

**Theoretische und numerische Untersuchung
des Strömungsmischens
in einem T-förmigen Mikromischer**

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor der Naturwissenschaften

-Dr. rer. nat.-

vorgelegt

der Fakultät für Naturwissenschaften

Department Chemie

der Universität Paderborn

von

Carsten Stemich

Paderborn, 29. August 2006

25. November 2006

Die vorliegende Arbeit wurde in der Zeit von Januar 2003 bis August 2006 im Institut für Technische Chemie und Chemische Verfahrenstechnik im Fachbereich Chemie und Chemietechnik der Universität Paderborn angefertigt.

Referent: Prof. Dr.-Ing. H.-J. Warnecke
Universität Paderborn
Fakultät für Naturwissenschaften
Institut für Technische Chemie und Chemische Verfahrenstechnik

Korreferent: Prof. Dr. rer. nat. D. Bothe
RWTH Aachen
Lehrstuhl für Mathematik
Center for Computational Engineering Science

Datum der Abgabe: 29. August 2006

Datum der mündlichen Prüfung: 10. November 2006

Hiermit erkläre ich,
dass ich die vorgelegte Dissertation selbständig ausgeführt und verfasst habe und alle
benutzten Quellen und Hilfsmittel vollständig angegeben worden sind.

Carsten Stemich

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die durch ihre sowohl 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,

Prof. Dr. rer. nat. D. Bothe für die Übernahme des Korreferates, seinen großen Einsatz, seine stete Diskussionsbereitschaft und seine unverzichtbare Unterstützung bei allgemeinen und mathematischen Fragestellungen,

Thorsten Grebe für die Diskussionen bei einer Tasse Kaffee,

Alexander Lojewski für die Weiterführung der Arbeiten,

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

Und natürlich danke ich auch Jana, die stets für mich da ist.

Meinen Eltern

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Problemstellung	1
2	Theoretische Grundlagen und Stand des Wissens	5
2.1	Mikrotechnologie	5
2.1.1	Mikromischer	7
2.1.2	Technische Anwendungen	9
2.2	Skalen	10
2.3	Beurteilung der Mischqualität bzw. des Mischzustandes	19
2.3.1	Statistische Beurteilungen	19
2.3.2	Potenzial für diffusives Mischen	21
2.3.3	Beurteilung der Mischgüte durch chemische Reaktion	24
3	Numerische Strömungssimulation	27
3.1	Numerische Verfahren in Fluent	28
3.1.1	Örtliche Diskretisierung	29
3.1.2	Zeitliche Diskretisierung	34
3.1.3	Parallelität in Fluent	35
3.2	Solvereinstellungen	36
3.3	Geometrie und Randbedingungen	37
3.4	Untersuchungen zur Gitterinvarianz	39
3.5	Verwendete Gitter	41
3.6	Untersuchungen zur Schmidt-Zahl Variation	42
3.7	Implementierung benutzerdefinierter Funktionen und Auswertungen	43
3.8	Berechnung des Strömungsfeldes	45
3.9	Berechnung des Speziestransportes	45
3.10	Berechnung reaktiver Systeme	46

3.11	Analyse des Deformationsratentensors	49
3.12	Untersuchungen zum Verweilzeitverhalten	50
3.13	Untersuchungen zur Strömungsmodulation	52
4	Ergebnisse der numerischen Simulationen	55
4.1	Gitterinvarianz	55
4.1.1	Hydrodynamik	56
4.1.2	Speziestransport	58
4.2	Strömungsbereiche	59
4.3	Druckverlauf und Energiedissipation	62
4.4	Tracerexperimente	65
4.4.1	Spezifische Kontaktfläche und Mischgüte am Ende der Mischzone	67
4.4.2	Spezifische Kontaktfläche und Mischgüte entlang des Mischkanals	71
4.4.3	Diffusivität des Tracers	76
4.4.4	Verweilzeitverhalten	82
4.4.5	Asymmetrische Einlaufbedingungen	85
4.5	Verbesserung der Mischgüte	89
4.5.1	Verbesserung durch Geometrievariation	89
4.5.2	Verbesserung durch Strömungsmodulation	99
4.6	Reaktive Systeme	103
5	Experimentelle Validierung	107
5.0.1	Passiver Speziestransport	108
5.0.2	Reaktive Systeme	112
6	Zusammenfassung und Ausblick	115
7	Symbolverzeichnis	119
	Literaturverzeichnis	123
A	Anhang	i
A.1	Herleitung: Kanalströmung	i
A.2	Quellcode udf.c	ix

1 Einleitung und Problemstellung

Die Bedeutung von Mikroreaktoren ist in den letzten Jahren stark angestiegen. Das große Fläche-zu-Volumen-Verhältnis verspricht Verbesserungen in Ausbeute und Selektivität, da diffusive Flüsse von Spezies und Wärme mit der Fläche skalieren, während die Änderungen durch Quellen und Senken proportional zum Volumen sind. Um die daraus resultierenden Potenziale, die sich für die technische Anwendung ergeben, voll ausschöpfen zu können, ist ein fundamentales Verständnis der Transportprozesse auf den für Mikroreaktoren relevanten Zeit- und Längenskalen notwendig. Dabei ist die Vermischung chemisch reagierender Spezies von besonderem Interesse. Eine notwendige Voraussetzung jeder chemischen Reaktion ist die Vermischung auf molekularer Ebene, d.h. die mittleren Abstände der Reaktanden zueinander müssen in Bereichen unterhalb von 1 nm liegen. Auf der anderen Seite werden Edukte meist segregiert in den Reaktor gegeben, wobei die Längenskalen, auf denen Segregation auftritt, in Bereichen der Reaktorabmessungen liegen. Im Falle der hier untersuchten Mikro-Reaktoren sind dies Längen im Bereich von bis ca. zu $100\text{ }\mu\text{m}$. In Mikro-Reaktoren sind dabei laminare Strömungsformen zu bevorzugen, da auf Grund der kleinen Abmessungen turbulente Strömungen mit zu hohen Druckverlusten verbunden sind.

Durch Sekundärströmungen können die mittleren Abstände zwischen unterschiedlich konzentrierten Bereichen verkleinert werden, so dass vorhandene Längenskalen bis hinunter zu ca. $5 - 10\text{ }\mu\text{m}$ minimiert werden. Dies gilt insbesondere bei einer Verdrillung der Eingangsströme. Die so entstehenden Skalen müssen diffusiv ausgeglichen werden, um eine homogene Verteilung der Reaktanden zu erreichen. Bei Parallel- oder Folgereaktionen kann es, durch unzureichende Vermischung auf molekularer Ebene, zur Beeinflussung der Selektivitäten und der Ausbeuten kommen.

Dabei hängt es von der durchzuführenden Reaktion ab, ob die vorhandenen Strukturen diffusiv ausgeglichen werden können. Bei sehr langsamen Reaktionen, deren

Zeitskalen (der Reaktionen) im Bereich einiger Sekunden oder gar Minuten liegen, ist meistens die Diffusionszeit ausreichend. Somit kommt es nicht zu einer Mischungsmaskierung der Reaktion. Bei schnellen Reaktionen reicht die Diffusionszeit meist nicht mehr aus; die Gradienten werden unzureichend abgebaut, und somit wird die stattfindende Reaktion maskiert von Transportprozessen. In Abbildung 1.1 sind die hier

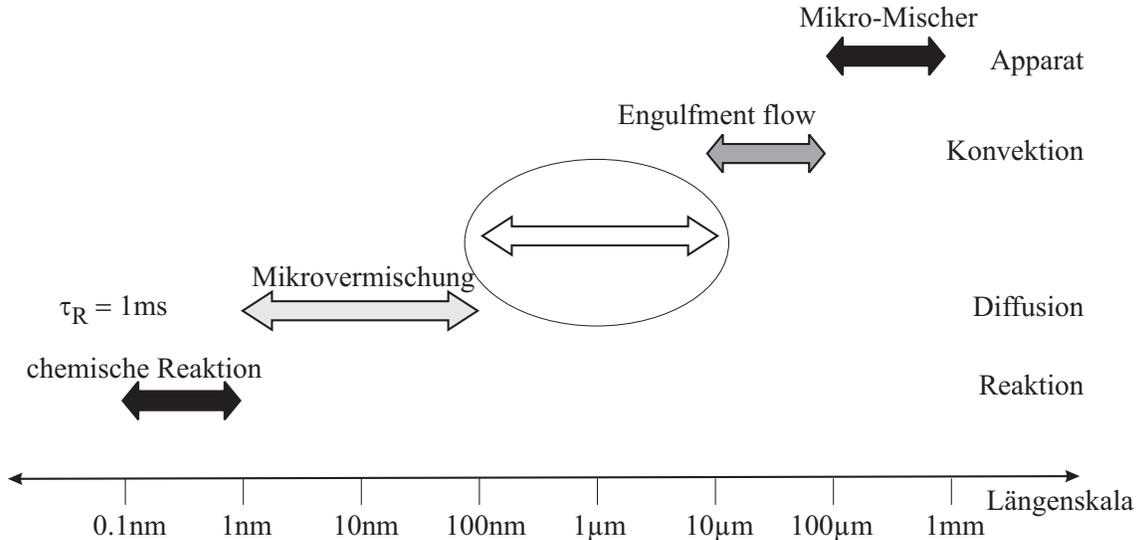


Abbildung 1.1: Die durch das Zusammenspiel von Diffusion und Konvektion entstehenden Längenskalen bei gleichzeitiger chemischer Reaktion.

beschriebenen Längenskalen dargestellt. Die dort mit Mikrovermischung bezeichnete Strecke kennzeichnet die Abstände, die diffusiv, bei einer Zeitskala der Reaktion von 1 ms (entspricht einer Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten von 10^3 s^{-1}), überwunden werden können. Dies bedeutet, dass die Skalen, auf denen die Reaktionspartner maximal voneinander getrennt vorliegen, höchstens 100 nm breit sein dürfen, um keine Beeinflussung der Selektivitäten zu erhalten. Dadurch ergibt sich bei schnellen chemischen Reaktionen eine Lücke, die es zu überbrücken gilt, um eine Maskierung der Reaktion zu vermeiden.

Ziel dieser Arbeit ist zum einen ein fundamentales Verständnis der Transportprozesse in einem T-förmigen Mikromischer mit rechteckigem Kanalquerschnitt zu erlangen, und zum anderen die durch das Zusammenspiel von Konvektion und Diffusion erzeugten Skalen näher zu untersuchen.

Untersucht werden die durch Konvektion und Diffusion erzeugten Vermischungen. Bewertet werden die erzielten Vermischungen zum einen mittels einem von der Dankwerts'schen Definition der Intensität der Segregation abgeleitetem Maß. Zum anderen wird die Vermischung durch das Potenzial für diffusives Mischen bewertet. Das letztere ist in voll segregierten Systemen einerseits ein Maß für die spezifische Kontaktfläche, andererseits ist es ein Maß für die Triebkraft des diffusiven Ausgleichs des Systems. Dieses gilt für den Fall, dass die Gradienten teilweise durch stattfindende Diffusionsprozesse egalisiert worden sind.

In Systemen, wie z.B. in einem Strömungsrohrreaktor, müssen, um Selektivitäten und Ausbeuten chemischer Reaktionen zu maximieren, Vermischungsprozesse in axialer Richtung minimiert werden. In Analogie zur Diffusion, bezeichnet man diese Prozesse als axiale Dispersion und diese führen zu einer Verbreiterung des Verweilzeitpektrums eines Reaktors. Radial hingegen möchte man möglichst eine homogene Verteilung erreichen, somit müssen die Vermischungsprozesse in radialer Richtung intensiviert werden. Um die Prinzipien zu erkennen, die zu einer guten Vermischung in radialer Richtung bei gleichzeitiger geringer axialer Vermischung führen, werden die Leistungseinträge in axialer sowie in radialer Richtung für verschiedene Strömungsbereiche untersucht. Die dadurch erlangten Kenntnisse sollen dazu dienen, Geometrien und die damit verbundenen Strömungsformen zu optimieren, um so die Lücke, die bei schnellen Reaktionen auftritt, zu verkleinern, bzw. zu überbrücken.

Die Untersuchungen werden auf der numerischen Strömungssimulation basierend durchgeführt. Dadurch können gezielt sowohl integrale als auch lokale Kenngrößen ermittelt werden, die messtechnisch entweder nicht zugänglich sind oder aber örtlich ungenügend aufgelöst werden können. Des Weiteren ist es durch die numerische Strömungssimulation möglich, zeitlich hochaufgelöste Daten bei instationären Strömungs- und Vermischungsverhalten zu erlangen.

Durch den Einsatz hochaufgelöster Rechnungen mit der Möglichkeit der örtlichen Verfeinerung des vorhandenen Gitters ist es möglich, Informationen über das Zusammenspiel von Konvektion und Diffusion sowie die dadurch entstehenden integralen und feinsten Skalen bei realistischen Schmidt-Zahlen zu erhalten. Des Weiteren können Informationen über das Zusammenspiel von in Querschnittsrichtung eingetragener Energie und die damit erzeugten Vermischungen bei diesen Schmidt-Zahlen gewonnen werden.

Die hier durchgeführten Arbeiten sind innerhalb des DFG Sonderschwerpunktprogramms (SPP) 1141 „Analyse, Modellbildung und Berechnung von Strömungsmischern mit und ohne chemische Reaktion“ entstanden. Innerhalb dieses SPP's besteht eine Zusammenarbeit mit der Arbeitsgruppe um Prof. Rübiger (Institut für Umweltverfahrenstechnik der Universität Bremen). Die dort erzeugten experimentellen Daten dienen zur Validierung der numerischen Simulationen.

2 Theoretische Grundlagen und Stand des Wissens

2.1 Mikrotechnologie

Während der letzten Jahrzehnte ist die Bedeutung der Mikrotechnologie in der chemischen Verfahrenstechnik stark angestiegen (Himmel und Schierholz, 2004). Dabei war eine wesentliche Voraussetzung die Verfügbarkeit von preisgünstigen Verfahren zur Herstellung mikroverfahrenstechnischer Bauteile in ausreichender Präzision (Hessel und Löwe, 2002). Wurde zu Anfang lediglich Silizium als Grundwerkstoff eingesetzt und mittels photolithographischer Methoden bearbeitet, so steht heute durch die Weiterentwicklung auf dem Gebiet der Mikrostrukturtechnik eine viel größere Bandbreite an Verfahren und verschiedensten Materialien zur Verfügung.

Man unterscheidet grundsätzlich fünf verschiedene Arten der Herstellung von mikrostrukturierten Bauteilen (Winnacker und Kückler, 2004): feinmechanische, Laserablatons-, Um- und Abformverfahren sowie Ätzverfahren.

Zu den feinmechanischen Verfahren zählt neben der Mikrofunktenerosionstechnik die Mikrozerspanung. Mit der Funktenerosionstechnik lassen sich dabei zwar Strukturen mit kleinsten Abmessungen von wenigen $10\ \mu\text{m}$ erzeugen, aber diese lediglich mit Genauigkeiten von ca. $5\ \mu\text{m}$ und einer erheblichen Oberflächenrauigkeit. Daher müssen so erzeugte Bauteile mit einer anderen Technik nachbearbeitet werden. Mit der Mikrozerspanung lassen sich zwar nur Abmessungen der Strukturen von bis zu $50\ \mu\text{m}$ erreichen, doch diese in einer weitaus größeren Präzision. Die sich ergebenden Wandrauhigkeiten, d.h. die mittleren Abweichungen vom Mittelwert der Erhöhungen auf der Wand, betragen hierbei etwa $1\ \mu\text{m}$. Bei dieser Herstellungstechnik wird das Werkstück durch Mikro-Bohrer bearbeitet.

Beim Laserablatonsverfahren wird das Werkstück - meist Metallfolien oder Werk-

stücke aus Kunststoff - durch verschiedene Laser perforiert oder auch zerschnitten. Die so entstandenen Werkstücke besitzen Bohrungsdurchmesser von ca. $30 \mu\text{m}$ mit einer lateralen Genauigkeit von $0,8 \mu\text{m}$ im Falle eines Excimer-Lasers. Da diese Technik zur Zeit noch unwirtschaftlich arbeitet, ist dieses Herstellungsverfahren meist unattraktiv.

Bei den Umformverfahren werden zum einen durch Prägen in Thermoplaste oder in Aluminium- bzw. Stahlfolien Abdrücke von Werkzeugen erhalten. Zum anderen können durch das Stanzen von dünnen Folien mit anschließendem Stapeln und Verlöten/Verschweißen mikrostrukturierte Kanäle erhalten werden. Diese Technik, mit sehr guter Präzision und kleinen Wandrauhigkeiten, stellt ein preiswertes Verfahren zur technischen Massenfertigung von Bauelementen dar. Bei den Abformverfahren wird, neben dem galvanischen Abformen, das Spritzgießen verwendet. Dabei wird das Material in die vorher evakuierte und beheizte Spritzform gegeben. Mögliche verwendbare Materialien sind hierbei Kunststoff, Keramik oder Metall, wobei die zuletzt genannten immer mit einem Kunststoff als Mischgranulat verwendet werden müssen. Ein weit verbreitetes Verfahren ist das Ätzverfahren, wobei man zwischen dem nasschemischen und dem trockenen Ätzverfahren unterscheidet. Beim nasschemischen Ätzen wird durch das Auflegen einer Maske eine Form vorgegeben. Beim Ätzen in Stählen kommt es dabei allerdings zum isotropen Ätzen, da der Ätzvorgang in alle Richtungen stattfindet - auch unterhalb der Maske. Dieses muss man daher bei der Herstellung der Masken berücksichtigen. Durch das nasschemische Ätzen von Stählen lassen sich gezielt halbrunde Formen herstellen, die durch ein nachträgliches Verschleifen mit einer Platte zu Mikrokanälen werden. Allerdings ist man hierbei im Design beschränkt, da nur bestimmte Höhe-zu-Breite Verhältnisse erzielt werden können. Anders verhält es sich beim nasschemischen Ätzen in Silizium bzw. in speziellen Gläsern. Dabei kommt es zu anisotropen Ätzvorgängen, d.h. es gibt eine Vorzugsrichtung in der geätzt wird. So lassen sich Kanäle mit scharfen Kanten herstellen. Bei der zweit genannten Art des Ätzverfahrens - das trockene Ätzverfahren - ist für das Ätzen von Silizium entwickelt worden. Dabei wird ein reaktives Gas in einem Plasma aktiviert und anschließend auf eine Oberfläche hin beschleunigt. An den Stellen, die durch die Maske freigegeben sind, reagiert das Gas, z.B. SF_6 , wodurch eine flüchtige Siliziumverbindung entsteht. Eine Variante dieses reaktiven Ionenätzens ist das Advanced Silicon Etching, bei dem abwechselnd Ätz- und Passivierungsschritte

durchgeführt werden. Mit Hilfe dieses Verfahrens lassen sich stark anisotrope Profile exakt fertigen.

2.1.1 Mikromischer

Die Aufgaben der heutigen mikrostrukturierten Apparate sind mannigfaltig. Auf der einen Seite gibt es sehr spezielle Bauteile, wie sie meist zur Präparation für chemische Analysen benötigt werden (Pennemann et al., 2004, Y. Yamaguchi et al., 2006). Auf der anderen Seite gibt es eine Vielzahl von Standard-Komponenten im Mikromaßstab, die verfahrenstechnische Grundoperationen wie Mischen, Wärmeaustausch, Verdampfen und Destillation, etc. übernehmen (Schubert et al., 2001, Foli et al., 2006, Tsukamoto und Imai, 2006). Die letzte Gruppe, speziell Mikromischer, soll im Folgenden näher besprochen werden.

Prinzipiell unterscheidet man zwei verschiedene Arten von Mikromischern (Hessel et al., 2005a, Nguyen und Wu, 2005). Zum einen passive Mikromischer, also Mischer, die allein dadurch mischen, dass durch eine angelegte Druckdifferenz Strömungsenergie eingetragen wird. Zum anderen wird bei aktiven Mixchern zusätzlich Energie eingetragen (Hessel et al., 2005b). Dies kann beispielsweise durch ein zusätzliches Rührorgan (Lu et al., 2002), durch Ultraschall (Yang et al., 2001), akustisch oder durch Blasen induzierte Schwingungen (Liu et al., 2002) erfolgen. Darüber hinaus kann die zusätzliche Energie auch durch elektrokinetische Instabilitäten (Moctar et al., 2003), durch periodische Änderungen der Volumenströme (MacInnes et al., 2005), durch schwingende Membranen (Fu et al., 2006) oder mittels magnetohydrodynamischen Effekten (West et al., 2002) eingetragen werden.

Aufgrund ihrer Einfachheit waren passive Mikromischer die ersten mikrofluidischen Komponenten, von denen hauptsächlich berichtet wurde (Nguyen und Wu, 2005). Dadurch, dass im Mikromaßstab vornehmlich strikt laminare Strömungsformen realisiert werden, und die Vermischung chemischer Spezies in diesen Bereichen vornehmlich durch Diffusion erfolgt, war ein erstes Ziel die Reduzierung von Diffusionslängen. Bei den einfachsten Geometrien, den sogenannten T- und Y-förmigen Mikromischern, werden häufig bei relativ niedrigen Reynolds-Zahlen zwei Fluidströme nebeneinander in den Mischkanal hinein eingeströmt. Die Segregation bewegt sich dabei jeweils auf Längenskalen, die der Hälfte der Breite des Kanals entsprechen. Im Fall von gasförmigen

gen Spezies mit relativ großen Diffusionskoeffizienten können so kurze Diffusionszeiten bzw. Mischlängen erreicht werden (Gobby et al., 2001). Im Fall von Flüssigkeiten, in denen Spezies in der Regel einen, um den Faktor 10^3 kleineren Diffusionskoeffizienten haben, sind die notwendigen Mischzeiten sehr groß. Daher muss die Skala der zu überbrückenden Segregation weiter reduziert werden. Die Skalen können z.B. mit Hilfe einer geeigneten Sekundärströmung, die senkrechte Komponenten der Geschwindigkeit zur Hauptströmungsrichtung besitzt, weiter reduziert werden. Dieses wird im Falle von gebogenen Kanälen mit Hilfe von Dean-Wirbeln erreicht (Dean, 1928, Tiwari, 2006) oder im Falle von T-förmigen Mikromischern durch Engulfment-Strömung (Wong et al., 2004). Bei geeigneten Reynolds-Zahlen lassen sich in zickzack-förmigen Mikrokanälen Sekundärströmungen erzeugen, die ähnlich den Dean-Wirbeln zur Reduktion vorhandener Schichtstrukturen dienen können (Mengenaud et al., 2002).

Zur Erzeugung dünner Lamellen in Bereichen kleiner Reynolds-Zahlen wurden eine Vielzahl von Geometrien entwickelt und sowohl numerisch als auch experimentell untersucht. Ein Beispiel zur Erzeugung kleiner Lamellen ist der Interdigitalmischer der Firma IMM aus Mainz, der eine Vielzahl von einzelnen Strömen erzeugt und diese fächerartig zulaufend nebeneinander kombiniert. Andere Bauweisen, die auf der gleichen Funktionsweise beruht, sind Multilaminationsmischplatten mit entweder geraden oder gekrümmten Zuführungen (Karlsruhe, 2002). Die so erzeugten Lamellen sind sehr viel kleiner als die Kanalbreite und können daher diffusiv schneller ausgeglichen werden. Eine andere, verwandte Technik ist die Verengung des Kanals mittels z.B. Einschnürungen beim Einlass in den Mischkanal (Gobby et al., 2001). Da die Reduzierung der Diffusionslängen aber mit einem erheblich höheren Druckabfall einhergeht, ist diese Methode wenig effizient. Bei einer anderen Methode werden vorhandene Skalen durch immer wiederkehrendes Trennen und Wiedervereinen (split and recombine) von vorhandenen, geschichteten Lamellen reduziert. Dieses ist allerdings mit einer erheblich komplizierteren Kanalgeometrie verbunden (Schönfeld et al., 2004).

Ein aus der Makrowelt bekanntes und untersuchtes Prinzip, mit der durch Segregation entstandene Skalen exponentiell reduziert werden können, ist die chaotische Advektion (Aref, 1984). Sie kann zum einen durch einen zusätzlichen Energieeintrag, wie im Falle von aktiven Mixern, oder zum anderen durch geeignete Einbauten im Falle statischer (passiver) Mischer erzeugt werden. Die chaotische Advektion kann in einem stationären dreidimensionalen oder aber in einem instationären zweidimen-

sionalen Geschwindigkeitsfeld auftreten. Durch eine Kombination von Strecken und Falten (stretching and folding) von Filamenten werden die vorhandenen Schichtdicken exponentiell verkleinert. (Mizuno und Funakoshi, 2004, Szalai et al., 2003)

Zu diesem Zweck wurden mikrostrukturierte Mischgeometrien entwickelt, die durch statische Einbauten das Strecken und Falten von Filamenten induzieren. Ein Beispiel dafür ist der Herringbone-Mischer (Stroock et al., 2002), der aus einem Kanal mit rechteckigem Querschnitt besteht. Zusätzlich sind kleine Riefen in Form von Fischgrät-Mustern am Boden eingelassen (Aubin et al., 2005, Camesasca et al., 2005). Dadurch werden in der Strömung Wirbelstrukturen erzeugt, die, je nach Riefenmuster, die Größe und Lage der einzelnen Wirbel beeinflussen. Auf einem ähnlichen Prinzip beruht der Effekt von statischen Einbauten in kreisförmigen (Mini-)Mischern, bei denen oszillierende Strömungen - auch bei kleinen Reynolds-Zahlen - hervorgerufen werden können (Mackley, 1987). Durch diese Betriebsweise kann, aufgrund der Oszillationen, ein deutlich energies Verweilzeitenspektrum erreicht werden.

Andere Geometrien, die ähnlich kurze Mischzeiten besitzen, sind statische Mikro-Mischer, die, basierend auf industriell verwendeten Makro-Mischern, adaptiert wurden. So untersuchte die Gruppe um (Bertsch et al., 2001) zwei Mikro-Mischer, die mittels eingebauter und zueinander verdrehter Platten Vermischungsprozesse beschleunigten.

2.1.2 Technische Anwendungen

In den letzten Jahren ist das Interesse an der Durchführung von Reaktionen im Mikromaßstab gestiegen. Dabei zeigen sich Vorteile der Mikroabmessungen, die nicht nur auf Ausbeuten- und Selektivitätssteigerungen beschränkt sind, sondern auch die Prozesssicherheit und die Steigerung der Produktqualität betreffen.

In ihrem Review zeigen (Pennemann et al., 2004) durch eine Vielzahl durchgeführter Benchmark Tests mit verschiedensten Reaktionen, dass durch den Einsatz der Mikrotechnologie die Raum-Zeit-Ausbeuten vieler Reaktionen stark gesteigert werden konnten. Dabei wurden für sehr regide Reaktionsbedingungen entweder gleiche oder sogar höhere Ausbeuten erhalten (Jensen und Seeberger, 2005). Selbst direkte Fluorierungen können in Mikroreaktoren bei Raumtemperatur durchgeführt werden (Lüb et al., 2004, Kawai et al., 2005). Ähnliche Vergleiche, die zu demselben Fazit gelan-

gen, sind in (Wiles et al., 2005) für wichtige organische Standardreaktionen wie z.B. Aldolreaktionen, Michaeladditionen oder Knövenagel-Kondensationen zusammengestellt. Dabei bestehen keine Einschränkungen bei der Verwendung von homogenen bzw. heterogenen Katalysatoren (Fletcher et al., 2002, Mauger et al., 2005).

Im Gegensatz zu herkömmlichen Reaktoren können Gefahren, selbst bei explosionsgefährdeten Stoffen, durch die kleinen Reaktionsvolumina vermieden werden. Beispielsweise ist seit ca. 2005 bei der Firma *Xi'an Chemical Industrie Group*, China eine mikrostrukturierte Reaktionsanlage mit einem Durchsatz von ca. 15 kg/h zur Herstellung von Nitroglycerin erfolgreich in Betrieb (Löwe, 2005).

Zur Vermeidung von Fouling-Prozessen an statischen Mischern bei der radikalischen Lösungspolymerisation von Acrylaten verwendet die Firma *Axia*, Frankfurt Mikromischer und erreicht damit neben einer Verbesserung der Produktqualität auch kürzere Wartungszeiten (Hessel und Löwe, 2003). In diesem Verfahren werden 32 parallel geschaltete Mikroreaktoren dazu benutzt, die Reaktionslösung vorzumischen. Die Firma *Merck*, Darmstadt, ersetzte 1998 eine Batch-Anlage durch fünf parallel geschaltete Minimischer zur Herstellung von Feinchemikalien. Dadurch wurden Ausbeutungssteigerungen gegenüber dem Batch-Betrieb von ca. 25 % erreicht.

Es lässt sich zusammenfassen, dass durch die durchgeführten Untersuchungen und Forschungsanstrengungen in den letzten Jahren gezeigt werden konnte, dass die Verwendung von Mikroreaktoren in einigen Bereichen zu Verbesserungen der Raum-Zeit-Ausbeuten sowie der Handhabbarkeit bestimmter Reaktionstypen führen kann. Zur Zeit werden zunehmend neben Pilot-Anlagen auch einige Anlagen für großtechnisch durchgeführte Prozesse in Betrieb genommen.

2.2 Skalen

Bei Reaktionen, bei denen zwei oder mehr Spezies chemisch reagieren, ist eine notwendige Voraussetzung die Vermischung auf molekularer Ebene. Dabei beeinflusst die Homogenität der Vermischung Ausbeuten sowie Selektivitäten. In Abhängigkeit der bei Reaktionen vorkommenden verschiedenen Zeitskalen, können sich starke Einflüsse in den Selektivitäten ergeben (Roessler und Rys, 2001, Vgl. Abb. 2.1). Betrachtet man eine konsekutive Reaktion, bei der in einem ersten Schritt zwei Komponenten, A und B, zu einem Zwischenprodukt R reagieren, so kann nachfolgend

das entstandene R wiederum mit einem Edukt B weiter reagieren. Oft unterscheiden sich die Geschwindigkeitskonstanten der beiden Teilschritte in der Art, dass die erste Reaktion bevorzugt, d.h. schneller abläuft. In der Praxis gibt es eine Reihe solcher Reaktionen wie z.B. Chlorierungen an aromatischen Systemen, bei denen durch den ersten Reaktionsschritt die Reaktivität des Zwischenproduktes gesenkt und somit der zweite Reaktionsschritt verlangsamt wird. Vergleicht man nun die Zeitskala der Reaktion (des ersten Teilschrittes) mit der Zeitskala der Vermischung, so ergeben sich prinzipiell zwei verschiedene Möglichkeiten: zum einen, dass die Zeitskala der Reaktion größer ist, als die Zeitskala der Vermischung, d.h., dass die Reaktion langsamer ist als die Vermischungsprozesse. Zum anderen, dass die Zeitskala der Vermischung größer ist, als die Zeitskala der Reaktion, das System also viel schneller reagiert, als es sich vermischt. Da im ersten Fall die Reaktion langsam (bezogen auf die Zeit, die die Vermischung benötigt) ist, hat das System genügend Zeit sich homogen zu vermischen. Daher reagieren A und B, die nun homogen verteilt vorliegen, zu dem Zwischenprodukt, wobei im Fall stochiometrischer Startbedingungen nahezu alles B verbraucht wird. So kann die nachfolgende Reaktion mangels des Eduktes nicht stattfinden. Daher bleibt ein Reaktionssystem, bei dem die Edukte stöchiometrisch zugegeben wurden und die Zeitskala der Reaktion sehr viel größer ist als die Zeitskala der Vermischung auf der Stufe des Zwischenproduktes stehen. Im anderen Fall, in dem die Zeitskala der Reaktion sehr viel kleiner ist als die Zeitskala der Vermischung, reagieren die Edukte, noch bevor es zu einer signifikanten Vermischung kommt (Abb. 2.1 (rechts)). An der Kontaktfläche der beiden Edukte kommt es daher zur Bildung des Zwischenproduktes R, welches die beiden Reaktionspartner voneinander trennt. Durch die Separation liegen nun lediglich das Zwischenprodukt und das Edukt B als reaktive Komponenten nebeneinander vor. Es kommt daher zur Folge-reaktion und es entsteht das Produkt S. Nach vollständiger Reaktion besteht daher das Reaktionssystem nahezu ausschließlich aus dem Produkt S.

Diese vereinfachte Betrachtungsweise zeigt bereits, dass das Verhältnis der beiden Zeitskalen (die der Vermischung und die der Reaktion) für die Selektivität von Reaktionen von entscheidender Bedeutung ist.

Vermischungsprozesse sind gekennzeichnet durch den diffusiven Abbau feinsten Ska-

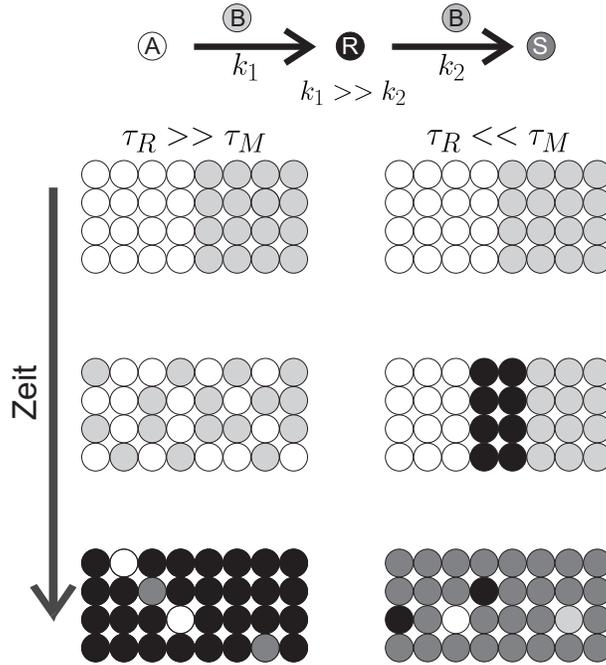


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung des Reaktionsverlaufes einer Konsekutiv-Reaktion, bei der zum einen die Zeitskala der Reaktion größer (rechts) und zum anderen kleiner ist (links), als die Zeitskala der Vermischung (Roessler und Rys, 2001).

len. Dabei ist die Zeitskala der Vermischung gegeben durch die Zeitskala der Diffusion

$$\tau_D = \frac{d^2}{D}, \quad (2.1)$$

wobei D der Diffusionskoeffizient der Spezies und d der diffusiv zu überbrückende Abstand ist. Im Falle einer Reaktion 1. Ordnung kann die Zeitskala der Reaktion formuliert werden als

$$\tau_R = \frac{1}{k c^{n-1}}, \quad (2.2)$$

mit der Reaktionsgeschwindigkeitskonstante k .

Die dimensionslose Kennzahl Da_{II} gibt das Verhältnis dieser beiden Zeitskalen an,

$$\text{Da}_{\text{II}} = \frac{\tau_D}{\tau_R} = \frac{d^2 k c^{n-1}}{D}, \quad (2.3)$$

wobei die Kennzahl umso kleiner wird, desto schneller Diffusionsprozesse sind, bzw. desto langsamer die Reaktion abläuft.

Um sicherzustellen, dass die Zeit, die das System zur Verfügung hat um feinste Skalen diffusiv abzubauen zu können ausreichend ist, müssen die Diffusionsprozesse ca. 100 mal schneller sein, als die dazugehörigen Reaktionsprozesse.

Um eine chemische Reaktion zu ermöglichen, ist es zusätzlich notwendig, dass die Reaktionspartner in direkten Kontakt treten. Dieses findet im Subnanometer-Bereich statt. In Abbildung 2.2 sind für drei unterschiedlich große Zeitskalen der Reaktion die dazugehörigen Längen aufgetragen, die diffusiv überbrückt werden können, ohne dass die Reaktion durch Transportprozesse maskiert wird. Eine Maskierung in diesem Zusammenhang bedeutet, dass die Transportprozesse auch geschwindigkeitsbestimmend, aber nicht -limitierend für die durchzuführende Reaktion sind (Roessler und Rys, 2001). Maskierungen durch Diffusionsprozesse treten nicht auf, wenn diese ca. 100 mal schneller ablaufen als die chemische Reaktion, daher gilt für die dazugehörige Zeitskala $\tau_D = 10^{-2} \tau_R$. Die Strecke, die diffusiv in dieser Zeit überwunden werden

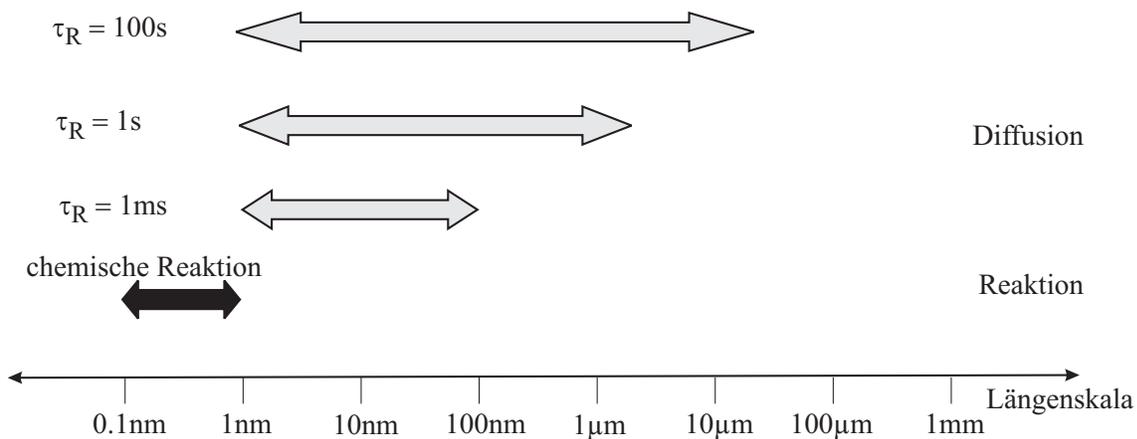


Abbildung 2.2: Diffusiv überwindbare Distanzen für drei Reaktionen mit unterschiedlich großen Zeitskalen der Reaktion. Angenommen wurde jeweils, dass die Zeitskala der Diffusion 100 mal kleiner als die der Reaktion ist.

kann, berechnet sich aus

$$d = \sqrt{10^{-2} \tau_R D}. \quad (2.4)$$

Bei einem realistischen Diffusionskoeffizienten von $10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ ergibt sich daher für schnelle Reaktionen ein Wert von ca. 100 nm. Das bedeutet, dass die Skalen, auf denen die verschiedenen Reaktionspartner voneinander getrennt vorliegen, höchstens 100 nm breit sein dürfen, damit die Reaktion homogen ablaufen kann. Bei normal

schnellen Reaktionen, bei denen die Zeitskala der Reaktion ca. 1 s entspricht, liegt die überwindbare Skala schon bei ca. 3 μm . Bei den langsamen Reaktionen, mit dazugehörigen Zeitskalen von mehreren Minuten, ergibt sich so die durch Diffusion überbrückbare Strecke zu 30 μm .

Man erkennt, dass selbst schon bei der Bestimmung von Geschwindigkeitskonstanten bei normal schnellen Reaktionen diese wahrscheinlich durch Transportprozesse überlagert sind. Bei schnellen oder gar sehr schnellen (quasi-instantanen) Reaktionen, deren Zeitskalen unter 1 μs sind, können die entstandenen Skalen nicht mehr diffusiv überwunden werden.

Da diffuse Flüsse mit der Oberfläche skalieren, während die entsprechenden Quellen und Senken proportional zum Volumen sind, wurde erwartet, dass durch eine Verkleinerung der charakteristischen Längen die Skalen überbrückt werden können. Es wird in diesem Zusammenhang in der Literatur derzeit diskutiert, ob und in welchem Maße Strömungen eines Fluids in Mikrokanälen sogenannte Mikroeffekte aufweisen können (Herwig, 2002; Herwig und Hausner, 2003; Gad-el Hak, 1999; Gad-el Hak, 2004; Guo und Li, 2003; Koo und Kleinstreuer, 2003; Koo und Kleinstreuer, 2004; Stone et al., 2004). Für Strömungen von newtonschen Flüssigkeiten in Kanälen mit Wandabständen oberhalb von 10 μm gibt es zur Zeit keine Anzeichen für Abweichungen von den, für Makrosysteme verwendeten Beschreibungen (Guo und Li, 2003). Die Grundlage für die Beschreibung des Impulstransports bilden die Navier-Stokes'schen Gleichungen (2.5), hier in der dimensionslosen Formulierung

$$\partial_t \mathbf{u} + \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} = -\nabla p + \frac{1}{\text{Re}} \Delta \mathbf{u} \quad \text{mit} \quad \text{Re} = \frac{U d_H}{\nu} \quad (2.5)$$

mit an festen Wänden gelten Haftbedingungen. Im Falle geometrischer Ähnlichkeit, sowie bei entsprechend skalierten Ein- und Auslassbedingungen, wird das Strömungsverhalten unabhängig von den vorliegenden Abmessungen des Systems allein durch die Reynolds-Zahl bestimmt. Daher bieten Mikrosysteme bezüglich des Strömungsverhaltens keinen prinzipiellen Vorteil gegenüber dem Makrometermaßstab (Bothe et al., 2004).

Der Transport einer chemischen Komponente, die ideal verdünnt in dieser Strömung transportiert wird, wird beschrieben durch die Speziesgleichung (2.6).

$$\partial_t c_i + \mathbf{u} \cdot \nabla c_i = \frac{1}{\text{Re Sc}} \Delta c_i \quad \text{mit} \quad \text{Sc} = \frac{\nu}{D}. \quad (2.6)$$

Selbst die Lösungen des vollen Systems der Gleichungen 2.5 und 2.6 sind, bei geeigneter Skalierung, unabhängig von den wahren geometrischen Abmessungen.

Wird allerdings die Speziesgleichung um einen reaktiven Term erweitert, hier exemplarisch für eine Reaktion 1. Ordnung (2.7), so kann eine chemisch-physikalische Ähnlichkeit nicht mehr erreicht werden.

$$\partial_t c_i + \mathbf{u} \cdot \nabla c_i = \frac{1}{\text{Re Sc}} \Delta c_i - \frac{d_H}{L} \text{Da}_I c_i \quad \text{mit} \quad \text{Da}_I = \frac{kL}{U}, \quad (2.7)$$

bzw.

$$\partial_t c_i + \mathbf{u} \cdot \nabla c_i = \frac{1}{\text{Re Sc}} (\Delta c_i - \text{Da}_{II} c_i) \quad \text{mit} \quad \text{Da}_{II} = \frac{d_H^2 k}{D} \quad (2.8)$$

Dies erkennt man daran, dass in der Reynold-Zahl das Produkt UL und in der Dammköhler(I)-Zahl der Quotient L/U , bzw. in der Dammköhler(II)-Zahl der Faktor d_H^2 allein auftritt. Daher können, bei gleichbleibendem (d_H/L) -Verhältnis, beim Scaling Down nicht beide Kennzahlen konstant gehalten werden.

Um den Skalierungseffekt zu quantifizieren wird im Folgenden ein geometrischer Skalierungsfaktor λ mit $\lambda \ll 1$ eingeführt (Vgl. dazu Bothe et al., 2006), wobei gelte: $L' = \lambda L$ und $d'_H = \lambda d_H$. Des Weiteren wird, um dieselben Strömungsbedingungen zu erhalten, die mittlere Strömungsgeschwindigkeit wie folgt skaliert $U' = U/\lambda$, wobei zu beachten ist, dass der neue Volumenfluss durch $\lambda \dot{V}$ verringert wird.

Der resultierende Satz von dimensionslosen Kennzahlen für das Mikro- sowie für das Makro-System lautet damit:

$$\text{Re}' = \text{Re}, \quad \text{Sc}' = \text{Sc}, \quad \text{aber} \quad \text{Da}'_I = \lambda^2 \text{Da}_I. \quad (2.9)$$

Betrachtet man die zu den Teilprozessen Konvektion, Diffusion und Reaktion gehörenden Zeitskalen

$$\tau_K = \frac{L}{U}, \quad \tau_D = \frac{d_H^2}{D}, \quad \tau_R = \frac{1}{k}, \quad (2.10)$$

sowie die unter den gleichen Bedingungen wie oben skalierten Zeitskalen

$$\tau'_K = \lambda^2 \tau_K, \quad \tau'_D = \lambda^2 \tau_D, \quad \tau'_R = \tau_R, \quad (2.11)$$

so ist auch unmittelbar klar, dass bei Verkleinerung der Abmessungen die durch Konvektion bestimmte Verweilzeit τ_K sowie die Diffusionszeit τ_D proportional abnimmt,

während die Reaktionszeit τ_R konstant bleibt.

Die dimensionslose Kennzahl Dammköhler(II) vergleicht die Zeitskala der Diffusion ($\tau_D = \frac{d_H^2}{D}$) mit der Zeitskala der Reaktion ($\tau_R = \frac{1}{k}$). Da auch Dammköhler(II) für das Mikrosystem mit dem Faktor λ^2 verkleinert wird, ergibt sich somit, dass die Zeitskala der Diffusion im Vergleich zur Zeitskala der Reaktion stark verkleinert, bzw. dass die Diffusion bezogen auf die Zeitskala der Reaktion schneller abläuft. Ein kleiner Wert für die Zeitskala bedeutet, dass die dazugehörigen Prozesse schnell ablaufen, daher bedeutet eine Verkleinerung der Dammköhler(II)-Zahl eine Beschleunigung der Diffusion bezogen auf Reaktionsprozesse, bzw. eine Verlangsamung der Reaktion bezogen auf Diffusionsprozesse.

Damit bietet der Einsatz von Mikroreaktoren neben Möglichkeiten zur Selektivitätssteigerung (Yoshida et al., 2005) auch Ansätzen zur Ermittlung von kinetischen Konstanten für schnelle chemische Reaktionen (Baroud et al., 2003), bei denen durch herkömmliche Bestimmung diese meist durch Transportprozesse verfälscht werden (Rys, 1992).

Besonders bei schnellen chemischen Reaktionen müssen Effekte der Wärmebildung und der Wärmeabfuhr berücksichtigt werden. Im Falle einer exothermen Reaktion 1. Ordnung kann die dimensionslose Wärmebilanz formuliert werden zu

$$\partial_t \vartheta + \mathbf{u} \cdot \nabla \vartheta = \frac{1}{\text{RePr}} \Delta \vartheta + \frac{\text{Ec}}{\text{Re}} \mathbf{S} : \nabla \mathbf{u} + \frac{d_H}{L} \text{Da}_{\text{III}} c \quad (2.12)$$

mit

$$\vartheta = \frac{T - T_0}{T_0}, \quad \text{Pr} = \frac{\nu}{\alpha}, \quad \text{Ec} = \frac{U^2}{\hat{c}_P T_0}, \quad \text{Da}_{\text{III}} = \frac{(-\Delta_R H) k c_0}{\rho \hat{c}_P T_0 U / L}. \quad (2.13)$$

Pr bezeichnet die Prandtl-Zahl, die die durch innerer Reibung erzeugte Wärme und die durch die Strömung abgeführten Wärme ins Verhältnis setzt. Ec ist die Eckert-Zahl, die das Verhältnis von kinetischer zu thermischer Energie angibt und Da_{III} ist die Damköhler(III)-Zahl, die die maximale Rate der Wärmeproduktion durch Reaktion ins Verhältnis setzt mit der durch Konvektion antransportieren Wärme.

Der Term $(\text{Ec}/\text{Re}) \mathbf{S} : \nabla \mathbf{u}$ in Gleichung 2.12 korrespondiert mit der durch viskose Reibung hervorgerufene Erwärmung, mit dem viskosen Spannungstensor in dimensionsloser Form $\mathbf{S} = \eta(\nabla \mathbf{u} + \nabla \mathbf{u}^T)$ und dem durch Doppelpunktprodukt $\mathbf{S} : \nabla \mathbf{u} = \text{spur}(\mathbf{S} \cdot \nabla \mathbf{u})$ definierten Tensorinnenprodukt.

Zusätzlich muss die Wärmebilanz noch durch geeignete Randbedingungen ergänzt

werden. Hierzu zählen vor allem Bedingungen für die Temperatur an festen Wänden. Die Randbedingung wird erhalten, indem die betreffenden Wärmeströme (Wärmetransport an die Wand und Wärmedurchgang durch die Wand) gleich gesetzt werden. Durch zusätzlich Annahme einer konstanten Umgebungstemperatur und der Quasi-Stationarität bzgl. der Wärmeleitung in der Wand erhält man:

$$\alpha \frac{\partial \vartheta}{\partial \mathbf{n}} = -\alpha_W \text{Nu} \frac{d_H}{d_W} (\vartheta - \vartheta_W), \quad (2.14)$$

mit

$$\vartheta_W = \frac{T_W - T_0}{T_0}, \quad \text{Nu} = \frac{\frac{\partial T}{\partial \mathbf{n}}}{\frac{T_W - T}{d_W}}, \quad (2.15)$$

wobei Nu die lokale Nusselt-Zahl bezeichnet, die das Verhältnis zwischen Wärmeübergang und -leitung beschreibt. Angenommen wird dabei, dass die Wandtemperatur T_W konstant ist.

