

Simulation und Modellierung des Mischverhaltens von Taylor-Couette-Reaktoren

Von der Fakultät für Naturwissenschaften
Department Chemie
der Universität Paderborn
zur Erlangung des Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften

-Dr. rer. nat.-

genehmigte Dissertation

von
Thorsten Grebe
aus
Lippstadt

Paderborn, November 2004

Die vorliegende Arbeit wurde in der Zeit von März 2001 bis November 2004 im Fach Technische Chemie und Chemische Verfahrenstechnik in der Fakultät für Naturwissenschaften, Department Chemie, der Universität Paderborn angefertigt.

Referent: Prof. Dr.-Ing. H.-J. Warnecke
Universität Paderborn
Fakultät für Naturwissenschaften, Department Chemie

Korreferent: HD Dr. rer. nat. D. Bothe
Universität Paderborn
Fakultät für Naturwissenschaften, Department Chemie

Datum der Abgabe: 09. November 2004

Datum der mündlichen Prüfung: 17. Dezember 2004

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die sowohl durch ihre fachliche als auch moralische Unterstützung zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Mein besonderer Dank gilt

Prof. Dr.-Ing. H.-J. Warnecke für die interessante, fachübergreifende Themenstellung, seine stete Diskussionsbereitschaft und insbesondere für sein Vertrauen, das mir die freiheitliche Gestaltung und Umsetzung der wissenschaftlichen Ziele dieser Arbeit ermöglichte,

HD Dr. rer. nat. D. Bothe für die Übernahme des Korreferates, seinen großen Einsatz und seine unverzichtbare Unterstützung bei der mathematischen Modellierung, der Lösung numerischer Probleme und allgemeinen Fragestellungen,

Marcus Voigt für das gute Büroklima,

Nils Lessmann für seine stete Diskussionsbereitschaft,

Carsten Stemich für die Diskussionen bei einer Tasse Kaffee,

Hermann Post für die Unterstützung bei der Umsetzung des Modells in Matlab,

sowie allen Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern des Institutes für Technische Chemie und Chemische Verfahrenstechnik, die durch das hervorragende Arbeitsklima ihren Beitrag zum erfolgreichen Abschluss dieser Arbeit geleistet haben.

... und natürlich bei Heike, die immer für mich da ist.

Meinen Eltern

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Problemstellung	1
2	Theoretische Grundlagen und Stand des Wissens	5
2.1	Die Taylor-Couette-Strömung	6
2.1.1	Einflüsse der Geometrie auf die Strömung	13
2.1.2	Der Einfluss axialer Strömung	14
2.1.3	Höhere Strömungsmoden	15
2.1.4	Anwendungen für Taylor-Couette-Reaktoren	16
2.2	Stofftransportmodelle für Taylor-Couette-Reaktoren	18
2.2.1	Modell für den Stoffübergang zwischen benachbarten Wirbeln	18
2.2.2	Das Rührkesselkaskaden-Modell	20
2.2.3	Zwei- und Mehrzonenmodelle	22
2.2.4	Mehrdimensionales Dispersionsmodell	26
2.3	Theoretische Grundlagen des Mischens	29
2.3.1	Skala und Intensität der Segregation	30
2.3.2	Bestimmung der Segregation mittels chemischer Reaktion . . .	32
3	Numerische Simulationen	35
3.1	Geometrie und Diskretisierung	36
3.2	Numerische Berechnung des Strömungsfelds	40
3.3	Überprüfung des numerisch berechneten Strömungsfelds	41
3.4	Untersuchung der numerischen Diffusion der Spezies	43
3.5	Durchführung und Auswertung der numerischen Tracerexperimente .	46

4	Ergebnisse der numerischen Simulationsrechnungen	49
4.1	Stofftransport in radialer Richtung	49
4.2	Stofftransport in Umfangsrichtung	55
4.3	Stofftransport in axialer Richtung	62
4.4	Stofftransport über Wirbelgrenzen	68
4.5	Stofftransport zwischen Wirbelkern und -schale	70
4.6	Einfluss einer Drehgeschwindigkeitsmodulation auf das Mischverhalten	74
5	Mathematische Modellierung des Stofftransports in TCRs	79
5.1	Modell zur Beschreibung des Stofftransports in TCRs	79
5.2	Modellparameteranpassung und Vergleich mit numerischen Simulationsergebnissen	82
6	Zusammenfassung und Ausblick	87
7	Symbolverzeichnis	91
	Literaturverzeichnis	97

1 Einleitung und Problemstellung

Taylor-Couette-Reaktoren (TCRs) bestehen in ihrer Grundform aus zwei konzentrisch angeordneten, relativ zueinander rotierenden Zylindern. Die Strömung im Ringspalt zwischen diesen Zylindern wird seit dem Ende des 19. Jahrhunderts untersucht und gehört zu den klassischen Problemen der Strömungsmechanik.

Allgemein ist die Rotation beider Zylinder sowohl in gemeinsamer als auch in entgegengesetzter Richtung möglich, wobei die sogenannten Taylor-Wirbel lediglich dann auftreten, wenn die Drehbewegung des Innenzylinders dominiert. In den meisten Anwendungen steht dabei der äußere Zylinder still. Die über die Spaltbreite variable Zentrifugalkraft treibt die Flüssigkeit von innen nach außen, wobei die Viskosität des Fluids dieser Bewegung entgegenwirkt. Nach dem Überschreiten einer kritischen Drehzahl wird die klassische Couette-Strömung (Scherströmung im Ringspalt) instabil und es tritt eine sekundäre Wirbelströmung mit achsensymmetrischen, torusförmigen, sich entgegengesetzt drehenden Wirbeln auf (Abb. 1.1). Bei einer weiteren Erhöhung der Drehfrequenz treten eine Vielzahl zusätzlicher, stabiler Strömungsformen abhängig von der Reynoldszahl auf, die zum Verlust von Symmetrien führen und bis hin zu verschiedenen Graden der Turbulenz reichen. Die Strömungszustände in Taylor-Couette-Reaktoren sind im Gegensatz zum Mischverhalten phänomenologisch zum Teil sehr detailliert untersucht.

Zur Zeit werden die meisten chemischen Reaktionen in kontinuierlichen und diskontinuierlichen Rührkesseln (CSTR) sowie Strömungsrohren (PFRs) durchgeführt. Diese experimentell und theoretisch gut untersuchten und verstandenen Systeme sind bei einigen Anwendungen (zum Beispiel Emulsionspolymerisationen) bezüglich ihres Verweilzeit- und Temperaturverhaltens sowie der in ihnen auftretenden Scherkräfte wenig vorteilhaft, werden aber aus Mangel an alternativen Reaktorkonzepten trotzdem eingesetzt.

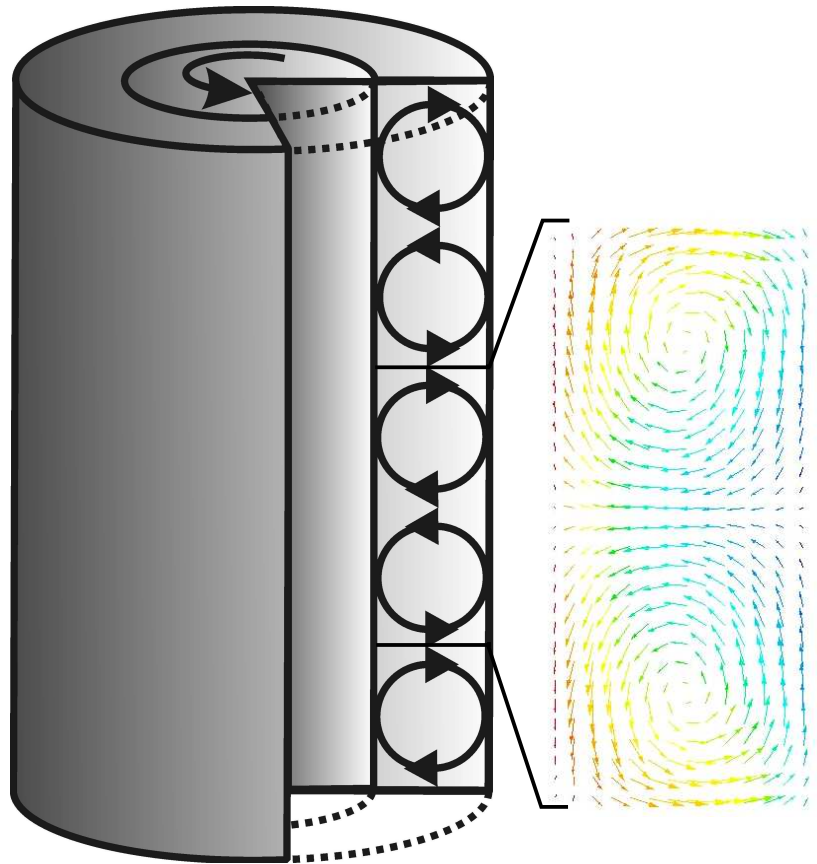


Abbildung 1.1: Links: Prinzipialskizze eines TCRs mit rotierendem Innenzylinder. Rechts: Zweidimensionale Strömungsvektoren in einem Schnitt durch den Spalt eines Doppelwirbels. Die charakteristische Wirbelströmung ist dabei deutlich zu erkennen. Die Farbe der Vektorpfeile gibt den Betrag der Geschwindigkeit wieder (Rot: schnell, blau: langsam).

Eine Alternative zu diesen üblicherweise verwendeten Reaktorbauformen stellen in der chemischen Verfahrenstechnik neben anderen innovativen Konzepten, wie zum Beispiel den Mikromischern, die Taylor-Couette-Reaktoren dar. Einfache Tracer-Experimente deuten darauf hin, dass innerhalb der Wirbel gut gemischt wird und gleichzeitig durch die zelluläre Struktur der sekundären Wirbelströmung die axiale Dispersion reduziert wird, da bei ungestörter Taylor-Couette-Strömung Fluidelemente die Grenzfläche zwischen zwei benachbarten Wirbeln lediglich diffusiv, nicht aber konvektiv passieren können. Günstig ist auch das große Oberflächen-Volumen-Verhältnis, das den im Reaktor ablaufenden Prozess thermisch gut kontrollierbar machen kann.

Trotz dieses verfahrenstechnischen Potenzials werden TCRs bisher nur im marginalen Umfang eingesetzt. Grund hierfür ist der Mangel an ingenieurtechnischer Erfahrung zur praktischen Beherrschbarkeit solcher Anlagen. Da die Herstellung eines solchen technisch anspruchsvollen Apparates kostenaufwendig ist, kann die industrielle Einführung dieser innovativen Verfahrenstechnik nur gelingen, wenn der experimentelle Aufwand zur zuverlässigen Auslegung solcher Reaktoren auf ein ökonomisch vertretbares Maß reduziert werden kann. Um diesem Ziel näher zu kommen, ist ein tiefergehendes Verständnis der Richtungsabhängigkeit der Mischprozesse innerhalb und zwischen Wirbeln auf den relevanten Meso- und Mikroskalen erforderlich.

Eine wesentliche Grundlage zum Verständnis stellt die Hydrodynamik dar, da das Strömungsmischen auf Relativbewegungen innerhalb der zu vermischenden Fluidbereiche beruht. Dabei können die nötigen Daten, Ergebnisse und Erfahrungen mittels praktisch durchgeführter Tracerexperimente gesammelt werden. Diese haben aber den Nachteil, dass die Einbringung des Tracers das Strömungsfeld und somit das Gesamtsystem stört. Hinzu kommt, dass es sehr aufwendig ist, die so eingestellte Anfangskonfiguration genau zu vermessen. Dies ist aber zur detaillierten Interpretation der Daten zwingend erforderlich, da zumeist eine starke Abhängigkeit vom Anfangszustand besteht. Ein weiteres Problem stellt die möglichst störungsfreie Vermessung von Konzentrations- und Geschwindigkeitsfeldern dar. Hierbei bieten numerische Simulationen und Tracerexperimente eine gute Alternative. Die geometrischen Eigenschaften und die Stoffdaten der untersuchten Fluide können so relativ einfach modifiziert werden. Der größte Vorteil liegt aber darin, dass eine Tracerzugabe möglich ist, ohne dass das Strömungsfeld beeinflusst wird, und auf diese Weise präzise der untersuchten Fragestellung angepasst werden kann. Die zur Bearbeitung nötigen Daten können ohne das Gesamtsystem zu beeinflussen aufgenommen werden und liegen sofort digital vor, was die Weiterverarbeitung erleichtert, sofern diese nicht Online durchgeführt wird.

Ziel dieser Arbeit ist es daher, das bisher noch unzureichend verstandene Mischverhalten von Taylor-Couette-Reaktoren zu untersuchen, um so das reaktions- und verfahrenstechnische Potenzial besser einschätzen zu können und Ansätze zur vereinfachenden mathematisch-mechanistischen Modellierung zu erarbeiten. Hierzu werden die Untersuchungen der Wechselwirkungen zwischen Hydrodynamik und Stofftransport sowie der resultierenden Mischvorgänge in den Taylor-Wirbeln mittels hoch auf-

gelöster Simulation durch numerische Lösung der kontinuumsmechanischen Bilanzgleichungen für Masse, Impuls und Spezies durchgeführt, wobei vor allem die Richtungsabhängigkeit der Mischvorgänge analysiert wird. Dazu werden die Mischintensität nach Danckwerts sowie das im DFG-Projekt BO 1879/2-1 erarbeitete *Potenzial des diffusiven Mischens* als Berechnungsgrundlage für die Skala der Segregation herangezogen.

Die hierbei gewonnenen Erkenntnisse sollen es ermöglichen, die zugrunde liegenden Mechanismen besser zu beschreiben und diese zur Entwicklung eines vereinfachten Modells reduzierter Dimensionalität zu nutzen, um den numerischen Aufwand zur Berechnung einer Speziesverteilung in einem TCR zu reduzieren. Darüber hinaus soll die Möglichkeit untersucht werden, die Mischprozesse innerhalb der Wirbel mittels einer Drehgeschwindigkeitsmodulation des Innenzylinders zu verbessern, ohne zugleich die axiale Dispersion signifikant zu erhöhen.

2 Theoretische Grundlagen und Stand des Wissens

Die Taylor-Couette-Strömung ist ein seit langem bekanntes, hydrodynamisches Phänomen. Sowohl in der älteren, wie auch in der aktuellen Literatur finden sich eine Vielzahl von Publikationen aus verschiedenen Fachrichtungen, die sich direkt oder mittelbar mit dieser Strömung beschäftigen.

Bereits in Newtons Werk *Principia* aus dem Jahr 1687 findet sich die erste Erwähnung der Couette-Strömung in gekrümmten Geometrien, in dem er Annahmen über konzentrische Strömungslinien und Symmetrien aufstellt [Donnelly, 1991]. Erst viel später, 1848, beschreibt Stokes das Auftreten von Wirbeln in der Couette-Strömung unter der Voraussetzung, dass sich der innere Zylinder schneller dreht als der äußere. Dabei nutzt er Staubpartikel, um die Strömung zu visualisieren. Margules erkennt 1881, dass es mit Hilfe der Couette-Strömung möglich sein sollte, Viskositäten zu messen und um 1886 entwickelt Mallock ein entsprechendes Viskosimeter [Mallock, 1896]. Er macht dabei zwei Beobachtungen:

- die Couette-Strömung ist immer dann instabil, wenn sich der innere Zylinder schneller dreht als der äußere,
- bewegt sich lediglich der äußere Zylinder, während der innere stillsteht, ist die Couette-Strömung bis zu einer kritischen Geschwindigkeit stabil und geht dann in eine turbulente Strömung über.

Ungefähr zur selben Zeit konstruiert Couette ein ähnliches Viskosimeter, bei dem sich lediglich der äußere Zylinder dreht. Er macht ebenfalls die Beobachtung, dass für den Übergang zur turbulenten Strömung eine kritische Drehgeschwindigkeit überschritten werden muss [Couette, 1890]. Das Hauptaugenmerk von Mallock und Couette lag auf

der Messung von Viskositäten, so dass sie die von ihnen beobachteten hydrodynamischen Instabilitäten nicht weiter untersuchten.

Bei später durchgeführten Experimenten konnten Unzulänglichkeiten bei den oben beschriebenen Untersuchungen und den daraus abgeleiteten Ergebnissen festgestellt werden. So lag bei den Untersuchungen von Mallock, bei denen sich lediglich der innere der beiden Zylinder drehte, die Drehgeschwindigkeit immer oberhalb des kritischen Wertes, der für das Auftreten der sekundären Wirbelströmung überschritten werden muss. Bei den Experimenten, bei denen sich lediglich der äußere Zylinder drehte, war eine Exzentrizität in der Anordnung der Zylinder die Ursache für das Auftreten einer turbulenten Strömung bei den untersuchten niedrigen Zylinderdrehzahlen.

Erst die Untersuchungen von Rayleigh zeigen Ansätze zur mathematischen Beschreibung des beobachteten Strömungsphänomens [Rayleigh, 1913]. Der Durchbruch auf diesem Gebiet aber gelingt erst mit der Veröffentlichung von Taylor, der die erste vollständige theoretische und experimentelle Beschreibung des Strömungsproblems liefert [Taylor, 1923].

2.1 Die Taylor-Couette-Strömung

Rayleigh beschreibt den Grund für die Instabilität der Couette-Strömung in Form einer Energieanalyse für ein nicht viskoses Fluid. Für eine radial symmetrische, rein tangentiale, nicht viskose Strömung reduziert sich die Impulserhaltung ohne Berücksichtigung der Gravitation für ein dichtebeständiges Fluid mit $u_r = u_z = 0$ zu

$$\frac{D(r^2 u_\theta)}{Dt} = \frac{D(r u_\theta)}{Dt} = 0. \quad (2.1)$$

Hierbei bezeichnet r den Radius, u_θ die Geschwindigkeit in Umfangsrichtung (Azimuth), Ω die Winkelgeschwindigkeit, ρ die Dichte und t die Zeit. Diese Gleichung setzt voraus, dass der Impuls in tangentialer Richtung bezogen auf die Masse

$$r u_\theta = \Omega r^2 = C \quad (2.2)$$

konstant ist. Auf ein Fluidelement wirkt somit eine auf die Masse bezogene Radialkraft von

$$\vec{F} = \frac{u_\theta^2}{r} = \frac{L^2}{r^3}, \quad (2.3)$$

wobei L den Impuls des Fluidelements bezeichnet. Die potentielle Energie eines Elementes ist somit

$$K = \int_r^\infty \vec{F} dr = \int_r^\infty \frac{L^2}{r^3} dr = -\frac{L^2}{2r^2} \Big|_r^\infty = \frac{L^2}{2r^2}. \quad (2.4)$$

Diese Energie hat den gleichen Betrag wie die kinetische Energie in tangentialer Richtung. Wird die Strömung in koaxiale Ringe gleichen Volumens unterteilt, so ergibt sich für zwei Ringe eine Energie von

$$K = \frac{1}{2} \left(\frac{L_1^2}{r_1^2} + \frac{L_2^2}{r_2^2} \right). \quad (2.5)$$

Die beiden Ringe befinden sich an den Stellen r_1 und r_2 und haben den Impuls L_1 und L_2 . Wenn $r_2 > r_1$ ist und die Ringe so vertauscht werden, dass sich der erste Ring an der Stelle r_2 befindet und umgekehrt, beträgt die Energiedifferenz zwischen den beiden Zuständen

$$\Delta K = \frac{1}{2} (L_2^2 - L_1^2) \left(\frac{1}{r_1^2} - \frac{1}{r_2^2} \right). \quad (2.6)$$

Hierbei ist immer $\Delta E > 0$, wenn $L_1 > L_2$ ist. In diesem Fall wird die zweite Konfiguration bevorzugt. Daraus folgt, dass die Strömung stabil bleibt, wenn L^2 monoton mit r steigt. Für die Couette-Strömung kann dieses so genannte Rayleigh-Kriterium in der Form

$$\frac{d}{dr} (r^2 \Omega)^2 = \frac{d}{dr} (r u_\theta)^2 > 0 \quad (2.7)$$

beschrieben werden. Dies gilt allerdings streng nur für nicht viskose Fluide [Drazin und Reid, 1981]. In viskosen Fluiden treten Dämpfungen auf, so dass dieses Kriterium lediglich einen Grenzfall darstellt.

Taylor erweiterte diese Theorie Rayleighs auf viskose Fluide [Taylor, 1923; Baier, 1999]. Hierzu wird die Impulsbilanz für inkompressible Medien

$$\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{u} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = -\frac{1}{\rho} \nabla p + \nu \Delta \mathbf{u} \quad (2.8)$$

zusammen mit der Volumenerhaltung

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (2.9)$$

verwendet, wobei \mathbf{u} den Geschwindigkeitsvektor, p den Druck, ρ die Dichte und ν die kinematische Viskosität darstellt. ∇ steht für den Nabla-Operator. Dieser lautet in Zylinderkoordinaten

$$\nabla = \frac{\partial}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \Omega} + \frac{\partial}{\partial z}. \quad (2.10)$$

Δ steht für den Laplace-Operator

$$\Delta = \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{\partial}{r \partial r} + \frac{\partial^2}{r^2 \partial \Omega^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}. \quad (2.11)$$

Die Basis für die Taylor-Couette-Strömung stellt die Couette-Strömung in einem Ringspalt dar. Für sie ergibt sich aus 2.8 und 2.9, wobei Haftung an den Zylinderwänden als Randbedingung angenommen wird, eine tangentiale Geschwindigkeit V für das Fluid von

$$V = Ar + \frac{B}{r} = \Omega r \quad (2.12)$$

mit

$$A = \frac{\Omega_1(R_{12}^2 - \Omega_{21})}{R_{12}^2 - 1}, \quad (2.13)$$

$$B = \frac{\Omega_1 R_1^2 (\Omega_{21} - 1)}{R_{12}^2 - 1}, \quad (2.14)$$

$$R_{12} = \frac{R_1}{R_2}, \quad (2.15)$$

$$\Omega_{21} = \frac{\Omega_2}{\Omega_1}. \quad (2.16)$$

Diese Strömung wird mit einer zeitlich, tangential und axial periodischen Störung

$$\mathbf{v} = \begin{pmatrix} v_r \\ v_\theta \\ v_z \end{pmatrix} e^{i\alpha(z-ct+n\theta)} \quad (2.17)$$

überlagert, wobei die Spaltbreite $d = R_2 - R_1$, $t = t^* \nu / d^2$, $r = r^* / d$ und $z = z^* / d$ ist. ν steht für die kinematische Viskosität und t^* , r^* und z^* sind dimensionsbehaftete Größen. Für achsensymmetrische Strömungszustände ist die tangentiale Wellenzahl n

gleich 0. α ist die auf die Spaltbreite skalierte axiale Wellenzahl und c die Geschwindigkeit der auferlegten Störung. Für den Fall, dass der Imaginärteil von c negativ ist ($Im(c) < 0$), ist die Grundströmung linear stabil gegenüber periodischen Störungen. Im Fall, wenn $Im(c) > 0$ ist, wächst die Störung zur hydrodynamischen Instabilität an. Wenn der Imaginärteil von c null ist ($Im(c) = 0$), nimmt die Störung weder zu noch ab und die Strömung befindet sich am Übergangspunkt zwischen linear stabil und instabil. Die daraus resultierende, gestörte Geschwindigkeit

$$\mathbf{V} = V\mathbf{e}_\theta + \mathbf{v} \quad (2.18)$$

wird in die Impuls- und in die Kontinuitätsgleichung (2.8 und 2.9) eingesetzt. Die sich daraus ergebenden Gleichungen werden linearisiert, indem alle Terme, die bezüglich der Störung von höherer Ordnung sind, vernachlässigt werden. Dies ist möglich, da die Störung gegenüber der eigentlichen Strömung sehr klein ist. Das linearisierte System kann auf die beiden Gleichungen

$$[DD_* - \alpha^2 + i\alpha c](DD_* - \alpha^2)v_r = \frac{2\Omega\alpha^2 d^2}{\nu}v_\theta \quad (2.19)$$

und

$$[DD_* - \alpha^2 + i\alpha c]v_\theta = \frac{2Ad^2}{\nu}v_r \quad (2.20)$$

mit den Haftungs-Randbedingungen $v_r = v_\theta = v_z = 0$ an den Stellen $y = 0$ und 1 reduziert werden, wobei

$$y = \frac{R - R_1}{d} \quad (2.21)$$

$$\epsilon = \frac{d}{R_2}, \quad (2.22)$$

$$D = \frac{\partial}{\partial y}, \quad (2.23)$$

und

$$D_* = D + \frac{1}{y + \frac{1-\epsilon}{\epsilon}} \quad (2.24)$$

ist. Im Grenzfall ergeben sich für einen "unendlich schmalen" Spalt mit

$$\epsilon = \frac{d}{R_2} \longrightarrow 0, \quad (2.25)$$

$$D_* \longrightarrow D, \quad (2.26)$$

$$\Omega \longrightarrow [1 - (1 - \Omega_{21})y] \quad (2.27)$$

die beiden vereinfachten Gleichungen

$$[D^2 - \alpha^2 + i\alpha c](D^2 - \alpha^2)v_r = [1 - (1 - \Omega_{21})y]v_\theta \quad (2.28)$$

und

$$[D^2 - \alpha^2 + i\alpha c]v_\theta = T\alpha^2v_r, \quad (2.29)$$

wobei v_r gemäß

$$v_r = \frac{2\Omega_1 d^2}{\nu} \tilde{v}_r \quad (2.30)$$

skaliert wird, sowie

$$T = \frac{4A\Omega_1 d^4}{\nu^2} = \frac{4\Omega_1^2 d^4 (R_{12}^2 - \Omega_{21})}{\nu^2 (R_{12}^2 - 1)} = \epsilon Re_\theta^2 + O(\epsilon^2) \quad (2.31)$$

und

$$Re = \frac{(\Omega_1 - \Omega_2)dR_1}{\nu} \quad (2.32)$$

ist. T repräsentiert dabei das Verhältnis zwischen viskosen und zentrifugalen Kräften. Wenn T einen kritischen Wert T_c überschreitet, wird die Couette-Strömung instabil und es bilden sich Taylor-Wirbel. Die Gleichungen 2.28 und 2.29 können zu einer Differentialgleichung sechster Ordnung

$$[D^2 - \alpha^2 + i\alpha c]^2 (D^2 - \alpha^2)v_\theta = T\alpha^2[1 - (1 - \Omega_{21})y]v_\theta \quad (2.33)$$

mit den no-slip (Haftung) Randbedingungen

$$v_\theta = 0 \quad y = 0, 1 \quad (2.34)$$

$$v_r = 0 = (D^2 - \alpha^2)v_\theta \quad y = 0, 1 \quad (2.35)$$

$$v_z = 0 = D(D^2 - \alpha^2)v_\theta = Dv_r \quad y = 0, 1 \quad (2.36)$$

zusammengefasst werden. Am für die Couette-Strömung kritischen Punkt ($c = 0$) vereinfacht sich Gleichung 2.33 zu

$$[D^2 - \alpha^2]^3 v_\theta = T\alpha^2[1 - (1 - \Omega_{21})y]v_\theta. \quad (2.37)$$

Im Grenzfall $\Omega_{21} \rightarrow 1$ wird daraus die Differentialgleichung mit konstanten Koeffizienten

$$[D^2 - \alpha^2]^3 v_\theta = T \alpha^2 v_\theta. \quad (2.38)$$

Die Lösung hat die Form

$$v_\theta = C_1 \cosh q_0 x + C_2 \sinh q_0 x + C_3 \cosh q x + C_4 \sinh q x + C_5 \cosh q^* x + C_6 \sinh q^* x \quad (2.39)$$

wobei iq_0, q, q^* Lösungen der Gleichung

$$(q^2 - \alpha^2)^3 = -T \alpha^2 \quad (2.40)$$

sind und $x = y - 1/2$ ist. Die Symmetrie der Randbedingungen macht es erforderlich, dass die Lösung bezogen auf die den Mittelpunkt des Spalts ($y = 0,5$) gerade ($f(x) = f(-x)$) oder ungerade ($f(x) = -f(-x)$) sein muss. Mittels numerischer Methoden kann aus Gleichung 2.38 der kritische Wert T_c für ein festes α bestimmt werden. Die gerade Lösung, die zu übereinander angeordneten, achsensymmetrischen, entgegengesetzt drehenden, laminaren Wirbeln (LTVF - Laminar Taylor Vortex Flow) führt, tritt bei einem kleineren kritischen Wert für T auf als die ungerade Lösung.

Hierfür lautet die Beziehung zwischen T und α näherungsweise

$$T \approx \frac{2(\pi^2 + \alpha^2)^3}{(1 + \Omega_{21})\alpha^2 \left\{ 1 - \frac{16\pi^2 \alpha \cosh^2(\alpha/2)}{(\pi^2 + \alpha^2)^2 (\alpha + \sinh \alpha)} \right\}} \quad (2.41)$$

[Chandrasekhar, 1961]. Das Minimum dieser Funktion liegt etwa bei $T_c \approx 3390$. Die axiale Wellenzahl an dieser Stelle hat einen Wert von $\alpha \approx 3,12$. Dies führt zu näherungsweise quadratischen Wirbelzellen mit der Kantenlänge d (Abb. 2.1), da $\alpha = \pi/l$ ist, wobei l auf die Spaltbreite d skaliert ist. Taylors ausführliche, experimentelle Untersuchungen bestätigen die Ergebnisse bezüglich der geraden Lösung [Taylor, 1923]. Dagegen führt die ungerade Lösung theoretisch zu zwei im Spalt nebeneinander liegenden, sich entgegengesetzt drehenden Wirbeln. Experimentell kann dieser Zustand nur im Fall zweier nicht molekular mischbarer Fluide unterschiedlicher Dichte beobachtet werden.

Für den Fall, dass sich die beiden Zylinder in entgegengesetzter Richtung drehen,

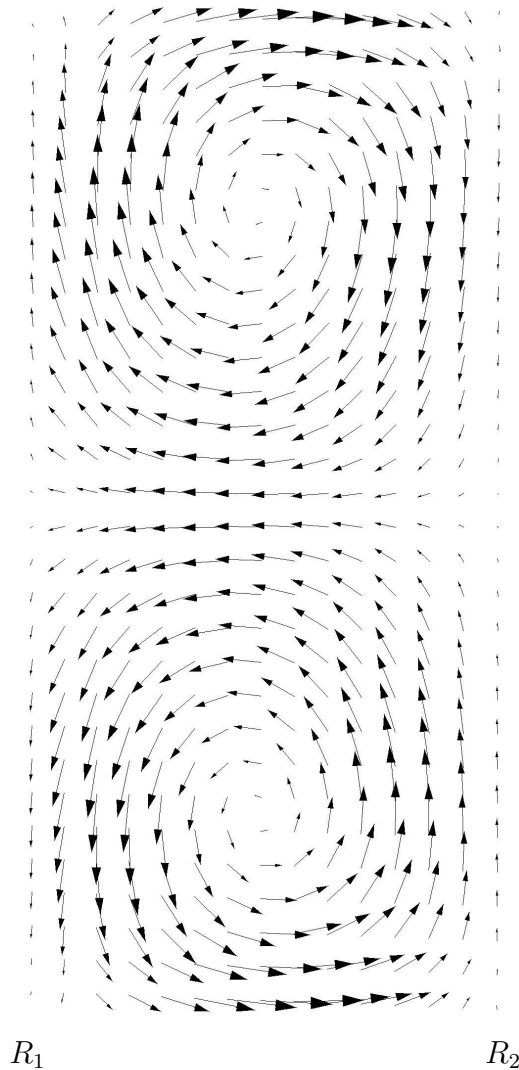


Abbildung 2.1: Aus einer Spaltebene projizierte Strömungsvektoren in einem Schnitt durch den Spalt eines Doppelwirbels. Der Innenzylinder befindet sich links und der Außenzylinder rechts. Die charakteristische Wirbelströmung ist deutlich zu erkennen.

füllen die Wirbel nicht mehr die gesamte Spaltbreite aus. Sie dehnen sich dann lediglich vom inneren Zylinder bis zu einer Stelle $r = R_n$ aus, an der die effektive Drehgeschwindigkeit Ω_n gleich null ist.

2.1.1 Einflüsse der Geometrie auf die Strömung

Die oben beschriebenen Bedingungen für das Auftreten von Taylor-Wirbeln gelten streng nur für exakt konzentrische, unendlich lange Zylinder. Schon eine geringe Exzentrizität ecc

$$ecc = \frac{e}{d} \tag{2.42}$$

mit dem Abstand der beiden Zylinderachsen e und der mittleren Spaltbreite d , hat Einfluss auf die Strömung. Bei $ecc > 0$ und ansonsten gleichen Bedingungen ist ein größerer Wert von T und somit eine höhere Drehgeschwindigkeit für das Auftreten von Wirbeln nötig [Koschmieder, 1976].

Außerdem haben bei experimentellen Untersuchungen die Zylinderenden einen großen Einfluss auf die Strömung, was besonders bei einem kleinen Verhältnis zwischen Zylinderlänge und Spaltbreite gilt. Da die Anzahl der Wirbel ganzzahlig sein muss, kommt es hier oftmals zur Streckung oder Stauchung der Wirbel. Des Weiteren hat sich in Experimenten gezeigt, dass Taylor-Wirbel zuerst an den oberen und unteren Begrenzungen entstehen, die dann die weitere Wirbelbildung im Inneren induzieren [Koschmieder, 1993]. Rotieren die axialen Begrenzungen mit dem äußeren Zylinder, so sind die jeweils angrenzenden Wirbel weitgehend unabhängig von der Drehgeschwindigkeit in ihrer axialen Ausdehnung vergrößert. Für den Fall, dass sie sich mit dem inneren Zylinder bewegen, ist ihre Größe proportional zu $\sqrt{T/T_c}$, wobei die inneren Wirbel bei zunehmender Drehgeschwindigkeit immer stärker gestaucht werden. Hierbei wird zusätzlich beobachtet, dass die radiale Komponente der Strömung in der Nähe der axialen Begrenzungen in den meisten Fällen nach außen zeigt [Koschmieder, 1993].

Die axiale Reaktorlänge beeinflusst ebenfalls das Bifurkationsverhalten. Allgemein gilt, dass sich die kritischen Drehgeschwindigkeiten für die Bifurkation zur Taylor-Couette-Strömung bei abnehmender Länge erhöhen. Dies gilt auch für den nächsten Übergang zur wavy-vortex-Strömung [Cole, 1976].

