

Experimentelle Analyse der Einzeltropfenkoaleszenz in Flüssig/flüssig-Systemen mittels akustischer Levitation (MBFSt-Kennziffer: 3766)

Dr.-Ing. Jörn Villwock

Technische Universität Berlin, Fachgebiet Verfahrenstechnik
MAR 2-1, Marchstraße 23, 10587 Berlin (joem.villwock@tu-berlin.de)

1. Aufgabenstellung und Zielsetzung

Für den Betrieb und die Auslegung von chemischen Kontaktapparaten, wie z.B. Extraktionskolonnen, ist die Kenntnis der verfügbaren Phasengrenzfläche essenziell. In Flüssig/flüssig-Systemen ergibt sich die Phasengrenzfläche aus der Tropfengrößenverteilung (TGV) und wird in der Praxis häufig anhand von empirischen Korrelationen für ein spezifisches Stoffsystem sowie gegebene Apparategeometrien und Betriebsbedingungen ermittelt. Ein Ansatz zur Quantifizierung der TGV für die Anwendung auf unterschiedliche Stoffsysteme sind Populationsbilanzen. Dort sind die die TGV bestimmenden Phänomene Tropfenbruch und -koaleszenz jeweils durch unterschiedliche physikalische Submodelle implementiert. Vor allem die Koaleszenz bzw. die Vielzahl der sie beeinflussenden Stoff- und Prozessparameter sind allerdings aufgrund der Komplexität bisher nur unzureichend verstanden und abgebildet. Deshalb wurden bereits umfangreiche grundlegende Untersuchungen zur binären Tropfen-Tropfen-Koaleszenz in O/W-Systemen durchgeführt. Dabei wurde die Koaleszenz eines fixierten mit einem aufsteigenden Tropfen beobachtet und detailliert analysiert [Kamp und Kraume, 2014; Villwock et al., 2014; Kamp et al., 2016; Villwock, 2019]. Ein wichtiger Nachteil der verwendeten Aufbauten ist der Einfluss der Kanülen auf den Koaleszenzvorgang durch die Fixierung eines Tropfens und die Stützwirkung der Kanüle.

Innerhalb dieses Forschungsvorhabens soll ein Versuchsaufbau etabliert werden, welcher auf dem Prinzip der akustischen Levitation basiert, um diesen Nachteil zukünftig zu eliminieren. Als Voraussetzung dafür müssen die Tropfen zuverlässig mit reproduzierbaren Volumina und präzise im Knotenpunkt der stehenden Welle injiziert werden. Außerdem müssen sie ohne Eigenschwingungen und überlagertes Strömungsfeld fixiert und schließlich in Reihenuntersuchungen rückstandslos abgezogen werden. Zusätzlich soll in der geplanten Koaleszenzzelle der Einfluss von Stofftransport auf den Koaleszenzvorgang untersucht werden können, weshalb vorbereitende Untersuchungen zum Stofftransport (von dispers nach kontinuierlich, $d \rightarrow k$) an levitierenden Einzeltropfen durchgeführt werden. Weiterführend soll auch der Einfluss periodischer, niederfrequenter Eigenschwingungen auf die Einzeltropfenkoaleszenz analysiert werden. Basierend auf den Erkenntnissen dieses Forschungsvorhabens wird der Versuchsaufbau zukünftig auf insgesamt drei Levitationsachsen erweitert werden (siehe Abbildung 1), um dynamische Einzeltropfenkoaleszenzuntersuchungen zu ermöglichen.

2. Durchgeführter Arbeitsplan

Es wurde ein einachsiger Versuchsstand aufgebaut, um automatisierte Reihenuntersuchungen zur akustischen Levitation von einzelnen, dispersen Toluoltropfen in einer kontinuierlichen Wasserphase durchführen zu können. Die realisierte Apparatur ist in Abbildung 2 dargestellt. Der Versuchsstand wurde so konzipiert und dahin optimiert, dass der Tropfen nahezu vibrationsfrei levitiert und eine praktisch ruhende, kontinuierliche Phase um den Tropfen vorliegt. Das Strömungsfeld wurde mittels Particle-Image-Velocimetry (PIV) und Regenbogen-Schlieren-Messtechnik untersucht. Zudem wurden die Tropfeninjektion und -entnahme automatisiert und die Bilddatenauswertung der Hochgeschwindigkeitskamera fortlaufend weiterentwickelt. Insgesamt konnte die Messzelle in allen Aspekten weiterentwickelt und verbessert werden und bildet das Fundament für die geplante Koaleszenzzelle, mit der es perspektivisch möglich sein soll, reproduzierbare Untersuchungen zur Einzeltropfenkoaleszenz mit überlagertem Stofftransport durchführen zu können, welche nicht vom aufgeprägten Ultraschallfeld beeinflusst werden

