

**Modellierung des Strömungs- und Trennverhaltens
viskoser Gemische in Packungskolonnen basierend auf
tomographischen Untersuchungen**

zur Erlangung des akademischen Grades
DOKTOR DER INGENIEURWISSENSCHAFTEN (Dr.-Ing.)
der Fakultät für Maschinenbau
der Universität Paderborn

genehmigte
DISSERTATION

von
Dipl.-Ing. Anna Große Daldrup (geb. Janzen)
aus Leninabad

Tag des Kolloquiums: 29.08.2019

Referent: Prof. Dr.-Ing. habil. Eugeny Kenig

Korreferent: Prof. Dr.-Ing. habil. Dr. h. c. Uwe Hampel

Vorwort

Diese Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftliche Mitarbeiterin am Lehrstuhl für Fluidverfahrenstechnik der Universität Paderborn. Ich möchte dem Lehrstuhlinhaber und meinem Doktorvater, Professor Dr.-Ing. Eugeny Kenig, danken, dass er mir diese Arbeit ermöglicht hat. Die fachliche und menschliche Unterstützung, sowie die mir gewährten Freiräume für die Durchführung des Forschungsprojektes waren wesentlich für das Gelingen meiner Arbeit.

Herrn Professor Dr.-Ing. Uwe Hampel danke ich für die wissenschaftliche Unterstützung und für die Übernahme des Koreferats. Bei Prof. Dr.-Ing. Moritzer und Prof. Dr.-Ing. Schmid bedanke ich mich für das Mitwirken in der Prüfungskommission.

Ein ganz herzlicher Dank gilt Professor Dr. Dominique Toye und Dr. Markus Schubert, die den experimentellen Teil meiner Arbeit im Bereich der Tomographie ermöglicht und mich stets unterstützt haben. Der Firma Sulzer AG (insbesondere Dr. Marc Wehrli) und Julius Montz GmbH danke ich für die Bereitstellung der strukturierten Packungen.

Die experimentelle Arbeit am Lehrstuhl wäre ohne die Unterstützung von Herrn Franz Kapla und Herrn Klaus Beckmann kaum möglich gewesen. Ihnen gilt mein großer Dank. Auch bei Arne Arning und Daniel Ebbersmeyer, die mich als studentische Hilfskräfte unterstützt haben, und bei Julia Steube und Torben Knoke, die ihre Bachelor-/Masterarbeiten bei mir geschrieben haben, möchte ich mich von Herzen für ihr großes Engagement bedanken.

Den Kolleginnen und Kollegen am Lehrstuhl möchte ich für die wertvollen fachlichen Diskussionen, die tatkräftige Unterstützung und den freundschaftlichen Zusammenhalt danken. Insbesondere Ulf Brinkmann, Roland Engberg, Julia Steube, Rositsa Cherkezova, Ömer Yildirim, Mark Piper, Julian Tran, Paris Chasanis und Nicole Hüser möchte ich für die schöne Zeit am Lehrstuhl und außerhalb danken. Anna Chasanis danke ich für den fachlichen, sportlichen und menschlichen Rückhalt, den sie mir stets gegeben hat. Lena Tigges möchte ich für den vielen Kaffee und die schöne Zeit in Paderborn danken.

Meiner Familie möchte ich für die großartige Unterstützung in allen Lebenslagen Danke sagen. Insbesondere meinem Mann Jan-Bernd bin ich zutiefst dankbar, dass er mich mit so viel Liebe und unermesslicher Geduld durch diese Zeit begleitet, mich immer unterstützt und mir den Rücken frei gehalten hat.

Viele andere Menschen, die ich hier nicht alle einzeln erwähnen kann, haben fachlich und menschlich zu dem Gelingen dieser Arbeit beigetragen. Danke!

