

**Abschlussbericht für die
Max-Buchner-Forschungstiftung**
Forschungsprojekt 2842
Förderzeitraum 01.07.2009-30.06.2011

Modellierung der Rektifikation viskoser Systeme in Packungskolonnen

Dipl.-Ing. Anna Janzen, Prof. Dr.-Ing. habil. Eugeny Kenig
Lehrstuhl für Fluidverfahrenstechnik, Universität Paderborn

Abstract

Im Rahmen dieser Arbeit wurde basierend auf tomographischen Untersuchungen der Flüssigkeitsströmung in strukturierten Packungen ein neuer Modellierungsansatz zur Beschreibung der Rektifikation viskoser Systeme entwickelt. Die tomographischen Ergebnisse zeigten, dass die Flüssigkeit in Form von Filmen und Flüssigkeitsansammlungen an Kontaktstellen der gewellten Packungslagen sowie in gefüllten Packungskanälen fließt. Dabei wird der Anteil an gefüllten Kanälen mit steigender Flüssigkeitsbelastung und Viskosität größer. Diese Beobachtungen wurden im Modell basierend auf hydrodynamischen Analogien zwischen der realen Strömung und einfachen fluiddynamischen Elementen berücksichtigt. Es konnte gezeigt werden, dass der neue Modellierungsansatz für die Beschreibung von Stoffsystemen mit nicht-filmartigen Strömungsverhalten in Kolonnen mit strukturierten Packungen geeignet ist.

Einleitung

Strukturierte Packungen werden häufig als Einbauten in Rektifikationskolonnen eingesetzt, da sie sich besonders durch einen niedrigen Druckverlust und eine hohe Trennleistung auszeichnen. Die Performance einer Packungskolonne hängt dabei von der Packungsgeometrie und dem Betriebsbereich, aber auch von dem eingesetzten Stoffsystem ab. So bestimmen Stoffeigenschaften wie Benetzungswinkel und Oberflächenspannung die effektive Austauschfläche zwischen der Gas- und Flüssigphase. Die Viskosität der flüssigen Phase hat einen entscheidenden Einfluss sowohl auf die Fluiddynamik als auch auf die Trennleistung. So haben Böcker et al.

[Boe04] zeigt, dass mit steigender Viskosität der Flutpunkt zu geringeren Gasbelastungen verschoben wird und die Trennleistung abnimmt. Die Ursache hierfür wird in der Strömungsart der viskosen Flüssigkeit durch die Packung vermutet. Böcker et al. [Boe04] haben beobachtet, dass bei höherer Viskosität die Packung schlechter benetzt wird und die Flüssigkeit in Form von Strängen fließt.

Gängige Korrelationen zur Berechnung der Trennleistung von Packungskolonnen werden hauptsächlich an Messdaten mit niedrigviskosen Systemen angepasst [Boe04] und können das Trennverhalten von Systemen, deren Stoffparametern sich stark von den Standardtestsystemen unterscheiden, nicht wiedergeben. Ziel dieser Arbeit ist die Entwicklung eines neuen Modellierungsansatzes basierend auf hydrodynamischen Analogien zwischen der tatsächlichen Strömung viskoser Flüssigkeiten in strukturierten Packungen und vereinfachten Strömungsformen.

Experimentelle Untersuchungen

Voraussetzung für die korrekte Beschreibung von Trennverfahren in strukturierten Packungen ist das Verständnis der Strömungsphänomene in den Phasen innerhalb der Kolonne. Eine Möglichkeit diese nicht-invasiv zu untersuchen ist die Röntgen-Tomographie. Das Ergebnis solcher Messungen sind Querschnittsbilder der berieselten Packung, in denen die drei Phasen gasförmig, flüssig und fest deutlich erkennbar sind, so dass man bei der Bildanalyse den Anteil und die Verteilung der Flüssigkeit im Querschnitt sowie die Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit bestimmen kann.