Um die Änderungen der Wärmeproduktion zu erkennen, die durch Miniaturisierung hervorgerufen werden, werden wiederum die charakteristischen Längen mit einem Skalierungsfaktor λ mit $\lambda \ll 1$ verringert. In Analogie zur Skalierung der Navier-Stokes'schen Gleichungen, sei $L' = \lambda L$, $d'_H = \lambda d_H$ und $U' = U/\lambda$. Die sich daraus ergebenden dimensionslosen Kennzahlen des Systems lauten:

$$\text{Re}' = \text{Re}, \quad \text{Pr}' = \text{Pr}, \quad \text{aber} \quad \text{Ec}' = \lambda^{-2} \text{Ec}, \quad \text{Da}'_{\text{III}} = \lambda^2 \text{Da}_{\text{III}}. \quad (2.16)$$

Es ist zu erkennen, dass die viskose Erwärmung bei einer Verkleinerung der charakteristischen Längenskalen bis hinein in den Mikromaßstab immer stärker an Bedeutung gewinnt. Dies wurde bereits durch experimentelle Untersuchungen, sowie durch Simulationsrechnungen (Koo und Kleinstreuer, 2004 und Morini, 2005) gefunden. Im selben Maße, wie die viskose Erwärmung ansteigt, fällt die durch Reaktion erzeugte Wärme. Das bedeutet, dass durch eine Reduktion der charakteristischen Längen die Wärmeproduktion im Vergleich zu Makrosystemen abnimmt, falls viskose Erwärmung noch keine Rolle spielt.

Um eine exotherme Reaktion in einem Reaktor kontrollieren zu können, ist es erforderlich, Wärme über die äußere Wand abzuführen, womit gelten muss: $\vartheta_W < \vartheta$. Mathematisch fungiert deshalb die Randbedingung der äußeren Wand als Senkenterm der Wärmebilanz (Gleichung 2.12). Um den Prozess durch Vergleich aller Quell- und

Senkenterme bewerten zu können, muss daher die Randbedingung, welche nur auf dem Rand definiert ist, in eine volumenbezogene Senke umformuliert werden. Durch Integration über ein axiales Segment mit konstantem Kanalquerschnitt ergibt sich die Randbedingung 2.14 in dimensionsloser Formulierung zu

$$Q_W = -\frac{4 \text{Nu}}{\text{Re Pr}_W} \frac{d_H}{d_W} \langle \vartheta - \vartheta_W \rangle_{\partial A} \quad (2.17)$$

für einen kreisförmigen Kanalquerschnitt mit $|\partial A| = \pi d_H$. Da in der Praxis bei einer Verkleinerung der geometrischen Abmessungen in der Regel die charakteristischen Längen und die Wanddicken des Reaktors nicht in gleicher Weise herunterskaliert werden können, ergibt sich hierfür ein verändertes Verhältnis von hydraulischem Durchmesser zu Wanddicke

$$\left(\frac{d_H}{d_W} \right)' = \lambda^{0 \dots 1} \left(\frac{d_H}{d_W} \right). \quad (2.18)$$

Für den Fall, dass hydraulischer Durchmesser und Wanddicke in der gleichen Weise skalieren, gibt es keinen Einfluss (Exponent von λ ist gleich Null). Im Fall, dass die Wand überhaupt nicht verkleinert wird, kann der Exponent von λ maximal den Wert 1 annehmen. Es ergibt sich somit maximal ein linearer Abfall des Wärmetransportes durch die Wand.

Damit ist die volumetrische Rate der Wärmeänderung Q_{ges} als Funktion des Skalierungsparameters λ zu (Bothe et al., 2006)

$$Q_{ges} = \lambda^{-2} Q_V + \lambda^2 Q_R - \lambda^{0 \dots 1} Q_W \langle \vartheta - \vartheta_W \rangle_{\partial A} \quad (2.19)$$

gegeben. Hier bezeichnet Q_V die volumetrische Rate der Wärmeänderung durch viskose Erwärmung und Q_R die Rate durch chemische Reaktion.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass bei einer geeigneten Skalierung in Bereichen, in denen die viskose Erwärmung keine Rolle spielt (Xu et al., 2003), Mikro-Reaktoren thermisch besser zu kontrollieren sind als die entsprechenden Makro-Reaktoren. Dies liegt daran, dass, die Wärmeproduktion durch chemische Reaktion mit einem Faktor von λ^{-2} verringert wird, der Wärmedurchgang durch die Wand aber maximal mit einem Faktor von λ .

2.3 Beurteilung der Mischqualität bzw. des Mischzustandes

Das Mischen stellt wohl die älteste verfahrenstechnische Grundoperation dar. Dabei bezieht sich der Begriff Mischen nicht nur auf das Homogenisieren voll ineinander mischbarer Fluide, sondern beinhaltet darüber hinaus auch das Dispergieren, also die Verteilung von Gasen in Fluiden als auch das Suspendieren, die Verteilung fester Partikel in fluiden Phasen (Rielly et al., 1994).

Großtechnisch stellt der Mischprozess, besonders bei Flüssigkeiten und insbesondere bei hohen Viskositäten, ein großes Problem dar. Da der Aufwand umso größer wird, je näher der ideale Mischzustand erreicht wird, ist die Quantifizierung der Vermischung eines Systems von besonderem Interesse. Daher werden in dem folgenden Kapitel einige wichtige Quantifizierungsmöglichkeiten vorgestellt.

2.3.1 Statistische Beurteilungen

In der Literatur gibt es eine Vielzahl von gängigen Definitionen um eine statistische Beurteilung der Homogenität eines Systems vorzunehmen (u.a. Ogawa und Ito, 1975, Rielly et al., 1994, Tucker III und Peters, 2003, Bothe, 2006). Eine Aufstellung verschiedener Definitionen findet sich in (Boss, 1986), wobei alle auf Kombinationen der Standardabweichung und entweder einem Maximalwert der Standardabweichung, bzw. des Mittelwertes des Systems basieren. Eine andere Möglichkeit, basierend auf Entropien des Systems, beginnt zunehmend wieder an Bedeutung zu gewinnen (Ogawa und Ito, 1975, Camesasca et al., 2005). Die Breite der einzelnen Maßzahlen variiert je nach Definition zwischen zwei festen Werten für das voll segregierte und dem homogenen System. Allerdings gibt es auch Definitionen, deren Ergebnisbereiche halbseitig offen sind und somit Werte bis ∞ annehmen können. Diese sind schwer einzuordnen. Ein Maß, welches auf (Danckwerts, 1952) zurückgeht, vergleicht die Varianz mit der maximal erreichbaren Varianz dieses Systems. Die zentrale Bedeutung der Varianz, insbesondere bei chemischen Reaktionen, wird kurz in Kapitel 2.3.3 skizziert. Das Danckwerts'sche Maß ist 1 für ein voll segregiertes System und 0 für ein homogen gemischtes System. Die Danckwerts'sche Intensität der Segregation I_S ist ein wohleingeführtes Maß und wird in der Literatur sehr häufig zur Beurteilung des Se-

gregationsgrads benutzt.

$$I_S = \frac{\sigma^2}{\sigma_0^2} \quad (2.20)$$

mit

$$\sigma^2 = \frac{1}{|V|} \int_V (c - \bar{c})^2 dV \quad \text{und} \quad \sigma_0^2 = \bar{c}(c_{max} - \bar{c}) \quad (2.21)$$

$|V|$ benennt in diesem Fall den Inhalt von V und \bar{c} den Mittelwert der Konzentration c . Eine allgemeine Definition von σ_0^2 ist problematisch, da es im Gegensatz zur Danckwerts'schen Definition, in der mit Volumenfraktionen gearbeitet wird, einen allgemein gültigen Maximalwert der molaren Konzentration c_{max} nicht gibt (Bothe, 2006). Eine Möglichkeit für einen Maximalwert der Konzentration ist der in dem Auswertungsbereich vorkommende Maximalwert der Konzentration. Dadurch erhält man eine intrinsische Beurteilung des Systems, jedoch lassen sich dabei im kontinuierlichen Betrieb keine Größen wie Mischzeit oder -länge bestimmen, da c_{max} kontinuierlich verringert wird. Die andere Möglichkeit zur Bestimmung eines Mischprozesses und den damit verbunden Mischzeiten und -längen ist, c_{max} so zu wählen, dass c_{max} der Maximalkonzentration zu Beginn der Vermischung bzw. der Maximalkonzentration im Eingang in den Reaktor entspricht.

Ein mit der Danckwerts'schen Intensität der Segregation verwandtes Maß, ist die Intensität des Mischens I_M nach (Rose, 1959)

$$I_M = 1 - \sqrt{I_S}, \quad (2.22)$$

wobei 0 einem voll segregierten und 1 einem homogen gemischten System entspricht. Diese Definition wird im Folgenden zur Beurteilung der Mischgüte herangezogen. c_{max} wird in diesen Fällen, da zeitlich bzw. örtlich fortschreitende Mischprozesse untersucht werden, so gewählt, dass c_{max} der Maximalkonzentration im Einlass in den Reaktor entspricht.

In Abbildung 2.3 ist für zwei unterschiedliche Konzentrationsfelder die sich jeweils ergebende Intensität des Mischens angegeben. Im Gegensatz zu a zeigt das System b eine segregierte Verteilung. Diese Art von Verteilungen können durch das Mischen hochviskoser Fluide oder bei Systemen mit sehr kleinen Diffusionskoeffizienten der transportierten Spezies auftreten. Man erkennt, dass obwohl beide Systeme vermischt

vorliegen, bei a eine Intensität des Mischens von ca. 0,6 erreicht wird, im Falle b diese allerdings 0 ist. Dies liegt daran, dass die Varianz lediglich den Abstand zum Mittelwert erfasst. Im Falle b ist dieser immer konstant.

Schon Danckwerts hat daher gefordert, dass jede Angabe einer Mischgüte ergänzt werden muss durch die Angabe einer Längenskala, auf der Segregation auftritt. Basierend auf der statistischen Analyse der Konzentrationsfelder schlug Danckwerts eine Autokorrelation des Konzentrationsfeldes zur Bestimmung einer Längenskala der Segregation vor (Rielly et al., 1994). Zum einen ist die Bestimmung von Autokor-

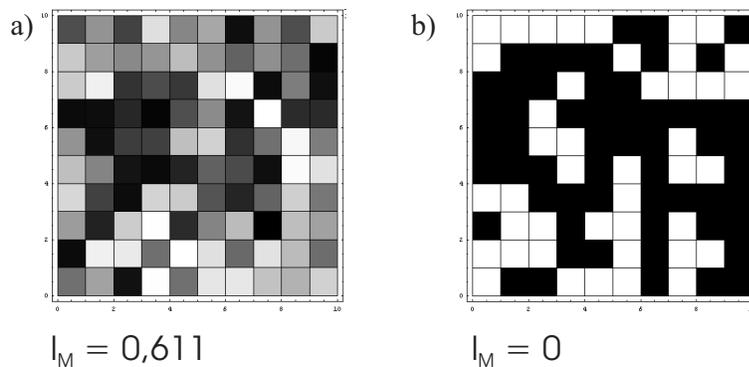


Abbildung 2.3: Intensitäten des Mischens mit $\sigma_0 = 0,5$ für zwei unterschiedliche Konzentrationsverteilungen.

relationen numerisch sehr rechenintensiv. Zum anderen haben Autokorrelationen in mehreren Dimensionen keine anschauliche Bedeutungen mehr und stellen daher nur ein abstraktes Maß dar. Eine andere Bestimmungsmethode einer Segregationskala, die bei der Vermischung von hochviskosen Fluiden verwendet wird, ist die Bestimmung der mittleren Schichtdicke (Spencer und Wiley, 1951; Mohr et al., 1957).

Die in dieser Arbeit verwendete Skala der Segregation wird näher in Kapitel 2.3.2 erläutert.

2.3.2 Potenzial für diffusives Mischen

Wie schon im Kapitel 2.3.1 erwähnt, ist es notwendig, jede Angabe einer Mischgüte auch durch die Angabe einer Längenskala, auf der Segregation vorliegt, zu ergänzen. Im Falle geschichteter lamellarer Strukturen kann eine sinnvolle Skala der Segregation die Schichtdicke der auftretenden Lamellen sein (Ottino et al., 1979). In Geometri-

en mit einfachen lamellaren Strukturen ist die Schichtdicke effizient zu erhalten. In Systemen, in denen komplexere Strukturen auftreten, ist dies allerdings nicht trivial. Eine mittlere Schichtdicke s einer gegebenen Konzentrationsverteilung kann erhalten werden durch den Kehrwert der Größe A/V , indem man die enthaltene Kontaktfläche durch das Gesamtvolumen teilt. Dies lässt sich numerisch sehr effizient durch das „Potenzial für diffusives Mischen“ bewerkstelligen. Es ist gegeben durch

$$\Phi = \frac{1}{|V|} \int_V \|\nabla f\| dV \quad \text{mit} \quad f = c/c_{max} \quad (2.23)$$

mit der normierten Konzentration f . Hier bezeichnet $|V|$ den Volumenanteil des Bereiches V und $\|\nabla f\|$ die (euclidische) Länge des normierten Gradienten ∇f (Bothe et al., 2004).

Diese Gleichung, die aus der geometrischen Maßtheorie adaptiert wurde, gibt für voll segregierte Systeme exakt die spezifische Kontaktfläche an. In Systemen, in denen durch diffusive Transportprozesse Gradienten teilweise ausgeglichen wurden, verliert das Potenzial für diffusives Mischen diese Interpretationsmöglichkeit. Dennoch liefert es in solchen Systemen immer noch ein Maß für die Triebkraft des Systems für den diffusiven Ausgleich. Des Weiteren gibt der Kehrwert von Φ eine Längenskala und ist somit ein Maß für eine mittlere Schichtdicke, auf der Segregation auftritt.

Abbildung 2.4 a und b zeigen die beiden Tracerverteilungen, wie sie auch schon in Kapitel 2.3.1 vorgestellt wurden. Bei der Beurteilung mittels der Dankwerts'schen Intensität der Segregation bzw. hier einem davon abgeleiteten Maß ergibt sich das Problem, dass, obwohl das voll segregierte System ein gewisses Vermischungspotenzial aufweist, dies durch statistische Methoden nicht aufgelöst wird. So würde eine Konzentrationsverteilung ähnlich Abbildung 2.4 c erheblich länger für den diffusiven Abbau aller Skalen benötigen als die Verteilung in Abbildung d.

Um das Potenzial für diffusives Mischen bei den hier gezeigten Konzentrationsverteilungen auswerten zu können, müssen, da diese Größe eine dimensionsbehaftete ist, die Abmessungen des Querschnitts bekannt sein. In dem hier vorliegenden Fall wurde von einer Kantenlänge des quadratischen Querschnitts von je 10 cm ausgegangen. Die Intensität des Mischens ist dabei unabhängig von den jeweiligen Abmessungen.

Obwohl die beiden Speziesverteilungen a und b zwei völlig verschiedene Mischgütern besitzen, ist deren Potenzial für diffusives Mischen vergleichbar groß. Die Triebkraft für den diffusiven Ausgleich der beiden Systeme ist also zu diesem Zeitpunkt ver-

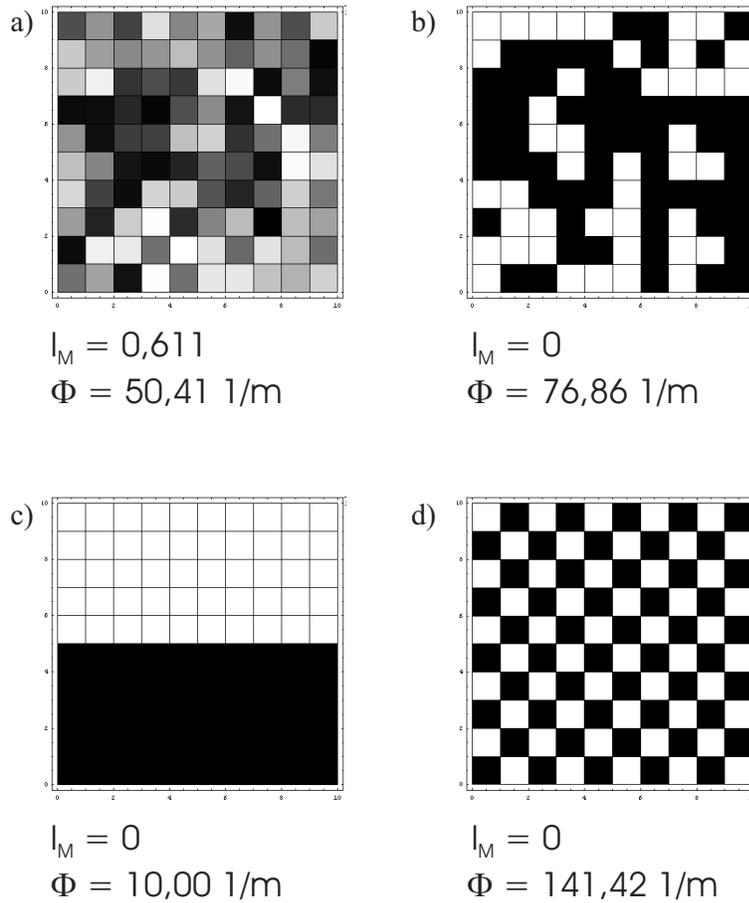


Abbildung 2.4: Das Potenzial für diffusives Mischen und die Intensität des Mischens ($\sigma_0 = 0,5$) bei vier prinzipiellen Tracerverteilungen ausgewertet auf einem Bereich von 10 x 10 cm.

gleichbar. Im Falle von c und d erkennt man, dass das System d, bei dem schon augenscheinlich ein höheres Potenzial vorhanden ist, eine um den Faktor 14 größere Triebkraft für den diffusiven Ausgleich, verglichen mit Abbildung c, besitzt.

Bei den segregierten Verteilungen lässt sich sehr leicht die Interpretation des Potenzials für diffusives Mischen überprüfen, indem man den Wert mit der Fläche, in diesem Fall 100 cm^2 , multipliziert. Man erhält dadurch für die einzelnen Konzentrationsverteilungen exakt die Kontaktfläche zwischen Bereichen hoher und niedriger Konzentration. Bildet man den Kehrwert von Φ , so erhält man den mittleren Abstand zwischen den unterschiedlich konzentrierten Bereichen. Für a und b ergibt sich ein mittlerer Abstand von ca. 1,3 bzw. 1,9 cm, für die Verteilung von c beträgt der

Abstand 10 *cm*, was der Breite dieser Geometrieabmessungen entspricht. Im Falle von System d ergibt sich ein mittlerer Abstand von ca. 0,8 *cm*.

In allen Fällen erkennt man, dass bei segregierten Systemen die Angabe des Potentials für diffusives Mischen (oder eines verwandten Maßes) unerlässlich für die Beurteilung der Mischung ist. In fast vollständig gemischten Systemen hingegen besitzt das Potential nur noch die Interpretationsmöglichkeit der Triebkraft des diffusiven Ausgleichs, welcher für nahezu homogen vermischte Systeme sehr klein sein kann. Daher ist die Angabe der Intensität der Segregation bzw. des Mischens oder einer davon abgeleiteten Größe hilfreich zur Beurteilung solcher fast homogenen Verteilungen.

Somit werden zur Beurteilung des Mischzustandes innerhalb dieser Arbeit immer beide Maßzahlen, die Intensität des Mischens und das Potential für diffusives Mischen, angegeben.

2.3.3 Beurteilung der Mischgüte durch chemische Reaktion

Da die Grundlage chemischer Reaktionen das Vorhandensein chemisch reagierender Substanzen ist, geben Reaktionsraten bzw. erzielte Mischgüten Rückschlüsse auf die Homogenität des vorliegenden Systems. Dies ist der Grund, warum chemische Reaktionen Rückschlüsse auf den Vermischungsgrad geben können und so ein Maß für die Mischgüte sind.

Für ein reagierendes System sind die lokalen Konzentrationen entscheidend

$$R_{real} = \langle k c_A c_B \rangle \quad (2.24)$$

hier für den Fall einer Reaktion 2. Ordnung, gemittelt über den Ort. Dies ergibt die tatsächliche Rate, mit der das System reagiert. Die maximale Reaktionsrate des Systems ist gegeben, wenn an allen Orten dieselbe, mittlere Konzentration der beiden Spezies A und B vorliegen, dabei gibt

$$R_{hom} = k \langle c_A \rangle \langle c_B \rangle \quad (2.25)$$

die maximale Rate.

Bezieht man nun beide Größen aufeinander und betrachtet den Spezialfall $A = B$, so erhält man

$$\frac{R_{real}}{R_{hom}} = \frac{k \langle c_A^2 \rangle}{k \langle c_A \rangle^2} = 1 + \frac{\langle c_A^2 \rangle - \langle c_A \rangle^2}{k \langle c_A \rangle^2} = 1 + \frac{\sigma^2}{\mu^2} \quad (2.26)$$

mit σ^2 der Varianz und μ dem Erwartungswert. Somit stellt der Vergleich der beiden Reaktionsraten ähnlich wie das Danckwerts'sche Maß ein Maß für die Güte einer Mischung dar.

Experimentell gibt es einige Reaktionen, bei denen durch das Nachverfolgen einer Produktkonzentration in Batch-Systemen auf den Vermischungszustand geschlossen wird (Ehlers et al., 2000, Marchisio und Barresi, 2003). Beispiel eines solchen Systems ist das konsekutive Reaktionssystem der Dushman- bzw. der Villermaux-Reaktion (Fournier et al., 1996, Guichardon und Falk, 2000, Guichardon et al., 2000).

Dieses System besteht aus einem Puffersystem aus H_3BO_3 und $H_2BO_3^-$, welches Protonen instantan abfangen kann. Die zweite Reaktion besteht aus einer säurekatalysierten Synproportionierung von I^- und IO_3^- zu I_2 . Das I_2 kann durch instantane Komplexbildung mit I^- zu dem stark farbigen I_3^- reagieren und mittels photometrischer Untersuchungen charakterisiert werden (Schmitz, 2000, Thuesdale et al., 2003). Bei Batch-Systemen, bei denen vorher homogen das Puffersystem sowie eine Mischung von I^- und IO_3^- vorlag, können bei einer lokalen Zugabe einer starken Säure und anschließendem Mischen, Rückschlüsse auf lokale Vermischungen gezogen werden. In dem Fall, dass die Säure lokal sehr schnell verteilt wird, werden die freien H_3O^+ Ionen durch das vorhandene Puffersystem abgefangen. Im anderen Fall, bei dem der lokal vorhandene Überschuss an H_3O^+ Ionen nicht abgebaut werden kann, wird die zweite Reaktion katalysiert und es entsteht ein intensiv farbiges Signal der I_3^- Ionen. Daher zeigt ein Farbsignal das Vorhandensein lokaler Segregation in Batch-Systemen an.

Im kontinuierlichen Fall ist die Stärke des Signals der I_3^- Ionen lediglich ein Maß für die entstandene Kontaktfläche zwischen den einzelnen Reaktionspartnern. Dennoch wird die Dushman- bzw. Villermaux-Reaktion teilweise zur Beurteilung der Vermischung in kontinuierlichen Systemen verwendet (Liu und Lee, 1999, Panic et al., 2003, Keoschkerjan et al., 2004, Nagasawa et al., 2005).

3 Numerische Strömungssimulation

Grundlage der kontinuumsmechanischen Beschreibung von Strömungen ist die Annahme, dass Fluidströme durch makroskopische Größen (Kontinuumsannahme) wie Dichte (ρ), Geschwindigkeit (\mathbf{u}), Druck (p) etc. beschrieben werden können. Durch Bilanzierung der betreffenden Größen (Masse, Impuls, Energie) über kleine, materielle Volumenelemente, erhält man die integralen Bilanzen (Whitaker, 1968, McLeod, 1963).

Zusammen mit der Divergenzfreiheit, bilden die Navier-Stokes'schen Gleichungen, hier in dimensionsbehafteter Formulierung, die Grundlage der numerischen Strömungssimulation.

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad \partial_t \mathbf{u} + \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} = -\nabla p + \nu \Delta \mathbf{u} + f, \quad (3.1)$$

mit den äußeren Kräften f . Die Navier-Stokes'schen Gleichungen, zusammen mit Randbedingungen, bilden ein System von Differenzialgleichungen, das für einfachste Fälle analytisch, für andere jedoch nur noch numerisch lösbar ist.

Die Navier-Stokes'schen Gleichungen können im Falle chemisch reagierender Spezies ergänzt werden durch Speziesgleichungen

$$\partial_t c_i + \mathbf{u} \cdot \nabla c_i = \nabla \cdot (D_i \nabla c_i) + R_i \quad (3.2)$$

hier für den Fall der i -ten Komponente und der dazugehörigen Reaktionsrate R_i aufgestellt.

Diese Gleichungen bilden die Grundlage der numerischen Strömungssimulation (kurz CFD - Computational Fluid Dynamics), bei der für ein gegebenes Gebiet und gegebenen Randbedingungen sowie Stoffeigenschaften des Fluids, auftretende Ströme und Konzentrationsverteilungen näherungsweise berechnet werden. In der vorliegenden Arbeit wird das kommerzielle CFD-Programm Fluent 6 in der Version 6.1.18 sowie der Version 6.2.16 verwendet.

3.1 Numerische Verfahren in Fluent

In Fluent stehen prinzipiell zwei unterschiedliche numerische Methoden zur Lösung der Transportgleichungen zur Verfügung (Fluent Inc., 2003). Zum einen der „segregated“, zum anderen der „coupled Solver“. In beiden Fällen werden die integralen Bilanzen für Masse, Impuls - sofern erforderlich - die Bilanzen für Energie und andere Skalare gelöst. Dies geschieht, indem das Rechengebiet in diskrete Kontrollvolumina unterteilt wird, in denen durch Integration der betreffenden Transportgleichungen algebraische Ausdrücke der abhängigen Variablen entstehen. Danach werden die diskretisierten Gleichungen linearisiert und nachfolgend gelöst.

Die beiden Lösungsschemata unterscheiden sich in der sequenziellen Abfolge, in der die Gleichungen der unterschiedlichen Variablen gelöst werden. Beim „segregated Solver“ werden zuerst die drei Impulsgleichungen gelöst. Die Druckkorrektur, welche in Fluent in die Massenbilanz implementiert wurde, wird nachfolgend gelöst. Daran anschließend werden dann ggf. die Gleichungen für Energie, Spezies und sofern erforderlich Turbulenz sowie die Gleichungen zusätzlicher Skalare gelöst. Im Fall des „coupled Solvers“ werden die Gleichungen für Masse, Impuls und Energie sowie Spezies simultan, d.h. gleichzeitig gelöst. Sollten Gleichungen für Turbulenz oder Skalare nötig sein, werden diese in einem nachgeschalteten Schritt gelöst.

Um die integralen Bilanzen der einzelnen Erhaltungsgrößen effizient numerisch berechnen zu können, müssen diese linearisiert werden. Die Art der Linearisierung resultiert in eine explizite, bzw. implizite Formulierung der Gleichungen, wobei allerdings der „segregated Solver“ nur eine implizite Formulierung erlaubt.

Die implizite Formulierung der Gleichungen beinhaltet zum einen bekannte Werte der Variablen aus Nachbarzellen, d.h. die Werte der Variablen aus dem vorherigen Iterationsschritt sowie unbekannte Werte der Nachbarzellen des aktuellen Iterationsschrittes. Beispielsweise berechnet sich die x-Geschwindigkeit u_i^{n+1} in der Zelle i für den Iterationsschritt $n + 1$ als Funktion der bekannten Werte der Zelle i, seiner Nachbarzellen j des Iterationsschrittes n sowie die jeweiligen unbekanntenen Werte des Iterationsschrittes $n + 1$ (Vgl. Gl. 3.3).

$$u_i^{n+1} = f(u_i^n, u_j^n, u_j^{n+1}) \quad (3.3)$$

Diese Gleichungen werden simultan gelöst. Da beim „segregated Solver“ die Gleichungen der Erhaltungsgrößen nacheinander gelöst werden, resultiert bei dieser Lineari-

sierung eine Gleichung pro Zelle (System von skalaren Gleichungen). Die Gleichungen werden nach dem Gauss-Seidel Verfahren in Verbindung mit einer algebraischen Multigrid Methode (AMG) gelöst. Zusammengefaßt bedeutet dies, dass der „segregated Solver“ eine Variable (z.B. Druck) zur gleichen Zeit in allen Zellen berechnet.

Der „coupled Solver“ erlaubt hingegen neben der impliziten auch die explizite Formulierung der Gleichungen, wobei sich dies allerdings nur auf die gekoppelten Gleichungen (Masse, Impuls, Energie und Spezies) bezieht. Die eventuell vorhandenen Gleichungen für Turbulenz oder zusätzliche Skalare werden immer implizit formuliert.

Bei der Solvareinstellung „coupled Solver“ mit impliziter Formulierung wird daher ein Satz von linearen Gleichungen mit N Gleichungen pro Zelle mit Hilfe eines „Block“-Gauss-Seidel Verfahrens gelöst. Das bedeutet, dass diese Solvareinstellung die Variablen für Druck, Impuls, Energie und ggf. Spezies in allen Zellen zur gleichen Zeit löst. Bei der expliziten Formulierung der Gleichungen werden zur Berechnung der unbekanntenen Größe in einer Zelle nur bekannte Werte, d.h. Werte aus dem vorherigen Iterationsschritt, der betrachteten Zelle und der Nachbarzellen verwendet (Vgl. Gl. 3.4).

$$u_i^{n+1} = f(u_i^n, u_j^n) \quad (3.4)$$

Es resultiert wiederum ein Satz von N Gleichungen pro Zelle. Da jedoch die unbekanntenen Variablen nur in einer Zelle auftreten, müssen diese nicht gleichzeitig gelöst werden. Daher berechnet „coupled“ explizit die Variablen für Druck, Impuls, Energie und ggf. Spezies in nur einer Zellen zur gleichen Zeit. Dies geschieht mit Hilfe eines mehrstufigen Runge-Kutta Verfahrens.

3.1.1 Örtliche Diskretisierung

Fluent verwendet zur Diskretisierung der Transportgleichungen die Finite Volumen Methode. Dabei wird das Rechengebiet in kleine diskrete Volumina (Zellen) unterteilt. Die Diskretisierung kann am einfachsten am Beispiel einer skalaren Größe ϕ verdeutlicht werden.

Diskretisierung einer skalaren Größe

Die allgemeine, stationäre integrale Bilanz einer solchen skalaren Größe wird beschrieben durch

$$\int_{\partial V} \phi \mathbf{u} \cdot \mathbf{n} dA = \int_{\partial V} D_\phi(\nabla\phi) \cdot \mathbf{n} dA + \int_V S_\phi dV, \quad (3.5)$$

wobei $\phi \mathbf{u}$ den konvektiven und $D_\phi(\nabla\phi)$ den diffusiven Fluss der Größe ϕ beschreibt. Das Volumenintegral dieser Gleichung beschreibt Quellen und Senken. Im Fall einer chemischen Spezies sind dies Änderungen durch chemische Reaktion.

Bei der Finiten-Volumen Methode (FVM) gilt diese integrale Bilanz für jedes Kontrollvolumen (Peyret und Taylor, 1985, Versteeg und Malakasekera, 1995). Dabei werden diese Volumina durch die Gitterzellen repräsentiert und man ersetzt das Randintegral durch eine Summierung über die Flächen jeder Zelle :

$$\sum_{\text{Flächen}} \phi_f \mathbf{u}_f \cdot \mathbf{n} A_f = \sum_{\text{Flächen}} D_\phi(\nabla\phi)_n \cdot \mathbf{n} A_f + S_\phi V. \quad (3.6)$$

ϕ_f ist der Wert von ϕ , der durch die Fläche f transportiert wird. Da in Fluent Werte nur in den Zellzentren gespeichert werden, ϕ_f aber zur Berechnung des konvektiven Transportes notwendig ist, muss dieser interpoliert werden. Hierzu werden in Fluent ausschließlich „upwind“ Verfahren benutzt, d.h. der Wert auf der Fläche wird mit Hilfe von Werten berechnet, die stromaufwärts bezüglich der Strömungsrichtung liegen. Die treibende Größe im diffusiven Term ist $\nabla\phi$, sie wird stets durch eine zentrale Differenzen Methode 2. Ordnung interpoliert.

Die in Fluent verfügbaren „upwind“ Verfahren sind: 1. Ordnung, 2. Ordnung, QUICK (Quadratic Upstream Interpolation for Convective Kinematics), einem 3. Ordnungsverfahren und power-law, wobei die Wahl des Verfahrens stark von der Art des zu lösenden Problems abhängt, aber auch starken Einfluss auf die Güte der Lösung haben kann (Fluent Inc., 2005). Beim Verfahren 1. Ordnung wird davon ausgegangen, dass der Wert der Variablen ϕ eine zellgemittelte Größe darstellt und somit auch auf den Flächen gilt. Daher wird bei dieser Diskretisierung der Wert auf der Fläche gleich dem Wert des stromabwärts liegenden Zellzentrums gesetzt. Falls ϕ eine Spezies darstellt, die einen kleinen Diffusionskoeffizienten besitzt, wie Stoffe in Flüssigkeiten, ist allerdings eine Interpolation 1. Ordnung zu ungenau (Leonard et al., 1995). Sie würde zu einem zu großen Fluss über die Fläche führen (numerische Diffusion) und somit zu

der Gewichtung der beiden Verfahren. Die Standardwahl des Parameters Θ im klassischen QUICK-Schema (Leonard, 1979) ist $1/8$, dieser Wert wird allerdings in Fluent lösungsabhängig verändert und angepasst. Der Rechenaufwand bei Verwendung einer Diskretisierung 3. Ordnung ist höher als bei einer 2. Ordnung. Allerdings verringert ein Verfahren 3. Ordnung bei der Berechnung eines Speziestransports mit kleinen Diffusionskoeffizienten die numerische Diffusion und führt daher zu stärkeren Gradienten, was die Güte der Lösung verbessert.

Setzt man nun die jeweilige Approximation für ϕ_f bzw. dessen Gradienten in Gleichung 3.6 ein, so erhält man eine Gleichung für die betreffende Unbekannte, in der nur Werte von ϕ im Zellzentrum sowie Werte von ϕ der angrenzenden Zellzentren vorkommen. Durch Trennung der Unbekannten ergibt sich daraus folgende linearisierte Gleichung für den Wert ϕ in der Zelle p:

$$a_p \phi = \sum_{np} a_{np} \phi_{np} + b, \quad (3.8)$$

wobei np die Nachbarzellen von Zelle p repräsentieren. Der lineare Koeffizient a_p sowie die Koeffizienten der Nachbarzellen a_{np} beinhalten neben approximationspezifischen Termen u.a. auch Transportkoeffizienten wie Geschwindigkeit und Diffusionskoeffizient. Der Term b beinhaltet volumenspezifische Änderungen von ϕ .

Diskretisierung der Massen- und Impulsgleichung

Grundlage der Massenbilanz ist die Massenerhaltung die besagt, dass die Summe aller Massenströme eines nicht kompressiblen Fluids über den Rand eines Volumens konstant null sein muss:

$$\int_{\partial V} \rho \mathbf{u} \cdot \mathbf{n} dA = 0 \quad (3.9)$$

mit der Dichte ρ und der äußeren Normalen \mathbf{n} .

Bei der Bilanzierung des Impulses ist, ausgehend vom 2. Newton'schen Gesetz zum Erhalt des Impulses, die zeitliche Änderung des Impulses gleich der Summe der angreifenden Kräfte. Die auftretenden Kräfte können in zwei Typen unterteilt werden: zum einen in Volumen- und zum anderen in Flächenkräfte. Volumen- oder auch Körperkräfte sind solche, die ein Fluidelement im gesamten Volumen spürt. Hierzu zählen z.B. Gravitationskräfte oder auch elektromagnetische Felder. Flächenkräfte hingegen

sind solche Kräfte, die über die Oberfläche eines Volumenelements übertragen und daher auch als Spannungen bezeichnet werden. Diese setzen sich im inkompressiblen Fall zusammen aus Druckkräften und solchen Kräften, die durch viskose Scherung hervorgerufen werden. Somit ergibt sich die stationäre integrale Impulsbilanz zu:

$$\int_{\partial V} \rho \mathbf{u} \mathbf{u} \cdot \mathbf{n} dA = - \int_{\partial V} p \mathbf{I} \cdot \mathbf{n} dA + \int_{\partial V} \mathbf{S} \cdot \mathbf{n} dA + \int_V \mathbf{f} dV \quad (3.10)$$

wobei \mathbf{I} die Identität, \mathbf{S} den Spannungstensor und \mathbf{f} äußere Kräfte bezeichnet.

Zur Diskretisierung der Impulsbilanz wird in Fluent eine zum Skalartransport analoge linearisierte Gleichung benutzt (Gl. 3.8). Für die x-Komponente der Geschwindigkeit u ergibt sich beispielsweise die linearisierte, diskretisierte Gleichung zu

$$a_p u = \sum_{np} a_{np} u_{np} + \sum_{\text{Flächen}} p_f \mathbf{n} A + F, \quad (3.11)$$

wobei F die volumenspezifischen äußeren Kräfte beinhaltet und p_f den Druck auf der Fläche darstellt.

Sind nun Massenflüsse sowie das Druckfeld bekannt, kann diese Gleichung genau wie die lineare Gleichung eines Skalars gelöst werden. Meist sind allerdings Druckfeld und Massenflüsse Teil der Lösung und somit zu Anfang nicht bekannt. Der Druck auf der Fläche wird, wie auch beim Transport eines Skalars, durch Approximation erhalten. In Fluent sind dazu Schemata unterschiedlicher Ordnung verfügbar, wobei in der vorliegenden Arbeit ein Verfahren 2. Ordnung gewählt wurde.

Die Diskretisierung der Massenbilanz durch Integration über ein Kontrollvolumen liefert

$$\sum_{\text{Flächen}} J_f \mathbf{n}_f A_f = 0, \quad \text{mit} \quad J_f = \rho \mathbf{u}. \quad (3.12)$$

Allerdings wird die Kontinuitätsgleichung in Fluent als Gleichung für den Druck benutzt. Dazu wird der Fluss J_f mit Hilfe von SIMPLE (Semi-Implicit Method for Pressure-Linked Equations) Algorithmen modelliert. Dabei wird der Fluss beschrieben durch

$$J_f^* = \hat{J}_f^* + d_f(p_{c0}^* - p_{c1}^*), \quad (3.13)$$

wobei p^* die Werte eines angenommenen Druckfeldes und d_f eine Funktion des Mittelwertes über beide Zellen der linearen Koeffizienten a_p ist. \hat{J}_f^* beinhaltet die Beeinflussung der Geschwindigkeiten. Da diese Gleichung nicht der Massenerhaltung genügt,

wird zu J_f^* eine Druckkorrektur addiert, so dass die Kontinuitätsgleichung erfüllt ist. Die Werte der Druckkorrektur werden durch Lösung eines Gleichungssystems erhalten und damit das angenommene Druckfeld p^* modifiziert, so dass die resultierende Gleichung der Massenerhaltung genügt.

Diskretisierung der Speziesgleichung

Fluent bietet neben der Implementierung des passiven Skalartransportes auch die Möglichkeit die Transportgleichung von chemisch reagierenden Spezies zu lösen. Analog zur allgemeinen integralen Transportgleichung eines Skalars ϕ kann die Speziesgleichung formuliert werden als

$$\int_{\partial V} \rho Y_i \mathbf{u} \cdot \mathbf{n} dA = \int_{\partial V} \mathbf{J}_i \cdot \mathbf{n} dA + \int_V R_i dV, \quad (3.14)$$

mit dem Massenbruch Y_i und der spezifischen Reaktionsrate R_i der Spezies i . Im Fall der laminaren Strömung und unabhängiger Diffusionsraten wird der diffusive Strom \mathbf{J}_i in Analogie zum 1. Fick'schen Gesetz formuliert:

$$\mathbf{J}_i = -\rho D_i \nabla Y_i. \quad (3.15)$$

Es ergibt sich daher:

$$\int_{\partial V} \rho Y_i \mathbf{u} \cdot \mathbf{n} dA = - \int_{\partial V} \rho D_i \nabla Y_i \cdot \mathbf{n} dA + \int_V R_i dV, \quad (3.16)$$

welches in ähnlicher Weise wie auch die integrale Transportgleichung eines passiven Skalars linearisiert werden kann.

3.1.2 Zeitliche Diskretisierung

Für transiente Rechnungen müssen die Transportgleichungen sowohl örtlich, als auch zeitlich diskretisiert werden. Der Teil der Transportgleichungen, der die örtlichen Veränderungen beschreibt, ist identisch zu den stationären Gleichungen (3.5). Die zeitliche Diskretisierung beinhaltet die Integration aller Transportmechanismen (Konvektion und Diffusion) über einen Zeitschritt Δt . Diese kann formuliert werden als (Fluent Inc., 2003):

$$\int_V \frac{\partial \rho \phi}{\partial t} + \int_{\partial V} \rho \phi \mathbf{u} \cdot \mathbf{n} dA = \int_{\partial V} D_\phi \nabla \phi \cdot \mathbf{n} dA + \int_V S_\phi dV. \quad (3.17)$$

Fluent benutzt, bei Wahl des segregierten Solvers, eine implizite Formulierung der Gleichung. Dabei werden die konvektiven, diffusiven Terme sowie die Quellterme für den Zeitschritt $n + 1$ ausgewertet.

$$\begin{aligned} \int_V \frac{\partial \rho^{n+1} \phi^{n+1}}{\partial t} &= - \int_{\partial V} \rho^{n+1} \phi^{n+1} \mathbf{u}^{n+1} \cdot \mathbf{n} dA \\ &\quad + \int_{\partial V} D_\phi^{n+1} \nabla \phi^{n+1} \cdot \mathbf{n} dA + \int_V S_\phi^{n+1} dV \\ &= F(\phi^{n+1}). \end{aligned} \quad (3.18)$$

Die Funktion F beinhaltet somit alle räumlichen Abhängigkeiten. Zur Diskretisierung dieser Gleichung stehen in Fluent Approximationen erster oder zweiter Ordnung zur Verfügung. In der vorliegenden Arbeit wurde bei nicht stationären Rechnungen stets eine Diskretisierung 2. Ordnung in der Zeit gewählt. Bei diesem Verfahren wird die zeitliche Evolution mit Hilfe der folgenden Gleichung iterativ gelöst

$$\phi^i = \frac{4}{3} \phi^n - \frac{1}{3} \phi^{n-1} + \frac{2 \Delta t}{3} F(\phi^i). \quad (3.19)$$

Dabei wird, wobei ϕ^i zu Anfang mit ϕ^n initialisiert wird, solange iterativ angepasst, bis ϕ^i sich nicht mehr ändert bzw. ein Konvergenzkriterium erreicht wird.

3.1.3 Parallelität in Fluent

Um belastbare Lösungen gegebener Strömungs- oder Speziestransportprobleme zu erhalten, muss die gewählte Zellengröße des Gitters hinreichend klein sein (Vgl. Kap. 3.4). Da die Zellanzahl für Simulationen die auf einem handelsüblichen Rechner sinnvoll realisierbar sind, je nach Rechnerleistung und Strömungsproblem zwischen einigen Hunderttausend und wenigen Millionen Zellen variiert, kann es passieren, dass die so erreichbare Anzahl von Zellen nicht ausreichend ist. In solchen Fällen muss die Rechnung auf mehreren Rechnern parallelisiert ausgeführt werden.

Fluent bietet hierzu automatisierte Algorithmen um Gitter auf mehrere Rechner zu verteilen und dann parallelisiert zu rechnen. Dabei unterscheidet man zwei verschiedene Arten von verwendeten Prozessen. Zum einen benötigt Fluent in der parallelen Version einen „Host“-Prozess und zum anderen mindestens einen „Node“-Prozess. Der „Host“ hält bei den Rechnungen keine Werte einzelner Variablen oder Informationen

über das Gitter und dessen Verteilung vor. Er steuert lediglich die Kommunikation und den Austausch zwischen den einzelnen Knoten („Nodes“) und die Ein- und Ausgabe von Variablen oder Meldungen. Die „Node“-Prozesse sind die eigentlichen Rechenprozesse, wobei allerdings jeder Knoten nur Gitter- und Variableninformationen über den ihm zugeteilten Gitterbereich besitzt. Jeder Knoten löst daher nur die Transportgleichungen in einem kleinen Gitterausschnitt. Randbedingungen in diesen Bereichen sind in den meisten Fällen Lösungen der Variablen eines anderen Knotens, daher werden die Randschichten immer zweimal, d.h. auf zwei verschiedenen Knoten, gehalten. Die Werte der Variablen in diesen Zellen werden dann nach jeder Iteration automatisch durch den „Host“ zwischen den beiden Knoten ausgetauscht.

Dieser Austausch von Variableninformation kann, besonders bei sehr großen Gittern und vielen Knoten, einen erheblichen Teil der Zeit einer Iteration ausmachen. Um daher den Austausch und auch die Zeit, die pro Iteration benötigt wird, möglichst klein zu halten, sind eine Mindestzellenanzahl pro Knoten und eine glatte Bereichsberandung, sinnvoll. Eine solche Optimierung der Partitionierung (Verteilung auf mehrere Knoten) kann in Fluent automatisiert geschehen oder auch nachträglich durch den Benutzer geändert werden.

3.2 Solvereinstellungen

Für die numerischen Berechnungen wurden folgende Solvereinstellungen verwendet:

Tabelle 3.1: Solvereinstellungen

Solver	Segregated
Linearisierung	implizite
Genauigkeit	doppelt
zeitliche Diskretisierung	2. Ordnung
Impuls	QUICK
Spezies	QUICK
Energie	QUICK
Druck	2. Ordnung
Druckgeschwindigkeitskopplung	SIMPLE

Hierzu wurden in den Simulationen folgende Unterrelaxationsfaktoren für die einzelnen Komponenten verwendet:

Tabelle 3.2: Unterrelaxationsfaktoren

Druck	0,3 (Default)
Dichte	1 (Default)
Körperkräfte	1 (Default)
Impuls	0,7 (Default)
Spezies	1 (Default) bis 0,7
Energie	1 (Default)

Bei Verwendung einer Diskretisierung 3. Ordnung ist es teilweise nötig, um ausreichende Konvergenz (Residuen $< 10^{-6}$) erreichen zu können, den Standardwert des Relaxationsfaktors der Spezies leicht und sehr langsam zu kleineren Werten hin zu verändern. Senkt man den Wert zu schnell ab, so kann dies zu verfälschten Lösungen führen. Der Unterrelaxationsfaktor α gibt an, wie stark die Änderungen der betreffenden Variable sich pro Iteration ändern darf.

$$\phi^{i+1} = \phi^i + \alpha \Delta\phi^i. \quad (3.20)$$

3.3 Geometrie und Randbedingungen

Die Simulationen wurden für einen T-förmigen Mikromischer mit rechteckigen Querschnittsflächen durchgeführt (Abb. 3.2). Die Reaktorgeometrie des, für die Experimente verwendeten T-Mischers, der den Simulationen zugrunde liegt, besteht aus einem in Silizium geätzten T-förmigen Kanal mit einer Tiefe von $100 \mu\text{m}$. Der Mischkanal hat eine Länge von 16 mm, die beiden Einlasskanäle je 8 mm. Die Breite der Einlasskanäle beträgt $100 \mu\text{m}$, die des Mischkanals $200 \mu\text{m}$. Verglichen mit dem hydraulischen Durchmesser sind die Längen der Ein- und Auslasskanäle sehr groß, daher können die numerischen Simulationen, zur Reduktion der Rechenzeit, mit reduzierten Abmessungen durchgeführt werden. Durch Vorrechnungen wurde gezeigt, dass eine Mindestlänge von 1,5 mm für den Mischkanal notwendig ist, da ansonsten die nur näherungsweise gültigen Randbedingungen am Auslass Einfluß auf die Strömungscharakteristika im Mischkanal haben. Die Berechnungen wurden daher mit

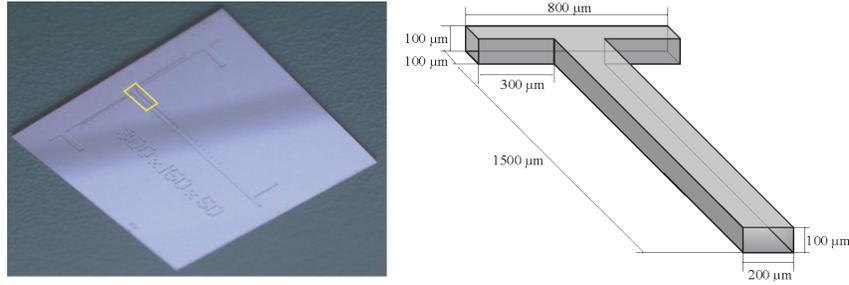


Abbildung 3.2: Photo eines in Silizium geätzten Mikromischers (links). Das hellgraue Rechteck kennzeichnet die Größe des numerischen Rechengebietes. Abb. 3.2 (rechts) zeigt die schematische Darstellung der Geometrie des berechneten Mikromischers.

dieser Länge für den Mischkanal durchgeführt. Um möglichst kurze Einlasskanäle verwenden zu können, wurde ein Einlassprofil an den beiden Einlassflächen verwendet (vgl. Abb. 3.3), welches dem einer voll entwickelten Kanalströmung entspricht. Durch Lösen der inkompressiblen stationären Navier-Stokes-Gleichung für einen rechteckigen Kanalquerschnitt nach Eigenfunktionen wird folgendes Profil erhalten (Vgl. Herleitung A.1):

$$w(x, y) = \frac{16\Delta p}{\eta L \pi^4} \sum_{j, k \in N} \frac{d_1^2 d_2^2}{jk(j^2 d_2^2 + k^2 d_1^2)} \sin\left(\frac{j\pi}{d_1} x\right) \sin\left(\frac{k\pi}{d_2} y\right), \quad (3.21)$$

wobei N die ungeraden natürlichen Zahlen bezeichnet (Muralidhar und Biswas, 1996). Eine andere Darstellung der Lösung ist bei Spurk (Spurk, 1996), zu finden. In den vorliegenden Simulationen sind, wenn dies nicht explizit erwähnt wird, symmetrische Einlassströme verwendet worden, d.h. die Volumenströme der beiden Einlasskanäle waren gleich groß. Die angegebenen mittleren Strömungsgeschwindigkeiten sowie die Angabe von Reynolds-Zahlen beziehen sich stets auf die Ausströmgeschwindigkeit am Auslass des Mischkanals bei $1600 \mu\text{m}$ bzw. auf den hydraulischen Durchmesser des Mischkanals.