Zusammenfassung

Strukturierte Packungen werden oft als Einbauten in Kolonnen zur Trennung von Gas-Flüssig-Gemischen eingesetzt. Die Kapazität und Trenneffizienz der eingesetzten Packung werden durch die Viskosität der flüssigen Phase beeinflusst. Modellierungsansätze zur Beschreibung von Fluidodynamik und Stofftransport müssen diesen Einfluss wiedergeben können, damit die Kolonnen optimal ausgelegt und betrieben werden können. Voraussetzung für die Entwicklung von prädiktiven Modellen ist das Verständnis der Strömungsphänomene in der Packung.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zwei tomographische Methoden angewendet, um den Einfluss der Viskosität auf die Flüssigkeitsströmung zu untersuchen. Die klassische Röntgentomographie, mit hoher räumlichen Auflösung, wurde eingesetzt, um die Flüssigkeitsströmung zu klassifizieren und quantitativ auszuwerten. Die ultraschnelle Tomographie ermöglichte durch ihre hohe zeitliche Auflösung die Strömung innerhalb der Packung bis zum Flutpunkt zu beobachten und den Einfluss der Viskosität qualitativ zu bewerten.

Basierend auf den Ergebnissen der Bildauswertung wurden hydrodynamische Analogien zwischen der realen Strömung und vereinfachten fluiddynamischen Elementen entwickelt, die die Flüssigkeitsströmung in Abhängigkeit der Viskosität abbilden. Damit wurde ein Modell zur Berechnung des Stofftransports in strukturierten Packungen erweitert. Trennleistungsmessungen mit dem System CO₂-Glycerin-Wasser wurden durchgeführt und das Modell mit den Ergebnissen validiert.

Abstract

Structured packings are often used as column internals in gas-liquid separation processes. Liquid viscosity has an influence on the column performance in terms of capacity and separation efficiency. The optimal design and operation of columns needs modeling approaches for the estimation of the fluid dynamics and the mass transfer, which are capable to predict the influence of the viscosity. Understanding of liquid flow phenomena inside structured packing is essential for the model development.

In this work, two X-ray computer tomography (XCT) methods are used to investigate the influence of viscosity on liquid flow inside structured packings. The classic high local resolution XCT method was used to identify dominating flow patterns and to obtain quantitative results on liquid flow morphology. The ultra fast XCT method was applied to investigate liquid flow inside the packing up to flooding conditions and to evaluate the influence of liquid viscosity qualitatively.

Based on the results of image analysis of the XCT images, hydrodynamic analogies between the real complex flow and simplified flow patterns were developed. With those, a model for the estimation of mass transfer inside structured packings was extended for viscous systems. The new modeling approach was validated by comparison with separation efficiency data obtained from experiments with CO₂ desorption from saturated water-glycerine mixtures into air.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Stand des Wissens	3
2.1	Strukturierte Packungen.....	3
2.1.1	Fluidodynamik von Packungskolonnen	4
2.1.2	Gasströmung in strukturierten Packungen	7
2.1.3	Flüssigkeitsströmung in strukturierten Packungen	8
2.1.4	Einfluss der Viskosität auf Fluidodynamik und Trennleistung.....	14
2.2	Modellierung strukturierter Packungen.....	16
2.2.1	Übersicht Modellierungsansätze	16
2.2.2	Vergleich und Einordnung der Modellierungsansätze.....	20
2.2.3	Modell basierend auf Hydrodynamischen Analogien.....	21
3	Ziele der Arbeit	29
4	Tomographische Untersuchungen	31
4.1	Grundlagen der Röntgentomographie.....	31
4.1.1	Messprinzip der Röntgentomographie	32
4.2	Messungen mittels konventioneller XCT.....	33
4.2.1	Messapparatur an der Universität in Liège	33
4.2.2	Versuchsaufbau und –durchführung.....	34
4.2.3	Bildnachbearbeitung	37
4.2.4	Bestimmung des Flüssigkeitsinhalts der Packung.....	39

4.2.5	Bestimmung der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit ...	42
4.3	Messungen mittels ultraschneller XCT	47
4.3.1	Messprinzip und Apparatur am HZDR	47
4.3.2	Versuchsaufbau und –durchführung.....	48
4.3.3	Bildanalyse und Auswertung	52
4.3.4	Dynamik der Flüssigkeitsströmung und -verteilung	52
4.3.5	Vergleich mit konventionellen Messungen.....	56
4.3.6	Erkenntnisse durch ultraschnelle Röntgentomographie	59
4.4	Zusammenfassung.....	60
5	Analyse der Flüssigkeitsströmung	63
5.1	Identifizierung der Strömungsmuster	63
5.2	Entwicklung einer Bildanalysemethode	65
5.2.1	Feret Durchmesser	65
5.2.2	Identifizierung von Flüssigkeitsformen	66
5.2.3	Klassifizierung der Strömungsformen.....	71
5.2.4	Implementierung der Methode in MatLab.....	75
5.3	Ergebnisse	75
6	Modellierung.....	83
6.1	Schlussfolgerungen aus der Bildanalyse	84
6.2	Physikalisches Modell	84
6.3	Modellparameter	85
7	Stofftransportmessungen und Modellvalidierung.....	89
7.1	Stofftransportmessungen	89
7.1.1	Verwendetes Stoffsystem	89
7.1.2	Versuchsaufbau und –durchführung.....	90
7.1.3	Ergebnisse der Stofftransportmessungen.....	93