Tomographische Untersuchungen einer Packungskolonne wurden an der Universität Liege durchgeführt. Die Versuchsanordnung besteht dort aus einem Tomographen, dessen Strahlenquelle/Detektor-System in der Höhe verstellbar ist. Vermessen wurde eine Kolonne mit einem Durchmesser von 100mm, die mit der Packung Mellapak 752plus gefüllt ist. Die spezifische Oberfläche dieser Packung beträgt $500\text{m}^3/\text{m}^2$. Als Stoffsystem wurde Wasser/Luft gewählt, wobei die Viskosität der Flüssigkeit durch Zugabe von Glycerin variiert wurde. Messungen wurden bei verschiedenen Flüssigkeitsbelastungen auf einer Packungshöhe von insgesamt 640mm im Abstand von 10mm durchgeführt.

Der Flüssigkeitsinhalt (Hold-up) und die Gas/Flüssig-Phasengrenzfläche wurden für alle Querschnittsbilder bestimmt. Aus den axialen Profilen wurde ein Mittelwert für die gesamte Kolonne berechnet. Die Ergebnisse sind in den folgenden Abbildungen dargestellt.

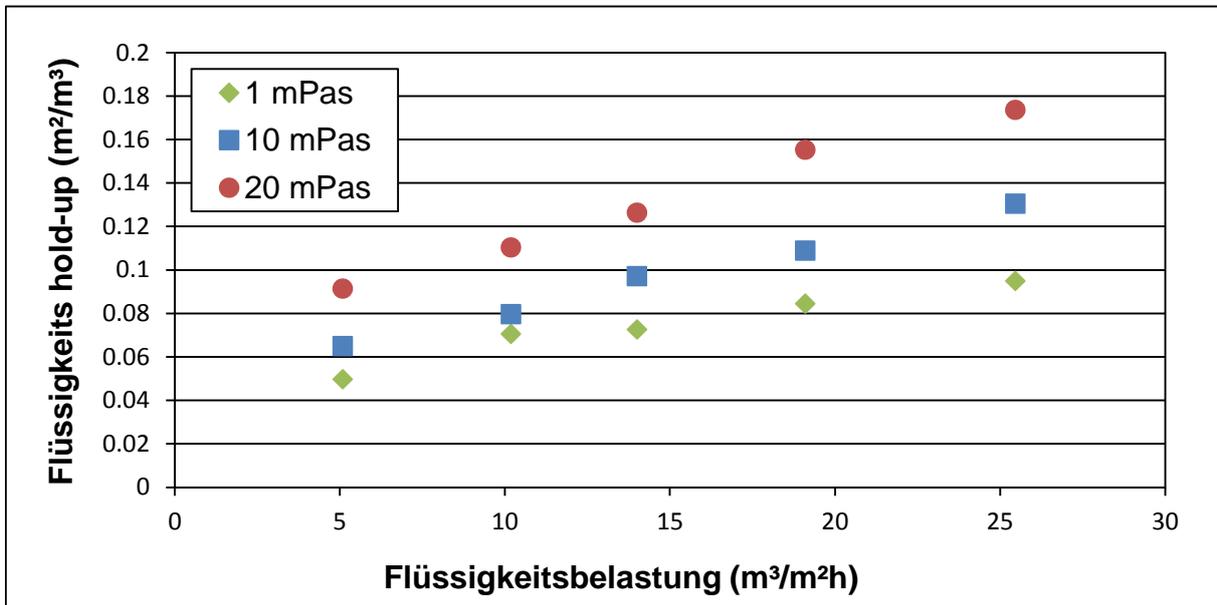


Abb. 1: Mittlerer Hold-up in Abhängigkeit von Viskosität und Flüssigkeitsbelastung