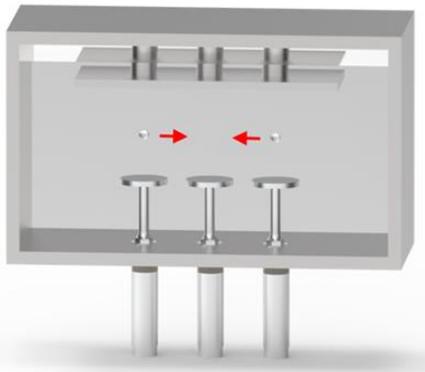


Abbildung 1: Schema der geplanten dreiaxigen Koaleszenzzelle

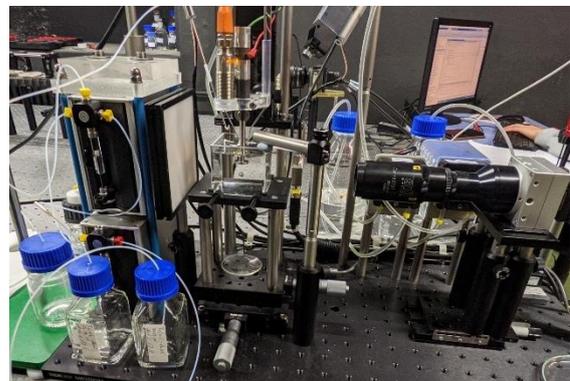


Abbildung 2: Realisierte einachsige Messzelle

3. Ergebnisse

In der einachsigen Messzelle wurden drei maßgebliche Punkte, welche durch die akustische Levitation hervorgerufen oder beeinflusst werden können, analysiert: Tropfenschwingung bzw. -stabilität während einer Messung, die Langzeitstabilität des Tropfens und das umgebende Strömungsfeld. Diese Parameter haben einen wesentlichen Einfluss auf die geplanten umfangreichen Stoffübergangs- und Einzeltropfenkoaleszenzmessungen.

3.1. Tropfenstabilität

Die fixierten Tropfen können frontal durch eine Hochgeschwindigkeitskamera, gekoppelt mit einem telezentrischen Objektiv, auf einem 8 mm x 8 mm Ausschnitt beobachtet werden. Der Tropfendurchmesser kann reproduzierbar im Bereich

1 mm - 7 mm injiziert werden. In Abbildung 3 ist exemplarisch das transiente Verhalten der Levitation eines Toluoltropfens mit 3 mm Durchmesser bei einer Bildaufnahme rate von 500 Hz über 10 s veranschaulicht. Dargestellt ist die Auslenkung des ermittelten Tropfenschwerpunkts in x-Richtung (horizontal) und y-Richtung (vertikal).

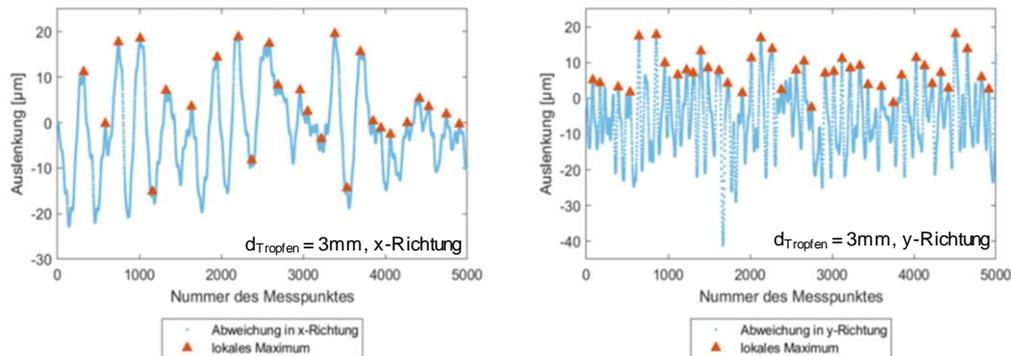


Abbildung 3: Auslenkung des Tropfenschwerpunkts über 10 s (Toluol/Wasser, $d_{\text{Tropfen}}=3\text{ mm}$; Bildaufnahme rate 500 Hz)

Die maximalen Auslenkungen des Tropfens liegen insgesamt innerhalb von $\pm 30\ \mu\text{m}$. Durch die Vermeidung von Gasbläschen in der Flüssigkeit und die Identifikation eines optimalen Betriebspunktes soll die Auslenkung perspektivisch noch weiter minimiert werden. Der optimale Betriebspunkt ist von der Resonanzfrequenz des Schallgebers vorgegeben, die u.a. von der Füllhöhe, dem Reflektorabstand sowie dem Stoffsystem und der Temperatur bestimmt wird.