7.2	Modellvalidierung.....	97
7.2.1	Stoffdaten für das HA-Modell.....	97
7.2.2	Simulationsergebnisse und Modellvalidierung	103
7.3	Zusammenfassung und Ausblick	107
8	Zusammenfassung.....	109
	Symbolverzeichnis.....	113
	Literaturverzeichnis.....	117

1 Einleitung

Bei der thermischen Trennung von Gas-Flüssig-Systemen in Kolonnen spielt die Viskosität der flüssigen Phase eine entscheidende Rolle. Sie beeinflusst die Fluidodynamik und den Stofftransport. So ist es bekannt, dass mit steigender Viskosität die Trennleistung von Kolonnen sinkt und der Flutpunkt schneller erreicht wird. Trotzdem gibt es nur wenige Kenntnisse darüber wie genau die Viskosität die Strömung der flüssigen Phase verändert und welche Mechanismen den Stofftransport beeinflussen.

Um den Stoffaustausch in den Trennkolonnen zu intensivieren, werden strukturierte Packungen eingesetzt, die sich durch einen geringen Druckverlust sowie durch eine hohe Kapazität auszeichnen. Gleichzeitig stellen sie eine große Oberfläche zur Ausbildung einer Stoffaustauschfläche zwischen Gas- und Flüssigphase zur Verfügung. Strukturierte Packungen bestehen aus vielen gefalteten Metalllagen, die hintereinander angeordnet sind. Die Lagen berühren sich jeweils an den Spitzen der Faltung. Die Flüssigkeit fließt von oben über die Packung, wobei die Strömung nicht nur von der Faltung der einzelnen Lagen sondern auch durch die Kontaktpunkte zwischen den Lagen beeinflusst wird. Die Geometrie von strukturierten Packungen macht es sehr schwer die Strömung der Flüssigkeit innerhalb der Packung zu beobachten und zu erfassen. Eine der wenigen nicht invasiven Messmethoden ist die Röntgentomographie. Dabei werden Querschnittsbilder der Kolonne erzeugt, in denen die einzelnen Phasen - gas, flüssig und fest - sichtbar gemacht werden können. Bisherige Arbeiten mit tomographischen Untersuchungen von strukturierten Packungen liefern qualitative Aussagen über die Form der Flüssigkeitsströmung innerhalb der Packung.

Für eine optimale Prozessauslegung und Minimierung von Investitionskosten sind geeignete Modelle zur Berechnung der Trennleistung in Packungskolonnen unumgänglich. In der Literatur existieren zahlreiche Modellierungsansätze, welche

große Unterschiede hinsichtlich ihrer Rigorosität aufweisen. In der Praxis werden am häufigsten Modelle angewendet, die Korrelationen für fluiddynamische Größen und Stofftransportparameter in Abhängigkeit von Packungsgeometrie, Betriebsbedingungen und physikalischen Eigenschaften des Stoffsystems beinhalten. Parameter dieser Korrelationen werden an experimentelle Werte angepasst. Häufig werden fluiddynamische Größen durch Messungen mit dem Stoffsystem Wasser/Luft ermittelt, während Stofftransportparameter an Trennleistungsmessungen mit organischen Testsystemen angepasst werden. Die Anwendungsmöglichkeiten dieser Modellierungsansätze für andere Packungsgeometrien oder Stoffsysteme sind begrenzt und erfordern weitere Experimente für die Anpassung von Parametern.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Modellierungsansatz zur Beschreibung des Stofftransportverhaltens in strukturierten Packungen für viskose Systeme erweitert. Voraussetzung für die Entwicklung von prädiktiven Modellen zur Dimensionierung von Packungskolonnen ist das Verständnis der Strömungsphänomene innerhalb der Kolonne. Zwei tomographische Methoden, die klassische Röntgentomographie und die ultraschnelle Röntgentomographie, wurden in dieser Arbeit angewendet, um die Flüssigkeitsströmung innerhalb der Packung zu untersuchen. Die Flüssigkeitsströmung innerhalb der Packung wurde anhand der Querschnittsbilder analysiert und charakterisiert. Eine neue Methode der Bildauswertung wurde entwickelt, um quantitative Ergebnisse über die Art der Flüssigkeitsströmung in strukturierten Packungen in Abhängigkeit der Viskosität zu erhalten.