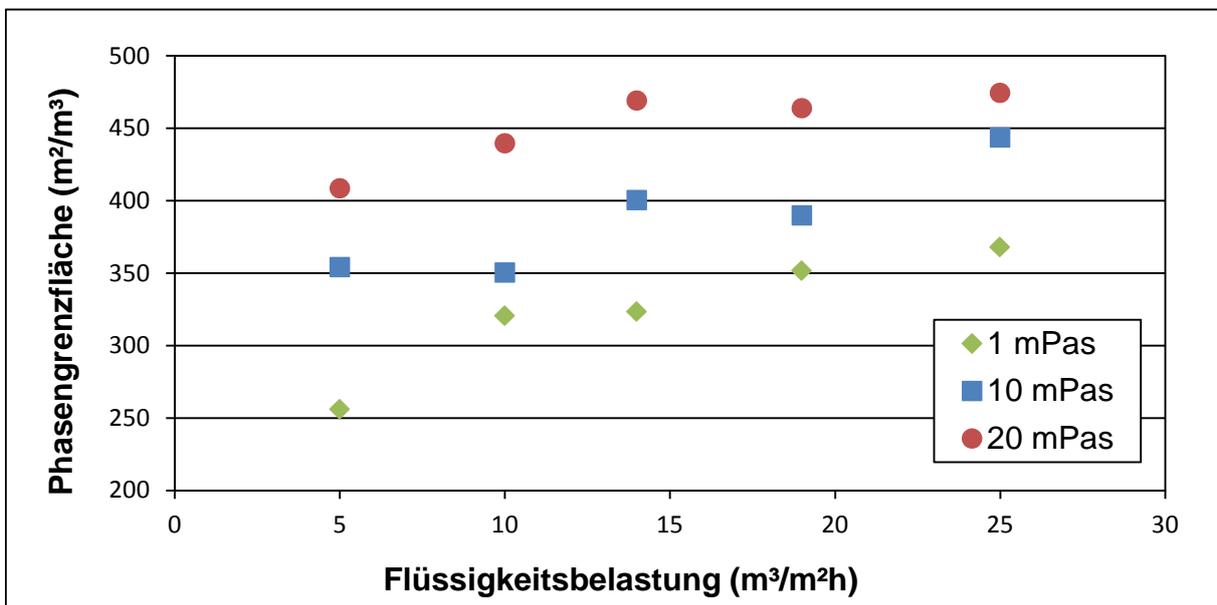
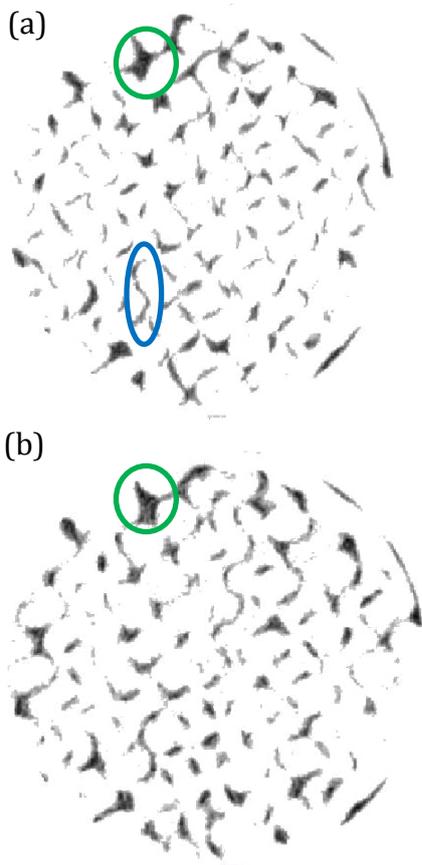


Abb. 2: Mittlere Phasengrenzfläche in Abhängigkeit von Viskosität und Flüssigkeitsbelastung

Die Ergebnisse zeigen, dass sowohl der Hold-up als auch die Phasengrenzfläche mit steigender Viskosität und Flüssigkeitsbelastung steigen. Doch während der Flüssigkeitshold-up mit der Flüssigkeitsbelastung linear ansteigt, erreicht der Verlauf der

Phasengrenzfläche ein Plateau. Das bedeutet, dass das Oberfläche-zu-Volumen Verhältnis mit steigender Flüssigkeitsbelastung kleiner wird. Des Weiteren ist es ersichtlich, dass für keine gemessene Messreihe die Packung vollständig benetzt wird. Insbesondere reines Wasser (Messreihe „1 mPas“) weist eine schlechte Benetzung der Packungsoberfläche auf.