2.1.2 Der Einfluss axialer Strömung

Unter Berücksichtigung einer kleinen axialen Strömung zwischen den Zylindern werden Gleichungen 2.28 und 2.29 erweitert zu

$$\{[D^2 - \alpha^2 + i(\alpha c - Re_{ax}\alpha)](D^2 - \alpha^2) - 12iRe_{ax}\alpha\}v_r = v_\theta \quad (2.43)$$

und

$$[D^2 - \alpha^2 + i(\alpha c - Re_{ax})]v_\theta = -\bar{T}\alpha^2v_r \quad (2.44)$$

mit

$$\bar{T} = -\frac{1}{2}(1 + \mu)\frac{4A\Omega_1}{\nu^2}d^4, \quad (2.45)$$

der axialen Reynoldszahl

$$Re_{ax} = \frac{\bar{W}d}{\nu} \quad (2.46)$$

und der mittleren axialen Geschwindigkeit

$$\bar{W} = -\frac{d^2}{12\rho\nu} \left(\frac{\partial p}{\partial z} \right)_0. \quad (2.47)$$

Analog zum Fall ohne axiale Strömung kann zu einer vorgegebene Wellenzahl α der kritische Wert T_c für das Auftreten von Wirbeln mit Hilfe numerischer Methoden errechnet werden. Er liegt bei ansonsten gleichen Bedingungen für das Fluid und die Geometrie höher als im Fall ohne axiale Strömung [Chandrasekhar, 1961]. Für kleine axiale Reynoldszahlen bleibt die Strömung achsensymmetrisch, wobei ein Bypass-effekt auftritt, bei dem die effektive Fluidströmung über die Wirbelschalen erfolgt. Hierbei kann beobachtet werden, dass sich die Wirbelzentren mit einer größeren Geschwindigkeit in axialer Richtung bewegen, als die mittlere Fluidgeschwindigkeit [Howes und Rudman, 1998].

Bei höheren axialen Reynoldszahlen ($Re_{ax} > 20$) wird theoretisch und experimentell eine nicht mehr achsensymmetrische Strömung beobachtet [Ng und Turner, 1982; Takeuchi und Jankowski, 1981].

2.1.3 Höhere Strömungsmoden

In Taylor-Couette-Geometrien sind eine große Anzahl weiterer Strömungszustände möglich. So sind in der Literatur bis zu 74 verschiedene stabile Zustände bekannt [Coles, 1965]. Die weitere Erhöhung der Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders bei schon vorhandenen Taylor-Wirbeln führt nach Überschreiten eines weiteren kritischen Wertes zu einem Zustand, bei dem die Strömung durch eine zeitabhängige, axiale Wellenbewegung überlagert wird und die Rotationssymmetrie der Wirbel verloren geht (WVF - Wavy Vortex Flow). Die Wellenbewegung ist in Umfangsrichtung periodisch und kann durch eine Frequenz charakterisiert werden (SPWVF - Single Periodic Wavy Vortex Flow). Bei weiterer Erhöhung der Drehgeschwindigkeit sind mehr als eine Frequenz zur Beschreibung der Strömung notwendig (QPWVF - Quasi Periodic Wavy Vortex Flow)[Fenstermacher, 1979]. Eine genaue Vorhersage der Strömungszustände ist im Bereich hoher Drehgeschwindigkeiten schwierig, da bei gleicher Reaktorgeometrie und Drehgeschwindigkeit abhängig von dem Weg, über welchen diese eingestellt werden, bis zu 25 verschiedene Zustände experimentell beobachtet werden. Bei weiterer Erhöhung der Drehgeschwindigkeit treten Turbulenzen unter Erhaltung der Wirbelstruktur auf (TVF - Turbulent Vortex Flow). Abbildung 2.2 zeigt eine experimentell ermittelte Teilübersicht möglicher Strömungszustände in Abhängigkeit von der inneren und der äußeren Reynoldszahl für eine Geometrie mit einem Radienverhältnis der beiden Zylinder von 0,883. Eine mathematische Beschreibung der verschiedenen Strömungsformen findet sich in Chossat und Iooss, 1994. Häufig wird zur Beschreibung der verschiedenen Strömungsformen die dimensionslose Taylor-Zahl Ta verwendet. Sie ist eine modifizierte Reynoldszahl und wird in der Literatur nicht einheitlich verwendet. Neben

$$Ta = \sqrt{\frac{R_1 + R_2}{2}} \frac{\Omega d^{\frac{3}{2}}}{\nu} \quad [\text{Weast, 1985}], \quad (2.48)$$

$$Ta = \frac{R_1 + R_2}{2} \frac{\Omega d}{\nu} \quad [\text{Grohmann, 1985}], \quad (2.49)$$

$$Ta = \frac{2R_1^2 d^3}{R_1 + R_2} \left(\frac{\Omega}{\nu}\right)^2 \quad [\text{Grohmann, 1985}], \quad (2.50)$$

$$Ta = \frac{4R_1^2 d^3}{R_1 + R_2} \left(\frac{\Omega}{\nu}\right)^2 \quad [\text{Hasoon und Martin, 1977}], \quad (2.51)$$

$$Ta = \frac{\Omega R_1^2}{\nu} \quad [\text{Hasoon und Martin, 1977}], \quad (2.52)$$

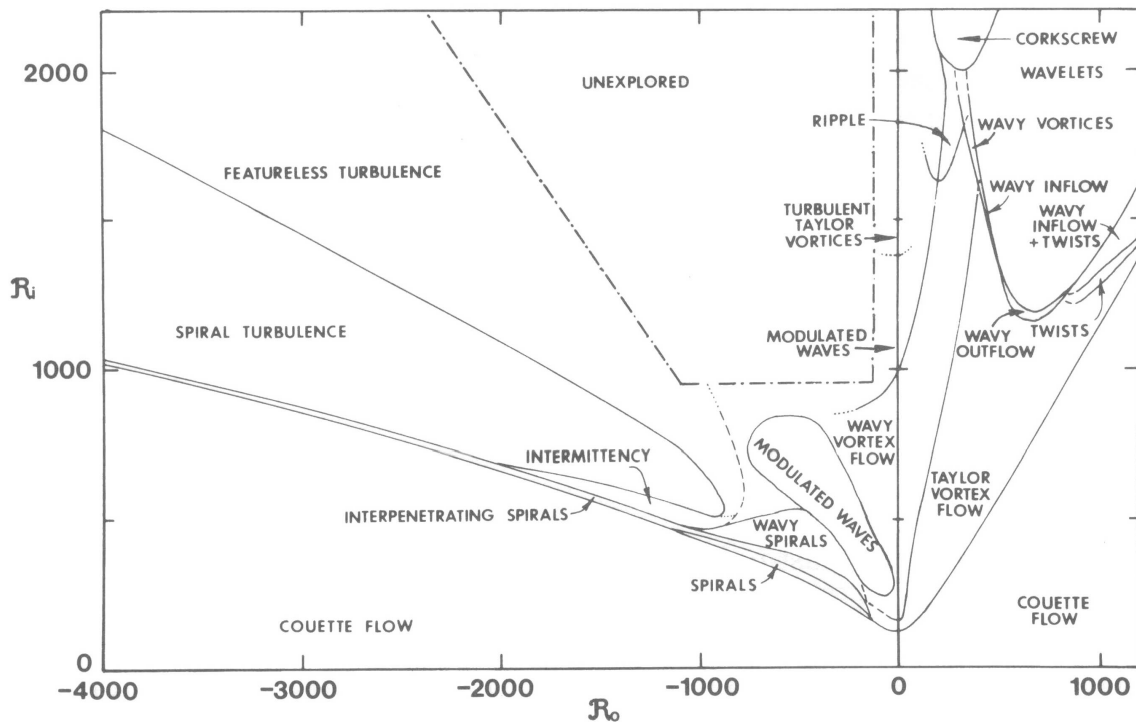


Abbildung 2.2: Experimentell ermitteltes Stabilitätsdiagramm für verschiedene Drehgeschwindigkeiten der beiden Zylinder aus Andereck et al., 1986.

ist die am häufigsten verwendete Form

$$Ta = \sqrt{\frac{d}{R_1}} \frac{R_1 \Omega d}{\nu} \quad [\text{Kataoka et al., 1975}]. \quad (2.53)$$

Wegen dieser Uneinheitlichkeiten wird in der vorliegenden Arbeit auf die Verwendung der dimensionslosen Kennzahl Ta verzichtet, um Fehlinterpretationen zu vermeiden.

2.1.4 Anwendungen für Taylor-Couette-Reaktoren

Zur Zeit werden die auf der Taylor-Couette-Strömung basierenden Reaktoren noch nicht für großtechnische Prozesse verwendet. Zahlreiche Anwendungsgebiete werden aber bereits seit einiger Zeit diskutiert. Häufig sollen dabei im kontinuierlichen Betrieb die dem idealen Strömungrohr ähnlichen Eigenschaften mit dem Ziel ausgenutzt werden, die axiale Dispersion zu reduzieren [Janes et al., 1987; Cohen und Marom, 1983]. Zahlreiche Untersuchungen beziehen sich in diesem Zusammenhang auf die kontinuierliche Lösungspolymerisation [Kossak, 2000] oder die Emulsionspolymeri-

sation z.B. von Styrol oder n-Butylmethacrylat in Taylor-Couette-Reaktoren [ICI, 1957; Schmidt, 1998]. Bisher werden diese Prozesse im technischen Maßstab in kontinuierlich betriebenen Rührkesseln durchgeführt. Der Nachteil ist dabei neben der schlechten Wärmeabfuhr das Auftreten hoher Scherkräfte am Rührer, was zur Folge hat, dass sich ein Polymerkoagulat bildet, welches Leitungssysteme verstopfen kann [Feast, 1972]. TCRs können daher aufgrund der wesentlich geringeren Scherkräfte eine gute Alternative darstellen, wobei die Emulsion durch die Wirbelstruktur der Strömung zusätzlich stabilisiert wird [Schmidt, 1998; Kataoka et al., 1995].

Basierend auf der Taylor-Couette-Strömung mit kleinem axialen Fluss sind zwei kommerziell erhältliche Filtrationsanlagen entwickelt worden (*MBR-Sulzer*: Dynamic Bio Pressure Filter; *Membrex*: Benchmark Vortex Flow Filtration System) [Murase et al., 1991]. Bei den Anlagen ist der Innenzylinder aus einem porösen Material und stellt den Filter dar. Die Wirbelströmung reinigt dabei kontinuierlich die Filteroberfläche und verhindert so Ablagerungen. Ein weiterer Vorteil ist die Entkopplung von axialem und transmembranem Druckabfall. Außerdem ist die Filterleistung wesentlich höher als in den üblicherweise verwendeten Kreuzstromfiltrationsanlagen. Allerdings übersteigen die Anlagenkosten der TCRs häufig die von Anlagen konventioneller Bauweise [Krohner et al., 1987; Krohner und Nissinen, 1988; Winzeler und Belfort, 1993].

Ein weiteres wichtiges Anwendungsgebiet kann die Flüssig-Flüssig-Extraktion darstellen. So werden auf der Taylor-Couette-Strömung basierende Methoden im Labormaßstab seit über 50 Jahren bei verschiedenen Extraktionsproblemen angewendet [Lo et al., 1983; Davis und Weber, 1960]. In den hierzu verwendeten Geräten werden die beiden Fluide durch die Strömung bei hohen Zylinderdrehzahlen emulgiert und haben so eine große Austauschfläche zueinander. Ein anderes Extraktionsverfahren, das bei viel kleineren Zylinderdrehzahlen arbeitet, ist dann von Vorteil, wenn die Fluide nur schwer wieder deemulgieren [Baier, 1999]. Diese Methode verzichtet auf das Emulgieren, vielmehr bilden die beiden Fluide zwei im Ringspalt nebeneinander liegende Wirbel, wobei sich die Flüssigkeit mit der höheren Dichte außen befindet. Durch die Sekundärströmung werden die Fluidelemente an der Grenzfläche stetig ausgetauscht. In weiteren Forschungsarbeiten werden TCRs als Flockungsreaktor zur Abwasserreinigung [Grohmann, 1985], als Bioreaktor [Huang und Liu, 1994], als photochemischer Reaktor [Haim und Pismen, 1994] oder zur Dialyse in der Medizintechnik [Ameer et al., 1999] eingesetzt. Zusätzlich kann der Innenzylinder als Katalysatorträger [Haim

und Pismen, 1994; Iosilevski et al., 1993] oder als Elektrode [Legrand et al., 1980] benutzt werden.

2.2 Stofftransportmodelle für Taylor-Couette-Reaktoren

In der Literatur finden sich zahlreiche Modellansätze, mit deren Hilfe versucht wird, den Stofftransport in Taylor-Couette-Reaktoren vereinfacht zu beschreiben. Experimentelle Untersuchungen haben gezeigt, dass die axiale Dispersion knapp oberhalb des ersten Bifurkationspunktes ein Minimum durchläuft und mit steigender Drehzahl wieder zunimmt [Pudijiono et al., 1992]. Unter Berücksichtigung axialer Strömung ist der Dispersionskoeffizient in dieser Richtung unabhängig vom Diffusionskoeffizienten [Giordano et al., 2000; Moore und Cooney, 1995] und nimmt mit steigendem Fluss zu [Enokida et al., 1989]. Zusätzlich existieren experimentelle Untersuchungen in denen das Misch- und Speziestransportverhalten von TCRs mittels einer chemischen Parallelreaktion bestimmt wird [Marchisio und Barresi, 2003].

2.2.1 Modell für den Stoffübergang zwischen benachbarten Wirbeln

Ein einfaches Modell, das den axialen Stofftransport bei Wavy-Strömung beschreibt, fasst zwei nebeneinander liegende Wirbel zu einem Paar zusammen [Kataoka und Takigawa, 1981]. Diese werden so gewählt, dass die Wirbelströmung in der Grenzfläche zwischen den Paaren in Richtung des Innenzylinders zeigt (Abb.2.3), wobei jedes als ideal durchmischt angesehen wird. Da über die Grenzflächen zwischen zwei Paaren Stofftransport möglich ist, wird zusätzlich ein Stoffübergangskoeffizient k_{CB} eingeführt, mit dessen Hilfe eine Massenbilanz für das n te Wirbelpaar

$$V \frac{dC_n}{dt} = k_{CB} S (C_{n-1} - 2C_n + C_{n+1}) \quad (2.54)$$

definiert werden kann. Hierbei ist V das Volumen eines Wirbelpaares und S die Grenzfläche zwischen zwei benachbarten Wirbelpaaren. Für sie gilt näherungsweise

$$S = \pi(R_2^2 - R_1^2) \quad (2.55)$$

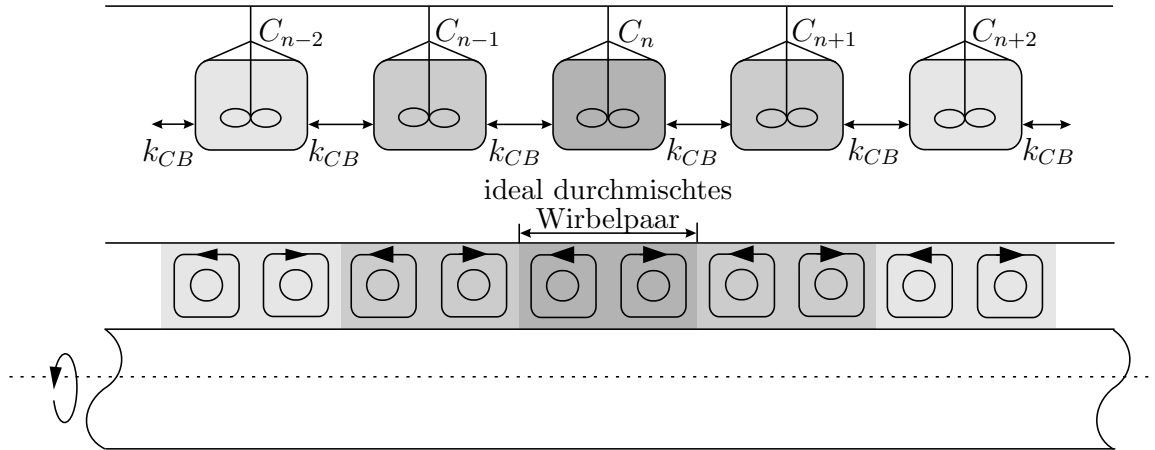


Abbildung 2.3: Modell zur Beschreibung des axialen Stofftransports zwischen Wirbelpaaren bei Wavy-Strömung.

und

$$V = \pi(R_2^2 - R_1^2)2d. \quad (2.56)$$

Mit Hilfe experimenteller Daten kann per Anpassung hieraus der Wert von k_{CB} numerisch bestimmt werden.

Werden Diffusionsvorgänge berücksichtigt, die lediglich in axialer Richtung wirken, kann ein effektiver axialer Diffusionskoeffizient D_z bestimmt werden. Allgemein kann der Transport eines Stoffes mit der Konzentration $C(z, t)$ in einem leeren Rohr als

$$\frac{\partial C(z, t)}{\partial t} + v_z \frac{\partial C(z, t)}{\partial z} = D_z \frac{\partial^2 C(z, t)}{\partial z^2}, \quad (2.57)$$

beschrieben werden, wobei v_z die Geschwindigkeit des Fluids in axialer Richtung ist [vgl. Taylor, 1953; Aris, 1959]. Dies kann auch auf TCRs unter der Voraussetzung angewendet werden, dass sich die Spezies in radialer und tangentialer Richtung auf einer Zeitskala vermischen, die deutlich kleiner ist als die für den Speziestransport in axialer Richtung und der beobachtete Bereich viel größer ist als ein Wirbel [Tam und Swinney, 1987]. Ohne axiale Strömung vereinfacht sich Gleichung 2.57 zu

$$\frac{\partial C(z, t)}{\partial t} = D_z \frac{\partial^2 C(z, t)}{\partial z^2}. \quad (2.58)$$

Unter der Annahme, dass der Reaktor im Verhältnis zum Querschnitt sehr lang ist, kann er als unendlich lang angesehen werden, da in diesem Fall die Speziesakkumula-

tion an den axialen Begrenzungen einen vernachlässigbaren Einfluss auf die Speziesverteilung hat. Für eine Tracerzugabe in Form eines Dirac-Impulses δ_a bei $x = a$

$$\delta(x) = \begin{cases} 0 & x \neq a \\ \infty & x = a \end{cases} \quad (2.59)$$

in einen unendlich langen TCR ergibt sich für die analytische Lösung

$$C(z, t) = \frac{1}{2\sqrt{\pi D_z t}} e^{-z^2/4D_z t}. \quad (2.60)$$

Damit gilt für das Verhältnis der Konzentrationen an den zwei Punkten z_1 und z_2

$$\ln \left(\frac{C(z_1, t)}{C(z_2, t)} \right) = -\frac{z_1^2 - z_2^2}{4D_z t}. \quad (2.61)$$

Der effektive Diffusionskoeffizient D_z kann über die Steigung von $\ln(C(z_1, t)/C(z_2, t))$ gegen $1/t$ bestimmt werden [Ohmura et al., 1997].

Der Nachteil dieses Modellansatzes ist die unzureichende örtliche Auflösung, da er damit die Transportvorgänge innerhalb eines Wirbels beziehungsweise zwischen den beiden Wirbeln innerhalb eines Paares nicht beschreiben kann und deshalb die real ablaufenden Prozesse nicht richtig wiedergegeben werden können. Besonders durch das Zusammenfassen zweier Wirbel zu einem einzigen als ideal durchmischt angenommenen Bereich ist die Übertragung von der Wavy- auf die Taylor-Couette-Strömung wenig sinnvoll und nur begrenzt anwendbar. In dieser Arbeit wird gezeigt, dass ein Wirbel nicht als ideal durchmischter Rührkessel angesehen werden kann.

2.2.2 Das Rührkesselkaskaden-Modell

Mit Hilfe eines Rührkesselkaskaden-Modells kann der Stoffübergang zwischen zwei benachbarten Wirbelhüllen und den dazu gehörigen Zentren beschrieben werden. In diesem Modell wird ein Wirbel durch einen idealen Rührkessel, der die äußeren Wirbelschichten darstellt, und einem Austauschvolumen, das den Wirbelkern repräsentiert, beschrieben. Zwischen benachbarten Rührkesseln und dem jeweils dazugehörigen Austauschvolumen findet der Stofftransport über einen Volumenstrom statt. Wird der Tracer am Reaktorfuß zugeführt und am Reaktorkopf abgenommen, ohne dass ein axialer Fluß entsteht (Abb.2.4), kann die Tracerkonzentration in jeder Wirbelhülle

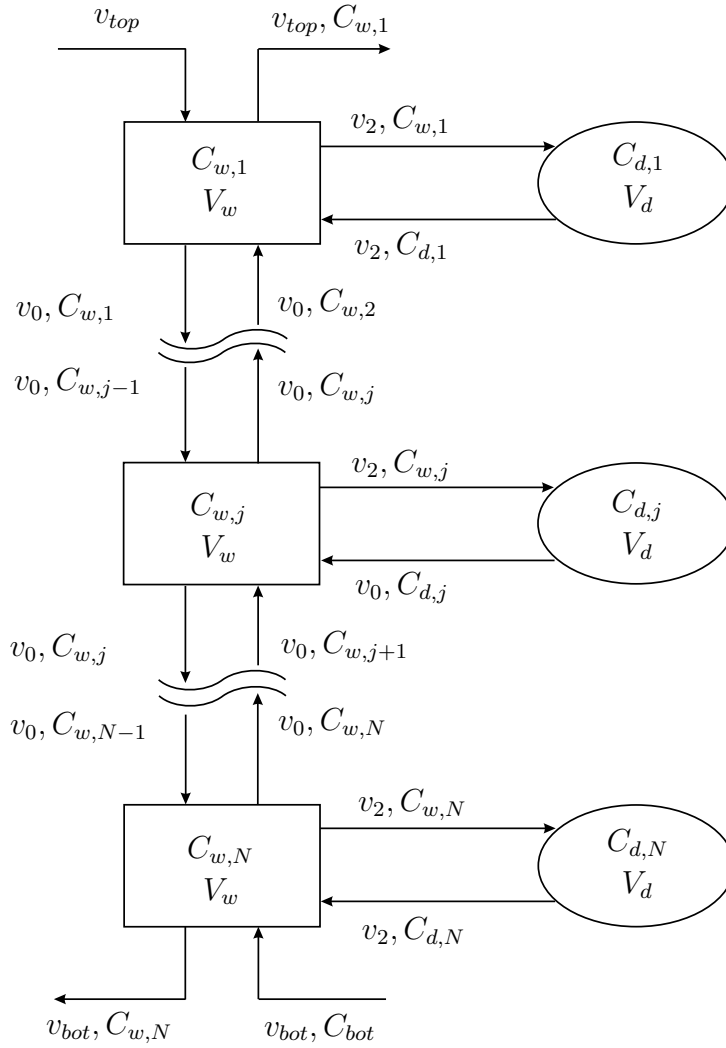


Abbildung 2.4: Schematischer Aufbau des Rührkesselkaskadenmodells mit Austauschvolumen.

(Rührkessel) mittels der Massenbilanz

$$\frac{dC_{w,1}}{dt} = D_s(C_{w,2} - C_{w,1}) - \left(\frac{v_{top}}{V_w}\right) C_{w,1} + \left(\frac{v_2}{V_w}\right) (C_{d,1} - C_{w,1}), \quad (2.62)$$

$$\frac{dC_{w,j}}{dt} = D_s(C_{w,j+1} - 2C_{w,j} + C_{w,j-1}) + \left(\frac{v_2}{V_w}\right) (C_{d,j} - C_{w,j}), \quad (j = 2, N - 1) \quad (2.63)$$

$$\frac{dC_{w,N}}{dt} = D_s(C_{w,N-1} - C_{w,N}) + \left(\frac{v_{bot}}{V_w}\right) (C_{bot} - C_{w,N}) + \left(\frac{v_2}{V_w}\right) (C_{d,N} - C_{w,N}) \quad (2.64)$$

beschrieben werden [Campero und Vigil, 1997]. Hierbei beschreiben v_{bot} und v_{top} den Volumenzu- und -abstrom am Reaktorfuß und am Reaktorkopf, v_0 den Volumenstrom zwischen zwei benachbarten Rührkesseln, v_2 den Volumenstrom zwischen einem Rührkessel und dem dazugehörigen Austauschvolumen, V_T das Gesamtvolumen eines Wirbels, φ den Anteil des Austauschvolumens am Volumen eines Wirbels, $V_w = (1 - \varphi)V_T$ das Volumen eines Rührkessels, C_w die dazugehörige Spezieskonzentration, V_d das Austauschvolumen, C_d die entsprechende Spezieskonzentration, τ_d die Verweilzeit im Austauschvolumen, $D_s = v_0/V_w = D_{\text{eff}}(N/L)^2$ den skalierten effektiven Diffusionskoeffizienten, L die Reaktorlänge und N die Anzahl der Wirbel. Mit Hilfe experimenteller Daten können die Modellparameter D_{eff} , τ_d und φ numerisch bestimmt werden.

Der Vorteil dieses Modells besteht darin, dass die Transportvorgänge in einem Wirbel zumindest ansatzweise berücksichtigt werden.

2.2.3 Zwei- und Mehrzonenmodelle

Ein globaler axialer Dispersionskoeffizient beschreibt sowohl den Speziestransport zwischen zwei benachbarten Wirbeln wie auch den innerhalb der Wirbel, so dass derartige Modelle (Abschnitt 2.2.1) den Stofftransport in TCRs oftmals nur unzureichend wiedergeben, da die beiden zugrundeliegenden Transportprozesse auf zwei unterschiedlichen Zeitskalen ablaufen [Desmet et al., 1996]. Zur besseren Beschreibung der Vorgänge sind deshalb mindestens zwei Parameter notwendig, für die das Zweizonenmodell einen möglichen Ansatz liefert. Bei ihm wird jeder Wirbel in Anlehnung an seine zellulare Struktur in zwei ideal durchmischte, konzentrische, quadratische Volumina unterteilt: eine innere Zone, deren Fluidelemente keinen direkten Kontakt zur Grenzfläche zwischen zwei benachbarten Wirbeln haben. Dazu ergänzend kommt eine äußere, deren Fluidelemente sich mit denen der inneren Zone und den äußeren Zonen der benachbarten Wirbel austauschen können (Abb. 2.5). Der Stofftransport innerhalb eines Wirbels wird durch den Parameter K_c und der zwischen zwei benachbarten durch den Parameter K_i modelliert. Da die sekundäre Wirbelströmung auf einer viel schnelleren Zeitskala abläuft als die Dispersion sowohl zwischen zwei Wirbeln wie auch innerhalb eines Wirbels, kann innerhalb der jeweiligen Zonen eine ideale Durchmischung entlang der Strömungslinien angenommen werden. Mit den

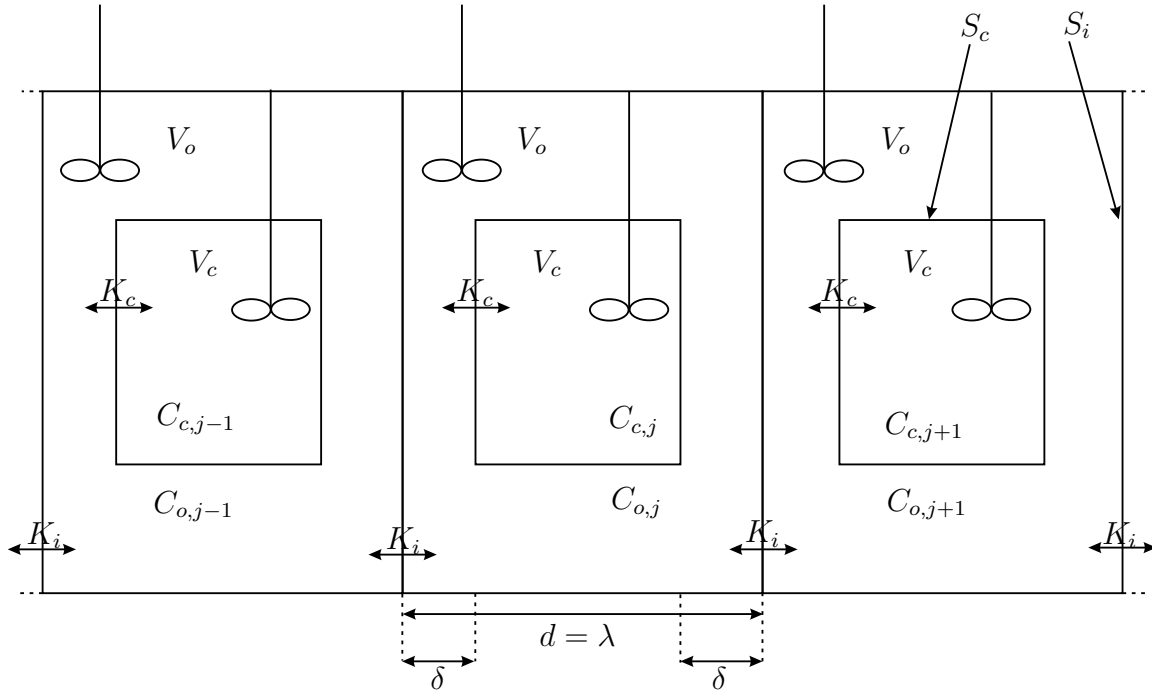


Abbildung 2.5: Schematischer Aufbau des Zweizonenmodells.

Tracerkonzentrationen $C_{o,j}$ für die äußeren und $C_{c,j}$ für die inneren Zonen ergeben sich folgende Massenbilanzen:

Für die inneren Zonen:

$$\frac{dC_{c,j}}{dt} = \Psi(C_{o,j} - C_{c,j}), \quad (j = 1, N) \quad (2.65)$$

mit

$$\Psi = \frac{K_c S_c}{V_c} = \frac{4K_c}{d - 2\delta} \quad (2.66)$$

und für die äußeren Zonen:

$$\frac{dC_{o,1}}{dt} = \phi(C_{o,2} - C_{o,1}) + \varphi(C_{c,1} - C_{o,1}), \quad (2.67)$$

$$\frac{dC_{o,j}}{dt} = \phi(C_{o,j-1} - 2C_{o,j} + C_{o,j+1}) + \varphi(C_{c,j} - C_{o,j}), \quad (j = 2, N - 1), \quad (2.68)$$

$$\frac{dC_{o,N}}{dt} = \phi(C_{o,N-1} - C_{o,N}) + \varphi(C_{c,N} - C_{o,N}) \quad (2.69)$$

mit

$$\phi = \frac{K_i S_i}{V_o} = \frac{K_i d}{4\delta(d - \delta)} \quad (2.70)$$

und

$$\varphi = \frac{K_c S_c}{V_o} = \frac{K_c(d - 2\delta)}{\delta(d - \delta)}. \quad (2.71)$$

Hierbei sind V_o und V_c die Volumina der äußeren und der inneren Zone, S_c die Grenzfläche zwischen der äußeren und der inneren Zone, S_i die Grenzfläche zwischen zwei benachbarten äußeren Zonen, d der Abstand zwischen zwei Grenzflächen S_i (entspricht der Spaltbreite) und δ der Abstand zwischen der inneren Zone zur nächsten Grenzfläche S_i . Mit experimentellen Daten können dann die Modellparameter K_i und K_c per Anpassung numerisch bestimmt werden [Desmet et al., 1996].

Dieses Modell hat den Vorteil, dass es ansatzweise die Transportvorgänge innerhalb eines Wirbels beschreiben kann und mit Hilfe mehrerer Parameter die verschiedenen Zeitskalen berücksichtigt, auf denen Stofftransport innerhalb eines TCRs stattfindet. Dieses Zweizonenmodell kann weiter verbessert werden, indem die Anzahl N_z der ideal durchmischten Zonen erhöht wird (Abb. 2.6). Dadurch wird eine bessere Wiederga-

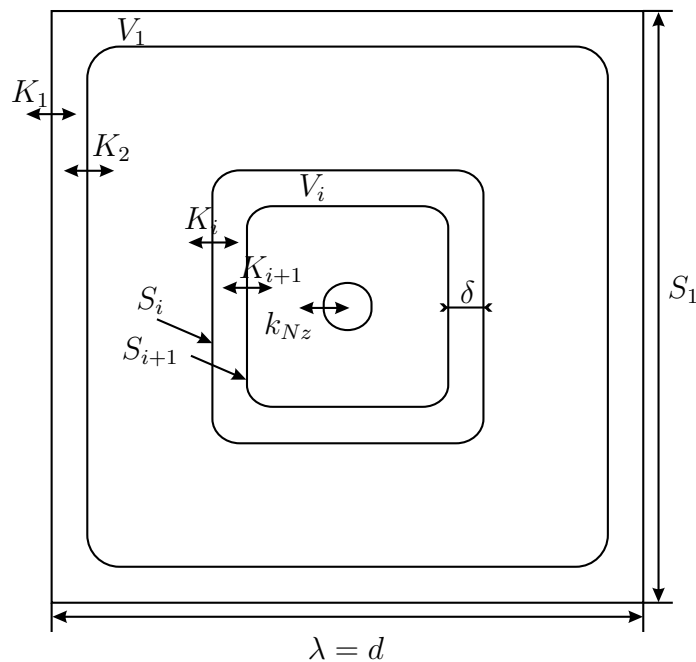


Abbildung 2.6: Schematischer Aufbau des Mehrzonenmodells in Anlehnung an das Zweizonenmodell.

be der Transportvorgänge innerhalb der Wirbel möglich. Außerdem ist eine größere Anzahl von Anfangstracerkonfigurationen beschreibbar. Für die Massenbilanz erhält

man ein System aus N_z gewöhnlichen Differentialgleichungen für jeden der N Wirbel. Für die äußere Schicht ($i = 1$) gilt

$$V_1 \frac{dC_{1,j}}{dt} = K_1 S_1 \Phi_j + K_2 S_2 (C_{2,j} - C_{1,j}), \quad j = 1, N \quad (2.72)$$

mit

$$\Phi_j = \begin{cases} C_{1,2} - C_{1,1}, & j = 1 \\ C_{1,j+1} - 2C_{1,j} + C_{1,j-1}, & j = 2, N-1 \\ C_{1,N_z-1} - C_{1,N_z}, & j = N. \end{cases} \quad (2.73)$$

Für die innerste Schicht ($i = N_z$) gilt

$$V_{N_z} \frac{dC_{N_z,j}}{dt} = K_{N_z} S_{N_z} (C_{N_z-1,j} - C_{N_z,j}), \quad j = 1, N \quad (2.74)$$

und für die dazwischen liegenden Schichten ($i = 2, N_z - 1$) gilt

$$V_i \frac{dC_{i,j}}{dt} = K_i S_i (C_{i-1,j} - C_{i,j}) + K_{i+1} S_{i+1} (C_{i+1,j} - C_{i,j}), \quad j = 1, N. \quad (2.75)$$

Auch hier können die Modellparameter numerisch aus experimentellen Daten ermittelt werden. Bei der Modellierung können zusätzlich verschiedene Formen der einzelnen Zonen berücksichtigt werden (Abb. 2.7), wobei sich die Formen, die die

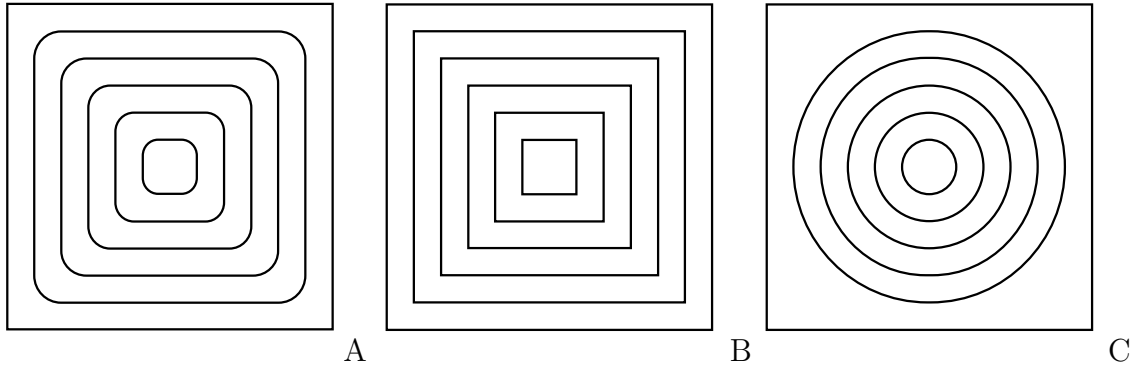


Abbildung 2.7: Mögliche Formen für die Zonen des Mehrzonenmodells.