Auf Basis der Bildauswertung wurden hydrodynamische Analogien zwischen der realen Strömung und vereinfachten fluiddynamischen Elementen entwickelt. Diese wurden in ein Stofftransportmodell implementiert, das die numerische Lösung von rigorosen Stofftransportgleichungen ermöglicht. Zur Validierung des Modells wurden Trennleistungsmessungen mit einem geeigneten Testsystem durchgeführt.

2 Stand des Wissens

2.1 Strukturierte Packungen

Strukturierte Packungen werden seit den 60er Jahren u.a. in Absorptions- und Rektifikationskolonnen als Einbauten zur Trennung von mehrphasigen Gemischen eingesetzt (Spiegel und Meier, 2003). Bei der Geometrie von strukturierten Packungen haben sich vertikale, parallele Lagen von gefalteten Blechen durchgesetzt, wobei die Faltung einer Lage schräg zur Horizontalen verläuft. Die Lagen werden so geschichtet, dass der Verlauf der Kanäle zweier benachbarter Lagen gegenläufig ist. Mehrere Lagen nebeneinander bilden ein Packungselement von etwa 200 mm Höhe. In Abbildung 2.1 ist ein solches Packungselement zu sehen. In Kolonnen werden Packungselemente übereinander geschichtet, wobei die einzelnen Segmente beim Aufeinandersetzen um 90° zueinander versetzt werden. Dadurch wird eine gute Durchmischung der Fluide beim Übergang in das nächste Packungselement erreicht und Fehlverteilungen entgegengewirkt. (Goedecke, 2006)



Abbildung 2.1: Element einer strukturierten Packung des Typs Mellapak der Firma Sulzer Chemtech Ltd (Quelle Bild: www.sulzer.com)

Charakteristische Größen, die die Geometrie von Faltblattpackungen entsprechend einer Definition durch Zogg (1973) charakterisieren, sind in Abbildung 2.2 dargestellt. Faltungswinkel γ , Basislänge b_0 , Seitenlänge s_0 und Faltblatthöhe H_F beschreiben die Faltung der Lagen. Die Faltung bestimmt die spezifische Oberfläche der Packung. Der Neigungswinkel φ ist ein Maß für die Neigung der Faltung zur Horizontalen mit typischen Werten von $\varphi = 45^\circ$ oder $\varphi = 60^\circ$ (Billet und Mackowiak, 1979; Mackowiak, 2010).

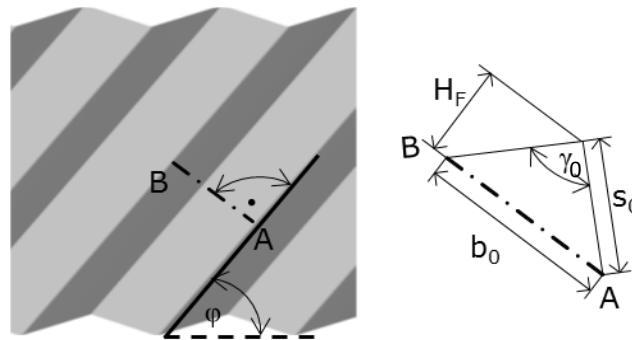


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung eines Faltblattes einer strukturierten Packung als Draufsicht und Querschnitt, Bemaßung nach Zogg (1973).