Um die Ursache für dieses Verhalten feststellen zu können wurde die Flüssigkeitsströmung anhand der Querschnittsbilder untersucht. In Abbildung 3 sind Querschnittsbilder der berieselten Packung zu sehen, die in einem Abstand von 2mm aufgenommen wurden. Bei der Nachbearbeitung der Bilder wurden die Packungslagen „rausgerechnet“, so dass hier nur die Flüssig- (grau) und die Gasphase (weiß) sichtbar sind.



Anhand der Querschnittsbilder lassen sich verschiedene Strömungsformen klassifizieren. Zum einen tritt Filmströmung auf, die als dünne zusammenhängende Strukturen erkennbar sind (beispielhaft blau eingekreist in Abb.3 a).

Des Weiteren sieht man, dass an den Stellen, wo die gewellten Packungslagen Kontaktpunkte haben, die Flüssigkeit sich ansammelt (rote Kreise in Abb.3 c). Die Häufigkeit solcher Flüssigkeitsansammlungen hängt von der Anzahl der Kontaktpunkte im Querschnitt ab. So sind in Abb. 3a im Vergleich zu Abb. 3d deutlich weniger Stellen mit Flüssigkeitsansammlungen festzustellen. Durch einen grünen Kreis ist in Abb.3. a-c ein Kanal markiert, der in allen drei Querschnitten mit Flüssigkeit gefüllt ist.

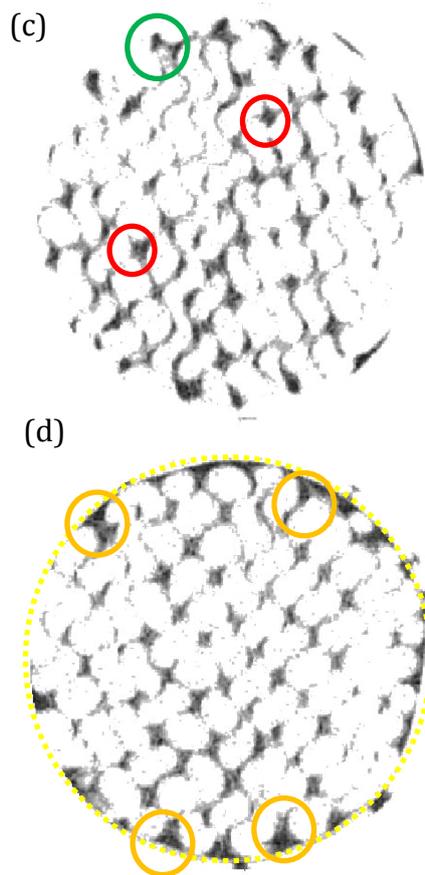


Abb. 3: tomographische Aufnahmen der berieselten Packung im Abstand von 2 mm. Flüssigkeitsbelastung: $5\text{m}^3/\text{m}^2\text{h}$, Viskosität: 10mPas

Strukturierte Packungen werden mit Randabweiser aus Drahtgewebe versehen. Diese haben die Funktion die Flüssigkeit, die an der Kolonnenwand entlang läuft, wieder in die Packungsmitte zu führen. In Abb. 3d ist ein Querschnitt mit einem Randabweiser dargestellt (hier mit gelben Kreis angedeutet). Im Vergleich zu den anderen Bildern ist hier deutlich mehr Flüssigkeit am Rand der Packung zu sehen. Folglich treten auch mehr gefüllte Kanäle auf (orange Kreise).

Zusammenfassend lassen sich also drei charakteristische Strömungsformen definieren: Filmströmung, Flüssigkeitsansammlungen an Kontaktpunkten der Bleche und gefüllte Kanäle. Es konnte beobachtet werden, dass mit steigender Flüssigkeitsbelastung und Viskosität der Anteil an gefüllten Kanälen steigt, was die oben festgestellte Änderung des Oberflächen-zu-Volumen Verhältnisses erklärt. Während der Flüssigkeits-hold-up steigt, wird die Phasengrenzfläche nicht proportional größer.