3.2. Langzeitstabilität

Zur Untersuchung der Langzeitstabilität der levitierenden Tropfen wurden Toluoltropfen in Wasser ohne Übergangskomponente über Zeiträume von bis zu 24 h in der Messzelle fixiert. Initial wurde ein Tropfen im Knotenpunkt fixiert und die Bildaufnahme mit 10 Hz gestartet. Mittels der aufgenommenen Bilder wurde die Position des Schwerpunktes und das Tropfenvolumen bestimmt. Eine Langzeitmessung über einen Zeitraum von 16 h ist beispielhaft in Abbildung 4 dargestellt. In den ersten 100 min ist ein Einlaufverhalten des Systems erkennbar, für das größere Auslenkungen charakteristisch sind. Über den Messzeitraum vermindert sich aufgrund von Verdunstung die Füllhöhe in der Messzelle, wodurch sich der Tropfenschwerpunkt langsam nach oben verschiebt. Bevor der Tropfen den Knotenpunkt verlässt, neigt er zu hohen Auslenkungen in x- und y-Richtung. Um diese Tropfenwanderung bei Langzeitmessungen zu verhindern und das System stabil zu halten, wurde eine automatisierte Zudosierung der kontinuierlichen Phase realisiert. Ein geschlossenes System ist aufgrund der vielen notwendigen Einbauten nicht realisierbar.

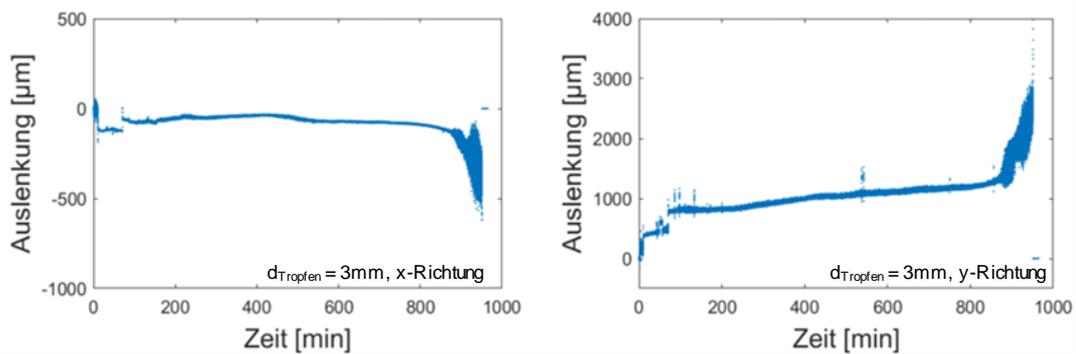


Abbildung 4: Auslenkung des Tropfenschwerpunkts über 16 h (Toluol/Wasser, $d_{\text{Tropfen}}=3\text{mm}$)

3.3. Strömungsfeld um den Tropfen

Zur Charakterisierung des Strömungsfelds um den Tropfen wurden PIV-Messungen und Regenbogen-Schlieren-Messungen in der einachsigen Messzelle durchgeführt. Die PIV-Messungen (Tracerpartikel: Rhodamin B ($d_{\text{Tracer}}=20\text{-}50\ \mu\text{m}$)) wurden in verschiedenen Konfigurationen im System Toluol/Wasser ohne Übergangskomponente durchgeführt. In den Messungen zeigte sich, dass die Tracerpartikel vom Gor'kov-Potential des Ultraschallfelds beeinflusst werden und dadurch in den Antiknoten fixiert werden, wie in Abbildung 5 anhand der lokalen Ansammlungen der rosafarbenen Partikel ersichtlich ist. Dementsprechend sind PIV-Messungen zur Charakterisierung des Strömungsfelds in diesem System nicht zielführend, da die Partikel maßgeblich durch das Ultraschallfeld und nicht allein durch die Strömung beeinflusst werden. Die Partikelbewegung in Richtung des Antiknoten konnte nicht visualisiert werden.