- A) den Strömungslinien angepasste Zonen, B) quadratische Zonen,
- C) kreisförmige Zonen.

Strömungslinien der sekundären Wirbelströmung möglichst gut nachbilden, als vorteilhaft erwiesen haben [Desmet et al., 1997].

2.2.4 Mehrdimensionales Dispersionsmodell

Ein anderer Ansatz, mit dem Speziestransport in TCRs beschrieben werden kann, ist das Dispersionsmodell. Es wird dabei die Annahme gemacht, dass die Dispersion in Umfangsrichtung (Azimuth) keine Funktion des Winkels ist, so dass sie mit Hilfe eines Parameters D_{tan} beschrieben werden kann. Ist die Tracerverteilung bezüglich eines Schnitts durch die Spaltebene homogen, kann der Stofftransport in radialer Richtung unberücksichtigt bleiben. Für diesen Fall ergibt sich für die Massenbilanz

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{v_{tan}}{R_m} \frac{\partial C}{\partial \theta} + \frac{D_{tan}}{R_m^2} \frac{\partial^2 C}{\partial \theta^2} + D_{ax} \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}. \quad (2.76)$$

Der erste Term auf der rechten Seite der Gleichung beschreibt die Konvektion in tangentialer, der zweite und der dritte Term die Dispersion in tangentialer beziehungsweise axialer Richtung. Die Abhängigkeit der Umfangsgeschwindigkeit von der radialen Koordinate bleibt unberücksichtigt, stattdessen wird eine mittlere Geschwindigkeit v_{tan} und der mittlere Radius R_m verwendet. Bringt man einen Tracerblock in das System ein, wie in Abbildung 2.8 gezeigt, lauten die Anfangsbedingungen:

$$t = 0 : \quad C = C_0[H(h+x)] - H[(h-x)][H(\theta_1 + \theta) - H(\theta_1 - \theta)] \quad (2.77)$$

wobei H die Heaviside-Funktion

$$H(x) = \begin{cases} 0 : & x < 0 \\ 1 : & x \geq 0 \end{cases} \quad (2.78)$$

bezeichnet. Die axiale Ausdehnung des Tracerblocks beträgt $2h$, was der Ausdehnung eines Wirbels entspricht. Für den Fall, dass der Tracer in der Mitte des TCRs eingebracht und keine axiale Strömung berücksichtigt wird, lauten die Randbedingungen an den Reaktorenden

$$x = \pm \frac{L}{2} : \quad \frac{\partial C}{\partial x} = 0. \quad (2.79)$$

Da kein effektiver Fluss in Umfangsrichtung vorhanden ist, kann die Dispersion in dieser Richtung durch

$$\theta = \pm \pi : \quad \frac{\partial C}{\partial \theta} = 0 \quad (2.80)$$

ausgedrückt werden. Die entsprechenden Randbedingungen lauten mit der Winkelgeschwindigkeit $\bar{\omega}$

$$\theta = \pm \pi + \bar{\omega}t : \quad \frac{\partial C}{\partial \theta} = 0. \quad (2.81)$$

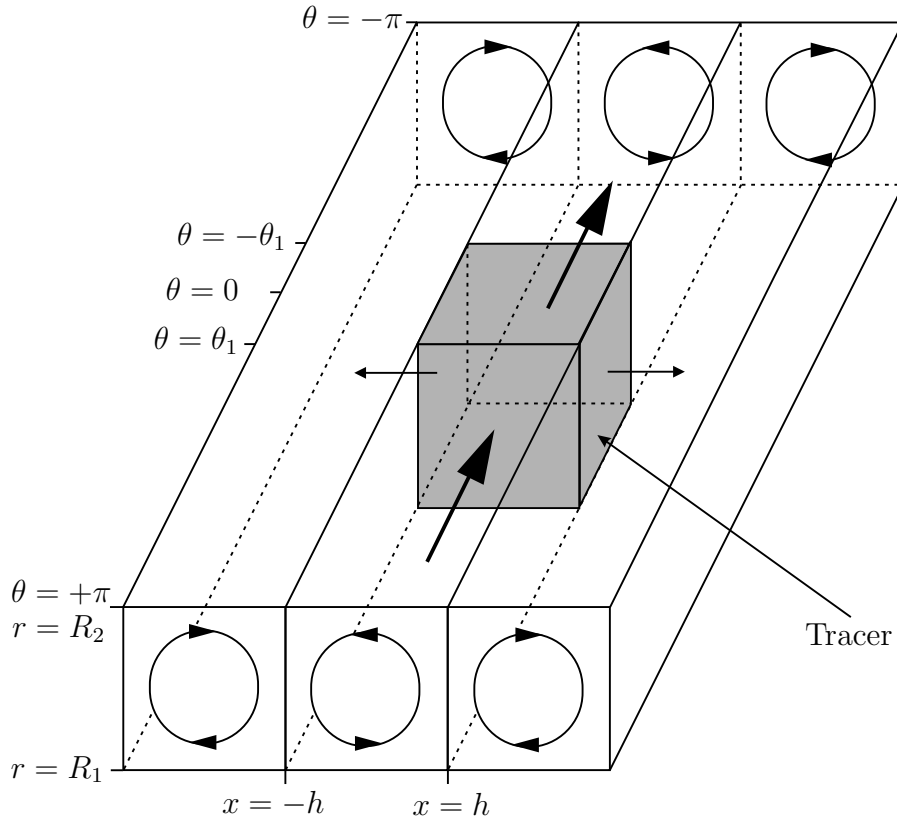


Abbildung 2.8: Schematischer Aufbau eines geeigneten Tracerexperiments für das Dispersionsmodell.

Die Lösung dieser Gleichungen kann als Produkt aus den Lösungen zweier eindimensionaler Probleme beschrieben werden [Carslaw und Jaeger, 1959]:

$$C(x, \theta, t) = C_{ax}(x, t)C_{tan}(\theta, t). \quad (2.82)$$

In dieser Gleichung ist C_{ax} die Lösung des axialen Dispersionsproblems

$$\frac{\partial C_{ax}}{\partial t} = D_{ax} \frac{\partial^2 C_{ax}}{\partial x^2} \quad (2.83)$$

mit

$$t = 0 : \quad C_{ax} = C_0[H(x + h) - H(x - h)] \quad (2.84)$$

$$x = \pm \frac{L}{2} : \quad \frac{\partial C_{ax}}{\partial x} = 0 \quad (2.85)$$

und C_{tan} die Lösung des tangentialen Dispersionsproblems

$$\frac{\partial C_{tan}(\theta, t)}{\partial t} = \bar{D}_{tan} \frac{\partial C_{tan}(\theta, t)}{\partial \theta^2} + \bar{\omega} \frac{\partial C_{tan}(\theta, t)}{\partial \theta} \quad (2.86)$$

mit

$$R_m = \frac{R_1 + R_2}{2}, \quad \bar{D}_{tan} = \frac{D_{tan}}{R_m^2}, \quad \bar{\omega} = \frac{v_{tan}}{R_m} \quad (2.87)$$

und

$$t = 0 : \quad C_{tan} = C_0[H(\theta + \theta_1) - H(\theta - \theta_1)] \quad (2.88)$$

$$\theta = \pm\pi + \bar{\omega}t : \quad \frac{\partial C}{\partial \theta} = 0. \quad (2.89)$$

Die Lösung des axialen Dispersionsproblems (2.83) erfolgt für einen unendlich langen Reaktor ($C_{ax} = 0$ an der Stelle $x = \pm\infty$) unter Zuhilfenahme der *Laplace* Transformation und führt zu

$$C_{ax}(x, t) = \frac{C_0}{2} \left[\operatorname{erf} \left(\frac{h+x}{2\sqrt{D_{ax}t}} \right) + \operatorname{erf} \left(\frac{h-x}{2\sqrt{D_{ax}t}} \right) \right], \quad (2.90)$$

wobei

$$\operatorname{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z e^{-t^2} dt \quad (2.91)$$

ist. Da keine axiale Strömung berücksichtigt wird, kann diese Lösung auf einen endlichen Reaktor durch Reflektion der Lösung des Problems eines unendlich langen Reaktors an den Stellen der Reaktorenden übertragen werden [Carslaw und Jaeger, 1959] und führt zu der Lösung

$$C_{ax}(x, t) = \frac{C_0}{2} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \left[\operatorname{erf} \left(\frac{h-x+nL}{2\sqrt{D_{ax}t}} \right) + \operatorname{erf} \left(\frac{h+x-nL}{2\sqrt{D_{ax}t}} \right) \right]. \quad (2.92)$$

Das tangentielle Dispersionsproblem wird zunächst für unendliche Abmessungen ohne Zirkulation mit den Randbedingungen

$$\theta = \pm\infty : \quad C_{tan} = 0 \quad (2.93)$$

gelöst. Man erhält

$$C_{tan}(\theta, t) = \frac{C_0}{2} \left[\operatorname{erf} \left(\frac{\theta_1 + \theta - \bar{\omega}t}{2\sqrt{\bar{D}_{tan}t}} \right) + \operatorname{erf} \left(\frac{\theta_1 - \theta + \bar{\omega}t}{2\sqrt{\bar{D}_{tan}t}} \right) \right]. \quad (2.94)$$

Diese Lösung wird anschließend über eine unendliche Anzahl von Perioden ($T_{per} = 2\pi R_m/v_{tan}$) summiert. Für das tangentielle Dispersionsproblem ergibt sich somit die Lösung

$$C_{tan}(\theta, t) = \frac{C_0}{2} \sum_{n=0}^{+\infty} \left[\operatorname{erf} \left(\frac{\theta_1 + \theta - \bar{\omega}t}{2\sqrt{\bar{D}_{tan}t}} \right) + \operatorname{erf} \left(\frac{\theta_1 - \theta - 2n\pi + \bar{\omega}t}{2\sqrt{\bar{D}_{tan}t}} \right) \right]. \quad (2.95)$$

Das Produkt aus den Gleichungen 2.92 und 2.95 ist somit eine Lösung des Dispersionsproblems in Gleichung 2.76.

Ein Vergleich zwischen diesem Modell und Ergebnissen aus experimentellen Verweilzeitmessungen zeigt, dass das Modell den Speziestransport unter Anfangsbedingungen, wie sie in Abbildung 2.8 gezeigt werden, sehr gut beschreiben kann [Desmet et al., 1996]. Dabei wird der Transport zwischen benachbarten Wirbeln und innerhalb der Wirbel in Umfangsrichtung wiedergegeben. Der Stofftransport innerhalb eines Wirbels wird aber nicht vollständig aufgelöst, da die radiale Richtung in diesem Modell nicht berücksichtigt wird. Das Modell ist somit in seiner Anwendbarkeit auf geeignete Anfangstracerkonfigurationen beschränkt.

2.3 Theoretische Grundlagen des Mischens

Das Mischen gehört zu den verfahrenstechnischen Grundoperationen. Ziel ist es, verschiedene Stoffe möglichst gleichmäßig zu verteilen. Dies bedeutet, dass die Zusammensetzung von Proben aus einer Mischung mit der Gesamtzusammensetzung der Mischung weitgehend übereinstimmt [Stieß, 1995]. Der verfahrenstechnische Aufwand ist dabei umso höher, je näher der ideale Mischzustand, und damit die vollständige Homogenität, erreicht werden soll. Um das Ergebnis einer Mischung beurteilen zu können, muss die Abweichung von diesem idealen Zustand quantitativ erfasst werden [Zogg, 1987].

Bei technischen Mischprozessen von gegenseitig ineinander löslichen Komponenten lassen sich häufig zwei parallel zueinander ablaufende Teilvorgänge unterscheiden. Durch den einen wird, meist über freie Konvektion oder äußere Krafteinwirkung, die Oberfläche zwischen den verschiedenen Fluidelementen unterschiedlicher Spezieskonzentration vergrößert. Beim zweiten Teilvorgang findet molekulare Diffusion über die gemeinsame Oberfläche zwischen diesen Fluidelementen statt. Der zuletzt beschriebene Vorgang ist sehr langsam, erfolgt aber spontan ohne äußeren Antrieb und läuft auch nach Beendigung des ersten Teilprozesses solange weiter, bis ein homogener Zustand erreicht ist.

2.3.1 Skala und Intensität der Segregation

In der Literatur finden sich eine Vielzahl Methoden, die Mischintensität eines Systems zu beschreiben. Die meisten sind der Intensität der Segregation sehr ähnlich; eine Übersicht findet sich bei [Boss, 1986]. Oftmals wird zur Beschreibung einer Mischung die Mischintensität

$$M = 1 - \sqrt{I} = 1 - \frac{\sigma}{\sigma_{max}} \quad (2.96)$$

verwendet [Rose, 1959]. Sie basiert auf der Intensität der Segregation

$$I = \frac{\sigma^2}{\sigma_{max}^2} \quad (2.97)$$

nach Danckwerts [Danckwerts, 1952] mit

$$\sigma^2 = \frac{1}{|V|} \int_V (c - \bar{c})^2 dV \quad (2.98)$$

und

$$\sigma_{max}^2 = \bar{c}(c_{max} - \bar{c}). \quad (2.99)$$

Hierbei bezeichnet c die Spezieskonzentration, \bar{c} dessen Mittelwert und σ_{max}^2 die maximal im Konzentrationsfeld möglich Varianz. Die Mischintensität ist nicht sensitiv gegenüber der Längenskala, auf der Segregation auftritt (Abb. 2.9), so dass diese für eine aussagekräftige Beschreibung eines Mischzustandes durch ein Maß für die Skala der Segregation erweitert werden muss. In den Teilbildern 2.9 A,B,C sieht man, wie die Mischintensität als Folge zunehmender Durchmischung zunimmt. Andererseits wird in den Teilbildern 2.9 A,D,E,F deutlich, dass die Bestimmung der Mischintensität als alleiniges Maß zur Beschreibung der Mischintensität nicht ausreicht. Obwohl hier die Segregation von links nach rechts abnimmt, erhält man für die Mischintensität immer den gleichen Wert ($M = 0$), der der vollständigen Segregation entspricht. Die in [Danckwerts, 1952] vorgeschlagene *Skala der Segregation* beruht auf einer Autokorrelation des Konzentrationsfeldes und ist direkt nur auf eindimensionale Problemstellungen anwendbar. Die Übertragung auf dreidimensionale Fälle ist mit einem sehr großen Rechenaufwand verbunden und hat keine klare anschauliche Bedeutung. Im Rahmen dieser Arbeit wird deshalb das *Potential für diffusives Mischen*

$$\Phi(V) = \frac{1}{|V|} \int_V \|\nabla f\| dV \quad (2.100)$$

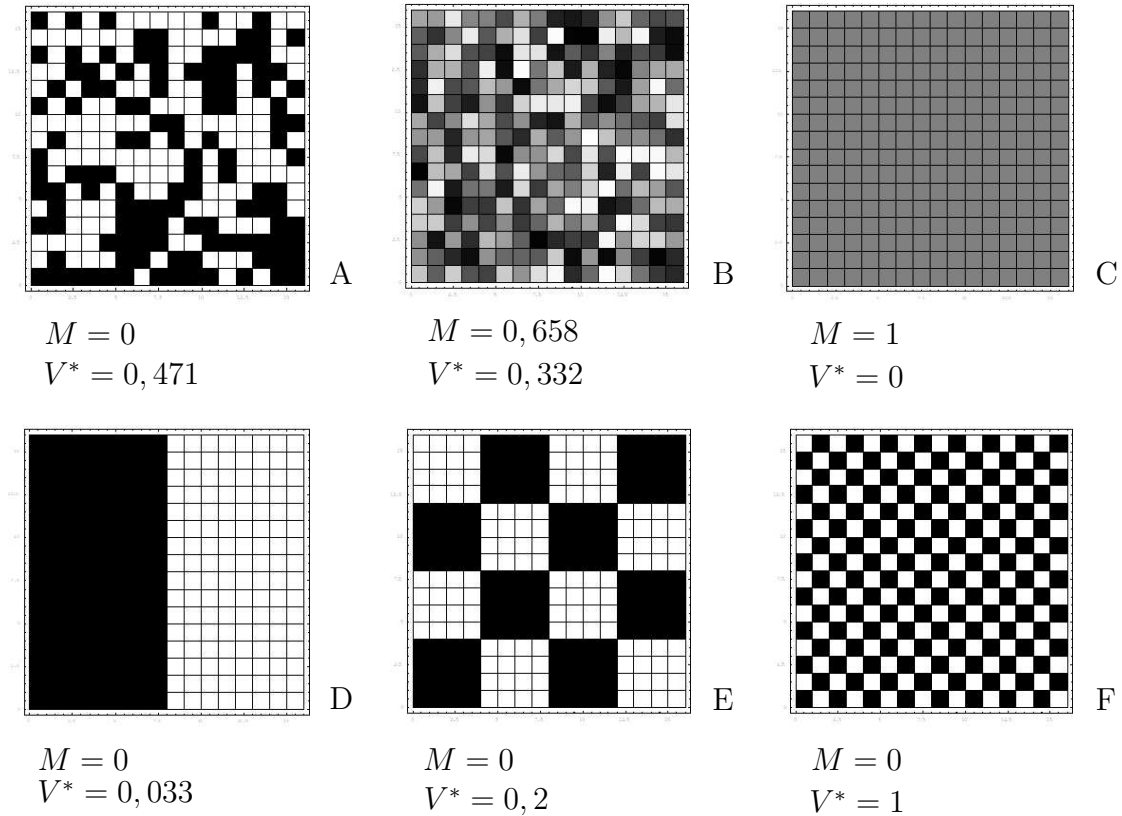


Abbildung 2.9: Die Mischintensitäten und das normierte Potenzial für diffusives Mischen ($V^* = \Phi/\Phi_{max}$) für verschiedene Formen der Segregation.

mit

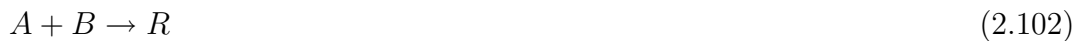
$$f = \frac{c}{c_{max}} \quad (2.101)$$

als Maß verwendet [Bothe, 2004]. Hierbei bedeutet $|V|$ den Volumeninhalt von V und $\|\nabla\|$ die Länge des Gradienten der normierten Konzentration. Die erhaltene Größe Φ kann mit verschiedenen Ergebnissen anschaulich interpretiert werden. Sie kann als Maß für die im Konzentrationsfeld enthaltene Triebkraft verstanden werden, um entsprechende Gradienten auszugleichen. Zusätzlich ist sie, zumindest für stark segregierte Zustände, ein Maß für die spezifische Kontaktfläche zwischen Bereichen unterschiedlicher Konzentrationen. Das Reziproke dieser Größe kann als mittlerer Abstand zwischen diesen Bereichen verstanden werden und ist damit auch zur Beschreibung der Längenskala, auf der Segregation vorherrscht, geeignet. Im Rahmen dieser Arbeit wird sowohl die Mischgüte M nach Gleichung 2.96, als auch das Poten-

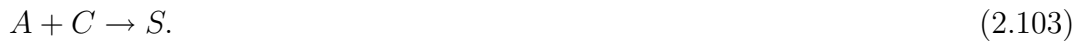
zial für diffusives Mischen Φ zur Beurteilung der Mischungsqualität beziehungsweise der Mischzustände verwendet.

2.3.2 Bestimmung der Segregation mittels chemischer Reaktion

Um das Mischverhalten eines chemischen Reaktors zu bestimmen, können auch Parallelreaktionen genutzt werden. Das hierzu nötige Reaktionssystem besteht in der Regel aus einer quasi-instantanen Reaktion



und einer zweiten schnellen Reaktion



Neben der Fällung von Bariumsulfat und anschließender Untersuchung der Kristallgrößenverteilung wird hierzu häufig die Iodid-Iodat-Reaktion verwendet. Hierbei ist $A = H^+$, $B = H_2BO_3^-$, $C = 5/6I^-$, $R = H_3BO_3$ und $S = 1/2I_2$ [Fournier et al., 1996]. Die Menge des entstandenen Iods kann nach der Folgereaktion $I_2 + I^- \rightleftharpoons I_3^-$ photometrisch bei einer Wellenlänge von 353 nm bestimmt werden. Prinzipiell wird dabei so vorgegangen, dass eine kleine Menge einer Lösung, die den limitierenden Reaktanden A enthält, zu einer Lösung, die ein Gemisch der Komponenten B und C enthält, gegeben wird. In einem ideal gemischten System ist A sofort über das gesamte Volumen gleichmäßig verteilt, so dass lediglich die erste Reaktion abläuft. Im anderen Fall kommt es lokal zu einem Überschuss der Komponente A und in Folge dessen läuft an diesen Stellen auch die zweite Reaktion ab. Die Konzentration der Komponente S ist somit ein Maß für die Segregation im untersuchten Reaktor. Die Selektivität s der zweiten Reaktion ist das Verhältnis zwischen der von ihr verbrauchten Stoffmenge des Stoffes A zu der eingebrachten Stoffmenge von A , also

$$s = \frac{2n_{I_2}}{n_{H^+}} = \frac{2V_R c_S}{v_i c_{A_0}} \quad (2.104)$$

wobei V_R das Reaktorvolumen, v_i das Volumen der Lösung mit der Komponente A und c_{A_0} deren Anfangskonzentration ist. Im Fall maximaler Segregation hängt s lediglich vom Verhältnis der Konzentrationen von A und B

$$s_{TS} = \frac{c_{C_0}/c_{B_0}}{c_{C_0}/c_{B_0} + 1} \quad (2.105)$$

ab. Der Segregationsgrad im Reaktor kann so mit Hilfe der Kennzahl

$$X_S = \frac{s}{s_{TS}} \quad (2.106)$$

beschrieben werden. Im Fall idealer Durchmischung nimmt sie den Wert 0 an und im gegenteiligen Fall 1 [Marchisio und Barresi, 2003]. Der Vorteil dieser Methode liegt darin, dass die entstandene Stoffmenge der Schlüsselkomponente S sowohl für den gesamten Reaktor wie auch örtlich aufgelöst, bestimmt werden kann.

3 Numerische Simulationen

Die Grundlage der numerischen Simulation der Taylor-Couette-Strömung ist die Lösung der Navier-Stokes-Gleichungen für dichtebeständige Fluide bestehend aus der Impulsbilanz

$$\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{u} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = -\frac{1}{\rho} \nabla p + \nu \Delta \mathbf{u} + \mathbf{g} \quad (3.1)$$

und der Volumenerhaltung

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad (3.2)$$

wobei \mathbf{u} den Geschwindigkeitsvektor, \mathbf{g} Körperkräfte (z.B hervorgerufen durch Gravitation), p den Druck, ρ die Dichte und ν die kinematische Viskosität darstellt. ∇ steht für den Nabla-Operator in kartesischen Koordinaten

$$\nabla = \frac{\partial}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial y} + \frac{\partial}{\partial z}, \quad (3.3)$$

und Δ für den Laplace-Operator

$$\Delta = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}. \quad (3.4)$$

Durch Einführung der Referenzgrößen L , U_0 , und p_0 in Kombination mit den Fluideigenschaften lauten sie in dimensionsloser Schreibweise

$$\frac{\partial}{\partial t'} \mathbf{u}' + (\mathbf{u}' \cdot \nabla') \mathbf{u}' = -\nabla' p' + \frac{1}{Re} \Delta' \mathbf{u}' \quad (3.5)$$

und

$$\nabla' \cdot \mathbf{u}' = 0. \quad (3.6)$$

Hierbei bedeuten

$$\mathbf{u}' = \frac{\mathbf{u}}{U_0} \quad (3.7)$$

$$x'_1 = x_1/L, \quad y'_1 = y_1/L, \quad z'_1 = z_1/L, \quad (3.8)$$

$$t' = tU_0/L \quad (3.9)$$

$$p' = \frac{p - p_0 - \rho \mathbf{g} h}{\rho U_0^2} \quad (3.10)$$

$$Re = \frac{LU_0}{\nu}. \quad (3.11)$$

und ∇' der Nabla-Operator unter Berücksichtigung der dimensionslosen Ortsvektoren. Zusätzlich wird der Speziestransport basierend auf molekularer Fick'scher Diffusion mit Hilfe der Speziesgleichung

$$\frac{\partial}{\partial t} c + \mathbf{u} \nabla c = \frac{1}{Re Sc} \Delta c \quad (3.12)$$

modelliert, wobei $Sc = \nu/D$ die Schmidtzahl mit dem Diffusionskoeffizienten D bezeichnet.

Zur Lösung der Gleichungen wird das CFD-Programm *Fluent* in der Version 6.1.18 verwendet. Die dort verwendete Diskretisierung basiert auf dem *Finite Volumen-*Verfahren.

3.1 Geometrie und Diskretisierung

Grundsätzlich sollten zur Validierung der mittels numerischer Simulation untersuchten Geometrie experimentelle Daten zur Verfügung stehen. Im Idealfall sollte dabei das gesamte Strömungsfeld im TCR zur Überprüfung der Rechnungen bekannt sein, um möglichst gute Aussagen über die Genauigkeit der numerischen Simulationen treffen zu können. Allerdings finden sich hierzu in der Literatur nur unzureichend Daten, da es schwierig ist, die Strömung nicht invasiv zu untersuchen. Hinzu kommt die Vielzahl der verschiedenen möglichen Strömungszustände, die jeweils einzeln untersucht werden müssten. Neuere Meßverfahren wie die PIV (Particle Image Velocimetry) können möglicherweise in Zukunft zu neuen experimentellen Erkenntnissen führen. Ersatzweise können Informationen über den ersten Bifurkationspunkt zwischen der

Couette- und der Taylor-Couette-Strömung herangezogen werden, da hier bereits experimentelle Daten zu Verfügung stehen. Im Rahmen dieser Arbeit wird daher das Mischverhalten in einer Geometrie untersucht, zu der diese Informationen vorliegen. Dazu wird eine der in Taylors Arbeiten genutzten Geometrien und dem entsprechend Wasser als Fluid verwendet (Tabelle 3.1) [Taylor, 1923].

Tabelle 3.1: Geometrische Abmessungen des untersuchten TCRs und die physikalischen Eigenschaften des Fluids (Wasser).

Radius des Innenzylinders	R_1	0,0355 m
Radius des Außenzylinders	R_2	0,04035 m
Spaltbreite	$d = R_2 - R_1$	0,00485 m
Dichte	ρ	998,2 kg m ⁻³
dynamische Viskosität	η	0,001003 Pa s
kinematische Viskosität	$\nu = \eta/\rho$	1,004 10 ⁻⁶ m ² s ⁻¹

Für die numerischen Simulationen besteht hier die Möglichkeit sowohl ein zwei- wie auch ein dreidimensionales Rechengitter zu verwenden. Ein zweidimensionales rotationssymmetrisches Gitter hat den Vorteil, dass es eine hohe räumliche Auflösung bei verhältnismäßig kurzen Rechenzeiten ermöglichen sollte. Von Nachteil ist, dass es mit derartigen Gittern aufgrund der erzwungenen Symmetrie nicht möglich ist, eine Vielzahl höherer Strömungsmoden zu simulieren. Aus demselben Grund sind hier auch die Möglichkeiten zur Untersuchung der Richtungsabhängigkeit des Speziestransports eingeschränkt. Hinzu kommen numerische Probleme, da die Komponente der Geschwindigkeitsvektoren senkrecht zum Gitter berücksichtigt werden muss. Außerdem kann die Kopplung zwischen den Impulserhaltungsgleichungen in der Gitterebene mit der in Umfangsrichtung zu Instabilitäten während der Lösung führen [Fluent Inc., 2003], was die Simulation deutlich erschwert und die Vorteile somit relativiert.

Ein dreidimensionales Rechengitter hat den Vorteil, dass es eine große Anzahl von Anfangstracerkonfigurationen zur Untersuchung der Richtungsabhängigkeit des Speziestransports zulässt. Zusätzlich ermöglicht es die Simulation höherer Strömungsmoden. Nachteile sind eine schlechtere räumliche Auflösung des Gitters oder, bei einer entsprechend hohen Anzahl an Gitterelementen, lange Rechenzeiten und ein großer Speicherbedarf.

Die Rechengitter können aus verschiedenen Elementen bestehen. Im zweidimensiona-

len Fall können drei- und viereckige Elemente gewählt werden, im dreidimensionalen prismaförmige, pyramidale, tetraedrische und hexaedrische (Abb. 3.1), wobei auch Kombinationen aus den jeweiligen Typen möglich sind. Die Anwendung von vier-

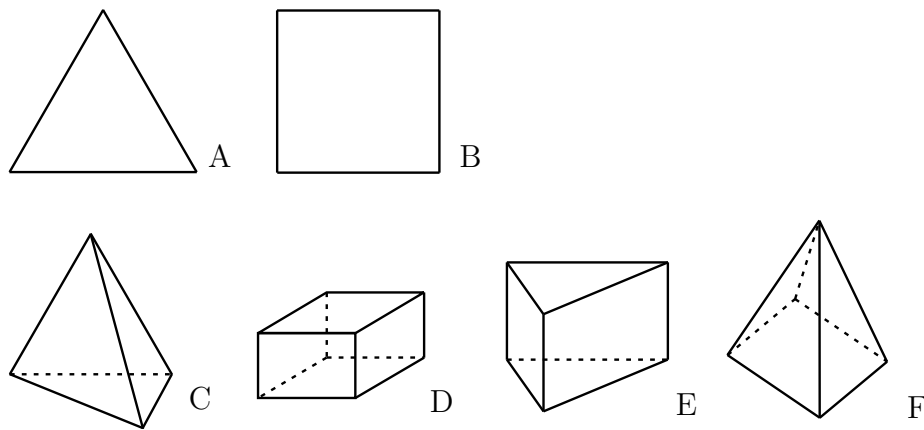


Abbildung 3.1: Übersicht von möglichen Gitterelementen.

2D: A) dreieckig, B) viereckig,

3D: C) tetraedrisch, D) hexaedrisch, E) prismaförmig, F) pyramidal.

eckigen und hexaedrischen Elementen, die zu strukturierten Gittern führen, gestaltet sich bei komplexen Geometrien sehr schwierig. Sie haben aber den Vorteil, dass die numerische Diffusion reduziert wird, wenn die Elemente in Richtung der Strömung ausgerichtet sind. Desweiteren erleichtern strukturierte Gitter die Datenauswertung, da die zu einer Zelle benachbarten Elemente leicht zu finden sind.

Im Rahmen dieser Arbeit wird ein dreidimensionales, strukturiertes, aus Hexaedern bestehendes Gitter verwendet. Die Spaltbreite wird mit 15 Zellen aufgelöst, die axiale Richtung mit 15 Zellen pro Wirbel und die Umfangsrichtung mit 460 Zellen (Abb. 3.2), was zu annähernd kubischen Elementen führt. Die verwendeten Gitter wurden mit dem Programm *Gambit*, Version 2.0.4, erstellt.

Im Hinblick auf die Leistungsfähigkeit heutiger Arbeitsplatzcomputer ist es bei einer derartigen Auflösung erforderlich, das Rechengebiet in axialer Richtung einzuschränken, um in einem akzeptablen Zeitrahmen von bis zu einigen Tagen Ergebnisse zu erhalten. Die axiale Ausdehnung wird daher auf die doppelte beziehungsweise die sechsfache Spaltbreite reduziert. Dies macht die Wahl geeigneter Randbedingungen an den axialen Begrenzungen des Rechengebiets notwendig, um eine Beeinflussung

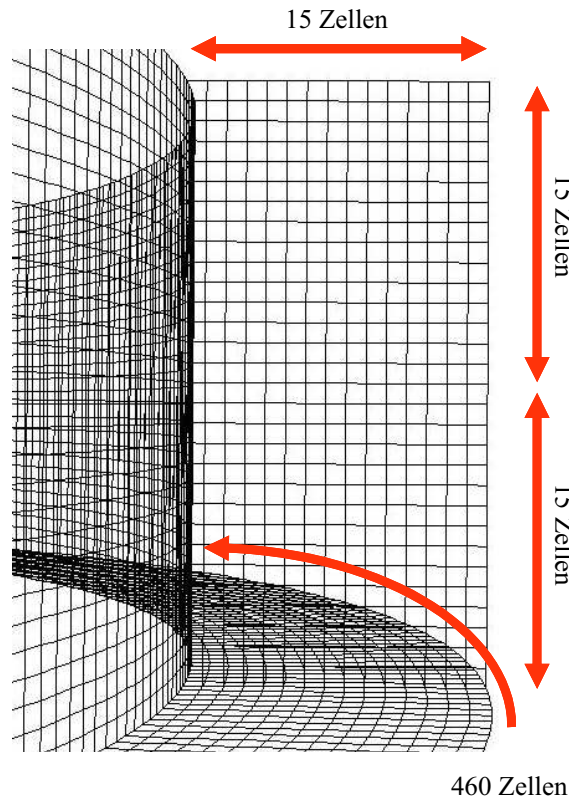


Abbildung 3.2: Ein Ausschnitt aus dem verwendeten Gitter. Die Spaltbreite sowie die axiale Wirbelgröße wird mit jeweils 15 Zellen aufgelöst, die Umfangsrichtung mit 460.

der Strömung zu verhindern. Dazu wird die Scherspannung τ

$$\tau = \nu \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial n} \quad (3.13)$$

an den axialen Rändern auf den Wert null gesetzt und zusätzlich wird für diese Begrenzungen die Undurchlässigkeit für Spezies vorgegeben. Dies führt dazu, dass bei vorhandener Taylor-Couette-Strömung eine weitere Erhöhung der Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders zu keiner weiteren Bifurkation führt. In Hinblick auf reale Systeme kann dies aber sinnvoll sein, da die axiale Reaktorlänge die weitere Bifurkation beeinflusst und dazu deutlich höhere Zylinderdrehzahlen benötigt werden, wenn es sich um einen relativ kurzen TCR handelt [Cole, 1976].

Der äußere Zylinder stellt eine für Spezies undurchlässige stationäre Wand mit der

Haftbedingung

$$\mathbf{u}(R_2) = 0 \quad (3.14)$$

dar. Für den Innenzylinder gelten die gleichen Bedingungen mit dem einzigen Unterschied, dass er eine bewegte Wand mit der Geschwindigkeit Ω_1 darstellt und somit die Haftbedingung

$$\mathbf{u}_\theta(R_1) = \Omega_1 R_1 \quad (3.15)$$

und

$$\mathbf{u}_r = \mathbf{u}_z = 0 \quad (3.16)$$

lautet.