Basierend auf den tomographischen Untersuchungen kann ein neuer Modellierungsansatz entwickelt werden. Allerdings braucht man auch Trennleistungsmessungen, damit das neue Modell validiert werden kann. Aus diesem Grund wurden ein Absorptions- und ein Desorptionssystem vermessen. Die Untersuchung von Absorptionssystemen bietet den Vorteil, dass die Wärmetönung über die Kolonnenhöhe so gering ist, dass der Prozess in der Regel als isotherm betrachtet werden kann. Außerdem sind fluiddynamische Phänomene auf Rektifikationssysteme übertragbar. Auf diese Weise wird bei der Entwicklung und Erweiterung des Modells der Fokus auf die Fluiddynamik und den Stofftransport gelegt. Gleichzeitig wird die Modellentwicklung erleichtert, da der gekoppelte Wärme- und Stofftransport, der bei der Rektifikation vorliegt, eine Herausforderung an die Numerik des Modells darstellt.

Als Absorptionssystem wurde die chemische Absorption von CO_2 aus einem CO_2 -Luft-Gemisch in eine Natriumhydroxid-Lösung ausgewählt. Dieses Stoffsystem ist wie die meisten Rektifikationssysteme gasseitig limitiert, so dass auch hier eine Übertragbarkeit der Ergebnisse gewährleistet ist. Zusätzlich wurde die Desorption von CO_2 aus einem mit CO_2 gesättigten Wasserstrom betrachtet. Bei diesem Stoffsystem liegt der Stofftransportwiderstand größtenteils in der flüssigen Phase. Durch die Betrachtung dieser beiden Stoffsysteme können die Wechselwirkungen zwischen Fluidodynamik und Stofftransportphänomenen erfasst werden. Zwar ist die Viskosität der flüssigen Phase bei beiden Stoffsystemen nicht sehr hoch, da es sich um anorganische Flüssigkeiten mit einer hohen Oberflächenspannung handelt ist dennoch davon auszugehen, dass auch hier nicht-filmartige Strömungsformen innerhalb der Packungskolonnen auftreten werden.

Die Experimente wurden in einer Versuchsanlage im Pilotmaßstab bei Sulzer Chemtech in Winterthur durchgeführt. Hauptbestandteil dieser Anlage ist die Testkolonne mit 300 mm Durchmesser, in der eine strukturierte Packung mit einer Gesamthöhe von 2,2 m eingebaut ist. Für beide Stoffsysteme wurden bei den Versuchen Packungstyp, Gas- und Flüssigkeitsbelastung sowie Eingangskonzentrationen variiert. Dabei wurden CO_2 -Konzentrationsprofile der Gasphase über die gesamte Kolonnenhöhe sowie die Konzentration der flüssigen Phase am Ein- und Austritt der Kolonne aufgenommen. Vor allem die Konzentrationsprofile der Gasphase ermöglichen einen Vergleich des experimentellen und des simulierten CO_2 -Konzentrationsverlaufs in axialer Richtung.

Theoretische Untersuchungen

Ein grundsätzlich neuer Ansatz im Rahmen der kinetisch-basierten Modellierung ist mit der Idee der hydrodynamischen Analogie (HA-Modell) zwischen den komplexen Strömungsbildern in realen Kolonnen und vereinfachten fluidodynamischen Elementen verbunden, die die Möglichkeit bietet, rigorose partielle Differentialgleichungen für den konvektiven Transport auf komplexere Prozessbedingungen anzuwenden. Bei einer gelungenen Parameterbestimmung der hydrodynamischen Analogien können weit konsistentere Wärme- und Stoffaustauschmodelle benutzt werden. Korrelationen für die Wärme- und Stoffübergangskoeffizienten werden bei Verwendung von diesem Ansatz nicht benötigt.

Die Packung wird als Bündel von zylindrischen Kanälen abgebildet, in denen Gas- und Flüssigphase im Gegenstrom fließen. Die Durchmischung der Phasen wird durch die Einführung von Mischungsfreien Weglängen berücksichtigt. Wird die Packung nicht vollständig benetzt und treten nicht-filmartige Strömungen auf, muss dies im physikalischen Modell berücksichtigt werden.