2.1.1 Fluidodynamik von Packungskolonnen

Die Fluidodynamik von Packungskolonnen wird durch den Druckverlust über die Höhe und den relativen Flüssigkeitsinhalt (engl: liquid hold-up) bezogen auf das Volumen der Packung charakterisiert (Kister, 1992; Schönbucher, 2002; Kolev, 2006; Mackowiak, 2010). Typische Kennlinien dieser Größen in Abhängigkeit von der Gas- und Flüssigkeitsbelastung sind schematisch in Abbildung 2.3 dargestellt. Um eine Vergleichbarkeit des fluidodynamischen Verhaltens verschiedener Packungstypen, unabhängig von Kolonnengröße oder Stoffsystem, zu erhalten, werden als Flüssigkeitsbelastung die Berieselungsdichte $w_L = \dot{V}_L / A_q$ als

Gasbelastung der F-Faktor $F_G = u_G \cdot \sqrt{\rho}$ herangezogen.

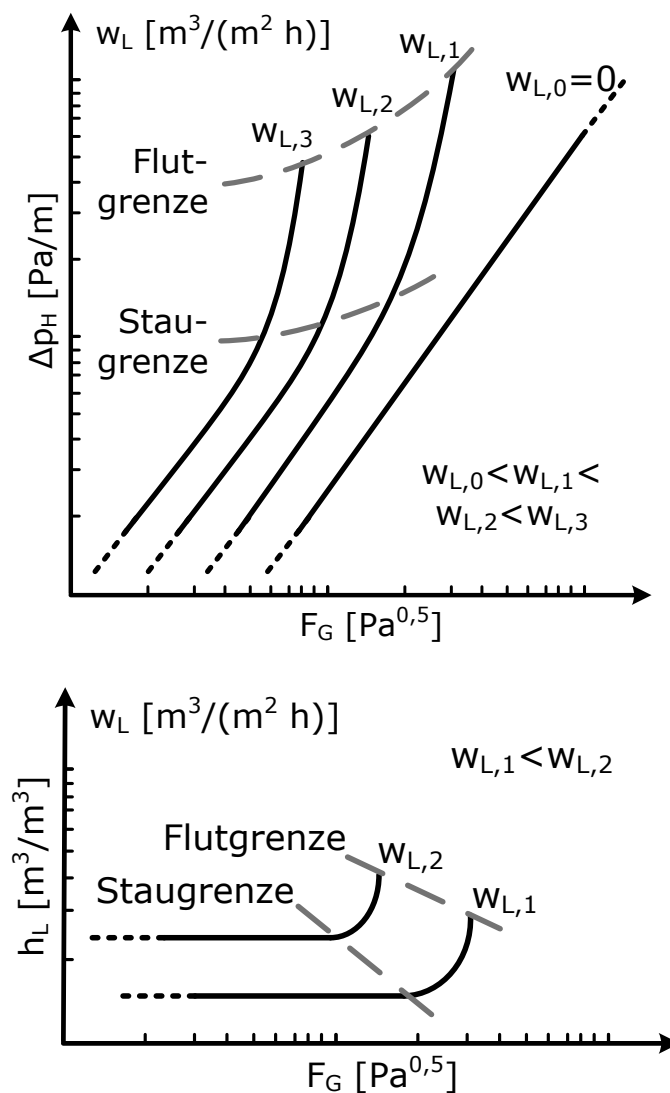


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der Kennlinien für Druckverlust (oben) und für den Flüssigkeits-hold-up (unten) von Packungen als Funktion des F-Faktors F_G bei verschiedenen Flüssigkeitsbelastungen w_L (Mackowiak, 2010)

In dem Betriebsbereich von berieselten Packungen gibt es verschiedene Strömungsregime, deren Grenzen durch den Stau- und Flutpunkt gekennzeichnet werden. Unterhalb der Staugrenze hat die Flüssigkeitsströmung keinen Einfluss auf die Gasströmung. Deshalb verlaufen die Kennlinien für den gaseitigen Druckverlust parallel zur Kennlinie der einphasigen Gasströmung $w_L = 0$. Dabei steigt der Flüssigkeitsinhalt nur mit größerer Berieselungsdichte. Oberhalb der Staugrenze beeinflussen sich Gas- und Flüssigkeitsströmung gegenseitig aufgrund der steigenden Scherspannung an der Phasengrenze. Die herabfließende Flüssigkeit wird durch das aufsteigende Gas aufgehalten, die Filmdicke wird größer und damit steigt der gesamte Flüssigkeitsinhalt der Kolonne. Die