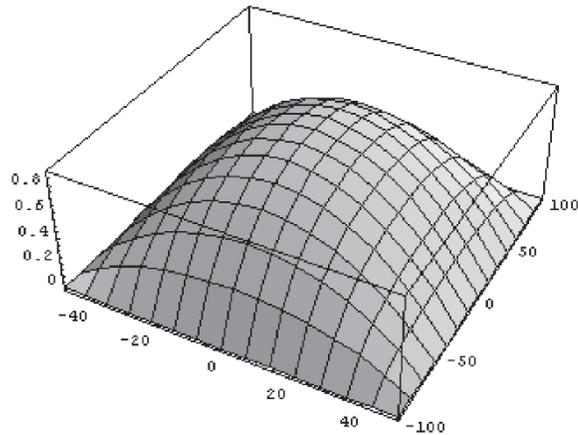


Abbildung 3.3: Geschwindigkeitsprofil einer voll entwickelten Rohrströmung für einen rechteckigen Kanalquerschnitt mit Seitenlängen von $100 \times 200 \mu\text{m}$.

Weitere Randbedingungen der Simulation sind Haftbedingung an festen Wänden und Normaldruck am Auslass.

3.4 Untersuchungen zur Gitterinvarianz

Bei der Finiten-Volumen Methode wird das Rechengebiet in kleine Volumina unterteilt. Diese müssen so klein gewählt werden, dass durch die Linearisierung der gekoppelten nicht linearen Differenzialgleichungen keine zu großen Fehler auftreten, da durch ein zu grobes Gitter Transportprozesse stark gedämpft werden.

Die Untersuchungen zur Gitterinvarianz wurden zum einen für die Hydrodynamik und zum anderen für den diffusiven Stofftransport durchgeführt. Zur Prüfung auf Invarianz bezüglich der Hydrodynamik wurden Berechnungen durchgeführt, bei denen das Gitter nach und nach verfeinert wurde. Alle Randbedingungen wurden hierbei konstant gehalten. Verglichen wurden dann sowohl integrale Größen wie Druckabfall oder dissipierte Leistung, als auch diskrete Geschwindigkeitsverteilungen auf festen Querschnitten längs des Mischkanals.

Sobald sich diese Werte bei einer Verfeinerung des Gitters nicht mehr ändern, gilt ab dieser Gittergröße die numerische Simulation als gitterinvariant und es ist daher nicht mehr nötig, das Gitter weiter zu verfeinern.

Um die erforderliche Mindestauflösung zu ermitteln, die ausreichend ist, die Strömung

im untersuchten T-Mikromischer genügend genau zu beschreiben, wurde die Hydrodynamik jeweils auf verschiedenen Gitter berechnet. Dies wurde durchgeführt bei einer mittleren Strömungsgeschwindigkeit von $1,4 \text{ m/s}$ ($Re = 186$), da sich hierbei eine nicht-triviale Sekundärströmung ausbildet, was zur Gitterinvarianzprüfung gut geeignet ist.

Zur Prüfung auf Unabhängigkeit der Strömung bezüglich des Gitters wurden blockstrukturierte Gitter verwendet, deren Auflösung längs des Mischkanals bis hin zu einem Abstand von ca. $600 \mu\text{m}$ hinter der Einlassfläche in den Mischkanal hinein sukzessive verfeinert wurde.

Rechnungen zur Prüfung auf Gitterinvarianz bezüglich einer diffusiv transportierten Spezies mit sehr hohen Schmidt-Zahlen (hier $Sc = 3600$) geraten sehr schnell an die Grenzen der heute zur Verfügung stehenden Leistungsfähigkeit von Computern. Daher können Vollverfeinerungen im gesamten Rechengebiet hier nicht durchgeführt werden. Die Auflösungen, die zur vollständigen Auflösung der feinsten Skalen notwendig sind, sind ca. 60mal ($Sc^{-1/2}$) kleiner als die Skalen der Hydrodynamik. Um dennoch Abschätzungen durchführen zu können, mußte das zu verfeinernde Rechengebiet stark eingeschränkt werden. Um die Hydrodynamik nicht zu verändern, wurde bei der Untersuchung des Speziestransports stets in allen Bereichen mindestens die erforderliche Auflösung für die Hydrodynamik verwendet.

Die Mischzone, der Bereich wo die beiden Einlassströme aufeinandertreffen, ist der Bereich, in dem Wirbel entstehen. Dieser Bereich (der Kopf des Mischkanals) muss daher jedesmal zwingend mitverfeinert werden. Da allerdings die Strömung im Mischkanal zum einen stationär ist und zum anderen eine Punktsymmetrie aufweist, wurde nicht die gesamte Breite des Kanals verfeinert. Ausgehend vom Eintritt in den Mischkanal bis hin zu einer Länge von $250 \mu\text{m}$ dahinter, wurde mindestens 60 % der Breite verfeinert. Um Fehler bei dieser Vorgehensweise auszuschließen wurden für die ersten Rechnungen sowohl der gesamte als auch nur ein Teil des Kanals verfeinert und die Ergebnisse miteinander verglichen.

Die Auswertungen bezüglich der Speziesverteilung wurden hier auf einem „halben“ Querschnitt $200 \mu\text{m}$ in den Mischkanal hinein und auf halber Höhe durchgeführt.

3.5 Verwendete Gitter

Die numerischen Simulationen wurden mit Hilfe der kommerziellen CFD-Software Fluent 6.1 bzw. 6.2 durchgeführt, die die Navier-Stokes Gleichungen näherungsweise durch die Finite-Volumen Methode löst (Vgl. Kap. 3.1). Zur Diskretisierung des Rechengebietes werden unter anderem blockstrukturierte Gitter mit 1 Millionen bzw. 9 Millionen kubischen Gitterzellen verwendet. Durch die Blockstruktur des Gitters wird nur dort stark verfeinert, wo es nötig ist. In Bereichen strenger laminarer Strömungen ohne bzw. mit geringen axialen Komponenten der Geschwindigkeit (Einlasskanal und hinterer Mischkanal) kann eine grobere Gitterstruktur verwendet werden (Zellgrößen von ca. $2,5 \mu m$). In anderen Bereichen, wie z.B. in der Mischzone, die ein Bereich starker Umlenkungen ist, muss das Gitter stark verfeinert werden.

Eine andere Methode, um lokal hohe Auflösungen zu erreichen, ist die Verwendung von lokaler Gitterverfeinerung. Diese wurde insbesondere zur Erzeugung der zu validierenden Simulationen verwendet, um lokal hoch aufgelöste Daten zu erhalten. Bei diesem Verfahren wird zu Anfang eine Lösung auf einem hinreichend feinen Git-

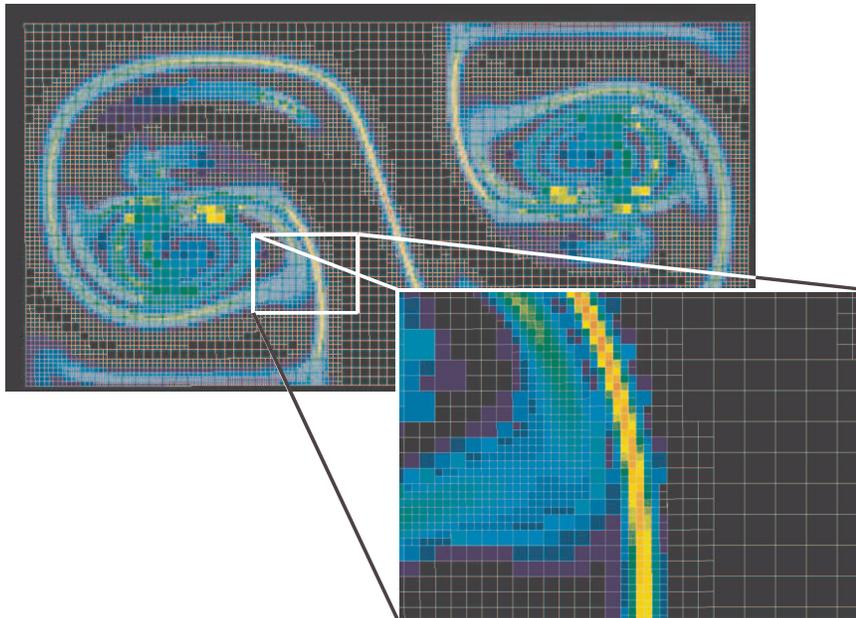


Abbildung 3.4: Längsschnitt durch den Mischkanal. Gezeigt wird die Gitterstruktur nach vorheriger doppelter Gitterverfeinerung. Die Graustufen symbolisieren Bereiche starker Gradienten.

ter errechnet. Hinreichend in diesem Zusammenhang bedeutet, dass die Lösung der Strömungsgleichungen gitterunabhängig ist und sich deren Lösung somit bei Verfeinerung nicht mehr ändert. Im Falle des Mikro-Mischers bedeutet dies ein Gitter mit ca. 1 Millionen Zellen (vgl. Kap. 4.1). Zur Lösung der Speziesgleichung für hohe Schmidt-Zahlen ist dieses Gitter allerdings unzureichend daher werden die feinsten Skalen der Spezies nicht aufgelöst. Ausgehend von der Lösung auf diesem Gitter werden Bereiche starker Gradienten der Spezies markiert und nachfolgend vollverfeinert. Der Vorteil dieser Methode ist, dass nicht der gesamte Bereich verfeinert werden muss, sondern nur einzelne, kleinere Bereiche. Mit Hilfe dieser Methode ist es daher möglich, lokal Zellgrößen von unter $0,3 \mu\text{m}$ zu erzielen. Um eine entsprechende Auflösung mit einem konventionellen Gitter zu erreichen, wären beispielsweise für den Mikro-Mischer ca. 180 Millionen Zellen nötig. Abbildung 3.4 zeigt das kubische Gitter auf einem Längsschnitt durch den Mischkanal. Die einzelnen Graustufen kennzeichnen Bereiche unterschiedlich großer Gradienten der Spezies. Zu erkennen ist, dass in den Bereichen, wo die Spezies keinerlei Gradienten besitzt, die ursprüngliche Gittergröße beibehalten wurde (rechte Seite des Ausschnittes), wohingegen bei hohen Gradienten das Gitter stark verfeinert wurde.

3.6 Untersuchungen zur Schmidt-Zahl Variation

Die hier durchgeführten Rechnungen wurden mit dem Diffusionskoeffizienten von Rhodamin-B ($2,8 \cdot 10^{-10} \text{m}^2/\text{s}$) und der Viskosität von Wasser ($1,00361 \cdot 10^{-6} \text{m}^2/\text{s}$) bei 20°C durchgeführt. Die sich daraus ergebene Schmidt-Zahl ($Sc = \nu/D$) der transportierten Spezies beträgt 3600. In wässrigen Systemen liegen diese Werte in der Regel zwischen 50 (kleinere Ionen) und mehreren Tausend für größere, langsam diffundierende Substanzen.

Kleine Diffusionskoeffizienten (große Schmidt-Zahlen) stellen numerisch ein großes Problem dar, da diese zu scharfen Gradienten führen. Diese Gradienten müssen durch eine Vielzahl von Gitterzellen aufgelöst werden. Da in der Regel bei Rechnungen mit sehr hohen Schmidt-Zahlen diese große Anzahl an Gitterelementen aufgrund eingeschränkter Rechenkapazität nicht erreicht werden kann, kommt es zur so genannten numerischen Diffusion. Das bedeutet, dass die errechneten Diffusionsraten größer sind, als die tatsächlich vorhandenen. Dieser Effekt kann durch Lösungsverfahren höherer

Ordnung deutlich verkleinert werden (Schönung, 1990).

Um Abhängigkeiten von der Diffusivität zu untersuchen, wurden in dieser Arbeit Schmidt-Zahl Variationen durchgeführt. Des Weiteren wurden diese Rechnungen auf Gittern mit unterschiedlichen Auflösungen berechnet.

3.7 Implementierung benutzerdefinierter Funktionen und Auswertungen

Um weiterführende Analysen der berechneten Strömung bzw. der erzielten Vermischungen zu ermöglichen, wurde zusätzlich ein voll parallelisiertes Unterprogramm (UDF - „User defined Function“) entwickelt und implementiert. Mit Hilfe des UDF´s ist es möglich, während der Rechnung Zugang zu Werten bzw. Gradienten der einzelnen Variablen auf Zellebene zu erhalten. Der Mischkanal wird mit Hilfe des UDF´s in Schichten längs des Mischkanals eingeteilt, auf denen die Werte und Gradienten zu charakteristischen Größen wie Mischgüte, Potenzial für diffusives Mischen oder auch querschnittsbezogene Energiedissipation zusammengefasst werden.

Das UDF ist in der Programmiersprache *C* geschrieben und basiert zum Teil auf Modulen, die vorimplementiert in Fluent zur Verfügung stehen. Diese beinhalten unter anderem Funktionen wie Schleifen über die gesamten Zellen einer Domäne oder auch die Kommunikation zwischen einzelnen Knoten bzw. Host und Knoten. Der gesamte Quellcode des parallelen Unterprogramms kann in Anhang A.2 eingesehen werden.

Das Programm ist inhaltlich in drei Hauptprozeduren unterteilt. Eine Prozedur, die vor einer Rechnung ausgeführt wird, eine, die während instationärer Rechnungen aktiviert wird und eine dritte Prozedur, die nach Erreichen der Konvergenzkriterien ausgeführt wird. Die einzelnen Teilprogramme sind daher mit „Vor“, „Während“ und „Nach“ bezeichnet. Die Prozedur „Vor“ wird in Fluent als „Execute-on-demand“ aufgerufen, d.h., der Funktionsaufruf erfolgt manuell. Dies gilt auch für die Prozedur „Nach“. Da während einer Rechnung eine manuelle Steuerung nicht möglich ist, werden die Auswertungsalgorithmen der Prozedur „Während“ auf einem Umweg in den Code implementiert. Fluent bietet die Möglichkeit, bei instationären Rechnungen die Zeitschrittweite fest vorzugeben, diese von Fluent intern anpassen zu lassen

oder dies durch ein UDF zu steuern. Innerhalb dieser Zeitschrittweitensteuerung wird die Prozedur „*Während*“ aufgerufen. Diese führt die einzelnen Unterprogramme aus und gibt anschließend eine, der Courant-Beziehung (Courant et al., 1928) genügende, vorher berechnete Zeitschrittweite zurück.

Die Prozedur „*Vor*“ hat zwei wesentliche Aufgaben, zum einen den Mischkanal mit vorher definierten Abständen in Schichten zu unterteilen, zum anderen eine Zeitschrittweite für instationäre Prozesse so zu berechnen, dass die Courant Zahl kleiner als eins ist. „*Nach*“ startet die eigentlichen Auswertungsroutinen bei stationären Rechnungen. Hierbei wird das Unterprogramm „Volumenfunktionen“ durchlaufen, welches nachfolgend näher erklärt wird.

Die dritte Prozedur („*Während*“), die unter anderem für die Zeitschrittsteuerung zuständig ist, wird nach jedem Zeitschritt automatisch ausgeführt. Dabei wird die Zeitschrittweite neu berechnet und zurückgegeben. Des Weiteren wird auch hier die Prozedur „Volumenfunktionen“ durchlaufen.

Die Funktion „Volumenfunktionen“ hat die Aufgabe, schichtgemittelte Kennzahlen wie Mischgüte, Potenzial für diffusives Mischen sowie dissipative Energie zusammenzufassen und in eine externe Datei zu speichern. Wie oben erwähnt, geschieht dies bei stationären Rechnungen einmal am Ende der Rechnung, bei instationären Rechnungen hingegen werden diese, nicht in jedem Zeitschritt, sondern nur in vorher festgelegten Bruchteilen der mittleren hydrodynamischen Verweilzeit abgespeichert.

Generell benötigt das UDF wenige Einstellungen, die vor jeder Rechnung und vor dem Einbinden der C-Routinen am Anfang des UDF's eingegeben werden müssen. Dazu gehören die Abmessungen des Mischkanals, die kinematische Viskosität des Fluids sowie die mittlere Geschwindigkeit im Mischkanal, die nachfolgend berechnet werden soll. Des Weiteren müssen die Länge einer Zellkante im Mischkanal sowie die Abstände der Auswertungsschichten im Mischkanal angegeben werden. Zusätzlich bietet das UDF die Möglichkeit lediglich hydrodynamische, und/ oder speziesbezogene Auswertungen durchzuführen.

3.8 Berechnung des Strömungsfeldes

Zur Berechnung des Strömungsfeldes wurden die Navier-Stokes Gleichungen eines dichtebeständigen Fluids ohne äußere Kräften für Masse

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (3.22)$$

und Impuls

$$\partial_t \mathbf{u} + \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} = -\nabla p + \frac{1}{Re} \Delta \mathbf{u} \quad (3.23)$$

mit Hilfe der Finiten-Volumen Methode näherungsweise mit Fluent 6.1.18 bzw. 6.2.16 gelöst. Die Rechnungen wurden hierbei bis zu einer Reynoldszahl von 240 durchgeführt. Unterhalb dieser Reynoldszahl liegen stationäre Verhältnisse vor, wohingegen beim Überschreiten dieser Reynoldszahl es durch nahezu periodischen Wirbelablösungen zu einem instationären Strömungsverhalten kommt.

3.9 Berechnung des Speziestransportes

Im Falle reagierender Ströme sind die Navier-Stokes Gleichungen (3.22, 3.23) zusätzlich noch um die Speziesgleichung zu ergänzen. Für eine ideal verdünnte Spezies ergibt sich die Transportgleichung in nicht-dimensionsloser Formulierung zu

$$\partial_t c_i + \mathbf{u} \cdot \nabla c_i = D_i \Delta c_i + R_i \quad (3.24)$$

mit der Reaktionsrate R_i und dem Diffusionskoeffizienten D_i .

Im Falle eines passiven Transports kann entweder die Speziesgleichung (3.24) mit einer Reaktionsrate $R_i = 0$ gelöst werden, oder der Speziestransport wird durch den Transport eines passiven Skalars berechnet (Vgl. 3.5).

In den hier durchgeführten Berechnungen wurden zur Beschreibung des Speziestransports beide Möglichkeiten je nach Problemstellung gewählt. Bei allen passiven Rechnungen ohne Reaktion wurde ausschließlich die Speziesgleichung verwendet. Bei der Berechnung reaktiver Systeme wurde hingegen die Reaktion mit Hilfe der Speziesgleichung und der pH-Indikator als passiver Skalar berechnet.

3.10 Berechnung reaktiver Systeme

Die zeitliche Änderung der Spezieskonzentrationen einer chemischen Reaktion vom Typ $A + B \rightarrow C$ wird beschrieben durch drei Differenzialgleichungen, wobei für jede Komponente jeweils die Speziesbilanz inklusive Reaktionsterm aufgestellt wird. Bei sehr schnellen Reaktionen ($k \rightarrow \infty$) ist $c_A \cdot c_B = 0$, d.h. die Eduktkonzentrationen c_A und c_B sind nirgends beide strikt positiv. Wegen der großen Steifheit des resultierenden Differenzialgleichungssystems für große k sind instantane Reaktionen numerisch direkt nicht gut handhabbar. Allerdings stellt in solchen Systemen, in denen die Zeitskala der Diffusion sehr viel größer als die Zeitskala der Reaktion ist (quasi-instantane Reaktion), die von Toor (Toor und Chiang, 1959) theoretisch vorgestellte Vereinfachung für diffusionskontrollierte (irreversible) Reaktionen eine numerisch handhabbare Alternative dar.

Zu diesem Zweck und unter der Prämisse, dass die Diffusionskoeffizienten D_A und D_B gleich sind, kann durch Differenzbildung der beiden Gleichungen folgende Differenzialgleichung erhalten werden:

$$\partial_t \phi + \mathbf{u} \cdot \nabla \phi = D \Delta \phi, \quad (3.25)$$

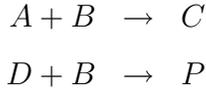
mit $\phi = c_B - c_A$ und $\phi \in [-1, 1]$. Diese Gleichung ist identisch mit der Transportgleichung eines passiven Skalars ohne Quellen und Senken. Ist nun in solchen Systemen die Reaktionsgeschwindigkeit sehr groß, so spricht man von quasi-instantanen Reaktionen. In solchen Systemen können die Reaktanden nicht koexistieren, da sie sofort (instantan) abreagieren würden, d.h. es gilt $c_A c_B = 0$. Daher ist es möglich, aus der Verteilung des passiven Skalars ϕ die ursprünglichen Konzentrationen von c_A und c_B wieder zu berechnen. Es gilt:

$$\phi(t, \mathbf{x}) = \begin{cases} c_A & = -\min\{\phi, 0\} \\ c_B & = \max\{\phi, 0\}. \end{cases} \quad (3.26)$$

In der vorliegenden Arbeit wurde die Neutralisationsreaktion von $NaOH$ mit HCl betrachtet. Da die Diffusivitäten der beiden Reaktionspartner nicht gleich sind ($Sc = 300$ für HCl und $Sc = 470$ für $NaOH$), wurde zur Beschreibung des Systems der Diffusionskoeffizient des Skalars ϕ in Abhängigkeit des Wertes von ϕ angepasst

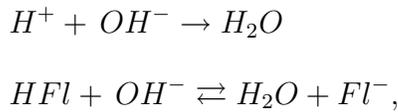
$$D(\phi) = \begin{cases} D_{HCl} & \text{für } \phi \geq 0 \\ D_{NaOH} & \text{für } \phi < 0. \end{cases} \quad (3.27)$$

Bei dem hier untersuchten reaktiven System handelt es sich allerdings nicht um eine einzelne Reaktion, sondern um eine Parallelreaktion der Form



Die zweite ablaufende Reaktion ist eine pH-abhängige Deprotonierungsreaktion eines Farbstoffes. In den Experimenten wurde als Farbstoff Fluoreszein verwendet, der im Basischen eine Fluoreszenzerscheinung zeigt.

Die experimentellen Messungen (Hoffmann et al., 2006) wurden durchgeführt, in dem man in einen Eingang des T-Mikromischers eine Mischung von Fluoreszein mit HCl zuführt, in den anderen Eingang $NaOH$. Die an der Kontaktfläche stattfindende Neutralisationsreaktion, mit einer Zeitskala der Reaktion im Bereich von einigen ns , ist eine quasi-instantane Reaktion. Dies bedeutet, dass es keine Koexistenz der beiden Reaktionspartner gibt; sobald sie aufeinandertreffen bildet sich das Reaktionsprodukt Wasser, welches gleichzeitig das Solvenz ist. Die beschreibenden Reaktionsgleichungen dieses Systems können wie folgt formuliert werden



mit Fl als Bezeichnung des Fluoreszeins. Da Wasser (H_2O) als Solvenz bei dieser Reaktion dient, sind die Änderungen dieser Spezies irrelevant bei der Bilanzierung. Die zu bilanzierenden Spezies sind daher die Säure (H^+), die Lauge (OH^-) sowie die protonierte ($HF\ell$) und die deprotonierte (Fl^-) Form des Fluoreszeins. Die beschreibenden Transportgleichungen dieser Spezies lauten

$$\begin{aligned} \partial_t c_{H^+} + \mathbf{u} \cdot \nabla c_{H^+} &= \nabla \cdot (D_{H^+} \nabla c_{H^+}) - \hat{k} c_{H^+} c_{OH^-} \\ \partial_t c_{OH^-} + \mathbf{u} \cdot \nabla c_{OH^-} &= \nabla \cdot (D_{OH^-} \nabla c_{OH^-}) \\ &\quad - \hat{k} c_{H^+} c_{OH^-} - k^H (c_{OH^-} c_{Fl^-} - K^{-1} c_{Fl^-}) \quad (3.28) \\ \partial_t c_{HF\ell} + \mathbf{u} \cdot \nabla c_{HF\ell} &= \nabla \cdot (D_{HF\ell} \nabla c_{HF\ell}) - k^H (c_{OH^-} c_{Fl^-} - K^{-1} c_{Fl^-}) \\ \partial_t c_{Fl^-} + \mathbf{u} \cdot \nabla c_{Fl^-} &= \nabla \cdot (D_{Fl^-} \nabla c_{Fl^-}) + k^H (c_{OH^-} c_{Fl^-} - K^{-1} c_{Fl^-}) \end{aligned}$$

mit den Diffusionskoeffizienten D_i der i -ten Komponente und der Geschwindigkeitskomponente \hat{k} der Neutralisationsreaktion. K bezeichnet hier das Verhältnis von Hinreaktion und Rückreaktion der Deprotonierungsreaktion $K = k^H/k^R$.

Da wie oben angesprochen, die Geschwindigkeitskonstante \hat{k} sehr groß ist, ist dies Differenzialgleichungssystem numerisch nur schwer handhabbar. Daher wird hier die bereits erwähnte Vereinfachung angewandt. Zu diesem Zweck führt man eine neue Variable ϕ ein, die folgendermaßen definiert ist

$$\phi = c_{OH^-} - c_{H^+}. \quad (3.29)$$

ϕ hat einen Wertebereich von $[-1; 1]$, wobei ein Wert von $\phi < 0$ dem Vorhandensein von H^+ entspricht, einen Wert ≥ 0 dem von OH^- .

Man bildet die Differenz der ersten beiden Gleichungen des Gleichungssystems und erhält

$$\partial_t \phi + \mathbf{u} \cdot \nabla \phi = \nabla \cdot (D_\phi \nabla \phi) - k^H (c_{OH^-} c_{Fl^-} - K^{-1} c_{Fl^-}). \quad (3.30)$$

Da bei den experimentell durchgeführten Messungen die Konzentration des eingesetzten Fluoreszenzfarbstoffes 1000mal kleiner ist als die eingesetzte Konzentration der Lauge, wird die Senke der Gleichgewichtsreaktion vernachlässigt. In wie weit dieses zu einer korrekten Beschreibung führt, muss noch geprüft werden. Mit dieser Annahme gilt

$$\partial_t \phi + \mathbf{u} \cdot \nabla \phi = \nabla \cdot (D_\phi \nabla \phi). \quad (3.31)$$

Für den Fluoreszenzfarbstoff wird zur Vereinfachung ebenfalls eine neue Variable ψ eingeführt, die der Summe der beiden Konzentrationen von protoniertem und deprotoniertem Farbstoff entspricht. Dadurch reduzieren sich die beiden letzten Gleichungen des Gleichungssystems zu

$$\partial_t \psi + \mathbf{u} \cdot \nabla \psi = \nabla \cdot (D_\psi \nabla \psi), \quad (3.32)$$

mit $D_\psi = const$, da die Diffusivitäten der protonierten und der deprotonierten Form annähernd gleich sind.

Zu beachten ist hierbei, dass die direkte Umrechnung der Skalare in die ursprünglichen Konzentrationen streng genommen nur für ϕ möglich ist. Da allerdings der Fluoreszenzfarbstoff lediglich zur Visualisierung dient, ist die genaue Konzentration der deprotonierten Spezies Fl^- nicht wichtig. Zur numerischen Visualisierung wird daher nur an den Stellen ausgewertet, wo Fl^- existiert und ebenfalls OH^- vorhanden ist.

Die numerischen Simulationen wurden mit Skalaren durchgeführt, die auf einen Wertebereich von $[0; 1]$ normiert sind. Daher wurden beide Skalare ϕ und ψ mit einem Maximalwert von 1 in einen Eingang und mit jeweils 0 in den anderen aufgegeben. Die Fluoreszenzintensität des Fluoreszeins steigt auf einem Bereich von pH3 bis pH11 stark an, weshalb zur Visualisierung und vor allem zur Verifizierung der experimentellen Daten eine pH-Wert abhängige Signalstärke der Form

$$I = \frac{a 10^{2pH} c_{0,HFl}}{1 + a 10^{2pH} + b 10^{pH}}, \quad (3.33)$$

gewählt wurde. Dieses gibt die experimentell gefundene Abhängigkeit der Intensität mit Änderung des pH-Wertes an (Munsterer und Jähne, 1998).

Da aufgrund der filigranen lamellaren Struktur lokal hohe Auflösungen erforderlich sind, wurde bei den Simulationen das Gitter sukzessive in mehreren Schritten verkleinert bis zu einer Zellgröße von $0,3 \mu m$ bei einer Kanalbreite von $200 \mu m$.

3.11 Analyse des Deformationsratentensors

Bei Reaktionen mit Reaktionsordnungen >1 ist es erforderlich, dass die beteiligten Spezies aufeinander treffen, um reagieren zu können. Dazu müssen diese durch Mischprozesse in Kontakt zueinander gebracht werden. Um dabei eine hohe Selektivität zu erzielen, müssen die Mischprozesse, z.B. in einem Strömungsrohrreaktor, in radialer Richtung erfolgen; Mischprozesse in axiale Richtung, die man in Analogie zur Diffusion, als axiale Dispersion bezeichnet, führen durch Rückvermischung zur Senkung von Selektivität und Ausbeute. Aufschluss über die Effizienz, mit der die eingetragene Leistung in Quervermischung, also eine Vermischung in radialer Richtung, umgesetzt wird, gibt eine Analyse der Rate der Energiedissipation. In viskosen Flüssigkeiten wird mechanische Energie in dem Maße dissipiert, in dem Relativbewegungen vorliegen. Dies geschieht durch Wandhaftung, auch in voll entwickelten Rohrströmungen. In diesem Fall sind die Relativbewegungen allerdings in Strömungsrichtung und bewirken daher die unerwünschte Dispersion. Erreicht man es, dass die Relativbewegungen in zur Achse senkrechten Richtungen erfolgen, so erhält man Vermischung in Querrichtung.

Um die Quervermischung im Mikroreaktor quantitativ zu bestimmen, muss der Deformationsratentensor \mathbf{D} analysiert werden. Dieser entspricht dem symmetrischen Anteil

von $\nabla \mathbf{u}$:

$$\mathbf{D} = \frac{1}{2} \nabla \mathbf{u} + \frac{1}{2} (\nabla \mathbf{u})^T \quad (3.34)$$

und stellt die lokale massenspezifische Energiedissipation durch Relativbewegungen dar. Es gilt

$$\mathbf{D} = \begin{pmatrix} \partial_x u & \frac{1}{2} (\partial_x v + \partial_y u) & \frac{1}{2} (\partial_x w + \partial_z u) \\ \frac{1}{2} (\partial_x v + \partial_y u) & \partial_y v & \frac{1}{2} (\partial_y w + \partial_z v) \\ \frac{1}{2} (\partial_x w + \partial_z u) & \frac{1}{2} (\partial_y w + \partial_z v) & \partial_z w \end{pmatrix} \quad (3.35)$$

Liegt die Hauptströmungsrichtung in z-Richtung, so müssen die Relativbewegungen in x- und y-Richtung erfolgen, um eine Quervermischung zu erzielen. Daher muss die obere 2x2 Untermatrix (\mathbf{D}_2) des Deformationsratentensors \mathbf{D} ausgewertet werden.

$$\varepsilon_{quer} \sim \mathbf{D}_2 : \mathbf{D}_2 = \left(\frac{\partial u}{\partial x} \right)^2 + \left(\frac{\partial v}{\partial y} \right)^2 + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial x} \right)^2 \quad (3.36)$$

Durch Integration über die jeweilige Querschnittsfläche und Multiplikation mit einem konstanten Faktor von 2η ergibt sich die Rate der in Querschnittsrichtung dissipierten Leistung. Um diesen Wert zu normieren, wird die in Querschnittsrichtung eingetragene Leistung auf die gesamte Leistung, die auf diesem Querschnitt dissipiert wurde, bezogen. Die Gesamtleistung erhält man durch Auswertung des gesamten Deformationsratentensors

$$\varepsilon_{ges} = 2 \eta \mathbf{D} : \mathbf{D}. \quad (3.37)$$

Die einzelnen Gradienten können direkt aus Fluent erhalten werden. Sie werden dann gemäß Gleichungen 3.36 und 3.37 mittels des schon erwähnten UDF's „*Waehrend*“ während der Rechnung über die Querschnitte integriert und ausgegeben. Darüber hinaus können diese Auswertungen auch für stationäre Berechnungen mit dem UDF „*Nach*“ durchgeführt werden.

3.12 Untersuchungen zum Verweilzeitverhalten

Der Umsatz einer chemischen Reaktion wird bei einem kontinuierlich betriebenen Reaktor maßgeblich beeinflusst durch die Aufenthaltszeit jedes reagierenden Moleküls im

Reaktor (Jakubith, 1998). Da aufgrund der großen Anzahl der vorhandenen Moleküle ein Nachverfolgen jedes einzelnen nicht möglich ist, wird ein Verweilzeitspektrum aufgenommen. Ein Verweilzeitspektrum oder auch relative Häufigkeit ($E(t)$), wird erhalten, indem man eine Stoßmarkierung (idealerweise ein Dirac-Signal) in den Eingang des Reaktors bringt und die Antwortfunktion im Ausgang misst. Man bekommt dadurch ein Antwortsignal in Abhängigkeit der Zeit. Eine andere Darstellungsmethode ist die Häufigkeitssummenfunktion ($F(t)$), die durch Integration der relativen Häufigkeit erhalten wird

$$F(t) = \int_0^t E(\tau) d\tau. \quad (3.38)$$

Experimentell kann dieser Verlauf durch Aufbringen einer Sprungmarkierung (idealerweise eine Heaviside-Funktion) im Eingang erhalten werden.

Die Verläufe der beiden Häufigkeitsfunktionen unterscheiden sich für verschiedene Reaktortypen. Des Weiteren lassen sich beim Vergleich von Messungen realer Reaktoren mit den Verläufen idealer Reaktoren (ggf. auch Mischformen verschiedener idealer Reaktoren) Abweichungen vom idealen Verhalten erkennen. Diese Abweichungen können unter anderem von Totwasserzonen, Kurzschlüssen oder ähnlich unerwünschten Strömungsverhalten hervorgerufen und dadurch charakterisiert werden. Die große Bedeutung der Verweilzeitverteilung besteht in der Charakterisierung der Realströmung des kontinuierlich betriebenen Reaktors (Jensen, 1998). Auf der Grundlage der Verteilungen lässt sich entscheiden, welches vereinfachte Modell (z.B. Dispersions-, Kaskaden- oder Zellenmodell) zur Beschreibung des Reaktionsverhaltens sinnvoll ist (Fitzer und Fritz, 1989, Levenspiel, 1999).

Zur Untersuchung des Verweilzeitverhaltens im Mikroreaktor wurden Sprungmarkierungen in numerischen Tracerexperimenten durchgeführt. Zu diesem Zweck wurde zu Anfang der Rechnungen das stationäre Strömungsprofil berechnet und dann anschließend der Tracer in einen der beiden Einlasskanäle aufgegeben. Die nachfolgende Berechnung des Stofftransportes erfolgte transient, wobei bei festen Bruchteilen der mittleren hydrodynamischen Verweilzeit mittels des UDF's „*Waehrend*“ integrale Kenngrößen zur Berechnung der Verweilzeitverteilung herausgeschrieben wurden. Das verwendete Gitter bestand aus ca. 9 Millionen Zellen, was einer Zellbreite von $1,25 \mu m$ entspricht.

3.13 Untersuchungen zur Strömungsmodulation

Da rein laminare Strömungen in Mikroreaktoren noch relativ lange Diffusionswege aufweisen und andererseits turbulente Strömungen mit einem erheblichen Druckverlust verbunden sind, kommt dem Strömungsmischen durch chaotische Advektion eine wachsende Bedeutung zu. Unter chaotischer Advektion versteht man ein Phänomen, wobei die Strömung auf der einen Seite zwar laminar ist, diese aber chaotische Partikeltrajektorien zeigen kann. Dieses kann erreicht werden, indem zusätzliche Energie z.B. in Form periodischer Volumenstromschwankungen (Niu und Lee, 2003, Mackley und Stonestreet, 1995) eingebracht wird. Desgleichen kann eine chaotische Advektion durch trickreich gestaltete statische Einbauten (Stroock et al., 2002, Aubin et al., 2003, Kim et al., 2004) erreicht werden. Bei der somit erhaltenen Strömung treten abwechselnd Dehn- und Streckungen sowie Faltungen von Filamenten auf.

Die hier durchgeführten Simulationen zur Strömungsmodulation wurden mit periodischen Volumenstromschwankungen vorgenommen. Dazu wurden die Eingangsvolumenströme so eingestellt, dass sie in entgegengesetzter Phase schwingen (Abb. 3.5). Dadurch erreicht man einen konstanten Volumenstrom im Auslass, was bei einer späteren Implementierung innerhalb eines verfahrenstechnischen Systems technische Vorteile bietet. Die Amplitude wurde so gewählt, dass bei den gewählten Geschwindigkeiten durch die Modulation der Engulfmentbereich nicht verlassen wurde. Dazu wurde die mittlere, eingestellte Geschwindigkeit jeweils mit einer Amplitude von $\pm 25\%$ der mittleren Geschwindigkeit moduliert. Die angelegten Frequenzen variierten zwischen 10, 20 und 30 kHz.

$$\mathbf{u}(\mathbf{x}, t) = \mathbf{u}(\mathbf{x})(1 + 0,25 \sin(t f \pi)) \quad (3.39)$$

Technisch lässt sich eine solche Strömungserzeugung mit Hilfe der Piezotechnologie umsetzen (Fu et al., 2006).

Für die instationären Rechnungen wurde zu Anfang auf einem blockstrukturiertem Gitter mit 1 Millionen Zellen (Zellbreiten von $2,5 \mu\text{m}$) allein die Hydrodynamik berechnet, so dass die zu erzeugende Strömung im gesamten Reaktor einlaufen kann. Danach wurde eine Sprungmarkierung mit einem Tracer durchgeführt, der die physikalischen Eigenschaften von Rhodamin-B hat. Die Rechnungen wurden solange durchgeführt, bis die Mischcharakteristika gleichmäßige Schwingungen zeigten. Ausgewertet wurde zum einen die Hydrodynamik, wobei Druckschwankungen und dissipativ

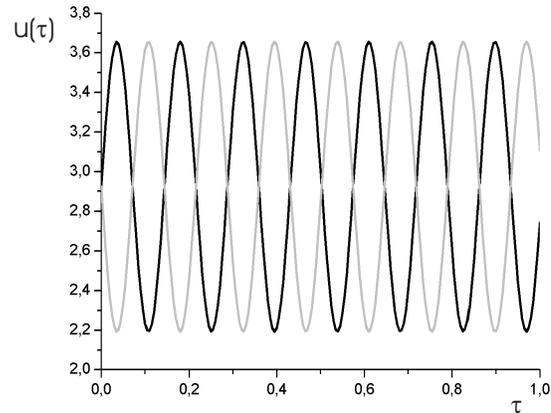


Abbildung 3.5: Zeitlich schwankender Verlauf der Maximalgeschwindigkeiten der beiden Einlasskanäle bei einer mittleren Geschwindigkeit von $1,4 \text{ m/s}$ und einer Frequenz von 10 kHz .

eingetragene Energie in Querrichtung untersucht wurde. Zum anderen wurden Mischcharakteristika wie Mischgüte und Potenzial für diffusives Mischen der eingetragenen Spezies untersucht. Um die Impulsfronten bei den wechselnden Geschwindigkeiten numerisch aufzulösen, wurden die Verweilzeiten mit jeweils ca. 2.000 Zeitschritten pro τ_H aufgelöst. Da bei einer maximalen Frequenz maximal 21 Schwingungen pro τ_H in einem Eingang auftreten, wird jede Schwingung mit mindestens 100 Zeitschritten aufgelöst.

4 Ergebnisse der numerischen Simulationen

4.1 Gitterinvarianz

Zur Prüfung hinsichtlich der Gitterinvarianz wurde zu Anfang die verwendete Geometrie (Vgl. Abb. 4.1) auf Mindestlängen von Einlass- und Mischkanallängen hin überprüft. Durch Vorrechnungen hat sich gezeigt, dass der Mischkanal eine Mindestlänge von $1500 \mu\text{m}$ besitzen muss, da ansonsten die nur näherungsweise gültige Randbedingung am Auslass des Reaktors Einfluss auf die Strömungscharakteristika in der Mischzone hat. Dementsprechend wurden die Längen der beiden Einlasskanäle auf mindestens $300 \mu\text{m}$ festgesetzt. Um die bei den experimentellen Messungen im Einlasskanal vorliegende entwickelte Rohrströmung zu erhalten wurde zusätzlich noch das Profil einer voll entwickelten Rohrströmung an den beiden Einlassflächen als Einlassprofil vorgegeben (Vgl. Kap. 3.3).

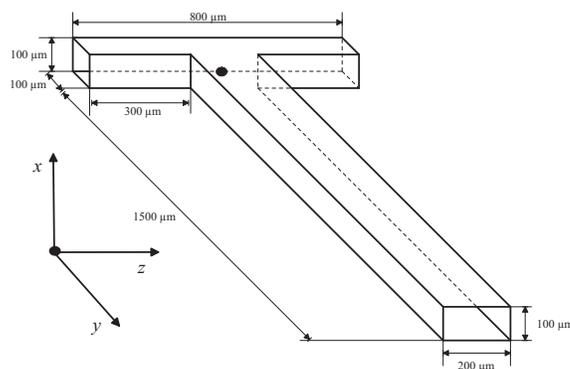


Abbildung 4.1: Für die Simulationen verwendete Geometrie. Ursprung des Koordinatensystems (schwarzer Punkt) befindet sich unten an der Stirnfläche des Mischkanals, wobei die beiden Einlassflächen denselben Abstand vom Ursprung besitzen.

4.1.1 Hydrodynamik

Im Anschluss an die Optimierung der reduzierten Längen wurden Testrechnungen mit verschiedenen Gitterauflösungen durchgeführt, um zu testen, ab welcher Auflösung die Lösung bei gegebener Reynolds-Zahl gitterunabhängig wird. Zu diesem Zweck wurden insgesamt drei verschieden aufgelöste Gitter getestet, ein Gitter mit 20 mal 40, eines mit 40 mal 80 und eines, welches die Mischzone im Querschnitt mit 80 mal 160 Zellen auflöst. Die resultierenden Zellengrößen ergeben sich dann zu $5 \mu m$, $2,5 \mu m$ und $1,25 \mu m$ für die Kantenlänge einer Zelle.

Die Verläufe integraler Strömungsgrößen, wie die des querschnittsgemittelten statischen Drucks und die der in Querrichtung dissipierten Energie, sind in Abbildung 4.2

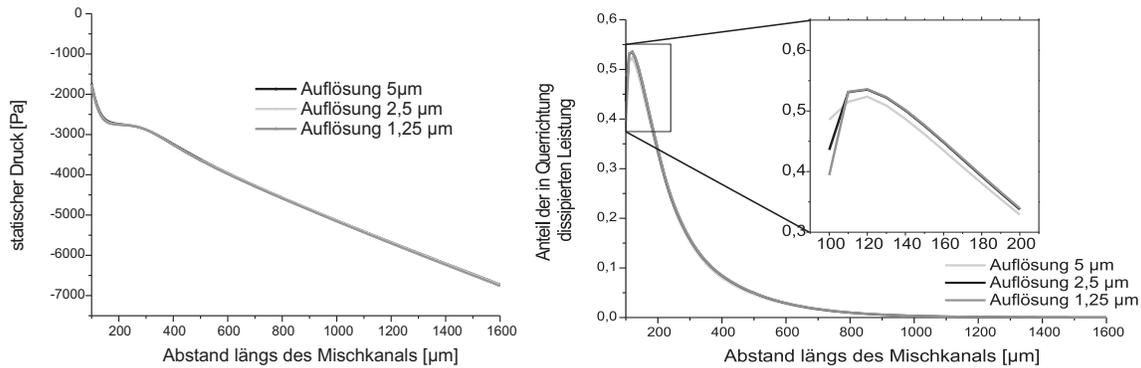


Abbildung 4.2: Verlauf des querschnittsgemittelten statischen Drucks bei drei verschiedenen Gitterauflösungen (links) und des Anteils der dissipierten Energie in Querrichtung bezogen auf die gesamte dissipierte Energie auf einem Querschnitt bei denselben Auflösungen (rechts).

für die drei Testfälle zusammengestellt. Man erkennt, dass die Simulationen mit den drei Auflösungen für beide integralen Kenngrößen ähnliche Verläufe liefern. Bei genauerer Untersuchung erkennt man allerdings, dass die Verläufe der größten Auflösung ein sichtbares Dämpfungsverhalten zeigen. In der Vergrößerung (4.2 rechts oben) erkennt man, dass der Verlauf der eingetragenen Energie etwas unterhalb der beiden anderen Verläufe liegt. In einem ähnlichen Bereich bewegen sich die Abweichungen, wenn man diskrete Zellenwerte der Geschwindigkeit betrachtet (Abb. 4.3). Verglichen wurden jeweils die Verläufe gegen die Rechnung mit der feinsten Auflösung. Abweichungen zwischen den Ergebnissen der drei Auflösungen in Richtung der Hauptströmungsachse sind vernachlässigbar klein, genauso wie die in x-Richtung, die Kompo-

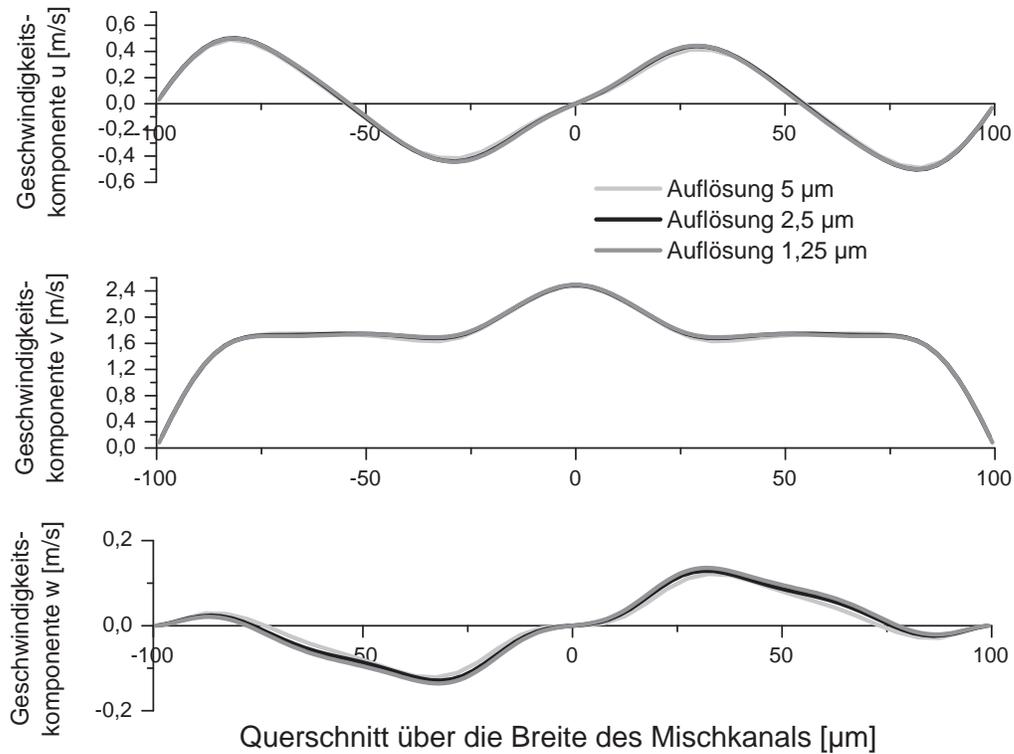


Abbildung 4.3: Verlauf der Geschwindigkeitskomponenten entlang einer Linie auf halber Höhe des Mischkanals bei einem Abstand von $300 \mu m$ in den Mischkanal hinein. u (oben) und w (unten) bilden die Geschwindigkeitskomponenten in x und z -Richtung, v (Mitte) die in y -Richtung.

nente in Richtung der Höhe des Mischkanals. Abweichungen sind erkennbar zwischen der Rechnung mit $1,25 \mu m$ bzw. $2,5 \mu m$ pro Zelle auf der einen Seite und $5 \mu m$ auf der anderen Seite bezüglich der Geschwindigkeitskomponente in z -Richtung. Diese entspricht der Komponente in Richtung der Breite des Mischkanals.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Dämpfung des Geschwindigkeitsfeldes und daraus abgeleiteter Größen bei einer Auflösung mit $5 \mu m$ Zellenbreite zwar nicht sehr stark, aber dennoch ausgebildet ist. Die Rechnungen bezüglich der Hydrodynamik gelten daher ab einer Mindestauflösung von $2,5 \mu m$ Zellenbreite als gitterinvariant. Im Folgenden wird daher bei allen Rechnungen diese Mindestauflösung gewählt, was einer Anzahl von 1 Millionen Zellen entspricht.

