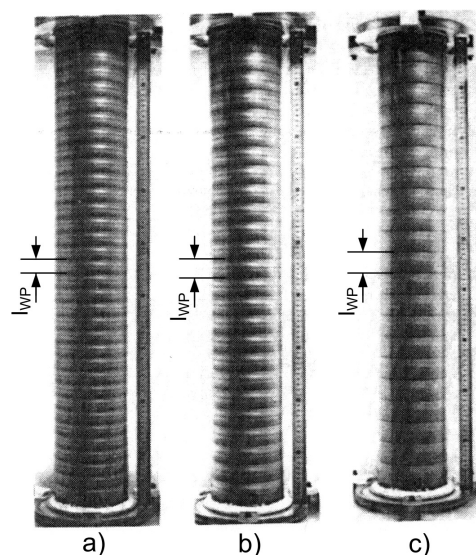


Bild 2-8: Anhand eines rheoskopischen Fluids visualisierte Bifurkation der Ringspaltströmung ohne axialen Fluss bei $Ta \approx 250$, (Burkhalter und Koschmieder, 1974). a) nach plötzlichem Rotorstart, $l_{WP}/d = 1,530$; b) nach gleichmäßiger Erhöhung der Rotordrehzahl, $l_{WP}/d = 2,020$; c) nach einem Füllexperiment des Ringspalt, $l_{WP}/d = 2,405$

2.3 Auftreten und Berechnung von Strömungsinstabilitäten

Rayleigh (1917) formulierte erstmals anhand einer Analyse der kinetischen Energie eines theoretischen, nichtviskosen Fluids ein allgemeines Stabilitätskriterium für die Ringspaltströmung. Der Durchbruch in der Stabilitätsanalyse gelang jedoch erst Taylor (1923), in dem er experimentell und theoretisch das Auftreten von Instabilitäten der CS untersuchte. Für seine theoretischen Vorhersagen entwickelte er die lineare Theorie der Stabilität, wie sie prinzipiell bis heute noch angewandt wird (siehe Anhang A2).

Heutzutage wird die lineare Stabilitätsanalyse mittels computergestützter, numerischer Näherungsverfahren durchgeführt. Somit sind Berechnungen der linearen Stabilität der CS in einem weiten Parameterbereich vorhanden ($0 \leq Re \leq 20$, $0,1 \leq r_i/r_o \leq 0,975$; Recktenwald et al., 1993; siehe Bild 2-9).

Bei der Berechnung des ersten Strömungsüberganges wird bei der linearen Stabilitätsanalyse von einem unendlichen langem Ringspalt ausgegangen ($L \rightarrow \infty$), so dass Effekte an den axialen Begrenzungen vernachlässigt werden. In realen Zylindersystemen mit endlicher Spaltlänge treten allerdings Randeffekte auf. Sie bewirken, dass für $Ta < Ta_{C1}$ an den axialen Begrenzungen sogenannte „Geister“-Ringwirbel entstehen können (Burkhalter und Koschmieder, 1973). Mit Annäherung an den kritischen Punkt bilden sich immer mehr, so dass erst bei Ta_{C1} der gesamte Ringspalt mit Taylorwirbeln ausgefüllt und somit die LTVS vollständig ausgebildet ist. Der Einfluss einer endlichen Spaltlänge auf die Vorhersage der ersten Strömungsinstabilität ist somit von untergeordneter Bedeutung (Cole, 1976), was auch die sehr gute Übereinstimmung mit experimentellen Daten zeigt (siehe Bild 2-9 a).

Die Ergebnisse der linearen Stabilitätsanalyse zeigen, dass der Übergang zwischen der CS und der LTVS stark von der Ringspaltbreite abhängt, wobei der Einfluss für sehr schmale ($r_i/r_o \rightarrow 1$) bzw. sehr breite Spalten ($r_i/r_o \rightarrow 0$) am stärksten ausgeprägt ist (siehe Bild 2-9 a).

Der stabilisierende Effekt des axialen Flusses, und somit eine Erhöhung der kritischen Ta-Zahl Ta_{C1} , wird erst bei höheren Re-Zahlen ($Re > 5$) signifikant (siehe Bild 2-9 b).

Ebenso ergibt sich, dass ein bei der kritischen Ta-Zahl Ta_{C1} gerade gebildeter Ringwirbel unabhängig der Re-Zahl einen Durchmesser nahe der Spaltbreite d aufweist und mit etwa der 1,2-fachen Leerspaltgeschwindigkeit u_{ax} entlang des Spaltes driftet ($u_d/u_{ax} \approx 1,2$). Mit zunehmender Spaltbreite ($r_i/r_o \rightarrow 0$) wird das Propagieren der Ringwirbel beschleunigt, wobei sie axial gestreckt werden (siehe Bild 2-9 c, d). Hierdurch verlieren sie ihren anfänglichen nahezu gleichmäßigen Querschnitt und werden axial deformiert.

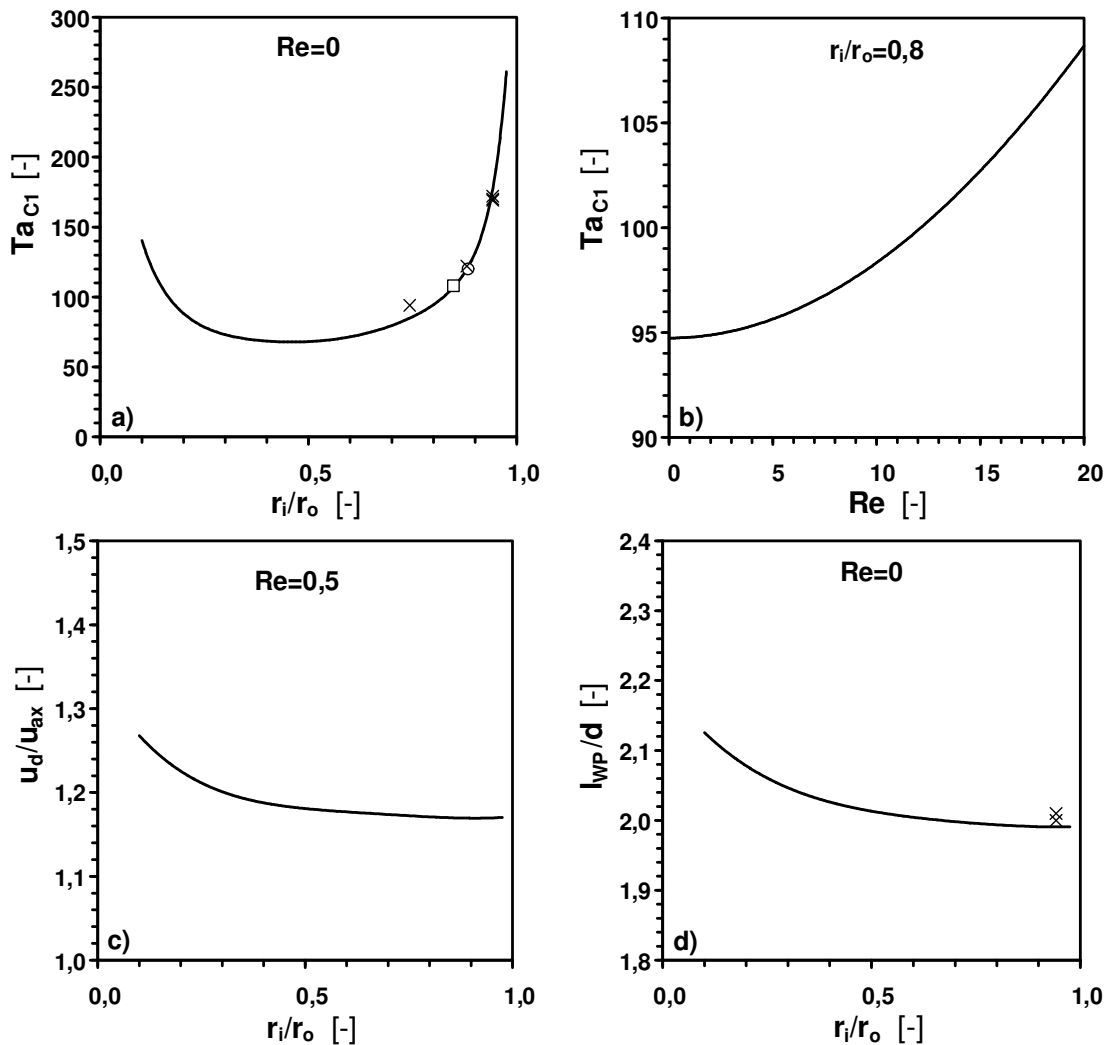


Bild 2-9: Ergebnisse der linearen Stabilitätsanalyse (— Recktenwald et al., 1993) und experimentelle Daten (\times Taylor, 1923, $87 \leq L/d \leq 383$; \circ Andereck et al., 1986, $L/d=30$; \square Lueptow et al., 1992, $L/d=41$) für die erste Strömungsinstabilität (CS \rightarrow LTVS).

Die oben diskutierten Ergebnisse der linearen Stabilitätsanalyse geben sehr gut den Strömungsübergang zwischen CS und LTVS bei Ta_{C1} wieder. Allerdings ist es mit der linearen Stabilitätsanalyse nicht möglich, das Strömungsverhalten für $Ta > Ta_{C1}$ zu analysieren. Es existieren in der Literatur weitere theoretische Ansätze, um auch die Strömungsinstabilitäten bei höheren Ta -Zahlen (LTVS \rightarrow WVS; WVS \rightarrow TVS) zu beschreiben, wie die erweiterte lineare Stabilitätsanalyse (Krueger et al., 1966; siehe Anhang A3) oder die nichtlineare Stabilitätsanalyse (Davey et al., 1968; siehe Anhang A4). Jedoch ist deren mathematische Beschreibung sehr komplex, so dass in der Literatur bisher nur Arbeiten mit starken Vereinfachungen (z. B. schmaler Spalt: $r_i/r_o \rightarrow 1$; kein axialer Fluss) publiziert wurden. Selbst die experimentelle Untersuchung der Strömungsübergänge bei höheren Ta -Zahlen beschränkt sich zumeist auf den Fall, dass der Ringspalt nicht axial durchströmt wird. Da in der vorliegenden Arbeit jedoch nur moderate axiale Ströme ($Re < 2$) untersucht wurden,

können hierfür stellvertretend die in der Literatur beschriebenen Strömungsübergänge ohne axialen Fluss betrachtet werden.

Aus experimentellen Arbeiten (siehe Tabelle 2-3) ist bekannt, dass der zweite Strömungsübergang (LTVS→WVS) im Bereich von $1,08 \leq Ta_{C2}/Ta_{C1} \leq 1,24$ auftritt, wobei er mit zunehmender Spaltbreite d zu höheren Ta -Zahlen verschoben wird. Coles (1965) stellte zusätzlich fest, dass Oszillationen der Ringwirbel nur auftreten können, wenn $r_o/r_i < 1,4$ gilt. Ergänzend zeigte Cole (1976), dass neben der Spaltbreite d auch die Spalllänge L hier einen sehr starken Einfluss auf das Auftreten der zweiten Instabilität hat, im Gegensatz zur ersten Strömungsinstabilität.

Das Auftreten erster Turbulenzen und damit die dritte Strömungstransformation (WVS→TVS) konnte in experimentellen Arbeiten in einem sehr weiten Bereich von $5,5 \leq Ta_{C3}/Ta_{C1} \leq 12,5$ nachgewiesen werden (siehe Tabelle 2-4).

Tabelle 2-3: Experimentelle Daten für das Auftreten von azimuthalen Oszillationen (LTVS→WVS) ohne axialen Fluss.

| Autoren | r_i/r_o | L/d | Ta_{C2}/Ta_{C1} |
|----------------------------|-----------------------------|-------------------------|-------------------------------------|
| Andereck et al. (1986) | 0,883 | 30 | 1,2 |
| Fenstermacher et al.(1979) | 0,877 | 20 | 1,2 |
| Cole (1976) | 0,954 | 107 | 1,08 |
| | 0,933 | 67 | 1,07 |
| | 0,914 | 61 | 1,10 |
| | 0,894 | 45 | 1,12 |
| | 0,954 | 20 | 1,24 |
| | 0,933 | 20 | 1,21 |
| | 0,914 | 20 | 1,21 |
| Lueptow et al. (1992) | 0,894 | 20 | 1,21 |
| | 0,848 | 41 | 1,16 |

Tabelle 2-4: Experimentelle Daten für das Auftreten von ersten Turbulenzen (WVS→TVS) ohne axialen Fluss.

| Autoren | r_i/r_o | L/d | Ta_{c3}/Ta_{c1} |
|--------------------------------|-----------------------------|------------|-------------------------------------|
| Schultz-Grunow und Hein (1956) | 0,840 | 50 | ≈ 10 |
| Coles (1965) | 0,874 | 27,9 | ≈ 11 |
| Fenstermacher et al. (1979) | 0,877 | 20 | ≈ 12 |
| Walden und Donnelly (1979) | 0,875 | 18 bis 80 | ≈ 11 |
| Koschmieder (1979) | 0,896 | 123 | ≈ 10 |
| Mobbs et al. (1979) | 0,908 | 65 | $\approx 5,5$ |
| Lueptow et al. (1992) | 0,848 | 41 | $\approx 12,5$ |
| Andereck et al. (1986) | 0,883 | 30 | $\approx 11,3$ |

3 MISCHEN IN REAGIERENDEN SYSTEMEN

3.1 Grundprinzipien und Größenskalen des Mischens

Das Mischen gehört zu den wichtigsten Grundoperationen der Verfahrenstechnik. Speziell in der chemischen Verfahrenstechnik müssen in Reaktoren (z. B. Rührkessel) Edukte zusammengebracht werden, damit diese schließlich reagieren können. Durch den Grad der Vermischung werden hier sehr stark Umsätze sowie Selektivitäten chemischer Reaktionen bestimmt und somit die Wirtschaftlichkeit des gesamten Verfahrens beeinflusst. Bei der Auslegung eines chemischen Reaktors spielen somit die Kenntnis und Beschreibung der Vermischung eine sehr wichtige Rolle.

Im Allgemeinen wird unter Mischen das Verteilen von Masseteilchen in einem Volumen verstanden, wobei sie sich in mindestens einer Stoffeigenschaft unterscheiden müssen. Solche Eigenschaften sind z. B. die chemische Zusammensetzung, die Temperatur, die Farbe usw.

Ziel des Mischens ist die gleichmäßige Verteilung der kleinstmöglichen Mischungsbestandteile (Partikel, Moleküle, usw.) und somit eine Homogenisierung der verschiedenen Komponenten, um die Produktqualität und/oder die Ausbeute eines Verfahrens zu erhöhen. Hierfür muss eine Relativbewegung zwischen den einzelnen Komponenten vorhanden sein, welche im Detail eine Verteilung, Deformation, Scherung und/oder Zerfallen einzelner Komponentenbereiche beinhaltet.

Es wird allgemein zwischen zwei Mischarten unterschieden. Beim distributiven Mischen werden einzelne Volumenelemente gegeneinander verschoben, während das disperse Mischen neben dem Verteilen noch ein Zerteilen beinhaltet. Hierbei können vereinfachend jeweils drei Teilschritte (siehe Bild 3-1) des eigentlich sehr komplexen Mischvorganges voneinander abgegrenzt werden (Villiermaux, 1983):

- grobe Verteilung der Komponenten ineinander und Vereinheitlichung der durchschnittlichen Zusammensetzung ohne die ursprüngliche lokale Konzentration zu verändern
- Reduzierung der Größe der Bereiche mit identischer Zusammensetzung
- mischen durch molekulare Diffusion.

Die drei Teilschritte des Mischens (verteilen, verkleinern, diffundieren) können nacheinander oder parallel ablaufen, wobei die molekulare Diffusion die letzte Stufe darstellt und eine molekulare Homogenität bei ineinander löslichen Komponenten ermöglicht. Erst auf dieser molekularen Ebene kann eine anschließende chemische Reaktion stattfinden.

Durch die ersten zwei Mischvorgänge (verteilen, verkleinern) werden der Wärme- und Stofftransport zwischen den Fluidballen stark beschleunigt, da sich ihre gesamte Austauschoberfläche vergrößert, sowie die mittlere Distanz zwischen ihnen (Mittelpunkt-Mittelpunkt) verkürzt wird. Als logische Folge hieraus ergibt sich, dass die Zeitspanne bis zur erwünschten molekularen Homogenität deutlich gegenüber dem reinen diffusiven Mischen verkürzt werden kann. Dies ist ein äußerst wichtiger Aspekt sofern neben dem Mischen noch ein zeitlich abhängiger Vorgang wie eine chemische Reaktion, abläuft.

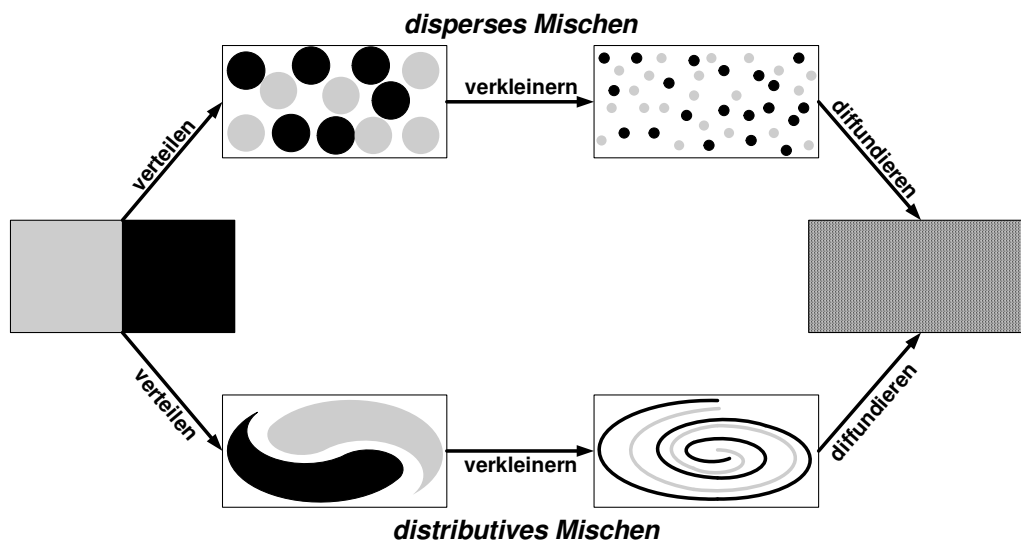


Bild 3-1: Teilschritte des dispersen bzw. distributiven Mischens.

Die weitere Vorgehensweise bei der Formulierung des Mischens hängt sehr stark vom Blickwinkel auf das Mischproblem ab, wobei zwischen einer Eulerschen (ortsfesten) und Lagrangeschen (materiefesten) Betrachtungsweise unterschieden werden muss.

Der in der Strömungsmechanik verbreitete Eulersche Ansatz führt zu sehr komplexen Differentialgleichungssystemen, die das Mischen (auch turbulent) beschreiben, bzw. zu Modellen für das turbulente Mischen, welche sich aus der statistischen Theorie der Turbulenz ableiten. Der Vorteil hierbei ist, dass eine detaillierte räumliche Beschreibung des Mischens vorliegt sofern das Problem mathematisch lösbar ist.

Der in der chemischen Verfahrenstechnik übliche Lagrangesche Ansatz, kann das Mischen nicht räumlich auflösen. Aber durch die einfachere Herangehensweise werden auch sehr komplexe, reale Systeme mathematisch handhabbar.

Die materiefeste Betrachtung des Mischens, wie sie auch in der vorliegenden Arbeit angewandt wurde, führt zu dem in der chemischen Verfahrenstechnik sehr verbreitetem Konzept der Verweilzeitverteilung und Mikromischung. Hierbei wird das Mischen in

kontinuierlich durchströmten Systemen durch zwei Teilprozesse unterschiedlicher Größenskalen beschrieben:

- Makromischung: Sie definiert großflächige Verteilungs- und Strömungsvorgänge und entspricht in kontinuierlich durchströmten Systemen der Verweilzeitverteilung von Fluidelementen bzw. Molekülen. Sie ist unabhängig von der Mikromischung zu betrachten.
- Mikromischung: Sie definiert alle weiteren lokalen Einflüsse, sowie auch die Historie und Zeitpunkt des Mischens einzelner Fluidelemente bzw. Moleküle. Außerdem wird sie von der Makromischung beeinflusst, da diese ihre Randbedingungen definiert.

3.2 Makromischung im Taylor-Vortex System

3.2.1 Theorie der Verweilzeitverteilung

Die Theorie der Verweilzeitverteilung betrachtet Elemente, welche in ein System eintreten, es durchströmen und es wieder verlassen. Das Alter eines Elements beim letztendlichen Austritt aus dem System wird Verweilzeit t genannt und wird offensichtlich durch die Strömungsverhältnisse bzw. die Makromischung des Systems beeinflusst. Notwendigerweise sind bei der Theorie der Verweilzeitverteilung folgende Axiome zu postulieren (Nauman und Buffham, 1983):

- Das strömende Fluid besteht aus konservierten Elementen (z. B. Partikel, Moleküle, Fluidballen), die sich nicht neu bilden oder im System zerfallen.
- Jedes Element hat einen ursprünglichen Eintritt und einen letztendlichen Austritt aus dem System. Es befinden sich also keine Elemente von Anfang an in dem System und bleiben auch nach unendlich langer Zeit nicht im System zurück (keine Akkumulation).
- Das System besteht aus einem definierten endlichen Volumen, in welches die Elemente über definierte Verbindungen ein- und austreten.
- Es gibt keine Mehrdeutigkeit, und ein Element ist somit immer eindeutig innerhalb oder außerhalb des Systems.
- Die Elemente, welche in das System eintreten, haben ein Alter von null und altern entsprechend der Zeit, die sie dort verbringen. Tritt ein Element aus dem System aus, stoppt das Altern und wird beim erneuten Wiedereintritt fortgesetzt.

Diese sehr essentiellen Grundgedanken erlauben das Behandeln von komplexen, nicht-isothermen Systemen mit einer Vielzahl von Ein- bzw. Auslässen, instationären Strömen, zeitabhängigen Systemgrenzen und mehreren Phasen. Um die sehr allgemeine Theorie der Verweilzeitverteilung weiter zu vereinfachen, werden ergänzend zu den obigen Axiomen weitere in der chemischen Verfahrenstechnik übliche Annahmen getroffen:

- Das System wird stationär durchströmt.
- Es gibt nur jeweils einen Ein- und Ausgang.
- Das System ist homogen, d.h. es ist einphasig.
- Das System ist isotherm.

Die folgende Methodik und die später eingeführten Verweilzeitmodelle für Taylor-Vortex Systeme (siehe Kapitel 3.2.4) gelten zwar streng nur für einphasige Systeme, sind aber auch

auf mehrphasige Systeme anwendbar. Hierbei muss dann die starke Vereinfachung einer Quasi-Homogenität getroffen werden. Dies ist gerechtfertigt, wenn das mehrphasige Gemisch gleichmäßig verteilt vorliegt oder keine Stofftransportlimitierungen zwischen den Phasen herrscht.

Sollte die Bedingung der Quasi-Homogenität und/oder Isothermie nicht erfüllt werden können, gibt es die Möglichkeit das System heterogen zu betrachten und das Verweilzeit-Konzept auf Kontaktzeit- bzw. Temperaturzeit-Konzepte zu erweitern (Villiermaux, 1983; Nauman und Buffham, 1983) und somit spezielle heterogene Modelle zu entwickeln (Wen und Fan, 1975a).

Wird nun ein einfaches, kontinuierlich durchströmtes und homogenes System (siehe Bild 3-2) betrachtet, in das am Eingang schlagartig zum Zeitpunkt $t=0$ ein Kollektiv von markierten Elementen eingebracht wird, kann am Ausgang jeweils deren Menge n erfasst werden, welche in den darauf folgenden Zeitintervallen Δt das System verlassen.

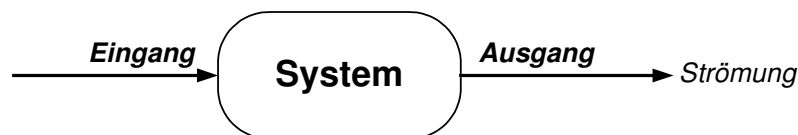


Bild 3-2: Ein einfaches Strömungssystem.

Hieraus ergibt sich ein Histogramm der individuellen Verweilzeiten t_i einzelner Elemente, aus welchem für $\Delta t \rightarrow 0$ und entsprechender Normierung, die Verweilzeitverteilung $E(t)$ gemäß (3-1) hervorgeht (siehe Bild 3-3).

$$E(t) = \frac{n(t)}{\int_0^{\infty} n(t) dt} \quad (3-1)$$

mit $n(t)$ Menge markierter Elemente [-]

Es ist offensichtlich, dass je nach Strömungsverhältnissen und makroskopischer Vermischung im System die individuelle Verweilzeit t_i einzelner Elemente unterschiedlich sein kann. Somit charakterisiert die Verweilzeitverteilung $E(t)$ eindeutig den Strömungszustand bzw. die Makromischung im betrachteten System.

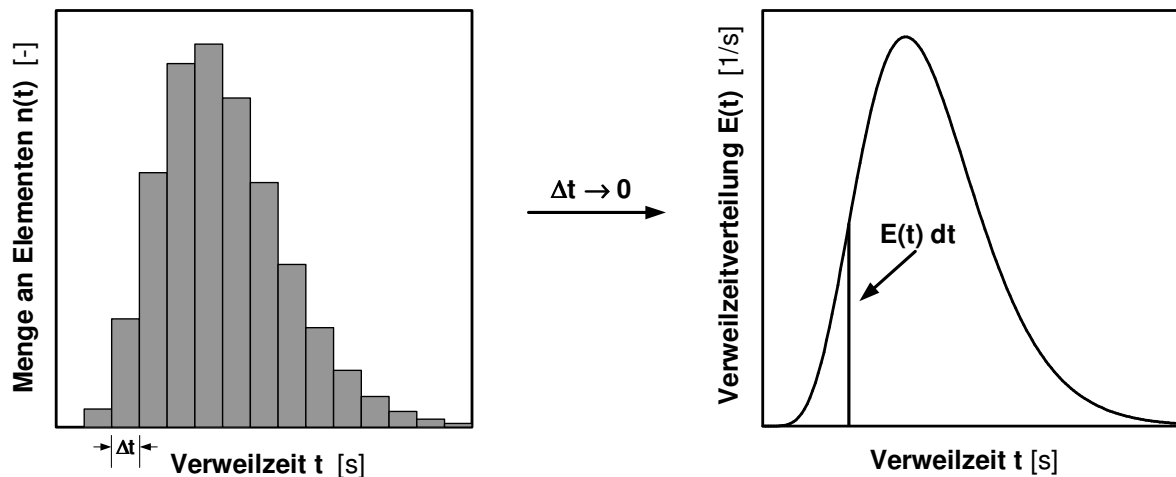


Bild 3-3: Histogramm der Verweilzeiten einzelner Elemente (*links*) und die sich daraus ergebende Verweilzeitverteilung $E(t)$ (*rechts*).

Der Ausdruck $E(t) \cdot dt$ in Bild 3-3 beschreibt anschaulich ausgedrückt den Anteil an Elementen, welche die Zeit t bis $t+dt$ im System verbracht haben bzw. die Wahrscheinlichkeit, dass Elemente des Kollektivs eine Verweilzeit t im Intervall $(t, t+dt)$ aufweisen. Hierbei muss logischerweise (3-2) gültig sein, da eine Akkumulation von Elementen im System per Axiom nicht erlaubt ist.

$$\int_0^{\infty} E(t) dt = 1 \quad (3-2)$$

Aus der Verweilzeitverteilung $E(t)$ lassen sich weitere praktische Verteilungsfunktionen ableiten.

$$F(t) = \int_0^{t'} E(t) dt \quad ; \quad W(t) = \int_{t'}^{\infty} E(t) dt \quad ; \quad F(t) + W(t) = 1 \quad (3-3)$$

Die kumulative Verweilzeitverteilung $F(t)$ beschreibt hierbei den Anteil an Elementen bzw. deren Wahrscheinlichkeit eine Verweilzeit kleiner t' zu haben. Die sogenannte Auswaschfunktion der Verweilzeitverteilung $W(t)$ gibt hingegen den Anteil an Elementen bzw. deren Wahrscheinlichkeit an, eine Verweilzeit größer t' zu haben (siehe Bild 3-4).

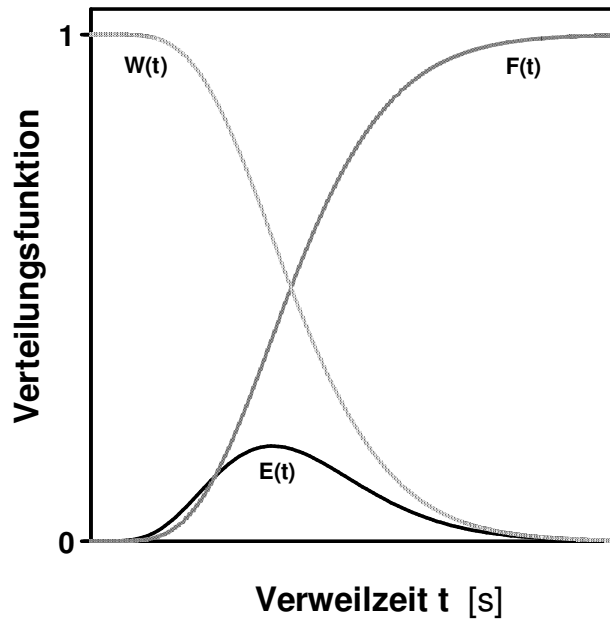


Bild 3-4: Die verschiedenen Verteilungsfunktionen der Verweilzeit.

Ein analytischer Ausdruck für die Verweilzeitverteilung $E(t)$ kann den Kurvenverlauf exakt beschreiben. Eine andere Möglichkeit besteht darin, die Verweilzeitverteilung $E(t)$ durch ihre sogenannten Momente n -ter Ordnung zu definieren. Oftmals kann die Verweilzeitverteilung $E(t)$ ausreichend (aber nicht exakt) durch zwei Parameter bzw. Momente beschrieben werden. Das Moment erster Ordnung ist die mittlere Verweilzeit T_k entsprechend (3-4), welche in einer volumenstabilen Strömung (Dichte konstant) auch anhand des durchströmten Volumens V und dem Volumenstrom Q bestimmt ist.

$$T_k = \frac{V}{Q} = \int_0^{\infty} t E(t) dt \quad (3-4)$$

mit V Volumen in m^3 Q Volumenstrom in m^3/s
 $E(t)$ Verweilzeitverteilung in $1/s$

Das Moment zweiter Ordnung ergibt gemäß (3-5) die Varianz σ^2 der Verteilung und ist ein Maß für die Breite der Verteilungsfunktion.

$$\sigma^2 = \int_0^{\infty} t^2 E(t) dt - T_k^2 \quad (3-5)$$

mit T_k mittlere Verweilzeit in s $E(t)$ Verweilzeitverteilung in $1/s$

Um die Verteilungsfunktionen $E(t)$, $F(t)$ und $W(t)$ verschiedener Systeme unabhängig von deren absoluten Verweilzeiten t vergleichen zu können, ist es zweckmäßig sie entsprechend (3-6) jeweils auf die mittlere Verweilzeit T_k zu normieren.

$$\frac{t}{T_k} = \Theta \quad ; \quad E_{\Theta}(\Theta) = T_k E(t) \quad ; \quad F_{\Theta}(\Theta) = F(t) \quad ; \quad W_{\Theta}(\Theta) = W(t) \quad (3-6)$$

mit T_k mittlere Verweilzeit in s Θ normierte Verweilzeit [-]

3.2.2 Messmethoden der Verweilzeitverteilung

Es ist bei der experimentellen Bestimmung der Verweilzeitverteilung grundlegend zwischen physikalischen und chemischen Methoden zu unterscheiden.

Bei der physikalischen Vorgehensweise, wie sie auch in der vorliegenden Arbeit angewandt wurde, wird die Verweilzeitverteilung anhand des Konzentrationsverlaufs von nicht-reaktiven Spurstoffen (Tracer) ermittelt. Die Anforderungen an einen Tracer und die entsprechende Zugabe lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- vollständige Löslichkeit und ähnliche Dichte/Viskosität, wie das zu untersuchende Fluid;
- keine Adsorption oder Desorption im System (Katalysator, Reaktorwand, usw.);
- Unterschied zum untersuchendem Fluid in mindestens einer messbaren physikalischen Eigenschaft (Leitfähigkeit, Brechungsindex, usw.), welche proportional der Tracermenge ist;
- Zugabe von sehr geringen Mengen über den gesamten Strömungsquerschnitt, um die eigentliche Strömung möglichst wenig zu beeinflussen;
- gute Aufzeichnung und Detektierbarkeit der physikalischen Eigenschaft auch in sehr geringen Mengen mit möglichst linearer Abhängigkeit zum Messgerätesignal.

Abhängig vom zu untersuchenden Stoffsystem werden in flüssigen Phasen meist Salzlösungen (z. B. NaCl, KCl, NaNO₃), Farbstofflösungen (z. B. Alizarin, KMnO₄) oder radioaktive Substanzen (z. B. Ba¹⁴⁰, Sb¹²⁴) verwendet, wobei die Analytik mit Konduktometern, Photometern oder Geiger-Zählern erfolgt.

In gasförmigen Systemen finden hingegen Tracergase Anwendung wie z. B. CO₂, He, H₂, NH₃, C₃H₈. Die hierfür passenden quantitativen Messgeräte sind Wärmeleitfähigkeit-Detektoren, Infrarotspektrometer oder auch Flammenionisation-Detektoren (Wen und Fan, 1975).

Im vorherigen Kapitel 3.2.1 wurde nur der Fall betrachtet, wenn schlagartig markierte Elemente (Tracer) in das System eingebracht werden entsprechend der Idealvorstellung eines unendlich schmalen und unendlich hohen Impulses, dem sogenannten Dirac-Impuls $\delta(t-a)$. Er ist entsprechend (3-7) definiert.

$$\delta(t-a) = \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \frac{1}{\sqrt{2\pi\varepsilon}} \exp\left[-\frac{(t-a)^2}{2\varepsilon}\right] \quad (3-7)$$

mit a Abszissenverschiebung Dirac-Impuls in s

Für diesen Fall ergibt sich am Ausgang als Systemantwort direkt die Verweilzeitverteilung $E(t)$. Wird nun am Eingang ein beliebiges Tracer-Signal $c_{\text{ein}}(t)$ aufgegeben, kann anhand der Laplace-Transformation gemäß (3-8) die Systemantwort $c_{\text{aus}}(t)$ bei Kenntnis der Verweilzeitverteilung $E(t)$ mit (3-9) ermittelt werden oder auch umgekehrt die Verweilzeitverteilung $E(t)$.

$$f^*(s) = \int_0^{\infty} e^{-st} f(t) dt \quad (3-8)$$

mit $f^*(s)$ Laplace-transformierte Funktion [-] $f(t)$ ursprüngliche Funktion in $1/s$

$$c_{\text{aus}}^*(s) = c_{\text{ein}}^*(s) \cdot E^*(s) \quad (3-9)$$

mit $c_{\text{aus}}^*(s)$ Laplace-transformiertes Ausgangssignal Tracer [-]

$c_{\text{ein}}^*(s)$ Laplace-transformiertes Eingangssignal Tracer [-]

$E^*(s)$ Laplace-transformierte Verweilzeitverteilung [-]

Es haben sich aber aufgrund der einfacheren Auswertung Puls- und Sprungexperimente als Messmethoden für die Verweilzeitverteilung etabliert.

Beim Pulsexperiment wird als Eingangssignal $c_{\text{ein}}(t)$ ein Dirac-Impuls $\delta(t-a)$ des Tracers bzw. eine möglichst gute Annäherung davon aufgegeben. Die Verweilzeitverteilung $E(t)$ ergibt sich dann direkt aus dem Ausgangssignal $c_{\text{aus}}(t)$ entsprechend (3-10).

$$E(t) = \frac{c_{\text{aus}}(t)}{\int_0^{\infty} c_{\text{aus}}(t) dt} \quad (3-10)$$

mit $c_{\text{aus}}(t)$ Ausgangssignal Tracer; Einheit entsprechend

Bei den Sprungexperimenten wird hingegen ein positiver ($c_{\text{ein}}(t < 0) = 0$, $c_{\text{ein}}(t > 0) = \text{konstant}$) oder negativer ($c_{\text{ein}}(t < 0) = \text{konstant}$, $c_{\text{ein}}(t > 0) = 0$) Tracersprung dem System aufgeprägt. Es ergeben sich die Verteilungsfunktionen $F(t)$ bzw. $W(t)$ wiederum direkt aus dem Ausgangssignal $c_{\text{aus}}(t)$ gemäß (3-11).

$$\begin{aligned} \text{positiver Sprung: } F(t) &= \frac{c_{\text{aus}}(t)}{c_{\text{aus}}(t \rightarrow \infty)} \\ \text{negativer Sprung: } W(t) &= \frac{c_{\text{aus}}(t)}{c_{\text{aus}}(t = 0)} \end{aligned} \quad (3-11)$$

mit $c_{\text{aus}}(t)$ Ausgangssignal Tracer; Einheit entsprechend

Aus praktischer Sicht lässt sich nie ein idealer Dirac-Impuls bzw. Sprung realisieren. Die Verfälschung der gemessenen Verteilungsfunktion lässt sich aber bei guter Experimentierweise vernachlässigen, wenn z. B. die Pulszugabe bzw. der Sprung sehr viel kürzer ausfällt als die mittlere Verweilzeit T_k im System.

Ebenso können die Zuleitungen ab der Tracerzugabestelle bis in das zu untersuchende System sowie die eigentliche Messzelle am Systemausgang die gemessene (gesamte) Verweilzeitverteilung $E(t)$ verfälschen, da sie jeweils ein in Reihe geschaltetes Subsystem repräsentieren. Abhilfe wird hierbei durch schmale Zuleitungen, kleine Messzellen oder zusätzliche Einbauten erreicht, so dass sich hier eine Kolbenströmung ausbildet.

Die chemische Methode, um experimentell Verweilzeitverteilungen $E(t)$ zu ermitteln, besteht aus der Anwendung von Testreaktionen erster Ordnung. Nach Danckwerts (1953) kann der Reaktionsumsatz X einer Reaktion erster Ordnung bei stationärem Reaktorbetrieb entsprechend (3-12) eindeutig aus der Verweilzeitverteilung $E(t)$ bestimmt werden.

$$\frac{c_i}{c_{i0}} = 1 - X = \int_0^{\infty} e^{-k_1 t} E(t) dt \quad (3-12)$$

mit c_i stationäre Ausgangskonzentration Spezies i in mol/m^3

c_{i0} stationäre Eingangskonzentration Spezies i in mol/m^3

k_1 Geschwindigkeitskonstante erster Ordnung in $1/s$

Im umgekehrten Fall kann mit (3-12) anhand des gemessenen Reaktionsumsatzes X die Verweilzeitverteilung $E(t)$ bestimmt werden. Durch Vergleich mit (3-8) ist zu erkennen, dass (3-12) formal einer Laplace-Transformation entspricht. Wird nun für verschiedene Geschwindigkeitskonstanten k_1 der stationäre Reaktionsumsatz X gemessen, kann aus dem

grafisch oder analytisch bestimmten Zusammenhang $1-X=f(k_1)$ die Verweilzeitverteilung $E(t)$ durch eine entsprechende Rücktransformation extrahiert werden.

Eine große Schwierigkeit bei dieser Messmethode ist, dass die Geschwindigkeitskonstante k_1 variiert werden muss (z. B. über Temperaturänderung), ohne die Verweilzeitverteilung $E(t)$ des Reaktors zu beeinflussen. Ebenfalls führt die notwendige (numerische) Rücktransformation zu großen Ungenauigkeiten.

Aus diesen Gründen stellt die Ermittlung der Verweilzeitverteilung mittels chemischer Methoden einen Spezialfall dar, welcher eher selten in der Praxis Anwendung findet. Ein Beispiel hierfür ist die Bestimmung von Kontaktzeit-Verteilungen in Wirbelschichten anhand der Zersetzungsreaktion von Ozon an Eisenoxidpartikeln (Orcutt et al., 1962).

3.2.3 Makromischung im System ohne axialen Fluss

In der Literatur werden ein Vielzahl von Arbeiten diskutiert, in denen die makroskopischen Stofftransportvorgänge in einem Taylor-Vortex System ohne axiale Durchströmung meistens anhand von Spurstoffversuchen aber auch mit modernen laseroptischen Methoden untersucht wurden. Die im folgenden dargestellten makroskopischen Stofftransportmodelle entsprechen natürlich keinen Verweilzeitmodellen, spiegeln aber wichtige Eigenschaften der Mischcharakteristik auch für durchströmte Taylor-Vortex Systeme wider.

Die Untersuchungen beschränkten sich immer auf eine zylindrische Rotorgeometrie, wobei meist die Vermischung im Ringspaltlängsschnitt (r - z Ebene) betrachtet wurde. Diese Vereinfachung ist zulässig, da die Zeitkonstante der Vermischung in Umfangsrichtung meist sehr viel kleiner ausfällt, als in axialer oder radialer Richtung (Desmet et al., 1996b).

Das makroskopische Stofftransportverhalten wurde bisher grundlegend durch zwei Modelltypen beschrieben.

Vereinzelt kam ein theoretischer Dispersionsansatz (in Zylinderkoordinaten: r , Θ , z) gemäß (3-13) zur Anwendung, welcher in den Grundzügen dem im folgenden Kapitel 3.2.4 vorgestelltem axialem Dispersionsmodell ähnelt und daher hier nicht weiter diskutiert wird (Desmet et al., 1996b; Tam und Swinney, 1987).

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = \frac{\bar{u}_{\text{tan}}}{r_m} \frac{\partial c_i}{\partial \Theta} + D_{\text{tan}} \frac{1}{r_m^2} \frac{\partial^2 c_i}{\partial \Theta^2} + D_{\text{ax}} \frac{\partial^2 c_i}{\partial z^2} \quad (3-13)$$

| | | |
|-----|---------------------------------|---|
| mit | c_i | Konzentration Spezies i in mol/m ³ |
| | $D_{\text{tan}}; D_{\text{ax}}$ | tangentialer bzw. axialer Dispersionskoeffizient in m ² /s |
| | \bar{u}_{tan} | mittlere tangentiale Geschwindigkeit in m/s |
| | r_m | mittlere Ringspalt Durchmesser in m |

Hauptsächlich wurden aber empirische Zellenmodelle (ein oder mehrparametrig) entwickelt, welche sich von phänomenologischen Strömungseigenschaften der Ringwirbelströmung ableiten (Desmet et al., 1996a, 1997; Campero und Vigil, 1997; Ohmura et al., 1997; Racina et al., 2005).

Die empirischen, einparametrischen Zellenmodelle greifen den zellulären Strömungscharakter der Taylor-Vortex Strömung auf (vergleiche Kapitel 2.2.1), so dass die Ringwirbel oder teilweise auch Ringwirbelpaare (Ohmura et al., 1997) als jeweils perfekt vermischte Einheit betrachtet werden. Mit steigender Ta-Zahl und den entsprechenden Strömungsübergängen (LTVS→TVS) geht der zelluläre Charakter der Ringspaltströmung allmählich verloren und Stofftransfer zwischen angrenzenden Zellen setzt deutlich ein. Hierbei wird der Stoffaustausch zwischen den Zellen bei der LTVS noch von der molekularen Diffusion dominiert (Desmet et al., 1996b), steigt aber mit zunehmender Ta-Zahl durch konvektive Anteile (WVS) und einsetzende Turbulenz (TVS) sehr stark an.

Das mehrparametrische Multizonen-Modell (siehe Bild 3-5) von Desmet et al. (1996a, 1997) stellt eine allgemeine Form der oben erwähnten Zellenmodelle dar. Es berücksichtigt im Vergleich zu den vorherigen Ansätzen erstmals, dass ein Ringwirbel im Inneren nicht immer perfekt vermischt ist. Hierfür werden die einzelnen Ringwirbel in perfekt vermischte Subbereiche unterteilt wobei abhängig vom Vermischungsgrad der Ringwirbel unterschiedlich starker Stofftransport zwischen benachbarten Subbereichen auftritt.

Mit diesem generalisierten Modell kann nun abgebildet werden, dass besonders bei den laminaren Strömungsregimen (LTVS, WVS) das Fluid in den Wirbelgrenzschichten sehr viel schneller entlang des Ringspaltes verteilt wird, als jenes in den Wirbelkernen (Desmet et al., 1996a). Die Stoffmengenbilanz für das Multizonen-Modell mit N Ringwirbeln (exemplarisch für zwei Zonen, siehe Bild 3-5) wird durch folgendes System (3-14) gekoppelter Differentialgleichungen erster Ordnung beschrieben. Da die Austauschoberflächen A_j , Volumina V_j und die Anzahl N der Ringwirbel aufgrund der Systemgeometrie als vorgegeben

zu betrachten sind, wird hier der axiale Stofftransport durch die Stofftransportkoeffizienten β_i charakterisiert.

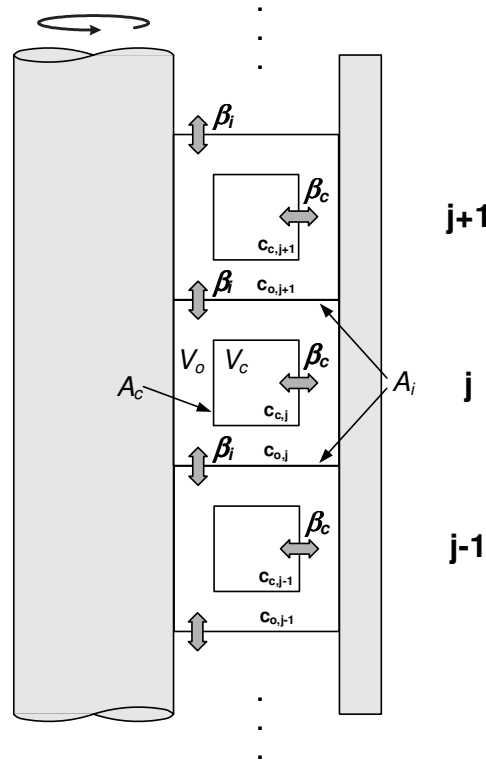


Bild 3-5: Multizonen-Modell nach Desmet et al. (1996a, 1997); exemplarisch für zwei Zonen

Kernbereich:

$$V_c \frac{dc_{c,j}}{dt} = A_c \beta_c (c_{o,j} - c_{c,j})$$

Randbereich:

$$V_o \frac{dc_{o,1}}{dt} = A_i \beta_i (c_{o,2} - c_{o,1}) + A_c \beta_c (c_{c,1} - c_{o,1}) \quad (3-14)$$

⋮

$$V_o \frac{dc_{o,j}}{dt} = A_i \beta_i (c_{o,j-1} - 2c_{o,j} + c_{o,j+1}) + A_c \beta_c (c_{c,j} - c_{o,j})$$

⋮

$$V_o \frac{dc_{o,N}}{dt} = A_i \beta_i (c_{o,N-1} - c_{o,N}) + A_c \beta_c (c_{c,N} - c_{o,N})$$

mit N Anzahl der Ringwirbel

β_c ; β_i Stofftransportkoeffizient innerer bzw. äußerer Bereich in m/s

$c_{o,j}$; $c_{c,j}$ Konzentration Rand- bzw. Kernbereich in mol/m³

V_o ; V_c Volumen Rand- bzw. Kernbereich in m³

A_i ; A_c Austauschoberfläche Rand- bzw. Kernbereich in m²

3.2.4 Makromischung im System mit axialem Fluss

Bei den Verweilzeitmodellen für ein kontinuierlich durchströmtes Taylor-Vortex System kann zwischen empirischen und theoretischen Modellen differenziert werden. Die empirischen Verweilzeitmodelle basieren auf den Zellenmodellen ohne axialen Fluss (vergleiche Kapitel 3.2.3) und wurden ebenfalls bei zylindrischer Rotorgeometrie angewandt. Die einfacheren, einparametrischen Modelle betrachten wiederum einen Ringwirbel (Kataoka et al., 1975) oder ein Ringwirbelpaar (Kataoka und Takigawa, 1981) als perfekt vermischten Bereich mit Stoffaustausch zu den angrenzenden Zellen, welcher nun aber aufgrund der axialen Durchströmung mit der axialen Leerspaltgeschwindigkeit u_{ax} entlang des Ringspaltes wandert.