Das bestehende HA-Modell berücksichtigt die effektive Austauschfläche einer unvollständig benetzten Packung, indem diese in vollständig benetzte und vollständig unbenetzte Kanäle aufgeteilt wird. Dabei wird der Flüssigkeitsstrom ausschließlich auf die benetzten Kanäle aufgeteilt, während das Gas durch alle Kanäle fließt. Für die Absorption konnten durch diesen Ansatz gute Übereinstimmungen zwischen den experimentellen Werten und den Simulationsergebnissen erzielt werden. Im Gegensatz dazu haben Simulationsergebnisse gezeigt, dass mit den gleichen Modellannahmen das flüssigseitig kontrollierte Desorptionssystem nicht wiedergegeben werden konnte. Vielmehr wird deutlich, dass eine genaue Beschreibung der Strömungsformen notwendig ist.

Basierend auf den tomographischen Untersuchungen wird das physikalische Modell um vollständig benetzte Kanäle erweitert, die auch in der Realität auftreten (s.o.). Desweiteren werden die Flüssigkeitsansammlungen an den Kontaktpunkten zwischen den Lagen als Mischungspunkte in der Flüssigphase betrachtet. Um den Anteil an gefüllten Kanälen zu bestimmen, werden die tomographisch aufgenommenen Querschnittsbilder herangezogen. Durch ein Bildbearbeitungsprogramm werden die Flüssigkeitsformen als Ellipsen angenähert und der maximale (F_{max}) und minimale (F_{min}) Feret-Durchmesser dieser Ellipsen bestimmt (s. Abb.4)

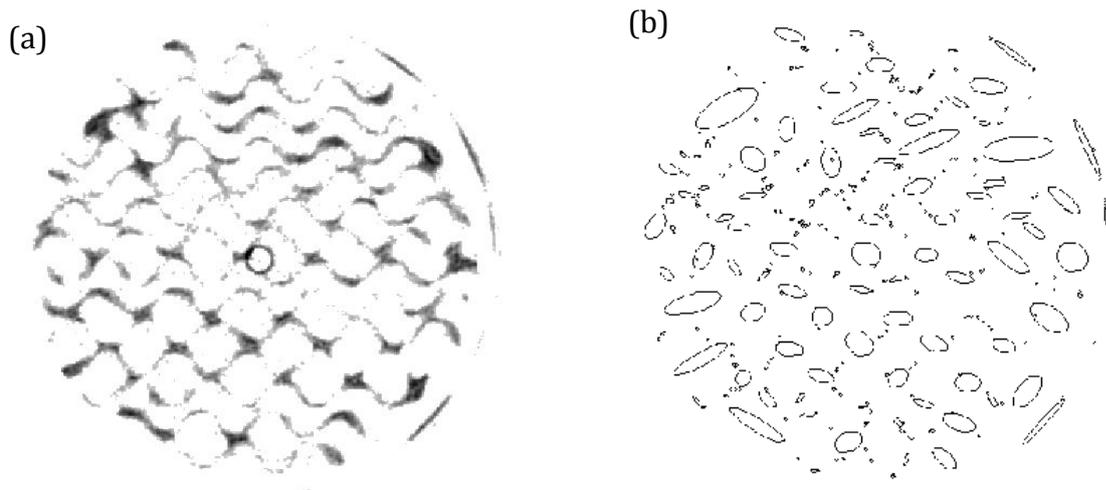


Abb. 4: Darstellung der originalen Flüssigkeitsverteilung (a) als Ellipsen (b)

Filmströmungen werden von dem Bildbearbeitungsprogramm als längliche Ellipsen oder als eine Ansammlung kleiner runder Ellipsen erkannt. Gefüllte Kanäle und Flüssigkeitsansammlungen als eher runde Ellipsen. Durch die Einordnung des maximalen Feret-Durchmessers und des Verhältnisses von F_{max}/F_{min} , lassen sich die Ellipsen zu den drei oben definierten Strömungsformen einsortieren. In Abbildung 5 ist diese Einordnung beispielhaft dargestellt. Ellipsen mit einem Verhältnis von $F_{max}/F_{min} > 2,5$ (in Abb. 5 rot eingekreist) und Ansammlungen von Ellipsen mit $F_{max} < 2\text{mm}$ (blau eingekreist) werden zur Filmströmung gezählt. Ist $F_{max} > 9\text{ mm}$, so werden diese Ellipsen zu gefüllten Kanälen einsortiert. Die übrigen Ellipsen stellen die Flüssigkeitsansammlungen dar.