4.1.2 Speziestransport

Darüber hinaus wurde der passive Stofftransport eines Skalars mit einer Schmidt-Zahl von 3600 bezüglich der Gittervarianz überprüft. Der bei den experimentellen Unter-

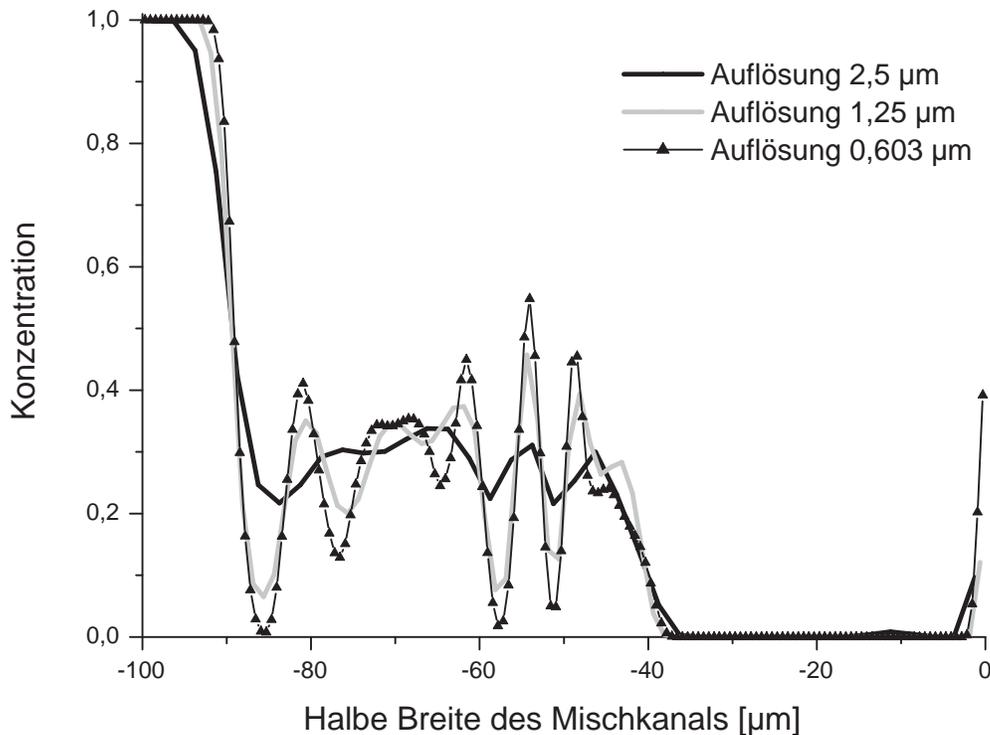


Abbildung 4.4: Verlauf der Konzentration entlang einer Linie auf halber Höhe des Mischkanals bei einem Abstand von $200 \mu m$ in den Mischkanal hinein. Dargestellt ist die halbe Breite des Kanals für drei verschiedene Gitterauflösungen.

suchungen verwendete Fluoreszenzfarbstoff Rhodamin-B besitzt eine Diffusivität, die einer Schmidt-Zahl in Wasser von 3600 entspricht. Daher wurde bei diesen Untersuchungen eine solch hohe Schmidt-Zahl verwendet. Das gröbste dazu verwendete Gitter besitzt eine Zellbreite von $2,5 \mu m$. Die Lösung der Transportgleichungen auf einem Gitter mit dieser Auflösung hat sich bezüglich der Hydrodynamik als gitterinvariant herausgestellt. Zusätzlich wurden noch zwei Vollverfeinerungen untersucht.

Die Erzeugung der jeweiligen Vollverfeinerungen wurde wie in Kapitel 3.4 beschrieben durchgeführt. Abbildung 4.4 zeigt die Verläufe der Konzentration der Spezies auf einen halben Schnitt auf halber Höhe des Mischkanals in einem Abstand von $200 \mu\text{m}$ hinter dem Eingang in den Mischkanal für die drei Auflösungen. Man erkennt, dass durch das grobe Gitter die auftretenden, erzeugten Skalen sehr stark durch numerische Diffusion egalisiert werden. Erst bei einer kompletten Vollverfeinerung, was einer Zellbreite von $1,25 \mu\text{m}$ entspricht, werden die auftretenden Skalen nicht mehr weggedämpft. Im Vergleich zu dem Gitter mit einer Zellbreite von ca. $0,6 \mu\text{m}$ sind zwar die Gradienten abgedämpft, aber die auftretenden Strukturen werden wiedergegeben. Dennoch ist hier zu erwähnen, dass eine Gitterinvarianz bezüglich der diffusiv transportierten Spezies mit einer Schmidt-Zahl von 3600 hier noch nicht erreicht worden ist. Auch ist bei einer Koordinate von ca. $-70 \mu\text{m}$ zu erkennen, dass es mit zunehmender Verfeinerung zu einer Einbuchtung des Signals kommt. Dieses deutet darauf hin, dass bei weiterer Verfeinerung zusätzliche, feinere Strukturen sichtbar werden können.

Insgesamt lässt sich zusammenfassen, dass selbst eine Auflösung von $1,25 \mu\text{m}$ nur ein Kompromiss darstellt, da die so erhaltenen Skalen immer noch nicht vollständig aufgelöst sind.

Auflösungen und dabei auftretende und erzeugte Skalen bei anderen Schmidt-Zahlen sind Gegenstand von Kapitel 4.4.3.

4.2 Strömungsbereiche

In dem untersuchten Reynolds-Zahlenbereich können, in Abhängigkeit der Strömungsgeschwindigkeit, drei stationäre Strömungsbereiche unterschieden werden (Abb. 4.5). In allen drei Fällen gelangen die beiden Einlassströme in die Mischzone, welche sich im Eingangsbereich des Mischkanals befindet, treffen dort aufeinander und fließen in den Mischkanal hinein.

Bei kleinen Reynolds-Zahlen liegt eine streng laminare Strömung vor, bei der beide Einlassströme nebeneinander in den Mischkanal hinein strömen. Bei Injektion eines Tracers in einem der beiden Einlasskanäle entsteht eine Tracerverteilung im Ausgang, die aus zwei vollständig segregierten Bereichen besteht.

Bei Erhöhung der Reynolds-Zahl über einen Wert von $Re = 35 - 40$ hinaus, bil-

det sich, auf Grund der von durch Fliehkräften ausgelösten Instabilitäten, eine Sekundärströmung aus. Auf jeder Seite des Mischkanals entsteht durch die Umlenkung in den Mischkanal aus den Einlasskanälen je ein Doppelwirbel, der aus zwei korkenzieherartigen stationären Wirbeln besteht. Die Entstehung der Doppelwirbel im Vortex-Bereich scheint ähnlich wie die Entstehung von Dean-Wirbeln in gekrümmten Rohrwendeln (Ookawara et al., 2006) zu sein. Eine Sprungmarkierung in diesem Strömungsbereich ergäbe, genau wie im laminaren Bereich, zwei segregierte Bereiche, da die Symmetrieebene, bezüglich der beiden Einlasskanäle, erhalten bleibt. Bei weiterer Steigerung der mittleren Strömungsgeschwindigkeit, bildet sich, ab einer

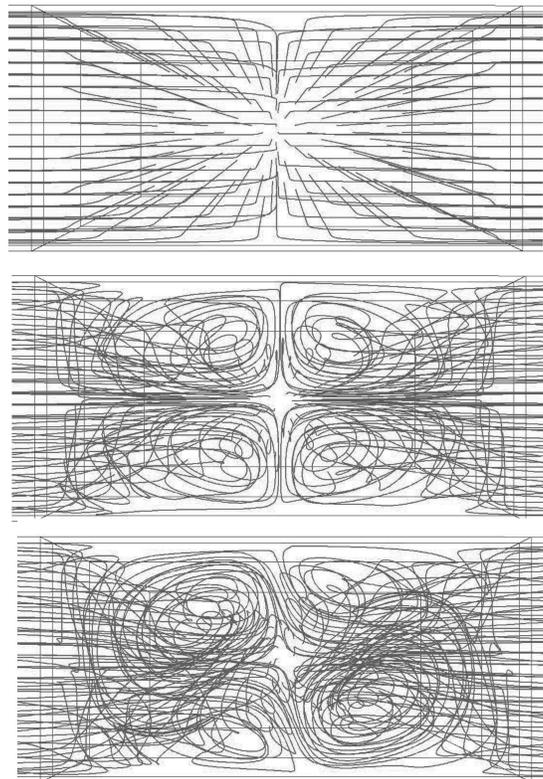


Abbildung 4.5: Stromlinien im Eingang des Mischkanals für drei verschiedene Reynoldszahlen a) $Re = 0, 1$, b) $Re = 119$ und c) $Re = 146$. Die jeweilige Abbildung ist repräsentativ für den jeweiligen Strömungsbereich.

Reynolds-Zahl von 138, die Engulfment-Strömung aus. In diesem dritten Strömungsbereich werden ebenso wie im Vortex-Bereich Doppelwirbel gebildet, doch die Spiegelsymmetrie bezüglich der Einlasskanäle wird nun aufgebrochen. Dadurch gelangen

Fluidelemente auf die gegenüberliegende Seite des Mischkanals, wodurch die beiden Fluidströme verdrillt werden. Durch diese Verdrillung wird zusätzlich Kontaktfläche erzeugt und somit das Potenzial für diffusives Mischen erhöht. Die so entstandene Strömung besitzt lediglich eine Punktsymmetrie (4.5 unten).

Bei einer weiteren Steigerung der Strömungsgeschwindigkeit, über einen Wert von ca. 240 für die Reynolds-Zahl, treten Instationaritäten auf. In nahezu periodischen Zeitabständen lösen sich einzelne Wirbel, die an der Stirnseite der Mischzone entstanden sind und durch den Mischkanal hindurch wandern. Die Wirbel bewirken lokal ein starkes Aufrollen der Kontaktfläche, was zu einer Erhöhung der Mischgüte führt (Abb. 4.12); hinter den Wirbeln dominieren allerdings segregierte Verteilungen. Die erzielten Mischgüten bei diesen Reynolds-Zahlen sind daher zeitlichen Schwankungen unterworfen.

Das Auftreten dreier stationärer Bereiche sowie die Instationaritäten bei höheren Reynolds-Zahlen wurden numerisch ebenfalls von anderen Arbeitsgruppen gefunden. So fand die Arbeitsgruppe Woias der Universität Freiburg die gleichen Übergänge bei ähnlichen Reynolds-Zahlen. Die Arbeiten dort zeigten aber auch, dass diese Übergänge nur für die jeweilige Geometrie Gültigkeit besitzen, d.h. ändert man das Aspektverhältnis des Mischkanals, so finden die Übergänge bei anderen Reynolds-Zahlen statt (Engler et al., 2004; Kockmann et al., 2003). Experimentell wurden diese Übergänge sowie die Nichtübertragbarkeit auf andere Geometrien von der Arbeitsgruppe Rübiger der Universität Bremen nachgewiesen (Vgl. Hoffmann et al., 2003). Unabhängig davon zeigten experimentelle sowie numerische Untersuchungen von Wong (Wong et al., 2004) bei einer vergleichbaren Geometrie sowohl einen Übergang vom Vortex- zum Engulfment Bereich als auch den Übergang zu instationären Strömungsverhalten. Allerdings wird der Engulfment-Bereich erst bei höheren Reynolds-Zahlen erhalten. Die Simulationen von Wong wurden mit FLUENT 6.1 auf einem Gitter mit ca. 173.000 Zellen durchgeführt. Eigene Rechnungen zur Gitterinvarianz bzw. zu Mindestlängen von Ein- und Auslasskanälen (vgl. Kap. 4.1) haben gezeigt, dass ein zu grobes Gitter oder zu kurze Auslasskanäle eine spürbare Dämpfung der Strömung verursachen. Daher sind die Abweichungen zu den hier gefundenen Ergebnissen mit hoher Wahrscheinlichkeit auf die zu geringe Gitterauflösung zurückzuführen.

4.3 Druckverlauf und Energiedissipation

Laminare Strömungen in geraden Kanälen zeigen einen linearen Druckabfall entlang der Hauptströmungsrichtung, wohingegen bei einem T-förmigen Mikromischer, bedingt durch die Umlenkung, ein veränderter Verlauf zu beobachten ist. Abbildung 4.6

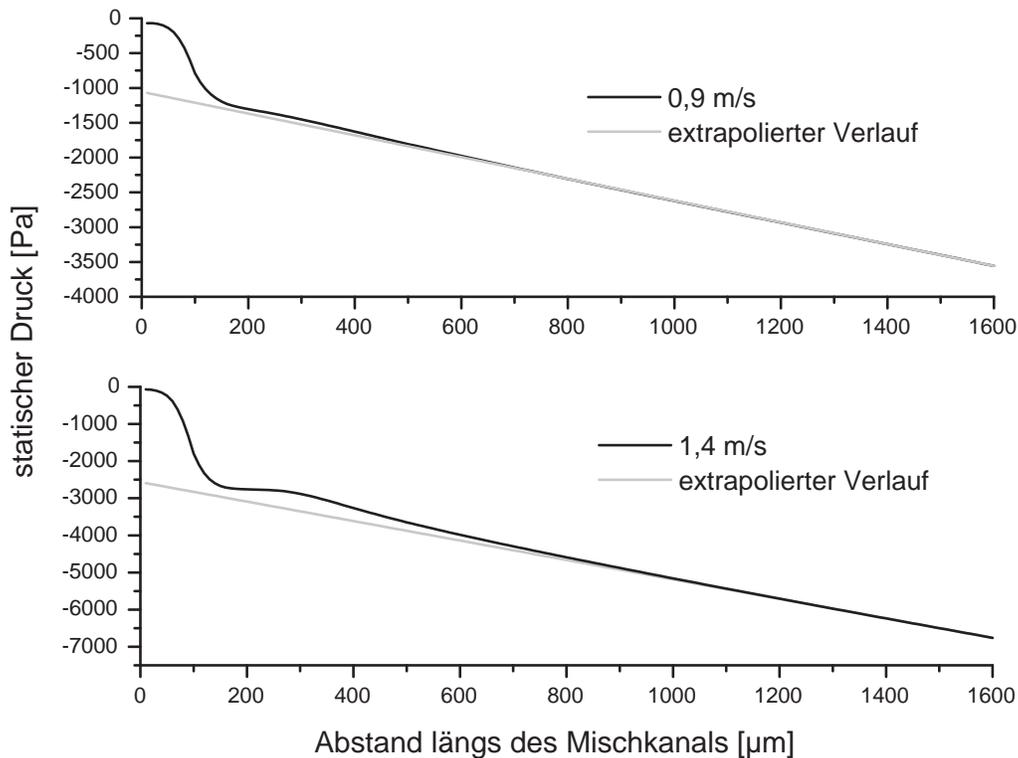


Abbildung 4.6: Querschnittgemittelter Druck entlang des Mischkanals für eine mittlere Strömungsgeschwindigkeit von $0,9 \text{ m/s}$ (oben) und $1,4 \text{ m/s}$ (unten).

zeigt den veränderten Druckverlauf exemplarisch für den Vortex-Bereich (oben) und dem Engulfment-Bereich (unten). In beiden Bereichen ist ein hoher Energieeintrag für die Umlenkung der Strömung in den Mischkanal und den Aufbau der Wirbelstruktur erforderlich, was sich an den verhältnismäßig hohen Druckverlusten auf den ersten ca. $120 \mu\text{m}$ erkennen lässt. Nachfolgend durchläuft der Druck im Engulfment-Bereich ein Plateau, auf dem der statische Druck nahezu konstant bleibt. Dieses Plateau wurde definiert als Ende der Mischzone, da hier der Energieeintrag und somit die Vermi-

schung in Querrichtung nahezu auf Null abgefallen ist. Im Vortex-Bereich ist dieses Plateau nicht oder fast nicht ausgeprägt; es kommt lediglich zur Verlangsamung des Abfalls. Das Ende der Mischzone variiert zwischen 50 und 200 μm hinter dem Eingang in den Mischkanal, je nach Strömungsgeschwindigkeit. Im Anschluss an die Mischzone gehen die Druckverläufe in einen linearen Abfall über, wie es für voll entwickelte Kanalströmungen zu erwarten ist. Die jeweilige graue Linie in Abbildung 4.6 zeigt den linearen Druckabfall, der durch stromaufwärtsgerichtete Extrapolation des Druckes erhalten wurde. Der Unterschied zwischen der linearen Extrapolation und dem rea-

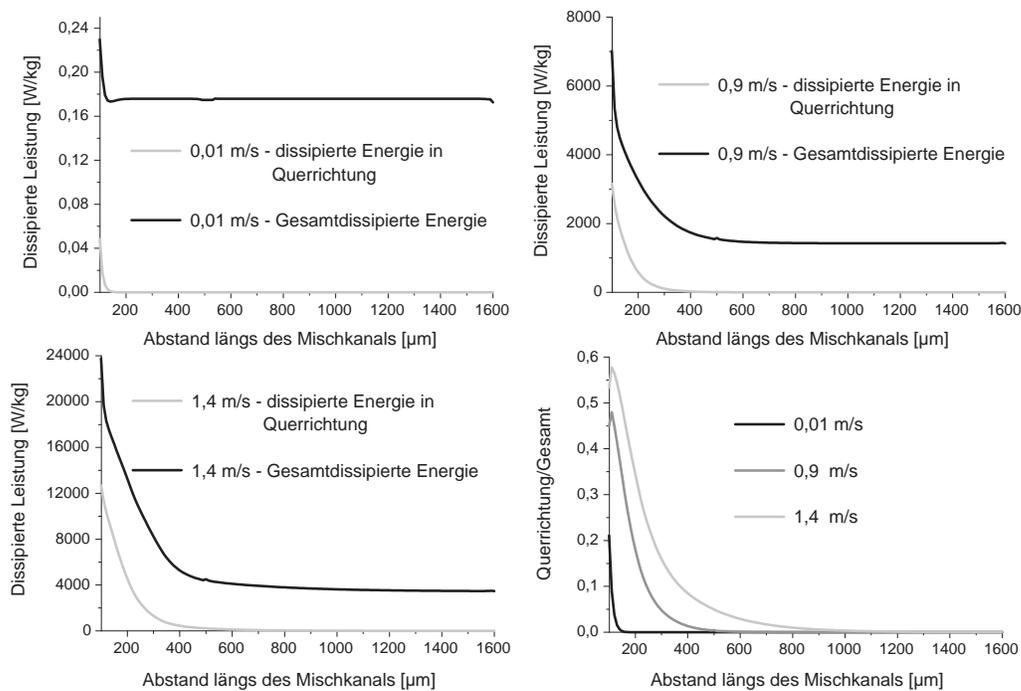


Abbildung 4.7: Raten der gesamten dissipierten Leistung und der in Querrichtung dissipierten Leistung. Verhältnis zwischen gesamter und in Querrichtung dissipierter Leistung (unten rechts).

len Druckabfall ist proportional zur Energiedissipation, die für zusätzliche Relativbewegungen aufgebracht wird. Einen qualitativen Zusammenhang gibt die Integration des Deformationsratentensors über den jeweiligen Querschnitt (Vgl. Kap. 3.11). Aufschluss über die Effizienz, mit der die eingebrachte Energie in Vermischung umgesetzt

wird, gibt eine Analyse des Deformationsratentensors gemäß Gleichung 3.36. Abbildung 4.7 zeigt die Raten mit der die dissipierte Leistung in Quervermischung umge-

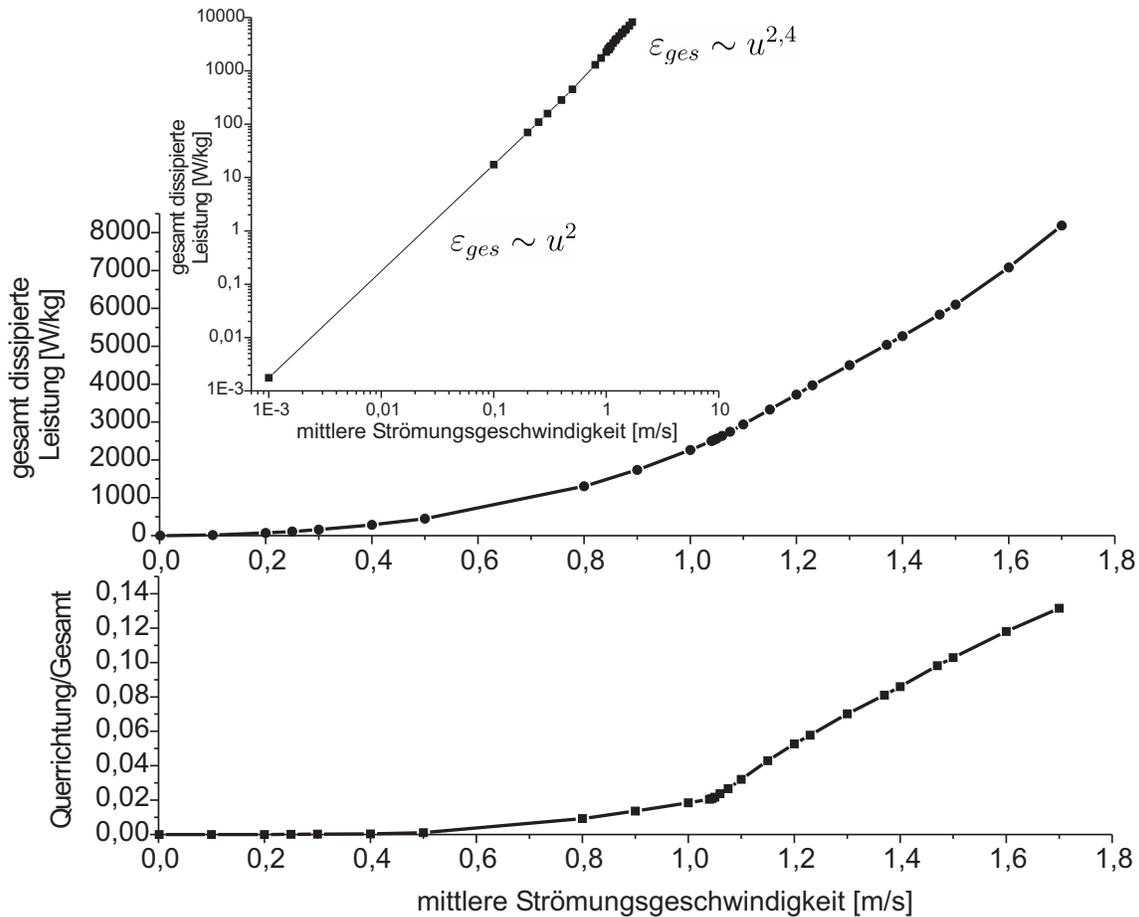


Abbildung 4.8: Rate der gesamten dissipierten Energie (oben) und das Verhältnis zwischen in Querrichtung dissipierter und gesamter dissipierter Energie jeweils für verschiedene Strömungsgeschwindigkeiten auf einem Querschnitt $300 \mu m$ in den Mischkanal hinein. Das kleine obere Diagramm zeigt die gesamte dissipierte Energie in doppeltlogarithmischer Auftragung gegen die mittlere Strömungsgeschwindigkeit.

setzt wird und die gesamt eingebrachte Leistung auf einem Querschnitt für die drei Strömungsbereiche. Unabhängig von der mittleren Strömungsgeschwindigkeit zeigen alle drei Strömungsbereiche einen Anstieg der dissipierten Energie im Bereich der Umlenkung, gefolgt von einem Abklingen bis hin zu einem Wert, der der rein laminaren Rohrströmung entspricht. In Abbildung 4.7 unten rechts ist das Verhältnis von

gesamter und in Querrichtung dissipierter Energie wiedergegeben. Man erkennt, dass für alle drei Strömungsbereiche - streng laminarer, Vortex- und Engulfment-Bereich - im Bereich der Mischzone ein Teil der dissipierten Energie in die Quervermischung geht. Mit zunehmender Strömungsgeschwindigkeit nimmt zum einen der Anteil, der in die Quervermischung geht, zu, zum anderen nimmt zusätzlich noch die Länge der Mischzone und somit die Länge, auf der Energie in die erwünschte Quervermischung geht, zu.

Betrachtet man nun die gesamte dissipierte Energie als Funktion der mittleren Strömungsgeschwindigkeit (Abb. 4.8 oben), so erkennt man, dass mit zunehmender Geschwindigkeit die dissipierte Leistung ebenfalls steigt. Der kleinere Bildausschnitt zeigt den Verlauf in doppelt logarithmischer Auftragung. Man erkennt einen linearen Zusammenhang mit einer Steigung von ca. 2 für die ersten beiden Strömungsbereiche. Dies bedeutet, dass die dissipierte Leistung proportional zum Quadrat der Geschwindigkeit ($\varepsilon_{ges} \sim u^2$) ist. Ab einer mittleren Strömungsgeschwindigkeit von ca. 1,04 m/s (Übergang in den Engulfment-Bereich) ändert sich allerdings die Steigerung auf 2,4, womit sich eine Abhängigkeit von $\varepsilon_{ges} \sim u^{2,4}$ ergibt.

In Abbildung 4.8 unten ist der Anteil der in Querrichtung eingebrachten Leistung zur gesamten eingetragenen Leistung dargestellt. Die Unterteilung in die drei Strömungsbereiche ist hier gut erkennbar. Im streng laminaren Bereich ist der Energieeintrag in Querrichtung vernachlässigbar. Erst mit der Ausbildung einer Sekundärströmung steigt er merklich an. Mit dem Übergang in den Engulfment-Bereich ändert sich die Steigung des Graphen für die in Querrichtung eingetragene Leistung in Abhängigkeit von der Strömungsgeschwindigkeit. Der Anstieg in diesem Bereich ist nahezu linear.

4.4 Tracerexperimente

Die in Kapitel 4.3 durchgeführten Berechnungen zur Energiedissipation liefern einen wichtigen Hinweis, in wie weit eingetragene Leistung in Quervermischung umgesetzt werden kann. Allerdings ist die eingetragene Leistung kein Maß für die erzielte Vermischung. Diese hängt im starken Maß von der lokalen Orientierung der Kontaktfläche zwischen Bereichen mit hoher und niedriger Konzentration ab. Um Abhängigkeiten der erzielbaren Vermischung in Bezug auf einzelne Strömungs- und Geometrieparameter zu erhalten, wurden im Folgenden verschiedene Arten von Tracerexperimenten

durchgeführt.

Als Tracer wurden die Stoffdaten des Fluoreszenzfarbstoffs Rhodamin-B verwendet, der auch in den Validierungsexperimenten eingesetzt wurde. Dieser besitzt eine Diffusivität, der einer Sc-Zahl von 3600 in wässrigen Medien entspricht. Zum einen wurden stationäre Berechnungen für verschiedene Volumenstromverhältnisse, mittlere Strömungsgeschwindigkeiten, Gitter und unterschiedliche Diffusionskoeffizienten durchgeführt. Zum anderen wurden so genannte Sprungmarkierungen vorgenommen. Zusätzlich wurden instationäre Rechnungen für größere Strömungsgeschwindigkeiten ($Re > 240$) durchgeführt.

Zur besseren Lesbarkeit werden die wesentlichen Größen, die zur Charakterisierung der erzielten Vermischung verwendet werden, noch einmal wiederholt.

Es wird das wohleingeführte (statistische) Maß I_M verwendet, welches auf Danckwerts Intensität der Segregation I_S basiert. Es ist durch

$$I_S = \frac{\sigma^2}{\sigma_{max}^2} \quad \sigma^2 = \frac{1}{|V|} \int_V (c - \bar{c})^2 dV \quad (4.1)$$

mit einem sinnvollen σ_{max}^2 (Vgl. Kapitel 2.3.1) gegeben. I_S ist 0 für ein komplett gemischtes und 1 für ein total segregiertes System. Um ein Maß für die Vermischung zu erhalten, wobei 1 dann für ideal gemischt steht, wird die Intensität der Mischung I_M eingeführt, die gegeben ist durch

$$I_M = 1 - \sqrt{I_S}. \quad (4.2)$$

Da eine rein statistische Beurteilung der Vermischung problematisch ist, wird zusätzlich zu I_M das *Potenzial für diffusives Mischen* als weiteres Maß zur Beurteilung der Vermischung benutzt. Das Potenzial für diffusives Mischen Φ ,

$$\Phi = \frac{1}{|V|} \int_V \|\nabla f\| dV, \quad \text{mit } f = c/c_{max} \quad (4.3)$$

ist ein Maß für die Triebkraft eines Konzentrationsfeldes für den diffusiven Ausgleich zwischen verschiedenen konzentrierten Bereichen. Darüber hinaus ergibt Φ in voll segregierten Systemen exakt die spezifische Kontaktfläche wieder. Des Weiteren ist der Kehrwert von Φ eine Länge und kann als mittlerer Abstand zwischen Bereichen hoher und niedriger Konzentrationen verstanden werden. Daher werden in dieser Arbeit, zur Beurteilung der Vermischung, stets beide Kennzahlen, also die Intensität des Mischens und das Potenzial für diffusives Mischen angegeben.

4.4.1 Spezifische Kontaktfläche und Mischgüte am Ende der Mischzone

Die Analyse des Deformationsratentensors (vgl. Kap. 4.3) für verschiedene Geschwindigkeiten hat gezeigt, dass die gewünschte Quervermischung lediglich in der Mischzone stattfindet. Nur in diesem Bereich wird neue Kontaktfläche durch die dort auftretenden

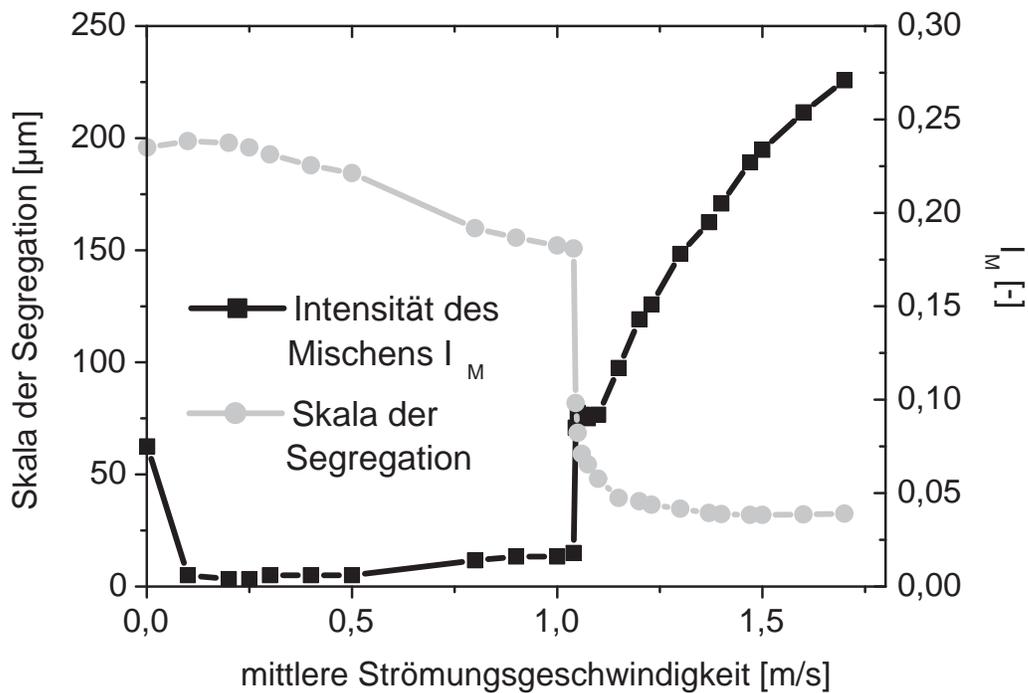


Abbildung 4.9: Skala der Segregation und Intensität des Mischens als Funktion der mittleren Strömungsgeschwindigkeit auf einem Querschnitt $300 \mu\text{m}$ hinter dem Eingang in den Mischkanal.

den Wirbel erzeugt. Daher wird zur Beurteilung des Mischverhaltens die Mischgüte und die Größe der spezifische Kontaktfläche auf einem festen Querschnitt $300 \mu\text{m}$ hinter der Einlassfläche in den Mischkanal untersucht. Diese Entfernung stellt einen Kompromiss dar: Zwar wird für hohe Geschwindigkeiten auf einer Strecke von bis zu $800 \mu\text{m}$ in den Mischkanal hinein Energie in Querrichtung dissipiert, aber der Betrag der Dissipation ist auf ein sehr niedriges Niveau abgesunken, so dass diese näherungs-

weise vernachlässigbar wird.

Der jeweilige Verlauf der Intensität des Mischens sowie der Skala der Segregation (Kehrwert des Potenzials für diffusives Mischen) ist in Abbildung 4.9 dargestellt. Die Intensität des Mischens ist für die ersten beiden Strömungsbereiche, streng laminarer (bis Re 35 - 40) und Vortex-Bereich (bis Re 138), nahezu null. Ab einer mittleren Strömungsgeschwindigkeit von ca. $1,045 \text{ m/s}$, was dem Übergang in den Engulfment-Bereich entspricht, steigt die Intensität des Mischens sprunghaft an. Gleichzeitig fällt die Skala der Segregation (Φ^{-1}) von einem Wert von $160 \mu\text{m}$, was ungefähr der Breite des Mischkanals entspricht, auf einen Wert von unter $50 \mu\text{m}$. Diese starken Änderungen in den Verläufen der Intensität des Mischens und der Skala der Segregation werden hervorgerufen durch das Aufbrechen der Symmetrie im Engulfment-Bereich. Dieses bewirkt ein Übergreifen einzelner Fluidelemente des einen Doppelwirbelpaars in den jeweiligen gegenüberliegenden. Die ausgewerteten Tracerprofile auf den jeweiligen Querschnitten sind in Abbildung 4.10 für die drei Strömungsbereiche dargestellt.

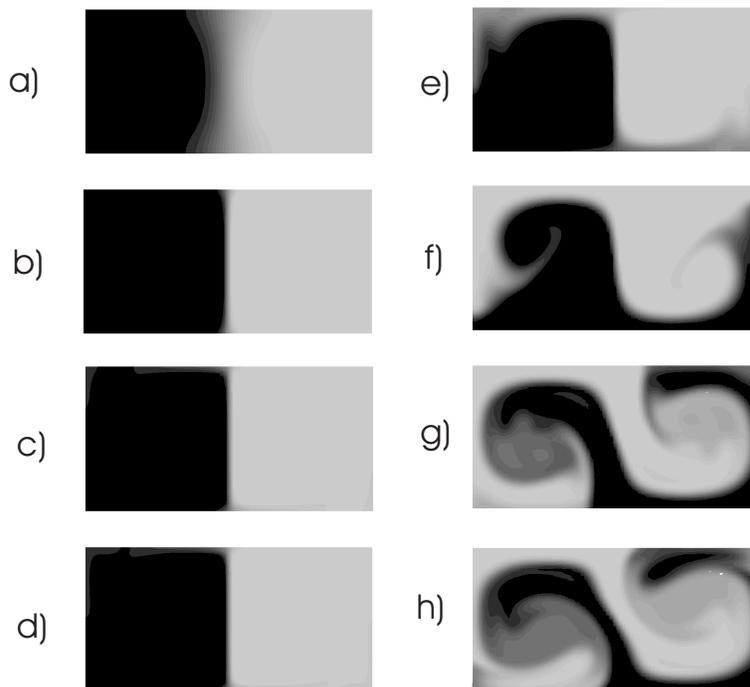


Abbildung 4.10: Tracerprofile auf einem Querschnitt $300 \mu\text{m}$ hinter dem Eingang in den Mischkanal für die drei verschiedenen Strömungsbereiche streng laminar ($a=0,01 \text{ m/s}$, $b=0,1 \text{ m/s}$), Vortex- ($c=0,9 \text{ m/s}$, $d=1,04 \text{ m/s}$) und Engulfment-Bereich ($e=1,045 \text{ m/s}$, $f=1,2 \text{ m/s}$, $g=1,4 \text{ m/s}$, $h=1,7 \text{ m/s}$).

Deutlich zu erkennen ist die Veränderung bzw. die Vergrößerung der Kontaktfläche bei Änderung der mittleren Strömungsgeschwindigkeit. In Abbildung 4.10 a und b sind die Profile für den streng laminaren Bereich dargestellt. Man erkennt ein deutliches Schärferwerden der Kontaktfläche mit zunehmender Geschwindigkeit. Bei sehr kleinen Geschwindigkeiten ($\bar{u} \ll 0,1 \text{ m/s}$) steht der Diffusion mehr Zeit für den diffusiven Ausgleich zur Verfügung und somit können Gradienten teilweise abgebaut werden. Mit steigender mittlerer Strömungsgeschwindigkeit sinkt die hydrodynamische Verweilzeit wodurch die Zeit, die die Diffusion benötigt, nicht mehr ausreicht, um Gradienten abzubauen. Dadurch kann das Absinken der Intensität des Mischens mit zunehmender Strömungsgeschwindigkeit im streng laminaren Bereich gut erklärt werden. Der Vortex-Bereich (Abb. c und d) zeigt ähnliche Tracerprofile wie der streng laminare Bereich, jedoch ist in diesem Bereich zu beachten, dass die Intensität der Mischung mit zunehmender Geschwindigkeit steigt. Dieser Unterschied, obgleich die Tracerverteilungen in beiden Fällen aus zwei voll segregierten Bereichen bestehen, liegt an den unterschiedlichen Strömungsformen. Im streng laminaren Bereich existiert keine Sekundärströmung, d.h. die Geschwindigkeiten an der Kontaktfläche zeigen nur in die Hauptströmungsrichtung. Im Vortex-Bereich, einem Bereich mit einer ausgebildeten Sekundärströmung, gibt es direkt an der Kontaktfläche zusätzlich noch Geschwindigkeitskomponenten, die senkrecht zu der Hauptströmungsrichtung, also in Querschnittsrichtung, liegen. Durch diese Strömungsform wird die Kontaktfläche von der Kanalmitte ausgehend ständig erneuert, und der Stofftransport über die Kontaktfläche hinaus wird mit zunehmender Geschwindigkeit begünstigt (Abb. 4.10 c, d). Im Engulfment-Bereich (Abb. 4.10 e-h) ist diese Sekundärströmung zusätzlich durch ein Übergreifen der Doppelwirbel ineinander überlagert. Man erkennt bei Steigerung der mittleren Strömungsgeschwindigkeit über $1,04 \text{ m/s}$ hinaus eine Ausbildung zweier stationärer Wirbel, die Bereiche unterschiedlicher Konzentration ineinander aufrollen (Abb. 4.11). Dies bedingt eine zunehmende Vergrößerung der Kontaktfläche. Dadurch sinkt zwar mit zunehmender Geschwindigkeit die hydrodynamische Verweilzeit und somit auch die Zeit, die die Diffusion zum Ausgleich von Gradienten zur Verfügung hat, jedoch steigt die Intensität des Mischens in diesem Bereich durch die starke Zunahme der spezifischen Kontaktfläche, was die Grundlage für effektives Sekundärströmungsmischen bildet.

Die zunehmende Verschmierung (4.10 g, h) wird durch den Abbau feinsten Skalen

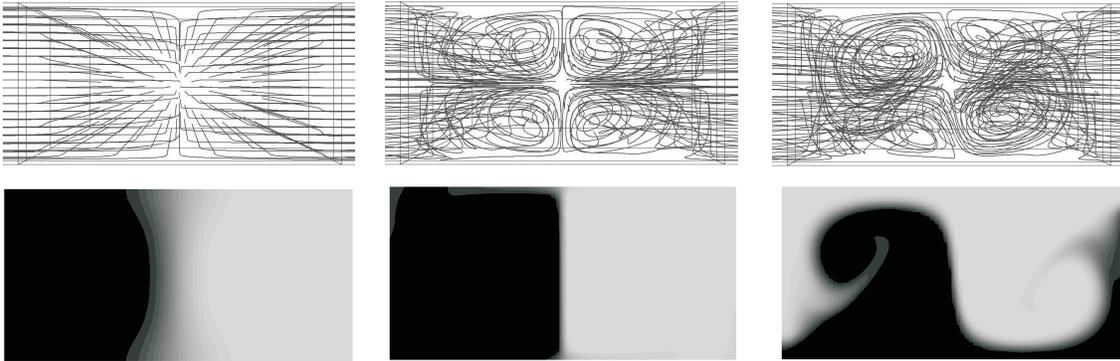


Abbildung 4.11: In den Mischkanal führende Stromlinien (oben) bei $0,01 \text{ m/s}$ (links), $0,9 \text{ m/s}$ (Mitte) und $1,1 \text{ m/s}$ (rechts) und die daraus resultierenden Tracerprofile (unten).

hervorgerufen. Das hat allerdings zwei Gründe, zum einen physikalische und zum anderen unphysikalische (numerische) Gründe. Bedingt durch die nicht vollständige Auflösung der feinsten Skalen (Vgl. Kap. 4.1.2) kommt es zur Berechnung eines zu großen diffusiven Stroms über Zellflächen hinaus (numerische Diffusion).

Bei einer weiteren Steigerung der mittleren Strömungsgeschwindigkeit über einen Wert von $1,8 \text{ m/s}$ ($Re \approx 240$) hinaus kommt es durch das Auftreten von instationären Wirbelablösungen am oberen Kopf des Mischkanals zu einem zeitlich schwankenden Mischverhalten. Dabei wandern laminare Wirbel in nahezu periodischen Zeitabständen durch den Mischkanal und bewirken so Schwankungen der Mischcharakteristika. In Abbildung 4.12 sind diese zeitlichen Schwankungen des Potentials für diffusives Mischen (oben), für die Intensität des Mischens (Mitte) und die in Querrichtung eingetragene dissipierte Leistung (unten) angegeben. Bei jedem Durchlauf eines Wirbels steigt die eingetragene dissipierte Leistung an, wobei jeweils das Maximum des Eintrags exakt mit dem Durchlauf des Wirbels durch die Kontrollschicht zusammenfällt. Durch den Energieeintrag in Querrichtung werden bestehende Strukturen stärker aufgerollt und das Potenzial für diffusives Mischen steigt. Der Abbau der so erzeugten Skalen findet nachfolgend in der Wirbelschleppe statt. Daher steigt die Intensität des Mischens nach dem Passieren des Wirbels bis zu einem Maximalwert an. Das erneute Absinken der Mischgüte ist dadurch zu erklären, dass der nächste Wirbel die Kontrollschicht passiert und somit wiederum segregierte Bereiche, die innerhalb des Wirbels mitgeführt werden, stark aufgerollt werden und dadurch wiederum das

Potenzial für diffusives Mischen steigt.

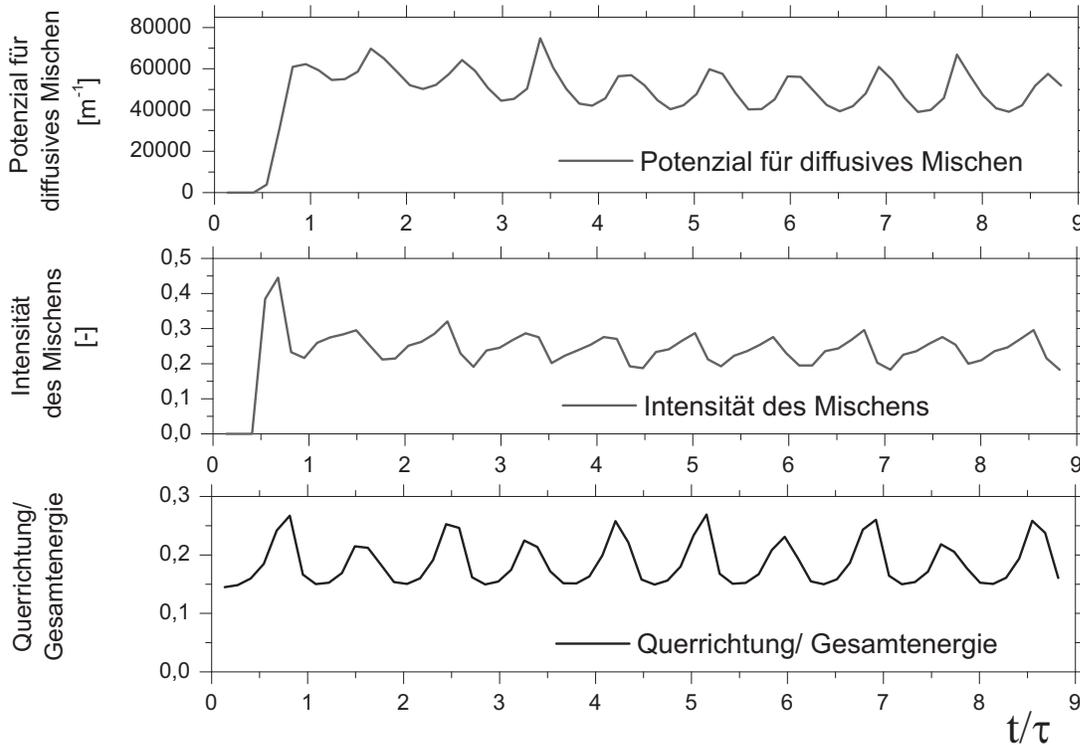


Abbildung 4.12: Potenzial für diffusives Mischen (oben), Intensität des Mischens (Mitte) und der Anteil der in Querrichtung eingebrachten Leistung (unten) auf einem Querschnitt $300 \mu m$ in den Mischkanal hinein (unten) zu verschiedenen Zeitpunkten einer instationären Rechnung bei $Re = 267$.

4.4.2 Spezifische Kontaktfläche und Mischgüte entlang des Mischkanals

In den vorherigen beiden Kapiteln wurde der Energieeintrag in Querrichtung untersucht, der eine notwendige Voraussetzung zum Aufbau von zusätzlicher Kontaktfläche auf Querschnitten längs des Mischkanals ist. Es hat sich gezeigt, dass bei steigender mittlerer Strömungsgeschwindigkeit der relative, prozentuale Leistungseintrag für die Quervermischung steigt und die Länge, auf der dies geschieht, im gleichen Maße zunimmt. Des Weiteren wurde der Zuwachs an Kontaktfläche bzw. der Mischgüte an einem festen Querschnitt im Mischkanal für verschiedene Geschwindigkeiten analysiert.

Um die Mechanismen zu erkennen, die bei den verschiedenen Strömungsgeschwindigkeiten zu den unterschiedlichen Mischcharakteristika führen, ist es notwendig, auch den Verlauf der spezifischen Kontaktfläche bzw. der Intensität des Mischens auf Querschnitten entlang des Mischkanals zu analysieren. Eine zusätzliche Generierung von Kontaktfläche findet in den ersten beiden Strömungsbereichen (streng laminar und Vortex-Bereich) nicht statt. Die durch die beiden Einlasskanäle erzeugte Kontaktfläche von $100 \mu m$ bleibt weitestgehend erhalten. Im streng laminaren Bereich fällt dieser Wert, bedingt durch den diffusiven Abbau der Gradienten an der Kontaktfläche, über die Länge des Mischkanals leicht ab. Im Vortex-Bereich hingegen nimmt die spezifische Kontaktfläche leicht zu, weil durch die Sekundärströmung Spezies an der Wand des Kanals auf die jeweils andere Seite transportiert wird (Abb. 4.10 c, d). Um auf einem kurzen Bereich eine gute Vermischung zu erzielen, sind daher diese beiden Bereiche nicht geeignet. Anders verhält es sich allerdings im dritten Strömungsbereich, dem Engulfment-Bereich. In Abbildung 4.13 ist für drei unterschiedliche Strömungsgeschwindigkeiten im Engulfment-Bereich der Verlauf der spezifischen Kontaktfläche bzw. dessen Projektion auf den Kanalquerschnitt sowie die in Querrichtung eingetragene Energie, bezogen auf die gesamt dissipierte Energie, entlang des Mischkanals dargestellt. Ungeachtet der mittleren Geschwindigkeit steigt die spezifische Kontaktfläche auf den ersten Mikrometern im Mischkanal bedingt durch das Ineinandergreifen der beiden Doppelwirbelpaare und damit des Leistungseintrages in Querrichtung stark an. Bei einer mittleren Strömungsgeschwindigkeit von $1,045 m/s$ (Beginn des Engulfment-Bereichs) wird, weil das Übergreifen nicht stark ausgebildet ist, nur wenig neue, zusätzliche Kontaktfläche erzeugt (Abb. 4.14 links). Zwar wird Energie in Querschnittsrichtung auf einer Länge von ca. $500 \mu m$ längs des Mischkanals dissipiert (Abb. 4.13 unten), doch ist die zusätzlich entstandene Kontaktfläche lediglich an den Kanalwänden lokalisiert. Dadurch kann diese nicht durch die Wirbel weiter aufgerollt und somit zusätzlich vergrößert werden.