Ebenso wurde das Multizonen-Modell von Desmet et al. (1997) direkt adaptiert (siehe Bild 3-5), wobei der äußere Bereich (Randbereich) axial durchströmt wird (Haut et al., 2003).

Das mehrparametrische Modell nach Syed und Früh (2003) berücksichtigt das Auftreten eines Bypassstromes, welcher sich aufgrund des axialen Flusses um die Ringwirbel windet (vergleiche Kapitel 2.2.2). Hierbei wird der Ringspalt zwischen den Ringwirbeln und dem Bypassbereich aufgeteilt. Wie bei den vorherigen Modellen tritt Stofftransport zwischen den Ringwirbeln auf. Zusätzlich wird aber auch Materie mit dem Bypassstrom ausgetauscht, wobei die Dispersion entlang des Bypassbereiches ebenfalls berücksichtigt wird (siehe Bild 3-6).

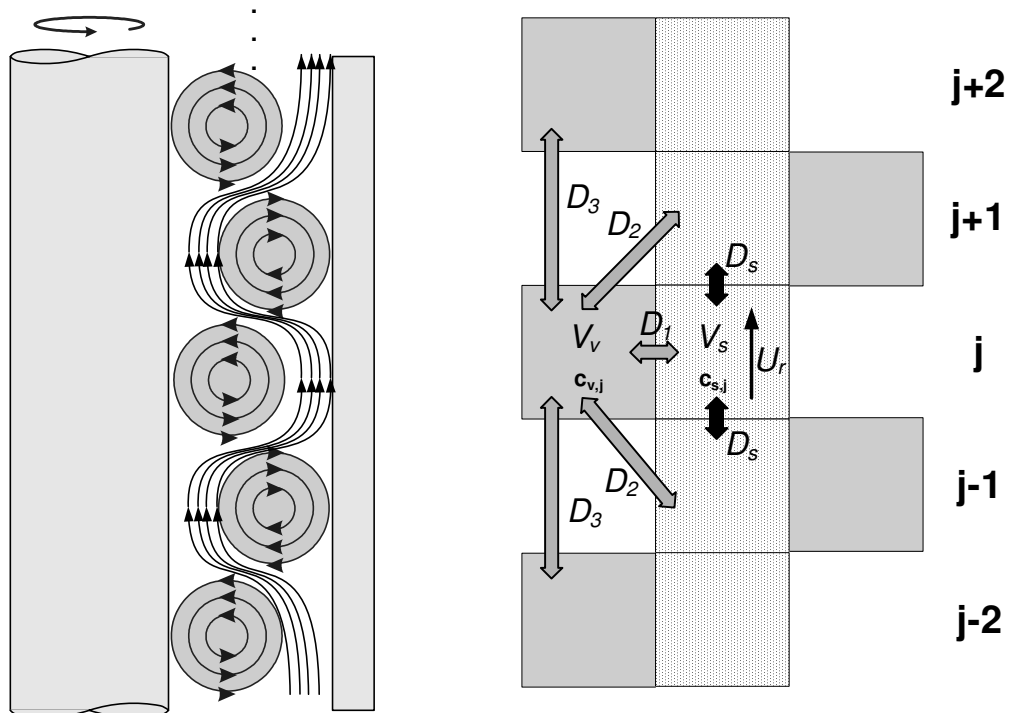


Bild 3-6: Modell für ein axial durchströmtes Taylor-Vortex System mit Bypassströmung (Syed und Früh, 2003).

Giordano et al. (2000a) betrachteten zusätzlich zu dem Bypass, dass die Ringwirbel am Ringspaltausgang schrumpfen, kollabieren und schließlich mit dem Vorherigen einen neuen Ringwirbel formieren.

Die entsprechende Stoffbilanz für das Modell von Syed und Früh (2003) (siehe Bild 3-6) ergibt folgendes System (3-15) gekoppelter Differentialgleichungen erster Ordnung, wobei hier die Makromischung durch die verschiedenen Dispersionskoeffizienten D_i sowie die relative Driftgeschwindigkeit U_r zwischen Bypass und Ringwirbel beeinflusst wird.

Das axiale Voranschreiten der Ringwirbel wird dadurch berücksichtigt, dass das Gleichungssystem (3-15) iterativ in den Zeitintervallen Δt gelöst wird. Die Zeitspanne Δt entspricht hierbei der Zeit, die ein Ringwirbel benötigt, um einmal dem Wirbeldurchmesser d entsprechend in axialer Richtung mit der Driftgeschwindigkeit u_d zu wandern ($\Delta t = d/u_d$). Der Zellenindex j wird nach jeder Zeitspanne Δt inkrementell erhöht, wobei die letzte (N-te) Ringwirbel- bzw. Bypasszelle aus dem System austritt. Aus deren Mittelung ergibt sich dann die Austrittskonzentration aus dem Taylor-Vortex System. Zeitgleich treten am Eingang die entsprechenden neuen Zellen mit der Eintrittskonzentration ein.

Ein Ausdruck für die Verweilzeitverteilung $E(t)$ bzw. die normierte Verweilzeitverteilung $E_{\Theta}(\Theta)$ muss hier, wie bei allen Zellenmodellen, aus der Lösung der Stoffbilanz und dann entsprechend mit (3-10) sowie mit (3-6) bestimmt werden. Die Randbedingungen der Stoffbilanzen sind durch ein fiktives Tracerexperiment festgelegt ($t=0$: $c_{v,1}=c_0$ und $c_{v,j}=c_{s,j}=0$).

In Bild 3-7 sind ausgewählte Ergebnisse der Verweilzeitmodellierung von Syed und Früh (2003) für ein moderat durchströmtes Taylor-Vortex System (18 Ringwirbel, $d=8,2$ mm, $Re=0,71$) dargestellt. Vereinfachend wurde angenommen, dass alle Dispersionskoeffizienten identisch sind ($D=D_1=D_2=D_3=D_s$). Der Ringspalt wurde zu gleichen Teilen zwischen dem Bypassbereich und den Ringwirbeln aufgeteilt, wobei die relative Driftgeschwindigkeit der Ringwirbel u_d/u_{ax} entsprechend experimenteller Beobachtungen (vergleiche Kapitel 2.2.2) zwischen $u_d/u_{ax}=0$ (vollständige Stagnation) und $u_d/u_{ax}\approx 1,1$ variiert wurde.

Durch entsprechende Zunahme der Rückvermischung kann sich das Verweilzeitverhalten des Taylor-Vortex Systems von einem annähernden Kolbenstromreaktor bis zu einem nahezu perfekten Rührkessel ändern. Zusätzlich beeinflusst aber auch ein auftretender Bypassstrom ($u_d/u_{ax}\neq 1$) deutlich das Verweilzeitverhalten.

Ringwirbel :

$$\begin{aligned}
V_v \frac{dc_{v,1}}{dt} &= S_{v1} \frac{D_1}{l_1} (c_{s,1} - c_{v,1}) + S_{v2} \frac{D_2}{l_2} (c_{s,2} - c_{v,1}) + S_{v3} \frac{D_3}{l_3} (c_{v,3} - c_{v,1}) \\
&\vdots \\
V_v \frac{dc_{v,j}}{dt} &= S_{v1} \frac{D_1}{l_1} (c_{s,j} - c_{v,j}) + S_{v2} \frac{D_2}{l_2} (c_{s,j-1} - 2c_{v,j} + c_{s,j+1}) \\
&\quad + S_{v3} \frac{D_3}{l_3} (c_{v,j-2} - 2c_{v,j} + c_{v,j+2}) \\
&\vdots \\
V_v \frac{dc_{v,N}}{dt} &= S_{v1} \frac{D_1}{l_1} (c_{s,N} - c_{v,N}) + S_{v2} \frac{D_2}{l_2} (c_{s,N-1} - c_{v,N}) + S_{v3} \frac{D_3}{l_3} (c_{v,N-2} - c_{v,N})
\end{aligned}$$

Bypass :

(3-15)

$$\begin{aligned}
V_s \frac{dc_{s,1}}{dt} &= S_{v1} \frac{D_1}{l_1} (c_{v,1} - c_{s,1}) + S_{v2} \frac{D_2}{l_2} (c_{v,2} - c_{s,1}) + A_s \frac{D_s}{l_s} (c_{s,2} - c_{s,1}) \\
&\quad + A_s |U_r| (c_{s,j\pm 1} - c_{s,j}) \\
&\vdots \\
V_s \frac{dc_{s,j}}{dt} &= S_{v1} \beta_1 (c_{v,j} - c_{s,j}) + S_{v2} \frac{D_2}{l_2} (c_{v,j-1} - 2c_{s,j} + c_{v,j+1}) \\
&\quad + A_s \frac{D_s}{l_s} (c_{s,j-1} - 2c_{s,j} + c_{s,j+1}) + A_s |U_r| (c_{s,j\pm 1} - c_{s,j}) \\
&\vdots \\
V_s \frac{dc_{s,N}}{dt} &= S_{v1} \beta_1 (c_{v,N} - c_{s,N}) + S_{v2} \frac{D_2}{l_2} (c_{v,N-1} - c_{s,N}) + A_s \frac{D_s}{l_s} (c_{s,N-1} - c_{s,N}) \\
&\quad + A_s |U_r| (c_{s,j\pm 1} - c_{s,N})
\end{aligned}$$

| | | |
|-----|----------------------|--|
| mit | N | Anzahl der Ringwirbel |
| | D_1, D_2, D_3, D_s | Dispersionskoeffizienten in m^2/s |
| | $c_{v,j}; c_{s,j}$ | Konzentrationen im Ringwirbel bzw. Bypass in mol/m^3 |
| | $V_v; V_s$ | Volumina der Ringwirbel bzw. Bypass in m^3 |
| | $S_{vi}; A_s$ | Austauschoberflächen der Ringwirbel bzw. Bypass in m^2 |
| | U_r | relative Geschwindigkeit zwischen Ringwirbel/Bypass in m/s |
| | l_1, l_2, l_3, l_s | charakteristische Längen in m |

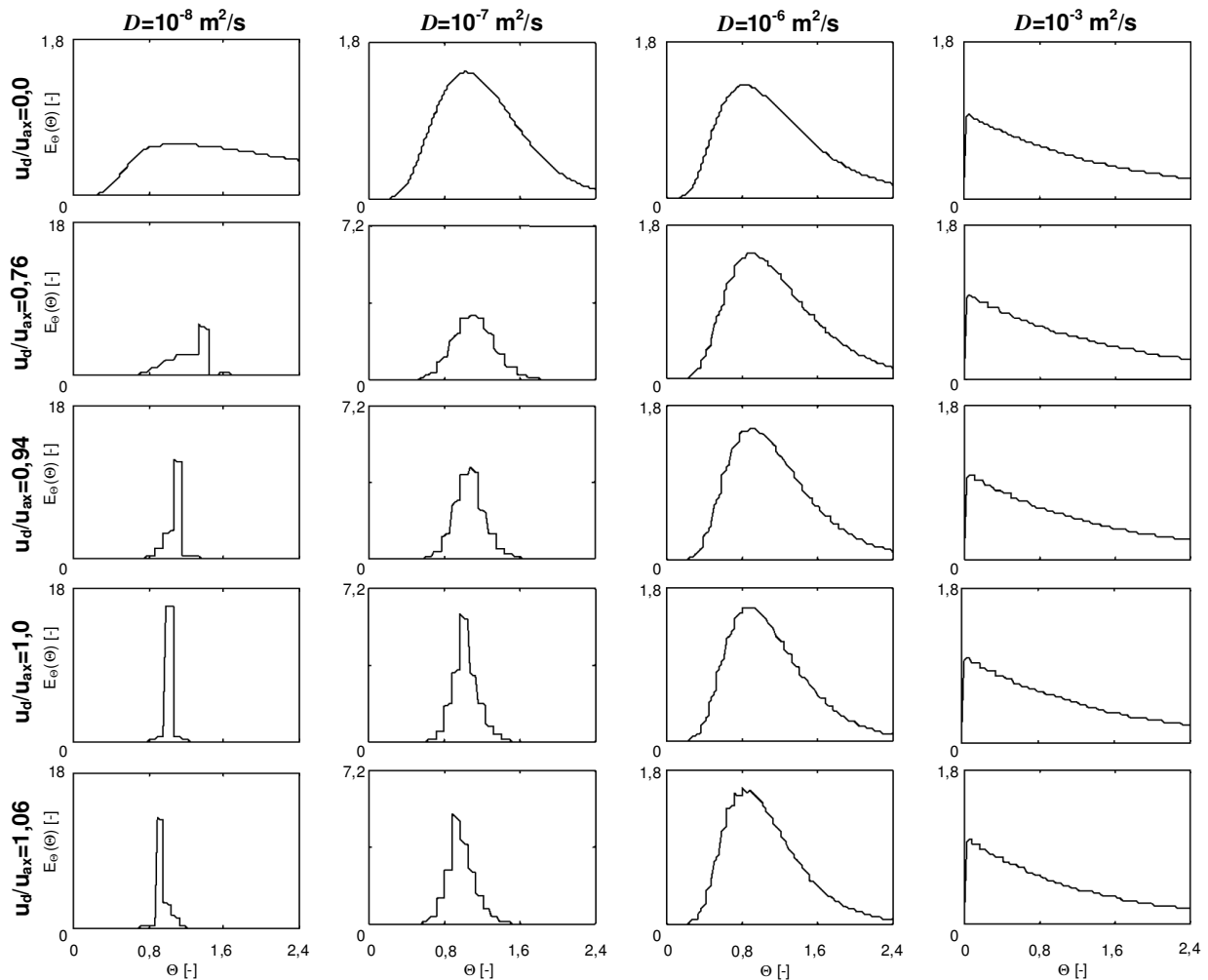


Bild 3-7: Verweilzeitmodellierung für ein moderat durchströmtes Taylor-Vortex System (Syed und Früh, 2003), 18 Ringwirbel, $d=8,2$ mm, $Re=0,71$, $D=D_1=D_2=D_3=D_s$). Das Ringspaltvolumen wurde zu gleichen Teilen zwischen den Ringwirbeln und der Bypassströmung aufgeteilt.

Neben den verschiedenen empirischen Verweilzeitmodellen wurde auch das axiale Dispersionsmodell, wie es konventionell für Rohr- und Festbettreaktoren benutzt wird, verwendet, um die Makromischung in einem kontinuierlich betriebenen Taylor-Vortex System zu beschreiben (Yim et al., 1998; Pudjiono et al., 1992; Enokida et al., 1989; Moore und Cooney, 1995). Vereinfachend zu den phänomenologischen Zellenmodellen wird hier versucht, die Makromischung lediglich durch einen Modellparameter zu beschreiben, welcher nun alle Makromischungseinflüsse berücksichtigen soll. Meist kann aber hiermit der reale Verlauf der Verweilzeitverteilung nur unzureichend wiedergegeben werden, weshalb in der vorliegenden Arbeit phänomenologische Zellenmodelle angewandt wurden (siehe Kapitel 4.3).

Das theoretische Dispersionsmodell basiert auf der Diffusions-Konvektions-Gleichung, wie sie sich aus einer differentiellen Massenbilanz am Ort $(x, y, z)^T$ für eine stationäre, isotherme Strömung eines inkompressiblen Fluids entsprechend (3-16) ergibt.

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} + u_x \frac{\partial c_i}{\partial x} + u_y \frac{\partial c_i}{\partial y} + u_z \frac{\partial c_i}{\partial z} = D_m \left(\frac{\partial^2 c_i}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c_i}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 c_i}{\partial z^2} \right) \quad (3-16)$$

mit c_i Konzentration Spezies i in mol/m^3 D_m mol. Diffusionskoeffizient in m^2/s
 u_x, u_y, u_z Strömungsgeschwindigkeiten in m/s

Meist sind die Strömungsverhältnisse sehr komplex und/oder turbulent, so dass eine angemessene mathematische Lösung von (3-16) nicht zugänglich ist. Hierfür sind zur Modellierung der Verweilzeitverteilung weitere Vereinfachungen zu treffen, welche letztendlich zum Dispersionsmodell führen.

Es wird hierbei angenommen, dass das System mit einer konstanten mittleren Geschwindigkeit \bar{u} axial durchströmt wird. Die Einflüsse des realen Geschwindigkeitsprofils sowie der molekularen Diffusion auf die makroskopische Vermischung werden in den Dispersionskoeffizienten D_i zusammengefasst.

Für ein zylindrisches System (z. B. Rohr, Taylor-Vortex System) in Zylinderkoordinaten (r, Θ, z), welches axial durchströmt wird, kann (3-16) somit zu (3-17) vereinfacht werden.

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} + \bar{u}_{ax} \frac{\partial c_i}{\partial z} = D_{rad} \left(\frac{\partial^2 c_i}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial c_i}{\partial r} \right) + D_{tan} \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 c_i}{\partial \Theta^2} + D_{ax} \frac{\partial^2 c_i}{\partial z^2} \quad (3-17)$$

mit c_i Konzentration Spezies i in mol/m^3
 $D_{rad}; D_{tan}; D_{ax}$ radialer, tangentialer bzw. axialer Dispersionskoeffizient in m^2/s
 \bar{u}_{ax} mittlere axiale Geschwindigkeit in m/s

Die radiale und tangential Dispersion kann gegenüber der axialen Dispersion meist vernachlässigt werden, wenn das System sehr viel länger als breit ist. Hierfür vereinfacht sich das Dispersions-Modell nach (3-17) weiter zum axialen Dispersionsmodell entsprechend (3-18).

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} + \bar{u}_{ax} \frac{\partial c_i}{\partial z} = D_{ax} \frac{\partial^2 c_i}{\partial z^2} \quad (3-18)$$

mit c_i Konzentration Spezies i in mol/m^3 \bar{u}_{ax} mittlere axiale Geschwindigkeit in m/s
 D_{ax} axialer Dispersionskoeffizient in m^2/s

Durch Lösen der Differentialgleichung (3-18) können Ausdrücke für die Verweilzeitverteilung $E(t)$ bzw. die normierte Verweilzeitverteilung $E_\Theta(\Theta)$ bestimmt werden. Je nach betrachtetem System (siehe Bild 3-8) gelten verschiedene Randbedingungen der

Konzentration c_i bzw. des Dispersionskoeffizienten D_{ax} am Systemeintritt ($z=0$) und Systemaustritt ($z=L$) (vergleiche Anhang A5), welche stark den Verlauf der Verweilzeitverteilung beeinflussen (siehe Bild 3-9).

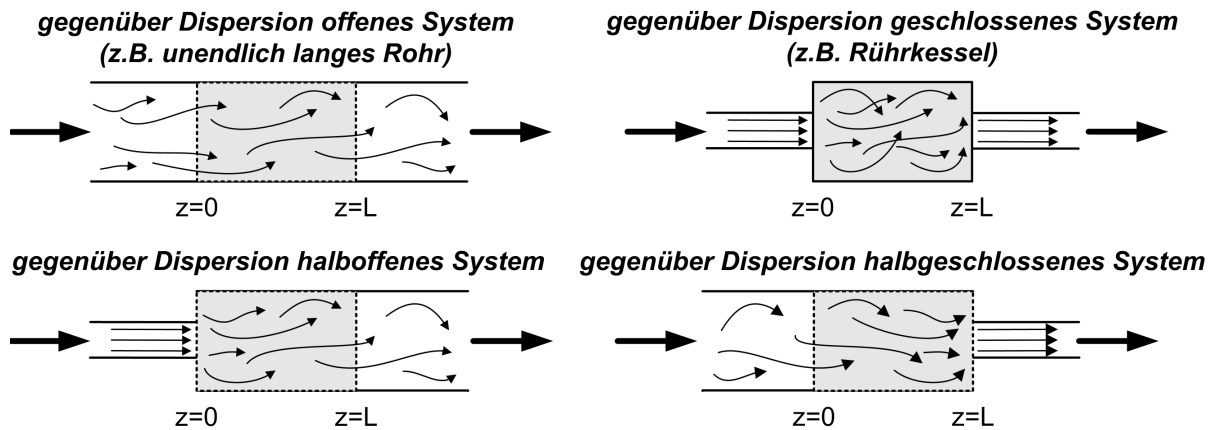


Bild 3-8: Modellsysteme, welche möglichen Randbedingungen des axialen Dispersionsmodells entsprechen.

Nur für die Fälle eines gegenüber Dispersion offenen Systems (Nauman und Buffahm, 1983) bzw. geschlossenen Systems (Yagi und Miyauchi, 1953) kann jeweils ein analytischer Ausdruck für die normierte Verweilzeitverteilung $E_{\Theta}(\Theta)$ gemäß (3-19) gefunden werden (siehe Bild 3-9). Für den Fall eines gegenüber Dispersion halboffenen bzw. halbgeschlossenen Systems ist lediglich ein numerisches Lösen der Differentialgleichung (3-18) möglich.

gegenüber Dispersion offenes System :

$$E_{\Theta}(\Theta) = \frac{1}{\sqrt{4\pi \mathcal{D} \Theta}} \exp \left[-\frac{(1-\Theta)^2}{4\Theta \mathcal{D}} \right]$$

(3-19)

gegenüber Dispersion geschlossenes System :

$$E_{\Theta}(\Theta) = \sum_{i=1}^{\infty} \frac{\lambda_i \cdot (\sin \lambda_i + 2\lambda_i \mathcal{D} \cos \lambda_i)}{\frac{1}{4} + \mathcal{D} + \lambda_i^2 \mathcal{D}^2} \exp \left[\frac{1}{2\mathcal{D}} - \frac{\Theta}{4\mathcal{D}} - \mathcal{D} \lambda_i^2 \Theta \right]$$

mit $\cot \lambda_i = \lambda_i \mathcal{D} - (4\lambda_i \mathcal{D})^{-1}$; $\mathcal{D} = D_{ax} / (\bar{u}_{ax} L)$

Θ dimensionslose Verweilzeit [-]

L Länge System in m

D_{ax} axialer Dispersionskoeffizient in m^2/s

\bar{u}_{ax} mittlere axiale Geschwindigkeit in m/s

Der dimensionslose Ausdruck \mathcal{D} in (3-19) wird Dispersionszahl genannt und ist beim axialen Dispersionsmodell im Gegensatz zu den Zellenmodellen die einzige Kenngröße für die Makromischung. Sie stellt das Verhältnis aus dispersivem zu rein konvektivem Stofftransport dar. Bei den idealen Grenzfällen der Makromischung gilt

- Kolbenstromreaktor („plug flow reactor“, PFR) $\mathcal{D} \rightarrow 0$;
- idealer Rührkessel („continuous stirred tank reactor“, CSTR) $\mathcal{D} \rightarrow \infty$.

Wie in Bild 3-9 zu erkennen ist, konvergiert die normierte Verweilzeitverteilung $E_{\Theta}(\Theta)$ für kleine Dispersionszahlen ($\mathcal{D} < 0,01$) unabhängig von den Randbedingungen zu einer gemeinsamen Lösung entsprechend (3-20).

$$E_{\Theta}(\Theta) = \frac{1}{\sqrt{4\pi\mathcal{D}}} \exp\left[-\frac{(1-\Theta)^2}{4\mathcal{D}}\right] \quad (3-20)$$

mit $\mathcal{D} = D_{ax}/(\bar{u}_{ax} L)$

Θ dimensionslose Verweilzeit [-] L Länge System in m

D_{ax} axialer Dispersionskoeffizient in m^2/s

\bar{u}_{ax} mittlere axiale Geschwindigkeit in m/s

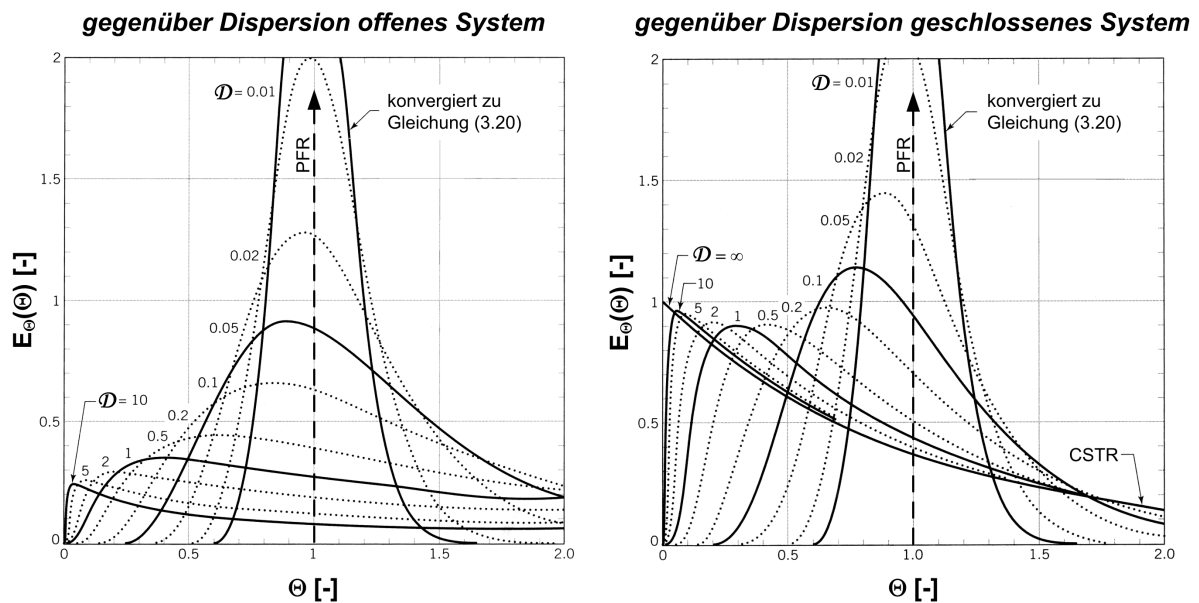


Bild 3-9: Normierte Verweilzeitverteilungen $E_{\Theta}(\Theta)$ entsprechend dem axialen Dispersions-Modell (3-19) in einem gegenüber Dispersion offenen (*links*) und geschlossenen (*rechts*) System (Levenspiel, 1999).

3.2.5 Korrelation der Makromischung im System mit axialem Fluss

Moore und Cooney (1995) untersuchten mit Hilfe von Markierungsversuchen die Makromischung im kontinuierlich durchströmten Taylor-Vortex System für eine Vielzahl zylindrischer Rotoren ($19,05 \text{ mm} < r_i < 26,75 \text{ mm}$; $24,50 \text{ mm} < r_o < 31,15 \text{ mm}$; $70 \text{ mm} < L < 252 \text{ mm}$) in einem weiten hydrodynamischen Bereich ($200 < Ta < 20000$; $0,25 < Re < 15$). Sie entwickelten anhand des axialen Dispersionsmodells eine Makromischungskorrelation mit Wasser als Medium ($v^{25^\circ\text{C}} = 1,0 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$) und bestätigten durch weitere Experimente mit 25 % m/m ($v^{25^\circ\text{C}} = 1,8 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$) und 45 % m/m ($v^{25^\circ\text{C}} = 3,7 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$) Wasser-Glycerin Lösungen, dass die Viskositätsabhängigkeit (lediglich) mit der Ta-Zahl und der Re-Zahl ausgedrückt werden kann. Im weiteren verifizierten sie im untersuchten Bereich die Unabhängigkeit der Makromischung von der molekularen Diffusion, indem sie Dextranblau ($D_m = 8 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$) und Natriumbenzoat ($D_m = 8 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$) als Tracer verwendeten.

Die dimensionsbehaftete Makromischungskorrelation gemäß (3-21) von Moore und Cooney (1995) (siehe Bild 3-10) zeigt, dass der axiale Dispersionskoeffizient D_{ax} im untersuchten Bereich hauptsächlich durch die Ta-Zahl und kaum durch die Re-Zahl beeinflusst wird. Ebenso hat die Spaltlänge bzw. Rotorlänge L bei ausreichend langen Systemen keinen Einfluss.

dimensionsbehaftet :

$$D_{ax} \cdot \left(\frac{d}{r_i} \right)^{0,28} \cdot (2 Re)^{-0,17} = 7,2 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s} \cdot Ta^{1,05} \quad (3-21)$$

dimensionslos :

$$\mathcal{D} = 7,2 \cdot 10^{-3} \left(\frac{d}{r_i} \right)^{-0,28} \cdot \left(\frac{2d}{L} \right) \cdot (2 Re)^{-0,83} \cdot Ta^{1,05}$$

mit $\mathcal{D} = D_{ax} / (u_{ax} L)$

d Spaltbreite in m

r_i Radius Rotor in m

u_{ax} axiale Leerspaltgeschwindigkeit in m/s

L Spaltlänge bzw. Rotorlänge in m

D_{ax} axialer Dispersionskoeffizient in m^2/s

Ergänzend sind in Bild 3-10 weitere in der Literatur verfügbaren experimentellen Daten der Makromischung von Enokida et al. (1989), Pudjiono et al. (1992) sowie Kataoka und Takigawa (1981) dargestellt (vergleiche Tabelle 3-1), welche die Korrelation verifizieren.

Die dimensionslose Dispersionszahl \mathcal{D} wurde exemplarisch ($r_i=35$ mm; $d=5$ mm, $L=352$ mm, $Re=0,2\dots5,0$) mit der dimensionslosen Makromischungskorrelation (3-21) berechnet und in Bild 3-11 dargestellt. Wie zu erwarten sinkt mit steigender Re -Zahl die Dispersionszahl \mathcal{D} , da die konvektiven Anteile zunehmen. Dennoch zeigt ein Vergleich mit Bild 3-9, dass das Makromischungsniveau im untersuchten Bereich sehr hoch ist und mit weiter steigender Ta -Zahl sehr schnell das auf das Level eines perfekten Rührkessels ansteigt.

Tabelle 3-1: Untersuchte Parameterbereiche der in Bild 3-10 dargestellte Makromischung; Längen und Radien sind in mm und kinematische Viskositäten in 10^{-6} m^2/s angegeben.

| | Moore und Cooney (1995) | Enokida et al. (1989) | Pudjiono et al. (1992) | Kataoka und Takigawa (1981) |
|--------------------------------------|----------------------------|--------------------------|---------------------------|--------------------------------|
| Ta | 200...20000 | 3000...16000 | 229...458 | 316...794 |
| Re | 0,25...15 | 65...223 | 1,79...5,49 | 4,5...22,8 |
| r_i | 19,05...26,75 | 44,5; 57,0 | 24,0 | 30,0 |
| r_o | 24,15...31,15 | 75,0 | 25,5 | 50,0 |
| L | 70...252 | 500; 400 | 225 | 295 |
| $\nu^{25^\circ C}$ | 1,0; 1,8; 3,7 | 1,0 | 1,0 | 3,0 |

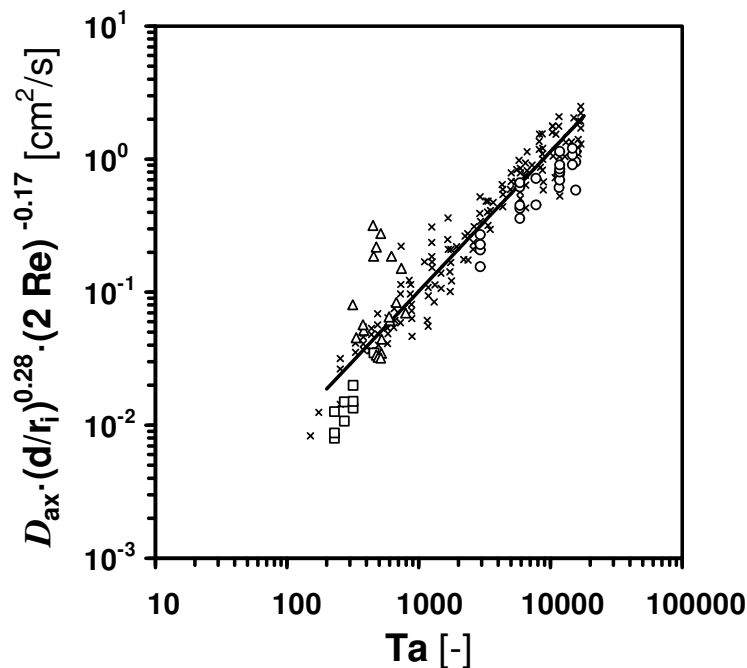


Bild 3-10: Dimensionsbehaftete Makromischungskorrelation (3-21) (—) und Datenpunkte (×) von Moore und Cooney (1995), sowie weitere Daten von Enokida et al. (1989) (○), Pudjiono et al. (1992) (□), Kataoka und Takigawa (1981) (△). Die jeweiligen untersuchten Parameterbereiche sind in Tabelle 3-1 zusammengefasst.

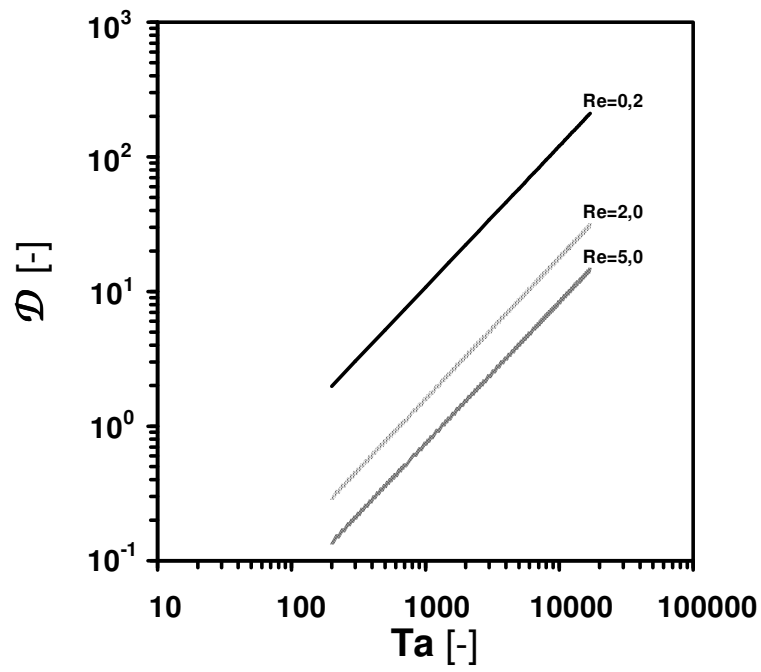


Bild 3-11: Dimensionslose Makromischungskorrelation (3-21) von Moore und Cooney (1995) exemplarisch berechnet für $r_i=35$ mm, $d=5$ mm, $L=352$ mm und $Re=0,2\dots5,0$.

3.3 Mikromischung im Taylor-Vortex System

3.3.1 Theorie der Mikromischung

Wie in Kapitel 3.2.2 bereits erwähnt wurde, reicht die Kenntnis der Makromischung bzw. der Verweilzeitverteilung $E(t)$ nur im Falle einer Reaktion erster Ordnung aus, um den Reaktionsumsatz X in einem kontinuierlich durchströmten Reaktor entsprechend (3-22) eindeutig vorherzusagen. Nur für diesen Fall ist der Reaktionsverlauf unabhängig von der Mikromischung (Danckwerts, 1953).

$$\frac{C_i}{C_{i0}} = 1 - X = \int_0^{\infty} e^{-k_1 t} E(t) dt \quad (3-22)$$

mit C_i stationäre Ausgangskonzentration Spezies i in mol/m^3
 C_{i0} stationäre Eingangskonzentration Spezies i in mol/m^3
 k_1 Geschwindigkeitskonstante erster Ordnung in $1/s$
 $E(t)$ Verweilzeitverteilung in $1/s$

Bei der Vielzahl von Reaktionen werden nun generell diejenigen von der Mikromischung beeinflusst, deren Geschwindigkeiten von der Konzentration mehrerer Edukte und/oder Produkte abhängt.

Um die Mikromischung in Reaktoren zu beschreiben, existieren in der Literatur eine Vielzahl von unterschiedlichsten Modellvorstellungen (Villiermaux, 1983). Diese Modelle der Mikromischung lassen sich grob in drei Gruppen einteilen (David et al., 1984):

- Modelle welche verschiedene Altersbereiche definieren;
- Modelle abgeleitet aus der Turbulenz-Theorie;
- phänomenologische Modelle, welche einfache physikalische Vorgänge aufgreifen (Koaleszenz, turbulente Erosion, Diffusion, laminare Scherung, Auflösung).

Die Pionierarbeiten zur Beschreibung der Mikromischung gehen auf Danckwerts (1958) und Zwietering (1959) zurück. Sie zeigten durch zwei voneinander unabhängige Betrachtungsweisen, dass für den allgemeinen Fall einer beliebigen Reaktion n -ter Ordnung ($n \neq 1$) die Historie und der Zeitpunkt des Mischens (Mikromischung) einzelner Fluidelemente bzw. Moleküle einen signifikanten Einfluss auf den Reaktionsverlauf nimmt.

Wird erst einmal der Fall betrachtet, dass ein einzelner molekular vermischter Eduktstrom einem Reaktor zugeführt wird, können zwei Grenzfälle der Mikromischung betrachtet werden:

- vollständige Segregation bzw. späteste Vermischung;
- maximale Vermischung bzw. früheste Vermischung.

Zwietering (1959) beschrieb die Grenzfälle der Mikromischung anhand des Zeitpunktes der Vermischung. Hierfür betrachtete er zwei ideale Kolbenstromreaktoren mit seitlichen Ein- bzw. Auslässen, welche je nach Gestaltung dieser Seitenströme jede beliebige, aber für beide Modifikationen immer identische, Makromischung bzw. Verweilzeitverteilung $E(t)$ darstellen können.

Ein individuelles Molekül, welches nun durch diese Systeme strömt, besitzt zu jedem Zeitpunkt t seiner Verweilzeit im Reaktor ein bestimmtes Alter α (Zeit nach Eintritt) und eine restliche Lebenserwartung λ (Zeit bis Austritt), welche über (3-23) miteinander verknüpft sind.

$$t = \alpha + \lambda \quad (3-23)$$

mit *Systemeintritt* : $\alpha=0, \lambda=t$; *Systemaustritt* : $\alpha=t, \lambda=0$

α Alter in s

λ Lebenserwartung in s

Für den Grenzfall der frühesten Vermischung (siehe Bild 3-12, links) haben nun die Moleküle, welche im System aufeinandertreffen die gleiche Lebenserwartung λ , aber ein unterschiedliches Alter α . Bei der spätesten Vermischung (siehe Bild 3-12, rechts) hingegen, haben Moleküle mit der selben Lebenserwartung λ auch das selbe Alter α .

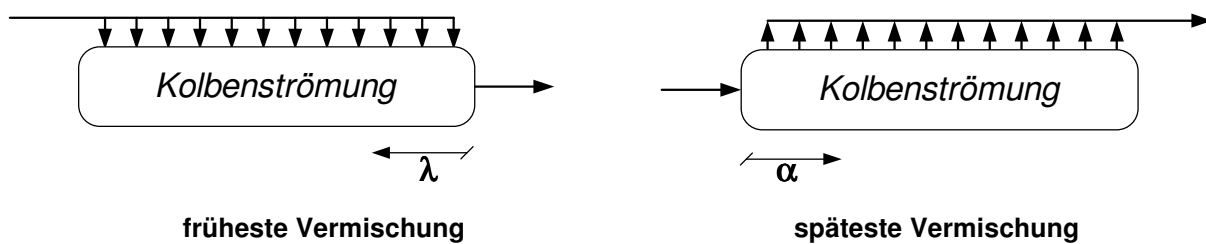


Bild 3-12: Grenzfälle der Mikromischung für einen molekular vermischten Eduktstrom bei jeweils identischer Verweilzeitverteilung $E(t)$ (nach Zwietering, 1959).

Aus einer jeweiligen differentiellen Bilanz für die beiden Grenzfälle der Mikromischung kann der Reaktionsumsatz X bestimmt werden. Für den Fall der spätesten Vermischung ergibt sich der Reaktionsumsatz X entsprechend (3-24) bzw. für den Fall der frühesten Vermischung ergibt er sich gemäß (3-25).

$$\frac{c_i}{c_{i0}} = 1 - X = \int_0^{\infty} C_S(\alpha) E(\alpha) d\alpha \quad (3-24)$$

mit c_i stationäre Ausgangskonzentration Spezies i in mol/m^3
 c_{i0} stationäre Eingangskonzentration Spezies i in mol/m^3
 $E(\alpha)$ Verweilzeitverteilung in $1/\text{s}$
 $C_S(\alpha) = c_i(\alpha)/c_{i0}$ relative Konzentration im segregierten Element [-]

$$\frac{dc_i}{d\lambda} = -c_{i0} \frac{dX}{d\lambda} = R_i - \frac{E(\lambda)}{1-F(\lambda)} [c_{i0} - c_i(\lambda)] \quad ; \quad \frac{dc_i}{d\lambda} = 0 \text{ für } \lambda \rightarrow \infty \quad (3-25)$$

mit $c_i(\lambda)$ Ausgangskonzentration Spezies i in mol/m^3
 c_{i0} stationäre Eingangskonzentration Spezies i in mol/m^3
 R_i Reaktionsgeschwindigkeit Spezies i in mol/s
 $E(\lambda)$ Verweilzeitverteilung in $1/\text{s}$
 $F(\lambda)$ kumulative Verweilzeitverteilung [-]

Der Ansatz von Danckwerts (1958) betrachtet die Grenzfälle der Mikromischung anschaulicher, in dem er das Fluid in einzelne Elemente bzw. „Punkte“ aufteilt und somit eine Mikrostruktur definiert (siehe Bild 3-13). Ein Fluidelement („Punkt“) ist per Definition sehr viel kleiner, als das gesamte System, aber immer noch ausreichend groß um statistisch gesehen viele Moleküle zu beinhalten.

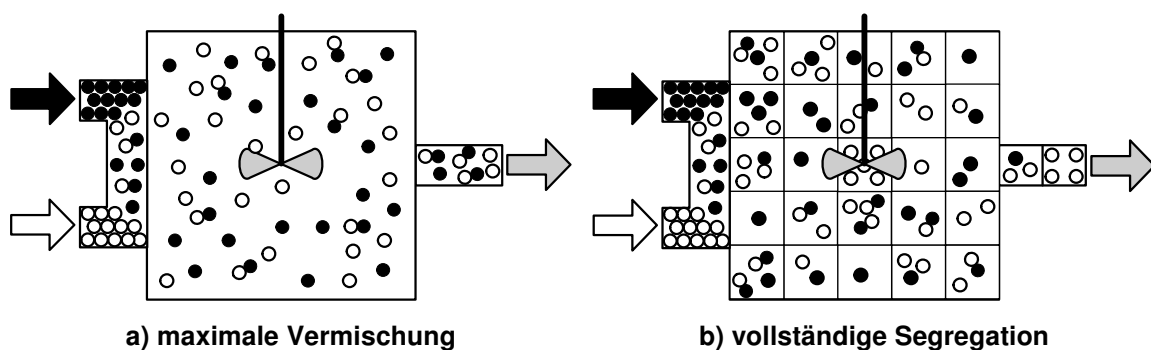


Bild 3-13: Grenzfälle der Mikromischung für einen molekular vermischten Eduktstrom bei jeweils identischer Verweilzeitverteilung $E(t)$ (nach Danckwerts, 1958).

Für den Fall der maximalen Vermischung (siehe Bild 3-13), wird das Fluid beim Einströmen sofort auf molekularer Ebene vermischt. Ein Molekül wird somit augenblicklich mit einem beliebigen Molekül vereint, mit welchem es schließlich das System verlässt. Entsprechend

Zwietering (1959) werden hier nun Moleküle mit der selben Lebenserwartung λ miteinander vermischt, unabhängig von ihrem Alter α .

Vollständige Segregation bedeutet hingegen (siehe Bild 3-13), dass das Fluid beim Eintritt in das System zwar in kleine Elemente fragmentiert wird (Element = idealer Rührkessel), aber die Moleküle, welche beim Systemeintritt in einem Fluidelement vereint waren, bis zum Austritt zusammen bleiben. Hier sind also entsprechend der Vorstellung von Zwietering (1959) immer Moleküle in einem Fluidelement vereint, welche das gleiche Alter α und die gleiche Lebenserwartung λ haben.

Normalerweise werden Reaktoren mit zwei oder mehreren getrennten Eduktströmen betrieben. Hierbei ist nach David et al. (1984) ergänzend zu oben mindestens ein weiterer Grenzfall der Mikromischung denkbar (siehe Bild 3-14).

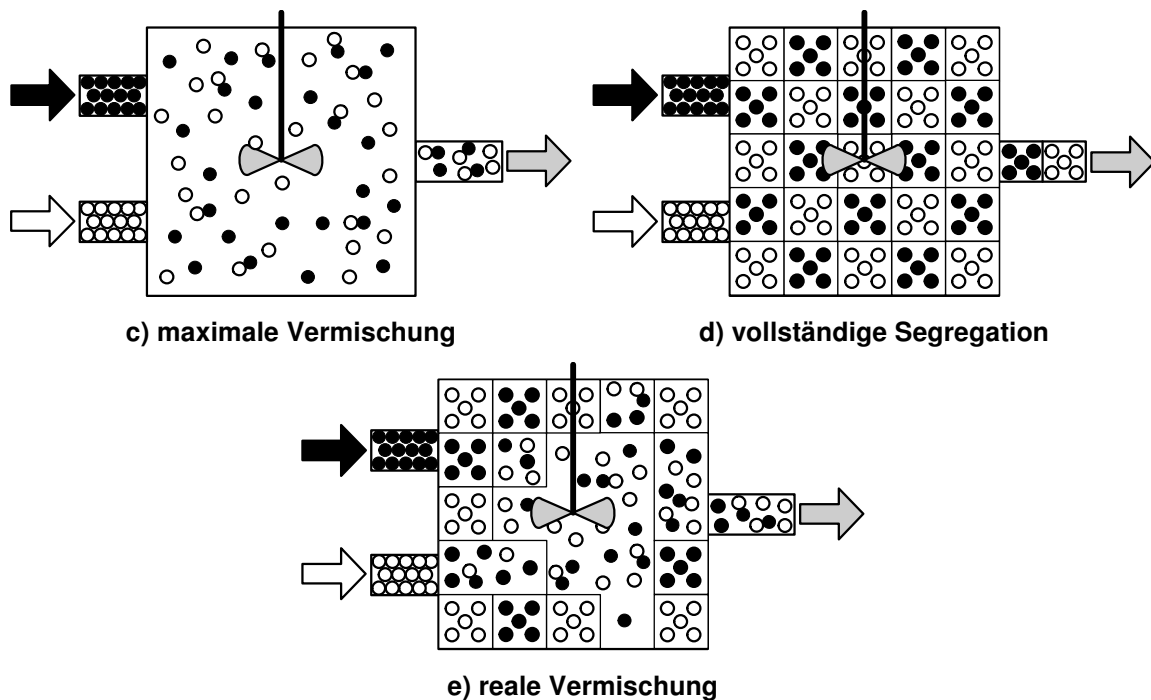


Bild 3-14: Grenzfälle der Mikromischung für getrennt zugeführte Edukte bei jeweils identischer Verweilzeitverteilung $E(t)$ (nach David et al., 1984).