3.2 Numerische Berechnung des Strömungsfelds

Zur Berechnung des Strömungsfelds stehen eine Vielzahl numerischer Verfahren zur Verfügung. Im Rahmen dieser Arbeit wird ein entkoppelter Löser (*Segregated Solver*) verwendet. Dies bedeutet, dass für die Berechnung einer Variablen der unbekannte Wert in jeder Zelle unter Einbeziehung der vorhandenen und unbekanntenen Werte der benachbarten Zellen erfolgt. Folglich erscheint jeder unbekannter Wert in mehr als einer Gleichung im System, so dass diese simultan gelöst werden müssen. Bei transienten Berechnungen erfolgt die zeitliche Diskretisierung nach einem Verfahren zweiter Ordnung

$$F(\phi) = \frac{2\phi_{n+1} - 4\phi_n + \phi_{n-1}}{2\Delta t}, \quad (3.17)$$

wobei ϕ_k ein Skalar zur Zeit $n = t$, $n - 1 = t - \Delta t$ oder $n + 1 = t + \Delta t$ ist. Die Impuls- und die Speziesgleichung wird nach dem *Upwind-Verfahren* zweiter Ordnung diskretisiert. Hierbei wird der Wert eines Skalars ϕ auf einer Gitterzellenfläche aus der stromaufwärts gelegenen Zelle über

$$\phi_f = \phi + \nabla\phi \cdot \Delta\vec{s} \quad (3.18)$$

berechnet, dabei stellt ϕ den zellenzentrierten Wert in der stromaufwärts gelegenen Zelle, $\nabla\phi$ dessen Gradient und \vec{s} den Abstandsvektor von Zellmittelpunkt zur Fläche dar. Die Bestimmung von $\nabla\phi$ erfolgt in diskreter Form über

$$\nabla\phi = \frac{1}{V} \sum_f \tilde{\phi}_f \vec{A}, \quad (3.19)$$

wobei V das Zellvolumen und \vec{A} die Größe der Fläche f bezeichnet. $\tilde{\phi}_f$ ist der Mittelwert von ϕ der beiden an die entsprechende Fläche angrenzenden Zellen. Der Druck auf einer Zellfläche wird auf eine ähnliche Art berechnet [Barth und Jespersen, 1989]. Die Kopplung von Druck und Geschwindigkeit erfolgt über den *SIMPLEC*-Algorithmus (Semi-Implicit Method for Pressure-Linked Equations - Consistent) [Van-doormaal und Raithby, 1984], der auf dem *SIMPLE*-Algorithmus [Patankar, 1980] basiert. Tabelle 3.2 zeigt eine Übersicht der verwendeten Verfahren.

Tabelle 3.2: Übersicht der verwendeten numerischen Verfahren.

Löser	Segregated
Linearisierung	implizit
Genauigkeit	doppelt
zeitliche Diskretisierung	zweiter Ordnung
Impuls	Upwind zweiter Ordnung
Speziestransport	Upwind zweiter Ordnung
Druck	zweiter Ordnung
Druck-Geschwindigkeitskopplung	SIMPLEC

Als Konvergenzkriterium müssen die Residuen einen Wert von 10^{-5} unterschreiten.

3.3 Überprüfung des numerisch berechneten Strömungsfelds

Das numerische Verfahren wird zuerst mit Hilfe des Bifurkationspunkts zwischen der Couette- und der Taylor-Couette-Strömung überprüft. Hierzu wird erst das stationäre Strömungsfeld mit einer festen Drehgeschwindigkeit Ω_1 des Innenzylinders berechnet. Danach wird durch Untersuchung der Geschwindigkeitsvektoren überprüft, welcher

der beiden Strömungszustände vorliegt. Im Fall der Couette-Strömung sind die Geschwindigkeitskomponenten orthogonal zur Drehrichtung des Innenzylinders gleich Null. Bei der Taylor-Couette-Strömung sind sie außer in den Wirbelzentren und direkt an den Zylinderwänden, das heißt an den Stellen R_1 und R_2 , ungleich Null. Zusätzlich kann am Bifurkationspunkt ein sprunghafter Anstieg der Komponenten des Wirbelvektors

$$\xi = \nabla \times \mathbf{u}, \quad (3.20)$$

die senkrecht zur Drehrichtung des Innenzylinders stehen, um den Faktor 300, sowie der Helizität

$$h = (\nabla \times \mathbf{u})\mathbf{u} \quad (3.21)$$

um den Faktor 35 beobachtet werden. Durch Variation der Drehgeschwindigkeit kann der kritische Wert für den Übergang zwischen den beiden Strömungsformen ermittelt werden. Der Vergleich der numerischen Simulationen mit experimentellen und theoretischen Daten [Taylor, 1923] sowie mit der Näherungsformel

$$\Omega_{1,krit} = \frac{\nu}{R_1 d} \sqrt{\frac{R_1}{d}} \left(41,2 + \frac{24,8d}{R_1} + \frac{2,3d^2}{R_1^2} \right) \quad (3.22)$$

[Haas und Bühler, 1989] zeigt eine gute Übereinstimmung (Tabelle 3.3).

Tabelle 3.3: Vergleich verschiedener Wert für $\Omega_{1,krit}$ aus der Literatur und der numerischen Simulation.

Verfahren	$\Omega_{1,krit} [rad/s]$
theoretisch	0,698
experimentell	0,707
nach Gl.3.22	0,704
numerische Simulation	0,70

Zusätzlich wird überprüft, ob das berechnete Strömungsfeld von der Gitterauflösung abhängt. Dazu wird das Strömungsfeld mit drei verschiedenen Gitterauflösungen (Tabelle 3.4) berechnet und die Ergebnisse verglichen. Es zeigt sich dabei, dass die Abweichungen zwischen den drei Strömungsfeldern sehr gering sind. In Abbildung 3.3 ist dies exemplarisch für die Geschwindigkeitskomponente senkrecht zu einer Schnittebene durch den Spalt in der axialen Höhe von $0,0021 \text{ m}$ für die verschiedenen untersuchten Auflösungen in Abhängigkeit von der radialen Position dargestellt.

Tabelle 3.4: Verschiedene Gitterauflösungen zur Überprüfung des Strömungsfelds.

	radial	axial	Umfangsrichtung	Zellenanzahl pro Wirbel
grobe Auflösung	10	10	306	30600
mittlere Auflösung	15	15	460	103500
feine Auflösung	24	24	736	423936

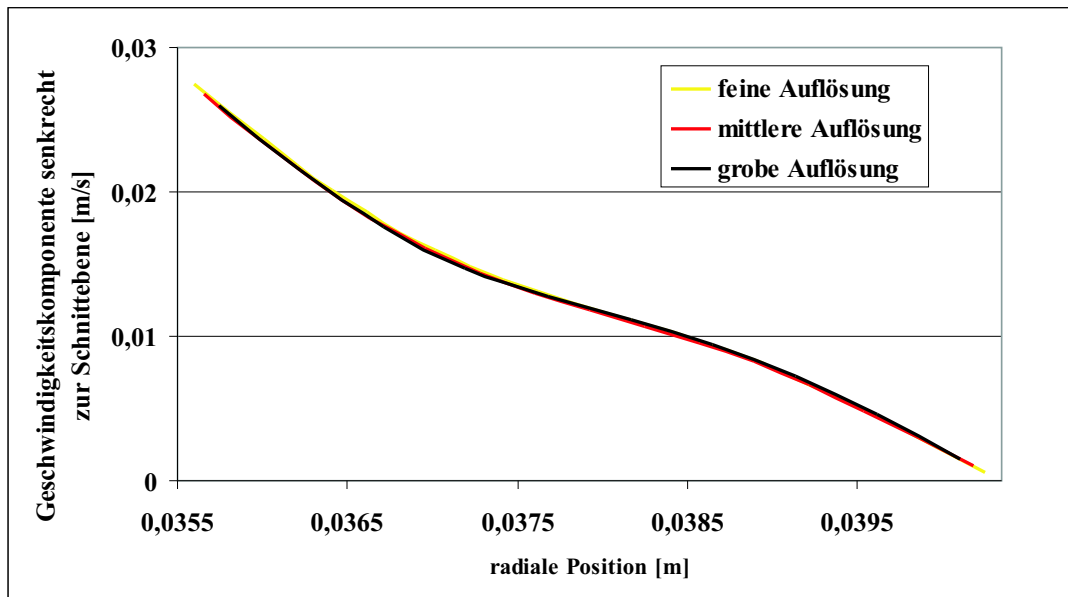


Abbildung 3.3: Geschwindigkeitskomponente senkrecht zu einer Schnittebene durch den Spalt in Abhängigkeit von der radialen Position für drei unterschiedliche Gitterauflösungen (axiale Höhe: 0,0021 m). Die dargestellten Linien überdecken sich teilweise.

3.4 Untersuchung der numerischen Diffusion der Spezies

Bei der numerischen Berechnung des Spezietransports können die Ergebnisse durch numerische Diffusion (auch falsche Diffusion genannt) verfälscht werden. Bei ihr handelt es sich nicht um ein reales Phänomen, vielmehr ist sie eine Folge der Approximation der Transportgleichungen in diskreter Form. Besonders stark wirkt sie sich aus, wenn die reale Diffusion relativ klein im Vergleich zur Konvektion ist, d.h. der Transport konvektionsdominiert ist. Die Verwendung eines sehr feinen Gitters reduziert die

numerische Diffusion, was aber im Gegenzug die zur Lösung der untersuchten Fragestellung nötige Rechenzeit deutlich erhöht. Oftmals ist es nicht möglich, das Gitter genügend fein aufzulösen, um einen realen Speziestransport ausreichend genau zu berechnen. Aus diesem Grund werden derartige Berechnungen häufig mit veränderten Parametern durchgeführt, um so die numerische Diffusion zu reduzieren. Hierbei wird die Schmidtzahl herabgesetzt, so dass der Transportprozess weniger stark durch die Konvektion dominiert wird. Dies kann über die Erhöhung des Diffusionskoeffizienten und über die Herabsetzung der kinematischen Viskosität geschehen. Letzteres führt gleichzeitig zu einer Veränderung der Reynoldszahl, so dass sich das Strömungsfeld ebenfalls ändern, was in der Regel nicht erwünscht ist.

Ein guter Hinweis darauf, inwieweit die numerischen Simulationsergebnisse durch numerische Diffusion beeinflusst werden, liefert ein Vergleich der Ergebnisse, die unter ansonsten gleichen Parametern mit Hilfe verschieden fein aufgelöster Gitter errechnet werden. Abbildung 3.4 zeigt die zeitliche Entwicklung der Mischintensität bei einer

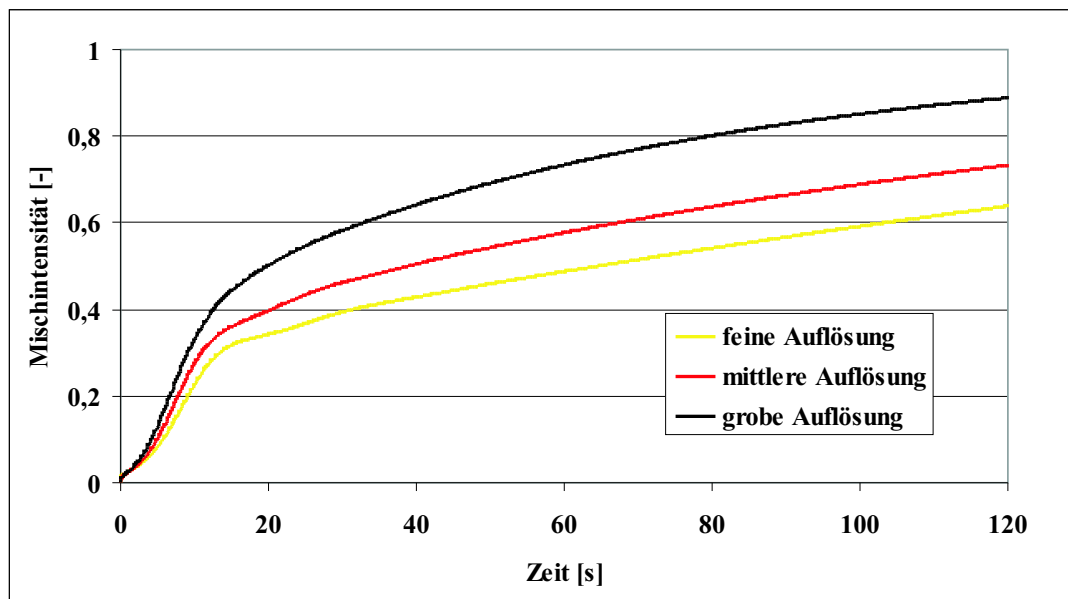


Abbildung 3.4: Zeitliche Entwicklung der Mischintensität bei einer Schmidtzahl von 528 für verschiedene Gitterauflösungen.

Schmidtzahl von 528 für drei verschieden fein aufgelöste Gitter, wie sie bereits in Abschnitt 3.3 beschrieben worden sind. Dabei wird eine Anfangstracerkonfiguration verwendet, bei der das einen Doppelwirbel umfassende Rechengebiet zur Hälfte in

Umfangsrichtung mit Tracer gefüllt ist. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Ergebnisse stark von der Gitterauflösung abhängen. Um verlässlichere Daten zu erhalten, wird geprüft, ob eine Erhöhung des Diffusionskoeffizienten um den Faktor 10, was zu einer Schmidtzahl von 52,8 führt, den Einfluss der numerischen Diffusion ausreichend reduzieren kann. Abbildung 3.5 zeigt die dazugehörige zeitliche Entwicklung

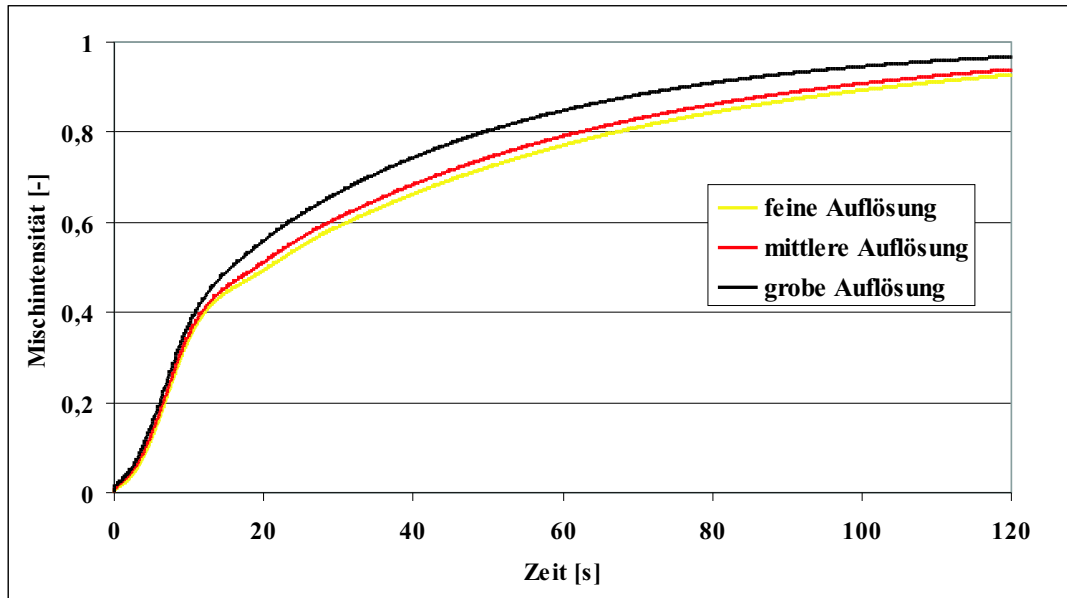


Abbildung 3.5: Zeitliche Entwicklung der Mischintensität bei einer Schmidtzahl von 52,8 für verschiedene Gitterauflösungen.

der Mischintensität für die drei verschieden fein aufgelösten Gitter bei der gleichen Anfangstracerkonfiguration. Zwischen den Ergebnissen für die feine und die mittlere Auflösung ist kaum noch ein Unterschied erkennbar. Bei dem Gitter grober Auflösung ist die Mischintensität aufgrund der numerischen Diffusion deutlich höher. Um den Einfluss der numerischen Diffusion auf die Simulationsergebnisse klein zu halten, werden deshalb die meisten Tracerexperimente mit einer Schmidtzahl von 52,8 durchgeführt. Dabei wird, um die für die Rechnungen nötige Zeit zu reduzieren, das Gitter mittlerer Auflösung verwendet.

3.5 Durchführung und Auswertung der numerischen Tracerexperimente

Bei den numerischen Tracerexperimenten wird ein Teil des Fluids durch Tracer ersetzt. Beide besitzen die gleichen physikalischen Eigenschaften (Tabelle 3.1), wobei die Diffusion des Tracers mit einem Diffusionskoeffizienten D von $1,9 \cdot 10^{-8} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$ berücksichtigt wird, was dem 10fachen Wert einer wässrigen Kaliumchloridlösung entspricht. Da das Strömungsfeld im untersuchten Geschwindigkeitsbereich des Innenzylinders zeitlich stationär ist, wird nur noch die Speziesgleichung (Gl. 3.12) gelöst. Um die Datenmengen, die bei den numerischen Tracerexperimenten entstehen, in einer handhabbaren Größenordnung von ungefähr 100 Megabyte pro Rechnung zu halten, werden nicht alle erzeugten Daten gespeichert, sondern wichtige Zielgrößen bereits während der Rechnung aus ihnen bestimmt. Dies erfolgt mittels selbst geschriebener *UDFs* (User Defined Function) in der Programmiersprache *C*.

Vor der Rechnung wird jeder Zelle des Gitters ein Wertetriple zugewiesen, das seine relative Position in axialer, radialer und Umfangsrichtung zur Nachbarzelle beschreibt. Dies ermöglicht Zellen während der eigentlichen Online-Auswertung entsprechend ihrer Position zusammenzufassen und auszuwerten. In Schritten von 0,1 Sekunden werden die Mischintensität nach Gl. 2.96 sowie die minimale, die maximale Konzentration (c_{min}, c_{max}) und die durchschnittliche Konzentration

$$\bar{c} = \frac{1}{n} \sum_1^n c_n \quad (3.23)$$

im gesamten Rechengebiet, in jedem Wirbel und für alle Zellen gleicher Position in axialer, radialer und Umfangsrichtung bestimmt. Dies bedeutet bezogen auf die Gitterauflösung (Abb. 3.2) 15 Positionen pro Wirbel in axialer, 15 in radialer und 460 in Umfangsrichtung. Hinzu kommt noch das Potenzial für diffusives Mischen (2.3.1) in einer Ebene durch den Spalt, einer Ebene zwischen zwei Wirbeln, einer Ebene durch die Wirbelmitte sowie dreidimensional für das gesamte Rechengebiet (Abb. 3.6).

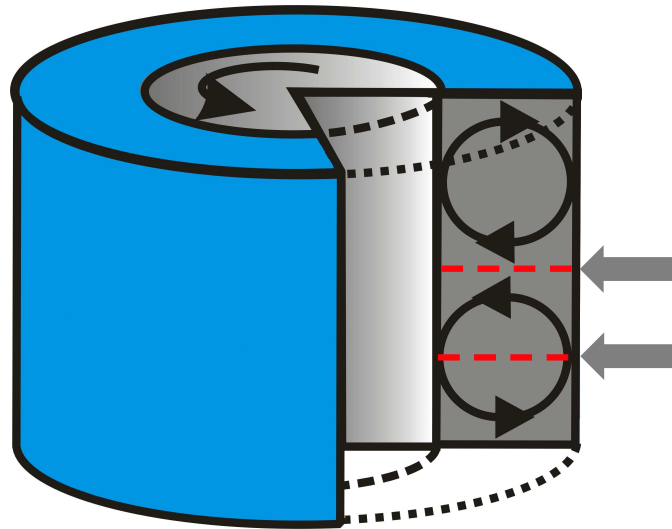


Abbildung 3.6: Übersicht über die Ebenen in denen das Potenzial für diffusives Mischen bestimmt und die Speziesverteilung visualisiert wird. Zum einen die Ebene durch den Spalt (grau) und zum anderen die Ebenen zwischen den Wirbeln bzw durch das Wirbelzentrum (rot gestrichelt).

4 Ergebnisse der numerischen Simulationsrechnungen

Um mit Hilfe der numerischen Simulationsrechnungen die Richtungsabhängigkeit des Mischverhaltens von TCRs zu untersuchen, werden verschiedene Anfangstracerkonzentrationen eingesetzt. Die Analyse erfolgt über die zeitliche Veränderung der Mischintensität und das Potenzial für diffusives Mischen. Dabei wird zusätzlich die Abhängigkeit zwischen der Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders und dem Mischverhalten durch Variationsrechnungen untersucht und mit dem Verhalten bei der Couette-Strömung verglichen.

4.1 Stofftransport in radialer Richtung

Um das Mischverhalten des Taylor-Couette-Reaktors bezogen auf den Spalt in radialer Richtung zu untersuchen, wird der Tracer als Anfangskonfiguration in eine an der inneren Zylinderwand anliegenden Schicht mit einer Breite von 8 der insgesamt 15 Zellen vorgelegt (Abb. 4.1). In Abbildung 4.2 ist die Tracerverteilung zu verschiedenen Zeitpunkten in einer Schnittebene durch den Spalt dargestellt. Es ist dabei deutlich der Einfluss der sekundären Wirbelströmung in der zeitlichen Entwicklung der Tracerverteilung erkennbar. In den beiden Wirbeln wird die Kontaktfläche zwischen den beiden Komponenten durch Streckung vergrößert und die Längenskala, auf denen die Gradienten auftreten, verkleinert (Abb 4.2 B und C). Gleichzeitig erfolgt ein auf Diffusion beruhender Abbau der Konzentrationsgradienten über die große, neu gebildete Kontaktfläche in sehr kurzer Zeit. Bereits nach 30 s sind in der Ebene durch den Spalt nur noch kleine Konzentrationsgradienten vorhanden (Abb. 4.2 E). In den Teilbildern 4.2 C und 4.2 D ist eine schlecht gemischte Zone an der Stelle zu erkennen, an der die Grenze zwischen den Wirbeln und der Außenzylinder zusammen-

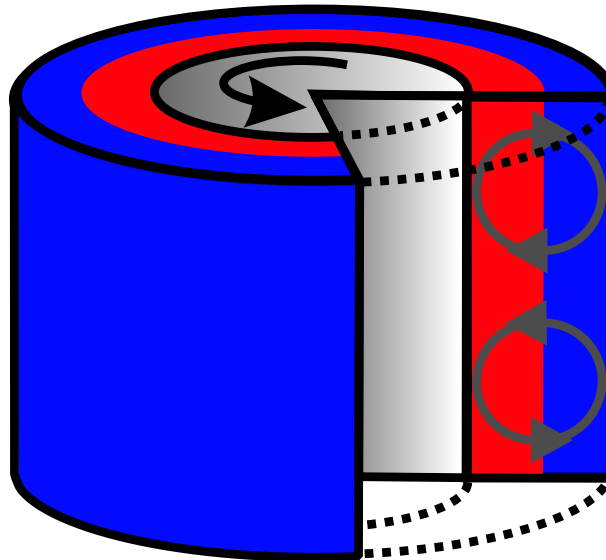


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung der Anfangstracerkonfiguration zur Untersuchung des Mischverhaltens in radialer Richtung bezogen auf den Spalt. Rot: Tracer, Blau: Wasser.

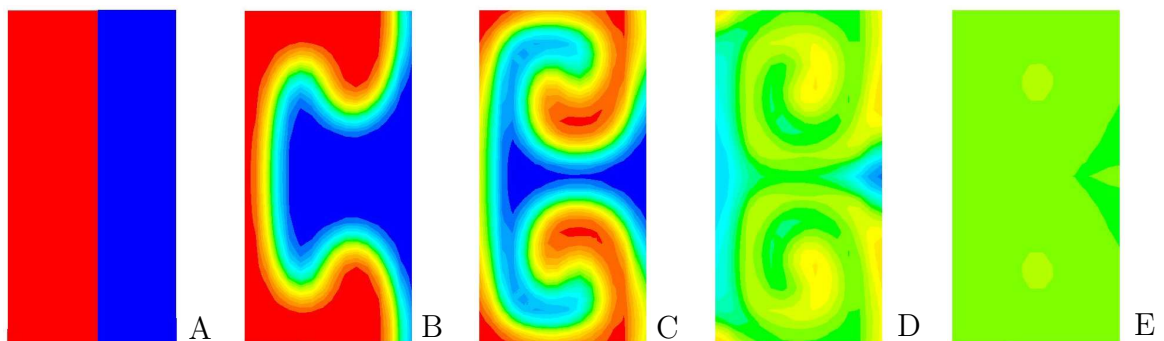


Abbildung 4.2: Tracerverteilung in einem Schnitt durch den Spalt zu den Zeiten A: 0 s, B: 2,5 s, C: 5 s, D: 10 s, E: 30 s bei einer Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$. Rot: Tracer, Blau: Wasser.

treffen. Anhand von Simulationen mit mehreren oder sich in der entgegengesetzten Richtung drehenden Wirbeln kann gezeigt werden, dass diese Totzone lediglich an jeder zweiten Wirbelgrenze auftritt und zwar dort, wo die Sekundärströmung vom Außen- zum Innenzylinder fließt. Am Innenzylinder werden die entsprechenden Zonen nicht beobachtet, da hier durch die größeren Strömungsgeschwindigkeiten ein schnellerer Stofftransport erfolgt.

Abbildung 4.3 zeigt die zeitliche Entwicklung des Potenzials für diffusives Mischen

in einer Ebene zwischen den beiden Wirbeln sowie einer Ebene durch das Wirbelzentrum. Die zeitliche Veränderung der spezifischen Kontaktfläche zwischen den bei-

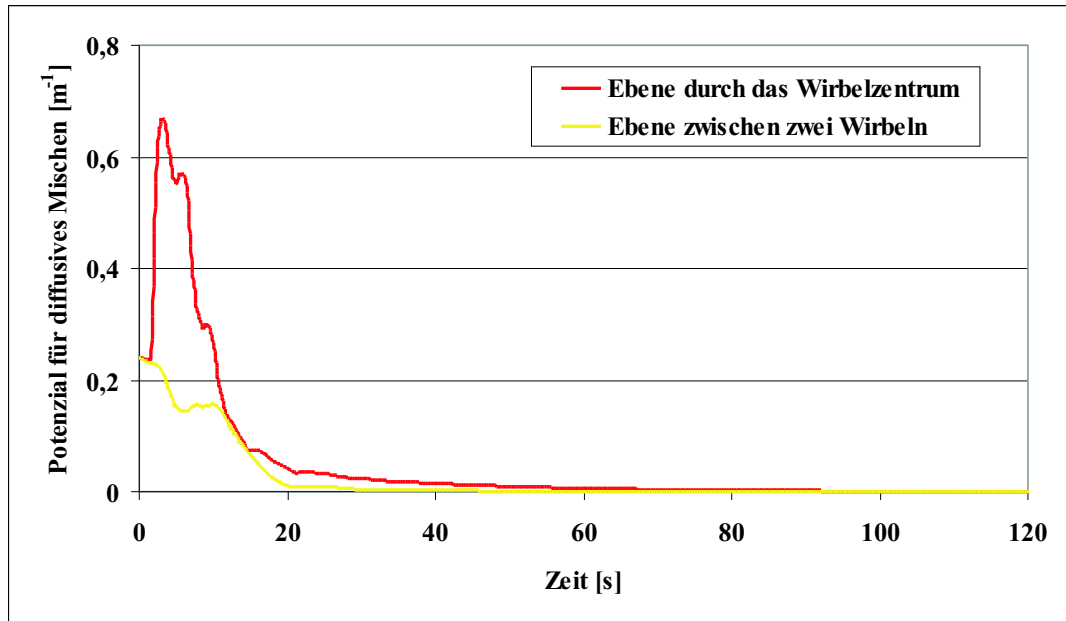


Abbildung 4.3: Zeitlicher Verlauf des zweidimensional berechneten Potentials für diffusives Mischen zwischen den Spezies für die Ebene zwischen den Wirbeln (gelb) und für eine Ebene durch das Wirbelzentrum (rot) bei einer Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$.

den Komponenten ist in den beiden Ebenen sehr verschieden. So entsteht in der Ebene zwischen den Wirbeln kaum neue Kontaktfläche. Vielmehr wird die sich aus der Anfangstracerkonfiguration ergebene Fläche durch die sekundäre Wirbelströmung zunächst lediglich in Richtung des Innenzylinders verschoben. Nach etwa 6 s bildet sich ein kleines, lokales Minimum aus, das dadurch entsteht, dass diese Kontaktfläche die untersuchte Ebene nahe des Innenzylinders verlässt und kurze Zeit später eine neue, vom Außenzylinder aus betrachtet hinter der Totzone liegend, in diese eintritt (Abb. 4.2, Abb. 4.4). Im Gegensatz hierzu nimmt in der Ebene, die durch das Wirbelzentrum verläuft, das Potenzial für diffusives Mischen rasch zu, da hier die von der Anfangstracerkonfiguration vorgegebene Fläche schnell entlang der Strömungslinien durch die sekundäre Wirbelströmung gestreckt wird. Der Mischprozess findet dabei hauptsächlich im inneren Bereich der Wirbel statt (Abb. 4.2, Abb. 4.5). Da die Gradienten hier nur auf sehr kleinen Längenskalen senkrecht zur Kontaktfläche vorhanden

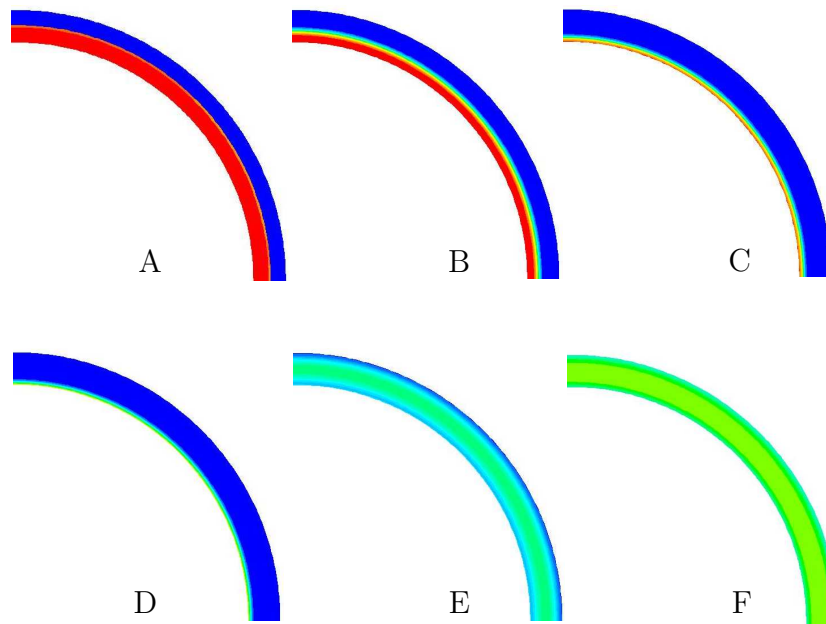


Abbildung 4.4: Tracerverteilung in einem Ausschnitt aus der Ebene, die zwischen den beiden Wirbeln verläuft, zu den Zeiten A: 0 s, B: 1 s, C: 3 s, D: 5 s, E: 9 s, F: 15 s bei einer Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$.

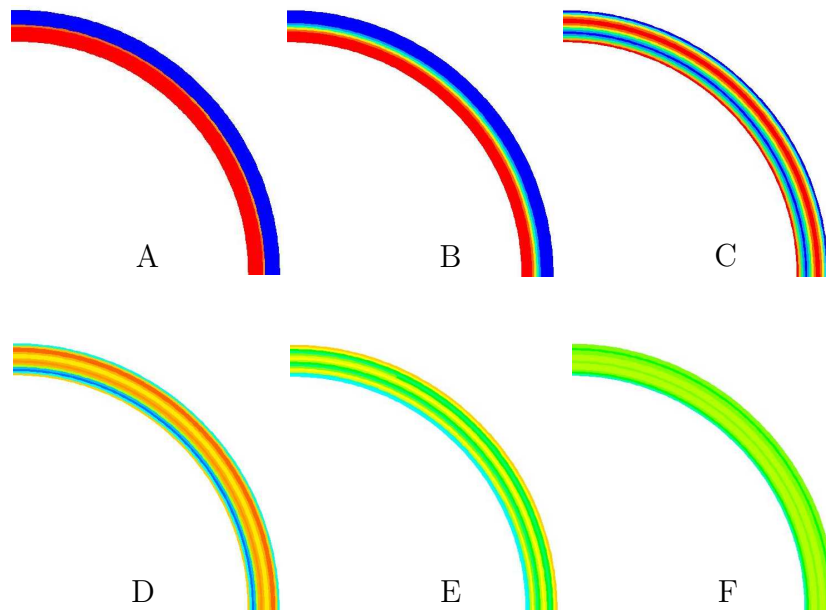


Abbildung 4.5: Tracerverteilung in einem Ausschnitt aus der Ebene, die durch die Mitte eines Wirbels verläuft, zu den Zeiten A: 0 s, B: 1 s, C: 3 s, D: 5 s, E: 9 s, F: 15 s bei einer Drehgeschwindigkeit von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$.

sind, werden sie schnell per Diffusion abgebaut. Dies wird auch bei einem Vergleich zwischen der Mischintensität und des dreidimensional berechneten Potentials für diffusives Mischen deutlich (Abb. 4.6). Die Größe dieser Fläche nimmt zunächst schnell

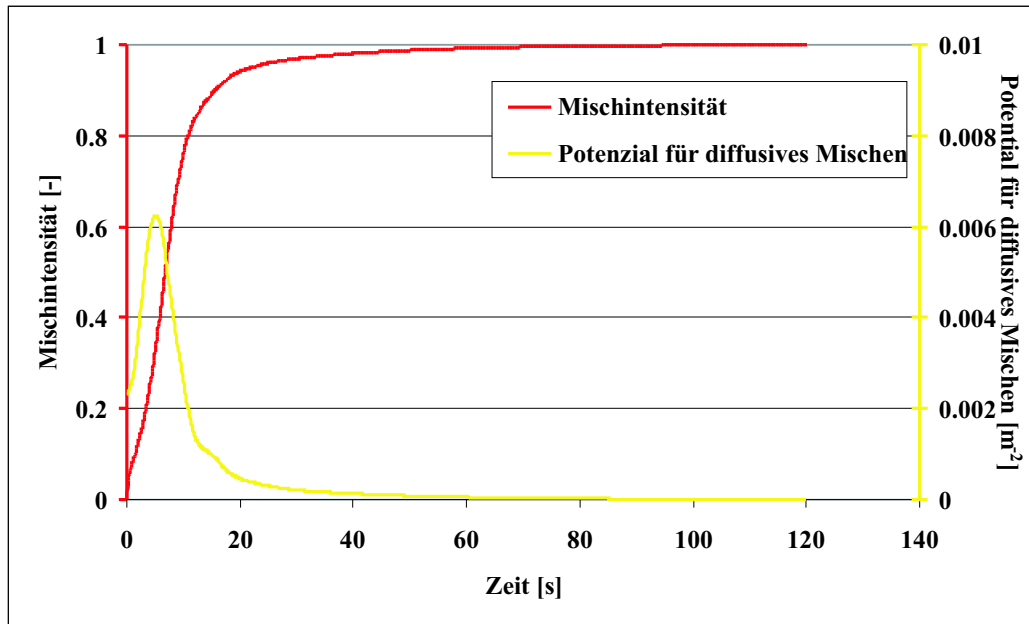


Abbildung 4.6: Zeitlicher Verlauf der Mischintensität und des dreidimensional berechneten Potentials für diffusives Mischen für eine Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$.

zu und durchläuft ein Maximum, das durch den Diffusionsvorgang schnell wieder abgebaut wird. Parallel dazu ist ein starker Anstieg der Mischintensität zu beobachten. Die Geschwindigkeit, mit der der Mischprozess erfolgt, hängt bei dieser Anfangsraconfiguration von der Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders ab (Abb. 4.7). Wie zu erwarten ist, erfolgt der Mischprozess bei höheren Geschwindigkeiten schneller. Besonders auffällig ist die langsame Mischgeschwindigkeit bei $0,65 \text{ rad s}^{-1}$. Hier liegt noch die gewöhnliche Couette-Strömung vor. Da keine sekundäre Wirbelströmung vorhanden ist, wird in diesem Strömungsregime das Potenzial für diffusives Mischen nicht per Konvektion vergrößert. Die für den Ausgleich des Konzentrationsgradienten sorgende Diffusion kann hier nur über eine sehr viel kleinere Fläche erfolgen (Abb. 4.8), was einen langsamen Mischprozess zur Folge hat.