Im Gegensatz dazu wird bei den höheren Geschwindigkeiten ($1,4 m/s$ und $1,7 m/s$) sehr viel mehr Kontaktfläche erzeugt. Bei diesen Geschwindigkeiten ist das Ineinandergreifen der beiden Wirbelpaare bzw. die Engulfment-Strömung sehr viel stärker ausgebildet. Da zusätzlich schon am Anfang der Mischzone die Projektion der Kontaktfläche fast diagonal vorliegt, gerät diese genau in den Wirkungsbereich der beiden Wirbelpaare. Daraus resultiert ein sehr viel schnelleres und effektiveres ineinan-

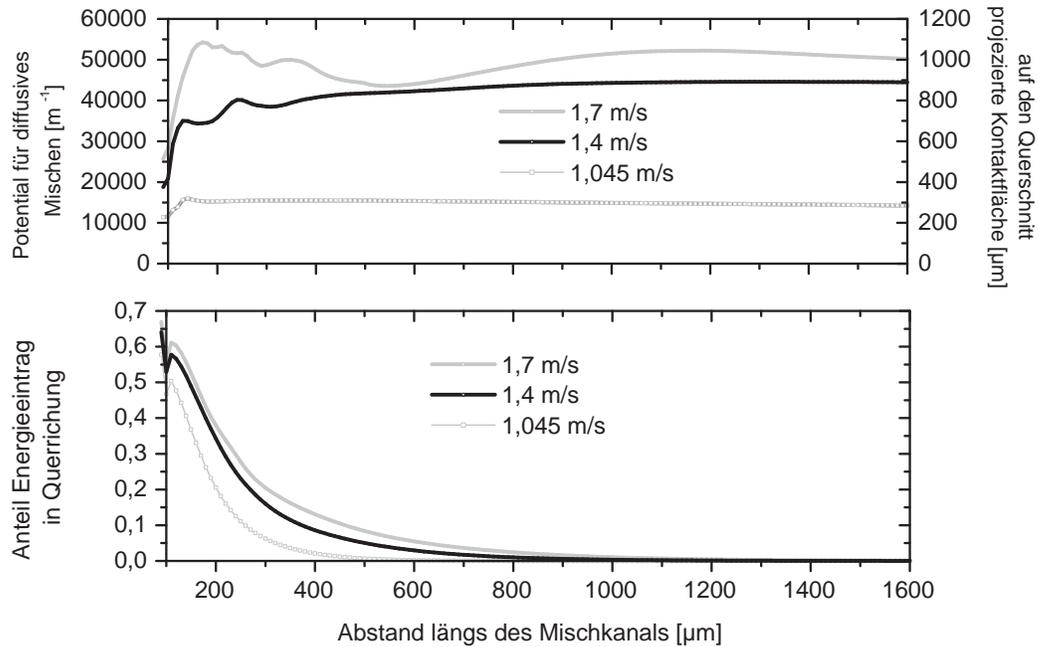


Abbildung 4.13: Potenzial für diffusives Mischen und die auf den Querschnitt projizierte Kontaktfläche in Abhängigkeit zum Abstand längs des Mischkanals für drei verschiedene Strömungsgeschwindigkeiten (oben) und die in Querrichtung dissipierte Energie für die jeweiligen Geschwindigkeiten (unten).

der Aufrollen von Bereichen hoher und niedriger Konzentration. Bei einer mittleren Strömungsgeschwindigkeit von $1,4 \text{ m/s}$ steigt das Potenzial für diffusives Mischen auf den ersten 100 μm auf über 35.000 m^{-1} , was ungefähr dem 7fachen des Wertes der reinen Vortex-Strömung entspricht. Bei Projektion der spezifischen Kontaktfläche auf den Kanalquerschnitt ergibt sich daraus eine Länge von über 700 μm . Die spezifische Kontaktfläche wird bei dieser Strömungsgeschwindigkeit von $1,4 \text{ m/s}$, bedingt durch den Energieeintrag in diesem Bereich, auf einer Länge von ca. 800 μm längs des Mischkanals vergrößert. Gleichzeitig werden die entstandenen Gradienten durch diffusive Transportprozesse abgebaut. Da allerdings die entstandenen Schichtdicken diffusiv in kürzester Zeit noch nicht überbrückt werden können, fällt der Wert für

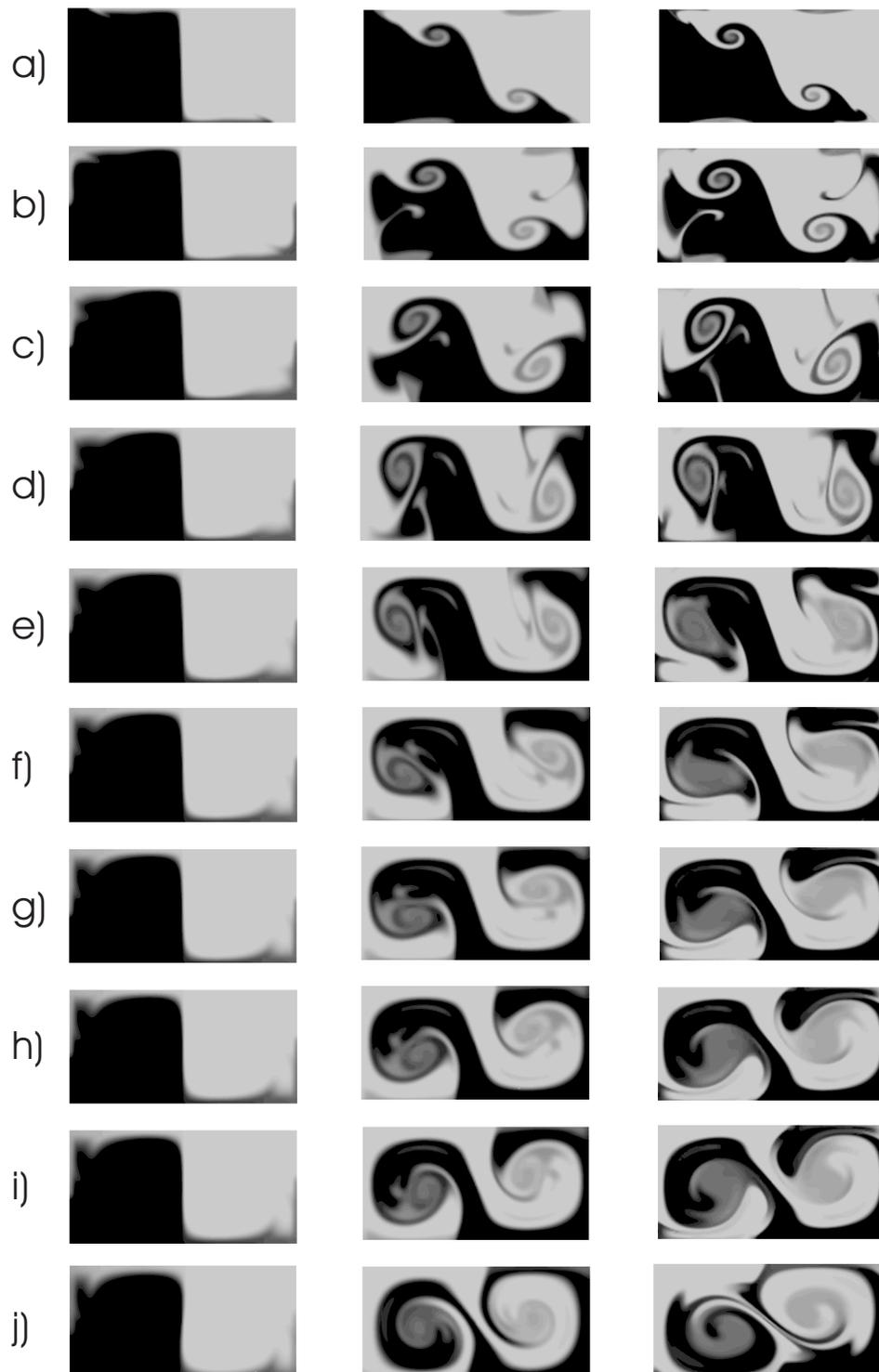


Abbildung 4.14: Tracerprofile für drei unterschiedliche mittlere Strömungsgeschwindigkeiten: $1,045 \text{ m/s}$ (links), $1,4 \text{ m/s}$ (Mitte) und $1,7 \text{ m/s}$ (rechts) auf Querschnitten im Abstand von jeweils $50 \mu\text{m}$ beginnend am Eingang in den Mischkanal (a - i) und am Ausgang des Mischkanal (j).

das Potenzial für diffusives Mischen im vorderen Bereich des Mischkanals nicht ab. Erst nachdem keine zusätzliche Kontaktfläche mehr erzeugt wird (ab ca. $1.000 \mu m$ hinter dem Eintritt in den Mischkanal), beginnt der Wert der spezifischen Kontaktfläche zu sinken.

Anders verhält es sich bei einer mittleren Geschwindigkeit von $1,7 m/s$. Im Gegensatz zu $1,4 m/s$ entstehen bei dieser mittleren Strömungsgeschwindigkeit sehr viel feinere Skalen, die schon im Anfang des Mischkanals diffusiv ausgeglichen werden können (Abb. 4.14 d, e (rechts)). Auf den ersten $100 \mu m$ steigt hier die spezifische Kontaktfläche auf über $55.000 m^{-1}$ - dem 11fachen des Wertes der reinen Vortex-Strömung - fällt dann aber wieder nach wenigen $100 \mu m$ auf einen Wert von ca. $45.000 m^{-1}$ ab. Dadurch entsteht längs des Mischkanals, bei ca. $600 \mu m$, ein Minimum der spezifischen Kontaktfläche, weil hier die Gradienten schon ausgeglichen wurden. Da aber weiterhin noch Energie in die Quervermischung eingetragen wird, werden die vorhandenen Strukturen weiter aufgerollt. Dies führt dann wieder zu einer Steigerung der spezifischen Kontaktfläche. Allerdings sind nun die Skalen (Abb. 4.14h (rechts) im Gegensatz zu 4.14d (rechts)) gröber und können deshalb erst später komplett diffusiv homogenisiert werden.

Im gleichen Maße, wie bei den drei Geschwindigkeiten spezifische Kontaktfläche neu erzeugt wird, wird, bedingt durch den diffusiven Stofftransport, die Intensität des Mischens gesteigert (Abb. 4.15). Da im Fall der kleinen Geschwindigkeit nur relativ wenig neue Kontaktfläche erzeugt wird, steigt die Intensität des Mischens auf den ersten ca. $300 \mu m$ lediglich auf ca. $0,05$ an. Bei höheren Strömungsgeschwindigkeiten wird sehr viel mehr Kontaktfläche erzeugt, allerdings sinkt die hydrodynamische Verweilzeit. Der Stofftransport per Diffusion ist absolut zum einen umso größer, desto mehr Kontaktfläche vorliegt und zum anderen umso größer, je mehr Zeit für den diffusiven Ausgleich zur Verfügung steht. Im Falle der Engulfment-Strömung überwiegt der Effekt der stark vergrößerten Kontaktfläche. Bei den höheren Geschwindigkeiten steigt daher die Intensität des Mischens in den Bereichen, in denen viel neue Kontaktfläche erzeugt wird (bis ca. $600 \mu m$ in den Mischkanal hinein) sehr stark an. Nachfolgend werden dann die erzeugten Gradienten diffusiv abgebaut und da keine neue zusätzliche Kontaktfläche erzeugt wird, steigt die Intensität des Mischens ab der Mischzone nur noch langsam an.

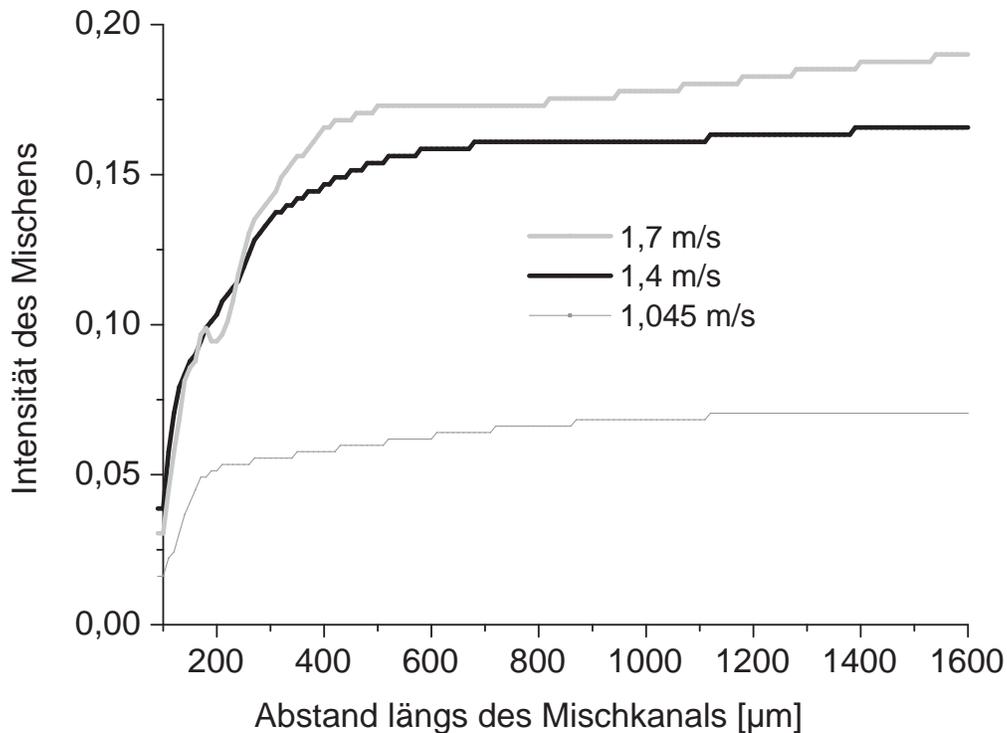


Abbildung 4.15: Verlauf der Intensität des Mischens für drei verschiedene Geschwindigkeiten längs des Mischkanals.

4.4.3 Diffusivität des Tracers

Zur Untersuchung der Abhängigkeit der Strukturen bzw. von erzeugten Skalen wurden im Folgenden Rechnungen auf verschiedenen Gittern bei unterschiedlichen Schmidt-Zahlen durchgeführt. Die Schmidt-Zahlen wurden in einem Bereich von 1, was für Flüssigkeiten ein eher „akademischer“ Wert ist, bis hin zu 3600, der Schmidt-Zahl des auch experimentell benutzten Farbstoffes Rhodamin-B, variiert. Die verwendeten Gitter wurden im Eingangsbereich des Mischkanals bis hin zu einem Abstand von ca. 500 μm in den Mischkanal hinein sukzessive verfeinert. In Abbildung 4.16 sind für diese Rechnungen die Verläufe des Potenzials für diffusives Mischen gegen den Logarithmus der Schmidt-Zahl aufgetragen. In diesem Diagramm kann man nochmals die in Kapitel 4.1 angesprochene Problematik der numerischen Diffusion erkennen.

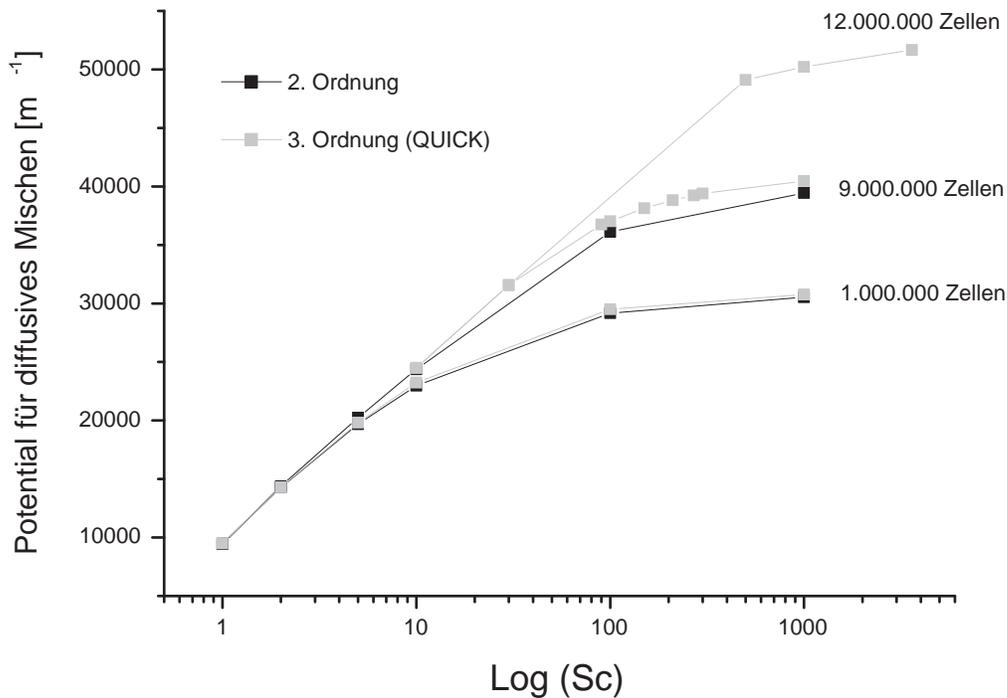


Abbildung 4.16: Potenzial für diffusives Mischen als Funktion der Schmidt-Zahl für ein unterschiedlich aufgelöstes Rechengebiet bei unterschiedlichen Diskretisierungsschemata.

Bei sehr niedrigen Schmidt-Zahlen, d.h. bei sehr großen Diffusionskoeffizienten, werden die Skalen auch bei groben Gitterauflösungen mit einer Zellbreite von $2,5 \mu m$ (ca. 1.000.000 Zellen) voll aufgelöst. Bei realistischeren Schmidt-Zahlen, in Bereichen von mehreren Hundert, reichen grobere Gitter, auch bei Verwendung von höheren Ordnungen für die Diskretisierung, nicht mehr aus. Daher ist es in diesen Fällen erforderlich, das Gitter lokal zu verfeinern.

Integrale Skalen

In Abbildung 4.16 ist zu erkennen, dass für sehr hohe Gitterauflösungen das Potenzial für diffusives Mischen einen linearen Zusammenhang mit dem Logarithmus der Schmidt-Zahl besitzt. Bis zu einer Schmidt-Zahl von 30 ist das 9 Millionen Zellengitter, mit einer Zellbreite von $1,25 \mu m$, ausreichend, um die entstehenden integralen

Skalen aufzulösen. Das Potenzial für diffusives Mischen für eine Schmidt-Zahl von 500 (oberster Punkt in Abbildung 4.17) wurde auf einem Gitter mit ca. 18 Millionen Zellen berechnet, welches lokal bis hinunter zu $0,3 \mu\text{m}$ verfeinert wurde. Die Ausgleichsgerade, die durch die Punkte gelegt wurde (graue Linie), beschreibt in sehr guter Näherung das Verhalten des Potenzials.

Das Potenzial für diffusives Mischen gibt die spezifische Kontaktfläche wieder, es ist allerdings nur exakt gültig in voll segregierten Systemen. Der Kehrwert der spezifischen Kontaktfläche hat die Einheit einer Länge und ist ein Maß für den mittleren Abstand von Bereichen hoher und niedriger Konzentration (Vgl. Kap. 2.3.2). Bei diesem mittleren Abstand handelt es sich um eine integrale Skala, d.h., dass diese den gesamten Querschnitt erfasst. Dabei werden zum einen Bereiche großer Längenskalen, die zwischen den beiden sich aufrollenden Wirbeln auftreten und zum anderen sehr feine Skalen im Zentrum der aufrollenden Wirbel gemittelt.

Aus der so erhaltenen linearen Beziehung wurden für verschiedene Reynolds-Zahlen und verschiedene Querschnitte die Faktoren des linearen Zusammenhangs bestimmt. Daraus wurde folgende Beziehung für eine integrale Längenskala der Konzentration

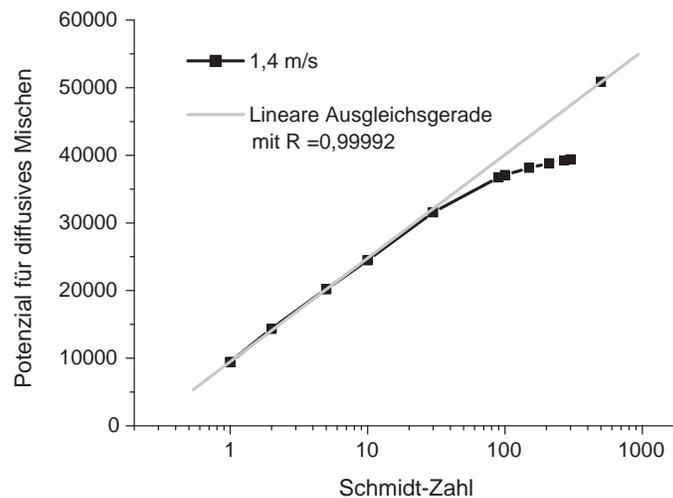


Abbildung 4.17: Potenzial für diffusives Mischen versus dem Logarithmus der Schmidt-Zahl (schwarz) bei einer mittleren Strömungsgeschwindigkeit von $1,4 \text{ m/s}$ auf einem Querschnitt $300 \mu\text{m}$ in den Mischkanal hinein. Lineare Ausgleichsgerade für die gegebenen Punkte (grau).

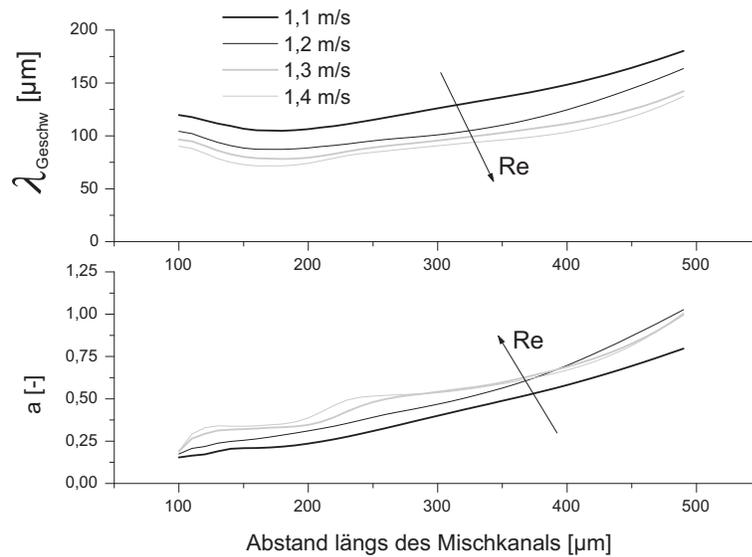


Abbildung 4.18: Längenskala aus dem Geschwindigkeitsfeld (oben) und der Proportionalitätsfaktor a (unten) für verschiedene Geschwindigkeiten entlang des Mischkanals.

erhalten

$$\lambda_{Konz} = \frac{\lambda_{Geschw}}{1 + a \ln Sc} \quad (4.4)$$

mit λ_{Geschw} (Längenskala aus dem Geschwindigkeitsfeld) und einem Vorfaktor a . Die Längenskala des Geschwindigkeitsfeldes und der Vorfaktor sind Funktionen der Reynolds-Zahl sowie eine Funktion des Abstandes im Mischkanal (Abb. 4.18).

Feinste Skalen

Im vorherigen Kapitel wurden die Zusammenhänge untersucht, die sich bei der Untersuchung von integralen, also gemittelten Skalen ergeben. Dabei wurde ein linearer Zusammenhang von spezifischer Kontaktfläche und dem Logarithmus der Schmidt-Zahl gefunden. Um zu prüfen, ob ein solcher Zusammenhang für die stationäre Engulfment-Strömung auch für die feinsten Skalen zutrifft, wurden dahingehend verschiedene Reynolds-Zahlen und verschiedene Querschnitte längs des Reaktors untersucht. Zu diesem Zweck wurde das Konzentrationsprofil eines Querschnitts in einem „Post-Processing“ Schritt in Mathematica eingelesen. Zur Untersuchung der auftretenden Skalen wurden dann Bereiche ausgewählt, durch die ein einzelner Streifen der Konzentration ging (Abb. 4.19). Diese Position wurde dann nachfolgend für verschiedene

Schmidt-Zahlen analysiert.

Um automatisch und effizient die entstehenden Skalen zu bestimmen, wurden die jeweiligen Schichtdicken in folgender Weise ermittelt. Stellt man sich die durch das Kontrollgebiet laufende Schicht als Fläche vor, so kann der Flächeninhalt durch Multiplikation von Seitenlänge und Schichtdicke erhalten werden. Das Potenzial für diffusives Mischen ergibt, multipliziert mit der Gesamtfläche, die Länge der enthaltenen Kontaktfläche. Ermittelt man daher diese auf dem Kontrollbereich und teilt durch 2, so erhält man die Seitenlänge der durchgehenden Schicht. Um die Fläche zu ermitteln, wurden die enthaltenen Konzentrationen über den Bereich integriert. Um nun die Schichtdicke zu erhalten, teilt man die Fläche durch die Seitenlänge

$$d = \frac{1}{2} \frac{\int_A f dA}{\int_A \|\nabla f\| dA} \quad \text{mit} \quad f = c/c_{max}. \quad (4.5)$$

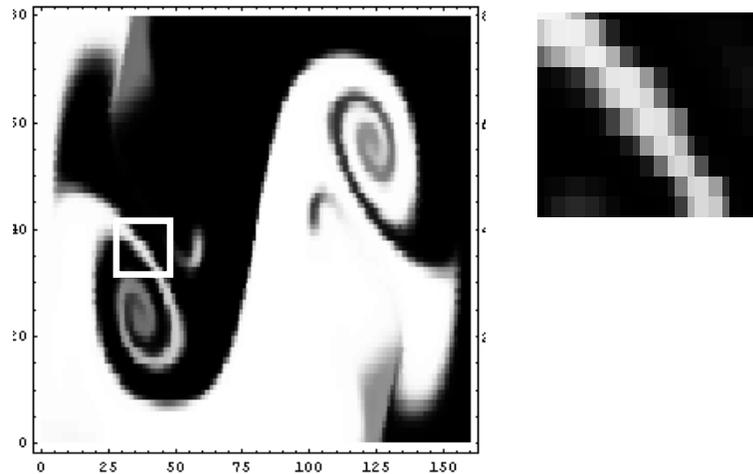


Abbildung 4.19: Darstellung der in Mathematica eingelesenen Konzentrationsverteilung bei einer Reynolds-Zahl von 186 auf einem Querschnitt $300 \mu m$ in den Mischkanal hinein (links). Die Skalierung der Abbildung gibt die jeweilige Zellschicht an. Zusätzlich ist ein Kontrollbereich angegeben (rechts), auf dem die feinsten Skalen in Abhängigkeit der Schmidt-Zahl ausgewertet wurde.

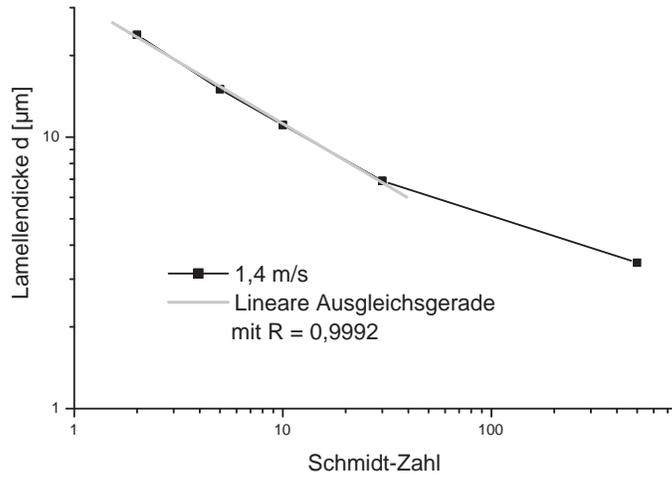


Abbildung 4.20: Verlauf der feinsten Skalen als Funktion der Schmidt-Zahl (schwarz) und ein linearer Ausgleich (grau).

Die so erhaltenen Werte der Schichtdicke in Abhängigkeit zur Schmidt-Zahl wurden in doppeltlogarithmischer Form (Vgl. 4.20) gegeneinander aufgetragen. Man erhält einen linearen Abfall mit einer ungefähren Steigung von $-1/2$. Dies bedeutet, dass die entstehende Schichtdicke proportional zu $1/\sqrt{Sc}$ ist.

Diese Abhängigkeit ist bereits im Zusammenhang mit turbulenten Strömungen wohl bekannt. Sie gibt den Zusammenhang zwischen den feinsten Skalen einer Spezies, ausgedrückt durch die Batchelor-Längenskala als Funktion der Kolmogorov-Längenskala und der Schmidt-Zahl zu

$$\lambda_B = \frac{\lambda_K}{\sqrt{Sc}} \quad (4.6)$$

Diese Beziehung, die für turbulente Strömungen gilt und - wie hier gezeigt - auch für feinsten Skalen in der laminaren Engulfment-Strömung Gültigkeit besitzen, kann mit Hilfe eines Vergleiches von Zeitskalen der beteiligten Teilprozesse erhalten werden.

Feinste Skalen in einer Strömung entstehen durch ein Gleichgewicht von durch Konvektion hintransportierter und diffusiv abtransportierter Spezies. Die entsprechenden Zeitskalen sind

$$\tau_D = \frac{\lambda_D^2}{D} \quad \text{und} \quad \tau_{Konv} = \frac{\lambda_{Geschw}^2}{\nu}. \quad (4.7)$$

Die Skalen der Konzentrationsfelder können nicht feiner als in Gleichung 4.6 angegeben werden, da sie sonst diffusiv schneller abgebaut als konvektiv erzeugt werden.

4.4.4 Verweilzeitverhalten

Numerische Simulationen wurden durchgeführt, um das Verweilzeitverhalten im T-förmigen Mikroreaktor zu untersuchen. Dabei war eine zentrale Frage, ob durch die auftretenden Sekundärströmungen Dispersion verringert werden kann. Im Allgemeinen führen Dispersionsprozesse, also Vermischungen in Hauptströmungsrichtung, zu einer Verbreiterung des Verweilzeitpektrums. Die somit stark unterschiedlichen Verweilzeiten einzelner Fluidelemente haben einen negativen Einfluss auf Selektivitäten durchzuführender Reaktionssysteme.

Bei den hier untersuchten Strömungen, mit Reynolds-Zahlen < 240 handelt es sich ausschließlich um laminare Strömungen. Daher ist zu erwarten, dass die erhaltenen Häufigkeitsverteilungen Ähnlichkeiten zu der des idealen laminaren Strömungsrohres besitzen.

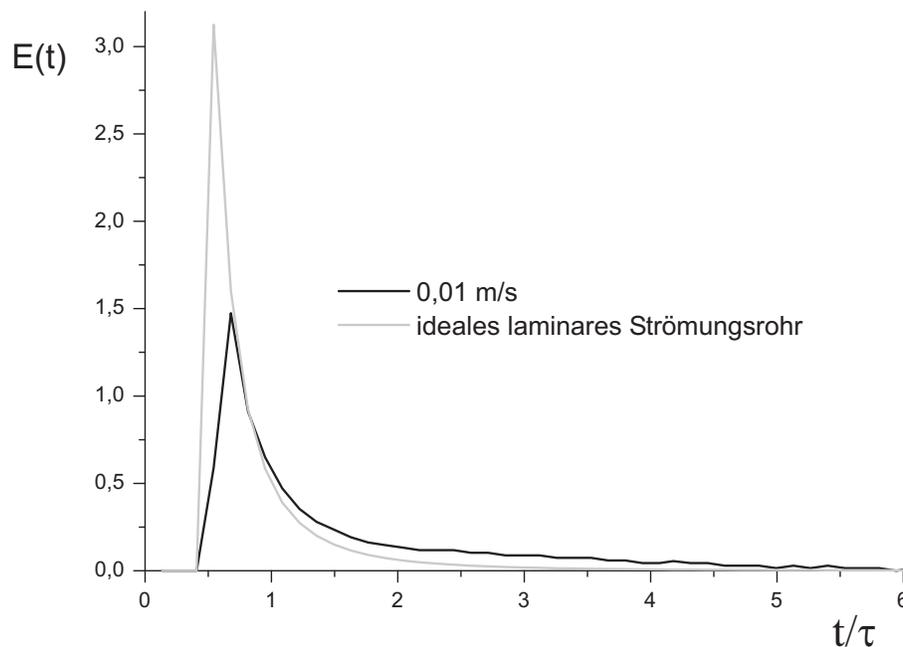


Abbildung 4.21: Häufigkeitsverteilung einer Stoßmarkierung eines idealen, laminaren Strömungsrohres und die des T-förmigen Mikromischers bei einer Reynolds-Zahl von 1,3.

Da allerdings die analytische Lösung der Verweilzeitverteilung des laminaren Rohres (Denbigh und Turner, 1971) als Grundlage die Strömung durch ein Rohr ohne Umlenkung mit einem kreisförmigen Querschnitt hat, kann diese Lösung nicht direkt mit den hier erzeugten Ergebnissen verglichen werden.

Um eine Vergleichbarkeit der Ergebnisse mit denen einer streng laminaren Strömung zu erhalten, wurde ein Verweilzeitspektrum für den T-Mikromischer im streng laminaren Bereich aufgenommen. Bei einer Reynolds-Zahl von 1,3, welche einer mittleren Strömungsgeschwindigkeit von $0,01 \text{ m/s}$ entspricht, treten keinerlei Sekundärströmungen auf. Die beiden Einlassströme fließen hier Seite an Seite in den Mischkanal hinein und sind daher vergleichbar mit der Strömung des idealen laminaren Strömungsrohres. Abbildung 4.21 zeigt die Verläufe der Verweilzeitverteilung für das laminare Strömungsrohr und das Antwortsignal einer Stoßmarkierung im T-Mikromischer bei $Re = 1,3$. Man erkennt, dass durch die Umlenkung und den nun nicht mehr kreisförmigen Querschnitt das Verweilzeitspektrum stark geändert wird. Zwar steigen beide Signale erst ab einem Wert von $0,5\tau$ an, doch ist dieser Anstieg bei der Kurve für den Mikromischer nicht so steil, wie im idealen Fall. Zusätzlich hat die Kurve des T-förmigen Mischers ein stärkeres Nachlaufen, d.h. die Verweilzeit vieler Fluidelemente ist zu höheren Verweilzeiten verschoben.

Wie oben erwähnt, wird hier im Folgenden das Verweilzeitspektrum des Verlaufes des streng laminaren Bereiches als Vergleich für die beiden anderen untersuchten Reynolds-Zahlen von 120 (Vortex-Bereich) und $Re = 186$ (Engulfment-Bereich) verwendet. Abbildung 4.22 zeigt zum einen die relativen Häufigkeitsverteilungen (oben) und zum anderen die Verweilzeitsummenfunktionen (unten) bei den drei unterschiedlichen Reynolds-Zahlen von 1,3, 120 und 186. Vergleicht man den Verlauf der Summenfunktion bei einer mittleren Strömungsgeschwindigkeit von $0,9 \text{ m/s}$ mit der von $0,01 \text{ m/s}$, so erkennt man, dass zu Anfang (bis zum Wendepunkt) beide Verläufe identisch sind. Mit Überschreiten des Wendepunktes steigt allerdings der Verlauf der Summenfunktion der größeren Reynolds-Zahl stärker an als die der kleineren. Dieses liegt wahrscheinlich daran, dass durch die beiden Doppelwirbel das Signal schneller entlang des Querschnittes verteilt wird, die Verteilung also insgesamt enger im Vergleich zu der streng laminaren Strömung wird. Erstaunlicherweise steigt allerdings der Verlauf bei der kleineren Geschwindigkeit ab einer dimensionslosen Zeit von ca. 3,5 wieder schneller und erreicht somit eher den Maximalwert von 1.

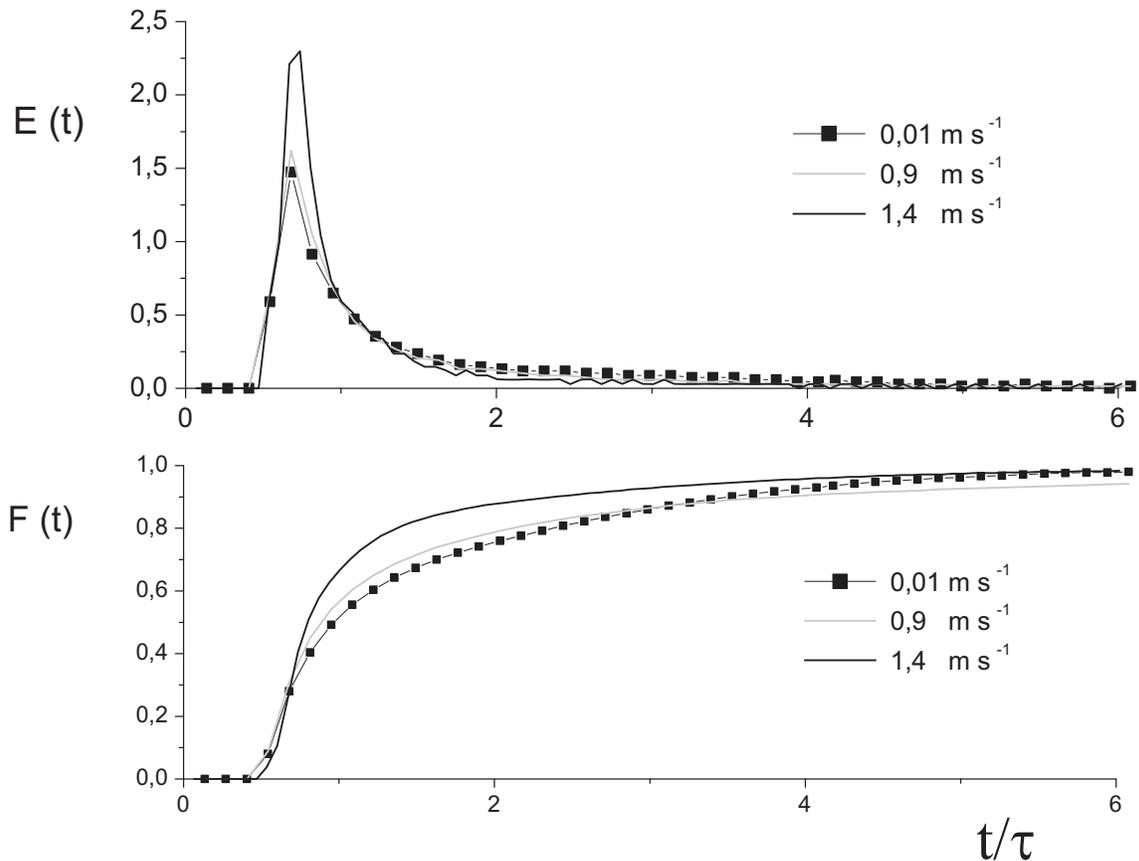


Abbildung 4.22: Verweilzeitenspektrum (oben) sowie Verweilzeitsummenfunktion (unten) versus der dimensionslosen Zeit für eine mittlere Strömungsgeschwindigkeit von $0,01 \text{ m/s}$, $0,9 \text{ m/s}$ und $1,4 \text{ m/s}$.

Sichtlich anders verhält sich das Verweilzeitenspektrum bzw. die Summenhäufigkeitsfunktion bei einer Reynolds-Zahl von 186, was einer Strömung im Engulfment-Bereich entspricht. Die Häufigkeitsverteilung (Abb. 4.22 oben) steigt erst kurz nach dem Anstieg der Kurve der laminaren Strömung an, dann aber sehr viel stärker. Nach dem Überschreiten des Maximalwertes fällt diese zusätzlich schneller auf Null herab. Das sich so ergebene Verweilzeitenspektrum der höheren Reynolds-Zahl ist somit viel enger als dasjenige der reinen streng laminaren Kanalströmung. Dieses Verhalten ist ebenso deutlich in der Verweilzeitsummenfunktion erkennbar. Diese steigt bei einer mittleren Strömungsgeschwindigkeit von $1,4 \text{ m/s}$ deutlich stärker an, als bei den beiden anderen Geschwindigkeiten und erreicht schneller den Maximalwert von 1. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass sowohl die Vortex-Strömung wenn auch nur

im geringeren Maße, als auch die Engulfment-Strömung zu einer engeren Verweilzeitverteilung führen. Daher sind diese Strömungsformen für die Durchführung von Folgereaktionen, die sensitiv gegenüber Änderungen des Verweilzeitspektrums sind, streng laminaren Strömungsformen vorzuziehen.

4.4.5 Asymmetrische Einlaufbedingungen

Bei allen bisher vorgestellten Rechnungen sind die beiden Einlassvolumenströme gleich groß gewählt. Dabei hat sich gezeigt, dass sich in Abhängigkeit der mittleren Strömungsgeschwindigkeit die Mischcharakteristika sowie die charakteristischen Verläufe der dissipierten Energie in Querrichtung stark ändern. Hier soll nun die Abhängigkeit dieser Größen, bei einem veränderten Volumenstromverhältnis untersucht werden. Dazu wurden numerische Untersuchungen durchgeführt, die auf einem Gitter mit ca. 1.000.000 Zellen, was einer Zellgröße von $2,5 \mu\text{m}$ entspricht, durchgeführt. Wie in den vorherigen Kapiteln erwähnt, reicht eine solche Gittergröße für die Auflösung feinsten Skalen der Konzentrationsverteilung nicht aus. Daher können diese Rechnungen nur mit Größen verglichen werden, die auf dem gleichen Gitter berechnet wurden. Deshalb beziehen sich die angegebenen Größen zur Mischcharakteristik jeweils auf dieses Gitter. Kenngrößen, die sich direkt aus der Hydrodynamik ergeben, wie z.B. Druck oder auch Energieeinträge, sind bei diesem Gitter belastbar (Vgl. Kapitel 4.1).

Die vergleichenden Rechnungen wurden jeweils bei einem Volumenstromverhältnis von 1:2 und 1:3 durchgeführt und mit dem herkömmlichen Volumenstromverhältnis von 1:1 verglichen. In Abbildung 4.23 ist für jede dieser drei Volumenstromverhältnisse zum einen die dissipierte Leistung auf einem Querschnitt $300 \mu\text{m}$ hinter der Einlassfläche in den Mischkanal hinein angegeben, zum anderen der Anteil der in Querrichtung dissipierten Leistung bezogen auf die gesamte dissipierte Leistung auf diesem Querschnitt. Man erkennt, dass der Gesamtenergieeintrag steigt, je unterschiedlicher die Volumenströme der beiden Einlasskanäle sind. Der für die Vermischung wichtige Eintrag von Energie in zur Hauptströmungsrichtung senkrechter Richtung steigt für die beiden Verhältnisse 1:2 und 1:3 sehr viel eher, als es bei einem symmetrischen Einströmen der Fall ist. Im symmetrischen Fall steigt der Anteil erst nach Erreichen des Engulfment-Bereiches nennenswert an. Dieser sprunghafte Übergang wird bei den nicht symmetrischen Einlassbedingungen nicht gefunden.

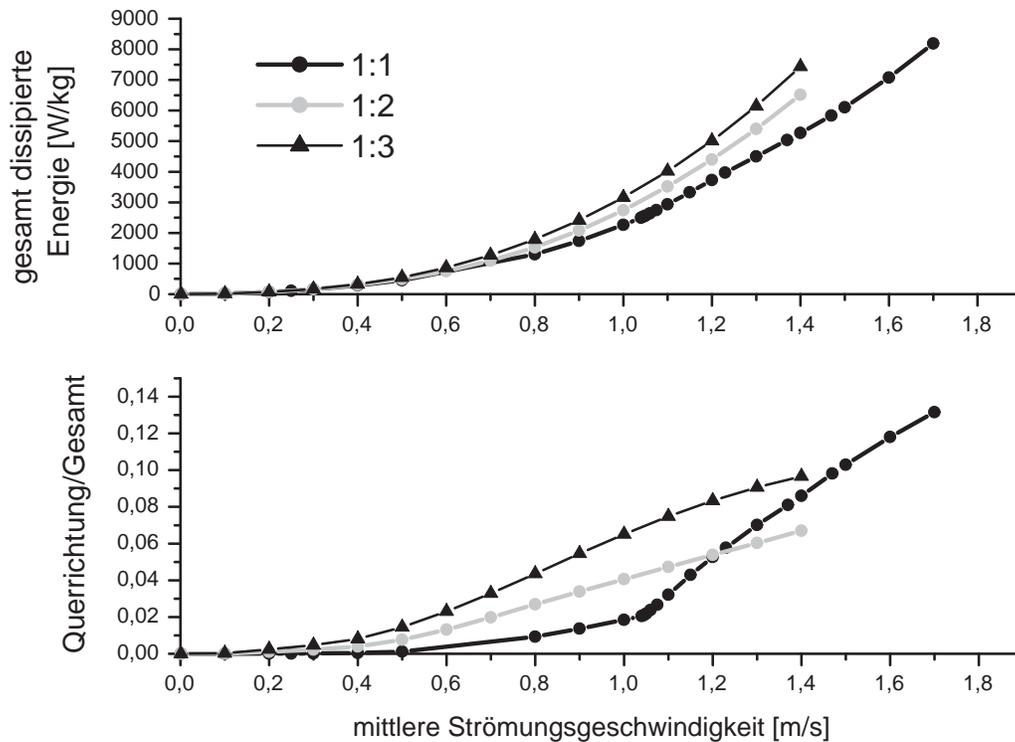


Abbildung 4.23: Gesamtdissipierte Energie auf einem Querschnitt $300 \mu\text{m}$ in den Mischkanal hinein (oben) und der Anteil der Energie, die in Querrichtung dissipiert wird (unten), für ein Volumenstromverhältnis von 1:1, 1:2 und 1:3.

Der Grund für dieses veränderte Verhalten wird deutlich, wenn man sich für verschiedene Strömungsgeschwindigkeiten die dazugehörigen Speziesverteilungen anschaut. In Abbildung 4.24 sind diese für alle drei Volumenstromverhältnisse für eine Geschwindigkeit von $0,1 \text{ m/s}$ (a), $0,9 \text{ m/s}$ (b) und $1,4 \text{ m/s}$ (c) angegeben. Links erkennt man die Verteilungen für die drei Strömungsbereiche des symmetrischen Falls, den streng laminaren, den Vortex- und den Engulfment-Bereich. Bei einem veränderten Volumenstromverhältnis entsteht zwar bei sehr kleinen Strömungsgeschwindigkeiten auch eine rein laminare Strömung wie bei einem Verhältnis von 1:1, doch ein Vortex-Bereich wie vorher beschrieben wird hier nicht durchlaufen. Allerdings liegen hier für höhere Geschwindigkeiten auch keine reinen Engulfment-

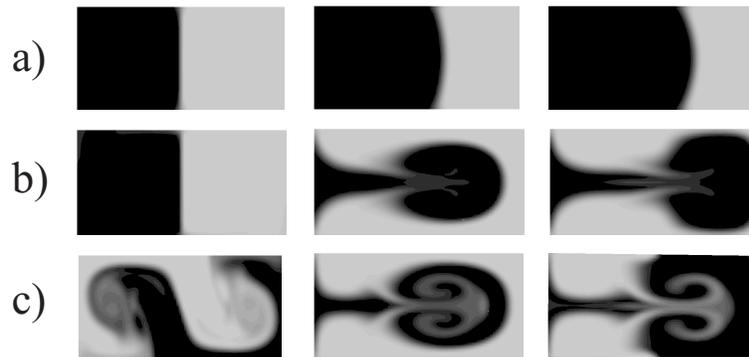


Abbildung 4.24: Tracerprofile für jeweils drei unterschiedliche Volumenstromverhältnisse von 1:1 (links), 1:2 (Mitte) und 1:3 (rechts) bei mittleren Strömungsgeschwindigkeiten von $0,1 \text{ m/s}$ (a), $0,9 \text{ m/s}$ (b) und $1,4 \text{ m/s}$ (c).

Strömungen vor, da die Charakteristik des Engulfment-Bereiches, das gegenseitige Übergreifen der Wirbelpaare, hier nicht ausgebildet wird. Bei den in diesen Fällen vorherrschenden Strömungsformen handelt es sich eher um eine Durchdringung oder Verdrängungsströmung des langsamer einfließenden Volumenstroms durch den schnelleren. Dabei wird der langsamer fließende Strom zurückgedrängt, so dass dieser den größeren Wirbel umschließt. Das dadurch entstehende Umschließen des größeren Wirbels führt dazu, dass Spezies des kleineren Wirbels in den größeren Wirbel transportiert wird. Durch die in dem großen Wirbel vorherrschende Doppelwirbelstruktur wird die so eingebrachte Spezies lamellar aufgerollt.

An dieser Stelle sei erwähnt, dass die beiden Hälften des Mischkanals keiner 1:1 Stöchiometrie entsprechenden Stoffmengen enthalten, wie es bei einem Volumenstrom von 1:1 der Fall ist. Des Weiteren enthalten die Speziesverteilungen bei einem von 1 verschiedenen Volumenstromverhältnis größere voll segregierte Bereiche, die diffusiv schlecht abgebaut werden können. Daneben liegen Bereiche mit feinen Skalen innerhalb der gebildeten Wirbel.