Die Grenzfälle der maximalen Vermischung und der vollständigen Segregation bleiben auch bei getrennt zugeführten Eduktströmen erhalten (siehe Bild 3-14).

Als dritter Fall der Mikromischung ist hier die reale Vermischung zu betrachten (siehe Bild 3-14, unten). Bei diesem Vermischungsgrad gibt es nun Fluidelemente, welche sowohl dem Grenzfall der maximalen Vermischung als auch dem Grenzfall der vollständigen Segregation zugeordnet werden können. Manche Elemente sind allerdings diesen Grenzfällen nicht zugehörig, da sie irgendwann im System vermischt wurden und nun segregiert sind. Der

Reaktionsumsatz X wird abhängig von der Makromischung für den Fall der maximalen Vermischung am höchsten sein und mit zunehmender Segregation abfallen. Anschaulich ausgedrückt können in einem vollständig segregierten Reaktor die Edukte dann nur noch an den Grenzflächen der Fluidelemente zusammen treffen und reagieren. Ist außerdem die Verweilzeit im Reaktor noch sehr kurz, sinkt bei vollständiger Segregation der Reaktionsumsatz X gegen null.

Die in Bild 3-14 dargestellten Vermischungszustände werden durch drei sich gegenseitig beeinflussende Vorgänge im Reaktor verursacht (David et al., 1984). Zum einen steht der durch Scherung, Turbulenz und molekulare Diffusion verursachte Stofftransport mit der Strömung im Reaktor in Konkurrenz, und zum anderen werden durch eine chemische Reaktion selbst wieder Konzentrationsgradienten verursacht, welche durch die Vermischung abgebaut werden müssen.

Durch gegenseitiges Abwägen der charakteristischen Zeitkonstanten dieser drei Vorgänge können nun die Grenzfälle der Mikromischung bei getrennter Eduktzuführung (siehe Bild 3-14) voneinander abgegrenzt werden (siehe Tabelle 3-2). Die entsprechenden charakteristischen Zeitkonstanten stellen hierbei die mittlere Mikromischzeit T_m der lokalen Ausgleichsvorgänge zwischen den Fluidelementen, die mittlere Verweilzeit T_k im Reaktor und die Relaxationszeit T_r einer chemischen (hier äquimolaren) Reaktion dar.

$$T_m = \frac{d_f^2}{D_m} \quad ; \quad T_k = \frac{V}{Q} \quad ; \quad T_r = \frac{1}{k_n c_0^{n-1}} \quad (3-26)$$

mit d_f charakteristische Länge Fluidelement in m

D_m molekularer Diffusionskoeffizient in m^2/s

V Volumen in m^3

Q Volumenstrom in m^3/s

n Reaktionsordnung [-]

k_n Geschwindigkeitskonstante n -ter Ordnung in $m^{3(n-1)}/(s \text{ mol}^{(n-1)})$

c_0 äquimolare Eduktkonzentration in mol/m^3

Im Gegensatz zu den Definitionen der Relaxationszeit T_r und der mittleren Verweilzeit T_k existieren je nach verwendetem Modell der Mikromischung (vergleiche Kapitel 3.3.2 und 3.3.3) eine Vielzahl von Ausdrücken für die Mikromischzeit T_m . Da unabhängig von der Modellvorstellung der letzte Schritt der Mikromischung immer die molekulare Diffusion darstellt, kann mit (3-26) eine allgemeine Definition der Mikromischzeit T_m angegeben werden. Der charakteristische Durchmesser des Fluidelements d_f wird je nach Modellansatz

der Mikromischung z. B. durch das Verhältnis von Volumen zu Oberfläche des Fluidelements (Diffusionsmodell) oder durch die Kolmogorovsche Wirbellänge λ_K (statistische Theorie der Turbulenz, siehe Kapitel 3.3.2) ausgedrückt (Villermaux, 1983).

Tabelle 3-2: Abschätzung der Grenzfälle der Mikromischung mittels charakteristischen Zeitkonstanten; die entsprechenden Grenzfälle a), b) und c) sind in Bild 3-14 dargestellt.

| | $T_r \gg T_m$ | $T_r \approx T_m$ | $T_r \ll T_m$ |
|-------------------|---|-------------------|--|
| $T_k \gg T_m$ | Fall c) | Fall e) | totale Segregation mit Reaktion, Fall d) |
| $T_k \approx T_m$ | Fall e), geringer Umsatz | Fall e) | Fall d) |
| $T_k \ll T_m$ | totale Segregation ohne Reaktion, Fall d) | Fall d) | Fall d) |

3.3.2 Messmethoden der Mikromischung

Durch die beim Mischen mit Rührwerken auftretende Verteilung, Scherung und Zerteilung von Komponentenbereichen bzw. Fluidballen wird kinetische Energie im Fluid dissipiert, welche über den Rührer eingebracht werden muss und so eine einfache Möglichkeit der Untersuchung der Mikromischung liefert.

Dies kann durch die statistische Theorie der homogenen, isotropen Turbulenz nach Kolmogorov (1958) veranschaulicht werden. Sie beschreibt das Zerteilen/Zerfallen von Fluidelementen (Mikromischung) in einer turbulenten Strömung durch eine Energiekaskade. Die kinetische Energie wird durch den Rührer über makroskopische Strömungswirbel in das Fluid eingebracht und durch deren Zerfallen an immer kleiner Strukturen weitergegeben. Erst ab den kleinst möglichen Fluidballen mit der sogenannten Kolmogorovschen Wirbellänge λ_K dominieren viskose Kräfte, und die kinetische Energie dissipiert vollständig.

$$\lambda_K = \left(\frac{v^3}{\varepsilon} \right)^{1/4} \quad (3-27)$$

mit v kinematische Viskosität in m^2/s ε dissipierte spezifische Energie in W/kg

Die mittlere Mikromischzeit T_m , welche die Fluidelemente der Größe λ_K benötigen, um ihre Identität zu verlieren und sich vollständig in der Umgebung aufzulösen, kann nach Kolmogorov (1958) mit (3-28) abgeschätzt werden.

$$T_m = \sqrt{\frac{\nu}{\varepsilon}} \quad (3-28)$$

mit ν kinematische Viskosität in m^2/s ε dissipierte spez. Energie in W/kg

Mit (3-27) und (3-28) wird deutlich, dass mit Zunahme der dissipierten Energie ε das Fluid in immer kleinere Ballen zerteilt wird und die Zeitspanne für deren vollständige Auflösung immer geringer wird, womit offensichtlich die Intensität der Mikromischung zunehmen muss. Mit der Annahme, dass die vom Rührer eingebrachte mechanische Energie vollständig der (turbulenten) Energiedissipation ε im Fluid entspricht, kann sie direkt aus dem makroskopisch zugänglichem Drehmoment M_t der Rührerwelle entsprechend (3-29) bestimmt werden.

$$\varepsilon = \frac{P}{\rho \cdot V} = \frac{M_t \cdot \omega}{\rho \cdot V} \quad (3-29)$$

mit ρ Dichte in kg/m^3 V Volumen in m^3
 ω Winkelgeschwindigkeit in $1/s$ P Rührenergie in W
 M_t Drehmoment in Nm

Ein Dimensionsanalyse zeigt, dass als integrale Größe der Mikromischungsintensität der dimensionslose, spezifische Energieeintrag Π des Rührers gemäß (3-30) definiert werden kann. Im Vergleich zur Bestimmung einer Mikromischzeit T_m müssen hier keine Modellannahmen (z. B. homogene, isotrope Turbulenz) getroffen werden, wodurch dieser Ausdruck allgemeine Gültigkeit erlangt.

$$\Pi = \frac{\varepsilon^{0,5} \cdot l_c^2}{\nu^{1,5}} \quad (3-30)$$

mit ν kinematische Viskosität in m^2/s ε dissipierte spez. Energie in W/kg
 l_c charakteristische Rührergröße in m (z. B. Radius r_i)

Der gemessene, spezifische Energieeintrag Π des Rührers kann selbstverständlich keine lokale Information über den Vermischungszustand liefern. Da die Mikromischung aber ein stark lokal geprägter Prozess ist, stellen weitere ortsabhängige bzw. ortsauflösende Methoden eine notwendige Ergänzung dar.

Bei diesen Messmethoden zur Mikromischung dominiert bis heute die Anwendung von mikromischungssensitiven, chemischen Testreaktionen gegenüber physikalischen Methoden. Das Problem bei den physikalischen Ansätzen, welche sich auf die konduktometrische oder optische Messung von Konzentrations- oder Geschwindigkeitsfluktuationen beziehen, ist deren eingeschränkte zeitliche und räumliche Auflösung. Moderne laseroptische Verfahren („laser induced fluorescence“, LIF oder „particle image velocimetry“, PIV) sind zwar leistungsstärker, aber immer noch auf eine räumliche Auflösung $>10^{-5}$ m beschränkt (Houcine et al., 1996). Bei chemischen Testreaktionen fungieren hingegen die Moleküle selbst als Messsonden und erlauben so durch Bestimmung des Reaktionsverlaufes die Untersuchung der Mikromischung bis zur molekularen Größenordnung von 10^{-9} m.

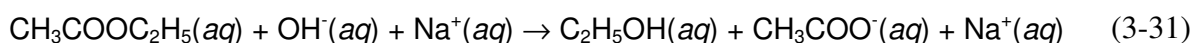
Bei der Untersuchung der Mikromischung in durchströmten Systemen mittels chemischer Methoden werden in der Literatur eine Vielzahl von Reaktionen diskutiert, welche von David et al. (1984) und Fournier et al. (1996a) übersichtlich zusammen gefasst wurden. Es können hierbei jeweils folgende Reaktionsschemen unterschieden werden:

- einfache Reaktionen ($A + B \rightarrow P$);
- konkurrierende Folgereaktionen ($A + B \rightarrow R$, $R + B \rightarrow S$);
- konkurrierende Parallelreaktionen ($A + B \rightarrow R$, $C + B \rightarrow S$);
- autokatalytische Reaktionen ($A + B \rightarrow B + B$).

Eine geeignete Testreaktion sollte verschiedene essentielle Anforderungen erfüllen, wie z. B. einfaches Reaktionsschema, einfache Analyse von möglichst wenigen Reaktionsprodukten, bekannte Reaktionskinetik in der Größenordnung der Mikromischzeit, hohe Sensitivität und Reproduzierbarkeit.

Einfache Reaktionen zweiter Ordnung ($A + B \rightarrow P$) wurden häufig bei der experimentellen Untersuchung der Mikromischung herangezogen, da es eine ganze Reihe von ihnen gibt, bei denen der Reaktionsverlauf sehr einfach experimentell bestimmt werden kann und die Reaktionskinetik ausreichend bekannt ist (David et al., 1984).

Ein populäres Beispiel hierfür ist die alkalische Verseifung von Ethylacetat (EtAc) mit Natriumhydroxid (NaOH) in Wasser entsprechend (3-31) (Goto et al., 1975; Larosa und Manning, 1964; Lintz et al., 1975; Makataka und Kobayashi, 1976; Zoulalian und Villermaux, 1970; Hanley und Mischke, 1978; Elenkov et al., 1986), die auch in der vorliegenden Arbeit verwendet wurde.



Generell kann die Verseifungsreaktion nicht nur in alkalischen, sondern auch in sauren oder neutralen Medien stattfinden. Nach Kirby (1972) ist jedoch die neutrale Verseifung bei EtAc vernachlässigbar langsam. Die Reaktionsgeschwindigkeit der alkalischen Verseifung von EtAc ergibt sich dann gemäß (3-32) (siehe Anhang A5).

$$-\frac{dc_{\text{EtAc}}}{dt} = k_{\text{OH}^-} \cdot c_{\text{EtAc}} \cdot c_{\text{OH}^-} \quad (3-32)$$

mit c_{EtAc} Konzentration EtAc in mol/m³ c_{OH^-} Konzentration OH⁻ in mol/m³
 k_{OH^-} Geschwindigkeitskonstante alkalische Verseifung in m³/(mol·s)

Wie in Bild 3-15 dargestellt, wurde die Kinetik bzw. der Geschwindigkeitskoeffizient k_{OH^-} in einem weiten Temperaturbereich (0 °C < ϑ < 60 °C) vielfach experimentell bestimmt, woraus mittels Regression ein Arrhenius-Ausdruck entsprechend (3-33) angegeben werden kann.

$$\ln\left(k_{\text{OH}^-} \cdot \frac{\text{mol} \cdot \text{s}}{\text{m}^3}\right) = 10,26 - \frac{48,0 \frac{\text{kJ}}{\text{mol}}}{R \cdot T} \quad (3-33)$$

mit T Temperatur in K R ideale Gaskonstante = 8,314 J/(mol·K)

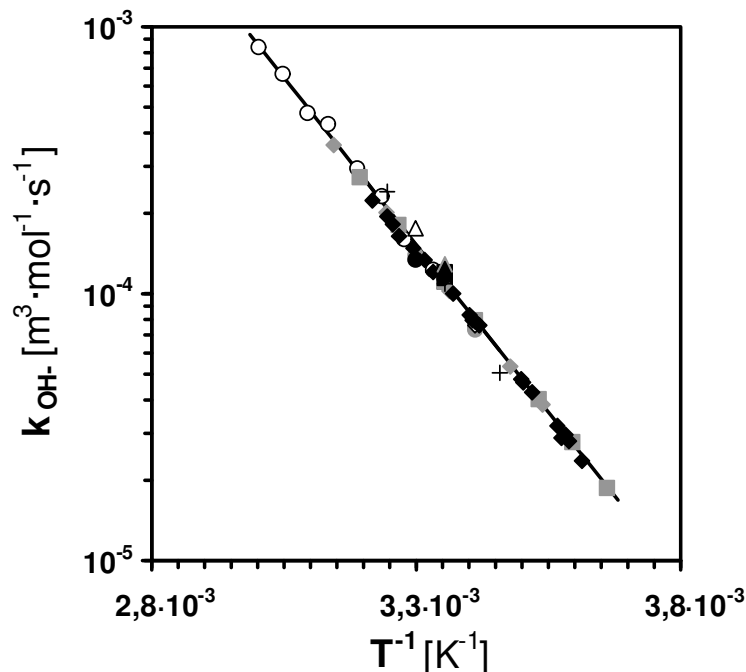


Bild 3-15: Geschwindigkeitskonstanten k_{OH^-} aus der Literatur für die alkalische Verseifung von EtAc mit NaOH: Robinson und Tester (1990) (○), Elenkov et al. (1987) (●), Goto et al. (1974) (●), Myers et al. (1952) (□), Tommila et al. (1952) (■), Saldick und Hammett (1950) (■), Smith und Olsson (1925) (◇), Reicher (1886) (◆), Warder (1881) (◆), Zoulalian und Villermaux (1970) (△), Salmi und Korte (1940) (▲), Makataka und Kobayashi (1976) (▲), Vilcu and Ciocazan (1969) (+).

Werden nun die Grenzfälle der Mikromischung bei getrennter Eduktzufuhr (siehe Bild 3-14) für die alkalische Verseifung von EtAc betrachtet, ergeben sich die in Bild 3-16 dargestellten Reaktionsumsätze X für jeweils perfekte Makromischung. Bei der entsprechenden Berechnung der Damköhler-Zahl (Da_I -Zahl) wurde die Relaxationszeit T_r für eine äquimolare Eduktzusammensetzung ($c_{EtAc}=c_{OH}=c_0$) bestimmt.

$$Da_I = \frac{T_k}{T_r} = \frac{V}{Q} k_{OH} \cdot c_0 \quad (3-34)$$

mit $T_k=V/Q$; $T_r=1/(k_{OH} \cdot c_0)$

Q Volumenstrom in m^3/s

V Volumen in m^3

c_0 äquimolare Eduktkonzentration in mol/m^3

k_{OH} Geschwindigkeitskonstante alkalische Verseifung in $m^3/(mol \cdot s)$

Je nach Abwägung der charakteristischen Zeitkonstanten zueinander (siehe Tabelle 3-2) können aufgrund unzureichender Mikromischung deutliche Umsatzunterschiede beobachtet werden. Bild 3-16 verdeutlicht somit, dass mit einer Testreaktion zweiter Ordnung bei getrennter Eduktzufuhr der Reaktionsumsatz X eindeutig als Maß für die Mikromischung dienen kann, sofern der Makromischungseinfluss auf die Reaktion identisch bleibt und die mittlere Verweilzeit T_k sehr viel größer als die Mikromischzeit T_m ist ($T_k \gg T_m$).

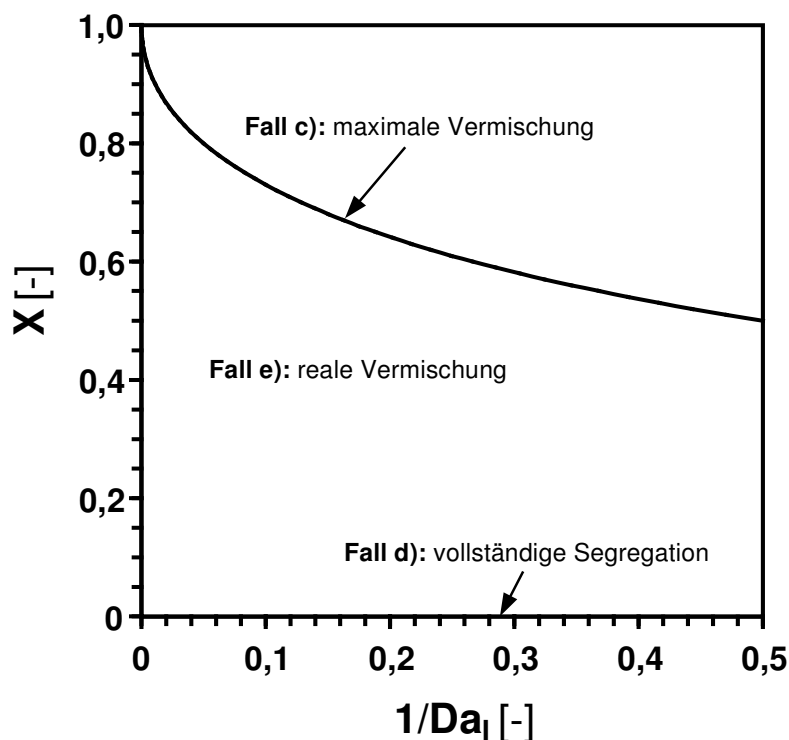


Bild 3-16: Umsatzverlauf einer Reaktion zweiter Ordnung bei stöchiometrischer, getrennter Eduktzufuhr, perfekter Makromischung (CSTR) und $T_k \gg T_m$. Die eingezeichneten Grenzfälle der Mikromischung sind in Bild 3-14 erläutert.

3.3.3 Mikromischung im System ohne axialen Fluss

Im Vergleich zur Makromischung wurde die Mikromischung in Taylor-Vortex Systemen bisher wenig untersucht. Die existierenden Arbeiten beschränken sich zudem meist auf absatzweisen Betrieb (kein axialer Fluss, $Re=0$) und/oder ein turbulentes Strömungsregime für Systeme mit ausschließlich zylindrischer Rotorgeometrie.

Als diagnostisches Werkzeug wurden chemische Testreaktionen wie die Oxidation von Iodid mit Wasserstoffperoxid (Ohmura et al., 2002), die Neutralisation von Salzsäure parallel zur säurekatalysierten Zersetzung von 2,2-Dimethoxypropan (Forney et al., 2005) sowie ein konkurrierendes Iodid-Iodat Reaktionssystem (Liu und Lee, 1999; Judat et al., 2004) angewandt, wobei manche Arbeiten durch laseroptische Methoden (LIF, PIV) ergänzt wurden.

Racina und Kind (2006) bestimmten mittels PIV die Verteilung lokaler Mikromischzeiten t_m im Ringspaltquerschnitt für verschiedene Fluide (Wasser; 20 % m/m bis 50 % m/m Wasser-Glycerin Lösungen) und Ringspaltgeometrien ($r_o=100$ mm; $63 \text{ mm} < r_i < 89$ mm; $L=390$ mm) im turbulenten Strömungsbereich ($800 < Ta < 25000$; $Re=0$). Zur Beschreibung der Mikromischung wählten sie die statistische Theorie der Turbulenz nach Kolmogorov (1958) (vergleiche Kapitel 3.3.2).

Aufgrund der begrenzten räumlichen Auflösung der PIV war es notwendig, den integralen Energieeintrag ε des Rührers als Referenzwert für die gemessenen lokalen Energiedissipationen $\langle \varepsilon \rangle$ zu benennen. Da der spezifische Energieeintrag ε gemäß (3-29) berechnet wird, war es somit erforderlich eine Korrelation für das dimensionslose Drehmoment G experimentell zu ermitteln.

$$G = 2,13 \frac{\eta^{3/2}}{(1-\eta)^{7/4}} Ta^{1,445} \quad \text{für } 800 < Ta < 10^4$$

$$G = 0,113 \frac{\eta^{3/2}}{(1-\eta)^{7/4}} Ta^{1,764} \quad \text{für } Ta > 10^4$$
(3-35)

mit $G = M_T / (\rho \cdot v^2 \cdot L)$; $\eta = r_i / r_o$

L Länge Ringspalt bzw. Länge Rotor in m r_i Radius Rotor in m

r_o Radius Stator in m ρ Dichte in kg/m^3

ν kinematische Viskosität in m^2/s Ta Ta-Zahl [-]

M_T Drehmoment in Nm

In Bild 3-17 ist exemplarisch für steigende Ta-Zahlen die Verteilung der lokalen Mikromischzeiten t_m über den Ringspalt dargestellt. Wie auch aus anderen Arbeiten zu

erwarten war, nimmt mit steigender Ta -Zahl der Energieeintrag des Rührers zu und die mittlere Mikromischzeit T_m nach Kolmogorov (1958) (siehe (3-28)) wird entsprechend reduziert bzw. das Mikromischungslevel intensiviert. Es ist jedoch zu erkennen, dass selbst bei einer turbulenten Ringspaltströmung (TVS, $Ta=2900$) die Intensität der Mikromischung noch ungleichmäßig verteilt ist.

Wie auch Ohmura et al. (2002) beobachteten, dehnen sich die intensiv vermischten (Rand)Bereiche der Ringwirbel mit steigender Ta -Zahl und Turbulenz (LTVS \rightarrow TVS) weiter aus, so dass die Mikromischungsintensität im Ringspaltquerschnitt zunimmt.

Die Ergebnisse (siehe Bild 3-17) von Racina und Kind (2006) bzw. Ohmura et al. (2002) legen nun nahe, das Multizonen-Modell von Desmet et al. (1996a, 1997) auch zur Beschreibung der Mikromischung bzw. der Segregation der Ringwirbel anzuwenden und es nicht nur auf die Modellierung der Makromischung zu beschränken.

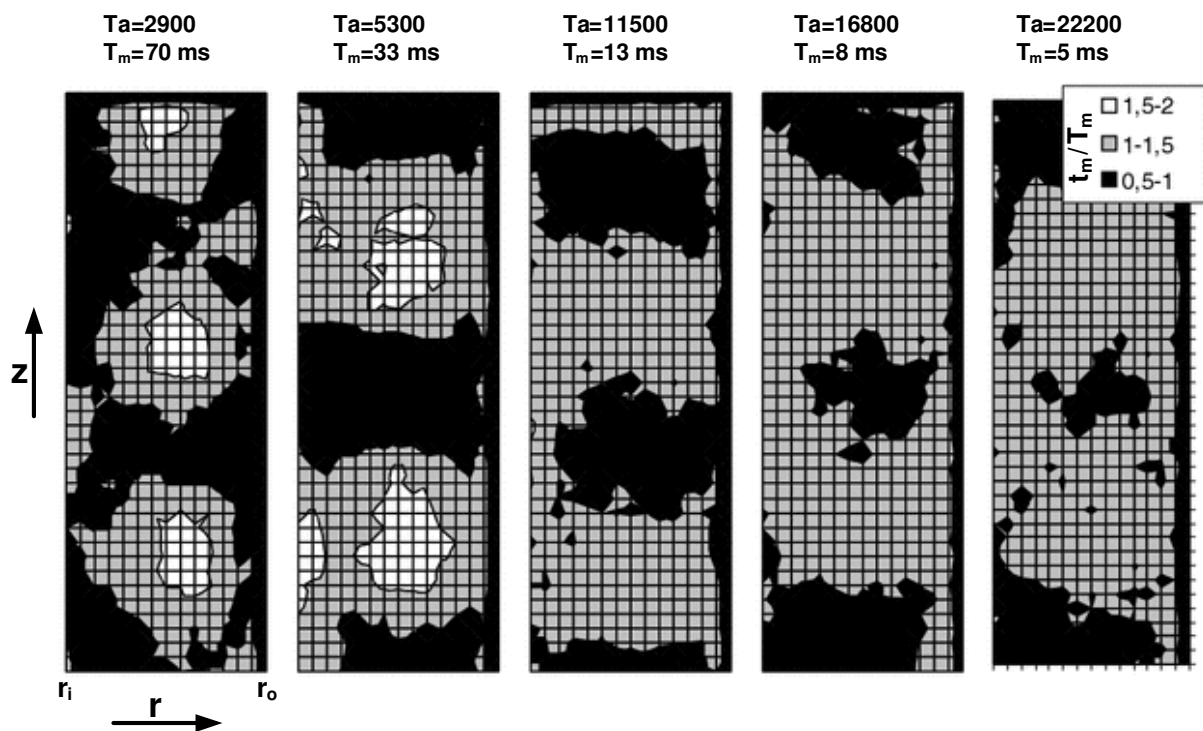


Bild 3-17: Exemplarische Verteilung der lokalen Mikromischzeiten t_m (statistische Theorie der Turbulenz) im Ringspalt ($r_i=76$ mm, $r_o=100$ mm, $L=390$ mm) ohne axialen Fluss ($Re=0$) bei turbulenter Ringwirbelströmung (TVS) mit Wasser als Fluid (Racina und Kind, 2006).

Liu und Lee (1999) untersuchten ebenfalls die Mikromischung in einem diskontinuierlich betriebenen Taylor-Vortex Reaktor ($r_i=40$ mm, $r_o=45$ mm, $L=300$ mm, $170 < Ta < 7000$, $Re=0$) mittels eines konkurrierendes Iodid-Iodat Reaktionssystems und schätzten mit dem phänomenologischen Vereinigungs-Modell (3-36) nach Fournier et al. (1996b) die mittleren

Mikromischzeiten T_m in einem weiten Strömungsbereich (laminar bis turbulent) anhand (3-37) ab.

$$\frac{dc_i}{dt} = (c_{i10} - c_i) \frac{1}{g(t)} \frac{dg(t)}{dt} + R_i \quad (3-36)$$

mit $g(t)$ Auflösungsterm [-] R_i Reaktionsterm Spezies i in mol/(m³·s)
 c_i Konzentration Spezies i in mol/m³
 c_{i10} Umgebungskonzentration Spezies i in mol/m³

Die Modellvorstellung des Vereinigungs-Modells beschreibt ein Fluidelement (Konzentration c_i), welches in einen Reaktor eintritt und sich mit dem Umgebungsfluid (Konzentration c_{i10}) allmählich vereint. Die Auflösungsrate $dg(t)/dt$ drückt hierbei die Geschwindigkeit des Lösungsvorganges aus, mit der das Fluidelement seine Identität verliert.

Bisher existieren jedoch keine Informationen über die Natur des Auflösungsterms $g(t)$ in Taylor-Vortex Reaktoren oder anderen realen Systemen. Fournier et al. (1996b) schlugen daher zwei empirischen Ansätze gemäß (3-37) vor.

$$\text{linearer Ansatz :} \quad g(t) = 1 + \frac{t}{T_m} \quad (3-37)$$

$$\text{exponentieller Ansatz :} \quad g(t) = \exp\left(\frac{t}{T_m}\right)$$

mit T_m mittlere Mikromischzeit in s

Für beide Modellansätze drückt eine große Mikromischzeit T_m eine kleine Auflösungsrate $dg(t)/dt$ und somit eine schlechte Mikromischung aus, bzw. im umgekehrten Fall führt eine kleine Mikromischzeit T_m zu einer intensiven Mikromischung.

Das folgende Bild 3-18 zeigt die mittels des Vereinigungs-Modell berechneten mittleren Mikromischzeiten T_m für verschiedene Ringspaltströmungen, wobei sowohl der lineare als auch der exponentielle Ansatz für den Auflösungsterm $g(t)$ verwendet wurde.

Bei kleinen Ta-Zahlen im laminaren Strömungsregime (LTVS) ist die Mikromischung sehr gering, was zu großen Mikromischzeiten von bis zu 5 s führt. Mit steigender Ta-Zahl und einsetzender Ringwirbeloszillation (WVS) und Turbulenz (TVS) kann die Mikromischung deutlich intensiviert werden und die Mikromischzeit T_m unter das Niveau eines Rührkessels (Industriekessel: $1 \text{ s} < T_m < 10 \text{ s}$; Laborgefäß: $10^{-2} \text{ s} < T_m < 10^{-1} \text{ s}$) auf 10^{-4} s bis 10^{-3} s reduziert werden. Hierdurch ist nun auch bei schnell ablaufenden Reaktionen (z. B. Fällung,

Neutralisation, Polymerisation) kein limitierender Einfluss der Mikromischung auf den Reaktionsverlauf mehr zu erwarten.

Wie außerdem in Bild 3-18 zu erkennen ist, besitzt der Auflösungsterm $g(t)$ einen signifikanten Einfluss auf die berechneten Mikromischzeiten T_m . Aufgrund der mangelnden Kenntnis des wirklichen Auflösungsterms $g(t)$ müssen die hiermit berechneten Mikromischzeiten T_m kritisch betrachtet werden und können, wenn überhaupt, nur grob die Größenordnung wiedergeben.

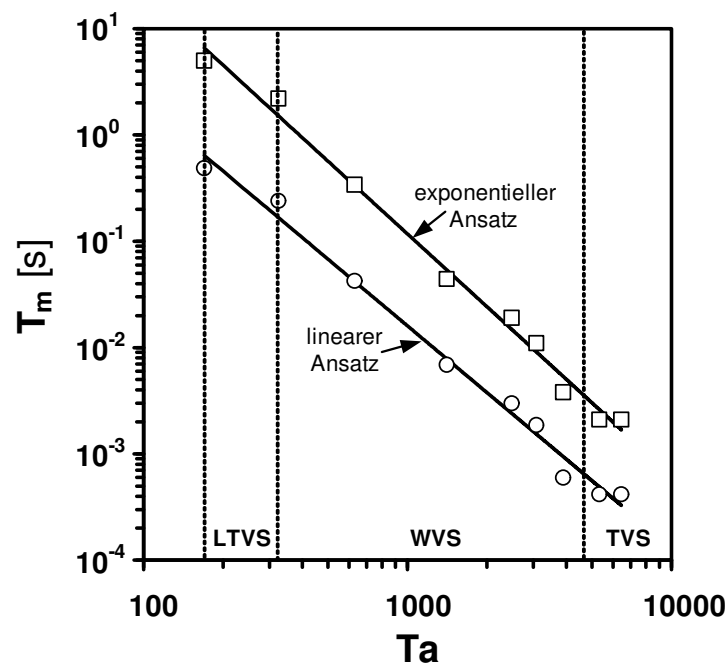


Bild 3-18: Nach Liu und Lee (1999) abgeschätzte mittlere Mikromischzeiten T_m (phänomenologisches Vereinigungs-Modell) in einem absatzweise betriebenen Taylor-Vortex Reaktor ($r_i=40$ mm, $r_o=45$ mm, $L=300$ mm, $170 < Ta < 7000$, $Re=0$)

4 UNTERSUCHUNGEN ZUR MISCHCHARAKTERISTIK

4.1 Beschreibung der Versuchsanlage

Alle Experimente zur Untersuchung der Mischcharakteristik mittels Spurstoffversuchen und Messung des spezifischen Röhrenergieeintrages wurden bei Umgebungstemperatur ($24 \pm 3 \text{ }^\circ\text{C}$) mit vollentsalzten, wässrigen Lösungen mit 40 % m/m oder 60 % m/m Glyceringehalt (wasserfrei, Reinheit $\geq 99 \%$, MERCK) gefahren. Die kinematischen Viskositäten der entsprechenden Fluide ergaben sich entsprechend zu $\nu^{25^\circ\text{C}} = 2,85 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ (40 % m/m) oder $\nu^{25^\circ\text{C}} = 7,55 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ (60 % m/m) (Chen und Pearlstein, 1987).

Das Fließbild der Versuchsanlage sowie der schematische Aufbau der untersuchten Taylor-Vortex Systeme (rippenförmiger oder zylindrischer Rotor) sind in Bild 4-1 bzw. Bild 1-1 dargestellt. Ein Schema der untersuchten Rotortypen und deren Dimension findet sich in Tabelle 4-1. Die detaillierte technische Gesamtzeichnung der Reaktorsysteme ist im Anhang A7 aufgeführt.

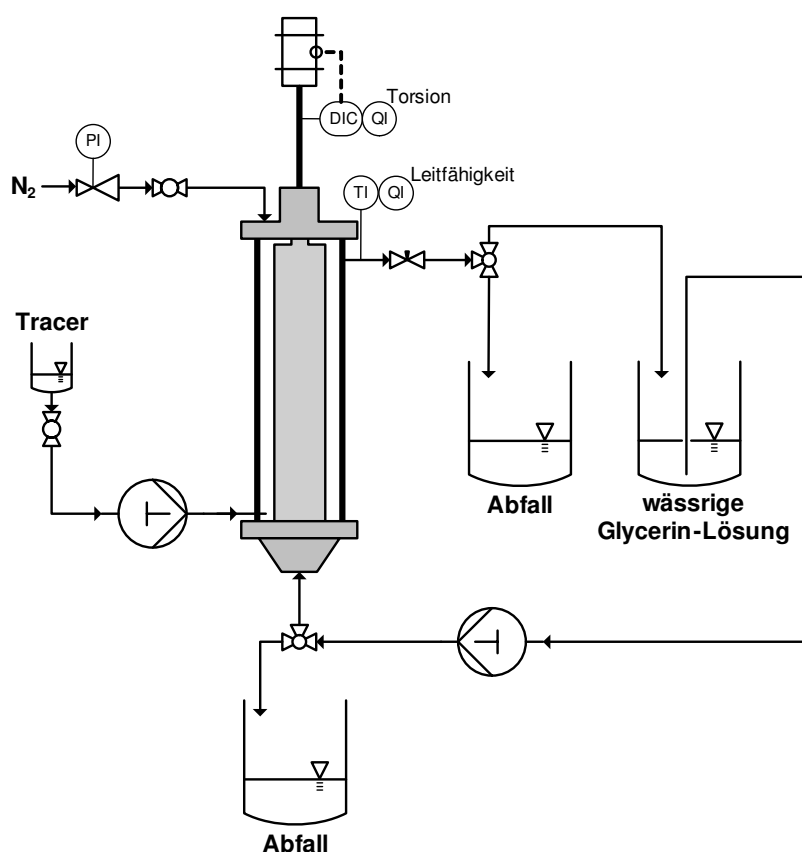

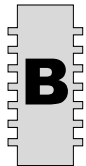



Bild 4-1: Experimenteller Versuchsaufbau

Der Boden sowie der Kopf der Taylor-Vortex Einheit wurden aus rostfreiem Edelstahl gefertigt. Der zylindrische Stator bestand hingegen aus transparentem Acrylglas

(Polymethylmethacrylat), um die visuelle Beobachtung der Strömung zu ermöglichen. Zwei rippenförmige Rotoren A und B sowie ein zylindrischer Rotor C wurden bei dieser Studie untersucht, welche jeweils aus Aluminium hergestellt waren. Die beiden rippenförmigen Rotoren waren in 20 identische Mischzellen unterteilt, wobei die Höhe h_{rib} der Rippen und somit auch die Länge L der Rotoren als Versuchsparameter variierte. Alle Abmessungen der untersuchten Konfigurationen sind in Tabelle 4-1 zusammengefasst.

Tabelle 4-1: Dimensionen der untersuchten Rotoren in mm und die entsprechenden Reaktorvolumina in mL. Die Symbole sind in Bild 1-1 definiert.

| |  |  |  |
|-------------------|---|---|--|
| r_o | 40,0 | 40,0 | 40,0 |
| r_i | 35,0 | 35,0 | 35,0 |
| r_{rib} | 39,0 | 39,0 | - |
| h_{rib} | 8,0 | 2,0 | - |
| h_{cell} | 10,0 | 10,0 | - |
| L | 352,0 | 238,0 | 280,0 |
| V | 260,7 | 232,4 | 329,9 |

Die Rotoren wurden mit einem elektronisch geregelterm Rührwerk (RZR 2102 control, HEIDOLPH), welches über eine integrierte Torsionswelle zur Drehmomentmessung verfügte, im Drehzahlbereich von 12-700 U/min ($40 < Ta < 2500$) angetrieben. Eine Magnetkupplung (Minex-S SA 60/8, KTR) dichtete die Verbindung zwischen Rotor und Antrieb gegeneinander ab. Das Fluid strömte über einen Konus am Boden des Taylor-Vortex Systems quer über den Ringspaltquerschnitt ein, um eine Beeinflussung der Ringspaltströmung durch Einströmeffekte zu minimieren. Eine elektronisch geregelte Taumelkolbenpumpe (Antrieb: MCP-CPF control; Pumpenkopf: QP Q1.CSC-W; ISMATEC) generierte den Durchfluss im Bereich von 3,5 bis 22,0 mL/min ($0,03 < Re < 0,51$). Um einen konstanten Flüssigkeitsspiegel einzustellen, musste der Kopfraum des Systems mit Überdruck (Stickstoff $< 0,7$ bar) beaufschlagt werden.

4.2 Versuchsdurchführung und Auswertung

4.2.1 Strömungsvisualisierung

Für die Sichtbarmachung und Abgrenzung der einzelnen Strömungsbereiche voneinander, wurden rheoskopische Fluide angesetzt, in dem den entsprechenden Wasser-Glycerin Lösungen 0,5 g/L Iriodin® (Iriodin® silber-weiß Pigment, MERCK) zugegeben und mit einem Ultraschallbad dispergiert wurden. Diese Substanz bestand aus mikroskopisch kleinen, Licht reflektierenden Plättchen ($\varnothing < 25 \mu\text{m}$), welche sich aufgrund von viskosen Kräften entlang der Strömungslinien orientierten (vergleiche Kapitel 2.2.1).

Die Dokumentation der mit dem rheoskopischen Fluid sichtbar gemachten Strömungsformen erfolgte anhand einer CCD-Kamera (Powershot A95, CANON), welche für Nahaufnahmen mit einer Makrolinse (LA-DC52D, CANON) nachgerüstet war.

4.2.2 Verweilzeitverteilung eines Spurstoffes

Die Verweilzeitverteilungen wurden durch Spurstoffversuche mit Kaliumchlorid (KCl, Reinheit $\geq 99,5 \%$, MERCK) gelöst in vollentsalztem Wasser (25 % m/m) bestimmt. Zum Zeitpunkt $t=0$ injizierte eine zweite Taumelkolbenpumpe (Antrieb: MCP-CPF control; Pumpenkopf: QP Q2.CSC-W; ISMATEC) über eine Spritzennadel einen praktisch idealen Tracerpuls (300 μL in 0,5 s). Der molekulare Diffusionskoeffizient für KCl in wässrigen Glycerin-Lösungen (Hosokawa et al., 1975) betrug hier $D^{25^\circ\text{C}}_{\text{mol}} = 8,7 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ (40 % m/m Glycerin) oder $D^{25^\circ\text{C}}_{\text{mol}} = 5,7 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ (60 % m/m Glycerin). Unabhängig vom Rotortyp wurde der Tracer jeweils in den Kern des ersten am Reaktorboden gebildeten Ringwirbel injiziert.

Das Leitfähigkeitssignal $\kappa(t)$, welches hier proportional der Tracerkonzentration ist, wurde unmittelbar am Reaktorausgang in einem Durchflussgefäß mit einer Leitfähigkeitsmesszelle (Konduktometer: Cond 340i, Messzelle: TetraCon 325, WTW) kontinuierlich erfasst und gespeichert. Um Verfälschungen der Verweilzeitverteilung zu verhindern, war die Durchflusszelle mit kleinen Glaskugeln ($\varnothing \approx 1 \text{ mm}$) gefüllt, so dass sich ein effektives Flüssigkeitsvolumen von lediglich 2 mL ergab. Aus den gemessenen Verläufen des Leitfähigkeitssignal $\kappa(t)$ konnten letztendlich mit (3-6) und (3-10) die normierten Verweilzeitverteilungen $E_{\Theta}(\Theta)$ berechnet werden.

4.2.3 Spezifischer Energieeintrag des Rotors

Das Rotordrehmoment konnte mittels einer in das Rührwerk integrierten Torsionswelle bestimmt werden. Allerdings musste vor jeder Messung ein Nullabgleich des Drehmomentes gemacht werden, da Aufgrund der Lagerreibung des Rotors sonst die Messwerte verfälscht worden wären. Hierfür wurde ohne Fluid im Ringspalt das Drehmoment bei einer Rotordrehzahl von 400 U/min über einen Zeitraum von 10 min gemessen und bei Konstanz das endgültige Drehmoment als Bezugspunkt gewählt. Nach Flüssigkeitsfüllung des Taylor-Vortex Systems wurde das Drehmoment bei der entsprechenden Rotordrehzahl über eine Zeitspanne von 10 min aufgezeichnet. Aus dem arithmetische Mittelwert des Drehmomentes M_T konnte mit (3-29) der spezifische Rührenergieeintrag ϵ berechnet werden, woraus sich schließlich als integrale Kenngröße für die Mikromischung der dimensionslose, spezifische Energieeintrag Π gemäß (3-30) ermitteln ließ. Als charakteristische Rührergröße l_c in (3-30) wurde der für alle untersuchten Rotoren identische Rotorradius r_i gewählt.

4.3 Modellierung der Makromischung

4.3.1 Modellwahl und Kenngrößen

Die Makromischung bzw. die Verweilzeitverteilung im Taylor-Vortex System kann, wie in Kapitel 3.2.4 diskutiert, am wirklichkeitsnahsten mit mehrparametrischen Zellenmodellen beschrieben werden.

Da die Strömungsvisualisierung (siehe Kapitel 4.4.1) grundlegend verschiedene Strömungseigenschaften der beiden untersuchten Rotortypen (zylindrisch, rippenförmig) zeigte, war es notwendig für jede Rotorform individuelle Zellenmodelle (siehe Kapitel 4.3.2 und 4.3.3) zu verwenden. Auf eine Unterteilung der Ringwirbel in mehrere Mischzonen (Multizonen Modell) konnte unabhängig vom Rotortyp jedoch verzichtet werden. Wie später gezeigt wird (siehe Kapitel 4.4.2), war es bei dieser Untersuchung ausreichend, die Ringwirbel jeweils mit einer perfekt vermischten Zone zu beschreiben. Diese Vereinfachung war nur möglich, da ausreichend lange Verweilzeiten im System (15 bis 60 min) eine angemessene Vermischung des Spurstoffes innerhalb der Ringwirbel bis zum Systemaustritt ermöglichen.

Um unabhängig vom verwendeten Rotortyp und Modell eindeutig die Makromischung vergleichen zu können, muss eine Kenngröße aus den individuellen Parametern der verwendeten Zellenmodelle abgeleitet werden.

Entsprechend Ohmura et al. (1997) kann ein axialer Dispersionskoeffizient D_{ax} aus den Parametern der Zellenmodelle (vergleiche Kapitel 4.3.2 und 4.3.3) gemäß (4-1) bestimmt werden. Als charakteristische Länge einer Mischeinheit (Ringwirbel) dient hier der Ringwirbeldurchmesser, welcher der Spaltbreite d entspricht.

$$D_{ax} = k_c \cdot d \quad ; \quad \frac{1}{k_c} = \sum_j \frac{1}{\beta_j} \quad (4-1)$$

mit k_c Stoffdurchgangskoeffizient in m/s β_j Stofftransportkoeffizient j in m/s
 d Spaltbreite in m

Mit dem axialen Dispersionskoeffizienten D_{ax} kann analog dem axialen Dispersionsmodell (siehe Kapitel 3.2.4) die dimensionslose Dispersionszahl \mathcal{D} entsprechend (4-2) gebildet werden. Sie beschreibt als Kenngröße der Makromischung anschaulich das Verhältnis von dispersivem zu konvektivem Stofftransport in einem kontinuierlich durchströmten System.

$$\mathcal{D} = \frac{D_{ax}}{u_{ax} \cdot L} \quad (4-2)$$

mit D_{ax} ax. Dispersionskoeffizient in m^2/s u_{ax} ax. Leerspaltgeschwindigkeit in m/s
 L Länge Spalt bzw. Länge Rotor in m

4.3.2 Modell für einen zylindrischen Rotor

Wie in Bild 4-2 gezeigt, wurde zur Modellierung der Makromischung beim zylindrischen Rotor der Ringspalt in N perfekt vermischte Zonen mit dem Volumen V_V und dem Durchmesser $d=r_o-r_i$ aufgeteilt, welche aufgrund des axialen Flusses u_{ax} mit einer Driftgeschwindigkeit u_d stromabwärts wandern. Ein möglicher Bypass trat hier nicht als gesonderter Bereich auf, sondern wurde indirekt durch eine Verlangsamung der Ringwirbel berücksichtigt. Somit ist die Driftgeschwindigkeit u_d der Ringwirbel nur ein Anteil f des gesamten axialen Stromes u_{ax} . Axialer Stofftransport zwischen den Ringwirbeln über die ringförmige Kontaktfläche A_V wurde durch einen Stofftransportkoeffizienten β_V beschrieben, welcher zusätzlich auch den Einfluss eines Bypasses berücksichtigt.

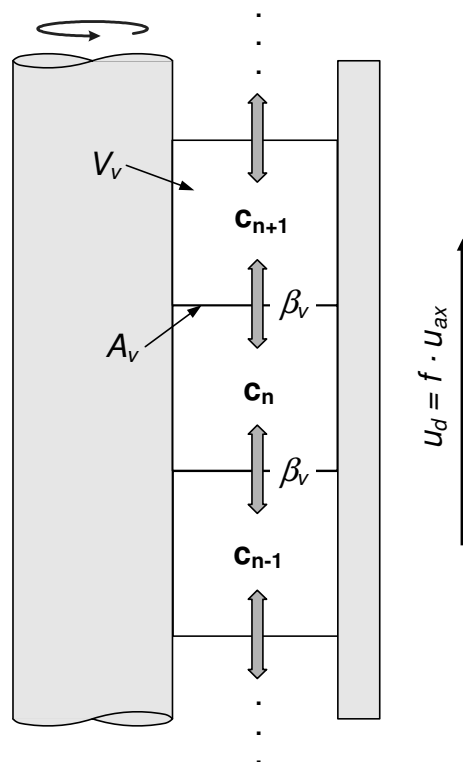


Bild 4-2: Schema des makroskopischen Stofftransportes in einem Taylor-Vortex System mit zylindrischem Rotor.

Die Stoffbilanz des Spurstoffes im System ergibt folgendes gekoppelte System einfacher Differentialgleichungen erster Ordnung (DGL-System).