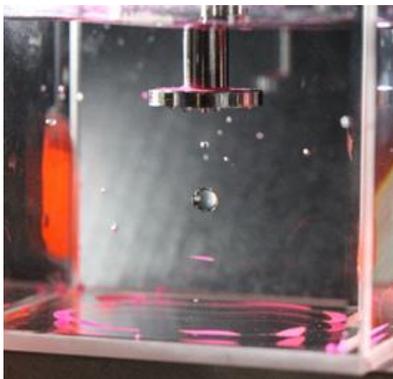


Abbildung 5: Aufnahme der PIV-Messung (Toluol/Wasser; Tracerpartikel: Rhodamin B (pink))

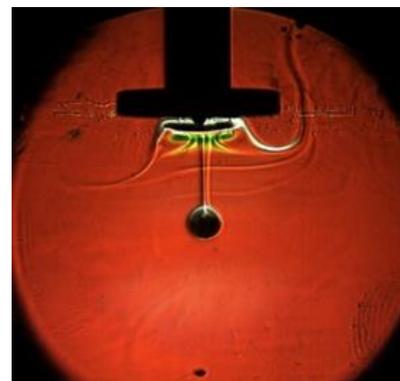


Abbildung 6: Aufnahme der Regenbogen-Schlieren-Messtechnik (Toluol/Aceton/Wasser, Stofftransportrichtung $d \rightarrow k$)

Ein nicht invasiver Ansatz der qualitativen Charakterisierung des Strömungsfelds um den Tropfen ist die Nutzung der Regenbogen-Schlieren-Messtechnik. Hierfür wird der Toluoltropfen in Wasser levitiert, wobei Toluol und Wasser jeweils im Vorfeld miteinander gesättigt wurden. Als Übergangskomponente liegt im Toluoltropfen etwas Aceton (Stofftransportrichtung $d \rightarrow k$) vor. Nach dem Injizieren tritt in diesem Stoffsystem zunächst starke Marangoni-Konvektion auf, welche nach einigen

Sekunden verschwindet und es tritt anschließend Stofftransport mit freier Konvektion um den Tropfen auf. In Abbildung 6 ist eine Momentaufnahme dargestellt. Lediglich im Bereich des Schallgebers sind Bewegungen, ersichtlich anhand der gelb-grünen Färbung, zu erkennen. Die Konzentrationsfronten, welche als horizontale geschwungene Linien zwischen Schallgeber und Tropfen sichtbar sind, bewegen sich langsam und ohne Verwirbelungen in Richtung Tropfen. Die beobachtete Ausprägung der Konzentrationsfronten und der freien Konvektion zeigt, dass das Schallfeld in der Nähe des Tropfens keine Strömungen induziert.

4. Fazit

Im Rahmen des Forschungsvorhabens konnte nachgewiesen werden, dass die akustische Levitation von organischen Einzeltropfen in Wasser sehr gut für fundamentale Untersuchungen von binären Koaleszenz- und Stofftransportvorgängen in Flüssig/flüssig-Systemen geeignet ist. Durch die vorgestellten experimentellen Untersuchungen konnte das aufgebaute Messsystem in Bezug auf Tropfenstabilität, umgebendes Strömungsfeld und Langzeitstabilität charakterisiert und optimiert werden. Die Ergebnisse der Messungen legen nahe, dass der levitierende Tropfen nicht vom aufgeprägten Ultraschallfeld beeinflusst wird, was dennoch in den weiterführenden experimentellen Untersuchungen weiter evaluiert wird. Mit der entwickelten und optimierten Messzelle werden aktuell Stofftransportuntersuchungen an Einzeltropfen durchgeführt, deren Ergebnisse mit analogen Messungen mit an Kapillaren hängenden Tropfen verglichen werden. Mit den gewonnenen Erkenntnissen und Erfahrungen wird anschließend die akustische Koaleszenzzelle weiter geplant, aufgebaut und letztlich auf drei Levitationsachsen erweitert.

Dank des Stipendiums der Max-Buchner-Forschungstiftung konnte der Aufbau und die Weiterentwicklung des Versuchsstandes zur akustischen Levitation von organischen Einzeltropfen in Wasser maßgeblich vorangetrieben werden. Es konnte wertvolles Wissen zu dieser Messtechnik gesammelt werden, das auch in weitere geplante, wissenschaftliche Vorhaben und Projektanträge einfließt.

5. Literatur

- Kamp, J., Kraume, M. (2014). Influence of drop size and superimposed mass transfer on coalescence in liquid/liquid dispersions – Test cell design for single drop investigations. *Chemical Engineering Research and Design* 92, 635–643.
- Kamp, J., Kraume, M. (2016). From single drop coalescence to droplet swarms - Scale-up considering the influence of collision velocity and drop size on coalescence probability. *Chemical Engineering Science* 156, 162–177.
- Villwock, J., Gebauer, F., Kamp, J., Bart, H.-J., Kraume, M. (2014). Systematic analysis of single droplet coalescence. *Chemical Engineering and Technology* 37, 1103–1111.
- Villwock, J. (2019), Systematische Analyse des Koaleszenzverhaltens von zweiphasigen Flüssigsystemen bei Ionenzugabe. Dissertation, TU Berlin.