Dieses Phänomen spiegelt sich auch in den erzielten Mischgüten wieder. In Abbildung 4.25 sind zum einen die Intensität des Mischens zum anderen das Potenzial für diffusives Mischen für die drei Volumenstromverhältnisse wiedergegeben. Die Intensität des Mischens steigt für die Volumenstromverhältnisse von 1:2 und 1:3 kontinuierlich an und zwar auch in dem Bereich, in dem bei einem Verhältnis von 1:1 die erzielte Mischgüte nahezu konstant Null bleibt. Diese kontinuierliche Steigerung ist

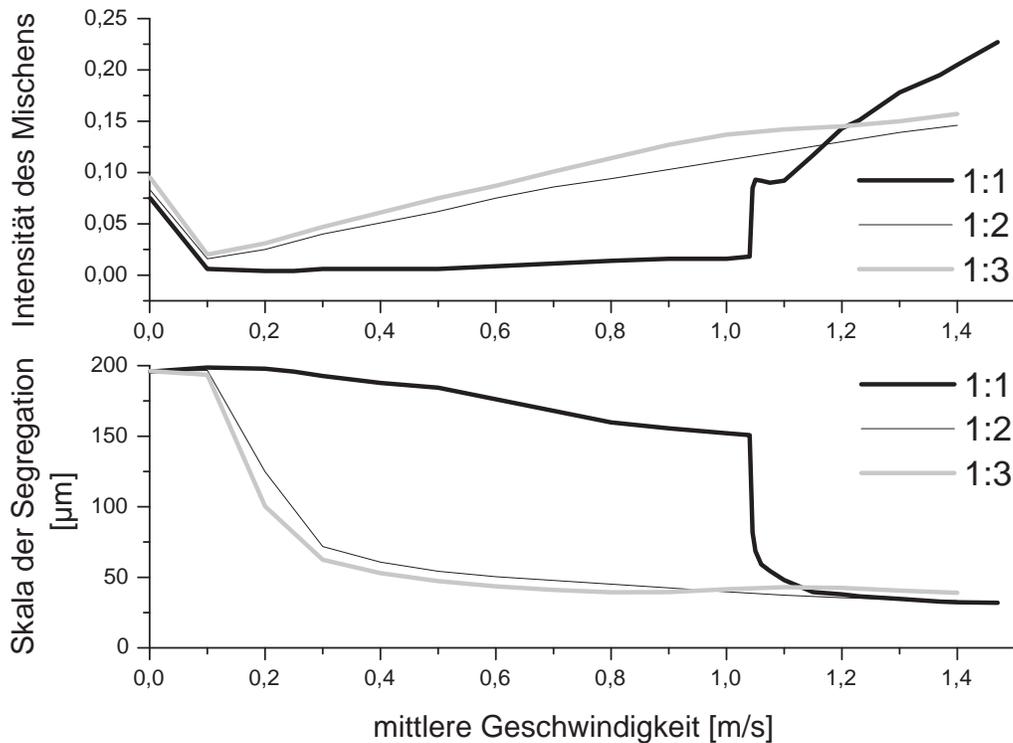


Abbildung 4.25: Intensität des Mischens (oben) und Skala der Segregation (unten) bei drei verschiedenen Volumenstromverhältnissen bei unterschiedlichen mittleren Strömungsgeschwindigkeiten.

annähernd linear, wobei sie allerdings sehr viel schwächer ausfällt, als die Steigerung im Engulfment-Bereich für das 1:1 Verhältnis. Die Zunahmen sind für die veränderten Zulaufbedingungen annähernd gleich, doch ist die Intensität des Mischens für das Volumenstromverhältnis von 1:3 zu dem von 1:2 leicht erhöht. Gleichzeitig, in dem Maße wie die Intensität des Mischens steigt, fällt die zugehörige Skala der Segregation. In allen drei Fällen ist diese Skala für sehr kleine Geschwindigkeiten ca. $200 \mu\text{m}$, was der Breite des Mischkanals entspricht. Bei dem 1:1 Verhältnis bleibt die Skala der Segregation bis zum Erreichen des Engulfment-Bereiches annähernd konstant (Vgl. Kapitel 4.4.1). Bei den anderen beiden Volumenstromverhältnissen fällt die Skala der Segregation schon bei ca. $0,1 \text{ m/s}$ kontinuierlich ab. Dieser Abfall zeigt sich dabei als ein fließender Übergang. Die so erzielten mittleren Skalen liegen dabei ungefähr bei

dem Wert des Engulfment-Bereichs für ein Volumenverhältnis von 1:1.

Zusammenfassend lässt sich zu den veränderten Volumenstrombedingungen sagen, dass diese nicht zur Verbesserung der Vermischung bei höheren mittleren Strömungsgeschwindigkeiten beitragen. Darüber hinaus enthalten die beiden Hälften des Mischkanals keine stöchiometrisch abgestimmten Stoffmengen und es kommt zur Ausbildung von stark segregierten Bereichen. Lediglich bei kleineren Strömungsgeschwindigkeiten, bei denen bei symmetrischen Einströmungsverhältnissen eine Vortex-Strömung vorliegt, kann die Vermischung gesteigert werden.

4.5 Verbesserung der Mischgüte

In den vorherigen Kapiteln wurde deutlich, dass der T-förmige Mikromischer auf kurzen Strecken keine guten Mischergebnisse liefert. Dennoch lassen sich die prinzipiellen Mechanismen, die zu einem guten Mischergebnis auch auf kürzesten Strecken führen, daraus ableiten.

Im Folgenden wird daher untersucht, wie durch gezielte Geometrieangepassung bzw. durch gezielten Eintrag von zusätzlicher Energie Vermischungsprozesse weiter gesteigert werden können. Dazu werden in verschiedenen Geometrien die Mischcharakteristika bei einer fixen Reynolds-Zahl von 120 und einer festen Schmidt-Zahl von 3600 berechnet.

4.5.1 Verbesserung durch Geometrievariation

Es hat sich gezeigt, dass durch die dissipierte Leistung in Querrichtung vorhandene Strukturen durch Aufrollen verkleinert werden. Dadurch wird sehr viel zusätzliche Kontaktfläche geschaffen, die eine notwendige Voraussetzung für effektives laminares Mischen darstellt. Es hat sich weiter gezeigt, dass nach der Umlenkung der beiden Fluidströme in den Mischkanal hinein, ungeachtet der mittleren Geschwindigkeit, ein erheblicher Anteil der dissipierten Energie in Querschnittsrichtung eingetragen wird. Dabei ist der Anteil dieser Energie umso höher, desto größer die mittlere Strömungsgeschwindigkeit ist. Unter der Prämisse zeitlich nichtschwankender Mischergebnisse und stationärer Strömungsfelder im Mischkanal ist die Steigerung der Strömungsge-

schwindigkeit begrenzt. Ab einer Reynolds-Zahl > 240 kommt es zu Instationaritäten, die ein periodisches Schwingen der Mischcharakteristika bewirken und daher bei technischer Anwendung nicht erwünscht sind. Eine Alternative dazu ist die Verwendung von mehreren Umlenkungen hintereinander, weil bei jeder Umlenkung neue Kontaktfläche erzeugt wird. Sukzessive aufeinanderfolgende Umlenkungen führen dabei zu entweder mäander-förmigen oder zickzack-förmigen Kanälen.

Im Folgenden wurden verschiedene zickzack-förmige Anordnungen

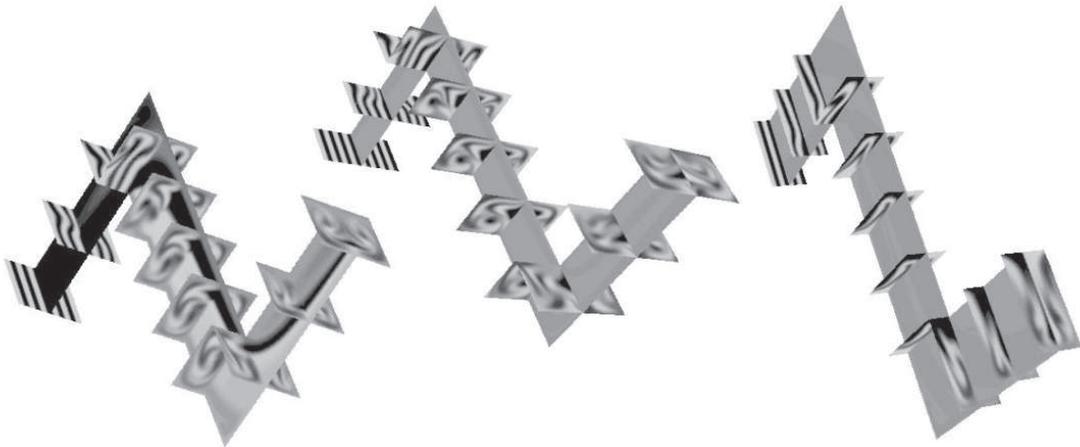


Abbildung 4.26: Schematische Darstellung der drei untersuchten Geometrien mit unterschiedlichen Aspektverhältnissen von 1:1 (links), von 1:2 (Mitte) und 2:1 (rechts).

untersucht. Aus der Literatur ist bekannt, dass die geometrische Anordnung der einzelnen Zickzack-Elemente starken Einfluss auf das Mischergebnis hat (Mengenaud et al., 2002). Zur Optimierung wurden drei Geometrien ausgewählt, die sich in dem Verhältnis von Breite zu Höhe des Mischkanals unterscheiden. In Abbildung 4.26 sind diese zusammengestellt. Es wurde eine Geometrie gewählt, bei der das Breite zu Höhe Verhältnis dem Mischkanal des T-förmigen Mikromischers entspricht (2:1). Gedacht war hierzu eine Aneinanderreihung von beiden Geometrien. Eine weitere Geometrie wies ein genau entgegengesetztes Breite zu Höhe Verhältnis auf (1:2). Auch eine solche Aneinanderreihung kann fertigungstechnisch realisiert werden. Als dritte Geometrievariation wurde ein zickzack-förmiger Kanal gewählt, dessen Breite zu Höhe Verhältnis gleich eins war (1:1). Eine dazugehörige Einlaufkanalgeometrie wird später in diesem Kapitel untersucht.

Zudem wurden die Abmessungen so gewählt, dass die Querschnittsflächen in allen drei Fällen gleich groß sind. Die Simulationen wurden durchgeführt für zwei aufeinanderfolgende Umlenkungen (Abb 4.26), wobei eine Zellenanzahl von ca. 2 Millionen Zellen für jede der drei Geometrien gewählt wurde. Die mittleren Strömungsgeschwindigkeiten in den Kanälen wurde jeweils so eingestellt, dass eine Reynolds-Zahl von $Re = 120$ erreicht wurde.

Hydrodynamik und Stofftransport wurden nicht simultan berechnet, sondern es wurde zu Anfang nur die Strömung simuliert. Um keine Einlaufeffekte zu erhalten, wurden die Rechnungen mit periodischen Randbedingungen durchgeführt. Die somit erhaltene Strömung gilt für einen unendlich langen Zickzack-Kanal, d.h. die Strömungsverhältnisse im Mittelstück sind repräsentativ für alle diese Mischelemente.

Die drei Geometrien wurden anhand der Mischcharakteristika untersucht, die auch

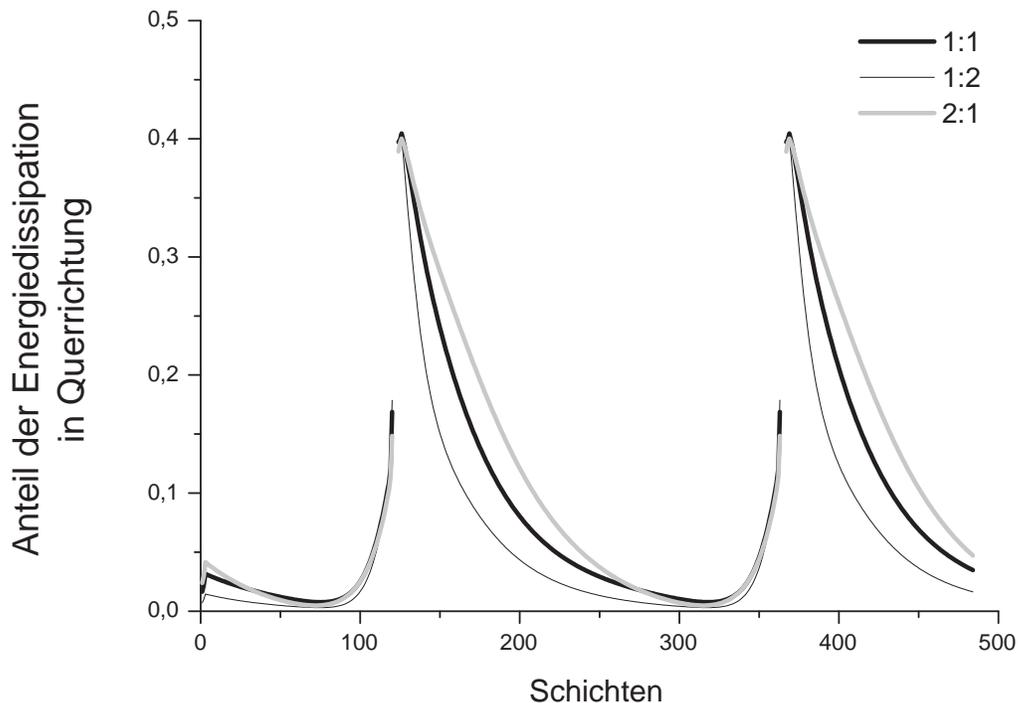


Abbildung 4.27: Anteil der in Querrichtung dissipierten Energie zur gesamt dissipierten Leistung auf einem Querschnitt des Kanals bei einem Breite zu Höhe Verhältnis von 1:1, 1:2 und 2:1.

schon bei dem T-förmigen Mikromischer Anwendung gefunden haben. Aus den zu Beginn durchgeführten Untersuchungen der Hydrodynamik hinsichtlich der Energie-dissipation sind die in Abbildung 4.27 dargestellten Ergebnisse erhalten worden, wobei die Abbildung den Anteil der in Querrichtung dissipierten Energie für die drei Geometrien zeigt. Aufgetragen sind die Verläufe gegen fortlaufende Schichten längs der Geometrie. Die beiden Aussparungen in den Kurven sind jeweils die Bereiche der Umlenkung, die bei den Berechnungen hinsichtlich der Mischcharakteristika nicht ausgewertet wurden. Man erkennt, dass hinter und auch vor den Umlenkungen der Anteil des Energieeintrages in allen drei Fällen in gleicher Weise steigt. Im Bereich des Mischkanals sind allerdings die Abklingraten des Energieeintrags der unterschiedlichen Geometrien verschieden. Die Sekundärströmung in dem Kanal, der eine Höhe von $100 \mu m$ und ein Aspektverhältnis von 2 hat, besitzt den stärksten Abfall, trägt also in Summe am wenigsten Energie in Querrichtung ein; die Strömung in der dazu umgekehrten Geometrie, am meisten. Die Strömung des Kanals mit einem Breite zu Höhe Verhältnis von eins liegt dazu näherungsweise in der Mitte. Für diese stationären Geschwindigkeitsfelder wurden nachfolgend der Speziestransport berechnet. Um vergleichbare Startbedingungen zu bekommen, wurde in den Anfang der Zickzack-Geometrien jeweils eine Tracerverteilung gepatcht, die für alle drei Geometrien dieselbe spezifische Kontaktfläche besitzt. Da die Geometrien unterschiedliche Breiten und Höhen besitzen, variiert daher auch die Anzahl der gepatchten Schichten zwischen 8 für den 2:1, 11 für den 1:1 und 16 für den 1:2 Kanal für eine senkrechte Orientierung der Schichten. Senkrecht bedeutet in diesem Zusammenhang, dass die Zickzack-Geometrie parallel zur Horizontalen liegt und die Tracerschichten im Eingang somit von oben nach unten verlaufen. Zusätzlich wurde auch eine waagrecht angeordnete Schichtverteilung untersucht. Die Anzahl der einzelnen Schichten ändert sich auch hierbei. Bei dieser Vorgabe der Schichtverteilung besitzt jede Geometrie im Eingang zu Anfang ein Potenzial für diffusives Mischen von $75.000 m^{-1}$, was einer Kontaktlinie von $1.500 \mu m$ entspricht. Abbildung 4.28 zeigt für beide Schichtanordnungen, senkrecht wie waagrecht und für alle drei Geometrien die Tracerverteilungen auf Querschnitten längs des Kanals. Die einzelnen Querschnitte liegen jeweils $150 \mu m$ weit auseinander. Zu beachten ist, dass alle Querschnitte die gleiche Fläche besitzen. Verkleinerte Querschnitte in dieser Abbildung sind nur aufgrund der Übersichtlichkeit gewählt worden.

Bei einem einmaligen Durchlaufen durch ein Zickzack-Element erkennt man rein qualitativ, dass die Orientierung der Kontaktfläche am Eingang in den Zickzack-Kanal starke Auswirkungen auf das spätere Mischergebnis hat. Es ist deutlich zu sehen, dass durch die im Kanal vorliegende Vortex-Strömung die Kontaktfläche aufgerollt wird. Für jeweils eine Seite des Kanals bildet sich ein Korkenzieher ähnlicher Wirbel aus, der jeweils nur dort die Kontaktfläche aufrollt. Dieses gilt für jede der untersuchten Geometrien. Ein Austausch von einem Wirbel in den anderen findet nur rein diffusiv

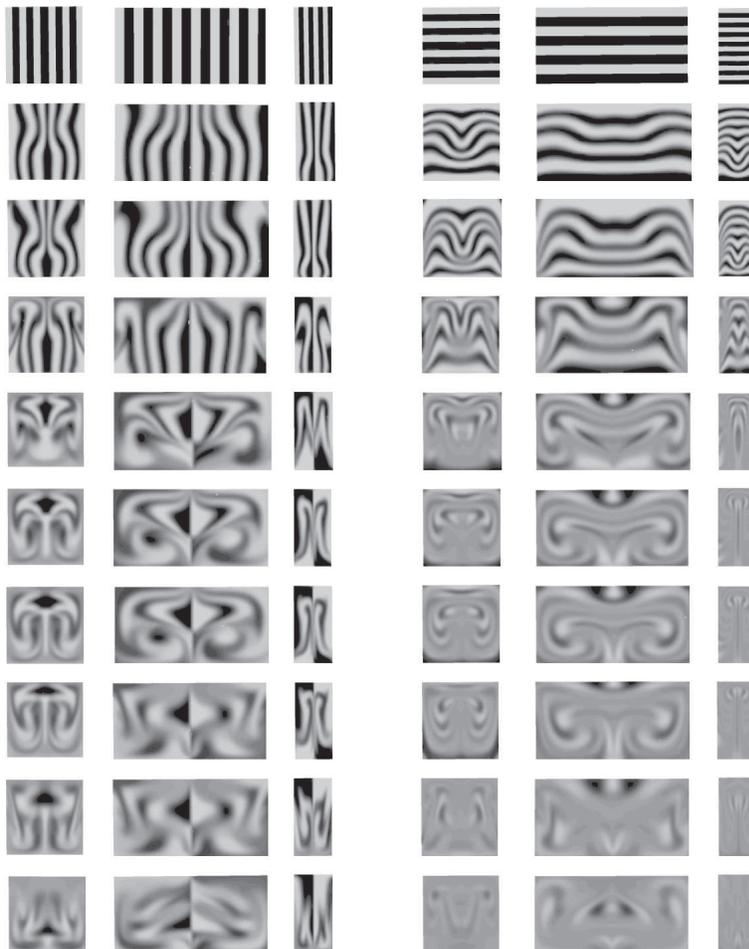


Abbildung 4.28: Tracerverteilungen auf verschiedenen Querschnitten in Abständen von $150 \mu\text{m}$ durch die Zickzack-Kanäle für die jeweiligen Kanäle. Diese Verläufe sind für jeweils eine waagerechte und senkrechte Anordnung der Tracerschichten für ein Aspektverhältnis von 1:1 (links), 1:2 (Mitte) und 2:1 (links) angegeben.

statt, daher würde eine ungleichmäßige Verteilung eines Tracers über den Querschnitt des Eingangs auch eine ungleiche Verteilung über den Querschnitt im Auslass zur Folge haben.

Das rein qualitativ erkennbare Ergebnis spiegelt sich auch in dem Verlauf der Intensität des Mischens wieder. Abbildung 4.29 zeigt den Verlauf dieser Intensität für die drei Geometrien bei beiden Tracerverteilungen. Generell erzielt eine waagerechte Tracerschichtverteilung im Eingang des Zickzack-Kanals höhere Mischgüten, wie

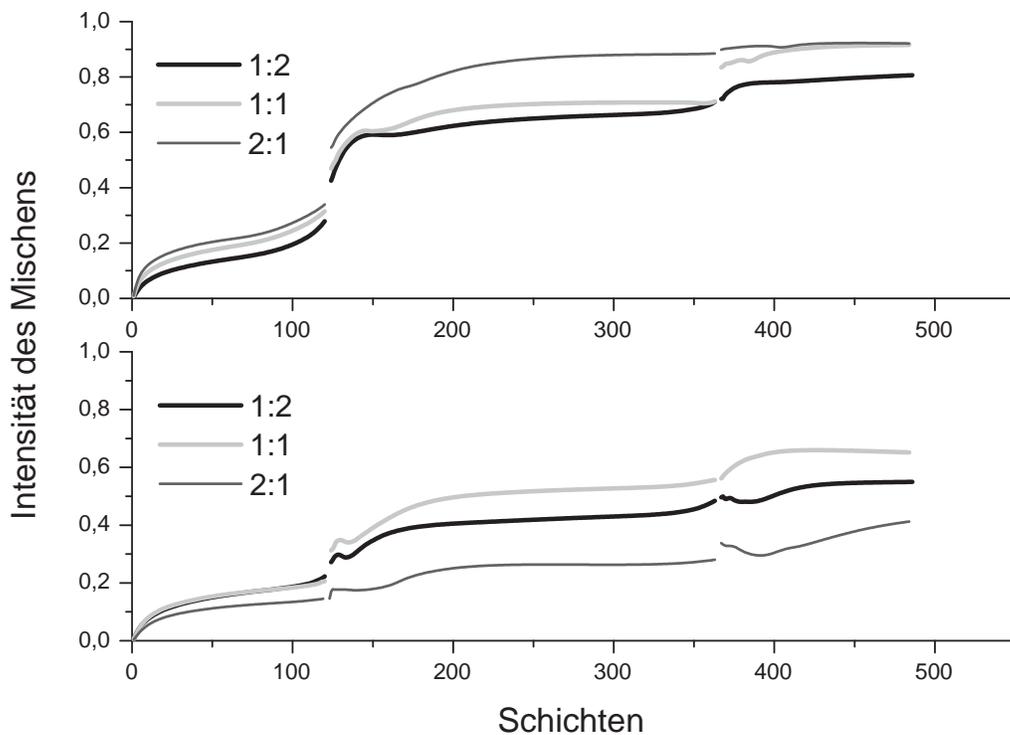


Abbildung 4.29: Verlauf der Intensität des Mischens für drei unterschiedliche Aspektverhältnisse für eine waagerechte (oben) und eine senkrechte Anordnung (unten) der Tracerschichten.

man qualitativ an den Tracerverteilungen (Abb. 4.28) schon sehen konnte. Ungeachtet der Geometrie und der Startverteilung steigt die Intensität des Mischens in dem ersten Bereich leicht an. Bei einer waagerechten Schichtverteilung (Abb. 4.29 (oben)) erfolgt für alle drei Geometrien nach der ersten Umlenkung ein starker Anstieg der

Mischgüte, die nach wenigen $100 \mu\text{m}$ annähernd den Maximalwert erreicht. Die zweite Umlenkung trägt dann jedoch nicht mehr sehr viel zur weiteren Vermischung bei. Die erzielten Mischgüten sind schon sehr nahe an einer homogenen Mischung, wobei der Zickzack-Kanal mit einem Breite zu Höhe Verhältnis von 2 mit einem Wert von 0,92 die beste Vermischung liefert. Die Vermischung in der Geometrie mit einem dazu vertauschten Aspektverhältnis erreicht lediglich eine Intensität des Mischens von 0,8. Der Zickzack-Kanal mit einem Seitenverhältnis von eins liegt mit einem Wert von ca. 0,91 nahe am Mischergebnis des 2:1 Zickzack-Kanals.

Bei einer Startkonfiguration von senkrechten Schichten werden niedrigere Mischgüten erzielt und die Effektivität der einzelnen Kanäle ist nicht mehr so wie bei einer waagerechten Schichtenverteilung. Auch in diesem Fall steigen die Intensitäten des Mischens in den ersten Bereichen an. Nach jeder Umlenkung nimmt dazu zusätzlich die Mischgüte zu. Allerdings erzielt der Zickzack-Kanal mit dem Breite zu Höhe Verhältnis von 2, also der, der bei einer waagerechten Anordnung am besten mischt, die schlechteste Mischgüte. Den Grund dafür kann man an dem Verlauf der Intensität des Mischens kurz nach den beiden Umlenkungen erkennen. In diesen Bereichen fällt die Intensität des Mischens ab. Da es nicht zu Entmischungsphänomenen kommen kann, muss dieses ein Bereich stark unterschiedlicher Strömung sein, gegebenenfalls befinden sich hinter der Umlenkung größere Totzonen. Die beste Vermischung bei einer senkrechten Tracerschichtverteilung im Eingang der Zickzack-Geometrie wird hier durch den Mischer mit dem quadratischen Querschnitt erzielt. Im gleichen Maße, wie die Intensität des Mischens steigt, fällt das Potenzial für diffusives Mischen, welches ein Maß für die Triebkraft des diffusiven Ausgleichs ist. Allerdings ist das Potenzial für diffusives Mischen der beiden Startkonfigurationen für alle drei Geometrien schon nach einer Umlenkung stark abgebaut, sodass in diesen Fällen die Intensität des Mischens (I_M) die relevante Größe darstellt.

Aus dem Vergleich der beiden Startbedingungen der drei Zickzack-Kanälen erkennt man, dass die zu Anfang vorherrschende Orientierung der Kontaktfläche einen starken Einfluss auf das erreichbare Mischergebnis hat.

Strömungen in Zickzack-Kanälen können, im Gegensatz zu gebogenen Kanälen, Totzonen hinter den Umlenkungen ausbilden. Größere Totzonen sind bei Reaktoren in einer technischen Anwendung unerwünscht, da sie zu einer Verbreiterung des Verweilzeitspektrums führen und so bei durchzuführenden Reaktionen zu Folgereaktionen

und so damit zur Senkung der Selektivität führen können.

Zur Überprüfung hinsichtlich des Verweilzeitverhaltens wurden daher Sprungmarkierungen durchgeführt. Deutlich zu erkennen ist, dass das Verweilzeitspektrum des 2:1 Zickzack-Kanals vor einem Wert von $0,5 \tau$ ansteigt. Dieses deutet auf Totzonen in-

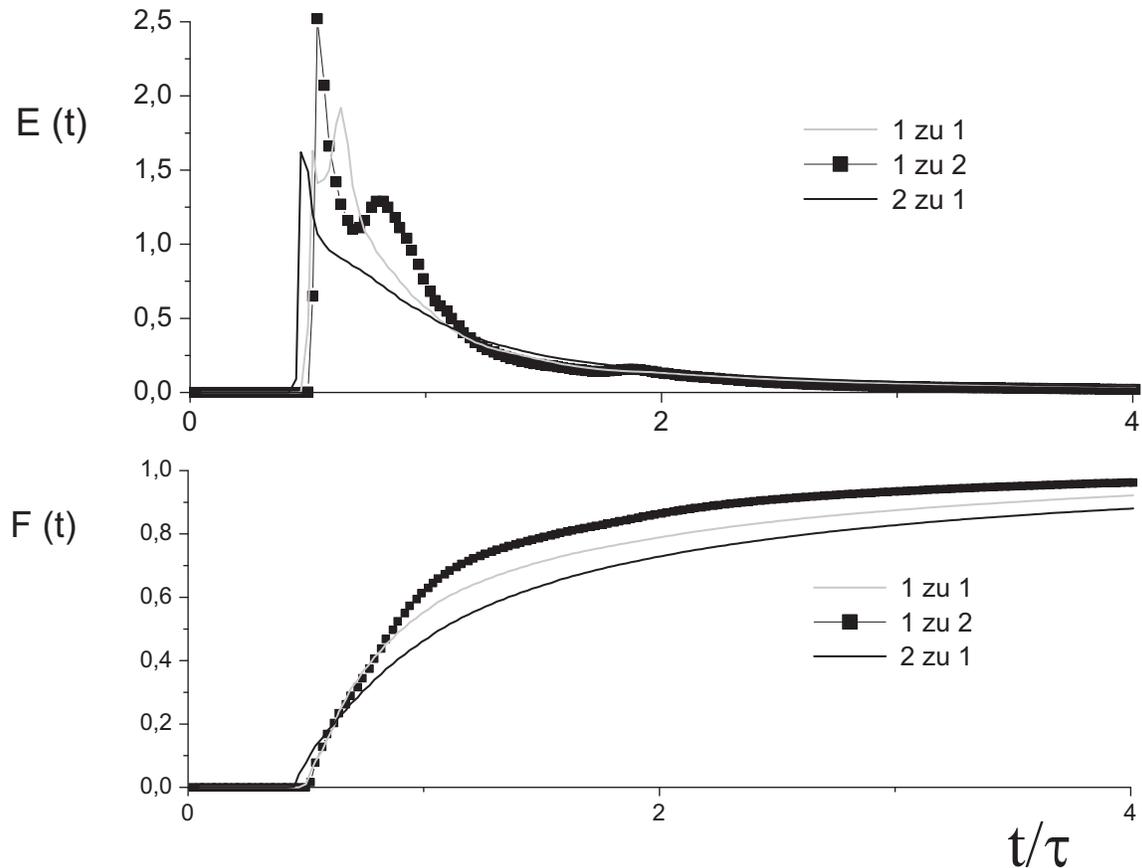


Abbildung 4.30: Verweilzeitspektren (oben) und die dazugehörigen Verweilzeitsummenfunktionen (unten) der Geometrien mit einem Aspektverhältnis von 1:1, 1:2 und 2:1.

nerhalb des Reaktors hin, da zum Transport des Signals effektiv weniger Volumen im Kanal zur Verfügung steht. Desweiteren fällt der Verlauf von $E(t)$ der 2:1 Kurve sehr viel langsamer ab bzw. die $F(t)$ Kurve steigt nur sehr langsam. Dieses deutet auf starke Dispersionseffekte innerhalb des Kanals hin; ein Signal wird also stark auseinandergezogen. Die Verläufe der Verweilzeitspektren von 1:1 und 1:2 weisen mehrere Maxima auf. Ein solches Verhalten tritt meist in schlecht gepackten Festbettreaktoren auf sowie in Strömungsrohren mit Rückführung. Beides liegt hier nicht vor.

Eine mögliche Erklärung für dieses Verhalten sind Rückstrombereiche. Die Größe und die Lage der einzelnen Maxima des Verweilzeitspektrums gibt dabei Anhaltspunkte über die Größe dieser Bereiche. Der Verlauf des Verweilzeitspektrums des 1:2 Kanals hat deutlich unterschiedliche Maxima, die ca. $0,3 \tau$ weit auseinander liegen. Die Rückstromzonen sind daher hier stark ausgebildet und nehmen einen erheblichen Teil des Reaktorvolumens ein. Bei dem 1:1 Kanal erscheinen beide Maxima kurz hintereinander, wobei das zweite Maximum noch größer ist, als das erste. Dieses Verhalten lässt darauf schließen, dass zwar die Rückstromzonen recht groß sind, jedoch das Fluid innerhalb dieser Zonen keine nennenswerte Verweilzeit besitzt.

Die Rezirkulationszonen der Kanäle mit einem Aspektverhältnis von 1:1 und 1:2 führen insgesamt zu einer engeren Verweilzeitverteilung, was für durchzuführende Reaktionen Vorteile in Ausbeute und Selektivität bedeuten kann.

Da der Mischer mit dem quadratischen Querschnitt zum einen sehr gute Vermischungssteigerungen bei nur zwei Umlenkungen erzielen konnte und zum anderen er durch Rezirkulationszonen ein relativ enges Verweilzeitspektrum besitzt, wurde diese Mischergeometrie für weitere Untersuchungen ausgewählt.

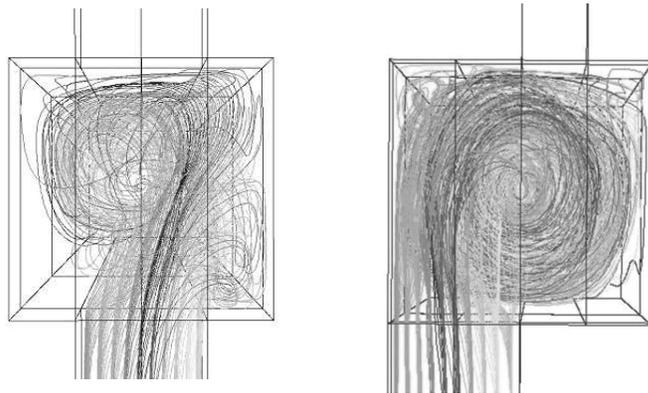


Abbildung 4.31: Skizze des Tangential-Mischers mit versetzten (rechts) und nicht versetzten (links) Einlass-Kanälen.

Wie sich in den vorherigen Untersuchungen gezeigt hat, ist das Einlassprofil in den Zickzack-Kanal maßgeblich für die zu erwartende Vermischung. Um nun bei kleinen Reynolds-Zahlen (hier 120) ein Einlassprofil zu erreichen, welches die Kontaktfläche nicht nur senkrecht in der Mitte des Kanals lokalisiert, sondern darüber hinaus auch

die Kontaktfläche gleichmäßig über den Querschnitt verteilt, scheiden einfachste Geometrien wie ein Y-förmiger Einlass aus. Auf der Grundlage der numerischen Erfahrungen für T-förmigen Mischgeometrien wurden Geometrien untersucht, die zum einen bei dieser Reynolds-Zahl eine geeignete Tracerverteilung erzeugen und zum anderen fertigungstechnisch leicht realisiert werden können.

Da der Mischkanal, im Gegensatz zu dem vorher untersuchten, ein Aspektverhältnis von 1:1 aufweist, und keine Beschleunigungen im Mischkanal stattfinden sollen, mussten die Einlasskanäle angepasst werden. Dazu wurden zwei verschiedene Geometrievariationen untersucht (Abb. 4.31)

Bei der einen Geometrie prallen, ähnlich wie beim vorher untersuchten T-Mischer, beide Einlassströme aufeinander. Im anderen Fall sind diese gegeneinander versetzt.

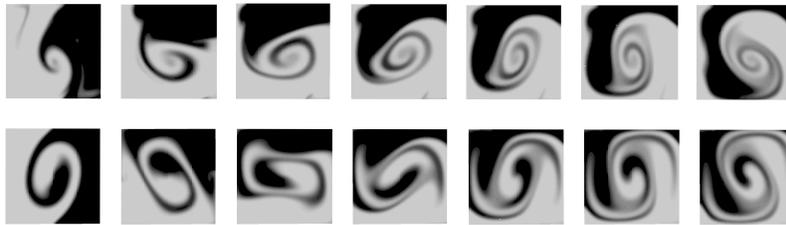


Abbildung 4.32: Querschnitte längs des Mischkanals im Abstand von je $50 \mu m$ (von links nach rechts) für die Geometrie dessen Einlasskanäle gegeneinander versetzt angeordnet sind (unten) und die, dessen Einlasskanäle direkt gegenüber stehen (oben).

Die numerischen Simulationen wurden für ein kubisches Gitter mit 4.000.000 Gitterzellen durchgeführt. Abbildung 4.32 zeigt Querschnitte längs des Mischkanals für beide Geometrien. Man erkennt, dass der Mischer, bei dem die beiden Einlass-Kanäle (links) versetzt angeordnet sind, eine stärkere Verdrillung der Kontaktfläche erzeugt. Es bildet sich dabei eine Drallströmung aus, die bei unterschiedlich konzentrierten Einlassströmen diese spiralförmig aufrollt. Im Gegensatz dazu erzeugt die Geometrie, deren Einlasskanäle frontal gegenüber angeordnet sind, weniger zusätzliche Kontaktfläche. Auf einer Strecke von $300 \mu m$ in den Mischkanal hinein wird hier $48.000 m^{-1}$ spezifische Kontaktfläche erzeugt, wohingegen durch die Drallströmung $63.000 m^{-1}$ spezifische Kontaktfläche erzeugt wird. Desweiteren ist ein weiterer Vorteil der spiralförmigen Drallströmung, dass die entstehende Kontaktfläche gleichförmig über den

Querschnitt verteilt vorliegt. Ein solches Einlassprofil führt im 1:1 Zickzack-Mischer binnen kürzester Zeit bzw. Strecke zu einer annähernden vollständigen Vermischung.

4.5.2 Verbesserung durch Strömungsmodulation

Eine andere Möglichkeit Mischgüten zu verbessern, ist der gezielte Eintrag zusätzlicher Energie in Form von sinusförmigen Pulsationen der Einlassvolumenströme in den Eingängen des Reaktors. Um in Hinblick auf eine verfahrenstechnische Anwendung die Strömungsgeschwindigkeit im Auslass des Reaktors pulsationsfrei zu halten, wird hier eine phasenverschobene Modulationen der beiden Einlassströme zu verschiedenen Frequenzen der Modulation untersucht.

Durch die so eingetragene, zusätzliche Energie kann es, durch das wiederkehrende Strecken und Falten von Fluidelementen, zu chaotischer Advektion kommen.

Untersucht wurde in dem hier vorliegenden Fall, wie sich Mischcharakteristika, wie das Potenzial für diffusives Mischen und die Intensität des Mischens, durch die zeitlich instationäre Strömung ändern. Weiter wird untersucht, ob die zusätzlich eingetragene Energie in die erwünschte Quervermischung eingetragen werden kann.

Abbildung 4.33 zeigt für die untersuchten Frequenzen die Anteile der sich ergebenden Energiedissipationen in Querrichtung auf einem Querschnitt $300 \mu\text{m}$ in den Mischkanal hinein. Zum Vergleich ist dazu noch der Anteil des Leistungseintrags für die nicht modulierte Simulationsrechnung angegeben. Im Vergleich dazu, liegen die Anteile der modulierten Rechnungen höher, wobei der mittlere Wert umso größer ist, desto kleiner die Frequenz ist. Die Änderungen in den Verläufen korrelieren jeweils mit der Modulation. Allerdings sind die Schwankungsbreiten der unterschiedlichen Verläufe unterschiedlich, obwohl die Änderungen in den Geschwindigkeiten für alle drei Fälle gleich sind. Das liegt wahrscheinlich daran, dass die Ausbildung der Wirbel, die Energie in Querrichtung eintragen, durch ein zu schnelles Wechseln der Orientierungen gestört werden. Bei jeweils 20 und 30 kHz sind die Amplituden des Anteils des Energieeintrags sowie der Anteil des mittleren Leistungseintrags annähernd gleich groß. Im Gegensatz dazu ist der Mittelwert bei einer Modulation mit 10 kHz um etwas mehr als 1 % zu höheren Werten verschoben mit einer deutlichen Zunahme (ca. um das 4-5fache) der Amplitude.

Dies hat Auswirkungen auf die Verläufe für die Intensität des Mischens und auf das

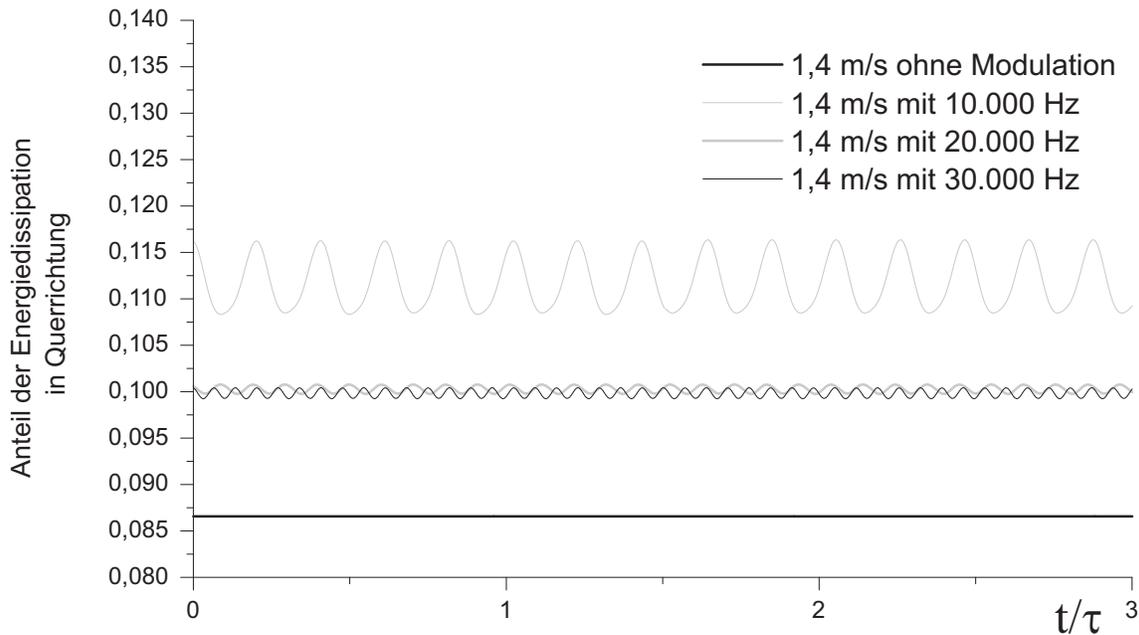


Abbildung 4.33: Anteil des Leistungseintrags in Querrichtung bei 10, 20 und 30 kHz sowie bei einer ohne Strömungsmodulation.

Potenzial für diffusives Mischen. Abbildung 4.34 zeigt die Ergebnisse der modulierten Rechnungen und zum Vergleich die Werte der stationären Rechnung ohne Strömungsmodulation. Nach einer Einschwingphase, die für alle drei Frequenzen annähernd gleich lang ist, stellen sich zeitlich oszillierende Verläufe für die Intensitäten des Mischens (4.34 unten) und das Potenzial für diffusives Mischen (4.34 oben) ein. Da der Leistungseintrag in Querrichtung für die Simulationen mit modulierten Strömungen höher ist, als die der nicht modulierten, wird in diesem Fall mehr Kontaktfläche erzeugt. Dabei wird umso mehr Kontaktfläche erzeugt, je geringer die angelegte Schwingungsfrequenz ist. Ähnlich wie beim Leistungseintrag ist die Amplitude bei einer Modulation von 10 kHz im Vergleich zu den höheren Frequenzen viel stärker ausgebildet. Die sich daraus ergebenden Mischgüten korrespondieren in ihren Verläufen mit denen des Potenzials für diffusives Mischen. Die höchste Mischgüte mit einem Mittelwert von ca. 28 % wird hier mit einer Modulation von 10 kHz erhalten. Die beiden anderen sind mit ca. 25 % zwar kleiner, sind aber dennoch zur nicht strömungsmodulierten Verfahrensweise leicht erhöht. Die stationäre Rechnung ohne Strömungsmodulation liefert eine Mischgüte von ca. 21 %.

Es lässt sich zusammenfassen, dass sich bei niedrigen Frequenzen höhere Vermischun-

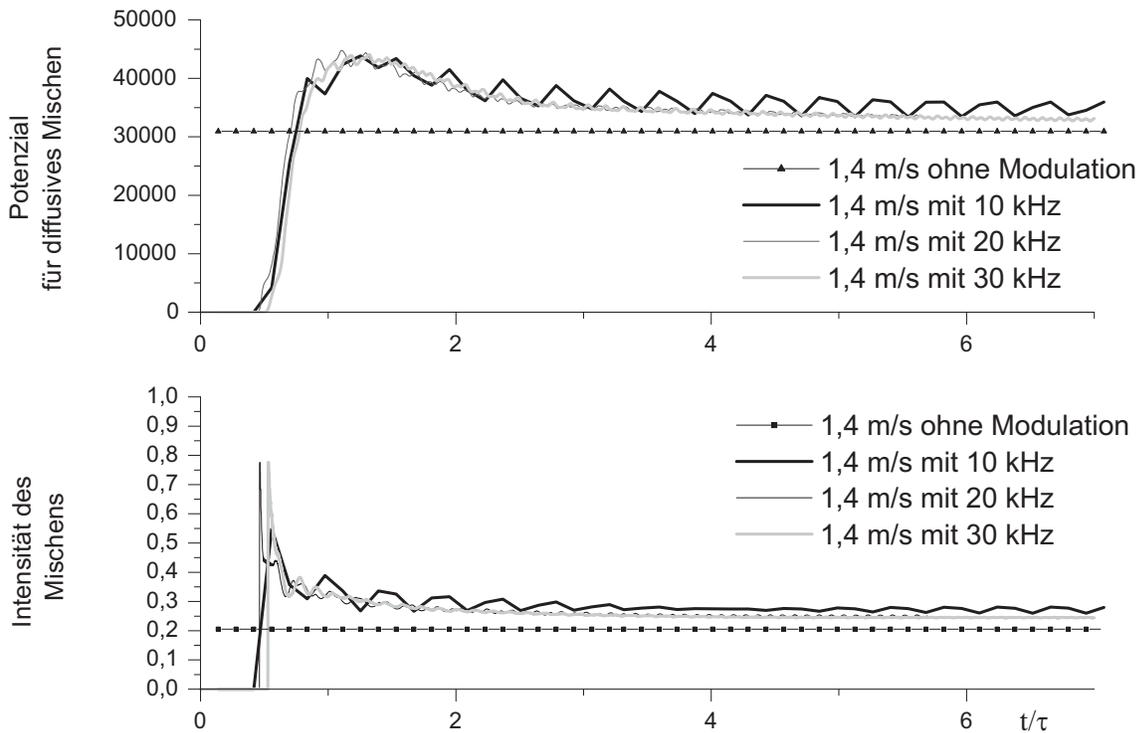


Abbildung 4.34: Zeitlich veränderliche Verläufe des Potenzials für diffusives Mischen (oben) und der Intensität des Mischens (unten) bei 10, 20 und 30 kHz sowie bei einer nicht modulierten Simulation.

gen erzielen lassen, allerdings können diese starken zeitlichen Schwankungen unterliegen. Für technische Anwendungen und zur Durchführung von chemischen Reaktionen sind zeitlich schwankende Vermischungsgrade oder auch Zusammensetzungen des Fluids unerwünscht, da dieses zu einer zeitlich schwankenden Produktqualität führen kann. Dennoch kann der Grad der Vermischung, auch bei technischen Anwendungen, durch die Modulation der Eingangsvolumenströme vergrößert werden. Durch Verwendung einer höheren Frequenz wird zwar die Vermischung nicht in solch einem starken Maße erhöht wie bei 10 kHz . Allerdings unterliegen die erzielten Mischgüten bei 20 und 30 kHz keinen starken zeitlichen Schwankungen.

Eine weitere wichtige Fragestellung ist, ob sich durch die Modulation der Eingangsvolumenströme das Verweilzeitspektrum gezielt verändern lässt. Dazu wurden numerische Sprungmarkierungen mit modulierten Strömungen durchgeführt, bei denen, anders als in allen anderen Sprungmarkierungsrechnungen, Tracer in beide Einlasskanäle aufgegeben wurde. Nur so erhält man einen konstanten Endwert von 1.

Abbildung 4.35 zeigt zum einen die Verweilzeitspektren (unten) und die Verweilzeitsummenfunktionen (oben) der strömungsmodulierten Rechnungen sowie zum Vergleich dazu die Verläufe ohne Modulation der Eingangsvolumenströme. Die Verläufe für die modulierten sind bis auf leichte Schwankungen nahezu identisch, wobei die Schwankungsbreite mit der Frequenz der Änderungen der Einlassvolumenströme korreliert. Die Amplitude der Schwankungen ist ähnlich wie auch bei den eingetragenen Energien umso kleiner, je größer die angelegte Frequenz ist. Im Vergleich zu der Rechnung ohne Modulation der Eingangsvolumenströme zeigen die Verweilzeitspektren der modulierten Rechnungen einen leicht verzögerten Austritt aus dem Reaktor. Die Breite der Spektren wird allerdings nicht beeinflusst, daher ist die Modulation in Bezug auf das Verweilzeitverhalten weder von Vorteil noch nachteilig.