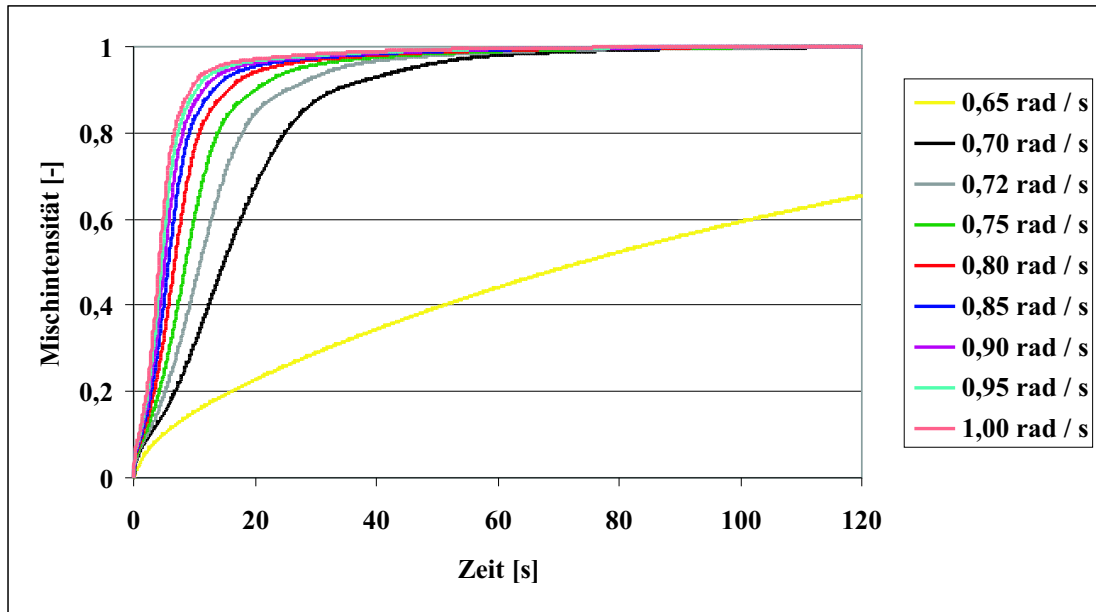


Abbildung 4.7: Zeitlicher Verlauf der Mischintensität für verschiedene Drehgeschwindigkeiten des Innenzylinders.

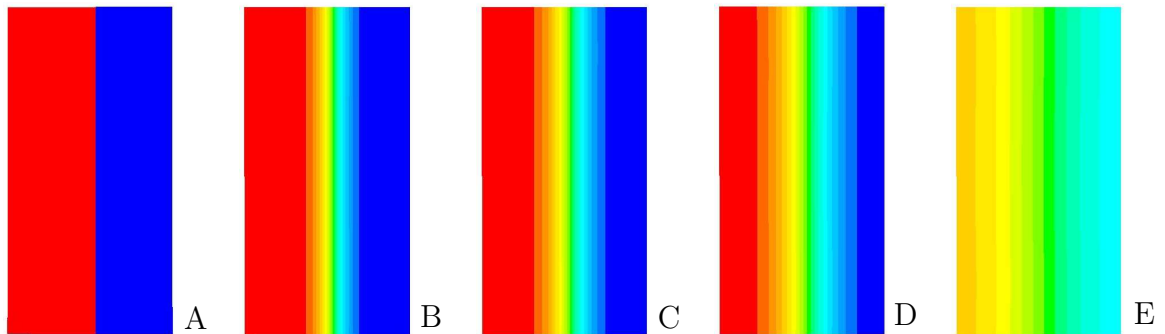


Abbildung 4.8: Tracerverteilung in einem Schnitt durch den Spalt zu den Zeiten A: 0 s, B: 5 s, C: 10 s, D: 20 s, E: 120 s bei einer Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders von $0,65 \text{ rad s}^{-1}$ (Couette-Strömung). Rot: Tracer, Blau: Wasser.

4.2 Stofftransport in Umfangsrichtung

Um das Mischverhalten des Taylor-Couette-Reaktors in Umfangsrichtung zu untersuchen, wird als Anfangskonfiguration der Tracer so in das Rechengebiet eingebracht, dass er das Volumen in tangentialer Richtung zur Hälfte füllt (Abb. 4.9). In Abbildung

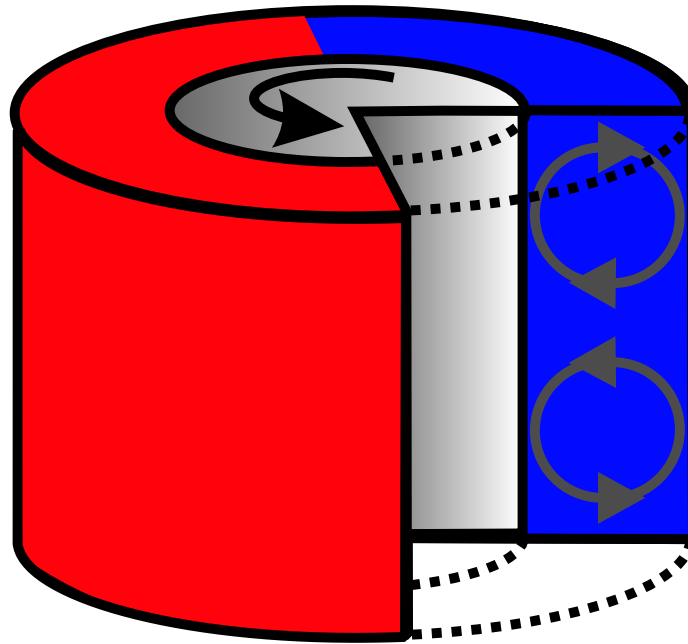


Abbildung 4.9: Schematische Darstellung der Anfangstracerkonfiguration zur Untersuchung des Mischverhaltens in Umfangsrichtung. Rot: Tracer, Blau: Wasser.

4.10 ist die Tracerverteilung zu verschiedenen Zeitpunkten in einem Schnitt durch den Spalt dargestellt. Er befindet sich an der Stelle, an der sich in der Anfangstracerkonfiguration die Grenzfläche zwischen den beiden Spezies befindet. Aufgrund der Haftung der Fluide an den Zylinderwänden entsteht im Spalt eine Scherströmung, so dass die Fluidelemente in der Nähe der äußeren, stillstehenden Wand in ihrer Ausgangsposition verbleiben. Das Fluid, das sich nahe des Innenzylinders befindet, bewegt sich aufgrund viskoser Kräfte mit diesem mit. Die überlagerte sekundäre Wirbelströmung sorgt zusätzlich für einen Austausch der Fluidelemente nahe der Zylinderwände (Abb. 4.10 A). In den Teilbildern 4.10 B und C ist eine Totzone an der Stelle zu erkennen, an der die Grenze zwischen den Wirbeln an den Außenzylinder stößt und die Sekundärströmung in Richtung Innenzylinder zeigt. Diese schlecht gemischte Zone

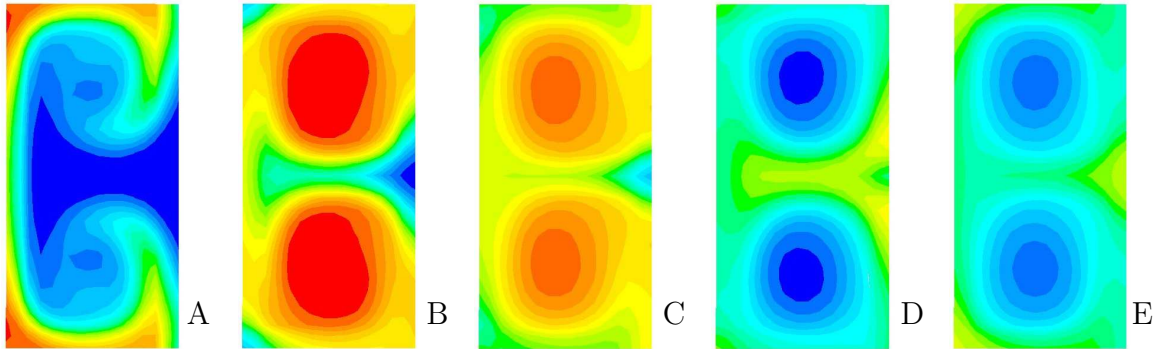


Abbildung 4.10: Tracerverteilung in einem Schnitt durch den Spalt an der Stelle, an der sich in der Anfangstracerkonfiguration die Grenzfläche zwischen den beiden Spezies befindet, nach A: 1,0; B: 1,5; C: 2,0; D: 2,5 und E: 3,0 Umdrehungen des Innenzylinders bei einer Drehgeschwindigkeit von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$. Rot: Tracer, Blau: Wasser.

ist bereits im Abschnitt 4.1 näher beschrieben worden. Aus den Abbildungen 4.10 C und D wird ersichtlich, dass der äußere Bereich der Wirbel in relativ kurzer Zeit gut durchmischt wird. Der Mischvorgang in den Wirbelzentren ist hingegen noch nicht weit fortgeschritten. Abbildung 4.11 zeigt die zeitliche Entwicklung der Kontaktfläche zwischen den beiden Komponenten in einer Ebene zwischen den beiden Wirbeln und einer Ebene durch das Wirbelzentrum. Ähnlich wie bei dem Mischverhalten in radialer Richtung (Abschnitt 4.1) ist auch hier die zeitliche Veränderung des Potenzials für diffusives Mischen in den beiden Ebenen sehr verschieden. In der Ebene zwischen den Wirbeln wird durch die primäre Scherströmung zunächst viel neue Kontaktfläche erzeugt (Abb. 4.12 B), so dass diese auf kleinen Längenskalen auftretenden Gradienten sehr schnell durch Diffusion abgebaut werden können. Die sekundäre Wirbelströmung sorgt dafür, dass das Fluid, das sich in der Wirbelschale befindet, diese Fläche durchläuft. Dagegen wirkt im Wirbelkern ebenfalls die primäre Scherströmung auf die Fluidelemente, die Geschwindigkeitsunterschiede sind allerdings kleiner, da sich die Wirbelzentren nicht über die gesamte Spaltbreite erstrecken. Einen ergänzenden Einfluss besitzt die sekundäre Wirbelströmung, durch die die Fluidelemente ihre radiale Position ändern, woraus sich eine für den Wirbelkern gemittelte Geschwindigkeit in Umfangsrichtung ergibt (Abb. 4.13). Die beiden Spezies in den Wirbelzentren bleiben deshalb in Umfangsrichtung lange Zeit in ei-

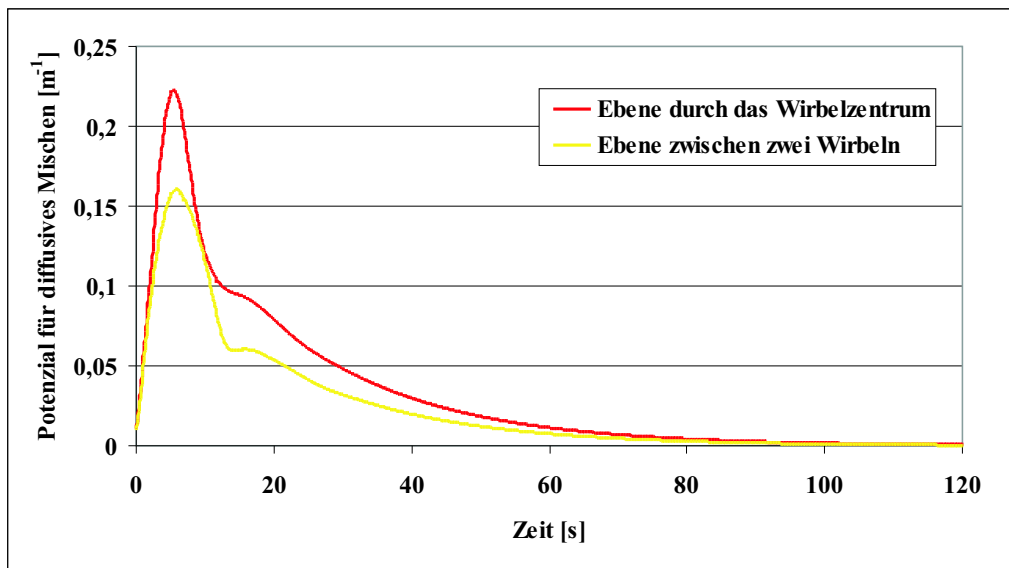


Abbildung 4.11: Zeitlicher Verlauf des zweidimensional berechneten Potentials für diffusives Mischen zwischen den Spezies für die Ebene zwischen den Wirbeln (gelb) und einer Ebene durch das Wirbelzentrum (rot) bei einer Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$.

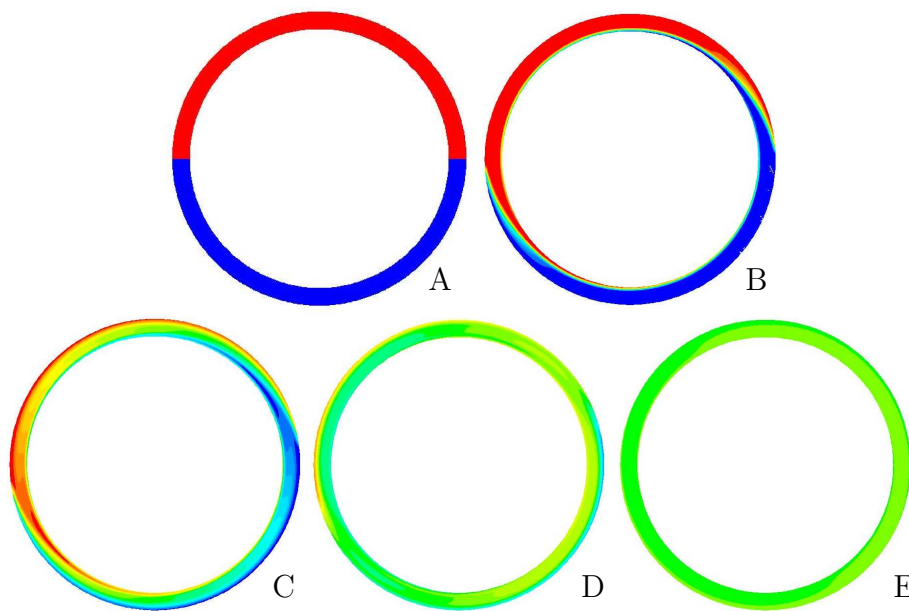


Abbildung 4.12: Tracerverteilung in einem Schnitt zwischen den Wirbeln zu den Zeiten A: 0 s , B: 5 s , C: 10 s , D: 15 s , E: 120 s bei einer Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$. Rot: Tracer, Blau: Wasser.

nem stark segregierten Zustand (Abb. 4.13 E). Der diffusive Transport zwischen den

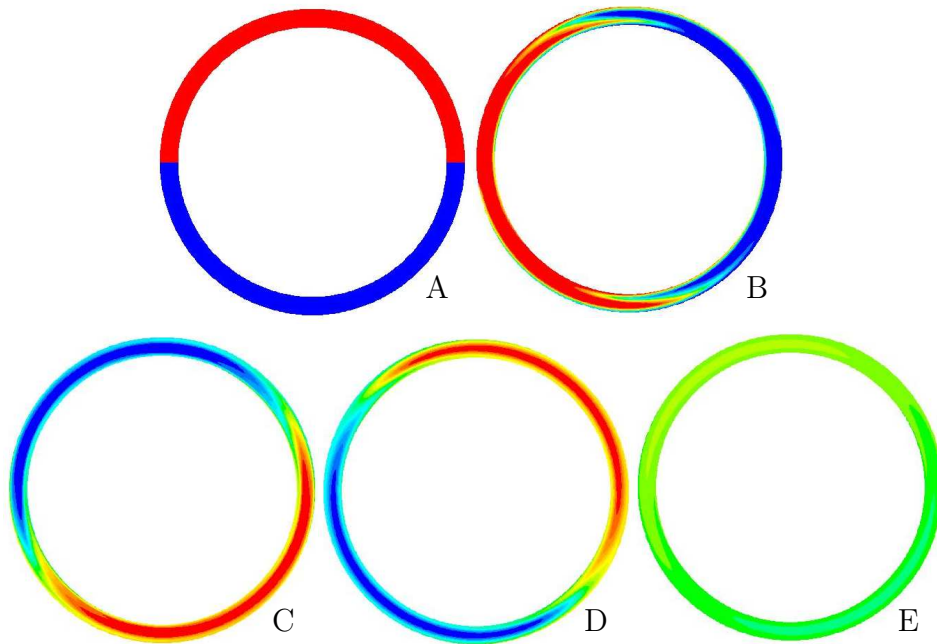


Abbildung 4.13: Tracerverteilung in einem Schnitt durch die Mitte eines Wirbels zu den Zeiten A: 0 s, B: 5 s, C: 10 s, D: 15 s, E: 120 s bei einer Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$. Rot: Tracer, Blau: Wasser.

Wirbelschalen und den dazu gehörigen Zentren ist aufgrund der geringen Gradienten, die durch die gute Durchmischung der Schalen verursacht werden, sehr langsam. In der zeitlichen Entwicklung des Potentials für diffusives Mischen in den Ebenen fällt nach ungefähr 16 s auf, dass in einem kurzen Zeitraum das Potenzial nur wenig abnimmt. Zu diesem Zeitpunkt, der der doppelten Umlaufzeit des Innenzylinders entspricht, befinden sich die Fluidelemente der Wirbelzentren, die sich aufgrund ihrer radialen Position im Spalt in Umfangsrichtung mit der Hälfte der Geschwindigkeit des Innenzylinders bewegen, an einer um den Winkel π verschobenen Stelle bezogen auf ihre Anfangsposition. Als Folge der Haftung am Außenzylinder ist in diesem Moment die andere Spezies an der Außenwand als im Wirbelkern, was zu einem Anstieg des Potentials für diffusives Mischen führt. Dem entgegen wirkt der diffusive Konzentrationsausgleich, so dass das Potenzial in diesem Moment weniger stark abnimmt. Abbildung 4.14 zeigt die zeitliche Entwicklung der Mischintensität und des dreidimensional berechneten Potentials für diffusives Mischen. Zunächst nimmt hier

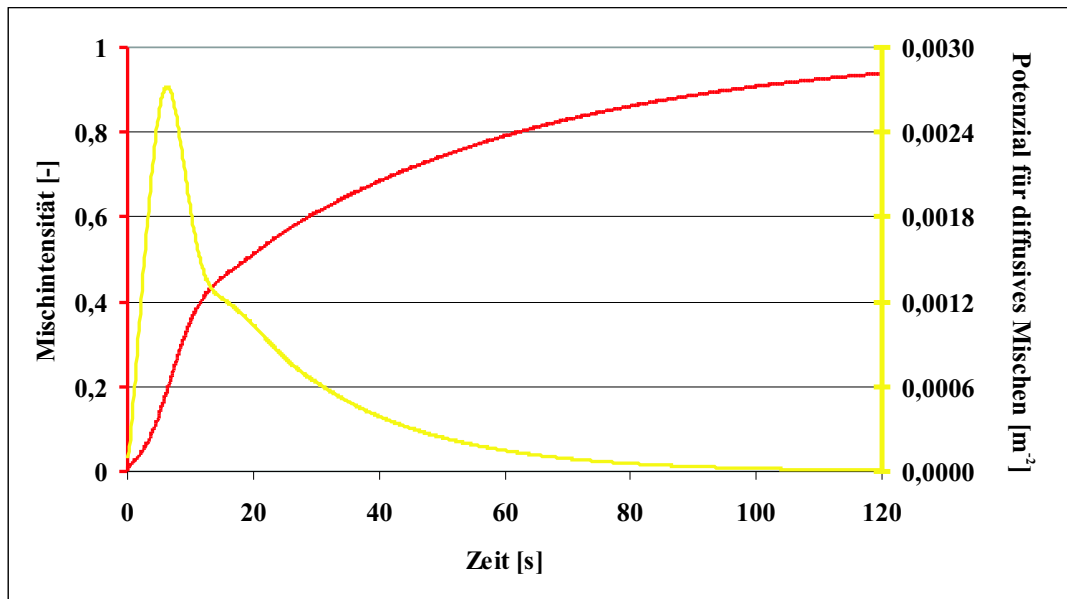


Abbildung 4.14: Zeitlicher Verlauf der Mischintensität und des dreidimensional berechneten Potentials für diffusives Mischen für eine Drehgeschwindigkeiten des Innenzylinders von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$.

die Kontaktfläche schnell zu. Unter einem steilen Anstieg der Mischintensität werden diese Konzentrationsgradienten, die sich hauptsächlich in der Fläche zwischen den Wirbeln befinden, per Diffusion abgebaut. Danach sind nur noch die Gradienten in den Wirbelzentren vorhanden, die aufgrund der großen Längenskala weniger schnell abgebaut werden und dabei die Mischintensität langsam erhöhen.

Die Geschwindigkeit des Mischvorgangs hängt bei der hier untersuchten Anfangstrackerkonfiguration ebenfalls stark von der Drehgeschwindigkeit des inneren Zylinders ab (Abb. 4.15). Auffällig ist dabei, dass der Mischprozess bei reiner Couette-Strömung ($0,65 \text{ rad s}^{-1}$) am schnellsten erfolgt. Durch die Scherströmung nimmt die Kontaktfläche sehr schnell zu (Abb. 4.16). Dieser Effekt kommt besonders durch das Fehlen der sekundären Wirbelströmung zum Tragen, da kein konvektiver Transport in radialer Richtung stattfindet und es somit zu keiner Mittelung der Geschwindigkeiten kommt. Bereits nach kurzer Zeit ist dabei viel neue Kontaktfläche gebildet worden. Da die Konzentrationsgradienten danach nur noch auf kleinen Längenskalen vorhanden sind, werden diese schnell durch Diffusionsvorgänge abgebaut (Abb. 4.17). In Abbildung 4.15 fällt zusätzlich die ungleichmäßige Zunahme der Mischintensität bei

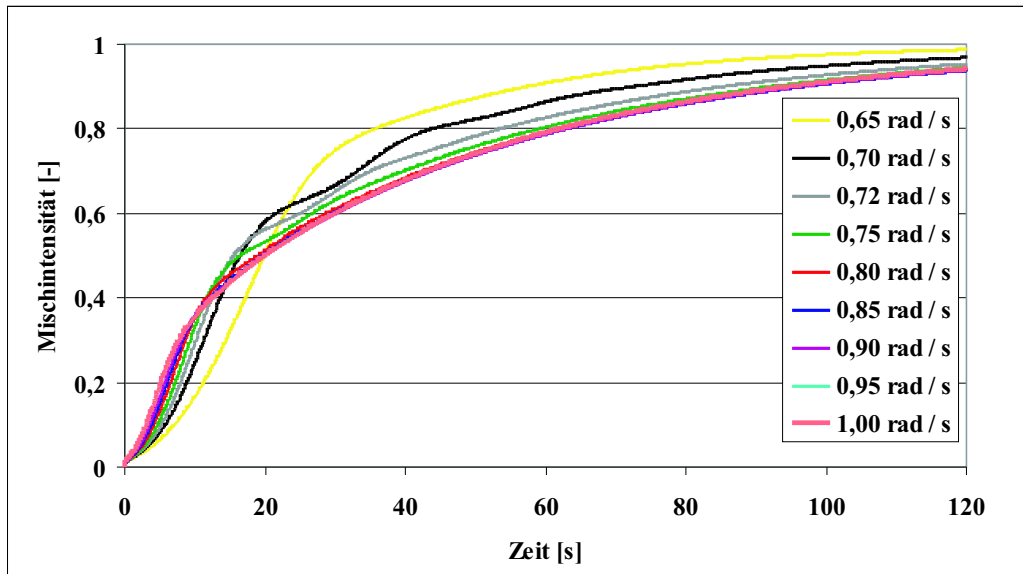


Abbildung 4.15: Zeitlicher Verlauf der Mischintensität für verschiedene Drehgeschwindigkeiten des Innenzylinders.

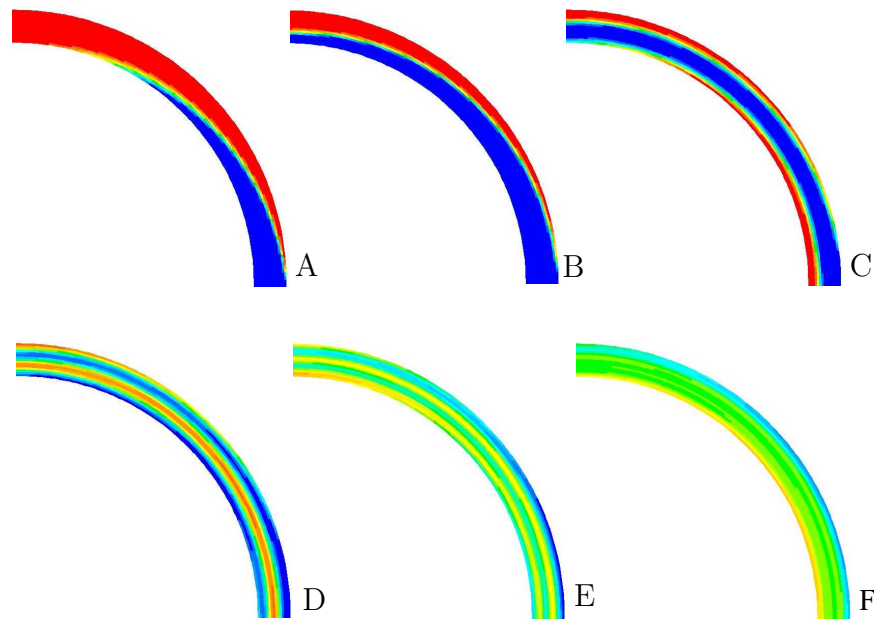


Abbildung 4.16: Tracerverteilung in einem Ausschnitt aus einer Ebene durch den TCR nach A: 1,0, B: 1,5, C: 2,25, D: 3,0 und E: 4,5 Umdrehungen des Innenzylinders bei einer Drehgeschwindigkeit von $0,65 \text{ rad s}^{-1}$ (Couette-Strömung). Rot: Tracer, Blau: Wasser.

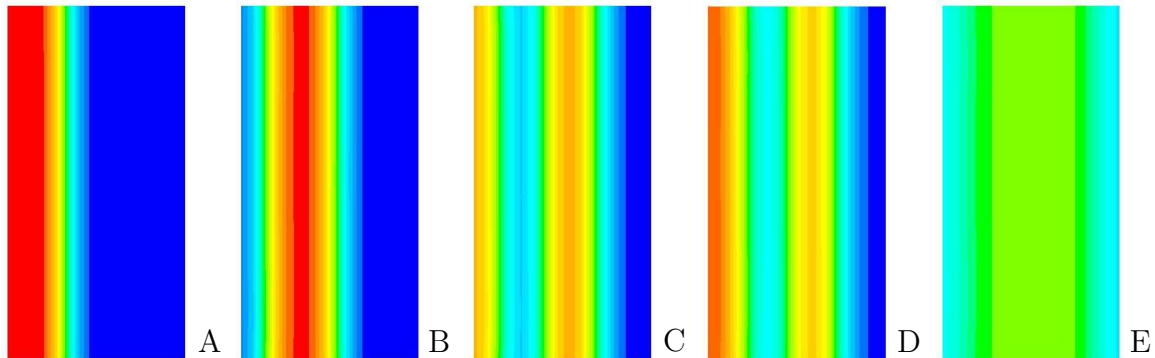


Abbildung 4.17: Tracerverteilung in einem Ausschnitt aus einer Ebene durch den TCR nach A: 0, 25, B: 0, 5, C: 1, 0, D: 2, 0, E: 3, 0 und F: 4, 0 Umdrehungen des Innenzylinders bei einer Drehgeschwindigkeit von $0,65 \text{ rad s}^{-1}$ (Couette-Strömung). Rot: Tracer, Blau: Wasser.

den Drehgeschwindigkeiten von $0,70 \text{ rad s}^{-1}$ und $0,72 \text{ rad s}^{-1}$ auf. Die Mischintensität steigt besonders stark an, wenn sich die Fluidelemente der Wirbelzentren, die sich aufgrund ihrer radialen Position im Spalt in Umfangsrichtung mit der Hälfte der Geschwindigkeit des Innenzylinders bewegen, an einer um den Winkel π verschobenen Stelle bezogen auf ihre Anfangsposition befinden. Aufgrund der Haftbedingung an den Zylinderwänden befindet sich zu diesem Zeitpunkt die andere Spezies an den Wänden als im Wirbelkern, was zu einem Anstieg des Potentials für diffusives Mischen führt. Da die Konzentrationsgradienten auf einer kleinen Längenskala vorliegen, werden diese schnell diffusiv abgebaut, was zu einer starken Zunahme der Mischintensität führt (Abb. 4.18).

Der Mischprozess erfolgt mit zunehmender Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders bis zum Erreichen eines Grenzwertes immer langsamer. Dies hat seine Ursache darin, dass die sekundäre Wirbelströmung bei kleinen Drehgeschwindigkeiten relativ langsam ist und sich deshalb die radiale Position der Fluidelemente nur langsam ändert, so dass durch die primäre Scherströmung ähnlich wie bei der Couette-Strömung schnell neue Kontaktfläche erzeugt wird, über die die Konzentrationsgradienten schnell diffusiv abgebaut werden.

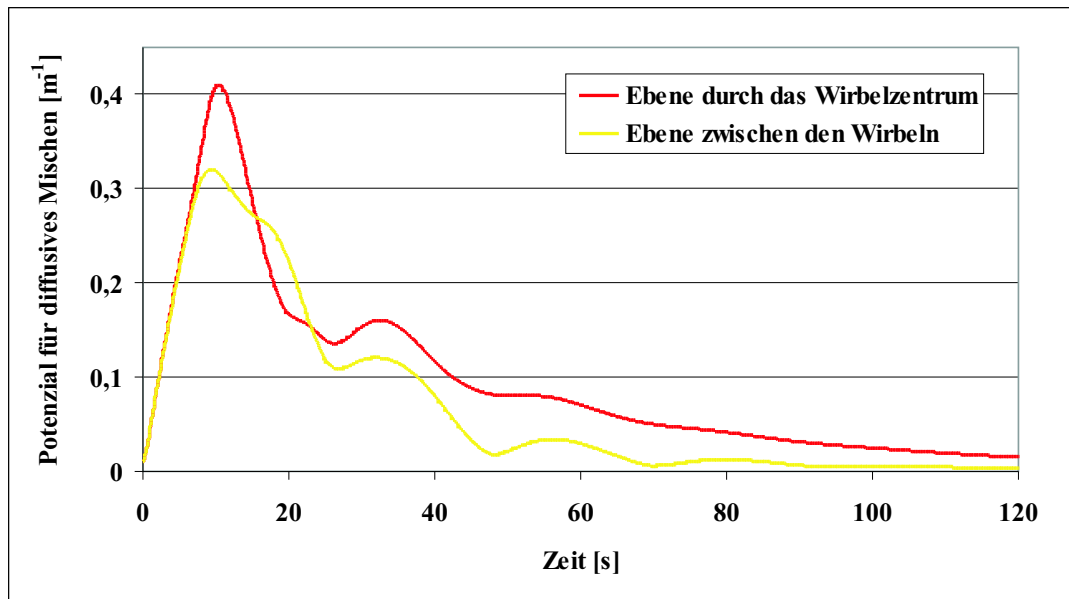


Abbildung 4.18: Zeitlicher Verlauf des zweidimensional berechneten Potentials für diffusives Mischen zwischen den Spezies für die Ebene zwischen den Wirbeln (gelb) und einer Ebene durch das Wirbelzentrum (rot) bei einer Drehgeschwindigkeit des Innenzylinder von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$.

4.3 Stofftransport in axialer Richtung

Um das Mischverhalten des Taylor-Couette-Reaktors in axialer Richtung zu untersuchen, wird der Tracer in seiner Anfangskonfiguration so in das Rechengebiet eingebracht, dass er das Volumen in axialer Richtung zur Hälfte füllt. Für den Fall des hier untersuchten Doppelwirbels bedeutet dies, dass genau ein Wirbel mit Tracer gefüllt ist (Abb. 4.19). In Abbildung 4.20 ist die Tracerverteilung zu verschiedenen Zeitpunkten in einem Schnitt durch den Spalt dargestellt. Auch hier ist, wenn auch weniger ausgeprägt als in den zuvor beschriebenen Fällen, der Einfluss der sekundären Wirbelströmung zu beobachten. Zusätzlich wird deutlich, dass der Mischprozess noch nicht sehr weit vorangeschritten ist. Dies ist darin begründet, dass Fluidelemente nicht konvektiv in den benachbarten Wirbel zu gelangen können, da in diesem Strömungszustand die Grenzfläche zwischen zwei benachbarten Wirbeln aus einer Strömungslinie besteht. Der Stofftransport kann folglich nur langsam per Diffusion erfolgen. Im Teilbild 4.20 B ist eine etwas besser gemischte Zone an der Stelle zu erkennen, an der die

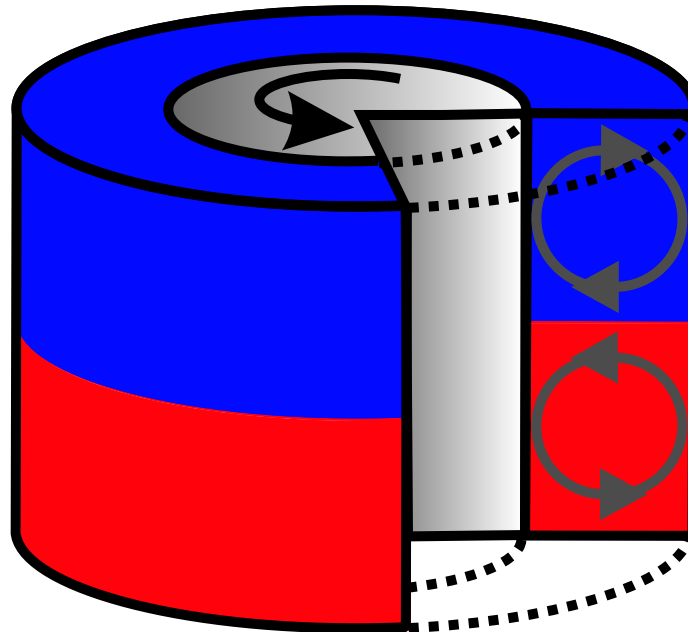


Abbildung 4.19: Schematische Darstellung der Anfangstracerkonfiguration zur Untersuchung des Mischverhaltens in axialer Richtung. Rot: Tracer, Blau: Wasser.