Ringwirbel 1 :

$$V_V \frac{dc_1}{dt} = A_V \cdot \beta_V (c_2 - c_1)$$

⋮

Ringwirbel n :

$$V_V \frac{dc_n}{dt} = A_V \cdot \beta_V (c_{n-1} - 2c_n + c_{n+1}) \quad (4-3)$$

⋮

Ringwirbel N :

$$V_V \frac{dc_N}{dt} = A_V \cdot \beta_V (c_{N-1} - c_N)$$

mit N Anzahl der Ringwirbel

β_V Stofftransportkoeffizient in m/s

c_n Konzentration im n-ten Ringwirbel in mol/m³

V_V Volumen Ringwirbel in m³

A_V Austauschoberfläche Ringwirbel in m²

Die schrittweise Berechnung der Dispersion startete jeweils mit der initialen (t=0) Tracerkonzentration $c_1=c_0$; $c_n=c_N=0$ mol/m³. Danach wurden die Ringwirbel virtuell eine Mischzone stromabwärts bewegt, in dem der Zellenindex n auf n+1 erhöht wurde. Hierbei verließ der N-te Ringwirbel mit der Auslasskonzentration c_N den Reaktor und ein frischer Ringwirbel mit $c_1=0$ mol/m³ trat in das System ein. Die inkrementelle Zeitspanne zwischen den Ringwirbelsprüngen stromabwärts betrug hierbei $\Delta t=d/u_d$. Diese Routine wurde so oft wiederholt, bis die Auslasskonzentration c_N einen Wert von praktisch null erreichte.

Mittels dem so zugänglichen Verlauf der Ausgangskonzentration $c_N(t)$ des Tracers konnte anhand (3-6) und (3-10) die modellierte Verweilzeitverteilung $E_{\Theta}(\Theta)$ bestimmt werden. Die dimensionslosen Dispersionszahlen \mathcal{D} für das System mit einem zylindrischen Rotor konnten letztendlich durch die im folgenden Kapitel 4.3.4 beschriebene Schätzung der Modellparameter (β_V , f) entsprechend der folgenden Zusammenhänge (4-4) berechnet werden. Abweichend zu (4-2) muss hier bei der Berechnung der Dispersionszahl \mathcal{D} der Einfluss des Bypassstromes auf den konvektiven Stofftransport anhand des Bypassfaktors f berücksichtigt werden.

$$\frac{1}{k_c} = \frac{1}{\beta_v} + \frac{1}{\beta_v} \quad (4-4)$$

$$\mathcal{D} = \frac{D_{ax}}{f \cdot u_{ax} \cdot L} = \frac{k_c \cdot d}{f \cdot u_{ax} \cdot L}$$

- mit k_c Stoffdurchgangskoeffizient in m/s
 β_v Stofftransportkoeffizient in m/s
 $f = u_d / u_{ax}$ Bypassfaktor [-]
 u_d Driftgeschwindigkeit Ringwirbel in m/s
 u_{ax} axiale Leerspaltgeschwindigkeit in m/s
 d Spaltbreite in m
 L Länge Spalt bzw. Länge Rotor in m
 D_{ax} axialer Dispersionskoeffizient in m^2/s

4.3.3 Modell für einen rippenförmigen Rotor

Das Makromischungsmodell für den rippenförmigen Rotor musste im Vergleich zum Modell für den zylindrischen Rotor modifiziert werden (siehe Bild 4-3).

Die Strömungsvisualisierung (siehe Kapitel 4.4.1) zeigte, dass immer ein gegeneinander rotierendes Ringwirbelpaar entsteht, welches eine axial immobilisierte Mischzelle (Index n) definiert. Jedes dieser Wirbelpaare wurde wiederum als perfekt vermischte up-Zone (Index u) und down-Zone (Index d) betrachtet (Volumen V_v , Durchmesser d). Das Volumen des Ringspaltes zwischen einer Rippe und dem Stator wurde nicht separat beschrieben, sondern aufgeteilt und zu den jeweils angrenzenden Wirbeln hinzugefügt (siehe Bild 4-3). Für die Beschreibung des Stofftransports innerhalb eines Wirbelpaares über die Kontaktfläche A_i war es ausreichend den Stofftransportkoeffizienten β_i einzuführen. Der Stofftransport zwischen zwei Mischzellen, welche durch die Rippen getrennt werden, erfolgte hingegen über die Grenzfläche A_o mit dem Stofftransportkoeffizienten β_o , wobei zusätzlich hier ein rein konvektiver Beitrag durch den axialen Fluss Q auftritt.

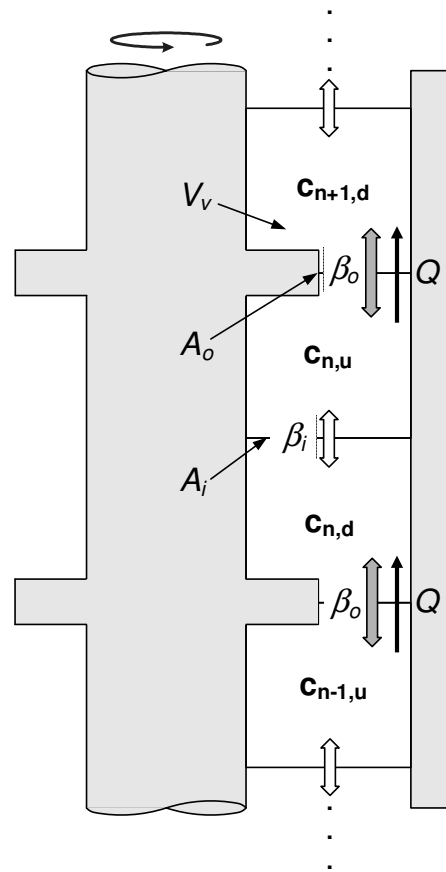


Bild 4-3: Schema des makroskopischen Stofftransportes in einem Taylor-Vortex System mit rippenförmigem Rotor.

Eine Tracerbilanz im Taylor-Vortex System mit rippenförmigen Rotor führt zu dem folgenden gekoppelten DGL-System (4-5).

Aus dessen Lösung ergibt sich direkt der Konzentrationsverlauf $c_{N,u}(t)$ des letzten (N-ten) Ringwirbels, woraus mit (3-6) und (3-10) die modellierte Verweilzeitverteilung $E_{\Theta}(\Theta)$ bestimmt werden kann. Die gesamte Dispersionszahl \mathcal{D} für das System mit einem rippenförmigen Rotor ergab sich aus der im folgenden Kapitel 4.3.4 beschriebene Schätzung der Modellparameter (β_i , β_o). Falls jede der 20 Mischzellen wie ein idealer Rührkessel arbeiten würde, wäre das theoretische Minimum der Makromischung für diesen Rotortyp erreicht ($\beta_i \rightarrow \infty$; $\beta_o = 0 \text{ m}^2/\text{s}$). Das gesamte System hätte demnach die minimale Dispersionszahl einer Kaskade aus $N=20$ idealen Rührkesseln ($\mathcal{D}_{\text{RKK}} = 2,566 \cdot 10^{-2}$; siehe Anhang A10). Die Dispersionszahlen \mathcal{D} des realen Systems sind höher und ergeben sich nach (4-6).

Ringwirbel 1 :

$$\text{down-Zone : } V_v \frac{dc_{1,d}}{dt} = A_i \cdot \beta_i (c_{1,u} - c_{1,d})$$

$$\text{up-Zone : } V_v \frac{dc_{1,u}}{dt} = -Q \cdot c_{1,u} - A_i \cdot \beta_i (c_{1,u} - c_{1,d}) - A_o \cdot \beta_o (c_{1,u} - c_{2,d})$$

$$\vdots$$
Ringwirbel n :

$$\text{down-Zone : } V_v \frac{dc_{n,d}}{dt} = Q \cdot c_{n-1,u} - A_i \cdot \beta_i (c_{n,d} - c_{n,u}) - A_o \cdot \beta_o (c_{n,d} - c_{n-1,u}) \quad (4-5)$$

$$\text{up-Zone : } V_v \frac{dc_{n,u}}{dt} = -Q \cdot c_{n,u} - A_i \cdot \beta_i (c_{n,u} - c_{n,d}) - A_o \cdot \beta_o (c_{n,u} - c_{n+1,d})$$

$$\vdots$$
Ringwirbel N :

$$\text{down-Zone : } V_v \frac{dc_{N,d}}{dt} = Q \cdot c_{N-1,u} - A_i \cdot \beta_i (c_{N,d} - c_{N,u}) - A_o \cdot \beta_o (c_{N,d} - c_{N-1,u})$$

$$\text{up-Zone : } V_v \frac{dc_{N,u}}{dt} = -Q \cdot c_{N,u} - A_i \cdot \beta_i (c_{N,u} - c_{N,d})$$

mit N Anzahl der Ringwirbel

β_i, β_o innerer bzw. äußerer Stofftransportkoeffizient in m/s

$c_{n,d}, c_{n,u}$ Konzentration im n-ten (down oder up) Ringwirbel in mol/m³

V_v Volumen Ringwirbel in m³

Q Volumenstrom in m³/s

A_i, A_o innerer bzw. äußere Austauschoberfläche Ringwirbel in m²

$$\frac{1}{k_c} = \frac{1}{\beta_o} + \frac{1}{\beta_i} + \frac{1}{\beta_o} \quad (4-6)$$

$$\mathcal{D} = \mathcal{D}_{\text{RKK}} + \frac{D_{\text{ax}}}{u_{\text{ax}} \cdot L} = \mathcal{D}_{\text{RKK}} + \frac{k_c \cdot 2d}{u_{\text{ax}} \cdot L}$$

mit k_c Stoffdurchgangskoeffizient in m/s

β_i, β_o innerer bzw. äußerer Stofftransportkoeffizient in m/s

β_v Stofftransportkoeffizient in m/s

\mathcal{D}_{RKK} Dispersionskoeffizient Kaskade idealer Rührkessel ($N=20$) [-]

u_{ax} axiale Leerspaltgeschwindigkeit in m/s

d Spaltbreite in m

L Länge Spalt bzw. Länge Rotor in m

D_{ax} Dispersionskoeffizient in m²/s

4.3.4 Numerische Modellparameteranpassung mittels MATLAB®

Die Modellparameterpassung „TaylorDatenFit.m“ wurde in MATLAB® 7.0 (R14) programmiert und ihr Ablauf ist in Bild 4-4 schematisch dargestellt, wobei die Quellcodes der Programme und Unterprogramme im Anhang A8 bzw. A9 dokumentiert sind. Mit ihr war es möglich, aus den experimentellen Verweilzeitverteilungen entsprechend den Makromischungsmodellen (zylindrischer oder rippenförmiger Rotor) die Modellparameter zu schätzen und daraus als Kenngröße der Makromischung die Dispersionszahl \mathcal{D} zu berechnen. Um für die Parameteranpassung die modellierte Verweilzeitverteilung $E_{\Theta, \text{mod}}$ berechnen zu können, mussten zuvor die Stoffbilanzen der entsprechenden Makromischungsmodelle (siehe Kapitel 4.3.2 und 4.3.3) gelöst werden. Die Stoffbilanzen, welche jeweils durch ein gekoppeltes Differentialgleichungssystem erster Ordnung (DGL-System) beschrieben werden, wurden mit dem Unterprogramm „TaylorDGL.m“ generiert und anschließend mittels eines in MATLAB® verfügbaren moderat steifen Runge-Kutta Algorithmus (ode23t) gelöst. Als Methode der Parameterschätzung diente die iterative Minimierung der Fehlerquadratsumme Δ zwischen der experimentellen Verweilzeitverteilung $E_{\Theta, \text{exp}}$ und der mit Modellparametern berechneten Verweilzeitverteilung $E_{\Theta, \text{mod}}$.

$$\Delta = \sum (E_{\Theta, \text{exp}} - E_{\Theta, \text{mod}})^2 \quad (4-7)$$

mit $E_{\Theta, \text{exp}}$ experimentelle Verweilzeitverteilung [-]

$E_{\Theta, \text{mod}}$ modellierte Verweilzeitverteilung [-]

Um die optimalen Modellparameter zu ermitteln, muss das globale Minimum der Minimierungsfunktion (4-7) gefunden werden. Ungünstigerweise besitzt diese aber neben dem globalen Minimum immer auch mehrere lokale Minima. Der in MATLAB® implementierte Minimierungsalgorithmus („least-squares nonlinear“, lsqnonlin) findet schnell und beliebig genau ein Minimum von (4-7), welches aber je nach Startwerten nicht notwendigerweise dem globalen Minimum entsprechen muss. Alternativ kann ein von der University of Sheffield entwickelter, genetischer Minimierungsalgorithmus („genetic algorithm toolbox v1.2“, genalg) verwendet werden, welcher sich theoretisch immer dem globalen Minimum beliebig genau nähert. Allerdings ist hierbei der Rechenaufwand immens groß, wodurch sich eine Kombination beider Algorithmen als praktisch erwiesen hat (Vorschätzung mit genalg, Anpassung mit lsqnonlin).

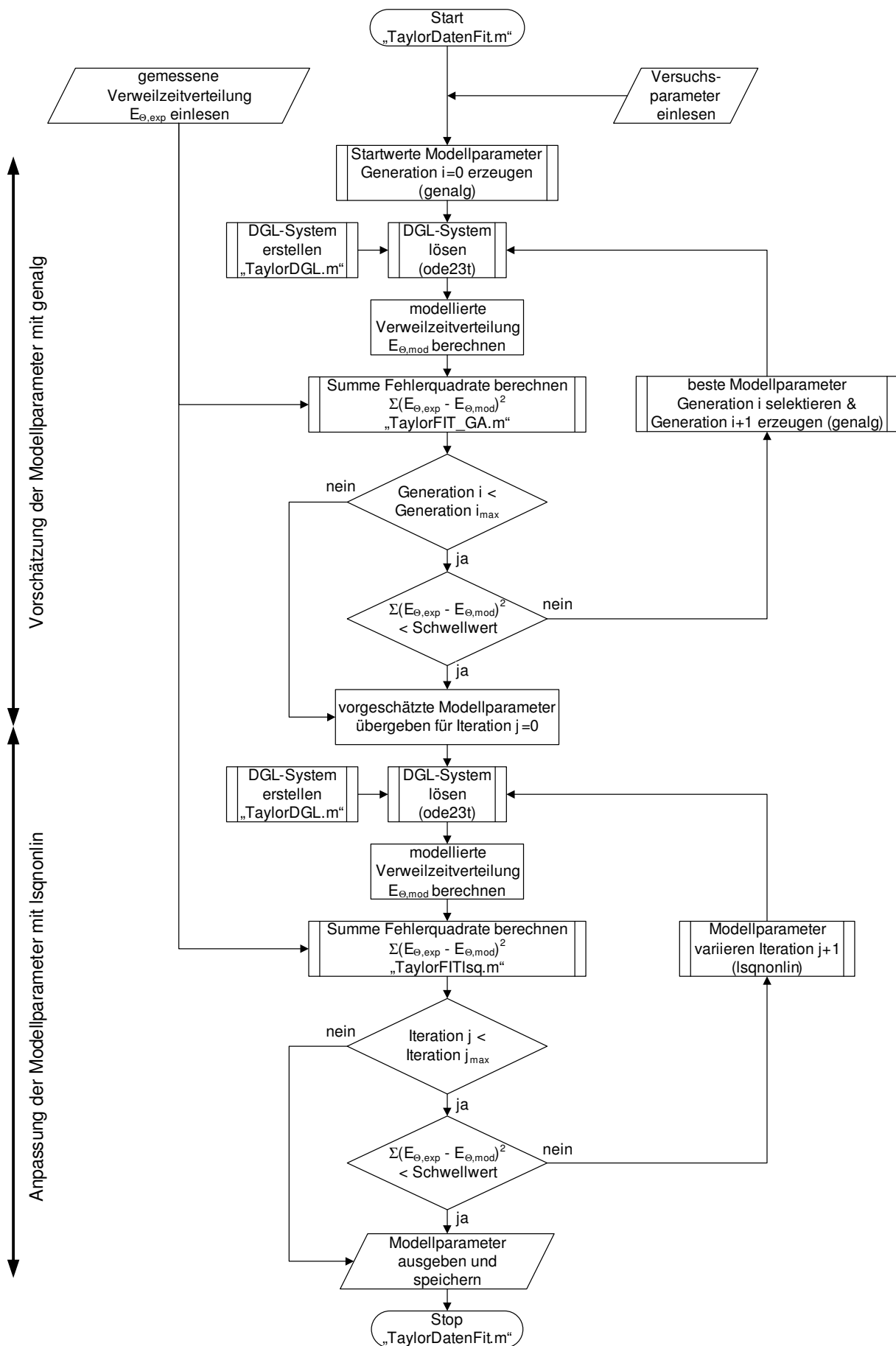


Bild 4-4: Programmablaufplan der Modellparameteranpassung mittels MATLAB®.

4.4 Ergebnisse und Diskussion

4.4.1 Strömungsvisualisierung

Bild 4-5 zeigt typische Strömungsmuster für den zylindrischen Rotor C bei vier verschiedenen Ta-Zahlen, wie sie in Übereinstimmung mit der Literatur (siehe Kapitel 2.2.1 und 2.2.2) zu erwarten waren. Die gebildeten Ringwirbel bewegten sich hierbei immer ohne eine Deformation in Reihe stromabwärts, wobei die Modellparameteranpassung das Auftreten eines nicht mit den Strömungskennzahlen (Ta , Re) korrelierbaren Bypasses offen legte ($0,784 < f = u_d / u_{ax} < 0,945$, vergleiche Kapitel 2.2.2, Bild 2-7). Innerhalb des untersuchten Strömungsbereiches ($0,03 < Re < 0,51$), waren zudem alle beobachteten Strömungsübergänge praktisch unabhängig von der Re -Zahl, was durch deren moderates Niveau zu erklären ist (siehe Kapitel 2.2.2, Bild 2-3).

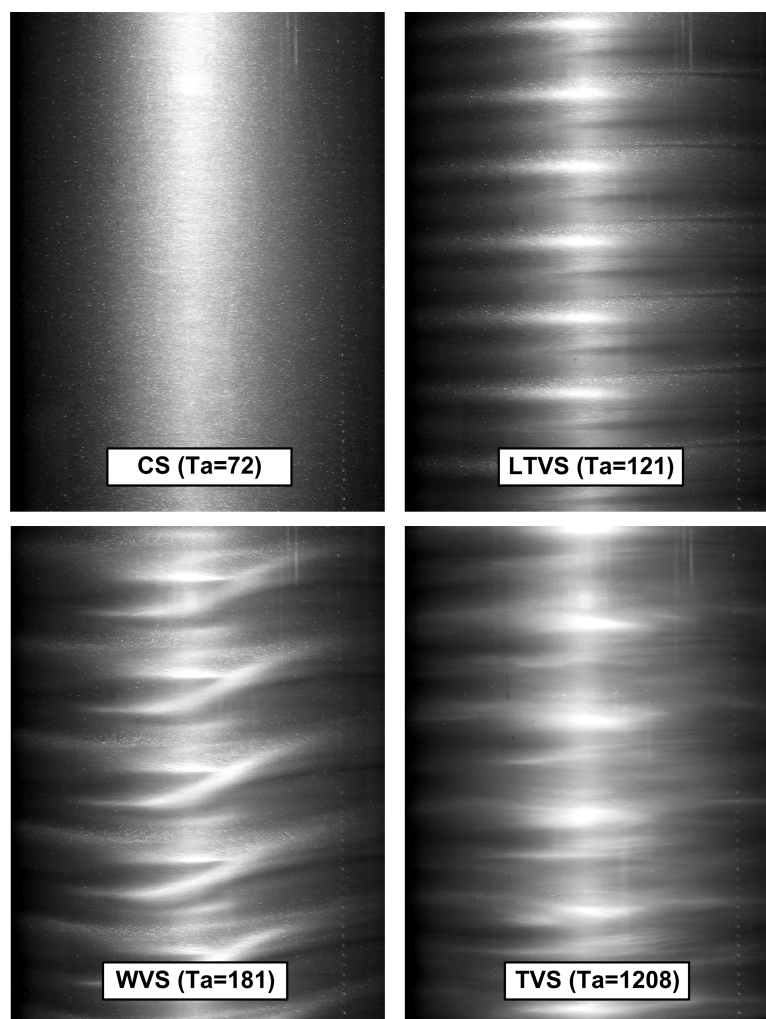


Bild 4-5: Vorderansicht des kontinuierlich durchströmten Taylor-Vortex Systems mit dem zylindrischen Rotor C, wobei typische Muster der Ringspaltströmung dargestellt sind ($Re=0,13$; rheoskopische Fluid: 0,5 g/L Iridin® silber-weiß Pigment dispergiert in 40 % m/m Glycerin-Wasser).

Der erste Strömungsübergang (CS→LTVS) trat im Bereich von $Ta_{C1} \approx 100$ auf. Dieser Wert und die praktisch vernachlässigbare Abhängigkeit von der Re-Zahl entsprechen gut den von Recktenwald et al. (1993) mit der linearen Stabilitätsanalyse (siehe Kapitel 2.3) vorhergesagten Werten für diese Ringspaltgeometrie ($Ta_{C1} = 117,42$ bei $Re = 0,03$; $Ta_{C1} = 117,44$ bei $Re = 0,51$). Das LTVS Regime war nur in einem sehr engen Ta-Bereich von etwa $Ta_{C1} \approx 100$ bis $Ta_{C2} \approx 130$ stabil ($Ta_{C2}/Ta_{C1} \approx 1,3$). Die WVS mit ihren charakteristischen Ringwirbeloszillationen wurde nachgewiesen bis etwa $Ta_{C3} \approx 600$ ($Ta_{C3}/Ta_{C1} \approx 6$). Bei höheren Ta-Zahlen ($Ta > 600$) setzten dann chaotische, turbulente Strömungsstrukturen ein, welcher der TVS zuzuordnen sind.

Wie im vorherigen Kapitel 2.3 beschrieben, ist es bisher nicht möglich, die höheren Strömungsübergänge bei Ta_{C2} (LTVS→WVS) bzw. Ta_{C3} (WVS→TVS) hinreichend zu berechnen. Ein Vergleich mit verfügbaren experimentellen Daten aus der Literatur zeigt jedoch qualitativ eine gute Übereinstimmung ($1,08 < Ta_{C2}/Ta_{C1} < 1,21$; $5,5 < Ta_{C3}/Ta_{C1} < 12,5$), obwohl diese Literaturdaten im Gegensatz zu hier ohne axialen Fluss ($Re = 0$) bestimmt wurden (siehe Kapitel 2.3, Tabelle 2-3 und Tabelle 2-4). Ein Vergleich ist aber dennoch zulässig, weil wie oben erwähnt, die Werte der hier untersuchten Re-Zahlen sehr klein waren ($0,03 < Re < 0,51$).

Im Vergleich zum zylindrischen Rotor C traten mit den rippenförmigen Rotoren A ($h_{rib} = 8$ mm) und B ($h_{rib} = 2$ mm) grundlegend andere Strömungsformen auf. Die drei charakteristischen Ringspaltströmungen, wie sie sich exemplarisch mit dem Rotor A ergaben, sind in Bild 4-6 dargestellt. Unabhängig von den untersuchten Strömungskennzahlen (Ta , Re) bildeten sich ab der hier minimal einstellbaren Ta-Zahl ($Ta \approx 25$) immer zwei gegenläufig rotierende Ringwirbel (Ringwirbelpaar) in einer Mischzelle zwischen zwei Rippen (helle Bänder in Bild 4-6). Wiederum waren alle auftretenden Strömungsmuster und Strömungsübergänge unabhängig vom untersuchten Re-Zahlen Bereich ($0,03 < Re < 0,51$).

Die mit steigender Ta-Zahl beobachteten Strömungsänderungen traten nicht in den Mischzellen auf, sondern hauptsächlich im schmalen Spalt zwischen Rippe und Stator (dunkle Bänder in Bild 4-6). Dort existierte zuerst eine laminare Scherströmung bis zu $Ta \approx 750$, welche charakteristisch für die sogenannte primäre laminare Vortex Strömung (PLVS) war. Die erste Transformation der Strömung war gekennzeichnet durch die Bildung von laminaren Ringwirbeln aus dieser Scherströmung und führte im Bereich $750 < Ta < 1200$ zur sekundären laminaren Vortex Strömung (SLVS). Eine weitere Erhöhung der Ta-Zahl ($Ta < 1200$) verursachte schließlich die Entstehung von turbulente Strukturen (tertiäre turbulente Vortex Strömung, TTVS).

Trotz eines überlagerten axialen Flusses, wanderten die Ringwirbelpaare in den Mischzellen nicht stromabwärts. Sie werden zwischen den Rippen immobilisiert. Ein Vergleich von Bild 4-5 mit Bild 4-6 zeigt eindeutig, dass die Rippen einen stabilisierenden Effekt auf die Ringspaltströmung hatten. Keine azimuthalen Oszillationen, wie im WVS Regime beim zylindrischen Rotor C üblich, wurden beobachtet, ebenso wenig wie eine Deformation oder Überlappung der Ringwirbel in den Mischzellen. Zusätzlich wurde die Entstehung von Turbulenz zu höheren Ta-Zahlen hin verschoben (zylindrischer Rotor C, TVS: $Ta > 600$; rippenförmiger Rotor A und B, TTVS: $Ta > 1200$).

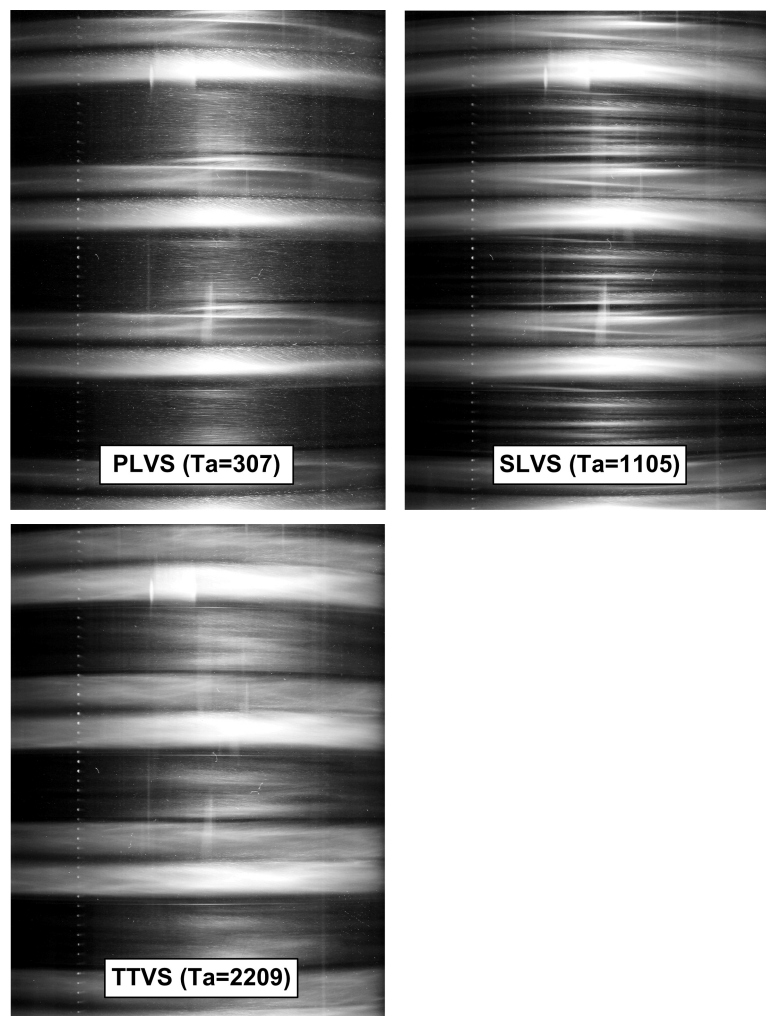


Bild 4-6: Vorderansicht des kontinuierlich durchströmten Taylor-Vortex Systems mit dem rippenförmigen Rotor A, wobei typische Muster der Ringspaltströmung dargestellt sind ($h_{rib}=8$ mm; $Re=0,19$; rheoskopische Fluid: 0,5 g/L Iriodin® silber-weiß Pigment dispergiert in 40 % m/m Glycerin-Wasser).

4.4.2 Validierung der Makromischungsmodelle

Bild 4-7 vergleicht je eine normierte Verweilzeitverteilung aus den Spurstoffexperimenten (Symbole) mit der entsprechend modellierten Verweilzeitverteilung aus der Parameteranpassung (Kurve). Aufgrund der besseren Vergleichbarkeit (Symbole \leftrightarrow Kurve), wurde nur ein Teil der Messpunkte dargestellt. Für beide Rotortypen zeigten sich hierbei eine sehr gute Anpassung an die experimentellen Daten, wodurch belegt wird, dass die in Kapitel 4.3.2 und 4.4.4 eingeführten Modelle die Makromischung im untersuchten Bereich sehr gut abbilden.

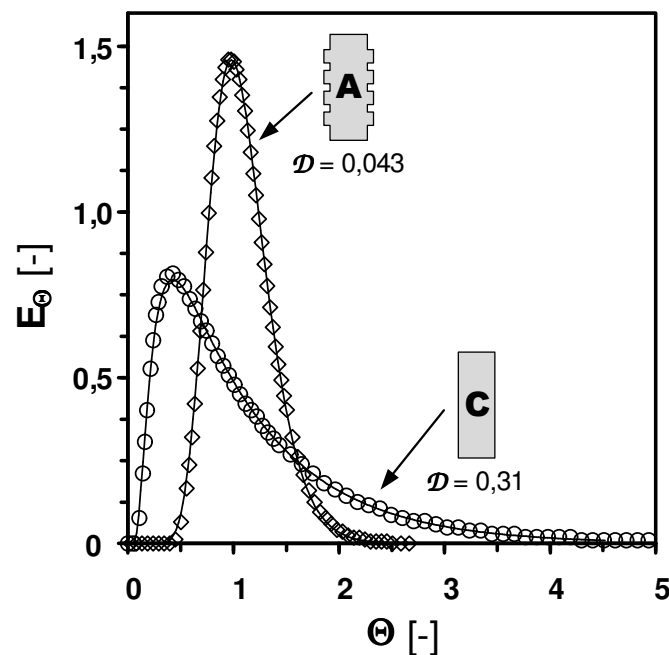


Bild 4-7: Vergleich der modellierten (—) und experimentellen Verweilzeitverteilungen bei Einsatz des zylindrischen Rotors C (○) und des rippenförmigen Rotors A (◇); (60 % m/m Glycerin-Wasser; zylindrischer Rotor C: $Ta=447$, $Re=0,19$; rippenförmiger Rotor A: $h_{rib}=8$ mm, $Ta=503$, $Re=0,16$).

Mit Bild 4-7 ist im weiteren ein erster Vergleich der Makromischungscharakteristik beider Rotortypen möglich, da der hydrodynamische Bereich (Ta , Re) bei der Messwernerfassung ähnlich war. Die Verweilzeitverteilung im Taylor-Vortex System fällt mit dem konventionellen zylindrischen Rotor C sehr viel breiter aus als mit dem neuartigen rippenförmigen Rotor A. Die axiale Segmentierung des Ringspaltes durch die Rippen hatte somit offensichtlich den erhofften Effekt und reduzierte die Makromischung. Die weitere, detaillierte Untersuchung der Makromischung folgt in den Kapiteln 4.4.3 bis 4.4.5.

4.4.3 Makromischung mit einem zylindrischen Rotor

Die dimensionslosen Dispersionszahlen \mathcal{D} , welche für das System mit dem zylindrischen Rotor C ermittelt wurden, sind in Bild 4-8 und Bild 4-9 für jeweils 40 % m/m und 60 % m/m Glycerin-Wasser Lösungen angegeben. Die Makromischung im CS Regime ($Ta < 100$) wurde aufgrund mangelnder praktischer Relevanz nicht untersucht.

Die geringsten \mathcal{D} -Werte zwischen 10^{-3} und 10^{-2} sind der LTVS zu zuordnen und kennzeichnen hier ein Makromischungsniveau entsprechend einem Kolbenstromreaktor (PFR). Der Wechsel in das WVS Regime ($130 < Ta < 600$) ist verbunden mit einem ausgeprägten Anstieg in der Dispersion, welcher sich durch die auftretenden Oszillationen und dem damit verbundenen Fluidtransfer zwischen den Wirbelzellen erklären lässt (siehe Kapitel 2.2.1). Bei hohen Ta -Zahlen und einsetzender Turbulenz (TVS, $Ta > 600$) erreicht die Makromischung dann allmählich ein Level entsprechend einem Rührkessel.

Wie in Kapitel 3.2.5 mit (3-21) gezeigt wurde, ist der dimensionsbehaftete Dispersionskoeffizient D_{ax} nur eine schwache Funktion der Re -Zahl. Die in Bild 4-8 und Bild 4-9 erkennbare Abhängigkeit der Dispersionszahl \mathcal{D} von der Re -Zahl, begründet sich daher per Definition von \mathcal{D} (3-19) durch die Variation der axialen Leerspaltgeschwindigkeit u_{ax} .

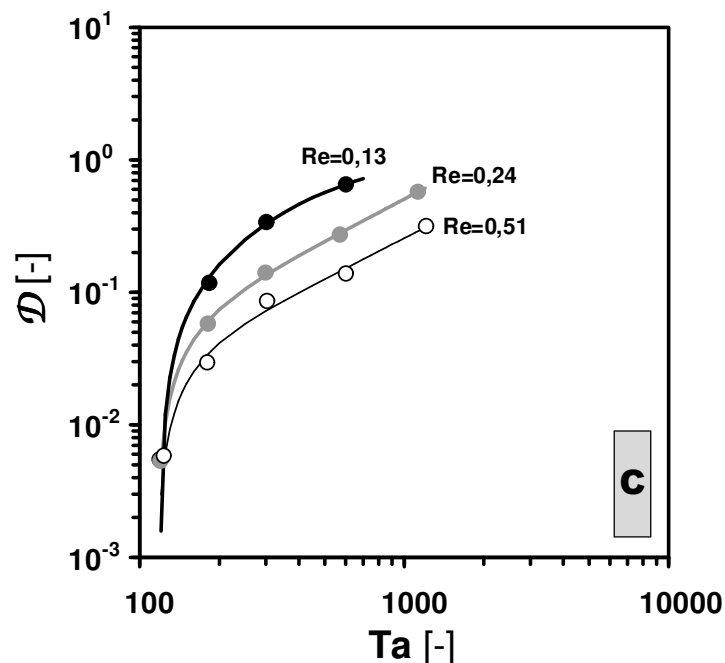


Bild 4-8: Verlauf der dimensionslosen Dispersionszahl \mathcal{D} , wie sie mit dem zylindrischen Rotor C und einer 40 % m/m Glycerin-Wasser Lösung ermittelt wurde; $Re=0,13$ (●), $Re=0,24$ (●), $Re=0,51$ (○).

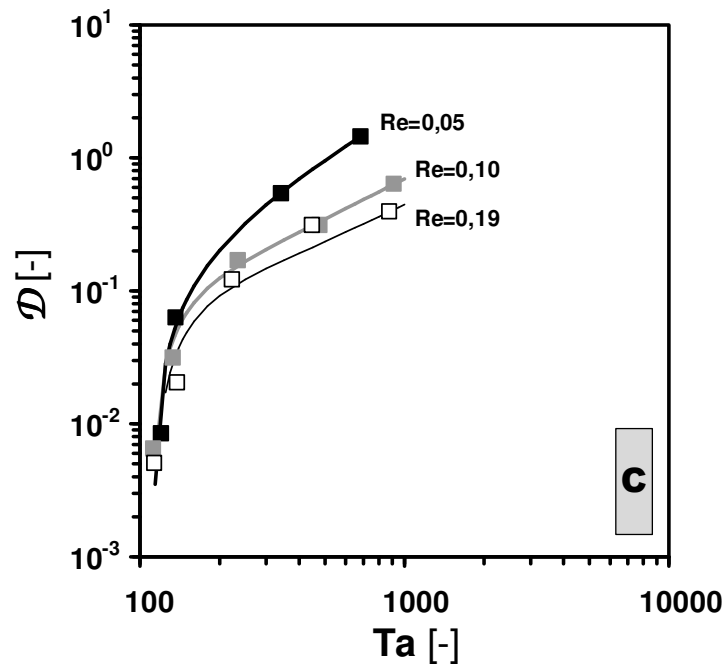


Bild 4-9: Verlauf der dimensionslosen Dispersionszahl \mathcal{D} , wie sie mit dem zylindrischen Rotor C und einer 60 % m/m Glycerin-Wasser Lösung ermittelt wurde; $Re=0,05$ (■), $Re=0,10$ (■), $Re=0,19$ (□).

Wie in Kapitel 3.2.5 bereits diskutiert, untersuchten unter anderem Moore und Cooney (1995) mittels Spurstoffexperimenten die Makromischung im Taylor-Vortex System für eine Vielzahl von Ringspaltgeometrien in einem weiten hydrodynamischen Bereich. Die von ihnen abgeleitete Korrelation der Makromischung ist in dem von ihnen untersuchten Strömungsbereich unabhängig von der molekularen Diffusion des Tracers ($8 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s} < D_m < 8 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$). Ebenfalls scheint die Viskositätsabhängigkeit im Bereich von $\nu^{25^\circ\text{C}} = 1,8 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ bis $\nu^{25^\circ\text{C}} = 3,7 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ ausreichend in der Ta bzw. Re-Zahl berücksichtigt zu sein.

Diese Korrelation (3-21) von Moore und Cooney (1995) ist in Bild 4-10 zusammen mit unseren experimentellen Daten für den zylindrischen Rotor C, sowie mit weiteren in der Literatur verfügbaren Versuchsdaten (Enokida et al., 1989; Pudjiono et al., 1992; Kataoka und Takigawa, 1981) eingezeichnet.

Für den Fall der Lösung, welche 40 % m/m Glycerin enthält ($\nu^{25^\circ\text{C}} = 2,85 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$), ist eine gute Übereinstimmung zwischen Korrelation und unserer experimentellen Daten vorhanden. Die Werte für die Lösung mit einer höheren Glycerinkonzentration weichen jedoch systematisch ab. Sie zeigen, dass eine signifikant höhere Viskosität ($\nu^{25^\circ\text{C}} = 7,55 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$) eine geringfügige Erhöhung des Makromischungsniveaus verursacht. Die Makromischungskorrelation von Moore und Cooney (1995) scheint nur in einem niedrigen Viskositätsbereich von $\nu^{25^\circ\text{C}} = 1,8 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ bis $\nu^{25^\circ\text{C}} = 3,7 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ anwendbar zu sein. Der

Viskositätseinfluss auf die axiale Dispersion scheint stärker ausgeprägt zu sein als er in den Definitionen der Ta und Re-Zahl ausgedrückt wird (siehe (2-1) und (2-2)). In Strömungsbereichen, welche durch Konvektion zwischen den Wirbelzellen stark beeinflusst werden (WVS, TVS), wird bei einer höheren Viskosität auch eine höhere Rotordrehzahl benötigt, um die gleiche Ta-Zahl einzustellen. Als eine Folge hieraus, wird die Stromliniengeschwindigkeit der Ringwirbel beschleunigt und somit auch der konvektive, inter-Wirbel Fluidtransfer erhöht.

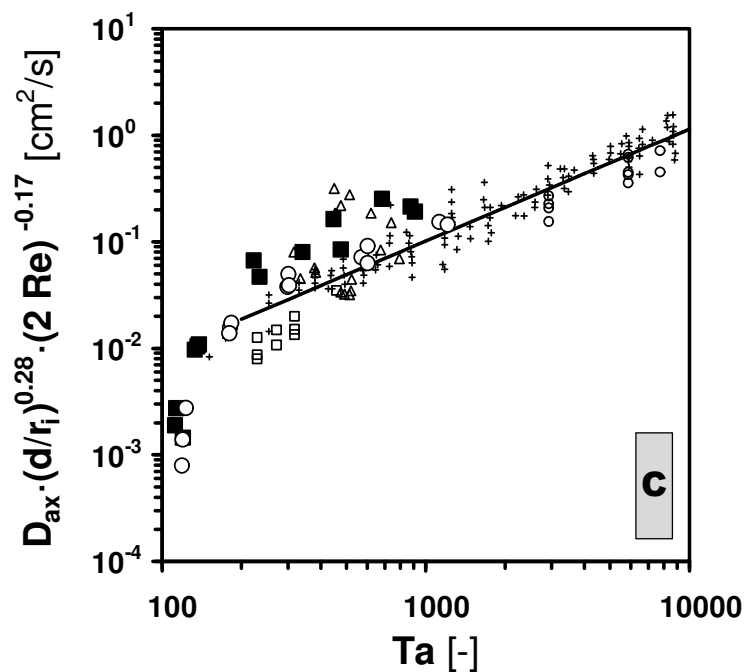


Bild 4-10: Makromischungskorrelation (—) und Daten (+) ermittelt von Moore und Cooney (1995), sowie weitere Literaturdaten von Enokida et al. (1989) (o), Pudjiono et al. (1992) (□), Kataoka und Takigawa (1981) (△), jeweils verglichen mit experimentellen Ergebnissen für den zylindrischen Rotor C mit 40 % m/m (○) und 60 % m/m (■) Glycerin-Wasser Lösungen.

Für alle untersuchten Fälle weichen jedoch die Versuchsdaten ab $Ta < 200$ stark von der Korrelation ab, und die Dispersionskoeffizienten D_{ax} erreichen eine für Diffusion charakteristische Größenordnung. Offensichtlich spielt in diesem niedrigen Ta-Zahlen Bereich (z. B. LTVS) die Diffusion eine bedeutende Rolle, was durch die von Moore und Cooney (1995) entwickelte, konvektionsdominierte Korrelation nicht beschrieben werden kann.

4.4.4 Makromischung mit rippenförmigen Rotoren

Während die Makromischung mit steigender Rotordrehzahl (Ta-Zahl) in einem konventionellen Taylor-Vortex System stetig erhöht wird, weicht das Verhalten bei rippenförmigen Rotoren hiervon ab. Die Daten in Bild 4-11 bis Bild 4-13 beziehen sich auf zwei verschiedene Rippenhöhen h_{rib} und kinematische Viskositäten ν und zeigen, dass die Dispersion jeweils ein Minimum durchläuft. Wobei dieses Minimum im Strömungsbereich der SLVS auftritt.

Innerhalb des selben hydrodynamischen Bereiches sollte die dimensionslose Dispersionszahl \mathcal{D} vom verwendeten Fluid unabhängig sein. Ein Vergleich von Bild 4-11 mit Bild 4-12 zeigt jedoch, dass das Dispersionsminimum stärker ausgeprägt ist, wenn das Fluid mit der höheren Glycerinkonzentration verwendet wurde. Nur für diesen Fall erreicht das Dispersionsminimum des Taylor-Vortex Reaktors, welcher aus 20 Mischzellen besteht, das theoretische Minimum einer idealen Kaskade bestehend aus 20 Rührkesseln (gestrichelte Linie in Bild 4-12). Wir schreiben den günstigen Einfluss der höheren Glycerinkonzentration der Reduzierung des Diffusionskoeffizienten des Spurstoffes zu, wodurch die diffusiven Beiträge zur Dispersion verringert werden. So senkt sich der molekulare Diffusionskoeffizient des Tracers von $D^{25^\circ\text{C}}=8,7 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ in einer 40 % m/m Glycerin-Wasser Lösung auf $D^{25^\circ\text{C}}=5,7 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ in 60 % m/m.

Die Dispersionszahl \mathcal{D} sollte per Definition (3-19) mit steigendem axialen Fluss bzw. Re-Zahl sinken. Dies scheint hier in dem Ta-Zahl Bereich links des Makromischungsminimum (kleine Ta-Zahlen) nicht zuzutreffen. Ein Erklärung hierfür ist ein Vorbeiströmen von schlecht in die Mischzellen eingemischtem Tracer, da die Wirbelströmung hier relativ schwach ausgebildet ist im Vergleich zum Bypass verursachenden axialen Fluss.

Die Auswirkung der Rippenhöhe h_{rib} auf die Makromischung kann durch Vergleich von Bild 4-12 mit Bild 4-13 veranschaulicht werden. Grundlegend ist das Mischverhalten ähnlich, bis auf die Tatsache, dass das Makromischungslevel beim Rotor B mit den schmalen Rippen ($h_{rib}=2 \text{ mm}$) sich auf einem höheren Niveau findet. Somit kann die Makromischung effektiver mit breiten Rippen ($h_{rib}=8 \text{ mm}$) reduziert werden.

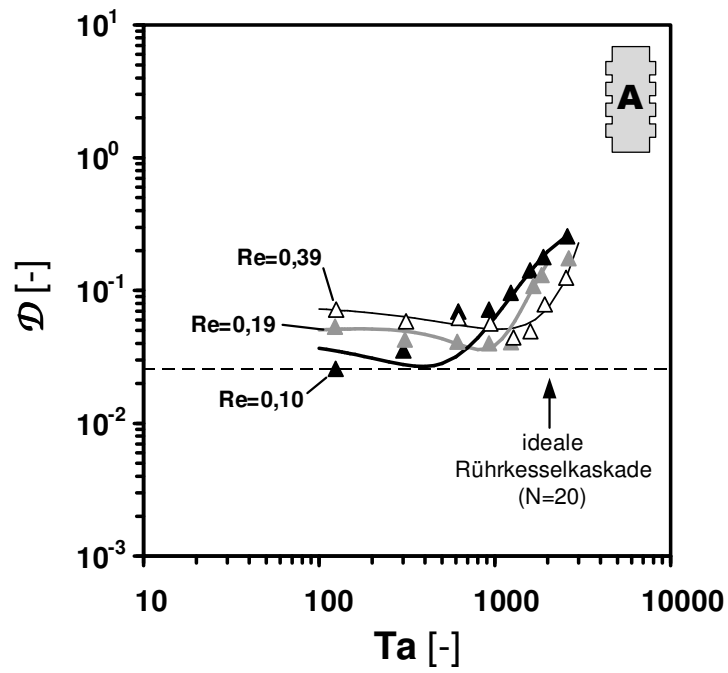


Bild 4-11: Verlauf der dimensionslosen Dispersionszahl \mathcal{D} , wie sie mit dem rippenförmigen Rotor A ($h_{\text{rib}}=8$ mm) und einer 40 % m/m Glycerin-Wasser Lösung ermittelt wurde; $Re=0,10$ (\blacktriangle), $Re=0,19$ (\triangle), $Re=0,39$ (\triangle).

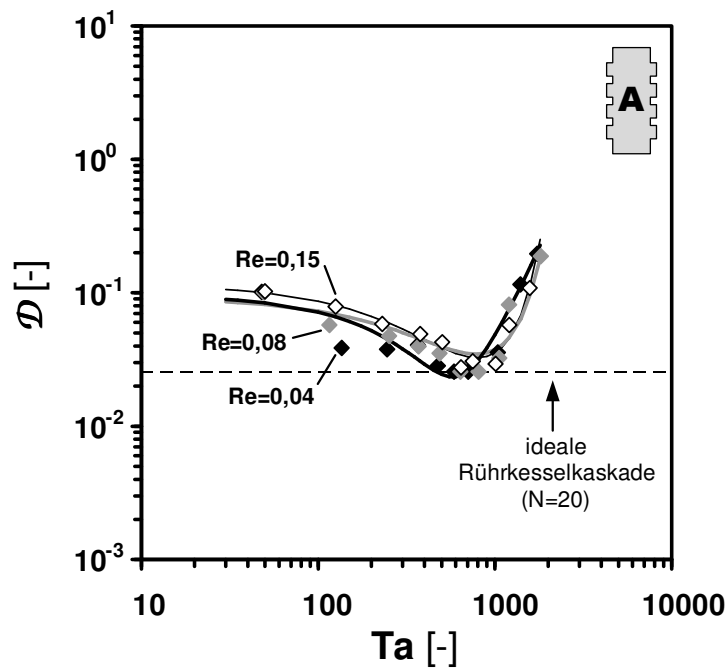


Bild 4-12: Verlauf der dimensionslosen Dispersionszahl \mathcal{D} , wie sie mit dem rippenförmigen Rotor A ($h_{\text{rib}}=8$ mm) und einer 60 % m/m Glycerin-Wasser Lösung ermittelt wurde; $Re=0,04$ (\blacklozenge), $Re=0,08$ (\lozenge), $Re=0,15$ (\lozenge).