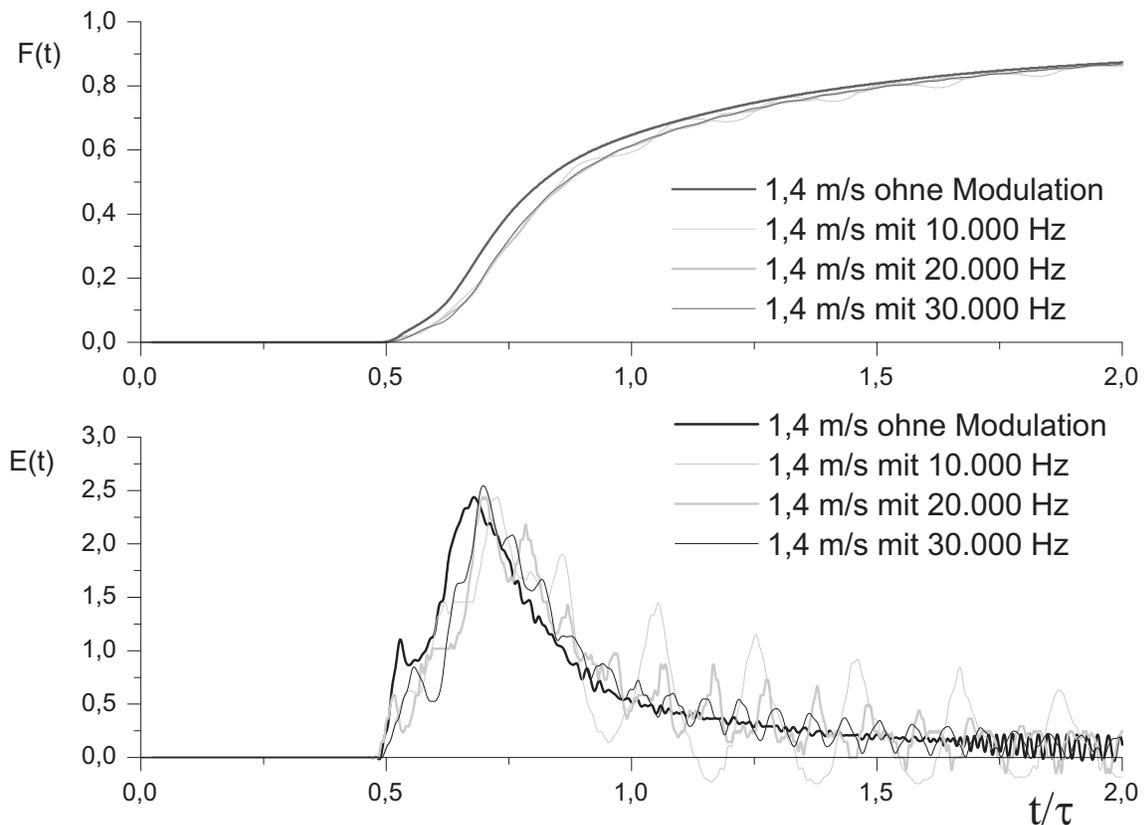


Abbildung 4.35: Verweilzeitspektren (unten) und die Verweilzeitsummenfunktionen (oben) bei 10, 20 und 30 kHz sowie bei einer nicht modulierten Simulation, aufgenommen auf einer Schicht $300 \mu m$ hinten dem Eingang in den Mischkanal.

4.6 Reaktive Systeme

Erste Ansätze zur Berechnung einer Neutralisationsreaktion, bei deren klassischer Modellierung Probleme (wie in Kapitel 3.10 beschrieben) auftreten, werden mittels einer Vereinfachung für diffusionskontrollierte instantane Reaktionen von Toor (Toor und Chiang, 1959) durchgeführt. Dazu werden die betreffenden Bilanzgleichungen für den T-Mikromischer auf 9 Millionen kubischen Gitterzellen gelöst. Dabei sei erwähnt, dass diese Größe des Gitters noch unzureichend für die Auflösung feinsten, durch das Zusammenspiel von Konvektion und Diffusion auf der einen Seite und chemischer Reaktion auf der anderen Seite, entstehender Skalen ist. Zur Berechnung wurden in einem Einlasskanal zwei passive Skalare aufgegeben, wobei ein Skalar

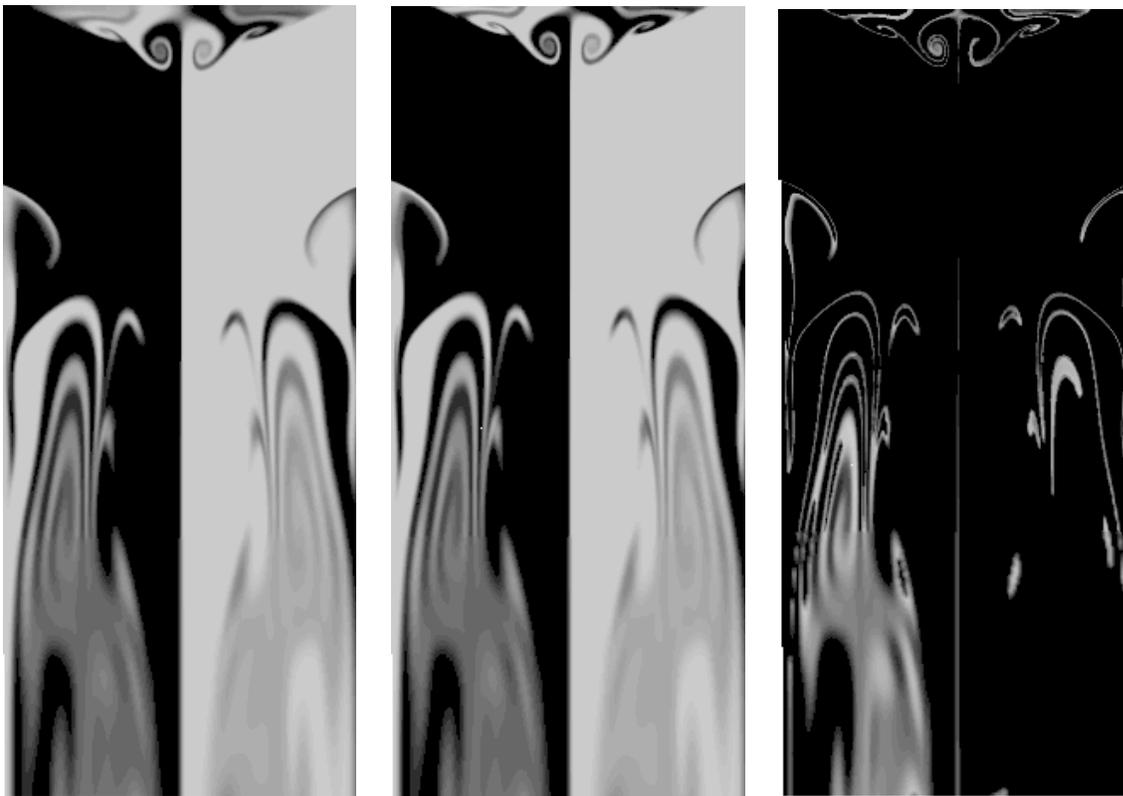


Abbildung 4.36: Längsschnitte auf halber Höhe des Mikromischers. pH-Wert-Verteilung (links) in einem Bereich von pH3 (schwarz) und pH11 (weiß), das Vorhandensein des Farbstoffes (Mitte) und die Signalstärke (rechts) bei einer Reynolds-Zahl von 250 mit einem Aspektverhältnis des Mischkanals von 0,45.

die Säure/ Lauge-Verteilung beschreibt. Der andere Skalar beschreibt das Vorhandensein des Fluoreszenzfarbstoffes Fluoreszein. Die Signalverteilungen des Farbstoffes werden jeweils für eine mittlere Geschwindigkeit von $0,9 \text{ m/s}$ (Vortex-Bereich) und $1,2 \text{ m/s}$ (Engulfment-Bereich) ermittelt. Zusätzlich dazu werden Simulationen für eine Reynolds-Zahl von 250, diese jedoch bei leicht veränderter Geometrie, mit lokalen Gitterverfeinerungen durchgeführt. Die letzt genannte Geometrie hat eine Kanalbreite von $600 \mu\text{m}$ und ein Aspektverhältnis von 0,45. Durch die das geringere Höhe-zu-Breite Verhältnis ist die Strömung, selbst bei einer Reynolds-Zahl von 250, noch stationär.

Abbildung 4.36 zeigt für eine mittlere Geschwindigkeit von $2,0 \text{ m/s}$ ($\text{Re}=250$) neben der pH-Wert Verteilung (links), die Verteilungen des Farbstoffes (Mitte) und die sich ergebene Signalverteilung (rechts) auf einem Längsschnitt auf halber Höhe durch den

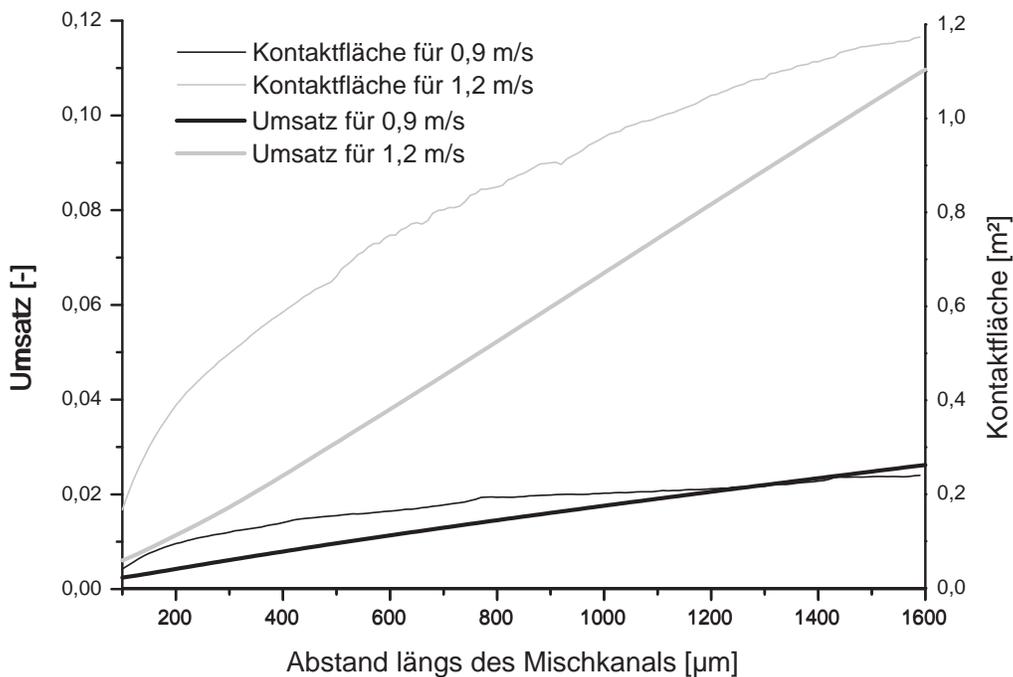


Abbildung 4.37: Umsatzverhalten und die integral entstandene Kontaktfläche längs des Mischkanals für eine mittlere Geschwindigkeit von $0,9 \text{ m/s}$ (Vortex-Bereich) und $1,2 \text{ m/s}$ (Engulfment-Bereich).

Reaktor. Da die beiden Skalare unterschiedliche Schmidt-Zahlen besitzen, 300 bzw. 470 für HCl bzw. NaOH und ca. 3600 für den Farbstoff, ergeben sich kleinste Unterschiede in den Verteilungen. Das Farbsignal des pH-Indikators entsteht genau in diesen Bereichen, da zum einen Fluoreszein vorhanden ist, und zum anderen in diesen Bereichen der pH-Wert durch die stattfindende chemische Reaktion erhöht wird. Zusätzlich zu den Signalstärken wird der Umsatz auf einzelnen Schichten längs des Mischkanals ausgewertet. Zu diesem Zweck wird pro Zelle der Produktstrom bestimmt und dieser über diskrete Querschnitte integriert. Abbildung 4.37 zeigt für den Vortex- und für den Engulfment-Bereich den erzielten Umsatz in Abhängigkeit zum Abstand längs des Mischkanals. Es ist zu erkennen, dass im Vortex-Bereich, in dem nur sehr wenig Kontaktfläche erzeugt wird, nur sehr wenig Produkt gebildet wird. Im Falle der Engulfmentströmung wird hingegen aufgrund der starken Zunahme der Kontaktfläche ein viel höherer Umsatz erzielt. Auch die Steigerung des Umsatzes längs des Mischkanals fällt für die höhere mittlere Strömungsgeschwindigkeit sehr viel größer aus.

5 Experimentelle Validierung

In Zusammenarbeit mit der Arbeitsgruppe um Prof. Rübiger (Institut für Umweltverfahrenstechnik, Universität Bremen) wurden die numerisch erhaltenen Daten für den Stofftransport einer diffusiv transportierten Spezies mit einer Schmidt-Zahl von $Sc = 3600$ (Rhodamin-B) mit experimentell erhaltenen Daten verglichen. Zusätzlich wurden erste qualitative Validierungen einer Neutralisationsreaktion durchgeführt, die mit Hilfe eines pH-abhängigen Fluoreszenzfarbstoffes visualisiert wurden.

Die Messungen beruhen auf der μ -LIF (Laser-Induzierte Fluoreszenz) Methode, kombiniert mit konvokaler Mikroskopie. Abbildung 5.1 zeigt schematisch den Versuchsaufbau. Mit Hilfe der Laser-Induzierten Fluoreszenz ist es möglich, eine berührungslose, quantitative Erfassung von Konzentrationfeldern von in Wasser gelösten, fluoreszenzierenden Stoffen durchzuführen. Dabei wird durch einen Laser der im System vorhandene Fluoreszenzfarbstoff angeregt, so dass er nachfolgend Licht anderer Wellenlänge emittiert. Die Intensität dieser Emission wird dann mit Hilfe eines Epifluoreszenzmikroskops ermittelt. Bei diesem Vorgehen wird allerdings durch die Volumenbeleuchtung über einen relativ großen Bereich integriert. Um dies zu vermeiden, wurde bei den Messungen die μ -LIF Methode angewandt, kombiniert mit konvokaler Mikroskopie, um so das Epifluoreszenzmikroskop zu ersetzen (Abb. 5.1). Bei dieser Technik wird durch eine Lochblende nur emittiertes Licht einer definierten Schicht zum Detektor durchgelassen (Hoffmann und Schlüter, 2006). Bei der konvokalen Laser Scanning Methode (CLSM) wird das Bild Punkt für Punkt abgerastert um so ein kontrastreiches und hochaufgelöstes Abbild des Konzentrationsverlaufes auf dieser Schicht zu erhalten. Durch Variation der Schicht kann so ein hochaufgelöstes dreidimensionales Abbild erzeugt werden, welches zur qualitativen Validierung herangezogen werden kann. Nach Erzeugung einer Eichkurve kann auf Grund der erhaltenen Grauwertverteilung diese mit den Konzentrationen korreliert werden, um so Daten zur Quantifizierung der numerischen Simulationsrechnungen zu erhalten. Die Messungen mit Hilfe

der CLS-Methode können allerdings nur bei zeitlich stationären Konzentrationsverteilungen

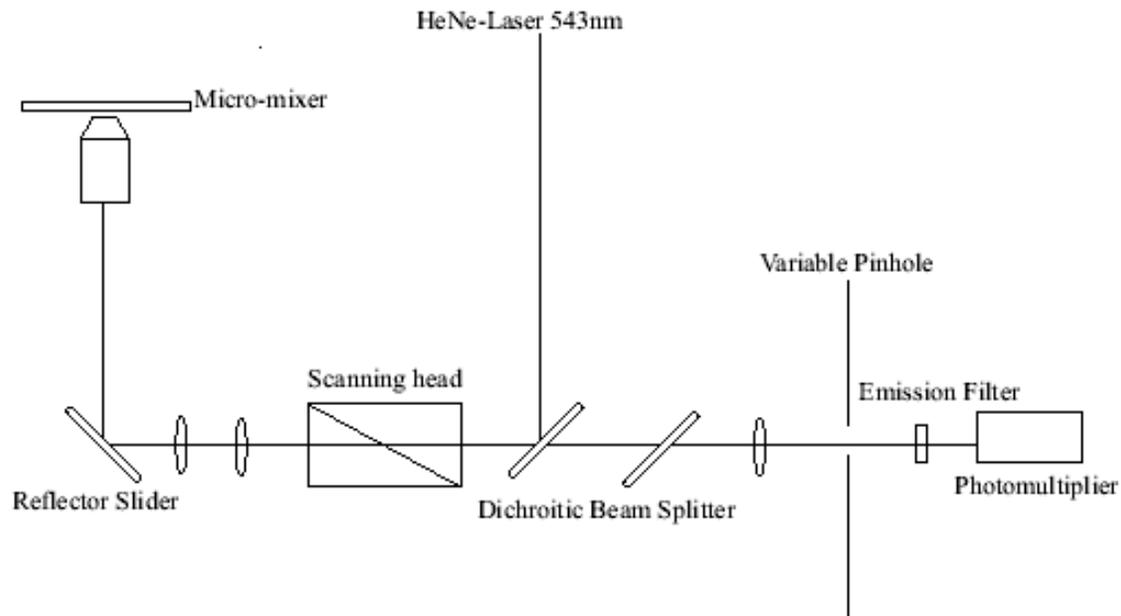


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus für die μ -Laser-Induzierte Fluoreszenz, kombiniert mit konvokaler Mikroskopie (Hoffmann und Schlüter, 2006).

durchgeführt werden, da das Abrastern der einzelnen Schichten eine gewisse Zeit in Anspruch nimmt. Daher können hier diese Daten nur zur Quantifizierung von stationären Rechnungen herangezogen werden.

Die ersten qualitativ durchgeführten Validierungsrechnungen beziehen sich auf eine Reynolds-Zahl von 186. Bei dieser Geschwindigkeit wurde Rhodamin-B als Tracer in einen der beiden Einlasskanäle aufgegeben.

5.0.1 Passiver Speziestransport

Die ersten Rechnungen wurden auf einem Gitter mit einer Zellbreite von $2,5 \mu m$ durchgeführt. Dies entspricht einer Zellenanzahl von 1 Millionen Zellen für den gesamten Reaktor. Ein Vergleich zu den experimentell erhaltenen μ -LIF Aufnahmen wurde auf einem horizontalen Schnitt auf halber Höhe des Reaktors durchgeführt. In

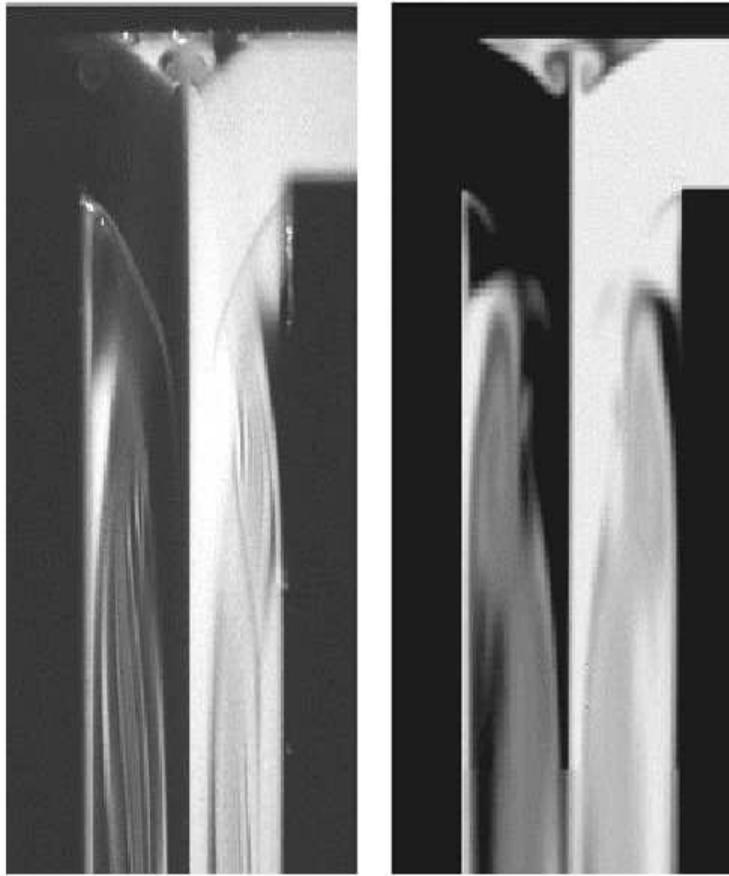


Abbildung 5.2: Experimentelle (links) und durch Simulation (rechts) ermittelte Tracer-
verteilung auf einem Schnitt auf halber Höhe des Mischkanals.

Abbildung 5.2 (links) erkennt man die durch die Engulfment-Strömung erzeugten, feinen Skalen längs des Kanals. Prinzipiell werden die Strukturen durch die Simulation wiedergegeben. Die beiden Wirbel am Kopf des Mischkanals sowie die Wirbelstruktur im Kanal sind klar erkennbar. Allerdings werden die feinsten Skalen aufgrund der numerischen Diffusion nicht aufgelöst. Dieses wurde schon in Kapitel 4.1 bei der Untersuchung zur Gittervarianz angesprochen.

Zur Erzielung einer besseren Übereinstimmung wurde das verwendete Gitter lokal stark verfeinert. In Bereichen, in denen die diffusiv transportierte Spezies große Gradienten besitzt, wurden die lokal vorhandenen Zellen jeweils vollverfeinert. Dieses wurde zur Erzeugung der Validierungsergebnisse in Abbildung 5.3 (rechts) verwendet. Diese adaptive Verfeinerung wurde lokal mehrfach durchgeführt, bis hinunter

zu einer Zellbreite von ca. $0,3 \mu m$. Man erkennt, dass die im Experiment auftretenden Skalen nun viel schärfer durch die Simulation aufgelöst werden. Am Kopf des

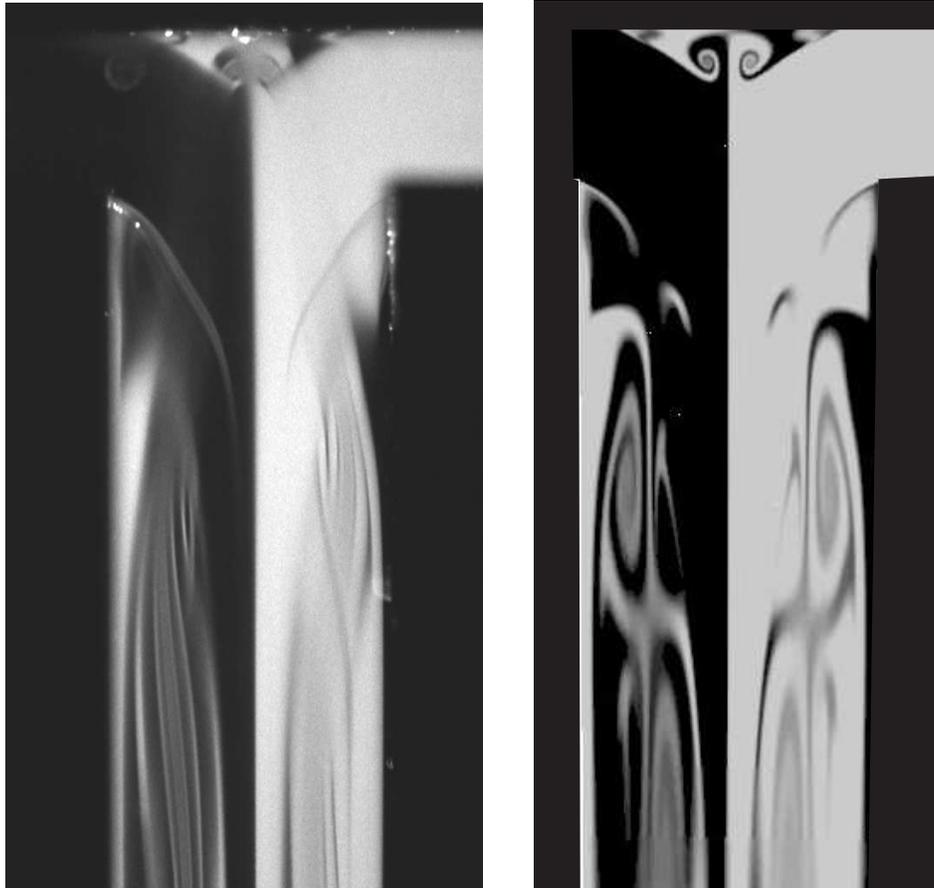


Abbildung 5.3: Experimentelle (links) und durch Simulation (rechts) ermittelte Tracer-
verteilung auf einem Schnitt auf halber Höhe des Mischkanals.

Mischkanals zeigen sich, wie schon in Abbildung 5.2, die beiden Wirbel allerdings sind hier viel mehr Einzelheiten erkennbar. Man erkennt sogar die „Einbuchtungen“, d.h. das Eindringen des hell dargestellten Tracers in die Rückseite des dunklen Wirbels (andersherum auf der anderen Seite). Dieses Phänomen ist im Experiment auch erkennbar. Selbst die feinsten Skalen im Mischkanal werden durch die Simulation teilweise aufgelöst. Dazu gehören vor allen Dingen die äußersten Lamellen der Wirbel. Feinste Lamellen im Zentrum der Wirbel werden, auch mit 30 Millionen Zellen für den gesamten Reaktor, noch nicht vollständig aufgelöst.

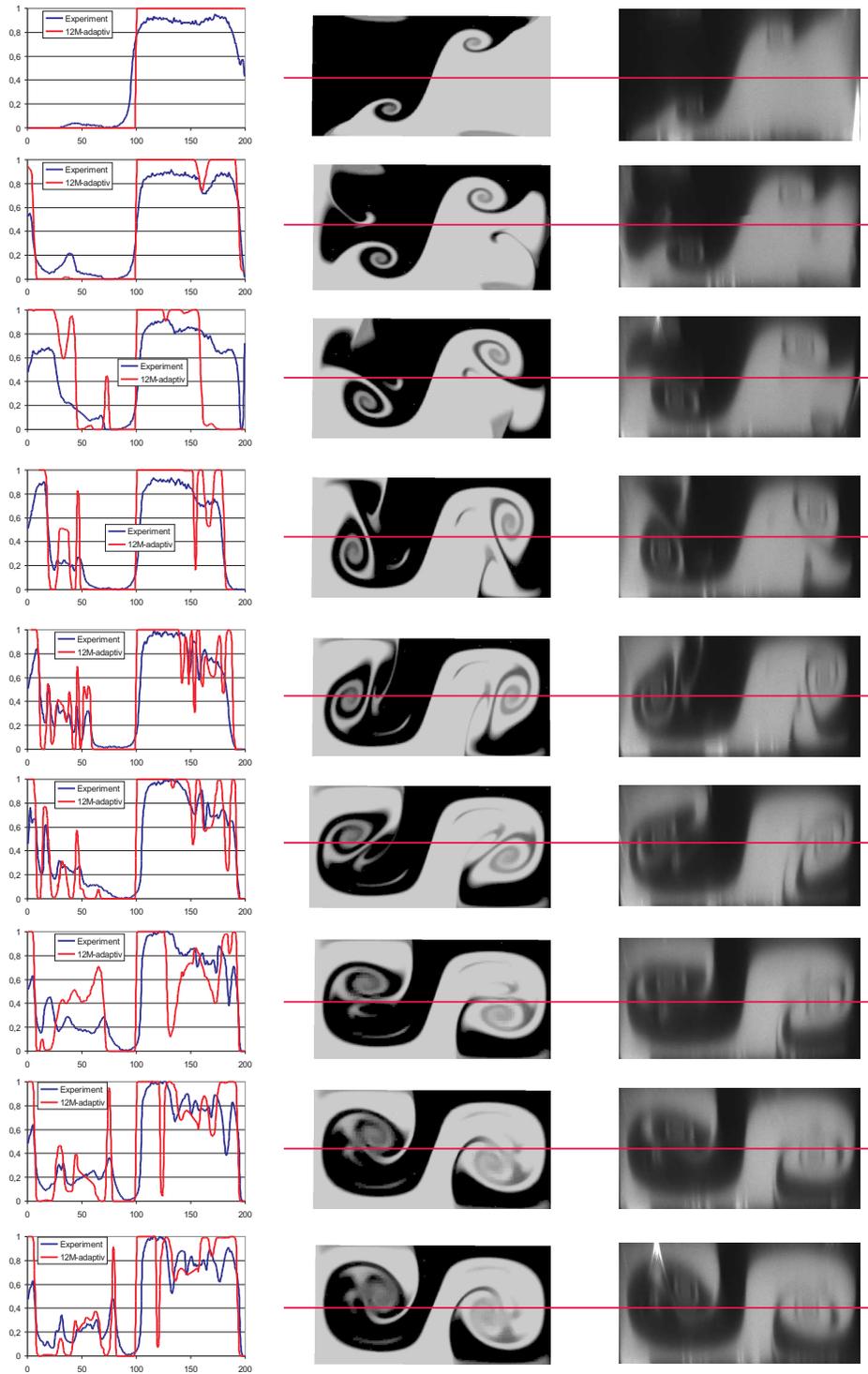


Abbildung 5.4: Vergleich der Konzentrationsverläufe (links) auf verschiedenen Querschnitten zwischen Simulationsrechnung (mitte) und Experiment (rechts).

Zusätzlich zu den vorher besprochenen qualitativen Validierungen werden auch quantitative Validierungen durchgeführt, bei denen Querschnitte längs des Mischkanals mittels den experimentell erhaltenen Daten verglichen wurden. In Abbildung 5.4 werden jeweils Querschnitte, beginnend am Eingang in den Mischkanal und danach in einem Abstand von $50 \mu\text{m}$ in Strömungsrichtung, miteinander verglichen. Auf der rechten Seite sind jeweils die experimentellen Aufnahmen zu sehen, die mittels μ -LIF durch die Arbeitsgruppe Rübiger erhalten wurden. In der Mitte erkennt man die jeweils dazu gehörigen Simulationen. Auf der linken Seite ist jeweils der Konzentrationsverlauf auf der betreffenden Schicht auf halber Höhe im Mischkanal für das Experiment sowie für die Simulation wiedergegeben. Beim Verlauf der Konzentration, ermittelt durch das Experiment, erkennt man, dass teilweise die Punktsymmetrie, die eigentlich aufgrund der Geometrie und der Strömung zu erwarten wäre, nicht oder nur teilweise erreicht wird. Dieses liegt wahrscheinlich an fertigungsbedingten Ungenauigkeiten in der Geometrie des Mischkanals, welche numerisch nicht berücksichtigt werden können. Die besten Ergebnisse werden erhalten, wenn man die jeweils linke Seite des Mischkanals vergleicht. Man erkennt, dass die im Experiment erzeugten Skalen, die im Diagramm als Peak mit einer gewissen Breite erscheinen, durch die Simulationen in der Lage sehr gut erfasst werden. Die Intensität, die proportional zur Konzentration ist, also die Höhen der Peaks, wird allerdings nur teilweise auf gewissen Schichten gut wiedergegeben. Insgesamt lässt sich sagen, dass es durch die sukzessive lokale Verfeinerung des Gitters bis hinunter zu einer Zellbreite von ca. $0,3 \mu\text{m}$ gelungen ist, die durch das Experiment aufgezeigten Skalen gut wiederzugeben.

5.0.2 Reaktive Systeme

Im Rahmen der ersten Berechnungen einer Neutralisationsreaktion, deren Konzentrationsverläufe mit Hilfe eines fluoreszenzaktiven Farbstoffes experimentell visualisiert wurden, werden erste qualitative Validierungsrechnungen durchgeführt. Die bei diesen Simulationen verwendete Geometrie ist im Vergleich zu den vorher untersuchten im Aspektverhältnis leicht verändert. Zusätzlich ist diese Geometrie ca. 3mal größer und hat somit eine Mischkanalbreite von $600 \mu\text{m}$ und eine Höhe von $270 \mu\text{m}$. Dies entspricht einem Aspektverhältnis von 0,45 im Gegensatz zu 0,5, für den ursprünglich berechneten Mikromischer. Diese vergrößerten Abmessungen bieten den Vorteil, dass

bei den experimentellen Untersuchungen detailliertere Aufnahmen erhalten werden können.

Das Gitter wurde, beginnend mit 1 Millionen Gitterzellen, in mehreren Schritten sukzessive in Bereichen starker Gradienten verfeinert. Wie bereits in Kapitel 3.10 beschrieben, werden zwei passive Skalare mit jeweils unterschiedlichen Diffusionskoeffizienten zur Berechnung der instantanen chemischen Reaktion verwendet. Dabei beschreibt ein Skalar die Verteilung der beiden Edukte (HCl und NaOH), der andere Skalar die Verteilung des Fluoreszenzfarbstoffes Fluoreszein. Die sich ergebenden Signalstärken des Fluoreszenztracers wurde mit Hilfe der Gleichung 3.33 bestimmt.

In Abbildung 5.5 (unten) ist für eine Reynolds-Zahl von 250 für die oben beschriebene Geometrie auf einem Querschnitt $250 \mu\text{m}$ in den Mischkanal hinein die experimentell

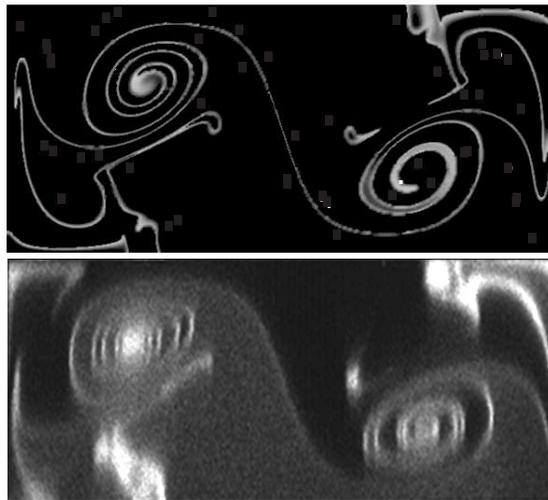


Abbildung 5.5: Experimenteller (unten) und durch Simulation (oben) ermittelte Fluoreszenzerscheinung auf einem Querschnitt $250 \mu\text{m}$ in den Mischkanal hinein.

erhaltene Fluoreszenzintensität dargestellt (Hoffmann et al., 2006). Dazu zeigt die Abbildung 5.5 (oben) das Ergebnis der dazugehörigen Simulation. Man erkennt, dass die durch die chemische Reaktion erzeugten filigranen Lamellen qualitativ durch die Simulation sehr gut wiedergegeben werden.

6 Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wird das Mischverhalten in einem T-förmigen Mikromischer mit rechteckigem Kanalquerschnitt untersucht. Dazu werden numerische Untersuchungen durchgeführt, bei denen die Navier-Stokes'schen Gleichungen, zusammen mit gegebenenfalls Speziesgleichung und/oder der Transportgleichung eines passiven Skalars gelöst werden. Zur Charakterisierung der Vermischung wird zum einen die Intensität des Mischens, ein von der Danckwerts'schen Definition der Intensität der Segregation abgeleitetes Maß und zum anderen das Potenzial für diffusives Mischen, ein Maß für die Triebkraft für den diffusiven Ausgleich eines Systems, verwendet. Darüber hinaus wird zur Bestimmung der Effizienz der in das System eingetragenen Energie der Anteil der dissipierten Energie in Querrichtung mittels Analyse des Deformationsratentensors untersucht.

Ein Schwerpunkt bildet hier die Vermischung in Abhängigkeit der mittleren Strömungsgeschwindigkeit. In den drei stationären Strömungsbereichen, die unterhalb einer Reynolds-Zahl von 240 auftreten, können unterschiedliche Vermischungsprozesse beobachtet werden. Der streng laminare Bereich ist für effektives Mischen nur für Gase, die hohe Diffusionsgeschwindigkeiten aufweisen, sinnvoll. Auch der zweite Bereich, der Vortex-Bereich, zeichnet sich, da die Symmetrieebene bezüglich der beiden Einlasskanäle erhalten bleibt, bei realistischen Schmidt-Zahlen durch geringe Vermischungen aus. Erst mit dem Erreichen des Engulfment-Bereiches werden die erzielbaren Mischgüten signifikant gesteigert. Durch die in Querschnittsrichtung eingetragene Energie wird im Engulfment-Bereich die spezifische Kontaktfläche zwischen Bereichen hoher und niedriger Konzentration innerhalb der Mischzone stark vergrößert, was zu einem stärkerem Diffusionsstrom und somit erhöhten Mischgüten führt. Dabei sind die erzielbaren Vermischungen umso größer, desto höher die mittlere Strömungsgeschwindigkeit ist. Die spezifische Kontaktfläche, die Intensität des Mischens und der Anteil der in Querrichtung eingetragenen Energie werden auf einem

festen Querschnitt $300 \mu\text{m}$ in den Mischkanal hinein sowie über die Gesamtlänge des Mischkanals ermittelt. Aus den durch das Ineinandergreifen der Wirbelpaare in diesem stationären Strömungsbereich erzeugten Längenskalen wird eine Korrelation für eine integrale Längenskala der Konzentration in Abhängigkeit der Schmidt-Zahl ermittelt. Zusätzlich werden bei verschiedenen Schmidt-Zahlen feinste Lamellendicken untersucht und ein Zusammenhang gefunden, der analog zur Batchlor Skala ist.

Neben der Simulation von asymmetrischen Volumenstromverhältnissen werden instationäre Rechnungen durchgeführt, bei denen durch phasenverschobene Modulation der Einlassvolumenströme zusätzlich Energie in das System eingetragen wird. Es zeigt sich, dass die erzielbaren Mischgütesteigerungen den erhöhten Energieeintrag nicht rechtfertigen. Auch die asymmetrischen Volumenstromverhältnisse führen nur für kleine Strömungsgeschwindigkeiten zu Verbesserungen der Mischgüte. Allerdings besitzen die Hälften des Mischkanals keine stöchiometrisch abgestimmten Stoffmengen, wie es bei einem Volumenstromverhältnis von 1:1 der Fall ist.

Des Weiteren werden zur Ermittlung von Verweilzeitspektren, Sprungmarkierungen durchgeführt. Dabei zeigt sich, dass es durch die in den Vortex- und Engulfment-Bereich vorherrschenden Sekundärströmungen zu einer engeren Verweilzeitverteilung kommt. Dies kann Vorteile bei den Selektivitäten bei durchzuführenden Reaktionen bringen. Modulationen der Einlassvolumenströme zeigen hier keinen prinzipiellen Vorteil.

Da selbst im Engulfment-Bereich die erzielten Vermischungen für technische Anwendungen nicht interessant sind, werden die Prinzipien, die zu einer stärkeren Vermischung führen, zur Optimierung der Geometrie verwendet. Dazu werden Zickzack-Kanäle mit verschiedenen Aspektverhältnissen untersucht. Dabei zeigt sich, dass bei den einzelnen Geometrien die zu Anfang vorherrschende Orientierung der Kontaktfläche sehr starken Einfluss auf die erzielbaren Vermischungen hat. Daher werden zwei Einlassgeometrien untersucht, die sich in der Anordnung der Einlasskanäle unterscheiden. Dabei zeigt sich, dass bei einem Versatz der beiden Einlasskanäle gegeneinander eine Drallströmung erzwungen wird, die eine spiralförmige Orientierung der Kontaktfläche zur Folge hat. Dadurch kann nachfolgend die Verwendung eines Zickzack-Kanal innerhalb kürzester Zeit bzw. auf kürzester Strecke zu einer vollständigen Vermischung führen.

Weiterhin werden erste Simulationen durchgeführt, die das reaktive Mischen bei ei-

ner Neutralisationsreaktion einer starken Säure mit einer starken Base berechnen. Die durch die klassische Modellierung des Quellterms auftretenden Probleme werden durch eine Vereinfachung für diffusionskontrollierte irreversible Reaktionen umgangen. Dabei wird zusätzlich der Fluoreszenz-Farbstoff Fluoreszein als weiterer passiver Skalar mit berechnet, um eine Validierung mit experimentell erhaltenen Daten möglich zu machen.

Darüber hinaus wurden die numerisch erhaltenen Tracerverteilungen bei einer mittleren Strömungsgeschwindigkeit von $1,4 \text{ m/s}$ auf diskreten Querschnitten mit experimentell ermittelten Verteilungen validiert. Dabei zeigten sich sehr gute Übereinstimmungen von numerischen und experimentellen Daten.

Da aufgrund der heutigen Leistungsfähigkeit von Rechnern die numerische Simulation von Vermischungen bei realistischen Schmidt-Zahlen nur bis zu einer Länge von ca. 2 mm für den Mischkanal eines T-Mikromischers möglich ist, ein realistischer Mischkanal aber eine Länge von ca. 20 mm besitzt, ist zusätzlich noch die Beschreibung auf dieser Länge erforderlich. Es ist daher notwendig Modelle zu entwickeln und zu implementieren, die eine Simulation dieses Gebiets, des sogenannten Reaktionsgebietes unter Berücksichtigung der erforderlichen Auflösung und Randbedingungen ermöglichen. Solche Modelle sind insbesondere auch für kommerzielle Strömungssimulationen in Mikrokanälen notwendig.

Ähnliche Überlegungen gelten für die weiterführende Optimierungen der Zickzack-Geometrie, weil auch hier bei realistischen Schmidt-Zahlen sehr viele Zellen zur Auflösung feinsten Skalen notwendig sind. Um daher mehrere Zickzack-Elemente berechnen zu können, muss hier eine geeignete Methode gefunden werden, um sowohl die konvektiven als auch die diffusiven Transportprozesse beim Durchlauf mehrerer Mischelemente adäquat zu beschreiben.

Ein dritter Schwerpunkt weiterführender Arbeiten kann die Simulation von endlich schnellen Reaktionen sein, wobei auch Folge- und Konkurrenzreaktionen zu berücksichtigen sein werden, da insbesondere diese Reaktionen geeignet erscheinen, aufgrund der auftretenden unterschiedlichen Selektivitäten Aufschluss auf unterschiedliche Vermischungsprozesse zu geben.

7 Symbolverzeichnis

Lateinische Zeichen

a,b	[-]	dimensionslose Konstante
A	[m ²]	Fläche
c	[-]	dimensionslose Konzentration
\bar{c}	[-]	Mittelwert der Konzentration
\hat{c}_P	[J/kg K]	massenspezifische Wärmekapazität
d	[m]	Längenskala
D	[m ² /s]	Diffusionskoeffizient
D	[-]	dimensionsloser Deformationsratentensor
d_H	[m]	hydraulischer Durchmesser
E(t)	[s ⁻¹]	relative Häufigkeit
f	[N]	äußere Kräfte
f	[s ⁻¹]	Frequenz
f	[-]	normierte Konzentration
F	[N]	Kraft
F(t)	[s ⁻¹]	Häufigkeitssummenfunktion
ΔH_R	[J/(mol K)]	Reaktionsenthalpie
I	[-]	Intensität
I_M	[-]	Intensität des Mischens
I_S	[-]	Intensität der Segregation
I	[-]	Identität
J	[kg/(m ² s)]	Fluss
k	[s ⁻¹]	Geschwindigkeitskonstante 1. Ordnung
L	[m]	Länge
n	[-]	dimensionsloser Normalenvektor

7 Symbolverzeichnis

p	[-]	dimensionsloser Druck
Q	[-]	dimensionsloser Wärmefluss
R	[mol/s]	Reaktionsrate
S	[mol/s]	Quellterm
S_d, S_c, S_u	[m]	Zellbreiten
\mathbf{S}	[-]	dimensionsloser Spannungstensor
t	[s]	Zeit
T	[K]	Temperatur
u, v, w	[m/s]	Geschwindigkeitskomponenten
U	[m/s]	Mittlere Geschwindigkeit
\mathbf{u}	[-]	dimensionsloser Geschwindigkeitsvektor
V	[m ³]	Volumen
∂V	[m ²]	Rand von V
x, y, z	[m]	Ortskomponente
\mathbf{x}	[m]	Ortsvektor
Y	[-]	Massenbruch

Griechische Symbole

α	[-]	Unterrelaxationsfaktor
α	[m ² /s]	Wärmeleitfähigkeit
ε	[W/kg]	Energiedissipation
η	[Pa s]	dynamische Viskosität
ϑ	[-]	dimensionslose Temperatur
Θ	[-]	Faktor
λ	[-]	Faktor
λ	[m]	Längenskala
ν	[m ² /s]	kinematische Viskosität
ϱ	[kg/m ³]	Dichte
σ^2	[mol ² /L ²]	Varianz
τ	[-]	dimensionslose Zeit
ϕ	[-]	Skalar
ϕ_W, ϕ_P, ϕ_E	[m]	Zellwerte bei W, P, E

Φ	$[m^{-1}]$	Potenzial für diffusives Mischen
--------	------------	----------------------------------

Tiefgestellte Indices

0	Referenz
B	Batchlor
D	Diffusion
f	Fläche
ges	gesamt
Geschw	Geschwindigkeit
hom	homogen
H	Hydraulisch
i	Laufzahl
j	Laufzahl
k	Laufzahl
max	Maximalwert
K	konvektiv
K	Kolmogorov
Konz	Konzentration
n	normal
np	Nachbarzelle
p	Zelle
q	Querrichtung
R	Reaktion
W	Wand

Hochgestellte Indices

*	modifiziert
'	skaliert
<i>i</i>	Zeitpunkt <i>i</i>
T	transponiert

Notation

$ \cdot $	Inhalt
$\ \cdot\ $	Euclidnorm

Dimensionslose Kennzahlen

Da_I	Dammköhler(I)	Zeitskala der Konvektion bezogen auf die Zeitskala der Reaktion
Da_{II}	Dammköhler(II)	Zeitskala der Diffusion bezogen auf die Zeitskala der Reaktion
Da_{III}	Dammköhler(III)	maximale Rate der Wärmeproduktion durch Reaktion bezogen auf die durch Konvektion antransportierter Wärmemenge
Ec	Eckert	Kinetischer zur thermischen Energie
Nu	Nusselt	Wärmeübergang bezogen auf Wärmeleitung
Pr	Prandtl	durch innere Reibung erzeugte Wärme bezogen auf die konvektiv antransportierte Wärmemenge
Re	Reynolds	Massenkraft bezogen auf Oberflächenkraft
Sc	Schmidt	Impulstransport zu Diffusionstransport

Literaturverzeichnis

- Aref, H. (1984). Stirring by chaotic advection. *Journal of Fluid Mechanics*, 143:1–21.
- Aubin, J., Fletcher, D. F., Joel, B., und Xuereb, C. (2003). Characterization of the Mixing Quality in Micromixers. *Chem. Eng. Technol.*, 26:1262–70.
- Aubin, J., Fletcher, D. F., und Xuereb, C. (2005). Design of micromixers using CFD modelling. *Chemical Engineering Science*, 60:2503–16.
- Baroud, C., Okkels, F., Menetrier, L., und Tabeling, P. (2003). Reaction-diffusion dynamics: Confrontation between theory and experiment in a microfluidic reactor. *Physical Review E*, 67 (6):Art.Nr. 060104 Part I.
- Bertsch, A., Heimgartner, S., Cousseau, P., und Renaud, P. (2001). Static micromixers based on large-scale industrial mixer geometry. *Lab on a Chip*, 1:56–60.
- Boss, J. (1986). Evaluation of the Homogeneity Degree of a Mixture. *Bulk solids handling*, 6:1207–15.
- Bothe, D. (2006). Evaluating the quality of a mixture: degree of homogeneity and scale of segregation. *in Vorbereitung*.
- Bothe, D., Stemich, C., und Warnecke, H.-J. (2004). Theoretische und experimentelle Untersuchungen der Mischvorgänge in T-förmigen Mikroreaktoren -Teil 1: Numerische Simulation und Beurteilung des Strömungsmischens. *Chemie Ingenieur Technik*, 76(10):1480–1484.
- Bothe, D., Stemich, C., und Warnecke, H.-J. (2006). Fluid mixing in a T-shaped micro-mixer. *Chemical Engineering Science*, 61:2950–2958.
- Camesasca, M., Manas-Zloczower, I., und Kaufmann, M. (2005). Entropic characterization of mixing in microchannels. *J. Micromech. Microeng.*, 15:2038–2044.

- Courant, R., Friedrichs, K., und Lewy, H. (1928). Über die partiellen Differenzgleichungen der mathematischen Physik. *Mathematische Annalen*, 100:32–74.
- Danckwerts, P. (1952). The Definition and Measurement of some characteristics of mixtures. *Appl. Sci. Res. A*, 3:279–97.
- Dean, W. (1928). Fluid Motion in a Curved Channel. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 121:402–20.
- Denbigh, K. und Turner, J. (1971). *Einführung in die chemische Reaktionstechnik*. Verlag Chemie, Heidelberg.
- Ehlers, S., Elgeti, K., Menzel, T., und Wießmeier, G. (2000). Mixing in the offstream of a microchannel system. *Chem. Eng. Proc.*, 39:291–8.
- Engler, M., Kockmann, N., Kiefer, T., und Woias, P. (2004). Numerical and Experimental Investigations on Liquid Mixing in Static Micro Mixers. *Chemical Engineering Journal*, 101:315–22.
- Fitzer, E. und Fritz, W. (1989). *Technische Chemie*. Springer Verlag, Berlin.
- Fletcher, P., Haswell, S., Pombo-Villar, E., Warrington, B., Watts, P., Wong, S., und Zhang, X. (2002). Micro reactors: principles and applications in organic synthesis. *Tetrahedron*, 58:4735–58.
- Fluent Inc. (2003). *Fluent 6.1 Documentaion*. Fluent Deutschland GmbH.
- Fluent Inc. (2005). *Fluent 6.2 Documentaion*. Fluent Deutschland GmbH.
- Foli, K., Okabe, T., Olhofer, M., Jin, Y., und Sendhoff, B. (2006). Optimization of micro heat exchanger: CFD, analytical approach and multi-objective evolutionary algorithms. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 49:1090–1099.
- Fournier, M., Falk, L., und Villermaux, J. (1996). A new parallel compending reaction system for assessing micromixing efficiency. Experimental approach. *Chemical Engineering Science*, 51:5053–5064.