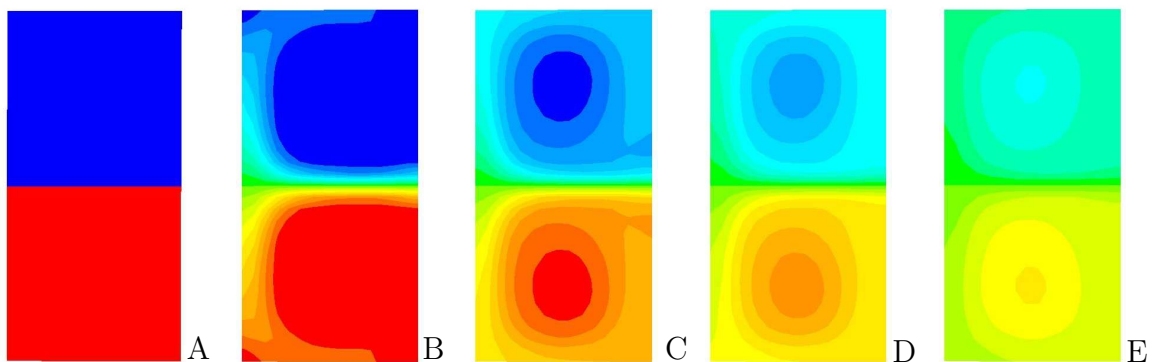


Abbildung 4.20: Tracerverteilung in einem Schnitt durch den Spalt zu den Zeiten A: 0 s; B: 10 s; C: 30 s; D: 60 s und E: 120 s bei einer Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$. Rot: Tracer, Blau: Wasser.

Grenzfläche zwischen den Wirbeln auf die Wand des inneren Zylinders trifft. Die Ursache hierfür ist, dass Fluidelemente aus den beiden Wirbeln mit stark unterschiedlicher Spezieskonzentration durch die sekundäre Wirbelströmung in der Grenzfläche parallel zueinander in Richtung Innenzylinder bewegt werden. Dadurch haben diese Elemente

relativ lange Zeit, die hohen Konzentrationsgradienten zwischen ihnen per Diffusion teilweise abzubauen. An der Stelle, an der die Strömungslinien nicht mehr parallel verlaufen, ist folglich der Ausgleichsprozess am weitesten fortgeschritten. Anhand von Simulationen mit sich entgegengesetzt drehenden Wirbeln kann gezeigt werden, dass diese Zone immer dort auftritt, wo die Strömung die Grenzfläche zwischen den Wirbeln wieder verlässt. Spezies, die in den benachbarten Wirbel hinein diffundiert ist, wird konvektiv von der Grenzfläche zwischen den Wirbeln wegtransportiert, verbleibt aber zunächst in der Wirbelschale, von der sie in den Wirbelkern weiterdiffundieren kann (Abb. 4.20 C und D).

Abbildung 4.21 zeigt die zeitliche Entwicklung des Potentials für diffusives Mischen in einer Ebene zwischen den beiden Wirbeln und einer Ebene durch das Wirbelzentrum. Die zeitliche Veränderung der spezifischen Kontaktfläche zwischen den beiden

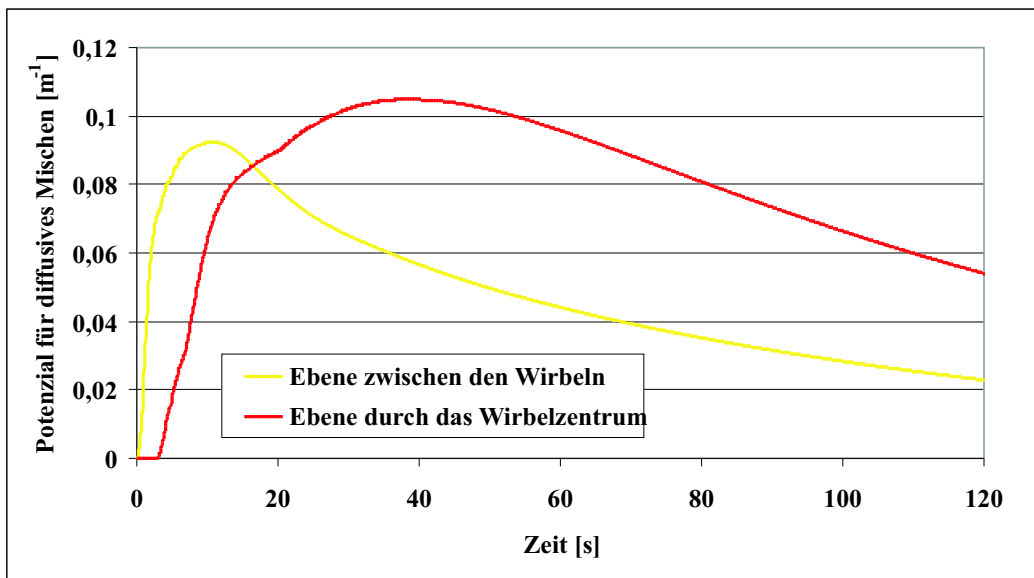


Abbildung 4.21: Zeitlicher Verlauf des zweidimensional berechneten Potentials für diffusives Mischen zwischen den Spezies für die Ebene zwischen den Wirbeln (gelb) und einer Ebene durch das Wirbelzentrum (rot) bei einer Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$.

Komponenten ist in den beiden Ebenen sehr verschieden. In der Ebene zwischen den Wirbeln nimmt sie rasch zu, da hier durch Stoffübergang zwischen den Wirbelschalen ein Konzentrationsgradient entlang der Strömungslinie in der Grenzfläche entsteht. Nach ungefähr 18 s nimmt die Kontaktfläche wieder ab, da innerhalb der

Wirbelschalen die Konzentrationen immer weiter durch fortlaufenden Stofftransport ausgeglichen werden. In der Ebene, die durch das Wirbelzentrum verläuft, nimmt die Kontaktfläche dagegen erst zeitverzögert zu. Spezies, die durch die Grenzfläche zwischen den benachbarten Wirbeln diffundiert ist, muss erst durch die sekundäre Wirbelströmung in diese Ebene transportiert werden, wodurch dann ein Gradient zwischen Wirbelkern und -schale entsteht, der nur langsam diffusiv abgebaut werden kann. Durch den diffusiven Weitertransport in den Wirbelkern nimmt das Potenzial für diffusives Mischen nach ungefähr 40 s wieder ab, da die Gradienten in dieser Ebene abnehmen. Dies wird auch bei einem Vergleich zwischen der Mischintensität und dem dreidimensional berechneten Potenzial für diffusives Mischen deutlich (4.22). Im

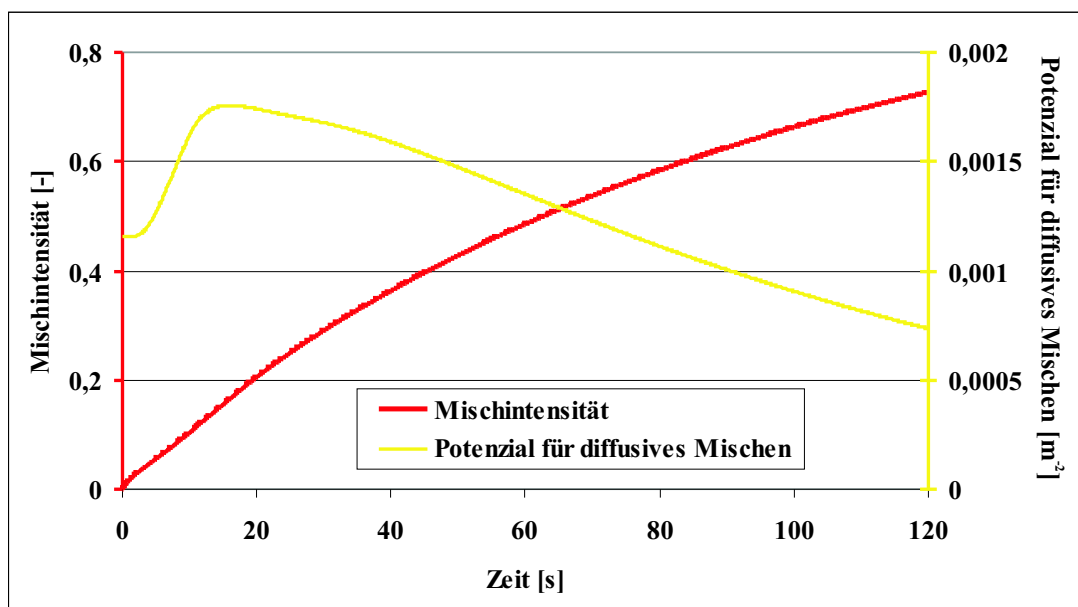


Abbildung 4.22: Zeitlicher Verlauf der Mischintensität und des dreidimensional berechneten Potenzials für diffusives Mischen für eine Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$.

untersuchten Zeitraum nimmt die Mischintensität nur langsam zu und nach 120 s ist das untersuchte Volumen in Form des Doppelwirbels immer noch sehr schlecht gemischt. Auch das Potenzial für diffusives Mischen ist viel kleiner als in den zuvor diskutierten Fällen (Abschnitt 4.1 und 4.2). Daher ist noch viel Zeit zum Erreichen einer guten Mischung nötig.

Bei der Untersuchung der axialen Transportprozesse sind zwei weitere Fälle zu unter-

scheiden, da es für die Sekundärströmung in der Grenzfläche zwei mögliche Strömungsrichtungen gibt (vom Außenzylinder Richtung Innenzylinder und anders herum). Um zu überprüfen, ob dies einen Einfluss auf den axialen Stofftransport hat, wird das numerische Tracerexperiment in einem Doppelwirbel wiederholt, wobei sich die Wirbel in diesem Fall in entgegengesetzter Richtung drehen. In Abbildung 4.23 ist zu sehen, dass die Strömungsrichtung lediglich einen geringen Einfluss auf den axialen Stofftransport hat.

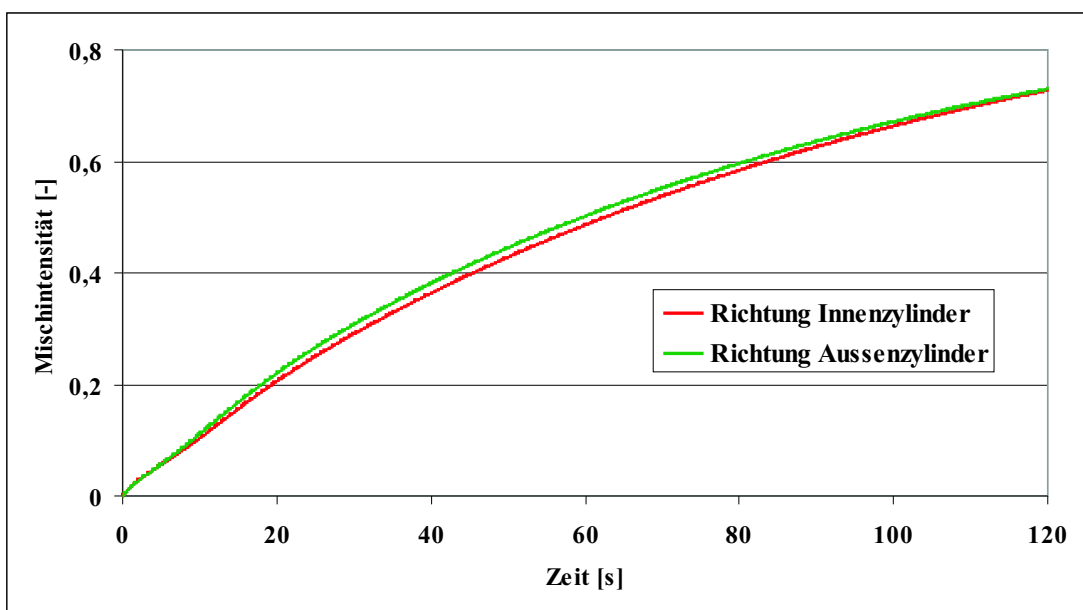


Abbildung 4.23: Zeitlicher Verlauf der Mischintensität bei unterschiedlicher Drehrichtung der Sekundärströmung in der Grenzfläche zwischen zwei Wirbeln. Rot: Strömung in Richtung Innenzylinder, Grün: Strömung in Richtung Außenzylinder.

Die Geschwindigkeit, mit welcher der Mischprozess erfolgt, hängt auch bei der hier untersuchten Anfangstracerkonfiguration von der Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders ab (Abb. 4.24). Wie zu erwarten ist, erfolgt der Mischprozess bei höheren Geschwindigkeiten schneller, da so die zirkulierende Wirbelströmung schneller wird, ist aber insgesamt sehr langsam. Die Sekundärströmung führt zu einer kürzeren Verweilzeit der Fluidelemente an der Grenzfläche zwischen den Wirbeln, so dass dort ein größerer Konzentrationsgradient vorliegt, was den Speziestransport zwischen den

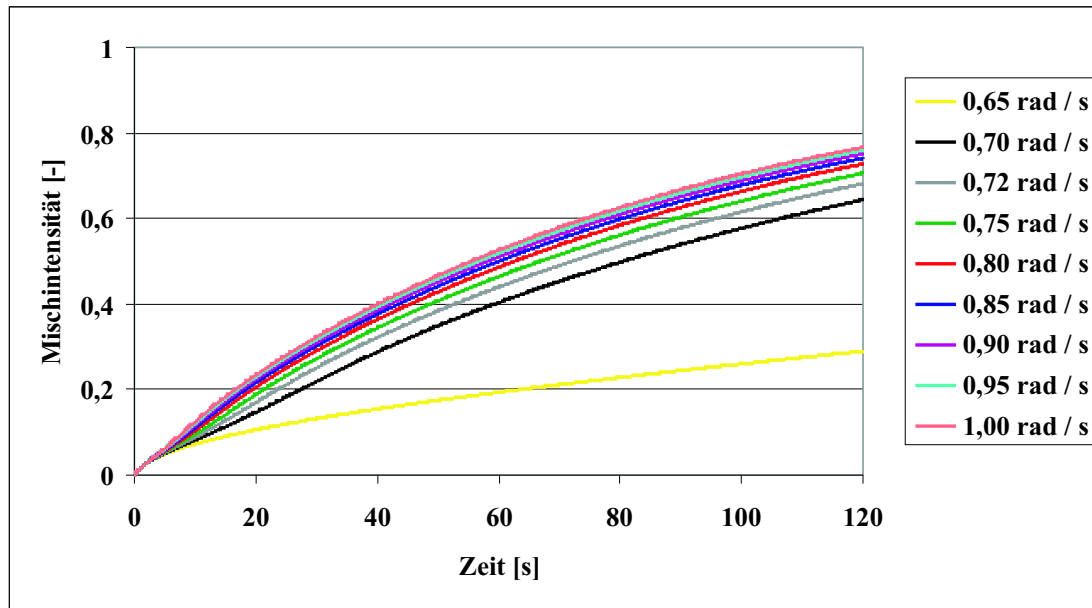


Abbildung 4.24: Zeitlicher Verlauf der Mischintensität für verschiedene Drehgeschwindigkeiten des Innenzylinders.

Wirbeln beschleunigt. Der deutlich langsamere Mischprozess fällt besonders beim Mischen ohne Beteiligung der sekundären Wirbelströmung auf ($0,65 \text{ rad s}^{-1}$). Hier erfolgt der Speziestransport in axialer Richtung lediglich per Diffusion, was zu einem insgesamt sehr langsamem Mischprozess führt (Abb. 4.25).

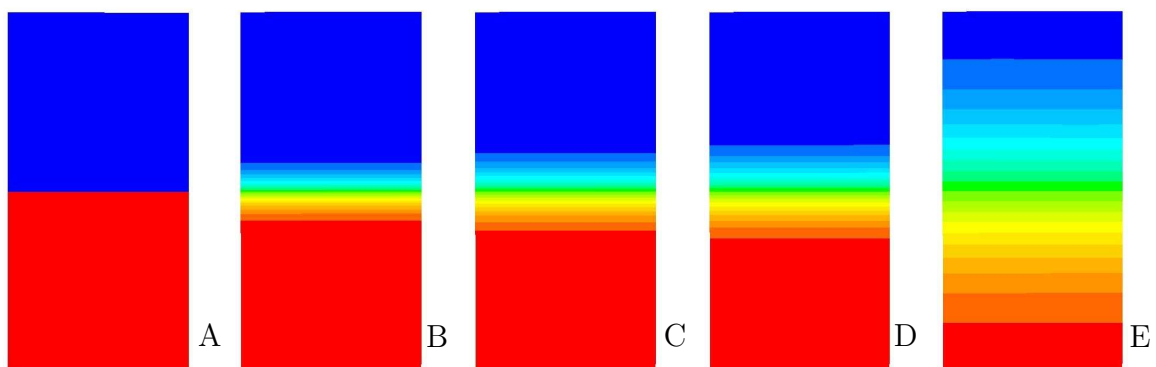


Abbildung 4.25: Tracerverteilung in einem Schnitt durch den Spalt zu den Zeiten A: 0 s, B: 5 s, C: 10 s, D: 15 s, E: 120 s bei einer Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders von $0,65 \text{ rad s}^{-1}$ (Couette-Strömung). Rot: Tracer, Blau: Wasser.

4.4 Stofftransport über Wirbelgrenzen

Zur genaueren Untersuchung des Mischverhaltens des Taylor-Couette-Reaktors in axialer Richtung, wird das Rechengebiet in dieser Richtung auf sechs Wirbel ausgeweitet. Der Tracer wird dabei im untersten Wirbel vorgelegt. Zur Auswertung der

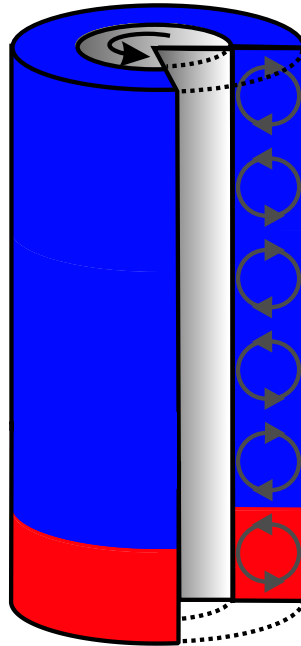


Abbildung 4.26: Schematische Darstellung der Anfangstracerkonfiguration zur weitergehenden Untersuchung des Mischverhaltens in axialer Richtung. Rot: Tracer, Blau: Wasser.

Experimente dient die durchschnittliche Tracerkonzentration in den Zellschichten des numerischen Gitters (Abb. 3.2) in axialer Richtung, wodurch jeder der sechs Wirbel mit 15 Schichten aufgelöst wird. In Abbildung 4.27 sind die Tracerkonzentrationen der Schichten zu verschiedenen Zeiten dargestellt. Wie zu erwarten ist, nimmt die Konzentration in den Schichten, in denen sich zuvor kein Tracer befunden hat, mit der Zeit zu. In axialer Richtung nimmt der Speziesanteil nach jedem Wirbel ab, da die Grenzflächen einen Stofftransportwiderstand darstellen. Innerhalb der Wirbel bildet sich ein charakteristisches Konzentrationsprofil aus, wobei die höchsten Werte in den Schichten auftreten, die der Grenzfläche zwischen den Wirbeln am nächsten liegen (Abb. 4.28). Die Ursache hierfür liegt in der Sekundärströmung. Nachdem Spezies aus einer Wirbelschale diffusiv in eine benachbarte Schale übergegangen ist, erfolgt ein

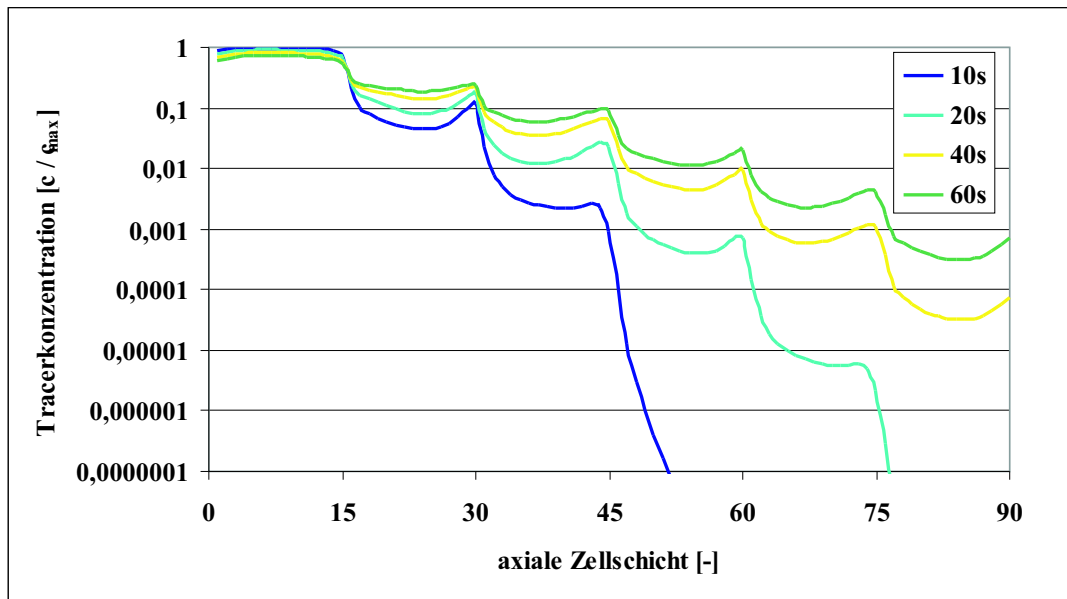


Abbildung 4.27: Durchschnittliche Tracerkonzentration in Zellschichten des numerischen Gitters zu verschiedenen Zeiten.

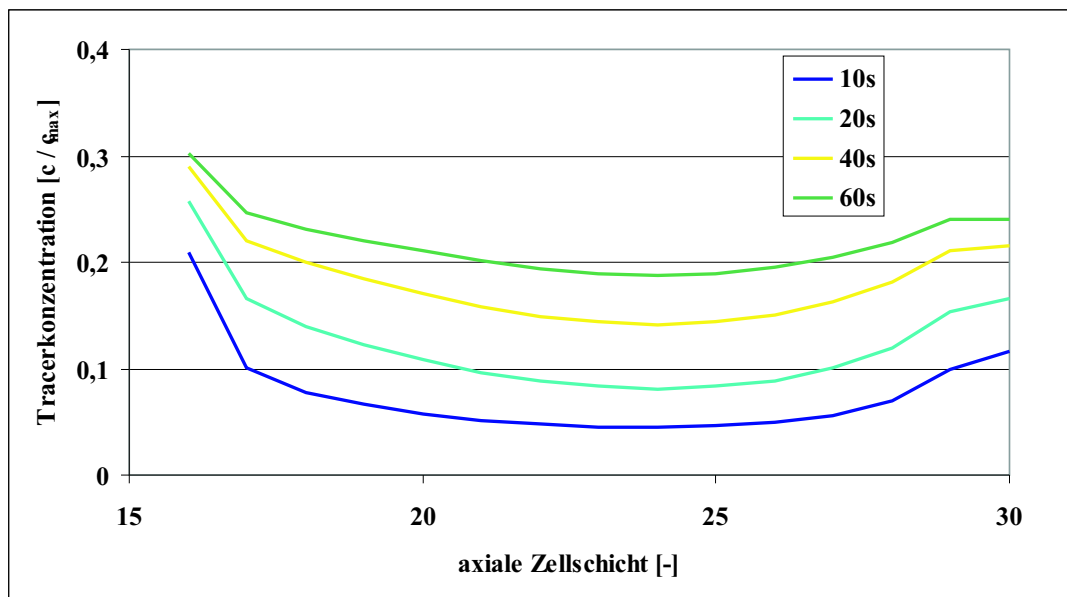


Abbildung 4.28: Durchschnittliche Tracerkonzentration in den 15 Zellschichten des zweiten Wirbels zu verschiedenen Zeiten.

konvektiver Weitertransport an die nächste Grenzfläche, der viel schneller ist, als der diffusive Transport in Richtung Wirbelkern. Es erfolgt ein schneller Speziestransport

in axialer Richtung über die Wirbelhüllen durch Kombination konvektiver und diffusiver Transportmechanismen. Insgesamt ist der Konzentrationsausgleich innerhalb der einzelnen Wirbel langsam, da der Tracer nur diffusiv in den Wirbelkern gelangen kann.

4.5 Stofftransport zwischen Wirbelkern und -schale

Die bisher beschriebenen Resultate der numerischen Simulationen geben Anlass dazu, den Stofftransport zwischen Wirbelkern und -hülle direkt zu untersuchen. Hierzu wird der Tracer in der Anfangskonfiguration in die beiden Wirbelkerne eingebracht (Abb. 4.29). In Abbildung 4.30 ist die Tracerverteilung zu verschiedenen Zeitpunkten in ei-

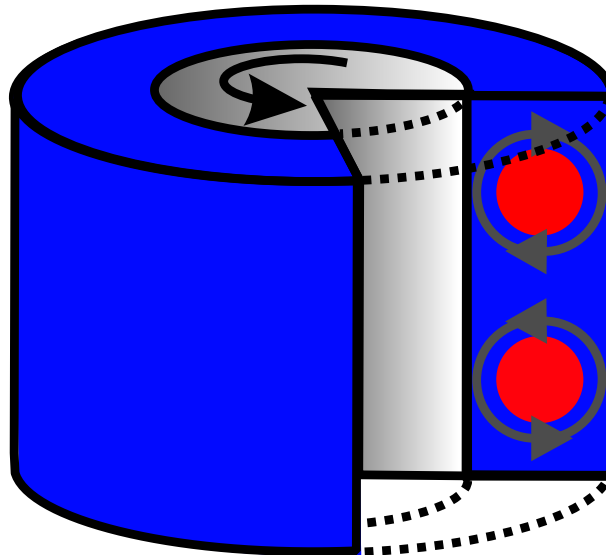


Abbildung 4.29: Schematische Darstellung der Anfangstracerkonfiguration zur Untersuchung des Stofftransports zwischen Wirbelkern und -schale. Rot: Tracer, Blau: Wasser.

ner Schnittebene durch den Spalt dargestellt. Es ist deutlich zu sehen, dass der Tracer vom Wirbelkern in die Schale transportiert wird, wodurch der sich aus der Anfangskonfiguration ergebene Konzentrationsgradient immer weiter abflacht. Dieser Vorgang ist, vom Wirbelzentrum aus betrachtet, in alle Richtungen gleich schnell, so dass keine Vorzugsrichtung existiert. Nach ungefähr 60 s sind die Konzentrationsunterschiede weitestgehend ausgeglichen, und damit der Mischvorgang fast abgeschlossen. Die Un-

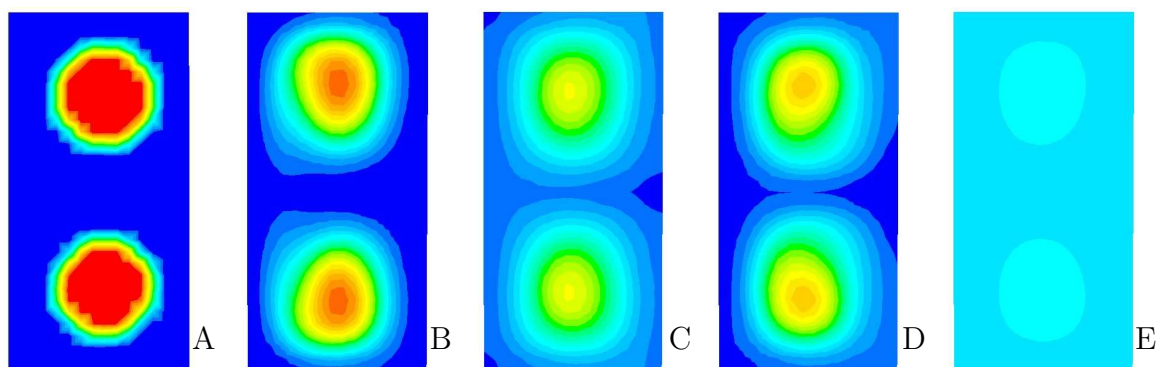


Abbildung 4.30: Tracerverteilung in einem Schnitt durch den Spalt zu den Zeiten A: 0 s, B: 5 s, C: 10 s, D: 15 s, E: 60 s bei einer Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$. Rot: Tracer, Blau: Wasser.

regelmäßigkeiten in den Teilbildern 4.30 B und C sind auf kleine Abweichungen, die bei der Erstellung der Anfangstracerkonfiguration gemacht wurden, zurückzuführen. Diese entstehen dadurch, dass der Tracer in Form eines Torus in ein numerisches Rechengitter, das aus kubischen Elementen besteht, eingebracht wird, so dass dieser nicht völlig korrekt wiedergegeben wird. Abbildung 4.31 zeigt die zeitliche Entwicklung des Potentials für diffusives Mischen zwischen den beiden Komponenten in einer Ebene zwischen den beiden Wirbeln und einer Ebene durch das Wirbelzentrum. In der Ebene zwischen den Wirbeln existiert bei dieser Anfangstracerkonfiguration keine Kontaktfläche zwischen den Spezies und im Verlauf des Mischvorgangs wird auch nur eine geringe Fläche gebildet. Dagegen ist in der anderen Ebene zu Beginn viel Kontaktfläche vorhanden. Im weiteren Verlauf wird aber keine neue gebildet, sondern diese diffusiv abgebaut. Die Schwankungen in den ersten Sekunden sind auf die bereits erwähnten Fehler bei der Erstellung der Anfangstracerkonfiguration zurückzuführen. Abbildung 4.32 zeigt die zeitliche Entwicklung der Mischintensität und des dreidimensional berechneten Potentials für diffusives Mischen. Dieses nimmt im zeitlichen Verlauf langsam ab, wobei die Mischintensität langsam zunimmt. Am Ende des beobachteten Zeitrahmens ist der Doppelwirbel gut durchmischt, da die Gradienten, die durch den diffusiven Stofftransport ausgeglichen werden müssen, auf relativ kleinen Längenskalen auftreten. Die Anfangstracerkonfiguration gibt in etwa die Strömungslinien der sekundären Wirbelströmung wieder. Ein Verlassen dieser Linien ist aber nur diffusiv und nicht konvektiv möglich.

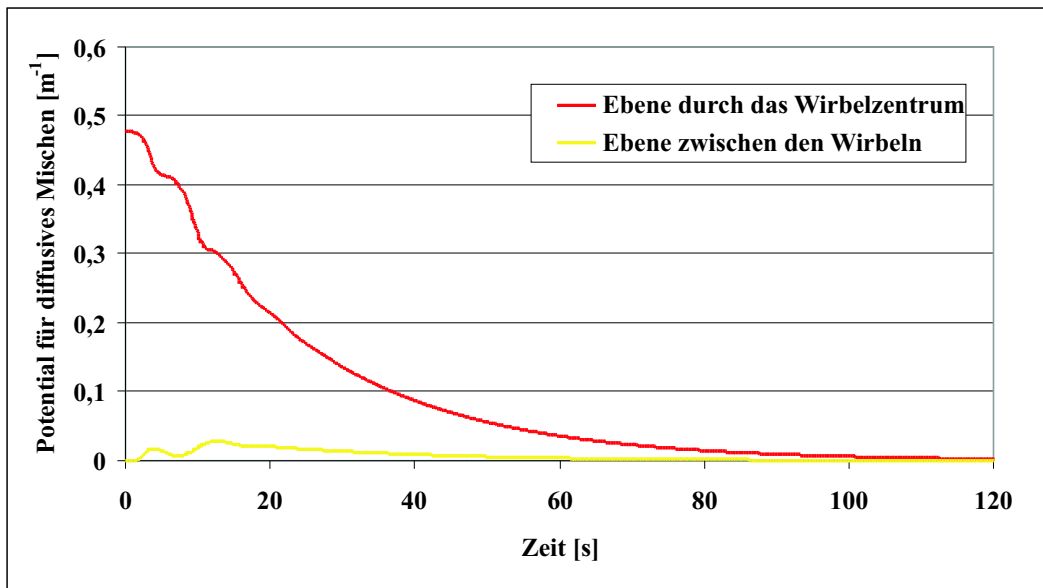


Abbildung 4.31: Zeitlicher Verlauf des zweidimensional berechneten, Potentials für diffusives Mischen zwischen den Spezies für die Ebene zwischen den Wirbeln (gelb) und einer Ebene durch das Wirbelzentrum (rot) bei einer Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$.

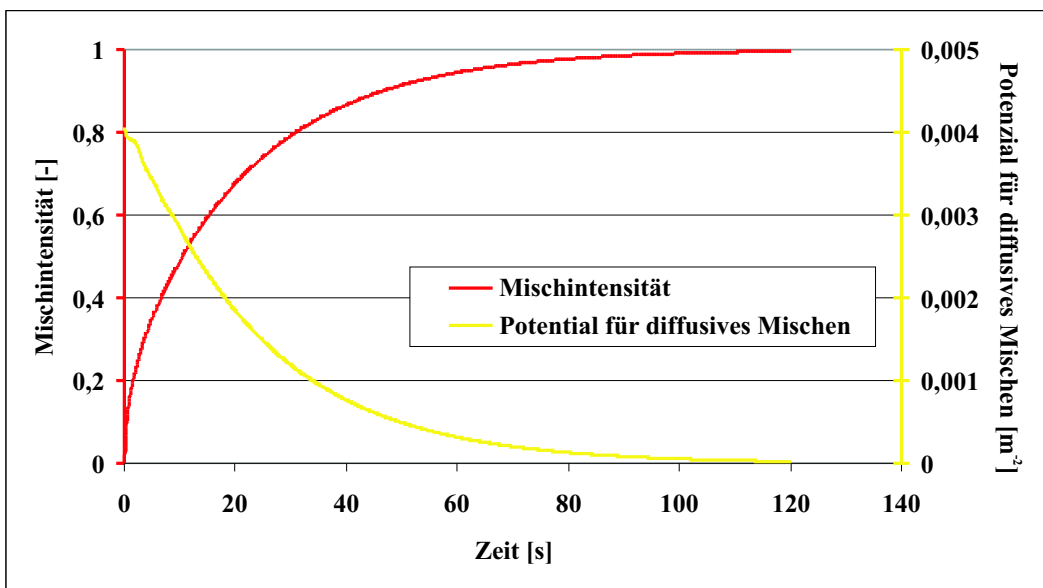


Abbildung 4.32: Zeitlicher Verlauf der Mischintensität (rot) und des dreidimensional berechneten Potentials für diffusives Mischen (gelb) für eine Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$.