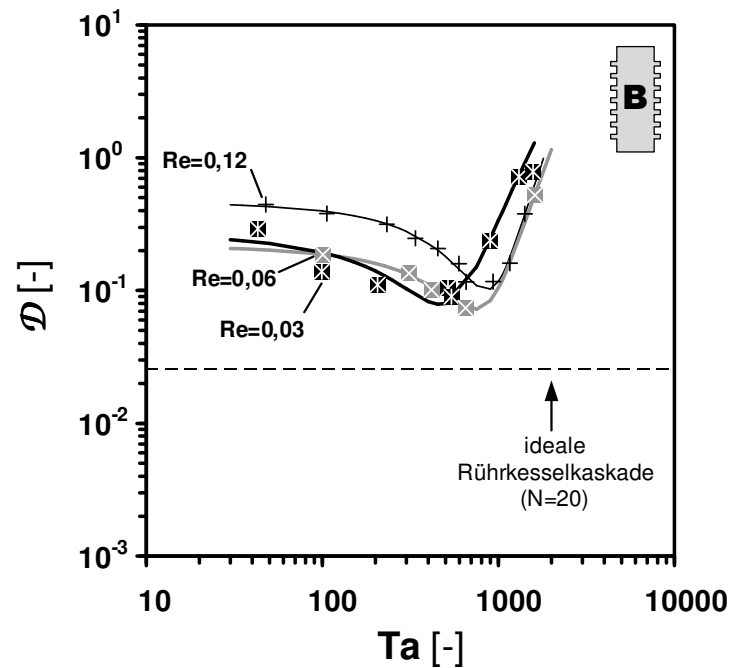


Bild 4-13: Verlauf der dimensionslosen Dispersionszahl \mathcal{D} , wie sie mit dem rippenförmigen Rotor B ($h_{\text{rib}}=2$ mm) und einer 60 % m/m Glycerin-Wasser Lösung ermittelt wurde; $Re=0,03$ (⊗), $Re=0,06$ (⊠), $Re=0,12$ (+).

4.4.5 Einfluss der Rotorgeometrie auf die Makromischung

Die Auswirkungen der untersuchten Rotorgeometrien auf die Makromischung kann mit Bild 4-14 sofort erkannt werden. Um einen Vergleich zu ermöglichen sind Daten ausgewählt worden, welche bei ähnlichen Re -Zahlen bestimmt wurden. Es ist offensichtlich, dass ein Taylor-Vortex System mit einem konventionellen, zylindrischen Rotor nur bei sehr kleinen Ta -Zahlen ein geringes Makromischungslevel besitzt, welches nach Verlassen des laminaren Ringwirbelregimes (LTVS) stark ansteigt. Im Gegensatz hierzu, ermöglichen die mit Rippen segmentierten Rotoren in einem weiten Betriebsbereich ein geringes bis moderates Dispersionslevel.

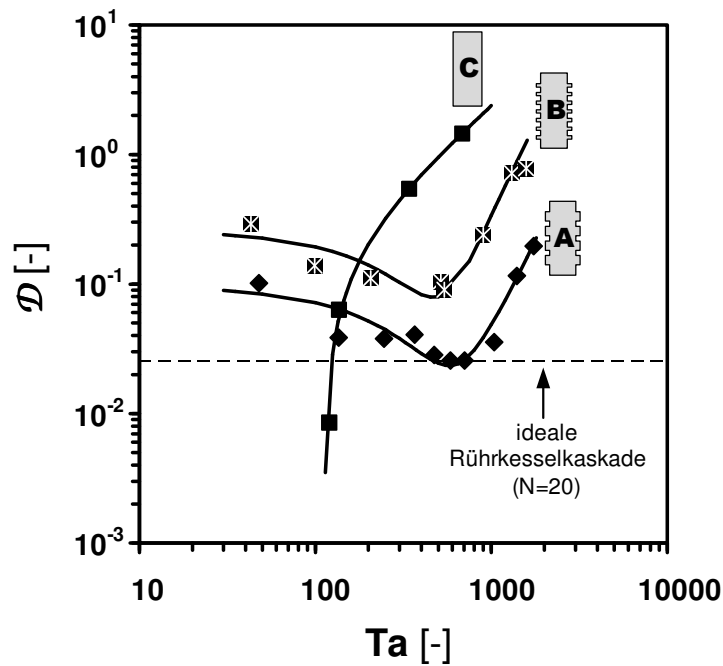


Bild 4-14: Vergleich des Makromischungsverhaltens der untersuchten Rotorgeometrien; 60 % m/m Glycerin-Wasser Lösung; Rotor A (\blacklozenge , $h_{rib}=8$ mm, $Re=0,04$), Rotor B (\boxtimes , $h_{rib}=2$ mm, $Re=0,03$), Rotor C (\blacksquare , $Re=0,05$).

4.4.6 Integrale Mikromischung

Wie im Detail in Kapitel 3.3.3 beschrieben, untersuchten Racina und Kind (2006) den mechanischen Energieeintrag verschiedener zylindrischer Rotoren ($31,5 \text{ mm} < r_i < 44,5$; $r_o=50$ mm) in diverse Fluide (Wasser; 20 % m/m, 30 % m/m und 50 % m/m Glycerin-Wasser Lösungen), woraus sie eine Korrelation im Bereich $800 < Ta < 10000$ für das Rotordrehmoment ableiteten. Aus dieser Korrelation (3-35) ließ sich der dimensionslose Rührenergieeintrag Π nach (3-30) berechnen (extrapoliert bis $Ta=100$), welcher zusammen mit experimentellen Werten für die Rotoren A, B und C in Bild 4-15 dargestellt ist.

Die gute Übereinstimmung zwischen der Korrelation von Racina und Kind (2006) mit den experimentellen Daten für den zylindrischen Rotor C zeigt, dass die Qualität der Messungen ausreichend war. Wie erwartet, steigt mit zunehmender Ta -Zahl der dimensionslose Energieeintrag Π bzw. die Intensität der integralen Mikromischung.

Der Einfluss der Rotorform auf den Energieeintrag ist ebenso in Bild 4-15 dargestellt. Die Trendlinie für die rippenförmigen Rotoren liegt eindeutig über der Korrelation für den zylindrischen Rotor. Dies bedeutet, dass mit rippenförmigen Rotoren eine intensivere, integrale Mikromischung erreicht werden kann.

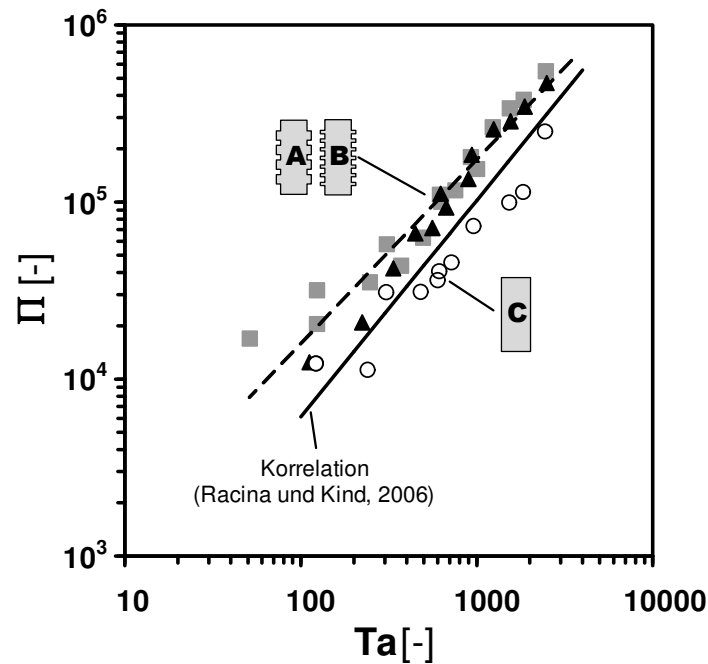


Bild 4-15: Dimensionsloser Rührerenergieeintrag Π (—) nach Racina und Kind (2006), sowie experimentelle Daten für den rippenförmigen Rotor A (\square , $h_{\text{rib}}=8$ mm), rippenförmigen Rotor B (\blacktriangle , $h_{\text{rib}}=2$ mm) und zylindrischen Rotor C (\circ). Die Versuchsdaten wurden jeweils ermittelt für Lösungen mit 40 % m/m und 60 % m/m Glycerin-Wasser.

Im Prinzip kann Energietransfer bei den rippenförmigen Rotoren in die Mischzellen oder den schmalen Spalt zwischen Rippe und Stator stattfinden. Beide rippenförmigen Rotoren verfügten über die gleiche Anzahl und Größe der Mischzellen. Unterschiede ergaben sich lediglich im Volumen des schmalen Spaltes zwischen Rippen und Stator. Falls der Energieeintrag in das Fluid an dieser Stelle einen bedeutenden Beitrag liefern würde, müssten die Ergebnisse einen höheren Energieeintrag für den Rotor A mit den breiteren Rippen zeigen. Wie in Bild 4-15 jedoch zu erkennen ist, verhalten sich die beiden rippenförmigen Rotoren A und B identisch. Daraus folgern wir, dass der Energieeintrag hauptsächlich in den Mischzellen statt findet. Das höhere Level der integralen Mikromischung bei den rippenförmigen Rotoren A und B im Vergleich zum zylindrischen Rotor C kann vermutlich der radialen Förderwirkung der Rippen zugeordnet werden. Hierdurch wird das Fluid in den Mischzellen zusätzlich radial beschleunigt, wodurch letztendlich mehr Energie dissipiert.

4.5 Zwischenfazit

Die Strömung und die Mischeigenschaften eines kontinuierlich betriebenen Taylor-Vortex Reaktors können durch Veränderung der Rotorform günstig beeinflusst werden. In der in diesem Kapitel vorgestellten Arbeit wurden erstmals neuartige Rotoren, welche mit Rippen ausgestattet waren, in einem weiten Strömungsbereich mit einem konventionellen zylindrischen Rotor verglichen.

Die mit bloßem Auge erkennbaren Einflüsse der Rippen auf die Ringspaltströmung sind zum einen eine Immobilisierung und Stabilisierung der torusförmigen Wirbel und zum anderen ein zu höheren Ta-Zahlen hinausgezögertes Einsetzen von Turbulenz. Die hier durchgeführte erste Analyse der Mischcharakteristik zeigte deutlich die Vorteile von rippenförmigen Rotoren gegenüber zylindrischen Rotoren. Durch die Modifikation der Rotoren mit Rippen kann der spezifische Rührenergieeintrag in das Fluid und somit die integrale Mikromischung intensiviert werden, während zeitgleich die Makromischung ab $Ta > 130$ beträchtlich reduziert wird. Anhand diese ersten Ergebnisse ist eine deutliche Prozessintensivierung bei vielen Anwendungen zu erwarten, wenn anstelle eines zylindrischen Rotors neuartige rippenförmige Rotoren verwendet werden.

Um diese erwartete Intensivierung speziell bei kontinuierlich betriebenen, chemischen Anwendungen näher zu untersuchen und zu belegen, wurden weiterführend (siehe Kapitel 5) die Auswirkungen der bisher verwendeten Rotorgeometrien (rippenförmiger Rotor A, zylindrischer Rotor C) auf den Reaktionsverlauf einer einfachen Testreaktion (alkalische Verseifung EtAc) untersucht. Wie in Kapitel 3.3.2 ausführlich diskutiert, ergibt sich aus der Messung des Rührenergieeintrages lediglich eine integrale, über das Ringspaltvolumen gemittelte Information der Mikromischung. Anhand der gewählten, mikromischungsempfindlichen Testreaktion, welche als Messsonde in molekularem Maßstab dient, konnten somit ergänzend zur bisherigen Arbeit lokale Mikromischungseffekte untersucht werden.

5 ALKALISCHE VERSEIFUNG ALS TESTREAKTION

5.1 Beschreibung der Versuchsanlage und Versuchsdurchführung

Alle Versuche der alkalischen Verseifung von EtAc wurden bei Atmosphärendruck und äquimolaren Eduktkonzentrationen ($c_0=c_{\text{OH}^-}=c_{\text{EtAc}}$; $0,05 \text{ mol/L} < c_0 < 0,35 \text{ mol/L}$) mit wässrigen Lösungen von EtAc (zur Synthese, Reinheit $\geq 99,5 \%$, MERCK) und NaOH (Pellets reinst, MERCK) durchgeführt.

Bevor das EtAc und NaOH aufgelöst wurden, musste das Wasser entgast werden, um unerwünschte Nebenreaktionen mit gelöstem Kohlendioxid zu vermeiden. Hierfür wurde voll entsalztes Wasser in zwei Rundhalskolben (je 5 L) mit einem Ultraschallbad (Sonorex Super RK 1028H, BANDELIN) und einer Wasserstrahlpumpe 10 min lang entgast und anschließend mit Stickstoff belüftet. Diese Prozedur wurde dreimal wiederholt, so dass zuletzt keine Gasentwicklung (CO_2) mehr zu erkennen war.

Die kinematischen Viskositäten ν der Edukt- und Produktlösungen ($0,82 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s} < \nu < 1,48 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$; Yaws, 1999) wurden bei den entsprechenden Reaktortemperaturen ($6 \text{ }^\circ\text{C} < \vartheta < 30 \text{ }^\circ\text{C}$) mit der Vereinfachung berechnet, dass es sich aufgrund des geringen Konzentrationsniveaus jeweils um reines Wasser handelt (NaOH-Lösung $c_{\text{OH}^-}=0,35 \text{ mol/L}$: $\nu^{20^\circ\text{C}} \approx 1,15 \text{ m}^2/\text{s}$; reines Wasser: $\nu^{20^\circ\text{C}}=1,0 \text{ m}^2/\text{s}$; Othmer und Silvis, 1950)

Das Fließbild des Versuchsaufbaus sowie eine schematische Darstellung der untersuchten Taylor-Vortex Systeme (rippenförmiger oder zylindrischer Rotor) sind in Bild 5-1 bzw. Bild 1-1 dargestellt. Eine ergänzende technische Gesamtzeichnung des Reaktorsystems findet sich im Anhang A7.

Der Boden sowie der Kopf des Reaktors wurden aus rostfreiem Edelstahl hergestellt. Der zylindrische Stator bestand wegen der notwendigen chemischen Resistenz und Transparenz aus Borosilikatglas. Der Stator wurde von einem zweiten Hohlzylinder ($\varnothing 110 \text{ mm}$) aus Acrylglas (Polymethylmethacrylat) umgeben, um so einen Temperiermantel für den Reaktor zu gestalten (siehe Bild 5-2).

Die Temperatur des Wassers, welches in diesem Temperiermantel zirkulierte, wurde durch einen Umwälzthermostaten (Bad K, Thermostat F3 digital, HAAKE) so eingestellt, dass sich Reaktortemperaturen ϑ_R zwischen $6 \text{ }^\circ\text{C}$ und $30 \text{ }^\circ\text{C}$ ergaben. Hierdurch konnte in Kombination mit dem untersuchten Eduktkonzentrationsbereich ($c_0=c_{\text{OH}^-}=c_{\text{EtAc}}$; $0,05 \text{ mol/L} < c_0 < 0,35 \text{ mol/L}$) die Relaxationszeit T_r der alkalischen Verseifung im Bereich von 19 s bis 680 s variiert werden.

Der hier exemplarisch verwendete rippenförmige Rotor A (20 Mischzellen) und der zylindrische Rotor C entsprachen geometrisch denjenigen, welche zuvor in Kapitel 4 untersucht wurden (Schema und Abmessungen siehe Tabelle 5-1). Beide Rotoren bestanden aus ausreichend chemisch resistentem Polyethylen und waren auf einer rostfreien Edelstahlachse montiert, welche im Reaktorkopf kugelgelagert und mit einem Radial-Wellendichtring abgedichtet war.

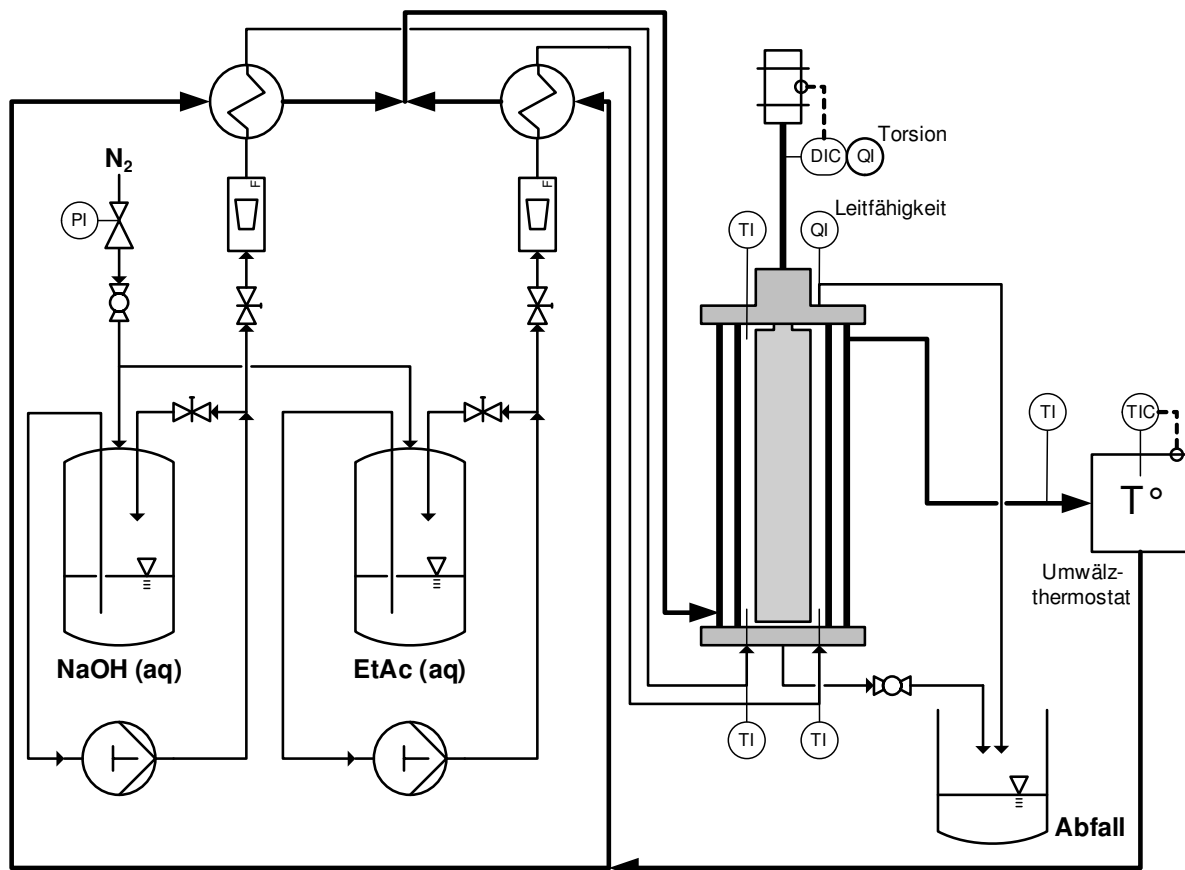


Bild 5-1: Experimenteller Versuchsaufbau

Das Rührwerk war mit einer elektronischen Drehzahlregelung sowie einer integrierten Torsionswelle ausgestattet (RZR 2102 control, HEIDOLPH), womit Rotordrehzahlen von 12 bis 650 U/min ($150 < T_a < 8000$) erreichbar waren. Die Vorlagebehälter der Edukte (5 L) waren durch eine Stickstoffatmosphäre ($p=0,5$ bar) von der Umgebung isoliert, um ein Abdampfen und Nebenreaktionen mit atmosphärischen Kohlendioxid zu vermeiden. Beide Eduktlösungen wurden separat durch elektronisch geregelte Taumelkolbenpumpen (Antriebe: MCP-CPF control, ISMATEC; Pumpenköpfe: QP Q1.CSC-W und QP Q2.CSC-W) zirkuliert, wobei vom Kreislaufstrom (80 mL/min) jeweils der eigentliche Eduktstrom ($Q_0=Q_{\text{EtAc}}=Q_{\text{OH}^-}$, $4,6 \text{ mL/min} < Q_0 < 21,0 \text{ mL/min}$) über Nadelventile abgezweigt bzw. eingestellt und durch

Schwabekörperdurchflussmesser (RAGL41-TOSS-SSSBE-L632A-TTBLN, YOKOGAWA) gemessen wurde. Hiernach wurden die Lösungen vorgeheizt bevor sie getrennt über Düsen ($d_{noz}=1,8$ mm) in den Reaktorboden einströmten (siehe Bild 5-2).

Tabelle 5-1: Dimensionen der untersuchten Rotoren in mm und die entsprechenden Reaktorvolumina in mL. Die Symbole sind in Bild 1-1 definiert.

| | A | C |
|------------|----------|----------|
| r_o | 40,0 | 40,0 |
| r_i | 35,0 | 35,0 |
| r_{rib} | 39,0 | - |
| h_{rib} | 8,0 | - |
| h_{cell} | 10,0 | - |
| L | 352,0 | 280,0 |
| V | 260,7 | 329,9 |

Um den Mischeinfluss zunehmender Einströmgeschwindigkeiten u_{noz} der Edukte in den Reaktor zu untersuchen, wurden zusätzliche Experimente mit feineren Düsen ($d_{noz}=0,9$ mm) durchgeführt. Die variierenden Eintrittsgeschwindigkeiten u_{noz} können mit einer dimensionslosen Re-Zahl entsprechend (5-1) charakterisiert werden.

$$Re_{noz} = \frac{u_{noz} d_{noz}}{\nu} = \frac{4 Q_0}{\pi d_{noz} \nu} \quad (5-1)$$

mit ν Kinematische Viskosität in m^2/s u_{noz} Eintrittsgeschwindigkeit Düse in m/s
 Q_0 Volumenstrom Edukt in m^3/s d_{noz} Durchmesser Düse in m

Die Eintritts- und Austrittstemperaturen im Reaktor wurden mit Thermoelementen (Typ K: NiCr Ni, $\varnothing 0,5$ mm, THERMOCOAX) gemessen, wodurch isotherme Bedingungen bestätigt werden konnten ($\Delta\vartheta \pm 0,5$ °C). Nachdem bei jeder Messung konstante Volumenströme, Rotordrehzahlen und Reaktortemperaturen eingestellt waren, wurde direkt am Reaktorausgang die spezifische Leitfähigkeit κ in einem kleinen Durchflussgefäß (8 mL) mit

einer Leitfähigkeitsmesszelle (Konduktometer: Cond 340i, Messzelle: TetraCon 325 ,WTW) kontinuierlich gemessen. Typischerweise erreichte das Leitfähigkeitssignal, welches ein Maß für den Reaktionsumsatz ist, nach einer Periode von zweimal der mittleren Verweilzeit T_k den stationären Endwert ($385 \text{ s} < T_k < 2209 \text{ s}$).

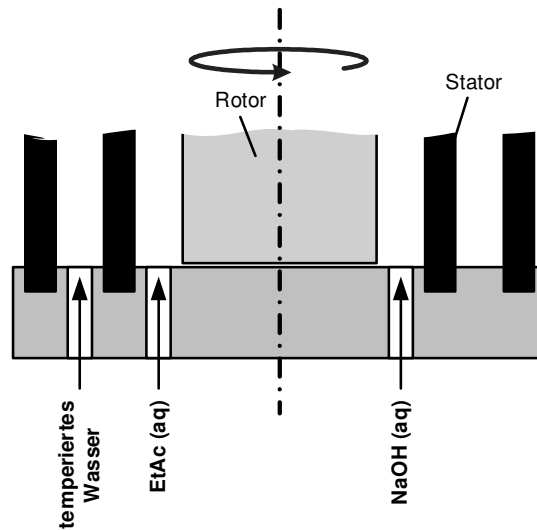


Bild 5-2: Längsschnitt durch den Reaktoreinlass

5.2 Versuchsauswertung

Während der alkalischen Verseifung von EtAc (siehe (3-31)) werden hoch mobile Hydroxid-Ionen (OH^-) verbraucht und weniger mobile Acetat-Ionen (Ac^-) gebildet. Nach Kohlrausch wird mit (5-2) die spezifische Leitfähigkeit κ der Lösung anhand der molaren Leitfähigkeiten Λ_i ausgedrückt, welche jeweils ein Maß für die Beweglichkeit der Ionenspezies i darstellen.

$$\kappa = \sum_{i=1}^N \Lambda_i c_i \quad (5-2)$$

mit κ spezifische Leitfähigkeit in S/m c_i Konzentration Spezies i in mol/m^3
 Λ_i molare Leitfähigkeit Spezies i in $\text{S}\cdot\text{m}^2/\text{mol}$

Da aufgrund der unterschiedlichen Mobilität $\Lambda_{\text{OH}^-} \gg \Lambda_{\text{Ac}^-}$ gilt und die Leitfähigkeitsbeiträge von EtAc und EtOH vernachlässigbar sind ($\Lambda_{\text{EtAc}} \approx \Lambda_{\text{EtOH}} \approx 0$), wird nach (5-2) mit Vorschreiten der Verseifung die spezifische Leitfähigkeit κ sinken.

Aus dem Ausdruck (5-2) kann der Umsatz X der Verseifung entsprechend (5-3) hergeleitet werden, wenn äquimolare Eduktkonzentrationen ($c_0 = c_{\text{OH}^-} = c_{\text{EtAc}}$) und vernachlässigbare Leitfähigkeitsbeiträge von EtAc und EtOH angenommen werden ($\Lambda_{\text{EtAc}} \approx \Lambda_{\text{EtOH}} \approx 0$).

$$X = \frac{c_0 - c_i}{c_0} = \frac{\kappa_0 - \kappa}{\kappa_0 - \kappa_\infty} \quad (5-3)$$

mit c_0 äquimolare Eduktkonzentration ($t=0$) in mol/m^3
 c_i Konzentration Spezies i in mol/m^3
 κ spezifische Leitfähigkeit in S/m
 κ_0 spezifische Grenzleitfähigkeit für $t=0$ in S/m
 κ_∞ spezifische Grenzleitfähigkeit für $t \rightarrow \infty$ in S/m

Die Grenzwerte der spezifischen Leitfähigkeit $\kappa_0(t=0)$ und $\kappa_\infty(t \rightarrow \infty)$ mussten zuvor bei den entsprechenden Versuchsbedingungen durch zusätzliche Kalibrierexperimente bestimmt werden (siehe Anhang A11), woraus sich dann mit (5-3) folgende Zusammenhänge (5-4) für den Reaktionsumsatz X ergaben.

$$c_0 = 0,35 \text{ mol/L} :$$

$$X = \frac{0,1101 \frac{\text{S}}{\text{m} \cdot ^\circ\text{C}} \vartheta_L + 2,8955 \frac{\text{S}}{\text{m}} - \kappa}{0,0675 \frac{\text{S}}{\text{m} \cdot ^\circ\text{C}} \vartheta_L + 1,9741 \frac{\text{S}}{\text{m}}}$$

$$c_0 = 0,20 \text{ mol/L} :$$

$$X = \frac{0,0649 \frac{\text{S}}{\text{m} \cdot ^\circ\text{C}} \vartheta_L + 2,0341 \frac{\text{S}}{\text{m}} - \kappa}{0,0400 \frac{\text{S}}{\text{m} \cdot ^\circ\text{C}} \vartheta_L + 1,4146 \frac{\text{S}}{\text{m}}} \quad (5-4)$$

$$c_0 = 0,05 \text{ mol/L} :$$

$$X = \frac{0,0153 \frac{\text{S}}{\text{m} \cdot ^\circ\text{C}} \vartheta_L + 0,6153 \frac{\text{S}}{\text{m}} - \kappa}{0,0079 \frac{\text{S}}{\text{m} \cdot ^\circ\text{C}} \vartheta_L + 0,4341 \frac{\text{S}}{\text{m}}}$$

mit c_0 äquimolare Eduktkonzentration in mol/L κ spezifische Leitfähigkeit in S/m

ϑ_L Temperatur Leitfähigkeitsmesszelle in $^\circ\text{C}$

Um eindeutig den Einfluss der Makro- und Mikromischung auf den Reaktionsumsatz X betrachten zu können, müssen die hydrodynamischen Bedingungen (T_a , Re) sowie die Reaktionsbedingung (Da_I) identisch sein. Um aber verschiedene Grenzfälle der Mikromischung untersuchen zu können (vergleiche Kapitel 3.3.1, Tabelle 3-2), wurde die Relaxationszeit T_r der Verseifung im Bereich von 19 s bis 680 s über die Eduktkonzentration ($0,05 \text{ mol/L} < c_0 < 0,35 \text{ mol/L}$) sowie die Reaktortemperatur ($6 \text{ }^\circ\text{C} < \vartheta < 30 \text{ }^\circ\text{C}$) variiert, wodurch aber auch jeweils die Reaktionsbedingung verändert wurde. Um dieses Problem zu umgehen, wurden alle gemessenen Reaktionsumsätze X mit der Modellannahme eines Kreislaufreaktors (siehe Bild 5-3) auf $Da_I^0=5$ standardisiert. Eine Standardisierung auf $Da_I^0=5$ war sinnvoll, da hier der größte Umsatzunterschied bei einer Reaktion zweiter Ordnung ($n=2$) zwischen den idealen Grenzfällen der Makromischung (PFR, CSTR) auftritt.

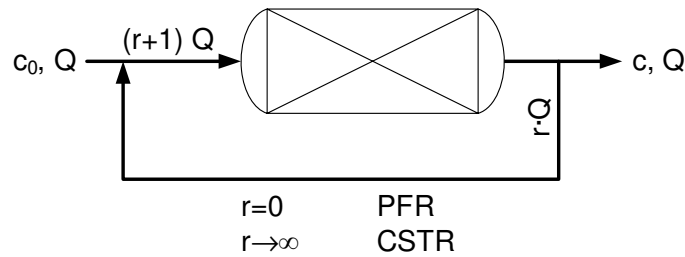


Bild 5-3: Schema eines Kreislaufreaktors

Vor der eigentlichen Standardisierung wurden zuerst die Rückführungsverhältnisse r anhand der stationären Reaktorbilanz (5-5) aus den jeweiligen gemessenen Reaktionsumsätzen X bestimmt (äquimolare Eduktströme $c_0=c_{\text{OH}^-}=c_{\text{EtAc}}$, Reaktionsordnung $n=2$).

$$r = \frac{Da_1(1-X) - X}{X - Da_1(1-X)^2} \quad (5-5)$$

mit Da_1 Da-Zahl bei Versuchsbedingungen [-] X gemessener Reaktionsumsatz [-]

Anschließend konnten hiermit die standardisierten Reaktionsumsätze X^θ aus der stationären Reaktorbilanz (5-6) berechnet werden, wie sie im Folgenden zur Diskussion der Makro- und Mikromischung verwendet werden.

$$X^\theta = -\frac{1 + Da_1^\theta + r + 2r Da_1^\theta}{2r Da_1^\theta} \pm \sqrt{\left(\frac{1 + Da_1^\theta + r + 2r Da_1^\theta}{2r Da_1^\theta}\right)^2 - \frac{r+1}{r}} \quad (5-6)$$

mit $Da_1^\theta=5$ standardisierte Da-Zahl [-] r Rückführungsverhältnis [-]

Für den Fall, dass die Mikromischung den Reaktionsverlauf nicht beeinflusst, können theoretisch aus den gemessenen Umsätzen als dimensionslose Kenngröße für die Makromischung, Dispersionszahlen \mathcal{D} berechnet werden, sofern ein geeignetes Verweilzeitmodell bekannt ist.

Da aufgrund praktischer Limitierung die Genauigkeit und Reproduzierbarkeit der Umsatzmessungen der alkalischen Verseifung von EtAc etwa $\Delta X \approx \pm 0,02$ betrug, ergeben sich speziell bei hohen (CSTR) und niedrigen (PFR) Makromischungsniveaus sehr stark streuende Dispersionszahlen \mathcal{D} (vergleiche Anhang A12). Somit wurde hier auf eine Berechnung von dimensionslosen Dispersionszahlen \mathcal{D} verzichtet, wodurch der folgende Vergleich in Kapitel 5.3.1 mit der zuvor in Kapitel 4.4.3 und 4.4.4 beschriebenen Makromischung lediglich qualitativ möglich war.

Wie in Kapitel 3.3.1 erwähnt, werden in der Literatur eine Vielzahl von Modellen und Ansätze für die Mikromischzeit T_m diskutiert, welche auch teilweise auf einen nicht kontinuierlich durchströmten Taylor-Vortex Reaktor angewandt wurden (siehe Kapitel 3.3.3). Da es aus der Literatur aber nicht ersichtlich ist, welche Modellvorstellung der Mikromischung für den hier untersuchten weiten Strömungsbereich (laminar bis turbulent) eines kontinuierlich betriebenen Taylor-Vortex Systems geeignet ist, wurde auf die Berechnung einer Mikromischzeit T_m verzichtet.

5.3 Ergebnisse und Diskussion

5.3.1 Vorherrschaft der Makromischung bei langsamer Reaktion

Wie in Kapitel 3.3.1 beschrieben, können die Grenzfälle der Mikromischung durch die mittlere Verweilzeit T_k , die Relaxationszeit T_r einer chemischen Reaktion und die Mikromischzeit T_m voneinander abgegrenzt werden (siehe Tabelle 3-2). Bei ausreichend langsamer Reaktion ($T_r \gg T_m$) liegt homogene Vermischung auf molekularer Ebene vor (Fall c in Bild 3-14), wodurch die Makromischung den Reaktionsverlauf bzw. Reaktionsumsatz eindeutig dominiert. Mit zunehmender Reaktionsgeschwindigkeit ($T_r \approx T_m$; $T_r \ll T_m$) gewinnt jedoch die Mikromischung immer mehr an Einfluss (Fall e bzw. d in Bild 3-14), was direkt am Reaktionsumsatz beobachtet werden kann (vergleiche Bild 3-16).

Bild 5-4 zeigt den standardisierten Reaktionsumsatz X^0 bei sehr langsamer Reaktionsgeschwindigkeit ($T_r=680 \text{ s} \gg T_m$; aus Bild 3-18: $T_m < 10 \text{ s}$), wie er sich in dem Taylor-Vortex Reaktor mit zylindrischem Rotor C bzw. rippenförmigem Rotor A ergibt. Da die eingestellten mittleren Verweilzeiten ($385 \text{ s} < T_k < 2209 \text{ s}$) ebenfalls sehr lange ausfallen, dominiert hier eindeutig die Makromischung den Reaktionsverlauf (vergleiche Tabelle 3-2: $T_r \gg T_m$ und $T_k \gg T_m$). Die zusätzlich eingezeichneten horizontalen Linien stellen die Umsatzgrenzen für einen Kolbenstromreaktor (PFR, minimale Makromischung) sowie einen idealen Rührkessel (CSTR, maximale Makromischung) dar.

Das Makromischungslevel in dem Reaktor, welcher mit dem zylindrischen Rotor C ausgestattet ist, steigt erwartungsgemäß mit zunehmender Rotordrehzahl (Ta-Zahl) kontinuierlich von idealer Kolbenströmung bis zu intensiver Rückvermischung an, wodurch der Reaktionsumsatz fällt. Bei höheren axialen Flüssen (Re-Zahlen) bewegt sich die Makromischung entsprechend dem erwarteten Dispersionsverhalten auf einem niedrigeren Niveau.

In dem Taylor-Vortex Reaktor mit rippenförmigem Rotor A hat die Variation der Rotordrehzahl und des axialen Volumenstromes erwartungsgemäß vollkommen andere Auswirkungen. Die Daten in Bild 5-4 weisen hier ein Umsatzminimum (Maximum Makromischung) bei $Ta \approx 400$ auf, welches bei hohen Re-Zahlen am stärksten ausgeprägt ist und durch eine Bypassströmung verursacht wird. Mit steigenden Ta-Zahlen kann ein Umsatzmaximum (Minimum Makromischung) erreicht werden, welches in etwa dem Umsatz einer idealen Rührkesselkaskade ($N=20$, $X^0=0,821$) entspricht und somit in der Größenordnung eines Kolbenstromreaktors (PFR, $X^0=0,833$) liegt. Nachdem das Umsatzmaximum bei etwa

Ta \approx 1500 überschritten wird, steigt die Makromischung wie erwartet nahezu unabhängig vom Volumenstrom geringfügig an.

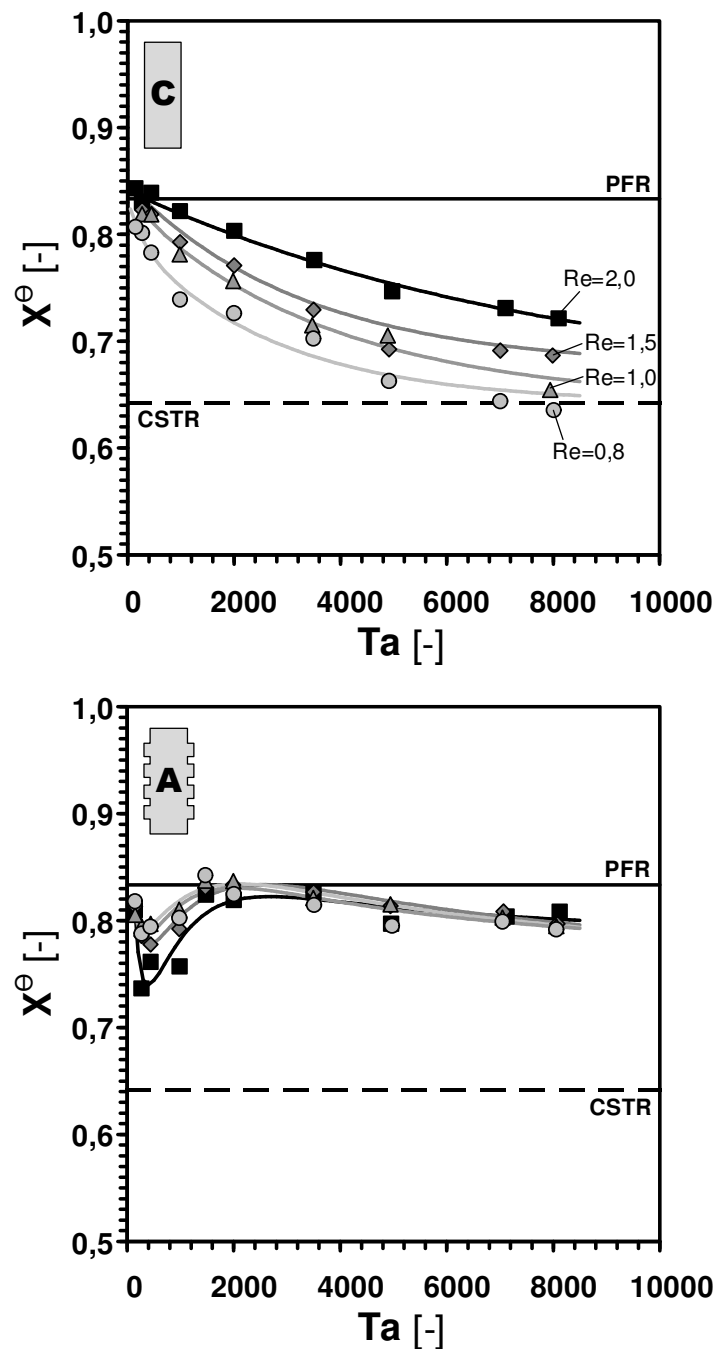


Bild 5-4: Standardisierte Reaktionsumsätze X^0 , welche mit dem rippenförmigen Rotor A und dem zylindrischen Rotor C bei langsamer Reaktionsgeschwindigkeit ($T_r=680$ s) bestimmt wurden, wenn nur die Makromischung die Reaktorleistung bestimmt; $Re=2,0$ (■), $Re=1,5$ (◆), $Re=1,0$ (△), $Re=0,8$ (○).

Eine Gegenüberstellung der in diesem Kapitel beschriebenen Makromischungsperformance mit derjenigen, welche mit Spurstoffversuchen bestimmt wurde (siehe Kapitel 4.4.3 und 4.4.4), beschränkt sich auf einen qualitativen Vergleich (vergleiche Kapitel 5.2). Es sind aber

meist konsistente Trends der Makromischung zu erkennen, wodurch die gewählte Untersuchungsmethodik der Vermischung mit Hilfe der Testreaktion validiert wird. Im weiteren wird bestätigt, dass die Reaktionsgeschwindigkeit ($T_r=680$ s) ausreichend langsam bzw. die mittleren Verweilzeiten ($385 \text{ s} < T_k < 2209 \text{ s}$) ausreichend lange waren, um hier eindeutig die Makromischung untersuchen zu können.

Der einzige erkennbare Unterschied zu der vorherigen Untersuchung der Makromischung mittels Spurstoffversuchen (siehe Kapitel 4.4.4) bezieht sich auf die Lage des Minimums der Makromischung (Umsatzmaximum) beim rippenförmigen Rotor A. Es wäre bei $T_a \approx 800$ statt bei $T_a \approx 1500$ erwartet worden. Eine erste Erklärung für diese Abweichung sind die unterschiedlichen untersuchten axialen Flüsse (Spurstoffversuche Kapitel 4.4.4: $0,03 < Re < 0,51$; hier: $0,8 < Re < 2,0$). Ebenso wurden abweichende Stoffsysteme mit stark unterschiedlichen Viskositäten untersucht, welche somit auch unterschiedliche molekulare Diffusionskoeffizienten aufweisen. Da beim rippenförmigen Rotor A das Makromischverhalten durch diffusive Effekte beeinflusst wird, liegt hierin eine weitere Erklärung für Abweichungen.

5.3.2 Zunehmender Einfluss der Mikromischung bei schneller Reaktion

Der Einfluss von steigenden Reaktionsgeschwindigkeiten und somit fallenden Relaxationszeiten T_r auf den standardisierten Umsatz X^0 sind für den zylindrischen Rotor C in Bild 5-5 und für den rippenförmigen Rotor A in Bild 5-6 dargestellt. Die Daten für eine Relaxationszeit $T_r=680$ s, welche zuvor schon in Bild 5-4 gezeigt wurden, sind jeweils als Referenz für den Grenzfall angegeben, dass lediglich die Makromischung das Reaktionsgeschehen beeinflusst.

Die Umsatzverläufe, welche mit dem Reaktor mit dem zylindrischen Rotor C bestimmt worden sind, weisen immer eine unzureichende Mikromischungsintensität und somit segregierte Ringwirbel bei niedrigen Rotordrehzahlen (T_a -Zahl) nach. Bei geringstem axialen Fluss ($Re=0,8$) können jedoch mit steigender Rotordrehzahl (T_a -Zahl) und Einsetzen von Turbulenz die Mikromischzeiten auf $T_m \ll T_{r,\min}=19$ s reduziert und die Segregation der Ringwirbel abgebaut werden. Dies ist konsistent mit Mikromischzeiten $T_m \approx 10^{-3}$ s in TVS, welche von Racina und Kind (2006) für einen absatzweise betriebenen Taylor-Vortex Reaktor ($Re=0$) veröffentlicht und mit Hilfe der statistischen Theorie der Turbulenz berechnet wurden (siehe Kapitel 3.3.3). Wird allerdings der Volumenstrom von $Re=0,8$ auf $Re=2,0$ erhöht,

treten auch bei höchster Rotordrehzahl (Ta-Zahl) immer noch signifikante Unterschiede zwischen den Umsatzverläufen bei langsamster ($T_r=680$ s) und schnellster ($T_r=19$ s) Reaktion auf. Dieses Verhalten ist durch einen Bypassstrom, welcher sich um die Ringwirbelkerne windet und mit steigendem Volumenstrom (Re-Zahl) zunimmt, zu erklären (siehe Kapitel 2.2.2, Bild 2-6).

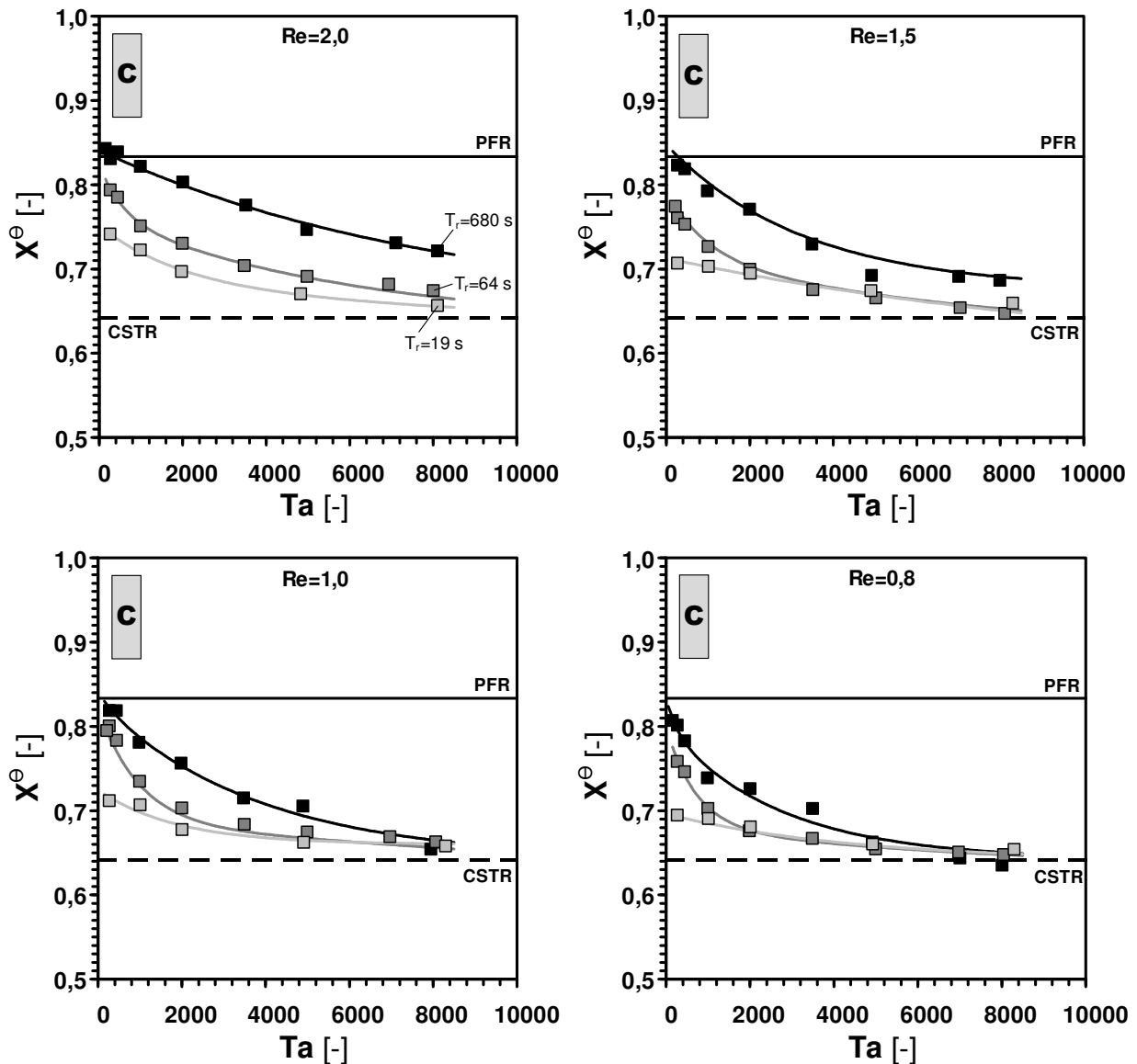


Bild 5-5: Standardisierte Reaktionsumsätze X^0 , welche mit dem zylindrischen Rotor C bei verschiedenen Re-Zahlen und steigender Reaktionsgeschwindigkeit bestimmt wurden; $T_r=680$ s (■), $T_r=64$ s (▣), $T_r=19$ s (□).