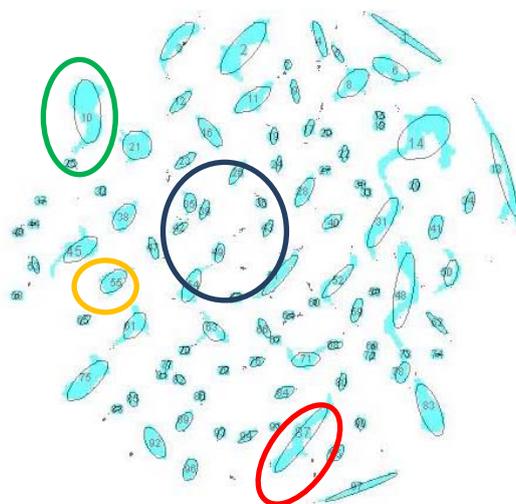


Abb. 5: Zuordnung der als Ellipsen dargestellten Flüssigkeitsströmung zu Filmströmung, gefüllten Kanälen und Flüssigkeitsansammlungen an Kontaktpunkten zwischen den Packungslagen

Die Desorptionsversuche wurden mit den neuen Modellannahmen und den aus den tomographischen Messungen gewonnen Parametern simuliert. Die Simulationsergebnisse sind in Form von axialen CO₂-Konzentrationsprofilen in der Gasphase in Abbildung 6 dargestellt. Wie man sieht, konnte eine gute Übereinstimmung zwischen den Simulationsergebnissen und den experimentellen Werten erreicht werden.