Die Geschwindigkeit des Mischvorgangs hängt auch bei dieser Anfangstracerkonfiguration von der Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders ab (Abb. 4.33). Auch hier ist

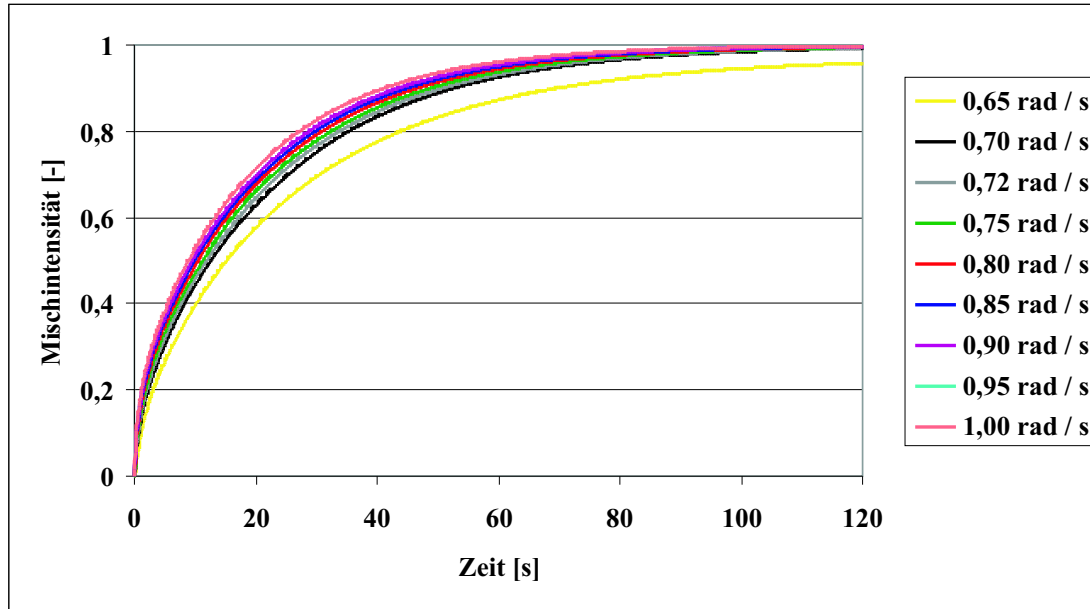


Abbildung 4.33: Zeitlicher Verlauf der Mischintensität für verschiedene Drehgeschwindigkeiten des Innenzylinders.

der Mischprozess bei steigender Drehzahl des inneren Zylinders schneller, die Zunahme ist aber gering, da der Speziestransport fast nur diffusiv erfolgt. Der Einfluss der sekundären Wirbelströmung nur wenig ausgeprägt, wie bei einem Vergleich mit der Couette-Strömung ($0,65 \text{ rad s}^{-1}$), bei der der effektive Speziestransport nur diffusiv erfolgt, deutlich wird. Die Tracerverteilungen in einer Schnittebene durch den Spalt sind in beiden Fällen (Abb. 4.30 und Abb. 4.34) sehr ähnlich. Die Scherströmung übt dabei keinen Einfluss auf den Mischprozess aus und das Konzentrationsprofil behält seine Rotationssymmetrie bezüglich des Wirbelzentrums bei. In diesem Zustand findet effektiv nur ein diffusiver Transport statt. Bei der hier untersuchten Anfangstracerkonfiguration wird zwar nach relativ kurzer Zeit eine hohe Mischintensität beobachtet, aber bezogen auf die große Kontaktfläche zwischen den beiden Komponenten, die schon zur Zeit $t = 0$ vorliegt, langsam.

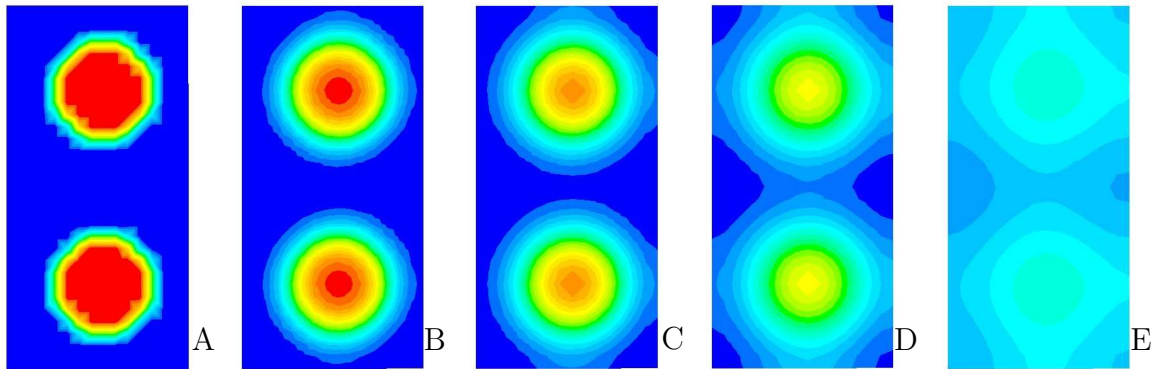


Abbildung 4.34: Tracerverteilung in einem Schnitt durch den Spalt zu den Zeiten A: 0 s, B: 5 s, C: 10 s, D: 20 s, E: 60 s bei einer Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders von $0,65 \text{ rad s}^{-1}$ (Couette-Strömung). Rot: Tracer, Blau: Wasser.

4.6 Einfluss einer Drehgeschwindigkeitsmodulation auf das Mischverhalten

Aus den bisher vorgestellten Ergebnissen ist ersichtlich, dass der axiale Stofftransport in TCRs ohne zusätzliche, axiale Strömung langsam ist (Abschnitt 4.3 und 4.4), was in Hinblick auf seine Verwendung als Alternative zu klassischen Reaktorbauformen vorteilhaft ist. Von Nachteil ist aber der ebenfalls sehr schlechte Stofftransport zwischen Wirbelkern und -schale (Abschnitt 4.5). Deshalb soll untersucht werden, ob der Stoffaustausch zwischen diesen beiden Teilbereichen eines Wirbels beschleunigt werden kann, ohne gleichzeitig die axiale Dispersion signifikant zu erhöhen. Der Einfluss einer überlagerten axialen Oszillation des inneren Zylinders auf den Übergang zwischen höheren Strömungsmoden ist bereits theoretisch und experimentell untersucht worden [Sinha et al., 2001; Weisberg et al., 1997; Marques und Lopez, 1997].

Nach der Theorie des chaotischen Mischens ist durch eine zeitlich periodische Modulation des Strömungsfeldes mit chaotischen Partikelbahnen und damit deutlich verbesserter Vermischung zu rechnen [Wiggins und Ottino, 2004; Ottino, 1989]. Hierzu wird die konstante Drehgeschwindigkeit des inneren Zylinders mit einer Sinusschwingung überlagert

$$\Omega_1(t) = \Omega_1(0)(1 + a \sin(bt)). \quad (4.1)$$

Dabei bezeichnen Ω_1 die Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders, t die Zeit sowie a und b Konstanten. Über eine Veränderung von a lässt sich die Größe der Amplitude und über b die Frequenz der Modulation beeinflussen. Um zu überprüfen, ob diese Modulation das Mischverhalten zwischen Wirbelkern und -schale verbessert, werden numerische Simulationen mit der bereits in Abschnitt 4.5 verwendeten Anfangstracerkonfiguration unter Variation der Konstanten a und b bei $\Omega_1(0) = 0,8 \text{ rad s}^{-1}$ durchgeführt und mit Hilfe der zeitlichen Entwicklung der Mischintensität ausgewertet. Dabei wird der Diffusionskoeffizient um den Faktor 10 auf $D = 1,9 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ erniedrigt, was einer wässrigen Kaliumchloridlösung entspricht. Dies führt zwar zu einer erhöhten numerischen Diffusion, die aber in Kauf genommen werden muss, damit die Vermischung relativ zur Modulationszeit nicht zu schnell erfolgt, so dass der Einfluss der Modulation besser beobachtet werden kann. Abbildung 4.35 zeigt die zeitlichen Verläufe der Mischintensität für verschiedene Werte von b bei $a = 0,125$ im Vergleich zum Verlauf ohne Modulation ($a = 0$). Es ist deutlich zu erkennen, dass die Frequenz

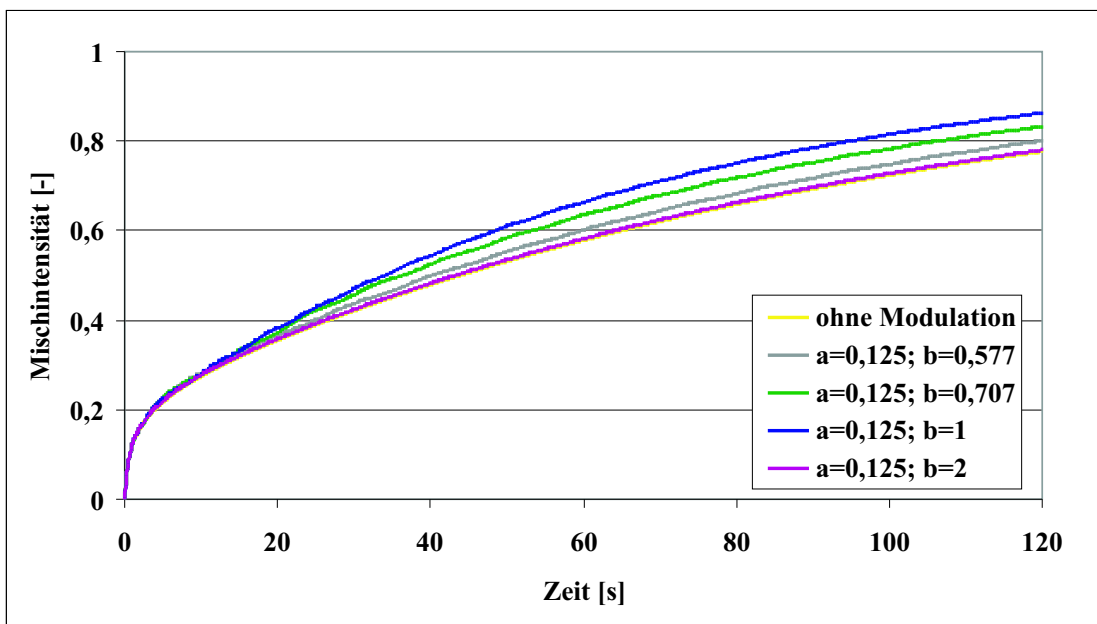


Abbildung 4.35: Zeitlicher Verlauf der Mischintensität nach einer Anfangstracerkonfiguration wie in Abschnitt 4.5 verwendet für verschiedene Frequenzen der Modulation bei einer Amplitude von $a = 0,125$.

einen Einfluss auf das Mischverhalten ausübt. Mit steigenden Werten für b wird der Mischprozess zunächst schneller, da so die zeitliche Änderung der Drehgeschwindig-

keit zunimmt und damit das Strömungsfeld stärker beeinflusst wird. Eine weitere Frequenzsteigerung auf $b = 2$ lässt die Mischgeschwindigkeit wieder abnehmen. Hierbei ändert sich aufgrund der Trägheit des Systems lediglich das Geschwindigkeitsfeld in der Nähe des Innenzylinders, so dass der Stofftransport zwischen Wirbelkern und Schale davon kaum beeinflusst wird. Abbildung 4.36 zeigt die zeitlichen Verläufe der

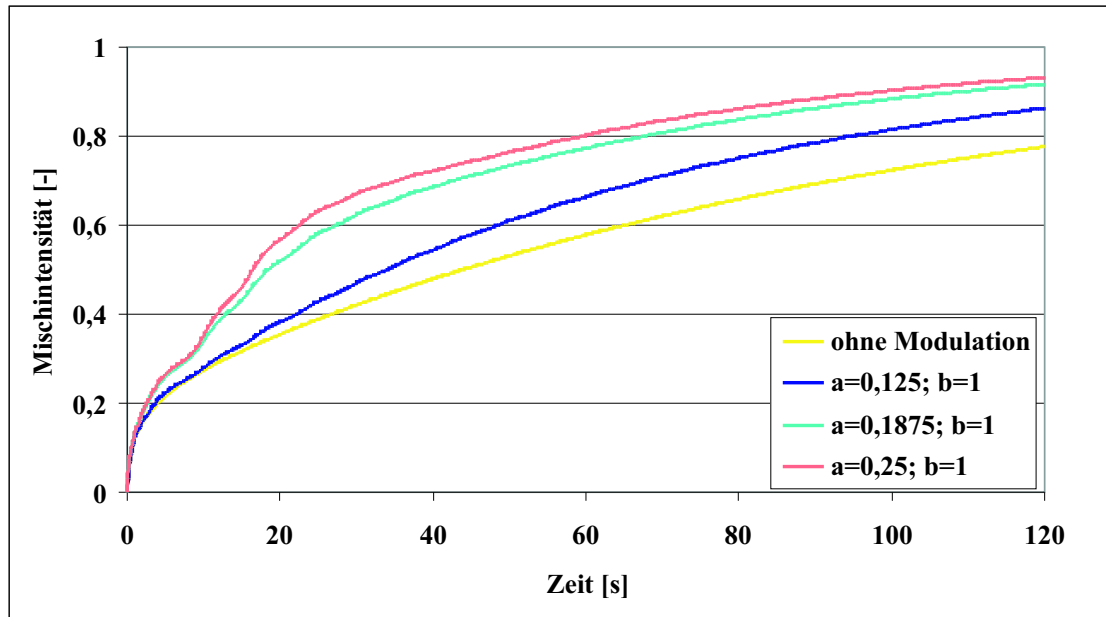


Abbildung 4.36: Zeitlicher Verlauf der Mischintensität nach einer Anfangstracerkonfiguration wie in Abschnitt 4.5 verwendet für verschiedene Amplituden a der Modulation bei $b = 1$.

Mischintensität für verschiedene Werte von a bei $b = 1$ im Vergleich zum Verlauf ohne Modulation ($a = 0$). Dabei wird ersichtlich, dass die Amplitude einen starken Einfluss auf das Mischverhalten hat. Die Geschwindigkeit des Mischprozesses nimmt mit steigenden Werten von a zu. Bei den beiden höchsten Werten ($a = 0,1875$ und $a = 0,2$) unterschreitet die Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders den für den Übergang zwischen Couette- und Taylor-Couette-Strömung in dieser Geometrie kritischen Wert von $0,70 \text{ rad s}^{-1}$ (Tabelle 3.3). Anhand des Strömungsfeldes kann aber festgestellt werden, dass die sekundäre Wirbelströmung nicht zusammenbricht, sondern durch die Trägheit bedingt erhalten bleibt. Während einer Schwingungsperiode ändern sich lediglich die Beträge der Geschwindigkeitsvektoren in einer Ebene durch den Spalt, nicht aber ihre Richtung.

In beiden zeitlichen Verläufen (Abb. 4.35 und 4.36) fällt ein ungleichmäßiger Anstieg der Mischintensitäten auf, wobei diese Unregelmässigkeiten im zeitlichen Abstand von

$$t = b \, 2\pi, \quad (4.2)$$

auftreten, was bedeutet, dass es sich immer um den gleichen Zeitpunkt innerhalb einer Schwingungsperiode handelt. So nimmt die Mischintensität immer besonders stark wenige Sekunden nach dem Überschreiten der maximalen Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders zu.

Um zu überprüfen, ob auch die axiale Dispersion durch die Drehzahlmodulation gesteigert wird, wird die gleiche Anfangstracerkonfiguration wie in Abschnitt 4.4 verwendet. Abbildung 4.37 zeigt den entsprechenden zeitlichen Verlauf der Mischinten-

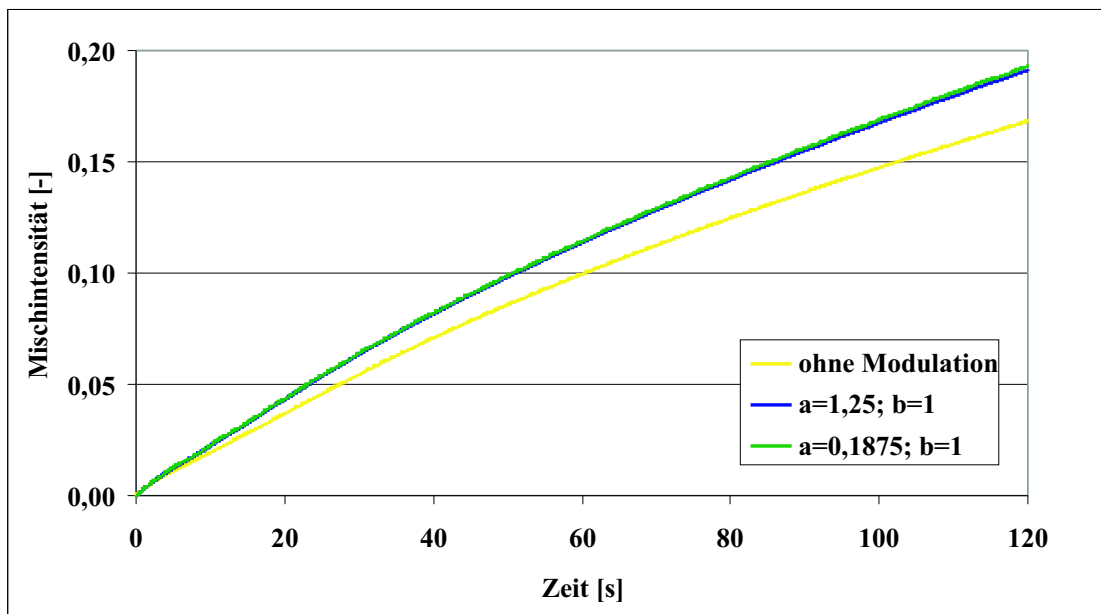


Abbildung 4.37: Zeitlicher Verlauf der Mischintensität nach einer Anfangstracerkonfiguration wie in Abschnitt 4.4 verwendet für verschiedene Amplituden a der Modulation bei $b = 1$. Die dargestellten Linien für die Fälle mit Modulation überdecken sich in großen Teilen.

sität mit und ohne Modulation bei einer mittleren Drehgeschwindigkeit von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$. In den beiden numerischen Simulationen mit Modulation ist nur eine leichte Zunahme der Mischintensität gegenüber der Simulation ohne Modulation erkennbar. Ähnliches zeigt sich bei der Betrachtung des Stofftransports über Wirbelgrenzen mit

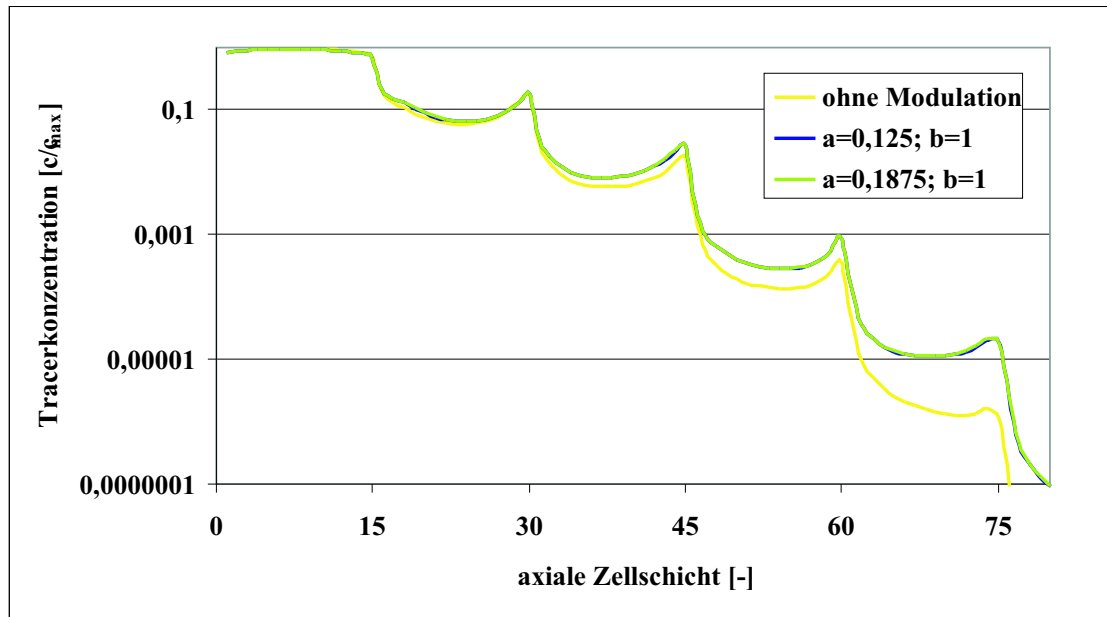


Abbildung 4.38: Durchschnittliche Tracerkonzentration in Zellschichten des numerischen Gitters nach 70 s bei einer Anfangstracerkonfiguration wie in Abschnitt 4.4 für verschiedene Amplituden a der Modulation bei $b = 1$. Die dargestellten Linien für den Fall mit Modulation überdecken sich in großen Teilen.

und ohne Modulation der Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders (Abb. 4.38). Im Fall mit Modulation wird der Tracer nur unwesentlich schneller über Wirbelgrenzen hinweg transportiert. Die Ursache hierfür liegt darin, dass die sekundäre Wirbelströmung auch bei der Modulation während der gesamten Zeit erhalten bleibt. Auch die Position der Grenzfläche zwischen den Wirbeln, die von den Spezies lediglich per Diffusion durchschritten werden kann, ändert sich nicht. In den Schichten 30 bis 60 in Abbildung 4.38 ist zu sehen, wie die Tracerkonzentrationsunterschiede innerhalb eines Wirbels bei den Simulationen mit Drehgeschwindigkeitsmodulation geringer sind. Die Ursachen hierfür sind die gleichen wie im zuvor untersuchten und sehr ähnlichen Fall des Speziestransports zwischen Wirbelkern und -schale. Daraus folgt, dass eine Modulation der Drehgeschwindigkeit des inneren Zylinders zu einem schnelleren Abbau von Konzentrationsgradienten innerhalb der Wirbel führt, wobei gleichzeitig der Stofftransport über Wirbelgrenzen und dabei die axiale Dispersion nur geringfügig erhöht wird.

5 Mathematische Modellierung des Stofftransports in TCRs

In der chemischen Verfahrenstechnik sind mathematische Modelle wichtige Werkzeuge zur Beschreibung und Analyse komplexer Prozesse. Sie dienen der Intensivierung und Optimierung technischer Umsetzungen und der Erschließung innovativer Verfahren. Die Modellierung eines dynamischen Systems wie des Stofftransportes in Taylor-Couette-Reaktoren basiert auf einem Kompromiss zwischen dem vertretbaren numerischen Aufwand und der Nähe zur Realität. Das Verhalten eines gesamten TCRs kann aufgrund der Mehrskaligkeit der verschiedenen ablaufenden Mischprozesse nur mit enorm hohem Aufwand numerisch simuliert werden (Abschnitt 4). Aus diesem Grund wird ein vereinfachendes Modell reduzierter Dimensionalität erarbeitet, das die Mischprozesse in ausreichender Genauigkeit beschreibt und dabei einen deutlich geringeren Aufwand zur numerischen Lösung erfordert.

5.1 Modell zur Beschreibung des Stofftransports in TCRs

Aus den in Abschnitt 4 gezeigten Ergebnissen der numerischen Tracerexperimente ist ersichtlich, dass deutliche Konzentrationsunterschiede innerhalb der Wirbel auftreten können. Ein sehr einfaches Stoffübergangsmodell, das die einzelnen Wirbel als idealen Rührkessel und den Austausch zwischen den Wirbeln mittels eines Koeffizienten beschreibt, ist aber nicht in der Lage, Konzentrationsunterschiede innerhalb der Wirbel zu beschreiben (Abschnitt 2.2.1). Derartige Modelle liefern lediglich über den Bereich eines Wirbels gemittelte Werte. Sie können allerdings aufgrund ihrer Einfachheit zur groben Abschätzung verwendet werden, da der numerische Aufwand, der nötig ist,

um den Modellparameter zu bestimmen, relativ klein ist.

Der Stofftransport in Umfangsrichtung kann mit Hilfe eines Dispersionsmodells beschrieben werden (Abschnitt 2.2.4). Dabei wird allerdings der Transport in axialer Richtung lediglich mittels eines Parameters beschrieben, so dass die beobachteten Konzentrationsunterschiede zwischen Wirbelkern und -schale nicht wiedergegeben werden können. Hinzu kommt, dass die Modellparameter nur mit großem numerischen Aufwand bestimmt werden können.

Im Gegensatz dazu ist ein Rührkesselkaskaden-Modell (Abschnitt 2.2.2) in der Lage, unterschiedliche Spezieskonzentrationen in Wirbelkern und -schale wiederzugeben. Dabei wird ein Wirbel in einen ideal durchmischten Rührkessel, der die Schale, und ein Austauschvolumen, das den Kern repräsentiert, unterteilt. Der Stofftransport wird hier über Volumenströme modelliert. Die räumliche Auflösung dieses Modells ist aber sehr grob, was eine detaillierte Wiedergabe der beobachteten Vorgänge nicht möglich macht. Dies gilt auch für das sehr ähnliche Zweizonenmodell (Abschnitt 2.2.3), bei dem der Speziestransport mittels zweier Übergangskoeffizienten, einen für den Austausch zwischen den Wirbeln und einen für den Transport innerhalb eines Wirbels, beschrieben wird.

Das Mehrzonenmodell (Abschnitt 2.2.3) ist eine Weiterentwicklung des Zweizonenmodells. Ein Wirbel wird dabei in mehrere ideal durchmischte Bereiche unterteilt, was eine detaillierte Beschreibung der Konzentrationsverläufe innerhalb eines Wirbels zulässt. Der größte Nachteil dieses Modells ist jedoch, dass bei N Teilbereichen N Stoffübergangskoeffizienten auftreten, was bei der Parameteranpassung zu Problemen führen kann und sie außerdem sehr aufwendig macht.

Die Grundlage für das hier vorgestellte Modell, bei dem die Umfangsrichtung vernachlässigt wird, ist das bereits in Abschnitt 2.2.3 beschriebene Zwei- beziehungsweise Mehrzonenmodell. Der wichtigste Unterschied dazu ist vor allem die Modellierung des Transportes zwischen den Wirbelkernen und -schalen durch Diffusion statt durch Stoffübergang zwischen ideal durchmischten Zonen. Der Vorteil dieses neu entwickelten Modellansatzes ist, dass nur zwei Parameter angepasst werden müssen, was in diesem Fall numerisch leicht umzusetzen ist. Der hier beschriebene Ansatz basiert auf den folgenden Annahmen:

- die einzelnen Wirbel werden in Kern und Schale unterteilt,
- die Modellierung des Austausches zwischen benachbarten Wirbelschalen erfolgt durch Stoffübergangskoeffizienten in Anlehnung an die Filmtheorie,
- die Wirbelschale ist ideal durchmischt, da sie sehr dünn ist und deshalb schnell durch Diffusion homogenisiert wird,
- der Transport zwischen den Wirbelkernen und den dazugehörigen -schalen kann allein durch Diffusion beschrieben werden,
- im Wirbelkern wirkt die Diffusion aufgrund einer guten Durchmischung entlang der Strömungslinien nur radial (bezogen auf das Zentrum),
- in Umfangsrichtung liegt eine ideale Durchmischung vor.

So gilt für die Konzentration c im Kern K der Wirbelzelle k

$$\frac{\partial c_k^K}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c_k^K}{\partial r^2}, \quad (5.1)$$

wobei D den Diffusionskoeffizienten und r die radiale Position bezüglich des Wirbelzentrums bezeichnet (Abb. 5.1). Für die dazugehörige dünne, und deshalb durch Diffusion homogenisierte Wirbelschale S gilt

$$\frac{dc_k^S}{dt} = -\alpha(c_{k-1}^S - c_k^S) - \alpha(c_{k+1}^S - c_k^S) \quad (5.2)$$

mit dem Stoffübergangskoeffizienten α . Dazu kommen die Randbedingungen

$$r = 0 : \quad \frac{\partial c_k^K}{\partial r} = 0, \quad (5.3)$$

$$r = \delta : \quad c_k^K = c_k^S, \quad (5.4)$$

wobei δ die Stelle ist, an der sich die Grenzfläche zwischen den Wirbeln befindet und die dynamischen Randbedingungen

$$A\dot{c}_1^S = -\alpha(c_2^S - c_1^S) - D \frac{\partial c_1^K}{\partial r}, \quad (5.5)$$

$$A\dot{c}_i^S = -\alpha(c_{i-1}^S - c_i^S) - \alpha(c_{i+1}^S - c_i^S) - D \frac{\partial c_i^K}{\partial r} \quad \text{mit } 0 < i < N, \quad (5.6)$$

$$A\dot{c}_N^S = -\alpha(c_N^S - c_{N-1}^S) - D \frac{\partial c_N^K}{\partial r} \quad (5.7)$$

gelten. Dabei beschreibt A die Größe der Grenzfläche zwischen den Wirbeln.

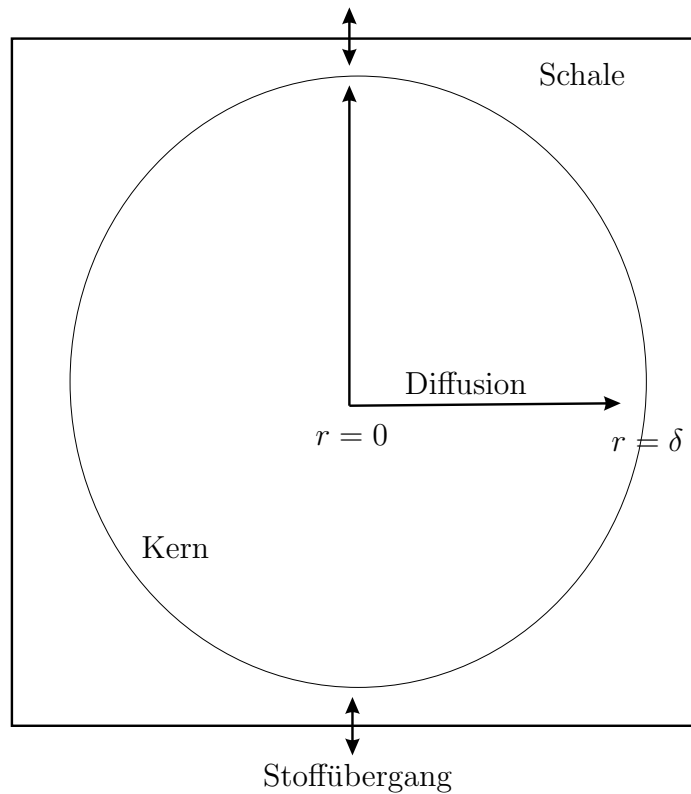


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung des untersuchten Modells zur Beschreibung des Stofftransportes in TCRs.

5.2 Modellparameteranpassung und Vergleich mit numerischen Simulationsergebnissen

Um zu überprüfen, ob der oben beschriebene Modellansatz den Stofftransport in Taylor-Couette-Reaktoren ausreichend gut beschreibt und um zusätzlich die beiden Modellparameter Diffusions- und Stoffübergangskoeffizient zu bestimmen, wird eine Modellanpassung mit Ergebnissen, die aus numerischen Tracerexperimenten gewonnen werden, durchgeführt. Da dieses Modell besonders den Stofftransport in axialer Richtung und zwischen Wirbelkern und -schale beschreiben soll, wird die gleiche Anfangstracerkonfiguration wie im Abschnitt 4.4 verwendet. Hier wird der untere der insgesamt sechs Wirbel mit Tracer gefüllt (Abb. 4.26). Dabei wird in Zeitschritten von $0,1\text{ s}$ in jedem Wirbel der Konzentrationsverlauf vom Wirbelzentrum zur Wand des äußeren Zylinder bestimmt, was acht Zellen pro Wirbel entspricht. Wie im Abschnitt

4.6 werden diese Simulationen mit einem Diffusionskoeffizienten von $1,9 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ durchgeführt. Dies führt hier ebenfalls zu einer Zunahme der numerischen Diffusion. Diese Änderung ist aber nötig, damit die Zeitskalen, auf denen der konvektive und diffusive Stofftransport stattfinden, möglichst verschieden sind. Andernfalls sind die aus den Simulationen erhaltenen Konzentrationsverläufe stark von der Drehrichtung der sekundären Wirbelströmung abhängig.

Das Modell ist mit Hilfe der Software *Matlab*, Version 6.5 programmiert worden. Die Routine besteht neben Ein- und Ausgabefunktionen im wesentlichen aus zwei miteinander gekoppelten UnterROUTINEN, eine für das Anpassen der Modellparameter und eine für das Lösen des partiellen Differentialgleichungssystems (PDE-System). Zur Anpassung der Modellparameter wird auf Daten aus den bereits beschriebenen numerischen Tracerexperimenten nach 20 s, 50 s, 80 s, 100 s und 120 s zurückgegriffen. Dem im Programm integrierten ODE-Löser *ode15s* wird dabei zum Lösen des Gleichungssystems die zeitliche Diskretisierung überlassen. Dabei wird zu den oben genannten Zeiten eine Lösung errechnet, die dann an die Anpassungsroutine zurückgegeben wird. Räumlich wird der Bereich zwischen Wirbelzentrum und -schale mit 45 Zellen diskretisiert. Die Verwendung anderer ODE-Löser führen zu den selben Ergebnissen, die dazu nötigen Rechenzeiten sind aber zum Teil deutlich höher. Zur Anpassung der Modellparameter wird eine nichtlineare Regression mit Hilfe des *PCG-Newton-Verfahrens* (Preconditioned Conjugate Gradientes - Vorkonditionierte konjugierte Gradienten) durchgeführt [Coleman und Li, 1994; Coleman und Li, 1996].

In Abbildung 5.2 ist der Konzentrationsverlauf des Tracers für die numerische Simulation und für das Modell mit den angepassten Parametern dargestellt. Der aus der Simulation erhaltene Verlauf wird durch das angepasste Modell gut wiedergegeben. Es fällt aber auf, dass beim angepassten Modell die Konzentrationen an den Grenzflächen der Wirbel, in denen sich gemäß der Anfangstracerkonzentration kein Tracer befindet, etwas zu niedrig und im Wirbelzentrum etwas zu hoch sind. Die Ursache hierfür ist die Annahme, dass an allen Orten, die sich in gleicher Entfernung vom Wirbelzentrum befinden, die gleiche Konzentration vorherrscht (ideale Durchmischung entlang der Strömungslinien). Dies ist aber in der Realität nicht der Fall, da aufgrund des Stoffübergangs zwischen den Wirbeln an den beiden dazugehörigen Grenzflächen nicht die gleichen Konzentrationen sind.