In dem Taylor-Vortex Reaktor, welcher mit dem rippenförmigen Rotor A ausgestattet ist, zeigen die Umsatzverläufe, dass das Segregationslevel mit steigender Rotordrehzahl (Ta-Zahl) nicht reduziert werden kann und auch mit steigendem Volumenstrom (Re-Zahl) mehr oder weniger konstant ist. Das Auftreten einer ausgeprägten Segregation, obwohl im

Vergleich zum zylindrischen Rotor C ein höherer Rührenergieeintrag bzw. eine intensivere integrale (volumengemittelte) Mikromischung erzielt werden kann (siehe Kapitel 4.4.6), suggeriert inhomogen über den Ringspalt verteilte Mikromischungsintensitäten. Sowie die Ringspaltströmung stabilisiert und die Mischzellen zwischen den Rippen immobilisiert werden, scheint es möglich zu sein, dass die lokale Mikromischung in den Wirbelrandschichten sehr intensiv und im Wirbelkern jedoch sehr gering ist. So eine inhomogene Mikromischung tritt auch bei zylindrischen Rotoren auf, kann aber mit steigender Rotordrehzahl (Ta-Zahl) weitgehend homogenisiert werden (vergleiche Kapitel 3.3.3, Bild 3-17).

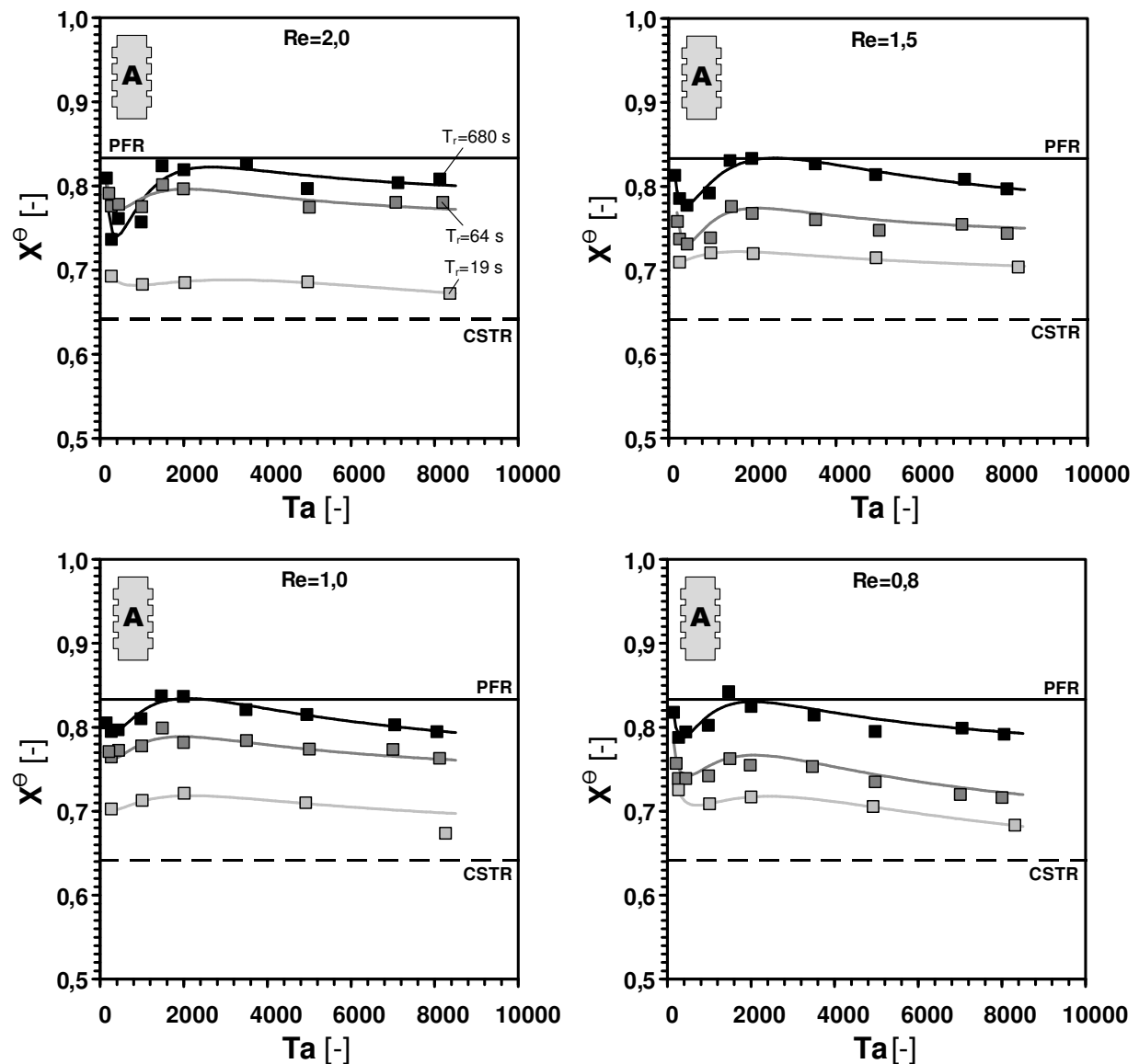


Bild 5-6: Standardisierte Reaktionsumsätze X^0 , welche mit dem rippenförmigen Rotor A bei verschiedenen Re-Zahlen und steigender Reaktionsgeschwindigkeit bestimmt wurden; $T_r=680$ s (■), $T_r=64$ s (▒), $T_r=19$ s (□).

5.3.3 Einfluss der Einströmungsgeschwindigkeit

Neben der (hauptsächlichen) Vermischungswirkung des Rotors, kann bei hohen Einströmgeschwindigkeiten der Edukte die Makro- und/oder Mikromischung nahe der Eintrittsdüsen im Reaktorboden signifikant beeinflusst werden.

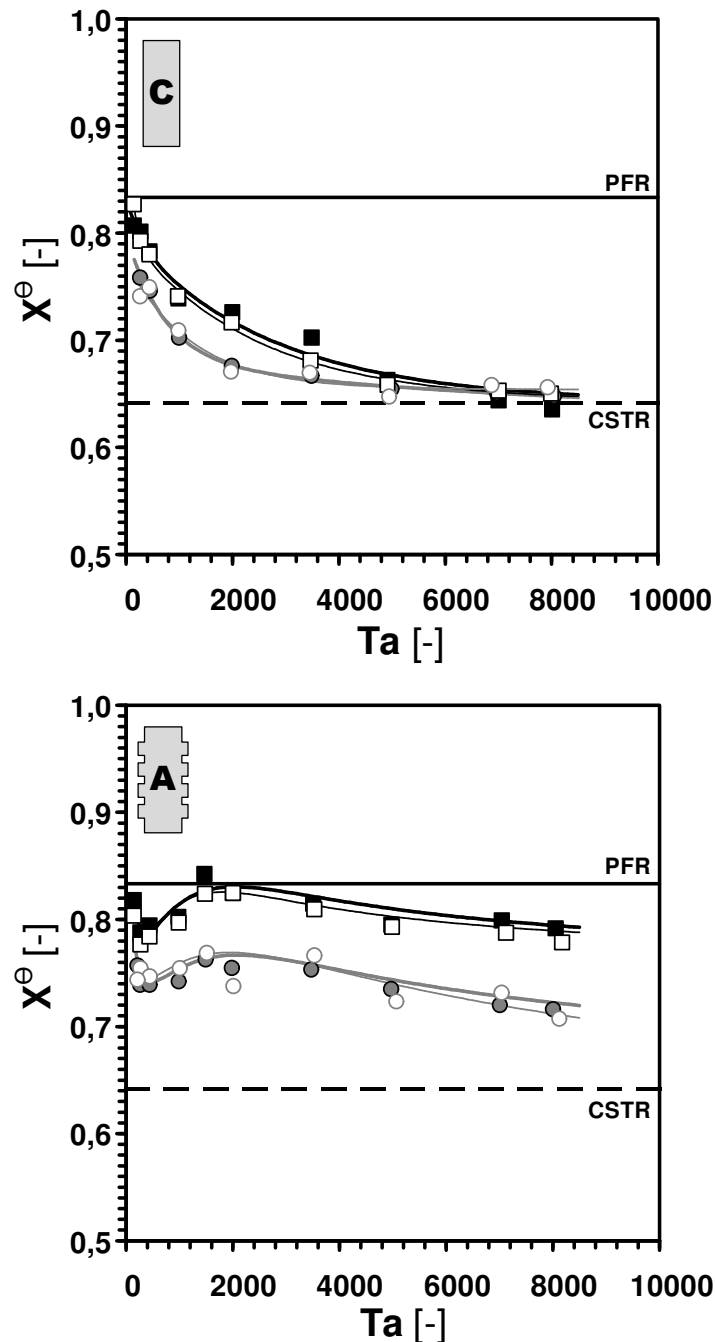


Bild 5-7: Standardisierte Reaktionsumsätze X^0 , welche mit dem rippenförmigen Rotor A und dem zylindrischen Rotor C bei $Re=0,8$ und verschiedenen Einströmgeschwindigkeiten der Edukte bestimmt wurden; $T_r=680$ s: $Re_{noz}=66,5$ (■), $Re_{noz}=133,0$ (□); $T_r=64$ s: $Re_{noz}=66,5$ (●), $Re_{noz}=133,0$ (○).

In Bild 5-7 und Bild 5-8 ist der Einfluss steigender Einströmgeschwindigkeiten auf den standardisierten Reaktionsumsatz X^θ exemplarisch für den höchsten ($Re=2,0$) und niedrigsten ($Re=0,8$) untersuchten Volumenstrom dargestellt. Eine Steigerung der Eintrittsgeschwindigkeit der Edukte wurde durch eine Verringerung des Düsendurchmessers ($d_{noz}=1,8\text{ mm} \rightarrow d_{noz}=0,9\text{ mm}$) erreicht.

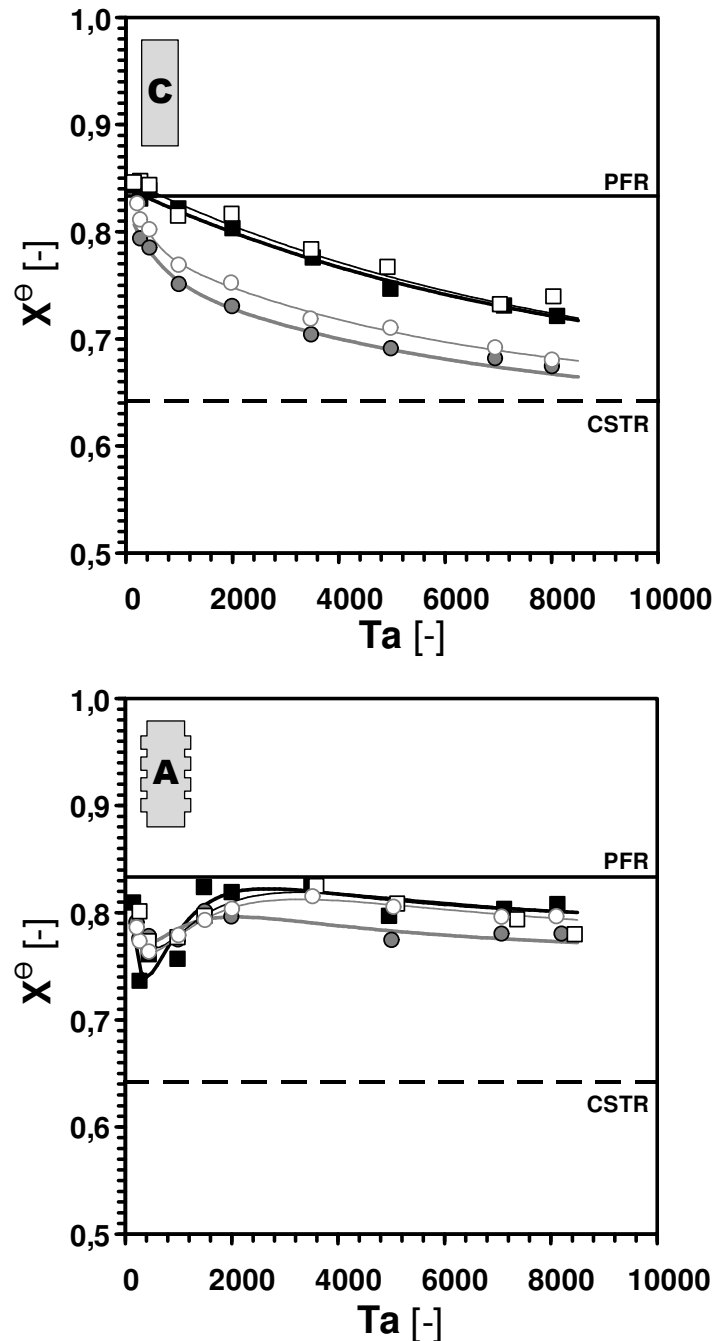


Bild 5-8: Standardisierte Reaktionsumsätze X^θ , welche mit dem rippenförmigen Rotor A und dem zylindrischen Rotor C bei $Re=2,0$ und verschiedenen Einströmgeschwindigkeiten der Edukte bestimmt wurden; $T_r=680\text{ s}$: $Re_{noz}=166,3$ (■), $Re_{noz}=332,6$ (□); $T_r=64\text{ s}$: $Re_{noz}=166,3$ (●), $Re_{noz}=332,6$ (○).

Beim geringsten axialen Fluss (Bild 5-7, $Re=0,8$) hat eine gesteigerte Eintrittsgeschwindigkeit, welche über die Re_{noz} -Zahl ausgedrückt wird, weder einen erkennbaren Einfluss auf die Makromischung ($T_r=680$ s) noch auf die Mikromischung ($T_r=64$ s).

Wird allerdings der höchste Volumenstrom (Bild 5-8, $Re=2,0$) betrachtet, verursacht die gesteigerte Eintrittsgeschwindigkeit eine geringfügige Steigerung der Mikromischung, während die Makromischung wiederum unbeeinflusst bleibt. Dies wird dadurch ersichtlich, dass in Bild 5-8 lediglich die hohlen Symbole ($Re_{noz}=332,6$) bei der Relaxationszeit $T_r=64$ s etwas über den entsprechenden ausgefüllten Symbolen ($Re_{noz}=166,3$) liegen.

Hiermit wird deutlich, dass die in den vorherigen Kapiteln 5.3.1 und 5.3.2 diskutierten Makro- und Mikromischungseffekte hauptsächlich durch die Vermischungswirkung der Rotoren verursacht werden und Einströmeffekte nur einen geringen Einfluss auf die Mikromischung haben.

5.4 Fazit

Die alkalische Verseifung von EtAc mit NaOH erwies sich als geeignet um die Makro- und Mikromischung in einem kontinuierlich durchströmten Taylor-Vortex Reaktor zu untersuchen. Hierfür wurde die Relaxationszeit T_r der Reaktion mittels verschiedener Eduktkonzentrationen c_0 und Reaktortemperaturen ϑ_R zwischen 640 s und 19 s variiert.

Die Analyse der Makromischungscharakteristik durch chemische Reaktion bei langen Relaxationszeiten ($T_r=640$ S) bestätigte unsere vorherigen Ergebnisse (siehe Kapitel 4), dass in einem Taylor-Vortex Reaktor mit einem klassischen zylindrischen Rotor der Rückvermischungsgrad mit steigender Rotordrehzahl stark ansteigt, während bei Gebrauch eines rippenförmigen Rotors ein annäherndes Kolbenstromverhalten (PFR) über einem weiten Betriebsbereich ermöglicht wird.

Wird hingegen durch Verkürzung der Relaxationszeit ($T_r=64$ s; $T_r=19$ s) die Mikromischung betrachtet, konnte gezeigt werden, dass bei getrennter Zuführung die Reaktanten im Falle eines Taylor-Vortex Reaktors mit rippenförmigen Rotor segregiert bleiben, wogegen beim zylindrischen Rotor mit steigender Rotordrehzahl die Segregation abgebaut werden kann.

Bei beiden Rotorformen dominierte im untersuchten Bereich der Vermischungseinfluss der Rotoren, da durch eine Erhöhung der Eintrittsgeschwindigkeiten der Eduktströme nur die Mikromischung (vernachlässigbar) gering erhöht wird.

Für die reaktionstechnische Anwendung kann zusammengefasst werden, dass im vorliegenden Fall ein Taylor-Vortex System mit einem zylindrischen Rotor bei schnellen chemische Reaktionen ($T_r < 19$ s) bevorzugt werden sollte. Jedoch weist solch ein Reaktor bei hohen Rotordrehzahlen, welche für eine intensive Mikromischung notwendig sind, eine Makromischungsniveau wie ein Rührkessel (CSTR) auf. Der Taylor-Vortex Reaktor mit rippenförmigen Rotoren ermöglicht eine Prozessintensivierung, wenn die interessierte chemische Reaktion moderat schnell abläuft ($T_r > 64$ s) oder eine Reaktionsordnung nahe eins aufweist, was bedeutet, dass sie nur sensitiv gegenüber der Makromischung und nicht der Mikromischung ist.

6 ZUSAMMENFASSUNG

Ein Taylor-Vortex System ist prinzipiell aus zwei zueinander konzentrisch angeordneten Zylindern aufgebaut. Sie bilden zwischen sich einen Ringspalt, welcher für einen kontinuierlichen Reaktorbetrieb axial durchströmt werden kann. Bei den meisten Anwendungen befindet sich der äußere Hohlzylinder (Stator) in Ruhe, während der gleichmäßig rotierende Innenzylinder (Rotor) als Rührwerk fungiert.

Im Gegensatz zu einem konventionellen Rührkessel bildet das Fluid im Ringspalt mit steigender Rotordrehzahl eine Vielzahl von charakteristischen Ringwirbelströmungen aus. Aufgrund dieser einzigartigen Strömungen in Kombination mit der baulich bedingten Ringspaltgeometrie besitzt ein Taylor-Vortex System ein breites Einsatzspektrum (z. B. Zellkultivierung, Biokatalyse, Polymerisation, Fällung) mit Vorteilen gegenüber klassischen Reaktorkonzepten (z. B. Rührkessel).

Als ungünstig für viele reaktionstechnische Anwendungen stellt sich jedoch die Mischcharakteristik in einem Taylor-Vortex Reaktor dar. So ist zwar bei niedriger Rotordrehzahl die großflächige Rückvermischung (Makromischung), ähnlich einer idealen Kolbenströmung, äußerst gering, aber die hier sehr schwache lokale Vermischung in den Ringwirbeln (Mikromischung) kann nur durch eine drastische Erhöhung der Zylinderrotation intensiviert werden. Durch letzteres wird aber ungünstigerweise die Mischcharakteristik eines idealen Rührkessels erreicht.

So war es das Ziel der vorliegenden Arbeit, die Mischeigenschaften eines kontinuierlich, moderat durchströmten Taylor-Vortex Systems durch Variation der Rotorform so zu verbessern, dass die Makromischung selbst bei hohen Rotordrehzahlen, welche für eine intensive Mikromischung notwendig sind, auf einem möglichst geringem Niveau gehalten wird. Vielversprechend hierfür schien eine neuartige Rotorform, welche den Ringspalt anhand von Rippen axial unterteilt. Somit wurde in dieser Arbeit die Vermischung von zwei rippenförmigen Rotoren, welche sich lediglich durch die Höhe (2 mm, 8 mm) ihrer Rippen unterschieden, mit einem zylindrischen Rotor experimentell verglichen.

Da je nach Rotorform und Drehzahl unterschiedliche Ringspaltströmungen zu erwarten waren, wurden diese jeweils mit einem rheoskopischen Fluid visualisiert und dokumentiert. Die Makromischung konnte durch Spurstoffversuche bestimmt und anhand von eigens entwickelten phänomenologischen Verweilzeitmodellen quantitativ ausgewertet werden. Zur Untersuchung der Mikromischung wurde unter anderem der spezifische Energieeintrag der Rotoren in das Fluid gemessen. Da aber hiermit lediglich ein integrales, über den Ringspalt

gemittelttes Maß für die Mikromischung zugänglich war, wurde ergänzend eine Testreaktion (alkalische Verseifung von Ethylacetat) als Messsonde der Vermischung angewandt. Mit ihr war es bei entsprechend schneller Reaktionsgeschwindigkeit möglich, Mikromischeffekte bis zur molekularen Größenordnung zu untersuchen.

Die durchgeführten Strömungsvisualisierungen ergaben, dass beide rippenförmige Rotoren unabhängig vom axialen Durchfluss einen deutlich stabilisierenden Einfluss auf die Ringspaltströmung ausübten. Dies zeigte sich zum einen dadurch, dass im Gegensatz zum zylindrischen Rotor eine periodische Deformation der torusförmigen Wirbel unterdrückt wurde, und zum anderen, dass die Bildung von Turbulenz zu weitaus höheren Rotordrehzahlen verschoben war.

Die quantitative Auswertung der Experimente zur Makromischung bestätigten das erwartete Verhalten für ein Taylor-Vortex System mit zylindrischem Rotor. Es konnte eindeutig gezeigt werden, dass hier die Makromischung mit steigender Rotordrehzahl sehr schnell vom niedrigen Niveau einer Kolbenströmung auf das ungünstige, sehr hohe Level eines Rührkessels ansteigt. Bei dem Einsatz der rippenförmigen Rotoren konnte hingegen die Makromischung über einen weiten Drehzahlbereich auf einem geringen Niveau gehalten werden, welches entsprechend der Anzahl der Rippen im günstigsten Fall (hohe Rippen: 8 mm) einer Kaskade aus idealen Rührkesseln entsprach.

Die Messung des spezifischen Energieeintrages der Rotoren zeigte, dass unabhängig von der Rippenhöhe die über den Ringspalt gemittelte Mikromischung bei gleicher Rotordrehzahl deutlich intensiver war, als im Vergleich mit dem zylindrischen Rotor. Jedoch legte die mikromischungssensitive Testreaktion (alkalische Verseifung von Ethylacetat) bei rippenförmigen Rotoren offen, dass im Gegensatz zum zylindrischen Rotor mit steigender Rotordrehzahl die Segregation in den Ringwirbelkernen nicht abgebaut wurde. Im Zusammenhang gesehen mit dem gemessenen, höheren Rührenergieeintrag der rippenförmigen Rotoren, konnte somit gefolgert werden, dass die Intensität der Mikromischung lediglich in den Randzonen eines Ringwirbels höher war.

Für die Anwendung eines Taylor-Vortex Reaktors kann abschließend zusammengefasst werden, dass aufgrund der mit steigender Rotordrehzahl stark zunehmenden Mikromischung ein zylindrischer Rotor bei schnellen chemischen Reaktionen bevorzugt werden sollte. Jedoch tritt in solch einem Reaktor bei den hohen Rotordrehzahlen, welche für eine intensive Mikromischung notwendig sind, vollständige Rückvermischung wie in einem idealen Rührkessels auf.

Der Taylor-Vortex Reaktor mit rippenförmigen Rotoren hat hingegen das Potential, den Verlauf von Reaktionen mit Ordnungen $n > 0$ günstig zu beeinflussen und hier die Raum-Zeit-Ausbeuten deutlich zu erhöhen. Allerdings darf die interessierte chemische Reaktion nur moderat schnell ablaufen oder muss eine Reaktionsordnung nahe eins aufweisen, da die Mikromischungsintensität sonst nicht ausreicht um Segregation abzubauen.

Ein weiterer interessanter Aspekt für heterogen katalysierte Anwendungen ergibt sich dadurch, dass bei den rippenförmigen Rotoren die Intensität der Vermischung in den Randzonen der Ringwirbel nahe der Reaktorwand sehr hoch ist. Hierdurch könnte der Wärme- bzw. Stofftransport zu den katalytisch aktiven Rotor- bzw. Statoroberflächen günstig beeinflusst werden.

7 SUMMARY

A Taylor-Vortex device consists of two concentric cylinders. They form an annular gap, which can be passed through to obtain a continuous reactor mode. Normally, the outer hollow cylinder (stator) is static while the inner one (rotor) rotates constantly and acts as an agitator.

In contrast to a conventional stirred tank, the fluid forms different characteristic toroidal vortex flows in the annular gap, depending on the rotational speed. The combination of the characteristic flows and the annular geometry allows many applications to be carried out in a Taylor-Vortex system (e. g. cell cultivation, biocatalysis, polymerisation, precipitation) with advantages compared to classical reactor designs (e. g. stirred tank). The mixing characteristic of a Taylor-Vortex device, however, is often disadvantageous for applications in chemical engineering. On the one hand, the level of large-scale backmixing (macromixing) is very low and close to ideal plug flow behaviour at low rotational speed, but on the other hand the level of the local mixing (micromixing) in the toroidal vortices is undesirably low, too. To achieve a more intense micromixing a dramatic increase of the rotational speed is required, but this finally results in a mixing characteristics of a well stirred tank.

The aim of the present work was to improve the mixing characteristics of the Taylor-Vortex system by rotor shape modification. This was done by using a ribbed rotor instead of a cylindrical one to divide the annular gap into segments. The novel rotor shape was expected to lead to a low macromixing level at high rotational speed, which is necessary for intensive micromixing. In the present work, the mixing characteristics of two ribbed rotors, which differed only in rib height (2 mm, 8 mm), were experimentally compared to a cylindrical rotor.

Depending on rotor shape and rotation, different flow regimes were expected to occur. Therefore the flow patterns were visualised with a rheoscopic fluid. The macromixing was investigated by tracer experiments and quantified by the use of phenomenological residence time distribution models. In order to determine a measure for micromixing the specific power input of the tested rotors was determined. Since the rotor power input just gave an integral information on micromixing, a test reaction (alkaline saponification of ethylacetate) was additionally used as micromixing probe. When the reaction rate of the test reaction was adequately fast, micromixing effects could be determined up to molecular scale.

The flow visualisation experiments offered that both ribbed rotors stabilise the flow in the annular gap independent of the axial stream. In comparison with the cylindrical rotor, no

periodical deformations of the toroidal vortices were observed and the formation of turbulence was shifted to much higher rotor rotation.

The quantitative analysis of the tracer experiments approved the expected macromixing characteristics of a Taylor-Vortex System equipped with a cylindrical rotor. It showed that with increasing rotational speed the macromixing level is rapidly increased from near plug flow to a well stirred tank. However, a low macromixing level near an ideal cascade of stirred tanks was realised in a wide rotational speed range by the use of the novel ribbed rotors.

The measurement of the specific rotor power input showed that the averaged level of micromixing is higher in the case of ribbed rotors. The micromixing sensitive test reaction (alkaline saponification of ethylacetate), however, revealed that the segregation in the centre of the toroidal vortices is not reduced with increasing rotor speed when a ribbed rotor is used. In combination with the higher rotor power input of the ribbed rotors, this result leads to the conclusion that the micromixing level was only enhanced in the boundary layer of a vortex but not in its centre.

For practical reference, it can be summarised that a Taylor-Vortex reactor with cylindrical rotor should be preferred for fast running chemical reactions. However, at high rotor speed required for intense micromixing such a device exhibits a macromixing level like a well stirred tank. A Taylor-Vortex reactor with ribbed rotor is useful for process intensification, if the chemical reaction of interest is proceeding slowly, or when its reaction order is close to one. In this case the conversion is sensitive to macroscopic backmixing but not to micromixing. Additionally, the enhanced micromixing intensity inside the vortex boundary layers of a ribbed rotor is of special interest for heterogeneously catalysed reactions, since heat and mass transport to a catalytic rotor/stator surface could be affected beneficially.

LITERATURVERZEICHNIS

- Andereck, C.D., Liu, S.S., Swinney, H.L., 1986.** Flow regimes in a circular Couette system with independently rotating cylinders. *Journal of Fluid Mechanics* 164, 155-183
- Baier, G., Graham, M.D., Lightfoot, E.N., 2000.** Mass transport in a novel two-fluid Taylor vortex extractor. *American Institute of Chemical Engineers Journal* 46, 2395-2407
- Burkhalter, J.E., Koschmieder, E.L., 1973.** Steady supercritical Taylor vortex flow. *Journal of Fluid Mechanics* 58, 547-560
- Burkhalter, J.E., Koschmieder, E.L., 1974.** Steady supercritical Taylor vortices after sudden starts. *The Physics of Fluids* 17, 1929-1935
- Campero, R.J., Vigil, R.D., 1997.** Axial dispersion during low Reynolds number Taylor-Couette flow: intra-vortex mixing effects. *Chemical Engineering Science* 52, 3303-3310
- Chandrasekhar, S., 1981.** Hydrodynamic and hydromagnetic stability. *Dover Publications, New York*, 371-373
- Chen, Y.M., Pearlstein, A.J., 1987.** Viscosity-temperature correlation for glycerol-water solutions. *Industrial & Engineering Chemistry Research* 26, 1670-1672
- Climent, E., Simonnet, M., Magnaudet, J., 2007.** Preferential accumulation of bubbles in Couette-Taylor flow patterns. *Physics of Fluids* 19, 083301_1-083301_12
- Coeuret, F., Legrand, J., 1981.** Mass transfer at the electrodes of concentric cylindrical reactors combining axial flow and rotation of the inner cylinder. *Electrochimica Acta* 26, 865-872
- Cohen, S., Moalem Maron, D., 1983.** Experimental and theoretical study of a rotating annular flow reactor. *Chemical Engineering Journal* 27, 87-94
- Cohen, S., Moalem Maron, D., 1990.** Analysis of a rotating annular reactor in the vortex flow regime. *Chemical Engineering Science* 46, 123-134

- Cole, J.A., 1976.** Taylor-vortex instability and annulus-length effects. *Journal of Fluid Mechanics* 75, 1-15
- Coles, D., 1965.** Transition in circular Couette flow. *Journal of Fluid Mechanics* 21, 385-425
- Danckwerts, P.V., 1953.** Continuous flow systems: Distribution of residence time. *Chemical Engineering Science* 2, 1-13
- Danckwerts, P.V., 1958.** The effect of incomplete mixing on homogeneous reactions. *Chemical Engineering Science* 8, 93-102
- Davey, A., DiPrima, R.C., Stuart, J.T., 1968.** On the instability of Taylor vortices. *Journal of Fluid Mechanics* 31, 17-52
- David, R., Lintz, H.-G., Villermaux, J., 1984.** Untersuchung der Durchmischung in kontinuierlich betriebenen Reaktoren mit Hilfe von chemischen Reaktionen. *Chemie Ingenieur Technik* 56, 104-110
- Desmet, G., Verelst, H., Baron, G.V., 1996a.** Local and global dispersion effects in Couette-Taylor flow – I. Description and modelling of the dispersion effects. *Chemical Engineering Science* 51, 1287-1298
- Desmet, G., Verelst, H., Baron, G.V., 1996b.** Local and global dispersion effects in Couette-Taylor flow – II. Quantitative measurement and discussion of the reactor performance. *Chemical Engineering Science* 51, 1299-1309
- Desmet, G., Verelst, H., Baron, G.V., 1997.** Transient and stationary axial dispersion in vortex array flows – I. Axial scan measurements and modelling of transient dispersion effects. *Chemical Engineering Science* 52, 2383-2401
- DiPrima, R.C., Swinney, H.L., 1981.** Instabilities and transitions in flow between concentric rotating cylinders, in: Swinney, H.L. & Gollub, J.P. (Hrsg.), *Topics in applied physics, volume 45: Hydrodynamic instabilities and the transition to turbulence*. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, S. 139-180
- Dong, S., 2006.** Direct numerical simulation of turbulent Taylor-Couette flow. *Journal of Fluid Mechanics* 587, 373-393
- Donnelly, R.J., 1991.** Taylor-Couette flow: The early days. *Physics Today* 44, 32-39

- Drozdov, S.M., 2002.** A numerical investigation of a modified Couette-Taylor apparatus with application to industrial mixing. *Theoretical and Computational Fluid Dynamics* 16, 17-28
- Eagles, P.M., 1971.** On stability of Taylor vortices by fifth-order amplitude expansions. *Journal of Fluid Mechanics* 49, 529-550
- Elenkov, D., Petrov, P., Anastasov, A., Grozev, G., 1986.** Experimental determination of micromixing in CSTR. *Hungarian Journal of Industrial Chemistry* 15, 293-301
- Enokida, Y., Nakata, K., Suzuki, A., 1989.** Axial turbulent diffusion in fluid between rotating coaxial cylinders. *American Institute of Chemical Engineers Journal* 35, 1211-1214
- Fenstermacher, P.R., Swinney, H.L., Gollub, J.P., 1979.** Dynamical instabilities and the transition to chaotic Taylor vortex flow. *Journal of Fluid Mechanics* 94, 103-128
- Forney, L.J., Pierson, J. A., 2003.** Optimum photolysis in Taylor-Couette flow. *American Institute of Chemical Engineers Journal* 49, 727-733
- Forney, L.J., Skelland, A.H.P., Morris, J. F., Holl, R.A., 2002.** Taylor vortex column: large shear for liquid-liquid extraction. *Separation Science and Technology* 37, 2967-2986
- Forney, L.J., Ye, Z., Giorges, A., 2005.** Fast competitive reactions in Taylor-Couette flow. *Industrial and Engineering Chemistry Research* 44, 7306-7312
- Fournier, M.C., Falk, L., Villermaux, J., 1996a.** A new parallel competing reaction system for assessing micromixing efficiency – Experimental approach. *Chemical Engineering Science* 51, 5053-5064
- Fournier, M.C., Falk, L., Villermaux, J., 1996b.** A new parallel competing reaction system for assessing micromixing efficiency – Determination of micromixing time by a simple model. *Chemical Engineering Science* 51, 5187-5192
- Giordano, R.C., Giordano, R.L.C., Cooney, C.L., 2000b.** Performance of a continuous Taylor-Couette-Poiseuille vortex flow enzymatic reactor with suspended particles. *Process Biochemistry* 35, 1093-1101

- Giordano, R.C., Giordano, R.L.C., Prazeres, D.M.F., Cooney, C.L., 1998.** Analysis of a Taylor-Poiseuille vortex flow reactor - I: Flow patterns and mass transfer characteristics. *Chemical Engineering Science* 53, 3635-3652
- Giordano, R.C.L., Giordano, R.C., Prazeres, D.M.F., Cooney, C.L., 2000a.** Analysis of a Taylor-Poiseuille vortex flow reactor – II: Reactor modelling and performance assessment using glucose-fructose isomerisation as test reaction. *Chemical Engineering Science* 55, 3611-3626
- Goto, H., Goto, S., Matsubara, M., 1975.** A generalized two-environment model for micro mixing in a continuous flow reactor – II. Identification of the model. *Chemical Engineering Science* 30, 71-77
- Grohmann, A., Reiter, M., Wiesmann, U., 1981.** New flocculation units with high energy efficiency. *Water Science and Technology* 13, 567-573
- Haim, D., Pismen, L.M., 1994.** Performance of a photochemical reactor in the Taylor-Görtler vortical flow. *Chemical Engineering Science* 49, 1119-1129
- Hanley, T.R., Mischke, R.A., 1978.** A mixing model for a continuous flow stirred tank reactor. *Industrial and Engineering Chemistry Fundamentals* 17, 51-58
- Hasoon, M.A., Martin, B.W., 1977.** The stability of viscous axial flow in an annulus with a rotating inner cylinder. *Proceedings of the royal society of London. Series A, Mathematical and physical sciences* 352, 351-380
- Haut, B., Amor, H. B., Coulon, L., Jacquet, A., Halloin, V., 2003.** Hydrodynamics and mass transfer in a Couette-Taylor bioreactor for the culture of animal cells. *Chemical Engineering Science* 58, 777-784
- Hosokawa, Y., Furuta, H., Ishida, S., Kaneko, K., 1975.** Diffusion phenomena in viscous solutions. *Kanazawa Daigaku Kogakubu Kiyo* 9, 161-167
- Houcine, I., Vivier, H., David, R., Villermaux, J., 1996.** Planar laser fluorescence technique for measurements of concentration fields in continuous stirred tank reactors. *Experiments in Fluids* 22, 95-102
- Hwang, J.Y., Yang, K.S., 2004.** Numerical study of Taylor-Couette flow with an axial flow. *Computers & Fluids* 33, 97-118

- Iosilevskii, G., Brenner, H., Moore, C.M.V., Cooney, C.L., 1993.** Mass transport and chemical reaction in Taylor-vortex flows with entrained catalytic particles: applications to a novel class of immobilized enzym biochemical reactors. *Philosophical Transactions: Physical Sciences and Engineering* 345, 259-294
- Judat, B., Racina, A., Kind, M., 2004.** Macro- and micromixing in a Taylor-Couette reactor and their influence on the precipitation of barium sulfate. *Chemical Engineering & Technology* 27, 287-292
- Jung, W.M., Kang, S.H., Kim, W.S., Choi, C.K., 2000.** Particle morphology of calcium carbonate precipitated by gas-liquid reaction in a Couette-Taylor reactor. *Chemical Engineering Science* 55, 733-747
- Kataoka, K., 1986.** Taylor vortices and instabilities in circular Couette flow, in: *Cheremisinoff, N.P. (Hrsg.), Encyclopedia of Fluid Mechanics, volume 1: Flow phenomena and measurement. Gulf Publishing Company, Houston, London, Paris, Tokyo, S. 236-274*
- Kataoka, K., Doi, H., Hongo, T., Futagawa, M., 1975.** Ideal plug-flow properties of Taylor vortex flow. *Journal of Chemical Engineering of Japan* 8, 472-476
- Kataoka, K., Ohmura, N., Kouzu, M., Simamura, Y., Okubo, M., 1995.** Emulsion polymerization of styrene in a continuous Taylor vortex flow reactor. *Chemical Engineering Science* 50, 1409-1416
- Kataoka, K., Takigawa, T., 1981.** Intermixing over cell boundary between Taylor vortices. *American Institute of Chemical Engineers Journal* 27, 504-508
- Kirby, A.J. 1972.** Hydrolysis and formation of esters of organic acids. in: *Bamford, C.H. & Tipper, C.F.H. (Hrsg.), Comprehensive Chemical Kinetics, Vol. 10 Ester Formation, Hydrolysis and Related Reactions. Elsevier, Amsterdam, 150-201*
- Kogelman, S., DiPrima, R.C., 1970.** Stability of spatially periodic supercritical flows in hydrodynamics. *Physics of Fluids* 13, 1-11
- Kolmogorov, A.N., 1958.** Die lokale Struktur der Turbulenz in einer inkompressiblen zähen Flüssigkeit bei sehr großen Reynoldsschen Zahlen. in: *Goering, H. (Hrsg.), Sammelband zur statistischen Theorie der Turbulenz, Akademie Verlag, Berlin, 71-76*

- Koschmieder, E.L., 1979.** Turbulent Taylor vortex flow. *Journal of Fluid Mechanics* 93, 515-527
- Krueger, E.R., Gross, A., DiPrima, R.C., 1966.** On the relative importance of Taylor-vortex and non-axisymmetric modes in flow between rotating cylinders. *Journal of Fluid Mechanics* 24, 521-538
- Larosa, P., Manning, F.S., 1964.** Intensity of segregation as a measure of incomplete mixing. *The Canadian Journal of Chemical Engineering* 42, 65-68
- Lee, S., Lueptow, R.M., 2004.** Rotating membrane filtration and rotating reverse osmosis. *Journal of Chemical Engineering of Japan* 37, 471-482
- Levenspiel, O. 1999.** Chemical reaction engineering. *John Wiley & Sons, Inc., New York, Chichester, Brisbane, Toronto, Singapore*
- Lintz, H.G., Riekert, L., Weber, W., 1975.** Untersuchung des Mischvorgangs in einem kontinuierlich betriebenen Rührkessel mit Hilfe einer chemischen Reaktion. *Chemie Ingenieur Technik* 47, 103
- Liu, C.I., Lee, D.J., 1999.** Micromixing effects in a couette flow reactor. *Chemical Engineering Science* 54, 2883-2888
- Lueptow, R.M., Docter, A.; Min, K., 1992.** Stability of axial flow in an annulus with a rotating inner cylinder. *Physics of Fluids A* 4, 2446-2455
- Makataka, S., Kobayashi, J., 1976.** Micromixing model and experimental study in a continuous stirred-tank reactor. *International Chemical Engineering* 16, 148-154
- Mobbs, F.R., Preston, S., Ozogan, M.S., 1979.** An experimental investigation of Taylor vortex waves. "Taylor Vortex flow working party" in Leeds, Großbritannien
- Moore, C.M.V., Cooney, C.L., 1995.** Axial dispersion in Taylor-Couette flow. *American Institute of Chemical Engineers Journal* 41, 723-727
- Moritz, H.U., Kossak, S., Langenbuch, J., Rink, H.P., Jung, W.A., 1999.** Taylorreaktor für Stoffumwandlungen, bei deren Verlauf eine Änderung der Viskosität des Reaktionsmediums eintritt. *DE 198 28 742 A1, BASF Coatings AG*

- Myers, T.R., Collett, A.R., Lazzell, C.L., 1952.** The rate of saponification of acetates of unsaturated alcohols. *Journal of Physical Chemistry* 56, 461-463
- Nauman, E.B., Buffham, B.A., 1983.** Mixing in continuous flow systems. *John Wiley & Sons, Inc., New York, Chichester, Brisbane, Toronto, Singapore*
- Ohmura, N., Kataoka, K., Shibata, Y., Makino, T., 1997.** Effective mass diffusion over cell boundaries in a Taylor-Couette flow system. *Chemical Engineering Science* 52, 1757-1765
- Ohmura, N., Noui-Mehidi, M.N., Sasaki, K., Kitajima, K., Kataoka, K., 2004.** Mixing characteristics in a conical Taylor-Couette flow system at low Reynolds numbers. *Journal of Chemical Engineering of Japan* 37, 546-550
- Ohmura, N., Okamoto, H., Makino, T., Kataoka, K., 2002.** Effect of inhomogeneous mixing in chemical reaction in a Taylor vortex flow reactor. *Journal of Chemical Engineering of Japan* 35, 692-695
- Ohmura, N., Suemasu, T., Asamura, Y., 2005.** Particle classification in Taylor vortex flow with an axial flow. *Journal of Physics: Conference Series* 14, 64-71
- Orcutt, J.C, Davidson, J.F., Pigfort, R.L., 1962.** Reaction time distributions in fluidized catalytic reactors. *Chemical Engineering Progress Symposium Series* 58, 1-15
- Othmer, D.F., Silvis, S.J., 1950.** Correlating viscosities – Caustic soda solutions. *Industrial and Engineering Chemistry* 42, 527-528
- Pudjiono, P.I., Tavare, N.S., Garside, J., Nigam, K.D.P., 1992.** Residence time distribution from continuous Couette flow device. *The Chemical Engineering Journal* 48, 101-110
- Racina, A., Kind, M., 2006.** Specific power input and local micromixing times in turbulent Taylor-Couette flow. *Experiments in Fluids* 41, 513-522
- Racina, A., Požarnik, M., Kind, M., 2005.** Experimentelle Untersuchung zur Makro- und Mesovermischung im Taylor-Couette-Reaktor mittels laserinduzierter Fluoreszenz (LIF). *Chemie Ingenieur Technik* 77, 1621-1626
- Rayleigh, L., 1917.** On the dynamics of revolving fluids. *Proceedings of the Royal Society of London A* 93, 148-154

- Recktenwald, A., Lücke, M., Müller, H.W., 1993.** Taylor vortex formation in axial through-flow: linear and weakly nonlinear analysis. *Physical Review E* 48, 4444-4453
- Reicher, L.T., 1886.** Über die Geschwindigkeit der Verseifung. *Liebigs Annalen der Chemie* 232, 103-114
- Reiter, M., Wiesmann, U., Grohmann, A., 1984.** Der Zylinderrührreaktor – ein neuer Flokkulationsreaktor hoher Leistungsdichte für die Wasseraufbereitung. *Chemie ingenieur Technik* 56, 332-333
- Robinson, B.A., Tester, J.W., 1990.** Kinetics of alkaline hydrolysis of organic esters and amides in neutrally-buffered solution. *Journal of Chemical Kinetics* 22, 431-448
- Rotz, C.A., Suh, N.P., 1976.** New techniques for mixing viscous reacting liquids. Part I. Mechanical means to improve laminar mixing. *Polymer Engineering and Science* 16, 664-671
- Rotz, C.A., Suh, N.P., 1979.** Vortex motions induced by v-grooved rotating cylinders and their effect on mixing performance. *Transactions of the ASME* 101, 186-192
- Saldick, J., Hammett, L.P., 1950.** Rate measurement by continuous titration in a stirred flow reactor. *Journal of the American Chemical Society* 72, 283-286
- Salmi, E.J., Korte, R., 1940.** The alkaline hydrolysis of esters in water and water-dioxane solutions. *Annales Academiae Scientiarum Fennicae A* 54, 13
- Savas, Ö., 1985.** On flow visualization using reflective flakes. *Journal of Fluid Mechanics* 152, 235-248
- Schultz-Grunow, F., Hein, H., 1956.** Beitrag zur Couetteströmung. *Zeitschrift für Flugwissenschaften* 4, 28-30
- Schwille, A., Mitra, D., Lueptow, M., 2002.** Design parameters for rotating cylindrical filtration. *Journal of Membrane Science* 204, 53-65
- Sczechowski, J.G., Koval, C.A., Noble, R.D., 1995.** A Taylor Vortex reactor for heterogeneous photocatalysis. *Chemical Engineering Science* 50, 3163-3173

- Smith, L., Olsson, H., 1925.** Die Abhängigkeit der alkalischen Hydrolysegeschwindigkeit von der Konstitution des Alkohols - II. *Zeitschrift für Physikalische Chemie* 118, 99-106
- Soos, M., Wu, H., Morbidelli, M., 2007.** Taylor-Couette unit with a lobed inner cylinder cross section. *American Institute of Chemical Engineers Journal* 53, 1109-1120
- Stuart, J.T., 1960.** On the non-linear mechanics of wave disturbance in stable und unstable parallel flows. Part 1: The basic behaviour in plane Poiseuille flow. *Journal of Fluid Mechanics* 9, 353-370
- Syed, A., Früh, W.G., 2003.** Modelling of mixing in a Taylor-Couette reactor with axial flow. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology* 78, 227-235
- Tam, W.Y., Swinney, H.L., 1987.** Mass transport in turbulent Couette-Taylor flow. *Physical Review A* 36, 1374-1381
- Taylor, G.I., 1923.** Stability of a viscous liquid contained between two rotating cylinders. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A* 223, 289-343
- Tommila, E., Koivisto, A., Lyyra, J.P., Antell, K., Heimo, S., 1952.** The influence of the solvent on reaction velocity. *Annales Academiae Scientiarum Fennicae series AII* 47, 3-29
- Vilcu, R., Ciocazan, I., 1969.** The alkaline hydrolysis of the methyl acetate and of the ethyl acetate – II. Rate constants and activation energie from thermochemical data. *Revue Roumaine de Chimie* 14, 561-567
- Villiermaux, J., 1983.** Mixing in chemical reactors. *Chemical Reaction Engineering ACS Symposium Series* 226, 135-186
- Walden, R.W., Donnelly, R.J., 1979.** Reemergent order of chaotic circular Couette flow. *Physical Review Letters* 42, 301-304
- Warder, R.B., 1881.** Geschwindigkeit der Verseifung von Essigäther. *Bericht der Deutschen Chemischen Gesellschaft* 14, 1361-1365