- Fu, Y., Harvey, E., Ghantasala, M., und Spinks, G. (2006). Design, fabrication and testing of piezoelectric polymer PVDF microactuators. *Smart Materials and Structures*, 15:141–146.
- Gad-el Hak, M. (1999). The Fluid Mechanics of Microdevices-The Freeman Scholar Lecture. *Journal of Fluid Engineering*, 121:5–33.
- Gad-el Hak, M. (2004). Transport phenomena in microdevices. *ZAMM*, 84:494–8.
- Gobby, D., Angeli, P., und Gavriilidis, A. (2001). Mixing Characteristics of T-type microfluidic mixers. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 11:126–32.
- Guichardon, P. und Falk, L. (2000). Characterisation of micromixing efficiency by the iodide-iodate reaction system. Part I: experimental procedure. *Chemical Engineering Science*, 55:4233–43.
- Guichardon, P., Falk, L., und Villermaux, J. (2000). Characterisation of micromixing efficiency by the iodide-iodate reaction system. Part II: kinetic study. *Chemical Engineering Science*, 55:4245–53.
- Guo, Z.-Y. und Li, Z.-X. (2003). Size effect on microscale single-phase flow and heat transfer. *Int. J. Heat and Mass Transfer*, 46:149–59.
- Herwig, H. (2002). Flow and Heat Transfer in Micro Systems: Is Everything Different or Just Smaller? *ZAMM*, 82:579–586.
- Herwig, H. und Hausner, O. (2003). Critical view on new results in micro-fluid mechanics an example. *Int. J. Heat and Mass Transfer*, 46:935–7.
- Hessel, V. und Löwe, H. (2002). Mikroverfahrenstechnik: Komponenten-Anlagenkonzeption-Anwenderakzeptanz-Teil 1-3. *Chemie Ingenieur Technik*, 74:17–30, 185–207, 381–400.
- Hessel, V. und Löwe, H. (2003). Microchemical Engineering: Components, Plant Concepts, User Acceptance - Part I+II. *Chemical Engineering Technology*, 26:13–24 und 391–406.
- Hessel, V., Löwe, H., Müller, A., und Kolb, G. (2005a). *Chemical Micro Process Engineering*. WILEY-VCH Verlag, Weinheim.

- Hessel, V., Löwe, H., und Schönfeld, F. (2005b). Micromixers—a review on passive and active mixing principles. *Chemical Engineering Science*, 60:2479–501.
- Himmel, K. und Schierholz, W. F. (2004). Mischvorgänge: Klassische Methoden und Computational Fluid Dynamics in der industriellen Praxis. *Chemie Ingenieur Technik*, 76:212–19.
- Hoffmann, M., Raebiger, N., Schlueter, M., Blazy, S., Bothe, D., Stemich, C., und Warnecke, H.-J. (2003). Experimental and numerical Investigations of T-shaped Micromixers. In *VDI-GVC 11th European Conf. on Mixing, Bamberg*, pages 269–76.
- Hoffmann, M. und Schlüter, M. (2006). Experimental characterization of micro mixers using microscale-laser induced fluorescence and particle image velocimetry. In *4th International Conference on Nanochannels, Microchannels and Minichannels, Limerick*.
- Hoffmann, M., Schlueter, M., und Raebiger, N. (2006). Experimental investigation of liquid-liquid mixing in T-shaped micro-mixers using μ -LIF and μ -PIV. *Chemical Engineering Science*, 61:2968–2976.
- Jakubith, M. (1998). *Grundoperationen und chemische Reaktionstechnik*. Wiley-VCH.
- Jensen, K. (1998). Smaller, faster chemistry. *Nature*, 393:735–7.
- Jensen, K. und Seeberger, P. (2005). Mikroreaktoren zur Synthese und Reaktionsoptimierung. *Nachrichten aus der Chemie*, 53:628–32.
- Karlsruhe, F. (2002). *Nachrichten Mikrotechnik*. Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe.
- Kawai, K., Ebata, T., und Kitazume, T. (2005). The synthesis of fluorinated materials in microreactors. *Journal of Fluorine Chemistry*, 126:956–61.
- Keoschkerjan, R., Richter, M., Boskovic, D., Schnurer, F., und Lobbecke, S. (2004). Novel multifunctional microreaction unit for chemical engineering. *Chemical Engineering Journal*, 101:469–475.

- Kim, D., Lee, S., Kwon, T., und Lee, S. (2004). A barrier embedded chaotic micro-mixer. *J. Micromech. Microeng.*, 14:798–805.
- Kockmann, N., Föll, C., und Woias, P. (2003). Flow regimes and mass transfer characteristics in static micro mixers. In *Photonics West, Micromachining and Microfabrication, San Jose, USA*, pages 4982–38.
- Koo, J. und Kleinstreuer, C. (2003). Liquid flow in microchannels: experimental observations and computational analyses of microfluidics effects. *J. Micromech. Microeng.*, 13:568–79.
- Koo, J. und Kleinstreuer, C. (2004). Viscous dissipation effects in microtubes and microchannels. *Int. J. Heat and Mass Transfer*, 47:3159–69.
- Löb, P., Löwe, H., und Hessel, V. (2004). Fluorinations, chlorinations and brominations of organic compounds in micro reactors. *Journal of Fluorine Chemistry*, 125:1677–94.
- Leonard, B. (1979). A stable and accurate convective modelling procedure based on quadratic upstream interpolation. *Computer methods in applied mechanics and engineering*, 19:59–79.
- Leonard, B. (1995). Order of accuracy of QUICK and related convection-diffusion schemes. *Appl. Math. Modelling*, 19:640–653.
- Leonard, B., MacVean, M., und Lock, A. (1995). The flux integral method for multidimensional convection and diffusion. *Applied Mathematic Modelling*, 19:333–342.
- Levenspiel, O. (1999). *Chemical Reaction Engineering*. John Wiley & Sons, New York.
- Liu, C. und Lee, D. (1999). Micromixing effects in a couette flow reactor. *Chemical Engineering Science*, 54:2883–2888.
- Liu, R., Yang, J., Pindera, M., Athavale, M., und Grodzinski, P. (2002). Bubble-induced acoustic micromixing. *Lab on a Chip*, 2:151–157.

- Lu, L.-H., Ryu, K., und Liu, C. (2002). A Magnetic Microstirrer and Array for Microfluidic Mixing. *Journal of Microelectromechanical Systems*, 11(5):462–470.
- Löwe, H. (2005). Probetrieb einer Anlage zur Herstellung von Nitroglycerin in einem mikrostrukturierten Reaktor erfolgreich abgeschlossen. *Pressemitteilung IMM*.
- MacInnes, J., Chen, Z., und Allen, R. (2005). Investigation of alternating-flow mixing in microchannels. *Chemical Engineering Science*, 60:3453–67.
- Mackley, A. (1987). Using oscillatory flow to improve performance. *The Chemical Engineer*, February:18–20.
- Mackley, M. und Stonestreet, P. (1995). Heat Transfer and Associated Energy Dissipation for oscillatory Flow in baffled Tubes. *Chemical Engineering Science*, 50:2211–24.
- Marchisio, D. und Barresi, A. A. (2003). CFD simulation of mixing and reaction: the relevance of the micro-mixing model. *Chemical Engineering Science*, 58:3579–87.
- Mauger, C., Buisine, O., Caravieilles, S., und Mignani, G. (2005). Successful application of microstructured continuous reactor in the palladium catalysed aromatic amination. *Journal of Organometallic Chemistry*, 690:3627–3629.
- McLeod, E. (1963). *Introduction to fluid mechanics*. Pergamon Press, Oxford.
- Mengenaud, V., Josserand, J., und Girault, H. (2002). Mixing Processes in a Zigzag Microchannel: Finite Element Simulations and Optical Study. *Anal. Chem.*, 74:4279–86.
- Mizuno, Y. und Funakoshi, M. (2004). Chaotic mixing caused by an axially periodic steady flow in a partitioned-pipe mixer. *Fluid Dynamics Research*.
- Moctar, A. O. E., Aubry, N., und Batton, J. (2003). Electro-hydrodynamic microfluidic mixer. *Lab on a Chip*, 3:273–280.
- Mohr, W., Saxton, R., und Jepson, C. (1957). Mixing in Laminar-Flow Systems. *Industrial and Engineering Chemistry*, 49:1855–6.

- Morini, G. L. (2005). Viscous heating in liquid flows in micro-channels. *Int. J. Heat and Mass Transfer*, 48:3637–47.
- Munsterer, T. und Jähne, B. (1998). LIF measurements of concentration profiles in the aqueous mass boundary layer. *Experiments in Fluids*, 25:190–196.
- Muralidhar, K. und Biswas, G. (1996). *Advanced Engineering Fluid Mechanics*. Narosa Publishing House, London.
- Nagasawa, H., Aoki, N., und Mae, K. (2005). Design of a new micromixer with instant mixing based on the collision of micro segments. *Chemical Engineering Technology*, 28(3):324–330.
- Nguyen, N.-T. und Wu, Z. (2005). Micromixers—a review. *J. Micromech. Microeng.*, 15:1–16.
- Niu, X. und Lee, Y.-K. (2003). Efficient spatial-temporal chaotic mixing in micro-channels. *J. Micromech. Microeng.*, 13:454–62.
- Ogawa, K. und Ito, S. (1975). A definition of quality of mixedness. *Journal of Chemical Engineering of Japan*, 8:148–151.
- Ookawara, S., Street, D., und Ogawa, K. (2006). Numerical study on development of particle concentration profiles in a curved microchannel. *Chemical Engineering Science*, 61:3714–3724.
- Ottino, J., Ranz, W., und Macosko, C. (1979). A Lamellar Modell for Analysis of Liquid-Liquid Mixing. *Chemical Engineering Science*, 34:877–90.
- Panic, S., Loebbecke, S., Tuercke, T., Antes, J., und Boskovic, D. (2003). Experimental approaches to a better understanding of mixing performance of microfluidic devices. *Chemical Engineering Journal*, 101:409–419.
- Pennemann, H., Watts, P., Haswell, S., Hessel, V., und Löwe, H. (2004). Benchmarking of Microreactor Applications. *Organic Process Research & Development*, 8:422–39.
- Peyret, R. und Taylor, T. D. (1985). *Computational methods for fluid flow*. Springer Verlag, New York.

- Rielly, C., Smith, D., Lindley, J., K., N., und Rhillips, V. (1994). Mixing processes for Agricultural and Food Materials: Part 4, Assessment and Monitoring of Mixing Systems. *J. agric. Engng Res.*, 59:1–18.
- Roessler, A. und Rys, P. (2001). Wenn die Rührergeschwindigkeit die Produktverteilung bestimmt. *Chemie in unserer Zeit*, 35(5):314–323.
- Rose, H. (1959). A suggested equation relation to the mixing of powders and its application to the study of the performance of certain types of machine. *Trans. Inst. Chem. Engineers*, 37:47–64.
- Rys, P. (1992). The mixing-sensitive product distribution of chemical reactions. *Chimia*, 46:469–476.
- Schmitz, G. (2000). Kinetics of the Dushman reaction at low I^- concentrations. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2:4041–4.
- Schönfeld, F., Hessel, V., und Hofmann, C. (2004). An optimised split-and-recombine micro-mixer with uniform chaotic mixing. *Lab on a Chip*, 4:65–69.
- Schönung, B. E. (1990). *Numerische Strömungsmechanik*. Springer Verlag, Berlin.
- Schubert, Brandner, Fichtner, Linde, Schygulla, und Wenka (2001). Microstructure devices for applications in thermal and chemical process engineering. *Microscale Thermophysical Engineering*, 5:17–39.
- Spencer, R. und Wiley, R. (1951). The Mixing of very viscous liquids. *Journal of Colloid Science*, 6:133–43.
- Spurk, J. (1996). *Strömungslehre*, volume 4. Springer Verlag, Heidelberg.
- Stone, H., Stroock, A., und Ajdari, A. (2004). Engineering Flows in small devices: Microfluidics toward a Lab-on-a-Chip. *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 36:381–411.
- Stroock, A., Dertinger, S., Ajdari, A., Mezic, I., Stone, H., und Whitesides, G. (2002). Chaotic Mixer for Microchannels. *Science*, 295:647–51.
- Szalai, E., Kukura, J., Arratia, P., und Muzzio, F. (2003). Effect of Hydrodynamics on Reactive Mixing in Laminar Flows. *AIChE Journal*, 49:168–79.

- Thuesdale, V., Luther, G., und Greenwood, J. (2003). The kinetics of iodine disproportionation: a system of parallel second-order reactions sustained by a multi-species pre-equilibrium. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 5:3428–35.
- Tiwari, P. (2006). Three-dimensional fluid mechanics of particulate two-phase flows in U-bend and helical conduits. *Physics of Fluids*, 18:043304–1 – 043304–18.
- Toor, H. und Chiang, S. (1959). Diffusion-controlled Chemical Reactions. *AIChE Journal*, 5:339–44.
- Tsukamoto, T. und Imai, R. (2006). Thermal characteristics of a high heat flux micro-evaporator. *Experimental Thermal and Fluid Science*, in press.
- Tucker III, C. und Peters, G. (2003). Global measures of distributive mixing and their behavior in chaotic flows. *Korea-Australia Rheology Journal*, 15:197–208.
- Versteeg, H. K. und Malakasekera, W. (1995). *An introduction to Computational FLUID DYNAMICS*. Pearson Education, Harlow.
- West, J., Karamata, B., Lillis, B., Gleeson, J., Alderman, J., Collins, J., Lane, W., Mathewson, A., und Berney, H. (2002). Application of magnetohydrodynamic actuation to continuous flow chemistry. *Lab on a Chip*, 2:224–230.
- Whitaker, S. (1968). *Introduction to fluid mechanics*. Prentice-Hall, Englewood.
- Wiles, C., Watts, P., Haswell, S., und Pombo-Villar, E. (2005). The preparation and reaction of enolates within micro reactors. *Tetrahedron*, 61:10757–10773.
- Winnacker und Kückler (2004). *Chemische Technik: Prozesse und Produkte*. Wiley-VCH.
- Wong, S., Ward, M., und Wharton, C. (2004). Micro T-mixer as a rapid mixing micromixer. *Sensors and Actuators B*, 100:359–79.
- Xu, B., Ooi, K., Mavriplis, C., und Zaghoul, M. (2003). Evaluation of viscous dissipation in liquid flow in microchannels. *J. Micromech. Microeng.*, 13:53–7.
- Y. Yamaguchi, Y., Ogura, D., Yamashita, K., Miyazaki, M., Nakamura, H., und Maedaa, H. (2006). A method for DNA detection in a microchannel: Fluid dynamics phenomena and optimization of microchannel structure. *Talanta*, 68:700–707.

Yang, Z., Matsumoto, S., Goto, H., Matsumoto, M., und Maeda, R. (2001). Ultrasonic micromixer for microfluidic systems. *Sensors and Actuators*, A93:266–272.

Yoshida, J., Nagaki, A., Iwasaki, T., und Suga, S. (2005). Enhancement of Chemical Selectivity by Microreactors. *Chem. Eng. Technol.*, 28:259–65.

A Anhang

A.1 Herleitung: Kanalströmung

Navier-Stokes'sche Gleichungen:

$$\frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + \vec{u} \cdot \nabla \vec{u} = -\frac{1}{\rho} \cdot \nabla p + \nu \Delta \vec{u} \quad (\text{A.1})$$

$$\nabla \cdot \vec{u} = 0 \quad (\text{A.2})$$

Geometrie:

$$G = A \times R = \{(x, y, z) : (x, y) \in A, z \in R\}$$

Hauptbedingungen:

$$\vec{u} = 0 \quad (\text{A.3})$$

auf ∂G

Ansatz:

axiale Geschwindigkeit und zeitunabhängig

$$\vec{u}(\vec{x}, t) = (0, 0, w(x, y, z)) \quad (\text{A.4})$$

Einsetzen der Gleichung (A.4) in die Navier-Stokes'schen Gleichungen:

$$\left. \begin{array}{l} 0 = -\frac{1}{\rho} \cdot \frac{\partial p}{\partial x} \\ 0 = -\frac{1}{\rho} \cdot \frac{\partial p}{\partial y} \end{array} \right\} \implies p = p(z, t) \quad (\text{A.5})$$

A Anhang

$$w \cdot \frac{\partial w}{\partial z} = -\frac{1}{\varrho} \cdot \frac{\partial p}{\partial z} + \nu \cdot \Delta w = 0 \quad (\text{A.6})$$

Da $\frac{\partial w}{\partial z} = 0$ (Nebenbedingung (Gleichung A.2))

$$\implies w = w(x, y)$$

$$\implies \left(\frac{\partial^2 w}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 w}{\partial y^2} \right) = \frac{1}{\eta} \cdot \frac{\partial p}{\partial z} \quad (\text{A.7})$$

Getrennte Variablen:

$$\underbrace{\frac{1}{\eta} \cdot \frac{\partial p}{\partial z} = \text{const}} = \left(\frac{\partial^2 w}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 w}{\partial y^2} \right) \quad (\text{A.8})$$

$$p(z) = p_0 + \frac{p_L - p_0}{L} \cdot z \quad (\text{A.9})$$

$$\text{Sei } \Delta p \doteq p_0 - p_L > 0 \implies \frac{\partial p}{\partial z} = -\frac{\Delta p}{L}$$

\implies Es bleibt noch zu lösen:

$$\begin{aligned} \Delta w &= -\frac{\Delta p}{\eta \cdot L} & \forall (x, y) \in A \\ w &= 0 & \forall (x, y) \in \partial A \end{aligned}$$

Ersatzproblem:

Es reicht aus:

$$\begin{aligned} \Delta w &= 1 & \forall (x, y) \in A \\ w &= 0 & \forall (x, y) \in \partial A \end{aligned}$$

\implies Finde die Eigenfunktionen und Eigenwerte von Δ_D , d.h. löse die Gleichungen:

$$\Delta u = \lambda \cdot u \quad (\text{A.10})$$

$$u = 0 \quad (\text{A.11})$$

Ansatz: "Separation der Variablen"

Sei $u(x, y) = v(x) \cdot w(y)$

Eingesetzt in Gleichung A.10:

$$\implies v''(x) \cdot w(y) + w''(y) \cdot v(x) = \lambda \cdot v(x) \cdot w(y) \quad (\text{A.12})$$

$$\frac{v''(x)}{v(x)} + \frac{w''(y)}{w(y)} = \lambda \quad (\text{A.13})$$

$$\frac{v''(x)}{v(x)} = \lambda - \frac{w''(y)}{w(y)} = \text{const} = \mu \quad (\text{A.14})$$

Zwei Teilprobleme:

$$\bullet v''(x) - \mu \cdot v(x) = 0 \quad (\text{A.15})$$

für $0 < x < d_1$

$$\text{mit } v(0) = v(d_1) = 0 \quad (\text{A.16})$$

$$\bullet w''(y) - (\lambda - \mu) \cdot w(y) = 0 \quad (\text{A.17})$$

für $0 < y < d_2$

$$\text{mit } w(0) = w(d_2) = 0 \quad (\text{A.18})$$

1. Teilproblem:

$$\bullet \mu = 0 \implies v''(x) = 0$$

$$\implies v(x) = a + b \cdot x$$

$$\text{mit Randbedingungen: } \implies v \equiv 0$$

$$\implies \text{keine Eigenfunktion}$$

$$\bullet \mu > 0 \implies v''(x) = \mu \cdot v(x)$$

$$\implies v(x) = a \cdot e^{\omega x} + b \cdot e^{-\omega x}, \text{ mit } \omega^2 = \mu$$

$$\text{mit Randbedingungen: } \implies v \equiv 0$$

$$\implies \text{keine Eigenfunktion}$$

$$\bullet \mu < 0 \implies v''(x) = \mu \cdot v(x)$$

$$\implies v(x) = a \cdot \sin \omega x + b \cdot \cos \omega x,$$

$$\text{mit } \mu = -\omega^2, \omega > 0$$

$$1. \text{ Randbedingung: } v(0) = 0$$

$$v(0) = a \cdot \sin \omega \cdot 0 + b \cdot \cos \omega \cdot 0 = 0$$

$$0 + b \cdot 1 = 0$$

$$b = 0$$

$$\implies v(x) = a \cdot \sin \omega \cdot x$$

$$2. \text{ Randbedingung: } v(d_1) = 0$$

$$\begin{aligned}
 v(d_1) &= a \cdot \sin \omega \cdot d_1 = 0 \\
 \sin \omega \cdot d_1 &= 0 \\
 \omega \cdot d_1 &= m \cdot \pi (\forall m \in N) \\
 \omega &= \frac{m \cdot \pi}{d_1}
 \end{aligned}$$

$$\implies v_m(x) = a_m \cdot \sin\left(\frac{m \cdot \pi}{d_1} \cdot x\right)$$

$$\text{Da } -\omega^2 = \mu \implies \mu_m = -\frac{m^2 \cdot \pi^2}{d_1^2}$$

2. Teilproblem:

$$\begin{aligned}
 w''(y) - (\lambda - \mu) \cdot w(y) &= 0 \\
 \text{mit } w(0) = v(d_2) &= 0
 \end{aligned}$$

Sei $\lambda - \mu = \kappa \implies$

$$w''(y) - \kappa \cdot w(y) = 0$$

Analog: $w_n(y) = b_n \cdot \sin\left(\frac{n \cdot \pi}{d_2} \cdot y\right), \forall n \in N$

$$\begin{aligned}
 \kappa_n &= -\frac{n^2 \cdot \pi^2}{d_2^2} = \lambda_{m,n} - \mu_m \\
 -\frac{n^2 \cdot \pi^2}{d_2^2} &= \lambda_{m,n} - \left(-\frac{m^2 \cdot \pi^2}{d_1^2}\right) \\
 \lambda_{m,n} &= -\frac{m^2 \cdot \pi^2}{d_1^2} - \frac{n^2 \cdot \pi^2}{d_2^2}
 \end{aligned} \tag{A.19}$$

Eigenwerte $\forall n, m \in N$

Eigenfunktion:

$$u_{m,n}(x, y) = C_{m,n} \cdot \sin\left(\frac{m \cdot \pi}{d_1} \cdot x\right) \cdot \sin\left(\frac{n \cdot \pi}{d_2} \cdot y\right) \quad (\text{A.20})$$

Finde $C_{m,n}$, so dass $u(x, y) = \sum_{m,n} u_{m,n}(x, y)$ und $\Delta u = 1$ erfüllt ist.

$$\implies \Delta u = \sum_{m,n} C_{m,n} \cdot \Delta u_{m,n} = \sum_{m,n} C_{m,n} \cdot \lambda_{m,n} u_{m,n}$$

$$\Delta u = \sum_{m,n} C_{m,n} \cdot \lambda_{m,n} \cdot \sin\left(\frac{m \cdot \pi}{d_1} \cdot x\right) \cdot \sin\left(\frac{n \cdot \pi}{d_2} \cdot y\right) = 1 \quad (\text{A.21})$$

Idee:

Multiplizieren mit $\sin\left(\frac{k \cdot \pi}{d_1} \cdot x\right)$

Multiplizieren mit $\sin\left(\frac{l \cdot \pi}{d_2} \cdot y\right), \forall k, l \in \mathbb{N}$

Integrieren über $\int_0^{d_1} \int_0^{d_2} dx \cdot dy$

$$\begin{aligned} & \sum_{m,n} C_{m,n} \cdot \lambda_{m,n} \cdot \int_0^{d_1} \left(\sin\left(\frac{m \cdot \pi}{d_1} \cdot x\right) \cdot \sin\left(\frac{k \cdot \pi}{d_1} \cdot x\right) \right) dx \\ & \quad \cdot \int_0^{d_2} \left(\sin\left(\frac{n \cdot \pi}{d_2} \cdot y\right) \cdot \sin\left(\frac{l \cdot \pi}{d_2} \cdot y\right) \right) dy \\ & = \int_0^{d_1} \int_0^{d_2} \sin\left(\frac{k \cdot \pi}{d_1} \cdot x\right) \cdot \sin\left(\frac{l \cdot \pi}{d_2} \cdot y\right) dx dy \end{aligned} \quad (\text{A.22})$$

Für den Fall, dass k, l ungerade Zahlen sind, vereinfacht sich die rechte Seite der Gleichung zu $\frac{2d_1}{k \cdot \pi} \cdot \frac{2d_2}{l \cdot \pi}$.

Die linke Seite der Gleichung wird zerlegt und eine Fallunterscheidung durchgeführt:

$$\int_0^{d_1} \sin\left(\frac{m \cdot \pi}{d_1} \cdot x\right) \cdot \sin\left(\frac{k \cdot \pi}{d_1} \cdot x\right) dx = \begin{cases} 0, k \neq m \\ \frac{d_1}{2}, k = m \end{cases} \quad (\text{A.23})$$

$$\int_0^{d_2} \sin\left(\frac{n \cdot \pi}{d_2} \cdot y\right) \cdot \sin\left(\frac{l \cdot \pi}{d_2} \cdot y\right) dy = \begin{cases} 0, l \neq n \\ \frac{d_2}{2}, l = n \end{cases} \quad (\text{A.24})$$

\Rightarrow

$$C_{k,l} \cdot \lambda_{k,l} \cdot \frac{d_1}{2} \cdot \frac{d_2}{2} = \frac{2d_1}{k \cdot \pi} \cdot \frac{2d_2}{l \cdot \pi}$$

$$C_{k,l} \cdot \left(-\frac{k^2 \cdot \pi^2}{d_1^2} - \frac{l^2 \cdot \pi^2}{d_2^2}\right) \cdot \frac{d_1}{2} \cdot \frac{d_2}{2} = \frac{2d_1}{k \cdot \pi} \cdot \frac{2d_2}{l \cdot \pi}$$

$$C_{k,l} = -\frac{16 \cdot d_1^2 \cdot d_2^2}{\pi^4 \cdot k \cdot l \cdot (k^2 \cdot d_2^2 + l^2 \cdot d_1^2)}$$

Lösung einsetzen in die Eigenfunktion.

$$u(x, y) = \sum_{k,l}^{\infty} -\frac{16 \cdot d_1^2 \cdot d_2^2}{\pi^4 \cdot k \cdot l \cdot (k^2 \cdot d_2^2 + l^2 \cdot d_1^2)} \cdot \sin\left(\frac{k \cdot \pi}{d_1} \cdot x\right) \cdot \sin\left(\frac{l \cdot \pi}{d_2} \cdot y\right) \quad (\text{A.25})$$

$$w(x, y) = \frac{\Delta p}{\eta \cdot L} \sum_{k,l}^{\infty} \frac{16 \cdot d_1^2 \cdot d_2^2}{\pi^4 \cdot k \cdot l \cdot (k^2 \cdot d_2^2 + l^2 \cdot d_1^2)} \cdot \sin\left(\frac{k \cdot \pi}{d_1} \cdot x\right) \cdot \sin\left(\frac{l \cdot \pi}{d_2} \cdot y\right) \quad (\text{A.26})$$

$$\forall k, l \in U$$

Setzt man nun für die Druckdifferenz die Gleichung für den Druckverlust in glatten Rohren mit laminarer Strömung ein ($\Delta p_w^{lam} = \frac{32 \cdot \bar{u} \cdot \eta \cdot L}{d^2}$), so erhält man näherungsweise das Geschwindigkeitsprofil in Abhängigkeit der mittleren Eingangsgeschwindigkeit:

$$w(x, y) = \frac{128 \cdot \bar{u}}{\pi^4} \sum_{k,l}^{\infty} \frac{(d_1 + d_2)^2}{k \cdot l \cdot (k^2 \cdot d_2^2 + l^2 \cdot d_1^2)} \cdot \sin\left(\frac{k \cdot \pi}{d_1} \cdot x\right) \cdot \sin\left(\frac{l \cdot \pi}{d_2} \cdot y\right) \quad (\text{A.27})$$

$$\forall k, l \in U$$

Die mit diesem Geschwindigkeitsprofil ermittelten Werte sind mit einem Fehler behaftet. Um diesen Wert wird im Folgenden daher der Vorfaktor erniedrigt:

$$w(x, y) = \frac{119.003 \cdot \bar{u}}{\pi^4} \sum_{k,l}^{\infty} \frac{(d_1 + d_2)^2}{k \cdot l \cdot (k^2 \cdot d_2^2 + l^2 \cdot d_1^2)} \cdot \sin\left(\frac{k \cdot \pi}{d_1} \cdot x\right) \cdot \sin\left(\frac{l \cdot \pi}{d_2} \cdot y\right) \quad (\text{A.28})$$

$$\forall k, l \in U$$

A.2 Quellcode udf.c

```

/* -----*/
/*
/*           Ausgabe SPP 1141
/*           22.08.2005
/* -----*/
#include "udf.h"
#include "para.h"
#include "prf.h"

#if IRP_NODE
    #ifndef PRF_GISUM
        #define PRF_GISUM(a, b, c)
    #endif
    #ifndef PRF_GRSUM
        #define PRF_GRSUM(a, b, c)
    #endif
    #ifndef PRF_GRHIGH
        #define PRF_GRHIGH(a, b, c)
    #endif
#endif

void FINDSCHICHT(int nmax);
void SCHICHTNEU(int nmax);
void DRUCKVERLAUF(int nmax);
void ZEITSCHRITTW();
void VOLUMENFUNKTIONEN(int nmax);
int  SCHRITTW();
double ZEITDELTA();
real  BERECHUQUER();

/* -----*/
double breiteMischk   = 200e-6;
double hoeheMischk   = 100e-6;
double laengeMischk  = 1600e-6;

double schichtIntervall = 10e-6;
double alletaurus      = 0.1;
double minKante        = 2.5e-6; /* später berechnen lassen */

double uquer           = 1.4;

double viskos          = 1.00361e-6;

int  IDOUT             = 5;

int  tracer            = 1;
int  stroemung         = 1;

real DickeSchicht[161];

/* -----*/
DEFINE_ON_DEMAND(vor)
{
    int nmax = (int)(laengeMischk / (schichtIntervall) + 0.5);
    FINDSCHICHT(nmax);
}

#if (!PARALLEL || RP_HOST)

```

A Anhang

```
        ZEITSCHRITTW());
#endif
        /*VOLUMENFUNKTIONEN(nmax);*/

}
/* -----*/
DEFINE_DELTAT(waehrend, domain)
{
    real zeit = ZEITDELTA();
    int zeitschritt = RP_Get_Integer("time-step");
    int nmax = (int)(laengeMischk / (schichtIntervall) + 0.5);
    int schritt = SCHRITTW();

    if( ((zeitschritt % schritt) == 0) && (zeitschritt != 0) )
    {
        SCHICHTNEU(nmax);
        VOLUMENFUNKTIONEN(nmax);
    }

    return zeit;
}
/* -----*/
DEFINE_ON_DEMAND(nach)
{
    int nmax = (int)(laengeMischk / (schichtIntervall) + 0.5);
    SCHICHTNEU(nmax);
    /* DRUCKVERLAUF(nmax);*/
    VOLUMENFUNKTIONEN(nmax);
}
/* -----*/
DEFINE_PROFILE(invel, thread, index)
{
    #if !HOST
        const double pi = 3.14159265359;
        double wert = 0;
        double vorf = 0;
        double x[ND_ND];
        face_t f;
        int k = 0;
        int l = 0;
        int kmax = 5;
        int lmax = 5;
        double d1 = 0.0001;
        double d2 = 0.0001;    begin_f_loop(f, thread);
        {
            F_CENTROID(x, f, thread);
            for (k = 0; k <= kmax; k++)
            {
                for(l=0; l<= lmax; l++)
                {
                    wert += sin((2*k+1)*pi*x[0]/d1) * sin((2*l+1)*pi*x[1]/d2)
                        / ((2*k+1)*(2*l+1)*((2*k+1)*(2*k+1)*d2*d2+(2*l+1)*(2*l+1)*d1*d1));
                }
            }
            vorf = 113.549 * uquer * (d1 + d2) * (d1 + d2) / (pow(pi,4));    F_PROFILE(f, thread,
index) = vorf * wert;
            wert = 0;
        }
    }
}
```

```

    end_f_loop(f, thread);
#endif
}

/* -----*/
DEFINE_DIFFUSIVITY(Diffusionskoeff, c, t, i)
{
#ifdef IHOST

    real diffkoeff = 0;

    if(C_Yl(c,t,0) >= 0.5)
    {
        diffkoeff = 3.336e-09;
    }
    else
    {
        diffkoeff = 2.128e-09;
    }

    return diffkoeff;

#endif

}

/* -----*/
/* -----*/
void FINDSCHICHT(int nmax)
{

    int *Counter; /* PARALLEL UND Seriell und HOST */
    int anzahl = 0;
    int *tmpArray;
    real *tmp2Array;

#ifdef IHOST /* Parallel und Serial */ Domain *domain = Get_Domain(1);
    Thread *t = Lookup_Thread(domain,2);
    cell_t c;
    Node *node;
    real (*x_Array)[ND_ND];
    int n_cells = 0;
    int n_cell_min = 10e6;
    int n = 0;
    int nummer = 0;
    real abstand = 10e6;
    real knotenkoord[8];
    real diff[8];

#endif /* IHOST */

#ifdef IHOST
    n_cells = THREAD_N_ELEMENTS_INT(t); /* Anzahl Zellen auf diesem Knoten */
    anzahl = nmax + 1; /* Anzahl Schichten auf diesem Knoten */
/* die Null wird nicht
mitbenutzt */
    x_Array = (real (*)[ND_ND])malloc(ND_ND * n_cells * sizeof(real));
/* Array für die Koordinaten */

```

A Anhang

```
Counter    = (int * )malloc(anzahl * sizeof(int));
            /* Array für die Anzahl Zellen pro Schicht */
tmpArray   = (int * )malloc(anzahl * sizeof(int));
tmp2Array  = (real * )malloc(anzahl * sizeof(real));
for(n = 0; n < anzahl; n ++){Counter[n] = 0;tmpArray[n]=0;DickeSchicht[n] = 0;tmp2Array[n]=0;}
for(n = 0; n < 8; n ++){diff[n] = 0; knotenkoord[n] = 0;}
#endif /* !HOST */

#if !HOST
begin_c_loop_int(c,t)
{
    if( c < n_cell_min) {n_cell_min = c;}
    abstand = 10e6;

    C_CENTROID(x_Array[c],c,t);

    if( (x_Array[c][2] <= (0.5 * breiteMischk))
        && (x_Array[c][2] >= -(0.5 * breiteMischk))
        {
            c_node_loop(c,t,nummer)
            {
                node = C_NODE(c,t,nummer);
                knotenkoord[nummer-1] = NODE_X(node);
            }

            for(n=0;n<8;n++)
            {
                diff[n] = fabs(knotenkoord[0] - knotenkoord[n]);
            }
            for(n=0;n<8;n++)
            {
                if(diff[n] != 0)
                {
                    if(diff[n] < abstand) {
                        abstand = diff[n];
                    }
                }
            }
        }

    C_UDMI(c,t,0) = 0;          /* Schichteinteilung wird dort abgelegt */
    for (n = 1; n <= nmax; n ++ )
    {
        if (( x_Array[c][1] > (schichtIntervall * n - abstand))
            && (x_Array[c][1] < (schichtIntervall * n + abstand)))
        {
            /* Abfrage, ob Zelle auf einer Schicht liegt */
            C_UDMI(c,t,0) = n; /* Schichten werden für Auswertungen

            Counter[n] += 1;
            DickeSchicht[n] = abstand;
        }
    }
}

}end_c_loop_int(c,t)

free(x_Array);
```

```

#endif /* !HOST */

    PRF_GISUM(Counter, anzahl, tmpArray);
    node_to_host_int(Counter, anzahl);

    PRF_GRHIGH(DickeSchicht, anzahl, tmp2Array);
    node_to_host_real(DickeSchicht, anzahl);

#if !RP_NODE
    Message("Schichteinteilung wie folgt: \n");
    Message("Schicht \t Anzahl Zellen \t Dicke der Schicht\n");

    for(n=1; n < (nmax+1); n++)
    {
        Message("%d \t %d \t %g\n", n, Counter[n], DickeSchicht[n]);
    }

#endif

    free(Counter);
    free(tmpArray);
    free(tmp2Array);

}

/* -----*/
/* -----*/
void SCHICHTNEU(int nmax)
{
    int *Counter; /* PARALLEL UND Seriell und HOST */
    int anzahl = 0;
    int *tmpArray;

#if !HOST /* Parallel und Serial */ Domain *domain = Get_Domain(1);
    Thread *t = Lookup_Thread(domain,2);
    cell_t c;
    real (*x_Array)[ND_ND];
    int n_cells = 0;
    int n_cell_min = 10e6;
    int n = 0;

#endif /* !HOST */

#if !HOST
    n_cells = THREAD_N_ELEMENTS_INT(t); /* Anzahl Zellen auf diesem Knoten */
    anzahl = nmax + 1; /* Anzahl Schichten auf diesem Knoten */
/* die Null wird nicht
mitbenutzt */
    x_Array = (real (*)[ND_ND])malloc(ND_ND * n_cells * sizeof(real));
/* Array für die Koordinaten */
    Counter = (int *)malloc(anzahl * sizeof(int));
/* Array für die Anzahl Zellen pro Schicht */
    tmpArray = (int *)malloc(anzahl * sizeof(int));

```

A Anhang

```
    for(n = 0; n < anzahl; n++){Counter[n] = 0;tmpArray[n]=0;}

#endif /* !HOST */

#if !HOST
    begin_c_loop_int(c,t)
    {
        C_CENTROID(x_Array[c],c,t);

        if( (x_Array[c][2] <= (0.5 * breiteMischk))
            && (x_Array[c][2] >= -(0.5 * breiteMischk)))
        {
            C_UDMI(c,t,0) = 0;          /* Schichteinteilung wird dort abgelegt */
            for (n = 1; n <= nmax; n++)
            {
                if (( x_Array[c][1] > (schichtIntervall * n - DickeSchicht[n]))
                    && (x_Array[c][1] < (schichtIntervall * n + DickeSchicht[n])))
                {
                    /* Abfrage, ob Zelle auf einer Schicht liegt */
                    C_UDMI(c,t,0) = n; /* Schichten werden für Auswertungen
vorgehalten */

                    Counter[n] += 1;
                }
            }
        }
    }
}end_c_loop_int(c,t)

free(x_Array);
#endif /* !HOST */

PRF_GISUM(Counter, anzahl, tmpArray);
node_to_host_int(Counter, anzahl);

#if !RP_NODE
    Message("Schichteinteilung wie folgt: \n");
    Message("Schicht \t Anzahl Zellen \t Dicke der Schicht\n");

    for(n=1; n < (nmax+1); n++)
    {
        Message("%d \t %d \t %g\n", n, Counter[n], DickeSchicht[n]);
    }
#endif

free(Counter);
free(tmpArray);

}

/* -----*/
void DRUCKVERLAUF(int nmax)
{
```

```

    real *Druck;
    real *Volumen;
    real *tmpArray;
    int n = 0;
    int anzahl = nmax + 1;

#ifdef !HOST
    Domain *domain = Get_Domain(1);
    Thread *t = Lookup_Thread(domain, 2);
    cell_t c;
    int schicht = 0;
    int n_cells = 0;
/*   real (*x_Array)[ND_ND];*/
#endif /* !HOST */

#ifdef IRP_NODE
    FILE *fp = NULL;
    char datei[] = "Druck_Misch.txt";
    real ausgabe = 0;
#endif

    Druck = (real *)malloc(anzahl * sizeof(real));
    Volumen = (real *)malloc(anzahl * sizeof(real));
    tmpArray = (real *)malloc(anzahl * sizeof(real));

    for (n = 0; n < anzahl; n++){Druck[n] = 0;Volumen[n]=0;tmpArray[n]=0;}

#ifdef !HOST
    n_cells = THREAD_N_ELEMENTS_int(t);

    begin_c_loop_int(c,t)
    {
/*       C_CENTROID(x_Array[c], c,t);*/
        if(C_UDMI(c,t,0) > 0)
        {
            schicht = (int)(C_UDMI(c,t,0) + 0.5);
            Druck[schicht] += C_P(c,t) * C_VOLUME(c,t);
            Volumen[schicht] += C_VOLUME(c,t);
        }
    }end_c_loop_int(c,t)
/*   free(x_Array);*/
#endif /* !HOST */

    PRF_GRSUM(Druck, anzahl, tmpArray);
    node_to_host_real(Druck, anzahl);

    PRF_GRSUM(Volumen, anzahl, tmpArray);
    node_to_host_real(Volumen, anzahl);

#ifdef IRP_NODE
    fp = fopen(datei, "a");
    fprintf(fp,"Schicht \t Druck [Pa]\n");

```

A Anhang

```
    for(n=1; n < (nmax+1); n++)
    {
        if(Volumen[n]==0){ausgabe = 0;}else{ausgabe = Druck[n]/Volumen[n];}
        Message("%d \t %g \n", n, ausgabe);
        fprintf(fp,"%d \t %g\n",n,ausgabe);
    }
    fclose(fp);
#endif

    free(Druck);
    free(Volumen);

#ifdef IRP_NODE
    Message("Druckdaten in %s geschrieben\n", datei);

#endif }
/* -----*/
void ZEITSCHRITW()
{
    real deltat = 0;
    int zeitraus = 0;

    deltat = (0.75 * minKante)/(2 * uquer);
    deltat = (int)(deltat * 1e9);
    deltat /= 1e9;

    zeitraus = (int)((1900e-6/(1/alletaurus * uquer * deltat))+0.5);

    Message("\nZeitschrittweite: %g [s]", deltat);
    Message("\nAlle %d Zeitschritte werden Daten herausgeschrieben.\n", zeitraus);
}
/* -----*/
int SCHRITW()
{
    real deltat = 0;
    int zeitraus = 0;

    deltat = (0.75 * minKante)/(2 * uquer);
    deltat = (int)(deltat * 1e9);
    deltat /= 1e9;

    zeitraus = (int)((1900e-6/(1/alletaurus * uquer * deltat))+0.5);

    return zeitraus;
}
/* -----*/
real ZEITDELTA()
{
    real deltat = 0;

    deltat = (0.75 * minKante)/(2 * uquer);
    deltat = (int)(deltat * 1e9);
```

```

    deltat /= 1e9;

    return deltat;
}

/* -----*/
void VOLUMENFUNKTIONEN(int nmax)
{
    real *Konzquer;
    real *Maxc;
    real *Sigma;
    real *Gradc;
    real *Dissip;
    real *Mischtensor;
    real *Volumen;
    real *Druck;
    real *tmpArray;

    real geschw = 0;

    int anzahl = nmax + 1;
    int n;

#ifdef !HOST
    Domain *domain = Get_Domain(1);
    Thread *t = Lookup_Thread(domain, 2);
    cell_t c;
    int schicht;
#endif /* !HOST */

#ifdef !IRP_NODE
    FILE *fp = NULL;
    char datei[] = "Volumenfunktionen.txt";
    real zeit = 1900e-6/uaquer;
    real zeitjetzt = RP_Get_Real("flow-time");
    real tau = 0;
    real reynolds = 0;
#endif /* !IRP_NODE */

    tmpArray = (real *)malloc(anzahl * sizeof(real));
    Konzquer = (real *)malloc(anzahl * sizeof(real));
    Maxc = (real *)malloc(anzahl * sizeof(real));
    Druck = (real *)malloc(anzahl * sizeof(real));
    Volumen = (real *)malloc(anzahl * sizeof(real));
    for(n=0;n<anzahl;n++){Konzquer[n]=0;Maxc[n]=0;tmpArray[n]=0;Volumen[n]=0;Druck[n]=0;}

    for(n=0;n<anzahl;n++){Volumen[n]=0;}

#ifdef !HOST
    begin_c_loop_int(c,t)
    {
        if(C_UDMI(c,t,0) > 0)
        {

```

A Anhang

```
schicht      = (int) C_UDMI(c,t,0);
Druck[schicht] += C_P(c,t) * C_VOLUME(c,t);
Volumen[schicht] += C_VOLUME(c,t);

if(tracer == 1)
{
    Konzquer[schicht] += C_YI(c,t,0) * C_VOLUME(c,t);
    Maxc[schicht] = (Maxc[schicht] < C_YI(c,t,0)) ? C_YI(c,t,0) : Maxc[schicht];
}
}
}end_c_loop_int(c,t)

#endif /* !HOST */

PRF_GRSUM(Volumen, anzahl, tmpArray);
node_to_host_real(Volumen, anzahl);

PRF_GRSUM(Druck, anzahl, tmpArray);
node_to_host_real(Druck, anzahl);

if(tracer == 1)
{
    PRF_GRSUM(Konzquer, anzahl, tmpArray);
    node_to_host_real(Konzquer, anzahl);

    PRF_GRHIGH(Maxc, anzahl, tmpArray);
    node_to_host_real(Maxc, anzahl);

    for(n=1;n<anzahl;n++)
    {
        Konzquer[n] /= Volumen[n];
    }
}

for(n=1;n<anzahl;n++)
{
    Druck[n] /= Volumen[n];
}

Dissip      = (real *)malloc(anzahl * sizeof(real));
Mischtensor = (real *)malloc(anzahl * sizeof(real));
Gradc       = (real *)malloc(anzahl * sizeof(real));
Sigma       = (real *)malloc(anzahl * sizeof(real));
for(n=0;n<anzahl;n++){Sigma[n]=0;Gradc[n]=0;Dissip[n]=0;Mischtensor[n]=0;}

#if !HOST

begin_c_loop_int(c,t)
{
    if(C_UDMI(c,t,0) > 0)
    {
        schicht = (int) C_UDMI(c,t,0);
        if(tracer == 1)
        {
            Sigma[schicht] += SQR(C_YI(c,t,0) - Konzquer[schicht]) * C_VOLUME(c,t);
            Gradc[schicht] += NV_MAG(C_YI_G(c,t,0)) * C_VOLUME(c,t);
        }
    }
}
}end_c_loop_int(c,t)

#endif
```

```

    }
    if(stroemung == 1)
    {
        Dissip[schicht] += ( SQR(C_U_G(c,t)[0]) + SQR(C_V_G(c,t)[1]) +
SQR(C_W_G(c,t)[2])
                                + 0.5 * SQR(C_U_G(c,t)[1] + C_V_G(c,t)[0])
                                + 0.5 * SQR(C_U_G(c,t)[2] + C_W_G(c,t)[0])
                                + 0.5 * SQR(C_V_G(c,t)[2] + C_W_G(c,t)[1])
                                ) * C_VOLUME(c,t);

        Mischtensor[schicht] += ( SQR(C_U_G(c,t)[0]) + SQR(C_W_G(c,t)[2]) + 0.5 *
SQR(C_U_G(c,t)[2] + C_W_G(c,t)[0])
                                ) * C_VOLUME(c,t);
    }
}end_c_loop_int(c,t)

#endif /* !HOST */

if(tracer == 1)
{
    PRF_GRSUM(Sigma, anzahl, tmpArray);
    node_to_host_real(Sigma, anzahl);

    PRF_GRSUM(Gradc, anzahl, tmpArray);
    node_to_host_real(Gradc, anzahl);

    for(n=1;n<anzahl;n++)
    {
        Sigma[n] /= Volumen[n];
        Gradc[n] /= Volumen[n];
    }
}
if(stroemung == 1)
{
    PRF_GRSUM(Dissip, anzahl, tmpArray);
    node_to_host_real(Dissip, anzahl);

    PRF_GRSUM(Mischtensor, anzahl, tmpArray);
    node_to_host_real(Mischtensor, anzahl);

    for(n=1;n<anzahl;n++)
    {
        Dissip[n] /= Volumen[n];
        Dissip[n] *= (2 * viskos);
        Mischtensor[n] /= Volumen[n];
        Mischtensor[n] *= (2 * viskos);
    }
}

if(stroemung == 1){geschw = BERECHUQUER();}
else{geschw = uquer;}

```

A Anhang

```
#if IRP_NODE

    fp = fopen(datei, "a");

#endif /* IRP_NODE */

#if IRP_NODE

    tau = zeitjetzt/ zeit;
    reynolds = geschw/ viskos * (2 * breiteMischk * hoeheMischk)/(breiteMischk + hoeheMischk);

    fprintf(fp,"Zeit \t Schicht \t Geschw \t Reynolds \t cquer \t cmax \t sigma2 \t Gradc \t Mischtensor \t
Epsilon \t AnteilEps \t Druck\n");

    for(n=1;n< anzahl; n++)
    {

        fprintf(fp,"%5.2f \t %5.0f \t %5.3f \t %6.1f \t %5.3f \t %5.3f \t %5.3f \t %7.2f \t %g \t %g \t %g \t
%g\n",
                tau, n*schichtIntervall*1e6, geschw, reynolds, Konzquer[n], Maxc[n], Sigma[n], Gradc[n],
                Mischtensor[n], Dissip[n], Mischtensor[n]/Dissip[n], Druck[n]);
    }
    fclose(fp);

#endif

    free(Konzquer);
    free(Maxc);
    free(Sigma);
    free(Gradc);
    free(Mischtensor);
    free(Dissip);
    free(Druck);
    free(Volumen);

#if IRP_NODE
    Message("Volumenfunktionen in %s geschrieben\n", datei);
#endif }

/* -----*/
real BERECHUQUER()
{
#if !HOST

    Domain *domain = Get_Domain(1);
    Thread *t = Lookup_Thread(domain, IDOUT);
    face_t f;
    real A[ND_ND];
#endif

    real geschwindigkeit = 0;
    real flaeche = 0;
```

```
#if !HOST

begin_f_loop(f,t)
{
if (PRINCIPAL_FACE_P(f,t))
{
F_AREA(A,f,t);
geschwindigkeit += F_V(f,t) * NV_MAG(A);
flaeche += NV_MAG(A);
}
}
end_f_loop(f,t)

#endif /* !HOST */

geschwindigkeit = PRF_GRSUM1(geschwindigkeit);
flaeche = PRF_GRSUM1(flaeche);
node_to_host_real_2(geschwindigkeit,flaeche);

if(flaeche == 0)
{
geschwindigkeit = 0;
}
else
{
geschwindigkeit /= flaeche;
}

#if !RP_NODE
return geschwindigkeit;
#endif

}
```