Abbildung 5.3 zeigt die beiden Modellparameter Diffusions- und Stoffübergangsko-

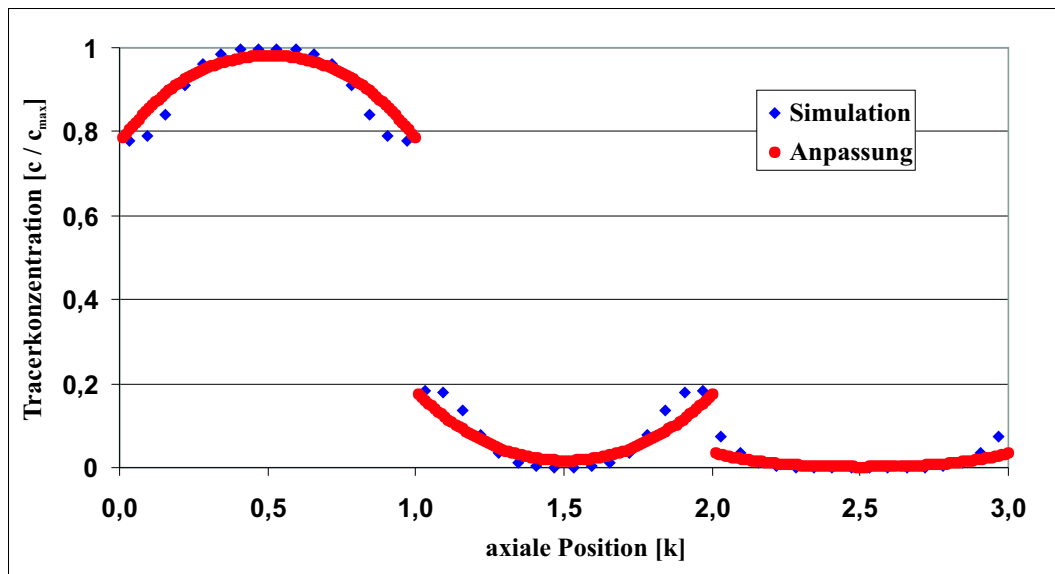


Abbildung 5.2: Vergleich der axialen Konzentrationsverläufe nach 120 s bei einer Innenzylinderdrehgeschwindigkeit von $0,8 \text{ rad s}^{-1}$. Rot: numerische Simulation, Blau: angepasstes Modell.

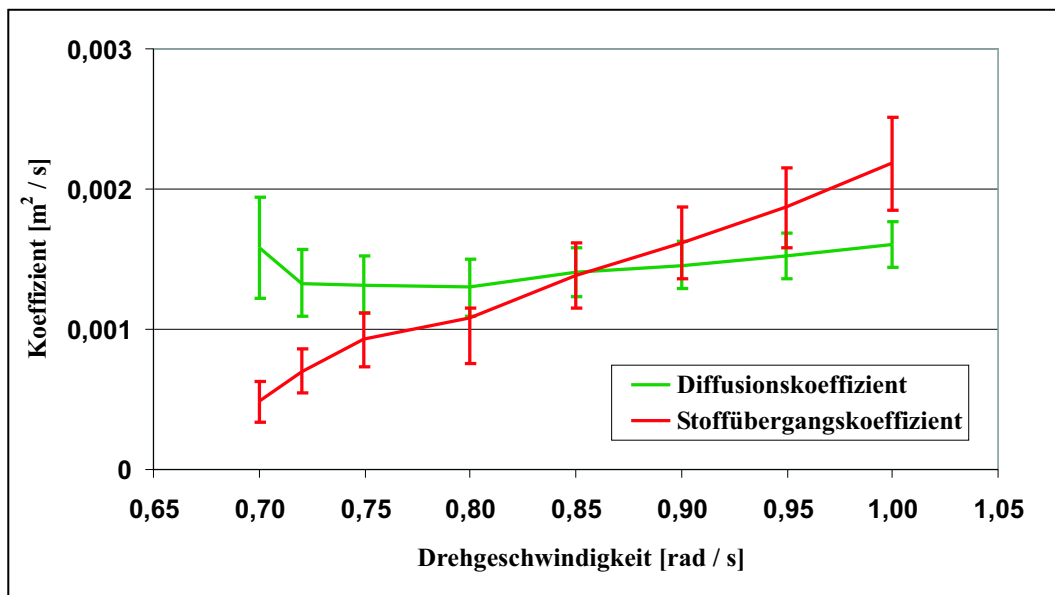


Abbildung 5.3: Die beiden Modellparameter Diffusions- und Stoffübergangskoeffizient in Abhängigkeit von der Drehgeschwindigkeit des inneren Zylinders. Zusätzlich ist der 95% Vertrauensbereich dargestellt. Grün: Diffusionskoeffizient, Rot: Stoffübergangskoeffizient.

effizient in Abhängigkeit von der Drehgeschwindigkeit des inneren Zylinders. Dabei unterliegt der Diffusionskoeffizient nur kleinen Änderungen, die aber alle innerhalb des 95% Vertrauensbereichs liegen. Da kein konvektiver Transport senkrecht zu den Strömungslinien möglich ist, und die Konvektion keinen Einfluss auf den Diffusionskoeffizienten hat, ist hierfür auch ein konstanter Wert zu erwarten. Beim Stoffübergangskoeffizienten ist ein Ansteigen mit zunehmender Zylinderdrehgeschwindigkeit zu beobachten. Die Ursache hierfür liegt in der Modellannahme, dass entlang der Strömungslinien eine ideale Durchmischung vorhanden ist. An der Grenzfläche zwischen zwei Wirbeln ist dies aber nicht der Fall, da hier der Konzentrationsgradient in Richtung der Sekundärströmung aufgrund des Stoffübergangs abnimmt [Abb. 4.20]. Mit zunehmender Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders nimmt auch die Umlaufgeschwindigkeit der sekundären Wirbelströmung zu, so dass die Verweilzeit der Fluidelemente an der Grenzfläche zwischen zwei Wirbeln verkürzt ist und so der Konzentrationsgradient nicht so stark abnimmt. Innerhalb des Modells wird dieser Effekt durch eine Abnahme des Stoffübergangskoeffizienten bei verringerter Drehgeschwindigkeit ausgeglichen, so dass dieses Modell die in der numerischen Simulation erhaltenen Konzentrationsverläufe gut wiedergeben kann [Abb. 5.2].

6 Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wird das Mischverhalten in Taylor-Couette-Reaktoren eingehend untersucht. Dazu werden numerische Tracerexperimente durchgeführt, wobei die kontinuumsmechanischen Bilanzgleichungen für Impuls, Masse und Spezies zu diesem Zweck gelöst werden. Hierbei dienen die Mischintensität nach Danckwerts und das Potenzial für diffusives Mischen zwischen den Komponenten zur Analyse. Besonders die Richtungsabhängigkeit der Mischprozesse steht dabei im Mittelpunkt, bei der große Unterschiede festgestellt werden. Besonders schnell ist der Vorgang dabei in radialer Richtung bezogen auf den Spalt. Es wird außerdem eine schlecht durchmischte Zone an denjenigen Stellen am Aussenzylinder beobachtet, wo sich die Grenzfläche zwischen den Wirbeln befindet und die sekundäre Strömung in Richtung des inneren Zylinders fließt. Das Mischen in Umfangsrichtung ist deutlich langsamer, wobei gezeigt wird, dass dieser Prozess im Bereich der Wirbelschale wesentlich schneller erfolgt als im Wirbelzentrum. Am schlechtesten ist das Mischverhalten in axialer Richtung, da ein konvektiver Speziestransport durch die Grenzfläche zwischen zwei Wirbeln nicht möglich und ein diffusiver Transport sehr langsam ist. Bei der Quantifizierung des Mischvorgangs über Wirbelgrenzen hinweg wird deutlich, dass sich in den Wirbeln, in denen sich gemäß der Anfangstracerkonfiguration kein Tracer befunden hat, die höchsten Konzentrationen an den Oberflächen auftreten. Dies wird durch die sekundäre Wirbelströmung verursacht, die in Kombination mit dem diffusiven Austausch über die Wirbel-Wirbel-Grenzflächen einen schnellen konvektiven Transport zur nächsten Grenzfläche bewirkt. Im Gegensatz dazu ist der Austausch von den äußeren Schichten in die inneren Schichten deutlich langsamer. Dies wird explizit mit Hilfe numerischer Simulationen bestätigt, bei denen sich der Tracer anfangs nur im Wirbelkern befindet. Hierbei wird eine sehr langsame Vermischung beobachtet, da der Stofftransport senkrecht zu den Strömungslinien nur durch Diffusion erfolgen kann. Allgemein kann gesagt werden, dass der Mischprozess mit steigender Drehgeschwin-

digkeit des inneren Zylinders zunimmt, da die Taylor-Wirbel einen immer größeren Einfluss auf den Prozess bekommen. Einen Sonderfall bildet der Zustand, bei dem die für das Auftreten der sekundären Wirbelströmung nötige Geschwindigkeit noch nicht überschritten ist und somit lediglich eine Couette-Strömung vorliegt. Hier ist beim Mischen in Umfangsrichtung der Prozess ohne Taylor-Wirbel deutlich schneller als mit Wirbeln, da sehr schnell neue Kontaktfläche zwischen den beiden Komponenten entsteht, die Längenskalen, auf denen die Konzentrationsgradienten, auftreten sehr schnell abnehmen und deshalb die Diffusion sehr schnell wirken kann. Ein wesentliches Ergebnis dieser Studien ist es, dass ein einzelner Wirbel nicht, wie oftmals in der älteren Literatur beschrieben, als ideal durchmischter Rührkessel angesehen werden kann und die Geschwindigkeit des Mischprozesses stark richtungsabhängig ist.

An den hier beschriebenen Ergebnissen ist deutlich geworden, dass der Stofftransport in axialer Richtung, aber auch der zwischen Wirbelkern und -hülle gering ist. Um das verfahrenstechnische Potenzial des TCRs voll ausnutzen zu können, ist es aber gerade in Hinblick auf eine gute thermische Kontrollierbarkeit notwendig, die Vermischung innerhalb der Wirbel zu verbessern. Aus diesem Grund werden geeignete numerische Tracerexperimente durchgeführt, bei denen die Drehgeschwindigkeit des Innenzylinders sinusförmig moduliert wird. Es wird gezeigt, dass bei sinusförmigen Modulationen die erreichbare Mischintensität gesteigert werden kann. Mit steigender Frequenz durchläuft sie aufgrund der Trägheit des Systems ein Maximum. Die Amplitude kann dabei aus demselben Grund unter Beibehaltung der sekundären Wirbelströmung auf einen Wert erhöht werden, bei dem die für den Übergang zwischen Couette- und Taylor-Couette-Strömung nötige Drehgeschwindigkeit unterschritten wird. Besonders wichtig ist dabei, dass der Stofftransport zwischen Wirbelkern und -schale deutlich beschleunigt wird, wobei der Transport in axialer Richtung nur geringfügig zunimmt.

Das Mischverhalten eines gesamten TCRs kann aufgrund der Mehrskaligkeit der ablaufenden Prozesse nur mit hohem Aufwand numerisch simuliert werden. Aus diesem Grund wird ein vereinfachendes Modell reduzierter Dimensionalität entwickelt, wobei jeder einzelne Wirbel in einen Kernbereich, und eine ideal durchmischte Schale unterteilt wird. Der Stoffaustausch zwischen den Wirbeln wird mit Hilfe eines Übergangskoeffizienten beschrieben. Innerhalb der Wirbel erfolgt der Transportvorgang

in radialer Richtung bezogen auf das Wirbelzentrum diffusiv. Der Transport in Umfangsrichtung wird dabei nicht erfasst. Das hieraus resultierende Modell ist zweidimensional und erfordert nach Anpassung der Parameter keine weitere Simulation der Strömung. Die Parameteranpassung erfolgt anhand der hochaufgelösten Daten aus den zuvor durchgeführten Simulationen. Anhand eines Vergleichs von Modell und Simulation wird gezeigt, dass dieses in der Lage ist, den Stofftransport in TCRs gut zu beschreiben und so die in der Literatur bekannten zu erweitern.

Im Rahmen zukünftiger Arbeiten sollten chemische Reaktionen in Taylor-Couette-Reaktoren eingehend untersucht werden. Dabei ist besonders der Einfluss der axialen Durchströmung, die für eine kontinuierliche Prozessführung nötig ist, detailliert zu untersuchen. Erste experimentelle Erkenntnisse dazu sind bereits in der Literatur vorhanden. Dagegen ist über die Bildung und das Auflösen von Wirbeln an den Reaktorenden und den Einfluss verschiedener Bauformen des Ein- und Auslasses noch sehr wenig bekannt. In Hinblick auf eine Verwendung für Polymerisationen kommt dem Einfluss von orts-, temperatur- und speziesabhängiger Viskosität eine besondere Bedeutung zu. Dabei muss die Rückwirkung auf das Strömungsfeld und das Mischverhalten erfasst werden, was bei dem in den Anwendungen sehr häufig auftretenden nicht-newtonischen Verhalten sehr schwierig wird. Zusätzlich kommt gerade unter Sicherheits- und Prozessführungsaspekten dem Wärmetransport eine besondere Bedeutung zu. Die möglichen Viskositätsänderungen der Fluide entlang der Reaktorachse können unter Umständen modifizierte Geometrien erforderlich machen. Da bei den meisten vorgeschlagenen Reaktionen die Viskosität ansteigt, ist es nötig, beide oder lediglich den äußeren Zylinder konisch aufzuweiten, um den Druckabfall zu reduzieren. Auch im Bereich der Optimierung des Mischverhaltens mittels Drehzahlmodulation sind noch weitere Untersuchungen erforderlich. So sind neben der sinusförmigen Modulation noch zahlreiche andere Formen (sägezahn-, rechteckförmig, etc.) möglich. Neben der in dieser Arbeit untersuchten Strömungsform sind noch zahlreiche weitere bekannt, deren Mischverhalten bisher unzureichend untersucht ist. So könnte damit fortgefahren werden, das Mischen in wavy- oder turbulenten Taylor-Wirbeln auf seine verfahrenstechnische Tauglichkeit zu überprüfen. Dabei können auch theoretische Methoden zur Analyse von Geschwindigkeitsfeldern wie Lyapunov-Exponenten und Dehnungsraten sowie Raten der Energiedissipation, aufgeteilt in ihre Anteile

bezüglich axialer, radialer und Umfangsrichtung, Anwendung finden. Im Rahmen dieser Arbeiten können dann mit Hilfe der aus ihnen gewonnenen Erkenntnisse entsprechende Modelle entwickelt werden.

7 Symbolverzeichnis

Lateinische Zeichen

<i>a</i>	[-]	Konstante
<i>A</i>	[-]	Koeffizient (Couette-Strömung)
<i>A</i>	[m^2]	Fläche
<i>b</i>	[-]	Konstante
<i>B</i>	[-]	Koeffizient (Couette-Strömung)
<i>c</i>	[$m s^{-1}$]	Steigerungsrate der Störungsgeschwindigkeit
<i>c</i>	[kg/kg]	Konzentration
<i>C</i>	[kg/kg]	Konzentration
<i>C</i>	[-]	Konstante
<i>d</i>	[m]	Spaltbreite
<i>D</i>	[$m^2 s^{-1}$]	Diffusionskoeffizient
<i>e</i>	[m]	Abstand der Zylinderachsen
<i>ecc</i>	[-]	Exzentrizität
g	[$m s^{-2}$]	Gravitationsvektor
<i>h</i>	[$J kg^{-1}$]	Helizität
<i>H</i>	[-]	Heaviside-Funktion
<i>I</i>	[-]	Intensität der Segregation
<i>Im</i>	[-]	Imaginärteil
<i>k</i>	[$m^2 s^{-1}$]	Stoffübergangskoeffizient
<i>K</i>	[$m^2 s^{-1}$]	Stoffübergangskoeffizient in Abschnitt 2.2.3
<i>K</i>	[J]	kinetische Energie
<i>L</i>	[m]	Länge

n	[-]	Laufzahl
n	[-]	Normalenvektor
N	[-]	Wirbelanzahl
M	[-]	Mischintensität
p	[Pa]	Druck
r	[m]	Radius
R	[m]	Zylinderradius
R	[-]	Korrelationskoeffizient
R_{12}	[-]	Radienverhältnis
Re	[-]	Reynoldszahl
s	[-]	Selektivität
S	[m ²]	Grenzfläche zwischen zwei Wirbeln
S	[m]	Skala der Segregation
Sc	[-]	Schmidtzahl
t	[s]	Zeit
Ta	[-]	Taylor-Zahl
u	[m s ⁻¹]	Geschwindigkeitsvektorkomponente
\mathbf{u}	[m s ⁻¹]	Geschwindigkeitsvektor
v	[m s ⁻¹]	Geschwindigkeit
\mathbf{v}	[m s ⁻¹]	periodischer Störungsvektor
V	[m ³]	Volumen
\overline{W}	[m s ⁻¹]	mittlere axiale Geschwindigkeit
x	[m]	radiale Koordinate
X	[-]	Segregationsgrad
y	[m]	radiale Koordinate
z	[m]	axiale Koordinate

Griechische Symbole

α	[-]	axiale Wellenzahl
α	[$m^2 s^{-1}$]	Stoffübergangskoeffizient
δ	[-]	zusätzliche Störung
δ	[-]	Dirac-Impuls
Δ	[-]	Laplace-Operator
Δ	[-]	Differenz
ϵ	[-]	Schmalheitsparameter des Spalts
η	[$Pa s$]	dynamische Viskosität
∇	[-]	Nabla-Operator
μ	[$Pa s$]	dynamische Viskosität
ν	[$m^2 s^{-1}$]	kinematische Viskosität
ρ	[$kg m^{-3}$]	Dichte
ω	[$rad s^{-1}$]	Winkelgeschwindigkeit
Ω	[$rad s^{-1}$]	Winkelgeschwindigkeit
Ω_{21}	[-]	Verhältnis der Drehgeschwindigkeiten
ϕ	[-]	skalare Größe
Φ	[m^{-1}]	Potenzial für diffusives Mischen
σ	[-]	Standardabweichung
τ	[s]	Verweilzeit
τ	[Pa]	Scherspannung
θ	[rad]	Winkel
φ	[-]	Anteil des Austausch- am Gesamtvolumen
ξ	[-]	Wirbelvektor

Indices

- 1 innerer Zylinder
- 2 äußerer Zylinder
- ax axial

<i>bot</i>	Reaktorfuß
<i>c</i>	kritischer Wert
<i>c</i>	Wirbelkern
<i>d</i>	Austauschvolumen
<i>eff</i>	effektiv
<i>i</i>	Laufzahl
<i>j</i>	Laufzahl
<i>k</i>	Laufzahl der Wirbelzellen
<i>K</i>	Wirbelkern
<i>krit</i>	kritisch
<i>m</i>	Mittelwert
<i>r</i>	radiale Richtung
<i>top</i>	Reaktorkopf
<i>umf</i>	Umfangsrichtung
<i>S</i>	Wirbelschale
<i>T</i>	gesamt
<i>ts</i>	total segregierter Zustand
<i>w</i>	Wirbel
<i>z</i>	axiale Richtung
θ	Komponente in Umfangsrichtung
*	dimensionsbehaftete Größe

Abkürzungen

CSTR	-	<u>C</u> ontinuous <u>S</u> tirred <u>T</u> ank <u>R</u> eactor Kontinuierlicher Rührkesselreaktor
DNS	-	<u>D</u> irekte <u>N</u> umerische <u>S</u> imulation
LTVF	-	<u>L</u> aminar <u>T</u> aylor <u>V</u> ortex <u>F</u> low Taylor-Couette-Strömung
ODE	-	<u>O</u> rdinary <u>D</u> ifferential <u>E</u> quation Gewöhnliche Differentialgleichung
PCG	-	<u>P</u> reconditioned <u>C</u> onjugate <u>G</u> radients Vorkonditionierte konjugierte Gradienten

PDE	-	<u>P</u> artial <u>D</u> ifferential <u>E</u> quation Partielle Differentialgleichung
PFR	-	<u>P</u> lug <u>F</u> low <u>R</u> eactor Strömungsrohrreaktor
QPWVF	-	<u>Q</u> uasi <u>P</u> eriodic <u>W</u> avy <u>V</u> ortex <u>F</u> low Quasi-periodische Wavy-Wirbelströmung
SIMPLEC	-	<u>S</u> emi- <u>I</u> mplicit <u>M</u> ethod for <u>P</u> ressure- <u>L</u> inked <u>E</u> quations- <u>C</u> onsistent Semi-implizites Verfahren zur konsistenten Geschwindigkeits-Druck-Kopplung
SPWVF	-	<u>S</u> ingle <u>P</u> eriodic <u>W</u> avy <u>V</u> ortex <u>F</u> low Einfach periodische Wavy-Wirbelströmung
TCR	-	<u>T</u> aylor- <u>C</u> ouette- <u>R</u> eaktor
TVF	-	<u>T</u> urbulent <u>V</u> ortex <u>F</u> low Turbulente Wirbelströmung
UDF	-	<u>U</u> ser <u>D</u> efined <u>F</u> unction benutzerdefinierte Funktion
WVF	-	<u>W</u> avy <u>V</u> ortex <u>F</u> low Wavy-Wirbelströmung

Literaturverzeichnis

Ameer, G. A., Grovender, E. A., Obradovic, B., Cooney, C. L., und Langer, R. RTD Analysis of a Novel Taylor-Couette Flow Device for Blood Detoxification. *AIChE Journal* (1999), 45(3): 633 – 639.

Andereck, C. D., Liu, S. S., und Swinney, H. L. Flow regimes in a circular Couette system with independently rotating cylinders. *Journal of Fluid Mechanics* (1986), 164: 115 – 183.

Aris, R. On the dispersion of solute by diffusion, convection, and exchange between phases. *Proceedings of the Royal Society of London, Series A, Mathematical and Physical Sciences* (1959), A252: 538 – 551.

Baier, G. Liquid-Liquid extraction based on a new flow pattern: two-fluid Taylor-Couette flow. *PhD-Thesis, University of Wisconsin, USA* (1999).

Barth, T. J. und Jespersen, D. The design and application of upwind schemes on unstructured meshes (1989), (AIAA-89-0366).

Boss, J. Evaluation of the Homogeneity Degree of Mixture. *Bulk Solids Handling* (1986), 6(6): 121 – 129.

Bothe, D. Evaluating the quality of mixing: Degree of homogeneity and scale of segregation. *in Vorbereitung* (2004).

Bothe, D., Stemich, C., und Warnecke, H. J. Theoretische und experimentelle Untersuchungen der Mischvorgänge in T-förmigen Mikromischern - teil i: Numerische Simulation und Beurteilung des Strömungsmischens. *eingereicht bei Chemie Ingenieur Technik* (2004).

- Campero, R. J. und Vigil, R. D. Axial dispersion during low Reynolds number Taylor-Couette flow: Intra-vortex mixing effects. *Chemical Engineering Science* (1997), 52(19): 3303 – 3310.
- Carslaw, H. S. und Jaeger, J. C. *Conduction of Heat in Solids*. Clarendon Press (1959), Oxford.
- Chandrasekhar, S. *Hydrodynamic and Hydromagnetic Stability*. Oxford University Press (1961), New York.
- Chossat, P. und Iooss, G. The Couette-Taylor Problem. *Applied Mathematical Sciences* (1994), 102.
- Cohen, S. und Marom, D. M. Experimental and Theoretical Study of a Rotating Annular Flow Reactor. *Chemical Engineering Journal* (1983), 27: 87 – 97.
- Cole. Taylor-vortex instability and annulus-length effects. *Journal of Fluid Mechanics* (1976), 75: 1 – 15.
- Coleman, T. F. und Li, Y. On the Convergence of Reflective Newton Methods for Large-Scale Nonlinear Minimization Subject to Bounds. *Mathematical Programming* (1994), 67(2): 189 – 224.
- Coleman, T. F. und Li, Y. An Interior, Trust Region Approach for Nonlinear Minimization Subjects to Bounds. *SIAM Journal on Optimization* (1996), 6: 418 – 445.
- Coles, D. Transition in circular Couette flow. *Journal of Fluid Mechanics* (1965), 21: 385 – 425.
- Couette, M. F. A. Études sur le Frottement des Liquides. *Annales de Chimie et de Physique* (1890), 21(6): 433 – 510.
- Danckwerts, P. V. The definition and measurement of some characteristics of mixtures. *Applied scientific research / A* (1952), A3: 279 – 296.
- Davis, M. und Weber, E. Liquid Liquid Extraction between Rotating Cylinders. *Industrial and Engineering Chemistry* (1960), 52(11): 929 – 934.

Desmet, G., Verelst, H., und Baron, G. V. Local and Global Dispersion Effects in Couette-Taylor Flow — I. Description and Modeling of the Dispersion Effects. *Chemical Engineering Science* (1996), 51(8): 1287 – 1298.

Desmet, G., Verelst, H., und Baron, G. V. Local and Global Dispersion Effects in Couette-Taylor Flow — II. Quantitative Measurements and Discussion of the Reactor Performance. *Chemical Engineering Science* (1996), 51(8): 1299 – 1309.

Desmet, G., Verelst, H., und Baron, G. V. Transient and stationary axial dispersion in vortex array flow — I. Axial scan measurement and modeling of transient dispersion effects. *Chemical Engineering Science* (1997), 52(14): 2383 – 2401.

Donnelly, R. J. Taylor - Couette Flow: The early Days. *Physics Today* (1991), 1: 32 – 39.

Drazin, P. G. und Reid, W. H. *Hydrodynamic Stability*. Cambridge University Press (1981).

Enokida, Y., Nakata, K., und Suzuki, A. Axial Turbulent Diffusion in Fluid between Rotating Coaxial Cylinders. *AIChE Journal* (1989), 35(7): 1211 – 1214.

Feast, A. A. J. Continuous Emulsion Polymerisation. *Progress of Applied Chemistry* (1972), 56: 45 – 54.

Fenstermacher. Dynamical Instabilities and the Transition to Chaotic Taylor Vortex Flow. *Journal of Fluid Mechanics* (1979), 94(1): 103 – 108.

Fluent Inc. (2003). *Fluent 6.1 Documentaion*. Fluent Deutschland GmbH.

Fournier, M. C., Falk, L., und Villermaux, J. A new parallel compending reaction system for assessing micromixing efficiency. Experimental approach. *Chemical Engineering Science* (1996), 51: 5053 – 5064.

Giordano, R. C., Giordano, R. L. C., Prazeres, D. M. F., und Cooney, C. L. Analysis of a Taylor-Poiseuille vortex flow reactor — II: Reactor modeling and performance assessment using glucose-fructose isomerization as test reaction. *Chemical Engineering Science* (2000), 55: 3611 – 3626.

- Grohmann, A. Entwicklung und Erprobung eines Flockungsreaktors hoher Leistungsdichte für die Wasserreinigung. *Forschungsbericht T 85-070, BMFT-FB-T 85-070, Fachinformationszentrum Karlsruhe* (1985).
- Haas, R. und Bühler, K. Einfluß nichtnewtonischer Stoffeigenschaften auf die Taylor-Wirbelströmung. *Rheologica Acta* (1989), 28: 402 – 413.
- Haim, D. und Pismen, L. M. Performance of a Photochemical Reactor in the Regime of Taylor-Görtler Vortical Flow. *Chemical Engineering Science* (1994), 49(8): 1119 – 1129.
- Hasoon, M. A. und Martin, B. W. 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* (1977), 352: 351 – 380.
- Howes, T. und Rudman, M. Flow and Axial Dispersion Simulation for Traveling Axisymmetric Taylor Vortices. *AIChE Journal* (1998), 44(2): 255 – 262.
- Huang, Q. und Liu, C. C. K. Relationship between oxygen flux and biofilm performance. *Water Science Technology* (1994), 28(7): 87 – 97.
- ICI. Verfahren und Vorrichtungen zur kontinuierlichen Emulsionspolymerisation. *Patentschrift 1 071 341, I 13422IVb/39* (1957).
- Iosilevski, G., Brenner, H., Moore, C. M. V., und Cooney, C. L. Mass Transport and Chemical Reaction in Taylor Vortex Flow with Entrained Catalyst Particles: Applications to a Novel Class of Immobilized Enzyme Biochemical Reactors. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* (1993), 345: 259 – 294.
- Janes, D. A., Thomas, N. H., und Callow, J. A. Demonstration of a Bubble Free Annular Vortex Membrane Bioreaktor for Batch Culture of Red Beet Cells. *Biotechnology Techniques* (1987), 1(4): 257 – 262.
- Kataoka, K., Doi, H., Hongo, T., und Futagawa, M. Ideal plug flow properties of Taylor vortex flow. *Journal of Chemical Engineering of Japan* (1975), 8(6): 472 – 476.

- Kataoka, K., Ohmura, N., Kouzo, M., Simamura, Y., und Okubo, M. Emulsion Polymerization of Styrene in Continuous Taylor Vortex Flow Reactor. *Chemical Engineering Science* (1995), 50(9): 1409 – 1416.
- Kataoka, K. und Takigawa, T. Intermixing over cell boundary between Taylor vortices. *AIChE Journal* (1981), 27: 504 – 508.
- Koschmieder, E. L. Taylor Vortices between Eccentric Cylinders. *Physics of Fluids* (1976), 19(1): 1 – 4.
- Koschmieder, E. L. *Bénard Cells and Taylor Vortices*. Cambridge University Press (1993), New York.
- Kossak, S. *Kontinuierliche Lösungspolymerisation von Acrylmonomeren in Taylor-Reaktoren*. Wissenschaft und Technik-Verlag (2000).
- Krohner, K. H. und Nissinen, V. Dynamic Filtration of Microbial Suspensions Using an Axially Rotating Filter. *Journal of Membrane Science* (1988), 36: 85 – 100.
- Krohner, K. H., Nissinen, V., und Ziegler, H. Improved Dynamic Filtration of Microbial Suspensions. *Biotechniques* (1987), 5: 921 – 924.
- Legrand, J., Dumarque, P., und Coeuret, F. Overall Mass Transfer to the Rotating Inner Electrode of a Concentric Cylindrical Reactor with Axial Flow. *Electrochimica Acta* (1980), 25: 669 – 673.
- Lo, T. C., Baird, M. H. I., und Hansen, C. *Handbook of Solvent Extraction*. John Wiley and Sons (1983), New York.
- Mallock, A. Experiments on Fluid Viscosity. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* (1896), 187: 41 – 56.
- Marchisio, D. L. und Barresi, A. A. CFD simulation of mixing and reaction: the relevance of the micro-mixing model. *Chemical Engineering Science* (2003), 58: 3579 – 3587.

- Marques, F. und Lopez, J. M. Taylor-Couette flow with axial oscillations of the inner cylinder: Floquet analysis of the basic flow. *Journal of Fluid Mechanics* (1997), 348: 153 – 175.
- Moore, C. M. V. und Cooney, C. L. Axial Dispersion in Taylor-Couette Flow. *AIChE Journal* (1995), 41(3): 723 – 727.
- Murase, T., Iritani, E., Chidphong, P., Kano, K., Atsumi, K., und Shirato, M. High-Speed Microfiltration Using a Rotating Cylindrical Ceramic Membrane. *International Journal of Chemical Reactor Engineering* (1991), 31(2): 370 – 378.
- Ng, B. S. und Turner, E. R. On the Linear Stability of Spiral Flow between Rotating Cylinders. *Proceedings of the Royal Society of London, Series A, Mathematical and Physical Sciences* (1982), 382(83): 83 – 102.
- Ohmura, N., Kataoka, K., Shibata, Y., und Makino, T. Effective mass diffusion over cell boundaries in a Taylor-Couette flow system. *Chemical Engineering Science* (1997), 52(11): 1757 – 1765.
- Ottino, J. M. *The kinematics of mixing; stretching, chaos, and transport*. Cambridge texts in applied mathematics. Cambridge University Press (1989), Cambridge.
- Patankar, S. V. *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow*. Hemisphere (1980), Washington, D.C.
- Pudijiono, P. I., Tavaré, N. S., Garside, J., und Nigam, K. D. P. Residence Time Distribution from a Continuous Couette Flow Device. *Chemical Engineering Journal* (1992), 48: 101 – 110.
- Rayleigh, J. W. S. On the motion of a viscous fluid. *Philosophical Magazine* (1913), 26: 776 – 786.
- Rose, H. E. A suggested equation relation to the mixing of powders and its application to the study of the performance of certain types of machine. *Transactions of the Institution of Chemical Engineers* (1959), 37(4): 47 – 64.
- Schmidt, W. *Entwicklung von Reaktoren für die kontinuierliche Emulsionspolymerisation als Alternative zum Durchfluß-Rührkessel und zur Durchfluß-Rührkesselkaskade*. Dissertation, Wissenschaft und Technik Verlag, Berlin (1998).

Sinha, M., Kevrekidis, I. G., und Smits, A. J. Spatial Response of wavy vortex flow to axial oscillations of the inner cylinder. *12th International Couette-Taylor Workshop* (2001).

Stieß, M. *Mechanische Verfahrenstechnik 1*. Springer (1995), Berlin, 2. Auflage.

Takeuchi, D. I. und Jankowski, D. F. A Numerical and Experimental Investigation of the Stability of Spiral Poiseuille Flow. *Journal of Fluid Mechanics* (1981), 102: 101 – 126.

Tam, W. Y. und Swinney, H. L. Mass Transport in Turbulent Flow between Concentric Cylinders at Large Taylor Number. *Physical Review A* (1987), 36: 1374.

Taylor, G. Dispersion of soluble matter in solvent flowing slowly through a tube. *Proceedings of the Royal Society of London, Series A, Mathematical and Physical Sciences* (1953), A219: 186 – 203.

Taylor, G. I. Stability of a Viscous Liquid contained between Two Rotating Cylinders. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* (1923), A233: 289 – 343.

Vandormaal, J. P. und Raithby, G. D. Enhancement of the SIMPLE Method for Predicting Incompressible Fluid Flows. *Numerical Heat Transfer* (1984), 7: 147 – 163.

Weast, R. C. *Handbook of Chemistry and Physics*. CRC-PRESS (1985), 66. Auflage.

Weisberg, A. Y., Kevrekidis, I. G., und Smits, A. J. Delaying transition in Taylor-Couette flow with axial motion of the inner cylinder. *Journal of Fluid Mechanics* (1997), 348: 141– 151.

Wiggins, S. und Ottino, J. M. Foundations of chaotic mixing. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* (2004), A362: 937 – 970.

Winzeler, H. und Belfort, G. Enhanced Performance for Pressure-Driven Membrane Processes: The Argument for Fluid Instabilities. *Journal of Membrane Science* (1993), 80(1): 35 – 47.

Zogg, M. *Einführung in die Mechanische Verfahrenstechnik*. Teubner (1987), Stuttgart, 2. Auflage.