- Watson, J., 1960.** On the non-linear mechanics of wave disturbance in stable und unstable parallel flows. Part 2: The development of a solution for plane Poiseuille flow and for plane Couette flow. *Journal of Fluid Mechanics* 9, 371-389
- Wei, X., Takahashi, H., Sato, S., Nomura, M., 2001.** Continuous emulsion polymerization of styrene in a single Couette-Taylor vortex flow reactor. *Journal of Applied Polymer Science* 80, 1931-1942
- Wen, C.Y, Fan, L.T., 1975.** Chemical processing and engineering, volume 3: Models for flow systems and chemical reactors. *Marcel Dekker, Inc., New York*
- Wereley, S.T., Lueptow, R.M., 1999.** Velocity field for Taylor-Couette flow with axial flow. *Physics of Fluids* 11, 3637-3649
- Wiener, R.J., Snyder, G.L., Prange, M.P., Frediani, D., Diaz, P.R., 1997.** Periodic-doubling cascade to chaotic phase dynamics in Taylor vortex flow with hourglass geometry. *Physical Review E* 55, 5489-5497
- Yagi, S., Miyauchi, T., 1953.** On the residence time curves of the continuous reactors. *Kagaku Kogaku* 17, 382-
- Yaws, C.L., 1999.** Chemical properties handbook. *McGraw-Hill, New York*, 478-504
- Yim, S.S.S., Lo, M.Y.A., Titcheneer-Hooker, N., Ayazi Shamlou, P., 1998.** The dependence of residence time distribution on flow in co-axial cylinder devices. *Bioprocess Engineering* 19, 221-227
- Zoulalian, A., Villermaux, J., 1970.** An experimental investigation of the state of mixing of the fluid in a chemical reactor. *The Chemical Engineering Journal* 1, 76-78
- Zwietering, T.N., 1959.** The degree of mixing in continuous flow systems. *Chemical Engineering Science* 11, 1-15

ABKÜRZUNGSVERZEICHNIS

| | |
|-----------------|---|
| CS | Couette Strömung |
| Ac ⁻ | Acetat-Anion (CH ₃ COO ⁻) |
| CP | Couette-Poiseuille Strömung |
| CSTR | idealer Rührkessel („continuous stirred tank reactor“) |
| DGL | Differentialgleichung |
| EtAc | Ethylacetat (C ₄ H ₈ O ₂) |
| HV | helixförmige Taylor-Vortex Strömung |
| HWV | helixförmige wavy-Vortex Strömung |
| LIF | „laser induced fluorescence“ |
| LTVS | laminare Taylor-Vortex Strömung |
| MWV | modulierte wavy-Vortex Strömung |
| PFR | Idealer Kolbenstromreaktor („plug flow reactor“) |
| PIF | „particle image velocimetry“ |
| PLVS | primäre laminare Vortex Strömung |
| PS | Poiseuille Strömung |
| RMV | chaotische wavy-Vortex Strömung |
| SHV | stationäre helixförmige Ringwirbelströmung |
| SLVS | sekundäre laminare Vortex Strömung |
| TMW | turbulente modulierte wavy-Vortex Strömung |
| TRA | Übergangsströmungsregime |
| TTVS | tertiäre turbulente Vortex Strömung |
| TVS | turbulente Vortex Strömung |
| TWV | turbulente wavy-Vortex Strömung |
| WVS | wavy-Vortex Strömung |

SYMBOLVERZEICHNIS

lateinische Symbole

| | | |
|----------------------|--|-----------|
| a | Abszissenverschiebung Dirac-Impuls | s |
| A_i, A_o | innerer bzw. äußere Austauschoberfläche Ringwirbel | m^2 |
| $A_i; A_c$ | Austauschoberfläche Rand- bzw. Kernbereich | m^2 |
| A_v | Austauschoberfläche Ringwirbel | m^2 |
| $C_{aus}^*(s)$ | Laplace-transformiertes Ausgangssignal Tracer | [-] |
| $C_{ein}^*(s)$ | Laplace-transformiertes Eingangssignal Tracer | [-] |
| C_0 | äquimolare Eduktkonzentration | mol/m^3 |
| $C_{aus}(t)$ | Ausgangssignal Tracer; Einheit entsprechend | |
| $C_{ein}(t)$ | Eingangssignal Tracer; Einheit entsprechend | |
| C_{EtAc} | Konzentration EtAc | mol/m^3 |
| C_i | Konzentration Spezies i | mol/m^3 |
| C_i | stationäre Austrittskonzentration Spezies i | mol/m^3 |
| C_{i0} | stationäre Eingangskonzentration Spezies i | mol/m^3 |
| C_{i10} | Umgebungskonzentration Spezies i | mol/m^3 |
| C_n | Konzentration im n-ten Ringwirbel | mol/m^3 |
| $C_{n,d}, C_{n,u}$ | Konzentration im n-ten (down oder up) Ringwirbel | mol/m^3 |
| $C_{o,j}; C_{c,j}$ | Konzentration Rand- bzw. Kernbereich | mol/m^3 |
| C_{OH^-} | Konzentration OH^- | mol/m^3 |
| C_S | relative Konzentration im segregierten Element | [-] |
| $C_{v,j}; C_{s,j}$ | Konzentration im Ringwirbel bzw. Bypass | mol/m^3 |
| d | Spaltbreite | m |
| D_1, D_2, D_3, D_S | Dispersionskoeffizienten | m^2/s |

| | | |
|----------------------|---|--------------------------------------|
| D_{ax} | axialer Dispersionskoeffizient | m^2/s |
| d_f | charakteristische Länge Fluidelement | m |
| D_m | molekularer Diffusionskoeffizient | m^2/s |
| d_{noz} | Durchmesser Düse | m |
| D_{rad} | radialer Dispersionskoeffizient | m^2/s |
| \mathcal{D}_{RKK} | Dispersionskoeffizient Kaskade idealer Rührkessel | [-] |
| D_{tan} | tangentialer Dispersionskoeffizient | m^2/s |
| $E(t)$ | Verweilzeitverteilung | 1/s |
| $E^*(s)$ | Laplace-transformierte Verweilzeitverteilung | [-] |
| $E_{\Theta}(\Theta)$ | normierte Verweilzeitverteilung | [-] |
| $E_{\Theta,exp}$ | experimentelle Verweilzeitverteilung | [-] |
| $E_{\Theta,mod}$ | modellierte Verweilzeitverteilung | [-] |
| $F(t)$ | kumulative Verweilzeitverteilung | [-] |
| $f(t)$ | ursprüngliche Funktion | 1/s |
| $f^*(s)$ | Laplace-transformierte Funktion | [-] |
| $f=u_d/u_{ax}$ | Bypassfaktor | [-] |
| $F_{\Theta}(\Theta)$ | normierte kumulative Verweilzeitverteilung | [-] |
| $g(t)$ | Auflösungsterm | [-] |
| h_{cell} | Höhe Mischzelle | m |
| h_{rib} | Höhe Rippe | m |
| k_c | Stoffdurchgangskoeffizient | m/s |
| k_n | Geschwindigkeitskonstante n-ter Ordnung | $m^{3(n-1)}/(s \text{ mol}^{(n-1)})$ |
| k_{OH^-} | Geschwindigkeitskonstante alkalische Verseifung | $m^3/(mol \cdot s)$ |
| L | Länge System | m |
| L | Spaltlänge bzw. Rotorlänge | m |

| | | |
|----------------------|--|---------------------|
| l_1, l_2, l_3, l_s | charakteristische Länge | m |
| l_c | charakteristische Rührergröße | m |
| l_{WP} | Länge Ringwirbelpaar | m |
| M_t | Drehmoment Rührerwelle | Nm |
| N | Anzahl der Ringwirbel | [-] |
| n | Reaktionsordnung | [-] |
| $n(t)$ | Menge markierter Elemente | [-] |
| P | Rührenergie | W |
| Q | Volumenstrom | m^3/s |
| Q_0 | Volumenstrom Edukt | m^3/s |
| r | Rückführungsverhältnis | [-] |
| R | ideale Gaskonstante | $J/(mol \cdot K)$ |
| r, Θ, z | Zylinderkoordinaten | m |
| R_i | Reaktionsgeschwindigkeit Spezies | mol/s |
| r_i | Radius Rotor | m |
| R_i | Reaktionsterm Spezies i | $mol/(m^3 \cdot s)$ |
| r_m | mittlere Ringspalt Durchmesser | m |
| r_o | Radius Stator | m |
| r_{rib} | Radius Rippe | m |
| RZA | Raum-Zeit-Ausbeute | $kg/(m^3 \cdot s)$ |
| $S_{vi}; A_s$ | Austauschoberfläche Ringwirbel bzw. Bypass | m^2 |
| t | Zeit | s |
| t | Verweilzeit | s |
| T | Temperatur | K |
| T_k | mittlere Verweilzeit | s |

| | | |
|----------------------|--|----------------|
| T_m | Mikromischzeit | s |
| t_m | lokale Mikromischzeit | s |
| T_r | Relaxationszeit | s |
| u_{ax} | mittlere Leerspaltgeschwindigkeit | m/s |
| \bar{u}_{ax} | mittlere axiale Geschwindigkeit | m/s |
| u_d | Driftgeschwindigkeit Ringwirbel | m/s |
| u_{noz} | Eintrittsgeschwindigkeit Düse | m/s |
| U_r | relative Geschwindigkeit zwischen Ringwirbel/Bypass | m/s |
| u_r, u_θ, u_z | Strömungsvektor in Zylinderkoordinaten | m/s |
| \bar{u}_{tan} | mittlere tangentielle Geschwindigkeit | m/s |
| u_x, u_y, u_z | Strömungsvektor in kartesischen Koordinaten | m/s |
| V | Volumen | m ³ |
| $V_o; V_c$ | Volumen Rand- bzw. Kernereich | m ³ |
| V_v | Volumen Ringwirbel | m ³ |
| $V_v; V_s$ | Volumen Ringwirbel bzw. Bypass | m ³ |
| $W(t)$ | Auswaschfunktion der Verweilzeitverteilung | [-] |
| $W_\theta(\Theta)$ | normierte Auswaschfunktion der Verweilzeitverteilung | [-] |
| X | Umsatz | [-] |
| x, y, z | kartesische Koordinaten | m |
| X^θ | standardisierter Umsatz | [-] |

dimensionslose Kennzahlen

| | | |
|---------------|--------------------------------|-----|
| Ta | Taylor-Zahl | [-] |
| Ta_{C1} | erste kritische Taylor-Zahl | [-] |
| Ta_{C2} | zweite kritische Taylor-Zahl | [-] |
| Ta_{C3} | dritte kritische Taylor-Zahl | [-] |
| \mathcal{D} | dimensionslose Dispersionszahl | [-] |
| G | dimensionsloses Drehmoment [-] | [-] |
| Re | Reynolds-Zahl [-] | [-] |
| Re_{noz} | Düsen-Reynolds-Zahl [-] | [-] |
| Da_l | Damköhler-Zahl | [-] |
| Da_l^θ | standardisierte Damköhler-Zahl | [-] |
| Π | dimensionsloser Energieeintrag | [-] |

griechische Symbole

| | | |
|--------------------|--|-------------------|
| Δ | Fehlerquadratsumme | [-] |
| ϑ | Temperatur | °C |
| ϑ_L | Temperatur Leitfähigkeitsmesszelle | °C |
| Λ_i | molare Leitfähigkeit Spezies | $S \cdot m^2/mol$ |
| Θ | normierte Verweilzeit [-] | [-] |
| α | Alter | s |
| $\beta_c; \beta_i$ | Stofftransportkoeffizient innerer bzw. äußerer Bereich | m/s |
| β_i, β_o | innerer bzw. äußerer Stofftransportkoeffizient | m/s |
| β_v | Stofftransportkoeffizient | m/s |
| $\delta(t-a)$ | Dirac-Impuls | [-] |

| | | |
|-------------------------------|---|-------------------|
| ε | dissipierte spezifische Energie | W/kg |
| $\langle \varepsilon \rangle$ | lokale dissipierte Energie | W/kg |
| κ | spezifische Leitfähigkeit | S/m |
| κ_∞ | spezifische Grenzleitfähigkeit für $t \rightarrow \infty$ | S/m |
| κ_0 | spezifische Grenzleitfähigkeit für $t=0$ | S/m |
| λ | Lebenserwartung | s |
| λ_k | Kolmogorovsche Wirbellänge | m |
| ν | kinematische Viskosität | m ² /s |
| ρ | Dichte | kg/m ³ |
| σ^2 | Varianz | s ² |
| ω | Winkelgeschwindigkeit | 1/s |

ANHANG

A1 Navier-Stokes Gleichungen und Kontinuitätsgleichung

In Zylinderkoordinaten (r, Θ, z) , mit konstanter Dichte ρ , konstanter kinematischer Viskosität ν und ohne äußere Kräfte gilt für den Geschwindigkeitsvektor $(u_r, u_\Theta, u_z)^T$ und den Druck p :

$$\begin{aligned} \frac{\partial u_r}{\partial t} + u_r \frac{\partial u_r}{\partial r} + \frac{u_\Theta}{r} \frac{\partial u_r}{\partial \Theta} + u_z \frac{\partial u_r}{\partial z} - \frac{u_\Theta^2}{r} = \\ -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial r} + \nu \left[\frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r u_r) \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 u_r}{\partial \Theta^2} + \frac{\partial^2 u_r}{\partial z^2} - \frac{2}{r^2} \frac{\partial u_\Theta}{\partial \Theta} \right] \end{aligned} \quad (7-1)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial u_\Theta}{\partial t} + u_r \frac{\partial u_\Theta}{\partial r} + \frac{u_\Theta}{r} \frac{\partial u_\Theta}{\partial \Theta} + u_z \frac{\partial u_\Theta}{\partial z} + \frac{u_r u_\Theta}{r} = \\ -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial \Theta} + \nu \left[\frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r u_\Theta) \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 u_\Theta}{\partial \Theta^2} + \frac{\partial^2 u_\Theta}{\partial z^2} - \frac{2}{r^2} \frac{\partial u_r}{\partial \Theta} \right] \end{aligned} \quad (7-2)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial u_z}{\partial t} + u_r \frac{\partial u_z}{\partial r} + \frac{u_\Theta}{r} \frac{\partial u_z}{\partial \Theta} + u_z \frac{\partial u_z}{\partial z} - \frac{u_\Theta^2}{r} = \\ -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial z} + \nu \left[\frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial u_z}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 u_z}{\partial \Theta^2} + \frac{\partial^2 u_z}{\partial z^2} \right] \end{aligned} \quad (7-3)$$

$$\frac{1}{r} \frac{\partial (r \cdot u_r)}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial (r \cdot u_\Theta)}{\partial \Theta} + \frac{\partial u_z}{\partial z} = 0 \quad (7-4)$$

mit ρ Dichte in kg/m^3

ν kinematische Viskosität in m^2/s

A2 Lineare Stabilitätsanalyse

Die Ausgangssituation der im folgenden gezeigten linearen Stabilitätsanalyse (Chandrasekhar, 1981) für das Auftreten der ersten Strömungsinstabilität ist die stationäre Basisströmung $(u_r, u_\Theta, u_z)^T$ bei dem Druck p . Sie ergibt sich in Zylinderkoordinaten (r, Θ, z) analytisch aus den Navier-Stokes Gleichungen und der Kontinuitätsgleichung. Hierbei wurde die Annahme eines unendlichen langen Ringspaltes ($L \rightarrow \infty$), sowie die Haftbedingung ($u_\Theta = \omega r_i, u_z = 0$ bei $r = r_i$; $u_\Theta = 0, u_z = 0$ bei $r = r_o$) getroffen.

$$u_r = 0 \quad ; \quad u_\Theta = V = A r + \frac{B}{r} \quad ; \quad u_z = W = \frac{2}{C} u_{ax} \left[1 - \left(\frac{r}{r_o} \right)^2 - D \ln \left(\frac{r_o}{r} \right) \right] \quad (7-5)$$

$$p = P = \int \frac{\rho V^2}{r} dr + \int \text{const.} dz$$

mit $A = -\omega \eta^2 / (1 - \eta^2)$; $B = \omega r_i^2 / (1 - \eta^2)$; $C = (1 - \eta^4) / (1 - \eta^2) - (1 - \eta^2) / \ln(1/\eta)$;
 $D = (1 - \eta^2) / \ln(1/\eta)$; $\eta = r_i / r_o$

r_o Radius Stator in m

r_i Radius Rotor in m

ρ Dichte in kg/m^3

ω Winkelgeschwindigkeit Rotor in 1/s

u_{ax} mittlere Leerspaltgeschwindigkeit in m/s

Um nun die Stabilität der obigen Basisströmung (7-5) zu überprüfen, wird sie mit achsensymmetrischen und in axialer Richtung periodischen Geschwindigkeits- $(u_r', u_\Theta', u_z')^T$ bzw. Druckstörungen p' überlagert.

$$u_r = u_r' \quad ; \quad u_\Theta = V + u_\Theta' \quad ; \quad u_z = W + u_z' \quad ; \quad p = P + p' \quad (7-6)$$

Die Störungen $(u_r', u_\Theta', u_z')^T$ bzw. p' (siehe (7-11)) sind hierbei per Definition sehr klein gegenüber dem Grundzustand.

Die Navier-Stokes Gleichungen und die Kontinuitätsgleichung (siehe Anhang A1) können mit (7-6) vereinfacht werden, in dem nichtlineare Anteile der Störungsterme vernachlässigt werden sowie deren Achsensymmetrie berücksichtigt wird.

$$\frac{\partial u_r'}{\partial t} + W \frac{\partial u_r'}{\partial z} - 2 \frac{V}{r} u_{\theta}' = v \left(\nabla^2 u_r' - \frac{u_r'}{r^2} \right) - \frac{1}{\rho} \frac{\partial p'}{\partial r} \quad (7-7)$$

$$\frac{\partial u_{\theta}'}{\partial t} + W \frac{\partial u_{\theta}'}{\partial z} + \left(\frac{dV}{dr} + \frac{V}{r} \right) u_r' = v \left(\nabla^2 u_{\theta}' - \frac{u_{\theta}'}{r^2} \right) \quad (7-8)$$

$$\frac{\partial u_z'}{\partial t} + W \frac{\partial u_z'}{\partial z} + \frac{dW}{dr} u_r' = v \nabla^2 u_z' - \frac{1}{\rho} \frac{\partial p'}{\partial z} \quad (7-9)$$

$$\frac{\partial u_r'}{\partial r} + \frac{u_r'}{r} + \frac{\partial u_z'}{\partial z} = 0 \quad (7-10)$$

mit $\nabla^2 = \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}$ v kinematische Viskosität in m^2/s

Die für (7-6) postulierten Eigenschaften der Geschwindigkeits- $(u_r', u_{\theta}', u_z')^T$ sowie Druckstörung p' können jeweils mit folgender (r, z, t) -Abhängigkeit beschrieben werden.

$$u_r' = u(r) e^{i(s t + \lambda z)} ; u_{\theta}' = v(r) e^{i(s t + \lambda z)} ; u_z' = w(r) e^{i(s t + \lambda z)} ; p' = p(r) e^{i(s t + \lambda z)} \quad (7-11)$$

mit s Wachstum Störung in $1/s$ λ Wellenlänge Störung in $1/m$
 u, v, w Amplitude Störung in m/s p Amplitude Störung in Pa

Das Wachstum s der Störung in (7-11) ist eine komplexe Zahl, sofern der Ringspalt axial durchströmt wird.

$$s = \sigma - i\omega_s \quad (7-12)$$

mit σ Wachstumsrate Störung in $1/s$ ω_s Oszillationsfrequenz Störung in $1/s$

Aus (7-7) bis (7-10) ergibt sich durch (7-11) nach Umformung:

$$v \left(D D^* - \lambda^2 - i \frac{s}{v} - i \frac{\lambda}{v} W \right) u + 2 \frac{V}{r} v = D (p/\rho) \quad (7-13)$$

$$v \left(D D^* - \lambda^2 - i \frac{s}{v} - i \frac{\lambda}{v} W \right) v + 2 \frac{V}{r} v = 2 A u \quad (7-14)$$

$$v \left(D^* D - \lambda^2 - i \frac{s}{v} - i \frac{\lambda}{v} W \right) w - u D W = i \lambda (p/\rho) \quad (7-15)$$

$$D^* u = -i \lambda w \quad (7-16)$$

mit $D = d/dr$; $D^* = D + 1/r$

Anhand (7-15) und (7-16) kann w eliminiert werden:

$$\frac{v}{\lambda^2} \left(D^* D - \lambda^2 - i \frac{s}{v} - i \frac{\lambda}{v} W \right) D^* u + \frac{i}{\lambda} (D W) u = (p/\rho) \quad (7-17)$$

Letztendlich wird (7-17) in (7-13) eingesetzt, um den Druck zu eliminieren. Nach einigen Umformungen ergibt sich:

$$\left[D D^* - \lambda^2 - \frac{i}{v} (s + \lambda W) \right] \left(D D^* - \lambda^2 \right) u + i \frac{\lambda}{v} r u \left[D D^* \left(\frac{W}{r} \right) \right] = \frac{2V\lambda^2}{rv} \quad (7-18)$$

Die linearen Störungsgleichungen (7-14) und (7-18) definieren ein Eigenwertproblem, welches numerisch gelöst werden kann.

Die Basisströmung (7-5) ist instabil, wenn es Lösungen von (7-14) und (7-18) gibt, für welche die Wachstumsrate der Störung $\sigma > 0$ ist. Am neutralen gerade noch stabilen Punkt ist die Wachstumsrate der Störung $\sigma = 0$. Die mathematische Lösung des Problems bedeutet, dass für vorgegebene Bedingungen (Ringspaltgeometrie, axialer Fluss, Viskosität) der kleinste Wert der Rotorwinkelgeschwindigkeit ω ($\rightarrow Ta_{C1}$) gesucht wird, der mit $\sigma = 0$ das Eigenwertproblem (7-14) und (7-18) löst. Die hierbei verknüpften Ergebnisse für die Wellenlänge der Störung λ und die Oszillationsfrequenz der Störung ω_s führen im weiteren zur Driftgeschwindigkeit $u_d = 2\Pi\omega_s/\lambda$ sowie zur Länge $l_{WP} = 2\Pi/\lambda$ eines gerade formierten Ringwirbelpaares.

Ohne den Einsatz von leistungsstarken Computern waren die numerischen Lösungsmöglichkeiten des Eigenwertproblems (7-14) und (7-18) sehr beschränkt, weshalb gerade in älterer Literatur weitere Vereinfachungen getroffen werden mussten (z. B. ein unendlich schmaler Spalt: $r_i/r_o \rightarrow 1$, kein axialer Fluss).

A3 Erweiterte lineare Stabilitätsanalyse

Die lineare Stabilitätsanalyse (siehe Anhang A2) kann lediglich das Auftreten der ersten Strömungsinstabilität beschreiben (CS→LTVS). Um auch den zweiten Strömungsübergang bei Ta_{C2} (LTVS→WVS) analysieren zu können, besteht eine Möglichkeit darin, die Annahme von achsensymmetrischen Störungen durch nicht-achsensymmetrische Anteile zu erweitern (Krueger et al., 1966). Hierfür werden die bisherigen Störungsterme (7-11) um Wellen in azimuthaler Richtung erweitert, wobei die Anzahl m der Wellen ganzzahlig sein muss und anschaulich ausgedrückt der azimuthalen Oszillation der WVS entspricht.

$$\begin{aligned} u_r' &= u(r) e^{i(s t + \lambda z + m \Theta)} & ; & \quad u_\Theta' = v(r) e^{i(s t + \lambda z + m \Theta)} \\ u_z' &= w(r) e^{i(s t + \lambda z + m \Theta)} & ; & \quad p' = p(r) e^{i(s t + \lambda z + m \Theta)} \end{aligned} \quad (7-19)$$

mit s Wachstum Störung in $1/s$ λ Wellenlänge Störung in $1/m$
 u, v, w Amplitude Störung in m/s p Amplitude Störung in Pa
 m Anzahl azimuthaler Wellen

Mit (7-19) können analog zu (7-6) die Navier-Stokes Gleichungen und die Kontinuitätsgleichung linearisiert werden, wobei im Vergleich zu (7-7) bis (7-10) die Beiträge in Umfangsrichtung erhalten bleiben. Weitere Umformungen führen letztendlich wieder zu Störungsgleichungen ähnlich (7-14) und (7-18) und damit wieder auf ein Eigenwertproblem, welches für verschiedene ganzzahlige Werte für $m \geq 1$ gelöst wird (siehe Tabelle 7-1). Auch ohne axialen Fluss ist hierbei der Wachstum s der Störung entsprechend (7-12) eine komplexe Zahl.

Tabelle 7-1: Kritische Werte für die Ta -Zahl aus der erweiterten linearen Stabilitätsanalyse ohne axialen Fluss nach Krueger et al. (1966) für $r_i/r_o \rightarrow 1$.

| m | $\frac{Ta_{C2}(m \geq 1)}{Ta_{C1}(m = 0)}$ |
|-----|--|
| 0 | 1 |
| 1 | 1,0018 |
| 2 | 1,0074 |
| 3 | 1,0168 |
| 4 | 1,0303 |
| 5 | 1,0483 |

A4 Nichtlineare Stabilitätsanalyse

Die höheren Strömungsformen ($Ta > Ta_{C1}$) repräsentieren quasistabile Zustände für $t \rightarrow \infty$, bei denen die Störungen ($u_r', u_\theta', u_z', p'$) klein aber ungleich null sind. Da die bisher verwendeten Störungsterme der linearen Stabilitätsanalyse (7-11) oder (7-19) für $t \rightarrow \infty$ und $Ta > Ta_{C1}$ keine endlichen Werte liefern können, müssen diese Ansätze korrigiert werden.

Davey et al. (1968) konnten anhand der nichtlinearen Theorie (Stuart, 1960; Watson, 1960) erstmals die Stabilität der Ringspaltströmung ohne axialen Fluss formal analysieren. Sie beschrieben die (dimensionslosen) Störungsterme jeweils durch eine Potenzreihe von Amplitudenfunktionen $A(\tau)$, wodurch das exponentielle Wachstum der Störung beeinflusst wird und so stabile/endliche Strömungszustände möglich sind. Für die dimensionslose Störung $U_r'(x, \xi, \tau)$ gilt mit ähnlichen Ausdrücken für U_z', U_θ' und P' :

$$U_r'(x, \xi, \tau) = A(\tau) u_{11}(x) E_1 + A^2(\tau) u_{22}(x) E_2 + |A(\tau)|^2 u_{20}(x) + A(\tau) |A(\tau)|^2 u_{31}(x) E_1 + A^3(\tau) u_{33}(x) E_3 + \dots \quad (7-20)$$

mit $E_k = e^{i(k\lambda z)}$; $x = (r - r_o)/d$; $\xi = z/d$; $\tau = t \cdot \nu/d^2$

λ Wellenlänge Störung in 1/m

r_o Radius Stator in m

d Spaltbreite in m

ν kinematische Viskosität in m^2/s

u_{kl} Eigenwerte der Störungsmoden [-]

$A(\tau)$ (komplex wertige) Amplitudenfunktion [-]

Eagles (1971) berechnete mit diesem nichtlinearen Stabilitätsansatz nach Davey et al. (1968) den zweiten Strömungsübergang (LTVS \rightarrow WVS), wenn der Ringspalt nicht axial durchströmt wird. Die Amplitudenfunktionen in (7-20) wurden von ihm bis zur fünften Ordnung entwickelt und er führte Berechnungen durch mit und ohne der „schmalen Spalt“-Approximation ($r_i/r_o \rightarrow 1$).

Der Vergleich dieser Daten (Tabelle 7-2) mit den Werten von Krueger et al. (1966) (Tabelle 7-1) zeigt, dass der hier berechnete Strömungsübergang von der LTVS zur WVS bei etwas höheren Ta -Zahlen stattfindet. Ebenso hat die Anzahl m der azimuthalen Wellen einen weitaus geringeren Einfluss.

Aufgrund der Komplexität der nichtlinearen Stabilitätsanalyse sind bisher keine weiteren Berechnungen für größere Spaltbreiten d publiziert. Auch der Fall eines axial durchströmten Ringspalt wurde bisher nicht beschrieben. Ebenso kann keine Aussage über die bevorzugte

Anzahl m an azimuthalen Wellen getroffen werden, wobei Coles (1965) experimentell nachwies, dass $m=4$ bevorzugt ist.

Tabelle 7-2: Kritische Werte für die Ta -Zahl aus der nichtlinearen Stabilitätsanalyse ohne axialen Fluss nach Eagles (1971).

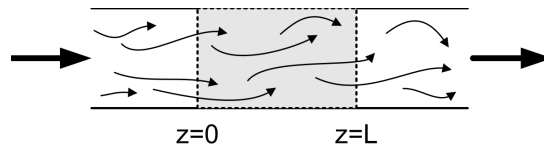
| m | $(r_i/r_o \rightarrow 1)$ | $(r_i/r_o = 0,952)$ |
|----------|--|--|
| | $\frac{\mathbf{Ta}_{C2}(m \geq 1)}{\mathbf{Ta}_{C1}(m = 0)}$ | $\frac{\mathbf{Ta}_{C2}(m \geq 1)}{\mathbf{Ta}_{C1}(m = 0)}$ |
| 0 | 1 | 1 |
| 1 | 1,0405 | 1,0536 |
| 2 | 1,0413 | 1,0550 |
| 4 | 1,0461 | 1,0582 |

A5 Randbedingungen des axialen Dispersionsmodells

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} + \bar{u}_{ax} \frac{\partial c_i}{\partial z} = D_{ax} \frac{\partial^2 c_i}{\partial z^2} \quad (7-21)$$

mit c_i Konzentration Spezies i in mol/m^3 \bar{u}_{ax} mittlere axiale Geschwindigkeit in m/s
 D_{ax} axialer Dispersionskoeffizient in m^2/s

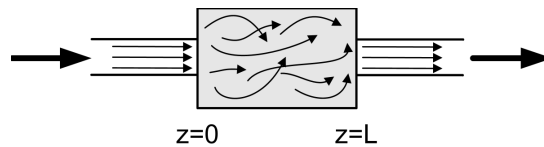
gegenüber Dispersion offenes System (Wen und Fan, 1975):



$$z = 0: \quad \bar{u}_{ax} \cdot c_{i,z=0} - D_{ax} \left. \frac{\partial c_i}{\partial z} \right|_{z \rightarrow 0^-} = -D_{ax} \left. \frac{\partial c_i}{\partial z} \right|_{z \rightarrow 0^+}; \quad c_{i,z \rightarrow 0^-} = c_{i,z \rightarrow 0^+}; \quad c_{i,z=0} = c_{i,\text{ein}} \quad (7-22)$$

$$z = L: \quad c_{i,z=L} = c_{i,\text{aus}}$$

gegenüber Dispersion geschlossenes System (Wen und Fan, 1975):

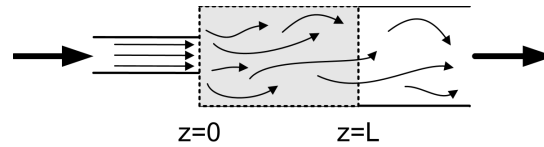


$$z < 0: \quad c_i = c_{i,z \rightarrow 0^-} = 0$$

$$z = 0: \quad \bar{u}_{ax} \cdot c_{i,z \rightarrow 0^+} - \bar{u}_{ax} \cdot c_{i,z=0} = D_{ax} \left. \frac{\partial c_i}{\partial z} \right|_{z \rightarrow 0^+}; \quad c_{i,z=0} = c_{i,\text{ein}} \quad (7-23)$$

$$z = L: \quad c_{i,z=L} = c_{i,\text{aus}}; \quad \left. \frac{\partial c_i}{\partial z} \right|_{z=L} = 0$$

gegenüber Dispersion halboffenes System (Wen und Fan, 1975):

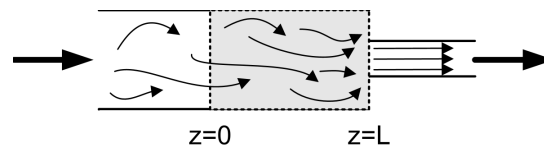


$$z < 0: c_i = c_{i,z \rightarrow 0^-} = 0$$

$$z = 0: \bar{u}_{ax} \cdot c_{i,z \rightarrow 0^+} - \bar{u}_{ax} \cdot c_{i,z=0} = D_{ax} \left. \frac{\partial c_i}{\partial z} \right|_{z \rightarrow 0^+}; \quad c_{i,z=0} = c_{i,\text{ein}} \quad (7-24)$$

$$z = L: c_{i,z=L} = c_{i,\text{aus}}$$

gegenüber Dispersion halbgeschlossenes System (Wen und Fan, 1975):



$$z = 0: \bar{u}_{ax} \cdot c_{i,z=0} - D_{ax} \left. \frac{\partial c_i}{\partial z} \right|_{z \rightarrow 0^-} = -D_{ax} \left. \frac{\partial c_i}{\partial z} \right|_{z \rightarrow 0^+}; \quad c_{i,z \rightarrow 0^-} = c_{i,z \rightarrow 0^+}; \quad c_{i,z=0} = c_{i,\text{ein}} \quad (7-25)$$

$$z = L: D_{ax} \left. \frac{\partial c_i}{\partial z} \right|_{z=L} = 0; \quad c_{i,z=L} = c_{i,\text{aus}}$$

A6 Alkalische Verseifung von Ethylacetat

Der Reaktionsmechanismus der alkalischen Verseifung von Ethylacetat (EtAc) ist in Bild 7-1 dargestellt. Im ersten Reaktionsschritt kommt es zum nucleophilen Angriff des Hydroxid-Ions auf den Ester und zur Bildung eines Intermediats. Anschließend wird das Alkoholat-Ion vom Intermediat abgespalten und es bildet sich die Carbonsäure. Im letzten Reaktionsschritt findet die Protonenübertragung von der Carbonsäure zum Alkoholat-Ion statt.

Die ersten beiden Reaktionsschritte sind reversibel, wobei der nucleophile Angriff des Hydroxid-Ions auf den Ester den geschwindigkeitsbestimmenden Schritt der gesamten Reaktion darstellt. Der letzte Schritt ist irreversibel, da die Gleichgewichtskonstante für den Protonentransfer so hoch ist, dass eine Esterbildung unter alkalischen Reaktionsbedingungen ausgeschlossen werden kann (Kirby, 1972).

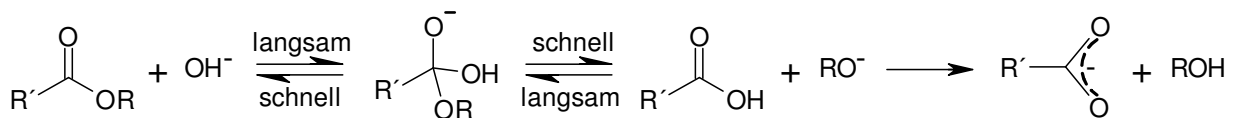


Bild 7-1: Reaktionsmechanismus der alkalischen Verseifung von Ethylacetat (Kirby, 1972).

Die Verseifung von EtAc kann im sauren, neutralen oder alkalischen Medien stattfinden. Die Reaktionsgeschwindigkeit ist gemäß (7-26) erster Ordnung hinsichtlich der Konzentration der OH^- - und H_3O^+ -Ionen (Kirby, 1972).

$$-\frac{dc_{\text{EtAc}}}{dt} = c_{\text{EtAc}} (k_0 + k_{\text{OH}^-} c_{\text{OH}^-} + k_{\text{H}_3\text{O}^+} c_{\text{H}_3\text{O}^+}) \quad (7-26)$$

mit c_i Konzentration Spezies i in mol/m^3

k_0 neutrale Geschwindigkeitskonstante in $1/\text{s}$

$k_{\text{OH}^-}, k_{\text{H}_3\text{O}^+}$ alkalische und saure Geschwindigkeitskonstante in $\text{m}^3/(\text{mol}\cdot\text{s})$

Da bei der alkalischen Verseifung von EtAc die Geschwindigkeitskonstanten k_0 vernachlässigbar klein ist und im alkalischem Medium gilt $c_{\text{H}_3\text{O}^+} \ll c_{\text{OH}^-}$ (Kirby, 1972), vereinfacht sich der Ausdruck für die Reaktionsgeschwindigkeit zu (7-27).

$$-\frac{dc_{\text{EtAc}}}{dt} = k_{\text{OH}^-} c_{\text{EtAc}} c_{\text{OH}^-} \quad (7-27)$$

mit c_i Konzentration Spezies i in mol/m^3

k_{OH^-} Geschwindigkeitskonstante in $\text{m}^3/(\text{mol}\cdot\text{s})$

A7 Technische Zeichnungen der Taylor-Vortex Systeme

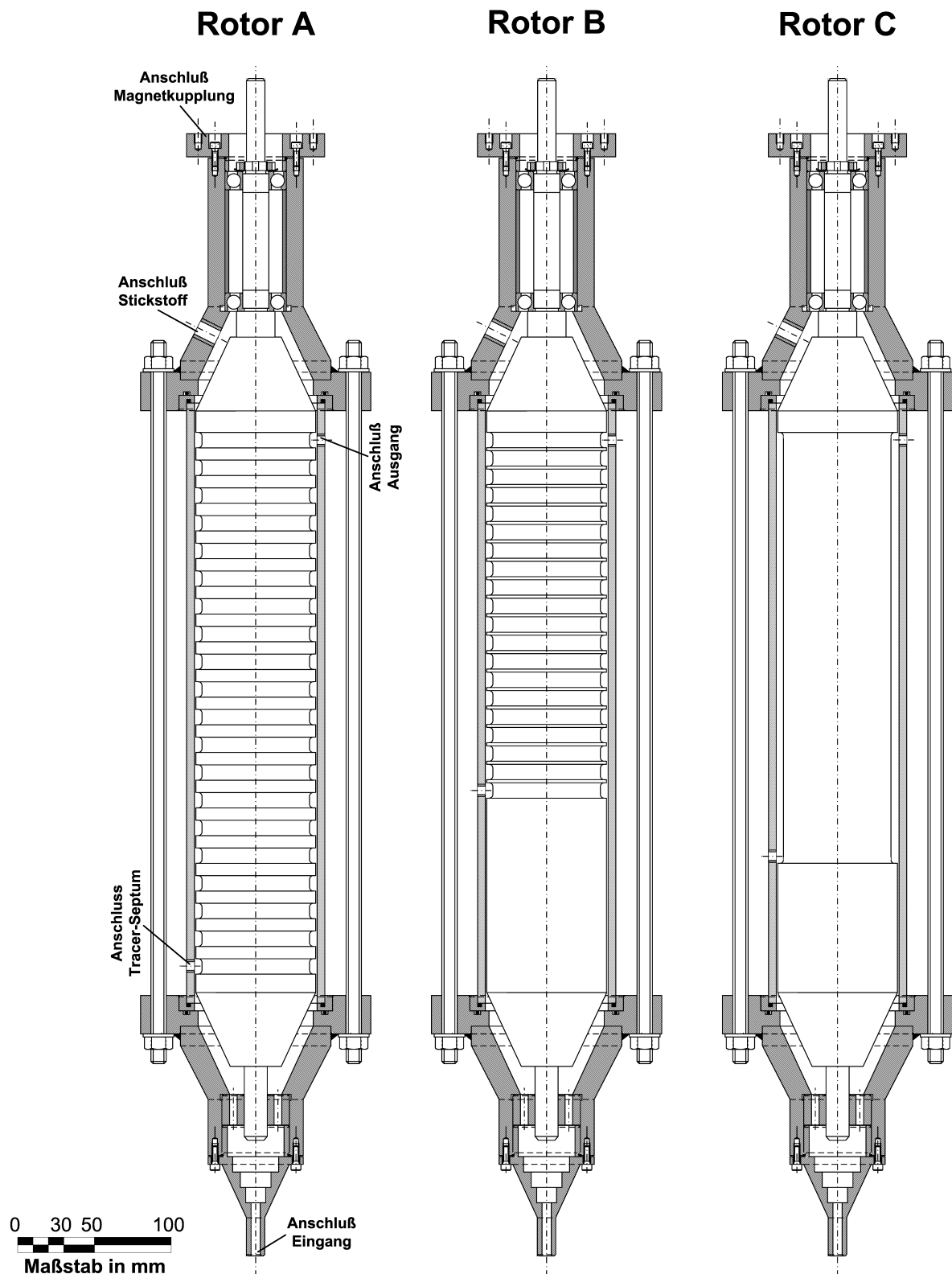


Bild 7-2: Technische Längsschnitte aller Taylor-Vortex Systeme, welche zur Untersuchung der Mischcharakteristik mittels Spurstoffversuchen und Messung der Rührenergieeintrages verwendet wurden (vergleiche Kapitel 4).

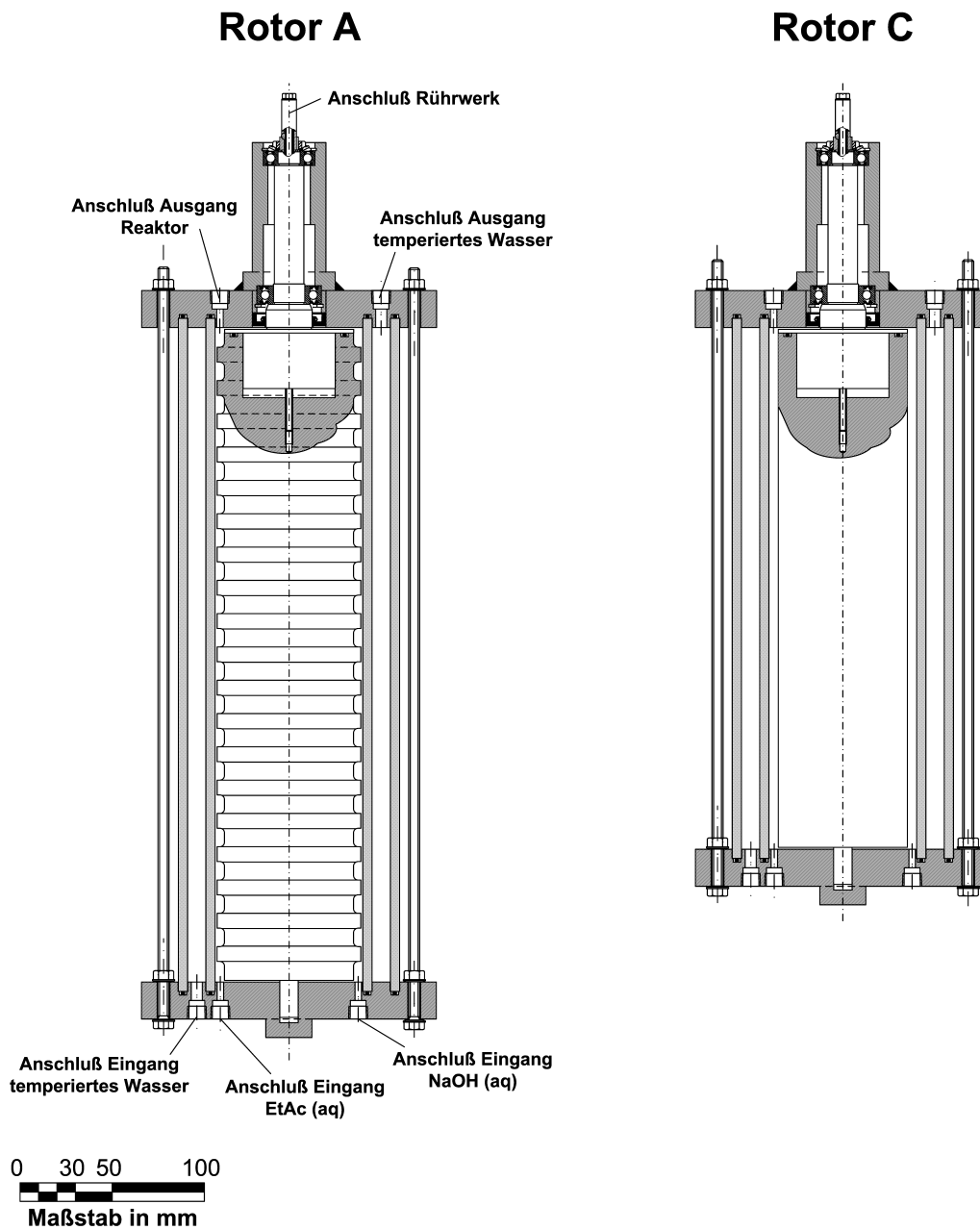


Bild 7-3: Technische Längsschnitte aller Taylor-Vortex Systeme, welche bei der alkalischen Verseifung von EtAc verwendet wurden (vergleiche Kapitel 5).