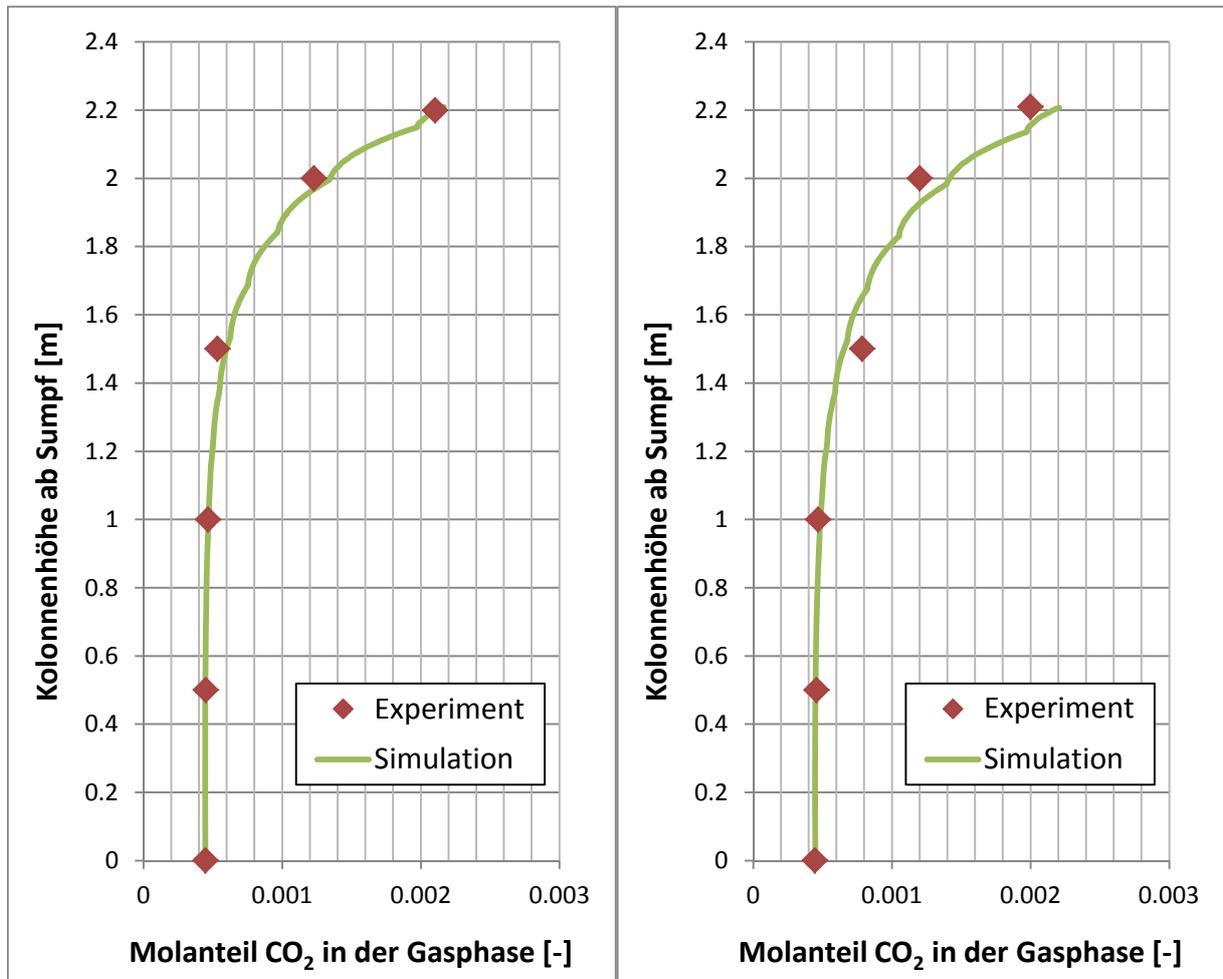


Abb. 6: axiale CO₂-Konzentrationsprofile in der Gasphase. Links: Flüssigkeitsbelastung =20 m³/m²h; f-faktor=1, A_{eff}=350m³/m², Anteil der Flüssigkeit in gefüllten Kanälen=19%. Rechts: Flüssigkeitsbelastung =30 m³/m²h; f-faktor=1, A_{eff}=415m³/m², Anteil der Flüssigkeit in gefüllten Kanälen=26%.

Zusammenfassung und Ausblick

Um die Rektifikation viskoser Systeme in Kolonnen mit strukturierten Packungen modellieren zu können, muss man zunächst wissen, in welcher Form die Flüssigkeit durch die Packung fließt und wie sich dabei die Viskosität auf die Strömung auswirkt. Zu diesem Zweck wurden im Rahmen dieser Arbeit tomographische Untersuchungen durchgeführt, wobei Flüssigkeitsbelastung und Viskosität variiert wurden. Die Ergebnisse zeigten, dass nur ein Teil der Flüssigkeit in Form von Filmen fließt. Ein anderer Teil fließt durch gefüllte Kanäle, die durch die Packungsgeometrie gebildet werden. Eine quantitative Einteilung der Strömungsarten konnte durch die Abbildung der Flüssigkeitsformen als Ellipsen erreicht werden. Dabei werden die Ellipsen anhand ihres maximalen Feret-Durchmessers und des Verhältnisses vom maximalen zu minimalen Feret-Durchmessers den Strömungsformen zugeordnet.

Basierend auf den experimentellen Beobachtungen wurde ein neuer Modellierungsansatz vorgeschlagen. Dabei wurde das bestehende Modell basierend auf hydrodynamischen Analogien zwischen der realen Strömung und einfachen Strömungselementen erweitert. Als Ansatz zur Erfassung der effektiven Stoffaustauschfläche und der gefüllten Packungskanäle wurde die Packung als eine Kombination von vollständig benetzten, vollständig gefüllten und unbenetzten Kanälen modelliert. Der neue Modellierungsansatz wurde anhand der Desorption von CO₂ aus gesättigtem Wasser in Luft geprüft. Es konnte eine gute Übereinstimmung zwischen Simulationsergebnissen und experimentellen Werten gezeigt werden.

Im weiteren Forschungsvorhaben muss das in dieser Arbeit entwickelte Modell anhand von Simulationen von viskosen Systemen geprüft werden. Hierzu werden noch Stofftransportmessungen zur Validierung benötigt.

[Boe04] S. Böcker, G. Ronge. Destillation viskoser Systeme, Chemie Ingenieur Technik 76 (2004), 102-106