A8 MATLAB® Programmcode zylindrischer Rotor C

TaylorDatenFit.m

```

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%% TaylorDatenFit.m %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%% Hauptprogramm Modellparameter schätzen %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

tic;

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%% DATEN EINLESEN VORBEREITEN %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

% Exceldatei, die eingelesen werden soll:
readfile='D:\"verzeichnis"\Dateiname.xls';

% Arbeitsblätter, die eingelesen werden sollen:
sheet=["Arbeitsblatt1",
       "Arbeitsblatt2",
       "Arbeitsblatt3",
       "Arbeitsblatt4",
       "Arbeitsblatt5",
       ];

[zeile,spalte]=size(sheet);

for x=1:1:zeile

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%% DATEN EINLESEN UND AUFARBEITEN %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

% Daten einlesen
% xlsread('Datei', 'Arbeitsblatt', 'Datenbereich')

% Matrix mit allen Messwerten: Spalte1: Theta_mess
%                               Spalte2: E_mess
mess_roh(:,1)=xlsread(readfile,sheet(x,1:15),'C4:C2000');
mess_roh(:,2)=xlsread(readfile,sheet(x,1:15),'K4:K2000');
Ta           =xlsread(readfile,sheet(x,1:15),'Q16:Q16');
Re           =xlsread(readfile,sheet(x,1:15),'S19:S19');

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%% VORBEREITEN DER ANPASSUNG %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

disp('*****')
disp(sheet(x,1:15));
disp('*****');
disp('');

% Konstanten DGL-System siehe TaylorDGL.m
V_punkt =xlsread(readfile,sheet(x,1:15),'S7:S7');
V_reaktor=(xlsread(readfile,sheet(x,1:15),'T11:T11'))/1e6;
r_a      =xlsread(readfile,sheet(x,1:15),'Q8:Q8');
r_i      =xlsread(readfile,sheet(x,1:15),'Q10:Q10');
L        =xlsread(readfile,sheet(x,1:15),'Q13:Q13');
n        =int16(L/(r_a-r_i));

% DGL Vorfaktoren erzeugen siehe TaylorDGL.m
Faktor1=zeros(n,n);
Faktor2=zeros(n,n);
Faktor1(1,1)=-1; Faktor1(1,2)=1;
for a=2:1:(n-1)
    Faktor1(a,a-1)=1; Faktor1(a,a)=-1;
    Faktor2(a,a)=-1; Faktor2(a,a+1)=1;
end;
Faktor1(n,n-1)=1; Faktor1(n,n)=-1;

[t,e]=size(mess_roh);
theta_max=mess_roh(t,1);
theta_ende=theta_max - 0.0099;

disp('suche Startwerte');

% Vorschätzung der Parameter mit genalg
% genetic algorithm toolbox v1.2, University of Sheffield
NIND=5; % Anzahl der Individuen pro Subpopulation
MAXGEN=20; % maximale Anzahl der Generationen
GGAP=1; % Generationskonflikt, wieviele neue Individuen erzeugen
MUTAT=0.1; % Wahrscheinlichkeit einer Mutation
KEEP=0.3; % wieviele Eltern in die nächste Generation übernehmen
SUBPOP=1; % Anzahl der Subpopulationen

```

```

PRECI=20; % Genauigkeit der binären Vertretung
SEL_F='rws'; % Name der Selektionsfunktion
% SUS = "Stochastic Universal Sampling"
% rws = "Roulette wheel Selection"

XOV_F='xovsh'; % Name der Rekombinationsfunktion Individuen
% xovsp = "Single Point, suffix rs = Reduced Surrogate"
% xovdp = "Double Point, suffix rs = Reduced Surrogate"
% xovsh = "Shuffle, suffix rs = Reduced Surrogate"
% reclis = "Discrete Recombination"
% reclin = "Line Recombination"
% recint = "Intermediate Recombination"

MUT_F='mut'; % Name der Mutationsfunktion Individuen
% mut = "Binary and Integer Mutation"

OBJ_F='TaylorFIT_GA'; % Name der (objektiven) Zielfunktion

% Grenzwerte der (objektiven) Zielfunktion
FieldDR=[1e-10 0.5; 1 1.14];

% Anzahl der Variablen in Zielfunktion, in OBJ_F definiert
NVAR=size(FieldDR,2);

% Bilde "fielddescription" Matrix
FieldD=[rep(PRECI,[1,NVAR]);...
FieldDR;...
rep([1; 1; 1; 1],[1,NVAR])];

% Bilde Population
Chrom=crtbp(NIND,NVAR*PRECI);

% Reset Zählvariable
gen=1;
opt=1;
Best=NaN*ones(MAXGEN+1,1);

Lsg=[10000 0 0]; %wegen Abbruchbedingung Schleife

% Iteration Population
while (gen<MAXGEN)&&(Lsg(opt,1)>0.5)

    % berechne (objektive) Zielfunktion für Population
    ObjV=feva(OBJ_F,bs2rv(Chrom, FieldD),theta_ende,mess_roh,Faktor1,
Faktor2,V_punkt,V_reaktor,n,r_a,r_i);
    [Best(gen+1)row_opt]=min(ObjV);

    % Sichern der gefundenen Minimas und der zugehörigen Parameter
    if min(ObjV)<=min(Best)
        Parameter_aktuell=bs2rv(Chrom, FieldD);
        opt=opt+1;
        Lsg(opt,:)=[min(ObjV) Parameter_aktuell(row_opt,:)];
        SCHRITTE=theta_ende*Lsg(opt,3)*double(n);
    end

    semilogy((Best),'ro');
    grid on;
    axis ([0 gen+5 1e-3 1e3]);
    title (['Ta='; int2str(Ta); ' ; ', 'Re='; num2str(Re)]);
    ylabel ('\Sigma Diff^2 (bestes Individuum)');
    xlabel ('Generation');
    drawnow;

    % Zuteilung Fitness der gesamten Population
    FitnV=ranking(ObjV);

    % wähle Individuen aus der Population
    SelCh=select(SEL_F,Chrom,FitnV,GGAP);

    % rekombiniere erwählte Individuen
    SelCh=recombin(XOV_F,SelCh);

    % mutieren Nachwuchs
    SelCh=mutate(MUT_F,SelCh,[],MUTAT);

    if GGAP>=1
        % berechne (objektive) Zielfunktion für Nachwuchs
        ObjVChild=feval(OBJ_F,bs2rv(SelCh,FieldD),theta_ende,mess_roh,
Faktor1,Faktor2,V_punkt,V_reaktor,n,r_a,r_i);
        % füge Nachwuchs in die Population ein und behalte KEEP Eltern
        Chrom=reins(Chrom,SelCh,SUBPOP,[1 1-KEEP],ObjV,ObjVChild);
    else
        % füge Nachwuchs in die Population und ersetze unfite Eltern
        Chrom=reins(Chrom,SelCh,SUBPOP,[],ObjV);
    end

    gen=gen+1;
end
end

```

```

% Startwerte aus Vorschätzung mit GA
p(1)=Lsg(end,2); %beta_a
p(2)=Lsg(end,3); %f

% Grenzen für lsqnonlin beim "Large Scale Algorithmus"
untergrenze=[1e-10 0.9999];
obergrenze =[1 1];

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%% START DER ANPASSUNG %%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
r(1)=1e99;
r(2)=1e98;
z=2;

disp('suche Optimum');
while ((r(z-1)-r(z))>0.000001);
    zaehler=1;
    z=z+1;

    options=optimset ('LargeScale', 'off',...
        'LevenbergMarquardt', 'on', ...
        'Diagnostics','off', ...
        'Display','off', ...
        'MaxFunEvals',20, ...
        'MaxIter',20, ...
        'TolFun',1e-4, ...
        'TolX',1e-4, ...
        'DiffMaxChange',1e100, ...
        'DiffMinChange',1e-100 ...
    );

    %"Normierung" damit Parameter bei lsqnonlin gleich behandelt werden
    para0_norm=p./p;

    [paraopt_norm,r(z)]=lsqnonlin('TaylorFITlsq',para0_norm,[],[],
options,p,theta_ende,mess_roh,Faktor1,Faktor2,V_punkt,V_reaktor,n,r_a,r_i);

    % Übergabe/Entnormierung Parameter-Startwerte nächste Iteration
    p_alle(z,:)=paraopt_norm.*p;
    p=p_alle(z,:);

end;

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%% AUSGABE VORBEREITEN %%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

%Betrag bilden der Parameter, falls durch Anpassung negativ!
beta_a_opt=abs(p_alle(z-1,1));
f_opt=abs(p_alle(z-1,2));

%%% Lösen des DGL-Systems mit optimalen Parametern
anfangswerte=zeros(1,n);
anfangswerte(2)=1;

% Zähler für Integration
li=1;
% Variable für Zeitintervall indem oberster wirbel aus Reaktor wandert
t1=0;
delta_theta=1/(f_opt*double(n));
t2=t1+delta_theta;

schritte=theta_ende/delta_theta; % Anzahl der Integrationssschritte

% alle Zeitintervalle lösen
while (li<=schritte);
    % Endwerte der vorherigen Integarion num Anfangswerte
    [theta,y] = ode23t('TaylorDGL',[t1 t2],anfangswerte(li,:),[],
Faktor1,Faktor2,V_punkt,V_reaktor,n,r_a,r_i,beta_a_opt);

    li=li+1;
    [m,l]=size(y);

    % Übergabe der Ergebnisse in Anfangswert-Matrix
    % i-te Zeile --> (i-1)-tes Zeitintervall
    % k-te Spalte --> k-ter wirbel
    anfangswerte(li,1)=0;
    for k=2:1:(n);
        anfangswerte(li,k)=y(m,(k-1));
    end;

    % Verschiebung des Zeitintervalls
    t1=t2;
    t2=t1+delta_theta;
end;

```

```

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%% AUSGABE %%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

% Ausgabe der Verweilzeitverteilung E_mess und E_calc
E_calc_opt=[];
V_zelle=V_reaktor/double(n);

% Anfangsbedingung beachten -> Tracerzugabe!!!
E_calc_opt=f_opt*V_reaktor/V_zelle*anfangswerte(:,n);

% Vektor mit Iterationsgrenzen (bei diesem Theta E berechnen)
% Anzahl der Integrationsschritte + 1 (Startbedingung)
theta_calc_opt=[];
for a = 1:1:(1+schritte);
    theta_calc_opt(a,1)=(a-1)*delta_theta;
end;

theta_mess=mess_roh(:,1);
E_mess=mess_roh(:,2);

figure;
hold on;
plot (theta_calc_opt,E_calc_opt,'-r','Linewidth', 2);
A=size(mess_roh(:,1));
schritt=int16(A(1)/100);
plot (theta_mess(1:schritt:end),E_mess(1:schritt:end),'bs');
grid on;
axis ([0 5 0 3]);
title (['Ta=', int2str(Ta), ' ; ', 'Re=', num2str(Re)]);
ylabel ('E_{\theta}');
xlabel ('\theta');
legend ('Modell', 'Messdaten');
hold off;

% Ausgabe der angepassten Parameter
Daten(x,1)=Ta;Daten(x,2)=Re;Daten(x,3)=beta_a_opt;Daten(x,4)=f_opt;
Daten(x,5)=r(z-1);

disp ('');
disp (['*****']);
disp (['resnorm=' num2str(r(z-1))]);
disp (['*****']);
disp (['Ta=' int2str(Ta) ' ' 'Re=' num2str(Re)]);
disp (['*****']);
disp (['beta_a=' num2str(beta_a_opt) ' ' 'm/s' ' ' 'f=' num2str(f_opt)]);
disp (['*****']);
disp (' ');disp (' ');disp (' ');

mess_roh=[];

end;

% Speichern aller angepassten Parameter
% Exceldatei, die geschrieben werden soll
writefile='D:\Verzeichnis"\Dateiname".xls';

% Daten = | Ta | Re | beta_a | f | resnorm |
%          | ... | ... | ... | ... | ... |
%          | ... | ... | ... | ... | ... |

xlswrite(writefile,Daten);

figure;
% Ausgabe aller angepassten beta_a
subplot (2,1,1);
semilogx (Daten(:,1), Daten(:,3), '-gd','Linewidth',2,...
          'MarkerEdgeColor','k',...
          'MarkerFaceColor','g',...
          'Markersize',5);

grid on;
axis ([1e1 1e4 0 0.1]);
title (['Re=' num2str(Re)]);
ylabel ('\beta_a [m/s]');
xlabel ('Ta');

% Ausgabe aller angepassten f (Volumenstromanteile)
subplot(2,1,2);
semilogx (Daten(:,1), Daten(:,4), ':ys','Linewidth',2,...
          'MarkerEdgeColor','k',...
          'MarkerFaceColor','y',...
          'Markersize',5);

grid on;
axis ([1e1 1e4 0 1.2]);
title (['Re=' num2str(Re)]);
ylabel ('f [-]');
xlabel ('Ta');
clear all;

```

TaylorDGL.m

```

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%% TaylorDGL.m %%%%%%%%%%
%% DGL-SYSTEM FÜR klassichen TAYLOR-VORTEX REAKTOR %%%%%%%%%%
%% (1 Zone Modell) %%%%%%%%%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

% Funktion, welche in den ODE-Solver eingelesen wird:
function dydtheta=TaylorDGL(theta,y,flag,Faktor1,Faktor2,V_punkt,V_reaktor,
n,r_a,r_i,beta_a)

% Konstanten DGL-System:
% V_punkt: Volumenstrom durch Reaktor [m^3/s]
% n: Anzahl der Taylorwirbel [-]
% V_reaktor: Reaktorvolumen [m^3]
% V_zelle: Volumen Taylorwirbel [m^3]
% A_a: Querschnitt Ringspalt [m^2]
% r_a: Radius Rotor außen [m]
% r_i: Radius Rotor innen [m]

% Parameter DGL-System:
% beta_a: Stofftransportkoeffizient zwischen Taylorwirbel [m/s]

V_zelle=V_reaktor/double(n);
A_a=pi*(r_a^2-r_i^2);
K1=(A_a*beta_a*V_reaktor)/(V_zelle*V_punkt);

% Variablen DGL-System:
% t: Zeit
% ci: Konzentration im n-ten Taylorwirbel
%
% Normierte Variablen DGL-System:
% c0: Konzentration Taylorwirbel bei t=0
% yi = ci / c0
% theta = V_punkt/V_reaktor * t

% DGL-System für n Taylorwirbel

%      |Taylorwirbel 1|      | (1) |
%      |Taylorwirbel 2|      | (2) |
% y =  | ...           | =  | ...   |
%      |Taylorwirbel n|      | n   |

% Gleichungssystem auf welches die Vorfaktoren Faktor1, Faktor2 basieren
% siehe TaylorDatenFit.m
%
% dydtheta = zeros (size(y));
% %%% Mischzelle 1,a:
% dydtheta(1) = -K1*( y(1)-y(2) );
% %%% Mischzelle k bis (n-1),a:
% for a = 2:1:(n-1);
%     dydtheta(a) = +K1*( y(a-1)-y(a) ) -K1*( y(a)-y(a+1) );
% end;
% %%% Mischzelle n,a:
% dydtheta(n) = +K1*( y(n-1)-y(n) );

dydtheta=K1*Faktor1*y+K1*Faktor2*y;

```

TaylorFIT_GA.m

```

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%% TAYLORFIT_GA.m %%%%%%%%%%
%% Differenz bilden zwischen Messdaten und Modell %%%%%%%%%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

% Funktion Fkt welche in GA eingelesen wird
function Fkt=TaylorFIT_GA(para,theta_ende,mess_roh,Faktor1,Faktor2,V_punkt,
V_reaktor,n,r_a,r_i)

Fkt=[];
count = 0;
[NIND NPARAM] = size(para);

while count<NIND
    count=count+1;

    % DGL_Löser
    beta_a = para(count,1);

```

```

f      = para(count,2);

anfangswerte=zeros(1,n);
anfangswerte(2)=1;

% Zähler für Integration
li=1;
% Variable für Zeitintervall indem oberster Wirbel aus Reaktor wandert
t1=0;
delta_theta=1/(f*double(n));
t2=t1+delta_theta;

schritte=theta_ende/delta_theta; % Anzahl der Integrationsschritte

E_mess=[];

% alle Zeitintervalle lösen
while (li <= schritte);
    % Endwerte der vorherigen Integration num Anfangswerte
    [theta,y]=ode23t('TaylorDGL',[t1 t2],anfangswerte(li,:),[],
Faktor1,Faktor2,V_punkt,V_reaktor,n,r_a,r_i,beta_a);

    li=li+1;
    %Größe der y-Matrix, damit letzte Zeile (Konz. bei t2) übergeben wird
    [m,l]=size(y);

    % Übergabe der Ergebnisse in Anfangswert-Matrix
    %                               i-te Zeile --> (i-1)-tes Zeitintervall
    %                               k-te Spalte --> k-ter Wirbel
    anfangswerte(li,1)=0;
    for k=2:1:(n);
        anfangswerte(li,k)=y(m,(k-1));
    end;
    % Verschiebung des Zeitintervalls
    t1=t2;
    t2=t1+delta_theta;
end;

% Berechnete Verweilzeitverteilung E_calc %%%
V_zelle=V_reaktor/double(n);

% Anfangsbedingung beachten -> Tracerzugabe!!!
E_calc=f*V_reaktor/V_zelle*anfangswerte(:,n);

clear anfangswerte;

% Menge Datensätze reduzieren, damit minimierende Funktion definiert

% Vektor mit Iterationsgrenzen
% (bei diesen Theta-Werten werden E-Werte errechnet)
% Anzahl der Integrationsschritte + 1 (Startbedingung)
for a = 1:1:(1+schritte);
    theta_calc(a,1) = (a-1)*delta_theta;
end;

% Reduzierung der Daten auf die Werte bei den Integrationsgrenzen
for a=1:1:(1+schritte);
    k=1;
    while (mess_roh(k,1)<theta_calc(a,1));
        k=k+1;
    end;
    theta_mess(a,1)=mess_roh(k,1);
    E_mess(a,1)=mess_roh(k,2);
end;

% beide Matrizen mit 0 auffüllen: Durch Änderung von f wird auch die
% Größe der Vektoren E_calc, E_mess bei den durchläufen verändert.
% Auffüllen mit Null ergänzt Werte immer auf 2000 Punkte, somit ist
% Vektorgröße immer konstant.
[q,w]=size(E_calc);
for a = (q+1):1:150;
    E_calc(a,1) = 0;
    E_mess(a,1) = 0;
end;

% Definition der zu minimierenden Funktion Fkt
differenz = (E_calc - E_mess); %Differenz mit schritte gewichten!
Fkt_IND = sum(differenz.^2);
Fkt= [Fkt; Fkt_IND];

end;

```

TaylorFITlsq.m

```

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%% TAYLORFITlsq.m %%%%%%%%%%
%% Differenz bilden zwischen Messdaten und Modell %%%%%%%%%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

%% Funktion Fkt welche in lsqnonlin eingelesen wird
function fkt=TaylorFITlsq(para0_norm,p,theta_ende,mess_roh,Faktor1,Faktor2,
V_punkt,V_reaktor,n,r_a,r_i)

%% DGL_Löser
para=abs(para0_norm.*p); %Betrag bilden der Parameter, falls negativ!

beta_a = para(1);
f = para(2);

anfangswerte = zeros(1,n);
anfangswerte(2) = 1;

% Zähler für Integration
li=1;
% Variable für Zeitintervall indem oberster Wirbel aus Reaktor wandert
t1=0;
delta_theta=1/(f*double(n));
t2=t1+delta_theta;

schritte=theta_ende/delta_theta; % Anzahl der Integrationsschritte

% alle Zeitintervalle lösen
while (li<=schritte);
    % Endewerte der vorherigen Integration num Anfangswerte
    [theta,y]=ode23t('TaylorDGL',[t1 t2],anfangswerte(li,:),[],Faktor1,
Faktor2,V_punkt,V_reaktor,n,r_a,r_i,beta_a);

    li=li+1;
    %Größe der y-Matrix, damit letzte Zeile (Konz. bei t2) übergeben wird
    [m,l]=size(y);

    % Übergabe der Ergebnisse in Anfangswert-Matrix
    %                               i-te Zeile --> (i-1)-tes Zeitintervall
    %                               k-te Spalte --> k-ter Wirbel
    anfangswerte(li,1)=0;
    for k=2:1:(n);
        anfangswerte(li,k)=y(m,(k-1));
    end;
    % Verschiebung des Zeitintervalls
    t1=t2;
    t2=t1+delta_theta;
end;

% Berechnete Verweilzeitverteilung E_calc %%%
V_zelle=V_reaktor/double(n);

% Anfangsbedingung beachten -> Tracerzugabe!!!
E_calc=f*V_reaktor/V_zelle*anfangswerte(:,n);

clear anfangswerte;

% Menge der Datensätze reduzieren:
% Damit zu minimierende Funktion definiert werden kann

% Vektor mit Iterationsgrenzen
%(bei diesen Theta-Werten werden E-Werte errechnet
% Anzahl der Integrationsschritte + 1 (Startbedingung)
for a = 1:1:(1+schritte);
    theta_calc(a,1)=(a-1)*delta_theta;
end;

% Reduzierung der Daten auf die Werte bei den Integrationsgrenzen
for a = 1:1:(1+schritte);
    k=1;
    while (mess_roh(k,1)<theta_calc(a,1));
        k=k+1;
    end;
    theta_mess(a,1)=mess_roh(k,1);
    E_mess(a,1)=mess_roh(k,2);
end;

% beide Matrizen mit 0 auffüllen: Durch Änderung von f wird auch die Größe
% der Vektoren E_calc, E_mess bei den durchlaufen verändert. Auffüllen
% mit Null ergänzt Werte immer auf 2000 Punkte, damit Vektorgröße konstant.
[q,w]=size(E_calc);
for a=(q+1):1:2000;
    E_calc(a,1)=0;
    E_mess(a,1)=0;
end;

```

```
% Definition der zu minimierenden Funktion Fkt
differenz = (E_calc - E_mess); %differenz mit schritte gewichten!
fkt = differenz;

% Ausgabe alle 60s zur Kontrolle
resnorm_aktuell = sum(differenz.^2);
if mod(toc,60)<2;
    disp(['zeit:'int2str(toc/60) ' ' 'min' ' ' 'Fehlerquadrat='
num2str(resnorm_aktuell)]);
end;
```


A9 MATLAB® Programmcode rippenförmige Rotoren A und B

TaylorDatenFit.m

```

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%% TaylorDatenFit %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%% HAUPTPROGRAMM Modellparameter schätzen %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

tic;

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%% DATEN EINLESEN VORBEREITEN %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

% Exceldatei, die eingelesen werden soll:
readfile='D:\"verzeichnis"\Dateiname.xls';

% Arbeitsblätter, die eingelesen werden sollen:
sheet=["Arbeitsblatt1",
      "Arbeitsblatt2",
      "Arbeitsblatt3",
      "Arbeitsblatt4",
      "Arbeitsblatt5",
      ];

[zeile,spalte]=size(sheet);

for (x=1:1:zeile);

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%% DATEN EINLESEN UND AUFARBEITEN %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

% Daten einlesen
% xlsread('Datei', 'Arbeitsblatt', 'Datenbereich')

theta_mess=xlsread(readfile, sheet(x,1:15), 'C4:C5000');
E_mess     =xlsread(readfile, sheet(x,1:15), 'K4:K5000');

Ta        =xlsread(readfile, sheet(x,1:15), 'Q16:Q16');
Re        =xlsread(readfile, sheet(x,1:15), 'S19:S19');

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%% VORBEREITEN DER ANPASSUNG %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

disp ('');
disp ('*****');
disp (sheet(x,1:15));
disp ('*****');
disp ('');

% Konstanten DGL-System siehe TaylorDGL.m
V_punkt =xlsread(readfile, sheet(x,1:15), 'S7:S7');
n        =xlsread(readfile, sheet(x,1:15), 'T10:T10');
V_reaktor=(xlsread(readfile, sheet(x,1:15), 'T11:T11'))/1e6;
r_a      =xlsread(readfile, sheet(x,1:15), 'Q8:Q8');
r_i      =xlsread(readfile, sheet(x,1:15), 'Q10:Q10');
r_ii     =xlsread(readfile, sheet(x,1:15), 'Q9:Q9');

% Anfangsbedingungen -> Tracerzugabe!
anfangswerte = zeros(1,2*n);
anfangswerte(2) = 1;

disp ('suche startwerte');

% Vorschätzung der Parameter mit genalg
% genetic algorithm toolbox v1.2, University of Sheffield
NIND=5; % Anzahl der Individuen pro Subpopulation
MAXGEN=20; % maximale Anzahl der Generationen
GGAP=1; % Generationskonflikt, wieviele neue Individuen erzeugen
MUTAT=0.1; % Wahrscheinlichkeit einer Mutation
KEEP=0.3; % wieviele Eltern in die nächste Generation übernehmen
SUBPOP=1; % Anzahl der Subpopulationen
PRECI=20; % Genauigkeit der binären Vertretung

SEL_F='rws'; % Name der Selektionsfunktion
% SUS = "Stochastic Universal Sampling"
% rws = "Roulette wheel Selection"

XOV_F='xovsh'; % Name der Rekombinationsfunktion Individuen
% xovsp = "Single Point, suffix rs = Reduced Surrogate"
% xovdp = "Double Point, suffix rs = Reduced Surrogate"
% xovsh = "Shuffle, suffix rs = Reduced Surrogate"

```

```

% recdis = "Discrete Recombination"
% reclin = "Line Recombination"
% recint = "Intermediate Recombination"

MUT_F='mut'; % Name der Mutationsfunktion Individuen
% mut = "Binary and Integer Mutation"

OBJ_F='TaylorFIT_GA'; % Name der (objektiven) Zielfunktion

% Grenzwerte der (objektiven) Zielfunktion
FieldDR= [2e-3 2e-3; 5 5];

% Anzahl der Variablen in Zielfunktion, in OBJ_F definiert
NVAR=size(FieldDR,2);

% Bilde "fielddescription" Matrix
FieldD=[rep([PRECI],[1,NVAR]);...
        FieldDR;...
        rep([1;0;1;1], [1,NVAR])];

% Bilde Population
Chrom=crtbp(NIND, NVAR*PRECI);

% Reset Zählvariable
gen=1;
opt=1;
Best=NaN*ones(MAXGEN+1,1);
Best(1)=1000; %wegen Abbruchbedingung
Lsg=[];

figure;
hold on;

% Iteration Population
while (gen<MAXGEN)&(Best(gen)>3)

    % berechne (objektive) Zielfunktion für Population
    ObjV=feval(OBJ_F,bs2rv(Chrom, FieldD));
    [Best(gen+1) row_opt] = min(ObjV);

    % Sichern der gefundenen Minimas und der zugehörigen Parameter
    if min(ObjV)<= min(Best)
        Parameter_aktuell=bs2rv(Chrom, FieldD);
        Lsg(opt,:)= [min(ObjV) Parameter_aktuell(row_opt,:)];
        opt=opt+1;
    end

    plot(Best,'ro');
    grid on;
    axis ([0 MAXGEN 0 5*Best(gen)]);
    title (['Ta=',int2str(Ta),' ; ', 'Re=',num2str(Re,3)]);
    ylabel ('\Sigma Diff^{ 2} (bestes Individuum)');
    xlabel ('Generation');
    drawnow;

    % Zuteilung Fitness der gesamten Population
    FitnV=ranking(ObjV);

    % wähle Individuen aus der Population
    SelCh=select(SEL_F,Chrom,FitnV,GGAP);

    % rekombiniere erwählte Individuen
    SelCh=recombin(XOV_F, SelCh);

    % mutieren Nachwuchs
    SelCh=mutate(MUT_F, SelCh,[],MUTAT);

    if GGAP>=1
        % berechne (objektive) Zielfunktion für Nachwuchs
        ObjVchild=feval(OBJ_F,bs2rv(SelCh,FieldD));
        % füge Nachwuchs in die Population ein und behalte KEEP Eltern
        Chrom=reins(Chrom,SelCh,SUBPOP,[1 1-KEEP],ObjV,ObjVchild);
    else
        % füge Nachwuchs in die Population und ersetze unfite Eltern
        Chrom=reins(Chrom,SelCh,SUBPOP,[],ObjV);
    end

    gen=gen+1;
end
hold off;

% Startwerte aus Vorschätzung mit GA
p(1)=Lsg(end,2); %beta_i
p(2)=Lsg(end,3); %beta_a

% Grenzen für lsqnonlin beim "Large Scale Algorithmus"
untergrenze=[0 1e-5];
obergrenze=[inf inf];

```

```

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%% START DER ANPASSUNG %%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

r(1)=1e99;
r(2)=1e98;
z=2;

disp ('suche Optimum');
while (r(z-1)>r(z));
    zaehler=1;
    z=z+1;

    %% Randbedingungen für die Anpassung festlegen
    options = optimset ('LargeScale', 'off', ...
        'LevenbergMarquardt', 'on', ...
        'Diagnostics', 'off', ...
        'Display', 'off', ...
        'MaxFunEvals', 10, ...
        'MaxIter', 10, ...
        'TolFun', 1e-100, ...
        'TolX', 1e-100, ...
        'DiffMaxChange', 1e100, ...
        'DiffMinChange', 1e-100 ...
    );

    %"Normierung" damit Parameter bei lsqnonlin gleich behandelt werden
    para0_norm=p./p;

    [paraopt_norm,r(z)]=lsqnonlin('TaylorFITlsq',para0_norm,[],[], options);

    % Übergabe/Entnormierung Parameter-Startwerte nächste Iteration
    p_all(z,:)=paraopt_norm.*p;
    p=p_all(z,:);

end;

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%% AUSGABE VORBEREITEN %%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

beta_i_opt=abs(p_all(z-1,1));
beta_a_opt=abs(p_all(z-1,2));

% Lösen des DGL-Systems
[theta, y]=ode23t('TaylorDGL',[0 10],anfangswerte,[],V_punkt,
beta_i_opt,beta_a_opt,n,V_reaktor,r_a,r_i,r_ii);

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%% AUSGABE %%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

% Ausgabe der Verweilzeitverteilung E_mess und E_calc
V_zelle=V_reaktor/n;
V_a=0.5*V_zelle;

% Anfangsbedingung beachten -> Tracerzugabe!!!
E_calc=V_reaktor/V_a*y(:,(2*n));

figure;
hold on;
plot (theta,E_calc, '-r', 'Linewidth',2);
A=size(theta_mess);
schritt=int16(A(1)/100);
plot (theta_mess(1:schritt:end),E_mess(1:schritt:end), 'bs');
grid on;
axis ([0 5 0 2]);
title (['Ta=', int2str(Ta), ' ; ', 'Re=', num2str(Re,3)]);
ylabel ('E_{\theta}');
xlabel ('\theta');
legend ('Modell', 'Messdaten');
hold off;

% Ausgabe der angepassten Parameter
Daten(x,1)= Ta;Daten(x,2)=Re;Daten(x,3)=beta_i_opt;
Daten(x,4)=beta_a_opt;
Daten (x,5)=r(z-1);

disp ('*****');
disp (['resnorm=' num2str(r(z-1))]);
disp ('*****');
disp (['Ta=' int2str(Ta) ' ** ' 'Re=' num2str(Re,3)]);
disp ('*****');
disp (['beta_i=' num2str(beta_i_opt) 'm/s' '**'
'beta_a=' num2str(beta_a_opt) 'm/s']);
disp ('*****');
disp (' ');
disp (' ');

```

```

end;

% Speichern aller angepassten Parameter
% Exceldatei, die geschrieben werden soll
writefile='D:\Verzeichnis\'Dateiname'.xls';

%
% Daten = | Ta | Re | beta_i | beta_a | resnorm |
%         | ... | ... | ... | ... | ... |
%

xlswrite (writefile, Daten);

% Ausgabe aller angepassten beta
figure;
subplot(2,1,1);
semilogx (Daten(:,1), Daten(:,3), '-gd','Linewidth',2,...
          'MarkerEdgeColor','k',...
          'MarkerFaceColor','g',...
          'Markersize',5);

grid on;
axis ([1e1 1e4 0 1e-2]);
title (['Re=',num2str(Re,3)]);
ylabel ('\beta_i [m/s]');
xlabel ('Ta');
subplot(2,1,2);
semilogx (Daten(:,1), Daten(:,4), ':ys','Linewidth',2,...
          'MarkerEdgeColor','k',...
          'MarkerFaceColor','y',...
          'Markersize',5);

grid on;
axis ([1e1 1e4 0 1e-2]);
title (['Re=',num2str(Re,3)]);
ylabel ('\beta_a [m/s]');
xlabel ('Ta');

clear all;

```

TaylorDGL.m

```

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%% TaylorDGL %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%% DGL-SYSTEM FÜR rippenförmige TAYLOR-VORTEX REAKTOR %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%% (1 Zone Modell) %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

% Funktion, welche in den ODE-Solver eingelesen wird:
function dydtheta=TaylorDGL(theta,y,flag,V_punkt,beta_i,beta_a,n,V_reaktor,
r_a,r_i,r_ii);

% Konstanten DGL-System:
% V_punkt: Volumenstrom durch Reaktor [m^3/s]
% n: Anzahl der Mischzellen [-]
% V_reaktor: Reaktorvolumen [m^3]

% V_zelle: Volumen Mischzelle [m^3]
% r_a: Radius Rotor außen [m]
% r_i: Radius Rotor innen [m]
% r_ii: Radius Rotor Rippe [m]

% Parameter DGL-System:
% beta_i: Stofftransportkoeffizient in Mischzellen [m/s]
% beta_a: Stofftransportkoeffizient zwischen Mischzellen [m/s]

V_zelle=V_reaktor/n;
A_a=pi*(r_a^2-r_ii^2);
A_iz=pi*(r_a^2-r_i^2);
V_a=0.5*V_zelle;

K1=(A_iz*beta_i*V_reaktor)/(V_a*V_punkt);
K3=V_reaktor/V_a;
K4=(A_a*beta_a*V_reaktor)/(V_a*V_punkt);

% Variablen DGL-System:
% t: Zeit
% ci: Konzentration in der n-ten Mischzelle
%
% Normierte Variablen DGL-System:
% c0: Konzentration Mischzelle1,innen bei t=0
% yi = ci / c0
% theta = V_punkt/V_reaktor * t

```

```

% DGL-System für n Mischzellen

%      |Mischzelle 1,u|   | (1) |
%      |Mischzelle 1,o|   | (2) |
% y =  |  ...  |         | ... |
%      |Mischzelle n,u|   |2*n-1|
%      |Mischzelle n,o|   |2*n|

dydtheta = zeros (size(y));
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%% Mischzelle 1,u:
dydtheta(1)=-k1*(y(1)-y(2));
%% Mischzelle 1,o:
dydtheta(2)=-k3*y(2)-k4*(y(2)-y(3))-k1*(y(2)-y(1));
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%% Mischzelle k bis (n-1),u:
for a = 3:2:(2*n-3);
    dydtheta(a)=k3*y(a-1)-k4*(y(a)-y(a-1))-k1*(y(a)-y(a+1));
end;
%% Mischzelle k bis (n-1),o:
for a = 4:2:(2*n-2);
    dydtheta(a)=-k3*y(a)-k4*(y(a)-y(a+1))-k1*(y(a)-y(a-1));
end;
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%% Mischzelle n,u:
dydtheta(2*n-1)=k3*y(2*n-2)-k4*(y(2*n-1)-y(2*n-2))-k1*(y(2*n-1)-y(2*n));
%% Mischzelle n,o:
dydtheta(2*n)=-k3*y(2*n)-k1*(y(2*n)-y(2*n-1));

```

TaylorFIT_GA.m

```

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%% TAYLORFIT_GA %%%%%%%%%%%%%%
%% Differenz bilden zwischen Messdaten und Modell %%%%%%%%%%%%%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

% Funktion Fkt welche in lsqnonlin eingelesen wird
function Fkt=TaylorFIT_GA(para);

global theta_mess anfangswerte E_mess zaehler v_punkt n v_reaktor r_a r_i r_ii p;

Fkt=[];
count=0;
[NIND NPARAM]=size(para);

while count<NIND

    count=count+1;

    % DGL_Löser
    beta_i=para(count,1);
    beta_a=para(count,2);

    [theta,y]=ode23t('TaylorDGL',theta_mess,anfangswerte,[],v_punkt,beta_i,beta_a,n,v_reakt
or,r_a,r_i,r_ii);

    % Berechnete Verweilzeitverteilung E_calc
    v_zelle=v_reaktor/n;
    v_a=0.5*v_zelle;

    % Anfangsbedingung beachten -> Tracerzugabe!!!
    E_calc=v_reaktor/v_a*y(:,(2*n));

    % Definition der zu minimierenden Funktion Fkt
    differenz=E_calc-E_mess;
    Fkt_IND=sum(differenz.^2);
    Fkt=[Fkt;Fkt_IND];

end;

```

TaylorFITlsq.m

```

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%% TAYLORFITlsq %%%
%%% Differenz bilden zwischen Messdaten und Modell %%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

% Funktion Fkt welche in lsqnonlin eingelesen wird
function Fkt=TaylorFITlsq(para0_norm);

global theta_mess anfangswerte E_mess zaehler V_punkt n V_reaktor r_a r_i r_ii p;

% DGL_Löser
para=abs(para0_norm.*p);

beta_i=para(1);
beta_a=para(2);

[theta,y]=ode23t('TaylorDGL',theta_mess,anfangswerte,[],V_punkt,beta_i,
beta_a,n,V_reaktor,r_a,r_i,r_ii);

% Berechnete Verweilzeitverteilung E_calc
V_zelle=V_reaktor/n;
V_a=0.5*V_zelle;

% Anfangsbedingung beachten -> Tracerzugabe!!!
E_calc=V_reaktor/V_a*y(:,(2*n));

% Definition der zu minimierenden Funktion Fkt
differenz=E_calc-E_mess;
Fkt=differenz;

% Ausgabe alle 60s zur Kontrolle
resnorm_aktuell=sum(differenz.^2);
if mod(toc,60)<0.5;
    disp(['Zeit:'int2str(toc/60) '''min'''
'Fehlerquadrat=' num2str(resnorm_aktuell)]);
end;

```

A10 Abschätzung der Dispersionszahl \mathcal{D} einer Rührkesselkaskade

Für eine ideale Rührkesselkaskade gilt:

$$\sigma_{\Theta}^2 = \frac{1}{N} \quad (7-28)$$

mit σ_{Θ}^2 Standardabweichung der normierten Verweilzeitverteilung E_{Θ} [-]
 N Anzahl der Rührkessel einer Kaskade [-]

Nach dem axialen Dispersionsmodell gilt für ein geschlossenes System:

$$\sigma_{\Theta}^2 = 2\mathcal{D} - 2\mathcal{D}^2 \left(1 - e^{-\mathcal{D}^{-1}}\right) \quad (7-29)$$

mit σ_{Θ}^2 Standardabweichung der normierten Verweilzeitverteilung E_{Θ} [-]
 \mathcal{D} Dimensionslose Dispersionszahl [-]

Für geringe Dispersion kann aus (7-28) und (7-29) die Dispersionszahl \mathcal{D}_{RKK} einer Rührkesselkaskade abgeschätzt werden.

$$\mathcal{D}_{\text{RKK}} = \frac{1}{2} - \sqrt{\frac{1}{4} - \frac{1}{2N}} \quad (7-30)$$

mit N Anzahl der Rührkessel einer Kaskade [-]

A11 Bestimmung der spezifischen Grenzleitfähigkeiten κ_0 und κ_∞

Da bei der alkalischen Verseifung von EtAc (vergleiche (3-31)) die Leitfähigkeitsbeiträge von EtOH und EtAc vernachlässigbar sind ($\Lambda_{\text{EtAc}} \approx \Lambda_{\text{EtOH}} \approx 0$), könnten theoretisch die spezifischen Grenzleitfähigkeiten $\kappa_0(t=0)$ und $\kappa_\infty(t \rightarrow \infty)$ direkt mit wässrigen NaOH- bzw. NaAc-Lösungen bestimmt werden (siehe (7-31)).

$$\begin{aligned} \kappa_0 &= \Lambda_{\text{EtAc}} c_{\text{EtAc},0} + \Lambda_{\text{Na}^+} c_{\text{Na}^+,0} + \Lambda_{\text{OH}^-} c_{\text{OH}^-,0} \approx \Lambda_{\text{Na}^+} c_{\text{Na}^+,0} + \Lambda_{\text{OH}^-} c_{\text{OH}^-,0} \\ \kappa_\infty &= \Lambda_{\text{EtOH}} c_{\text{EtOH},\infty} + \Lambda_{\text{Na}^+} c_{\text{Na}^+,0} + \Lambda_{\text{Ac}^-} c_{\text{Ac}^-,0} \approx \Lambda_{\text{Na}^+} c_{\text{Na}^+,0} + \Lambda_{\text{Ac}^-} c_{\text{Ac}^-,0} \end{aligned} \quad (7-31)$$

mit κ spezifische Leitfähigkeit in S/m c_i Konzentration Spezies i in mol/m³
 Λ_i molare Leitfähigkeit Spezies i in S·m²/mol

Das EtAc und das EtOH beeinflussen jedoch die dielektrischen Eigenschaften der Lösung im untersuchten Konzentrationsbereich so stark, dass von ihnen dennoch ein bedeutender Einfluss auf die spezifische Leitfähigkeit κ ausgeht.

So mussten die spezifischen Grenzleitfähigkeiten κ_0 und κ_∞ mittels Kalibrierexperimenten bestimmt werden (siehe Bild 7-4).

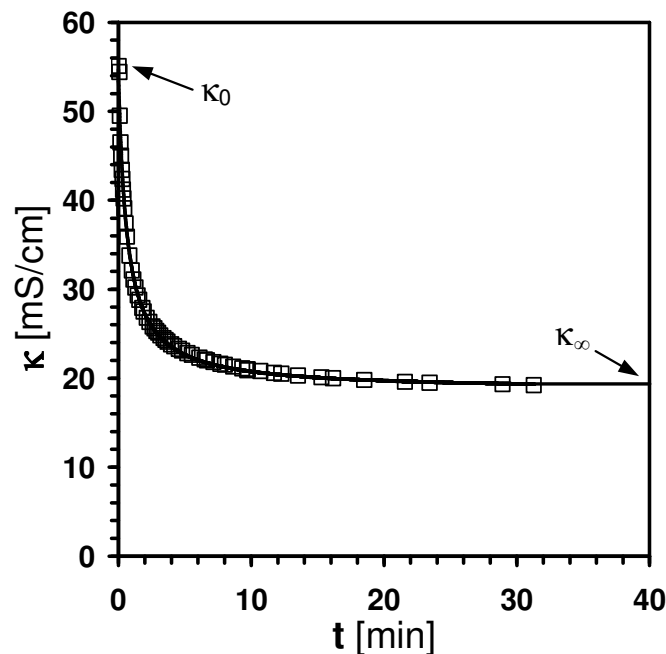


Bild 7-4: Ausgewählte Messpunkte (\square) der spezifischen Leitfähigkeit κ und der mittels nichtlinearer Regression bestimmte Kurvenverlauf (—) bei einem Kalibrierexperiment ($c_0=0,35$ mol/L; $\vartheta=22^\circ\text{C}$).

Hierfür wurden je 100 mL der NaOH- und EtAc-Eduktlösung (Konzentration $c_0=c_{\text{OH}^-}=c_{\text{EtAc}}$) in verschließbaren Gewindeflaschen (250 mL) in einem Wasserbad (Bad K, Thermostat F3 digital, HAAKE) temperiert und dann zum Zeitpunkt $t=0$ augenblicklich unter intensivem Rühren (600 U/min, Magnetrührer MR 3001 K, HEIDOLPH) zusammengeschüttet. Anschließend wurde die Reaktionslösung weiterhin gerührt und temperiert, wobei anhand der Leitfähigkeitsmesszelle (Konduktometer: Cond 340i, Messzelle: TetraCon 325, WTW) die isotherme Temperatur ϑ und die spezifische Leitfähigkeit κ der Reaktionslösung aufgezeichnet wurde (siehe Bild 7-4). Diese Kalibrierexperimente mussten entsprechend dem untersuchten Konzentrations- ($0,05 \text{ mol/L} < c_0 < 0,35 \text{ mol/L}$) bzw. Temperaturbereich ($6 \text{ }^\circ\text{C} < \vartheta < 30 \text{ }^\circ\text{C}$) durchgeführt werden.

Anhand einer nichtlinearen Regression der Leitfähigkeitsmesswerte κ (NLSF Rational0, OriginPro 7.5G SR5) waren schließlich die entsprechenden spezifischen Grenzleitfähigkeiten κ_0 und κ_∞ über die Regressionskoeffizienten numerisch zugänglich (siehe (7-32) und Bild 7-5).

$$\kappa = \frac{B + C t}{1 + A t} \quad (7-32)$$

mit $B=\kappa_0$; $C/A=\kappa_\infty$

- | | | | |
|---|-----------------------------------|-----------------|--|
| A | Regressionskoeffizient in 1/s | κ_0 | spezifische Grenzleitfähigkeit ($t=0$) in S/m |
| B | Regressionskoeffizient in S/m | κ_∞ | spezifische Grenzleitfähigkeit ($t \rightarrow \infty$) in S/m |
| C | Regressionskoeffizient in S/(m·s) | | |

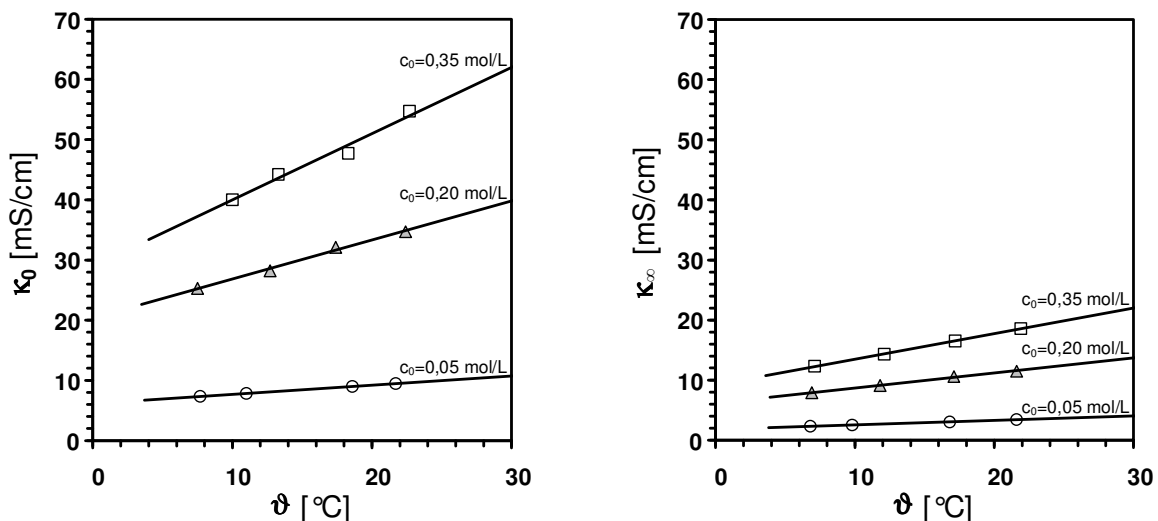


Bild 7-5: Abhängigkeit der Grenzleitfähigkeiten κ_0 und κ_∞ von der äquimolaren Eduktkonzentration c_0 und der Temperatur ϑ .

A12 Zusammenhang Umsatz und Dispersionszahl

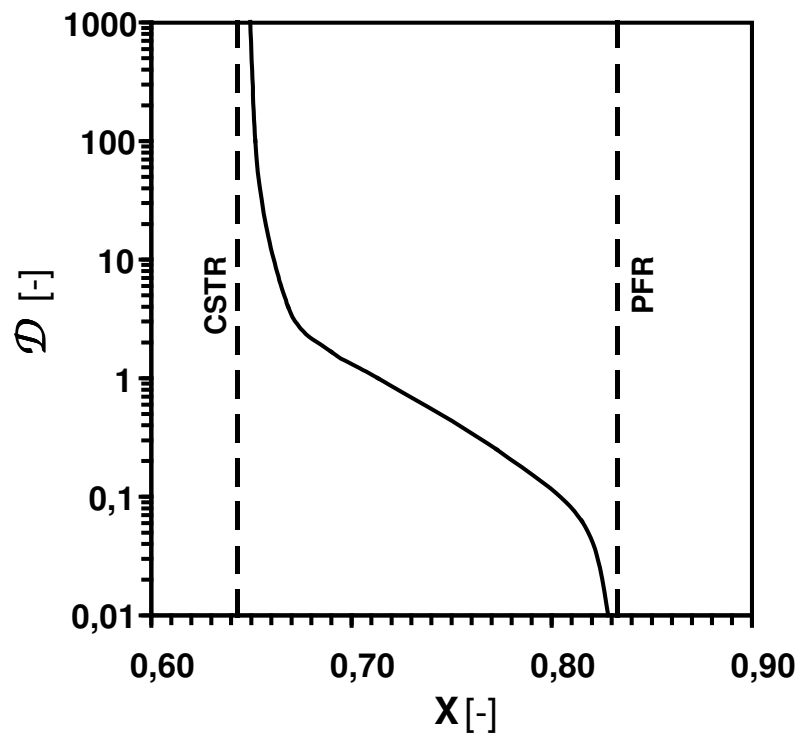


Bild 7-6: Abhängigkeit des Umsatzes X einer äquimolaren Reaktion zweiter Ordnung bei $Da_T=5$ von der dimensionslosen Dispersionszahl \mathcal{D} . Als Verweilzeitmodell wurde exemplarisch das axiale Dispersionsmodell gewählt (siehe Kapitel 3.2.4).

Ein Taylor-Vortex Reaktor besteht prinzipiell aus einem Hohlzylinder und einem dazu konzentrisch angeordneten Innenzylinder. Bei vielen Anwendungen befindet sich der äußere Hohlzylinder (Stator) in Ruhe, während durch den gleichmäßig rotierende Innenzylinder (Rotor) Ringwirbelströmungen im Ring-spalt gebildet werden. Als ungeeignet für viele reaktionstechnische Anwendungen stellt sich die Mischcharakteristik in einem Taylor-Vortex Reaktor dar. Ein Ansatz die Vermischung zu beeinflussen, ist es, von rein zylindrischen Rotoren Abstand zu nehmen.

In der vorliegenden Arbeit wurde der Einfluss der Zylindergeometrie (zylindrisch; rippenförmig) auf die Mischcharakteristik eines kontinuierlich durchströmten Taylor-Vortex Reaktors untersucht. Hierfür wurde die Makro- und Mikromischung mittels Spurstoffversuchen, Messung des Röhrenergieeintrages und einer chemischen Testreaktion bestimmt.

ISBN: 978-3-86644-430-0