Scherspannungskräfte zwischen den beiden Phasen nehmen mit steigender Gasbelastung zu, so dass die Flüssigkeit immer stärker akkumuliert. Der Flüssigkeitsinhalt nimmt oberhalb des Staupunkts zu, der effektive Lückengrad der Packung sinkt und der Druckverlust steigt, bis an dem Flutpunkt eine Phaseninversion auftritt. Die Flüssigkeit wird bis zum Überfluten der Packung aufgestaut und die Gasphase in der Flüssigkeit dispergiert (Mackowiak, 2010).

Da der Betrieb von Kolonnen in der Nähe des Flutpunkts schwierig ist, werden Packungskolonnen üblicherweise in der Nähe oder unterhalb des Staupunkts betrieben. Je größer die spezifische Packungsoberfläche ist, desto größer ist der Druckverlust bei gleichen Gas- und Flüssigkeitsbelastungen. Damit verschieben sich die Belastungsgrenzen von Packungen mit hoher spezifischer Oberfläche zu kleineren Gasbelastungen, so dass das Fluten der Kolonne bei kleineren F-Faktoren eintritt. Damit sind der Arbeitsbereich und die Kapazität von Packungen mit hoher spezifischer Oberfläche kleiner als von Packungen mit kleiner spezifischer Oberfläche, während die Trennleistung größer ist (Mackowiak, 2010).

Modelle zur Vorhersage der Fluidodynamik sind nicht nur für die Ermittlung des Betriebsbereichs einer Kolonne, sondern auch für die Modellierung der Trennleistung notwendig. Üblicherweise basieren solche Modelle auf der Annahme einer idealen Verteilung der Flüssigkeit sowohl über den Querschnitt als auch über die Höhe einer Packungskolonne. In der Realität treten hingegen Ungleichverteilungen der Flüssigkeit auf, die unterschiedliche Ursachen haben, u.a. die technische Umsetzung der Flüssigkeitsverteilung über den Kolonnenquerschnitt und der Einfluss der Packungsgeometrie auf die Strömung selbst. Diese Ungleichverteilungen, auch Maldistribution genannt, beeinflussen die Trennleistung einer Packungskolonne. (Stikkelman, 1989)

Für die Entwicklung von detaillierteren Modellen, die die Trennleistung von Packungskolonnen unter Berücksichtigung der realen Strömungsbedingungen beschreiben können, ist die Kenntnis der tatsächlichen Strömung von Gas und Flüssigkeit innerhalb der Packung notwendig.

2.1.2 Gasströmung in strukturierten Packungen

Durch die Faltblattstruktur der Packungslagen werden dreieckige Kanäle gebildet. Durch die Anordnung der Lagen kreuzen sich jeweils die Kanäle zweier benachbarter Lagen, wobei die Seite zum kreuzenden Kanal offen ist. Die Kanäle sind durch die Kolonnenwand und die Höhe eines Packungselements begrenzt.

Die einphasige Strömung und Verteilung der Gasphase innerhalb der strukturierten Packung wurde von Zogg (1973) sowie von Focke und Knibbe (1986) untersucht. Dabei wurden transparente Packungslagen von unten mit einer Flüssigkeit durchströmt. Die Strömungsgeschwindigkeit wurde so eingestellt, dass die Reynoldszahl der Flüssigströmung einer realen Gasströmung innerhalb einer strukturierten Packung entsprach. So wurde mit der Flüssigkeitsströmung die Gasströmung simuliert. Die Verteilung und Vermischung innerhalb der Packung wurde durch einen gefärbten Flüssigkeitsstrom visualisiert. In Abbildung 2.4 sind die Strömungsverläufe im laminaren ($Re=50$), im Übergangsbereich ($Re=300$) und im turbulenten Bereich ($Re=600$) dargestellt. Die Beobachtungen zeigen, dass die Gasströmung den Packungskanälen folgt, wobei eine Vermischung zwischen zwei benachbarten Kanälen stattfindet, so dass eine gute Verteilung in Querrichtung zur Strömung erreicht wird. An der Kolonnenwand wird die Gasströmung zurück ins Zentrum der Packung geleitet (s. Abbildung 2.5).

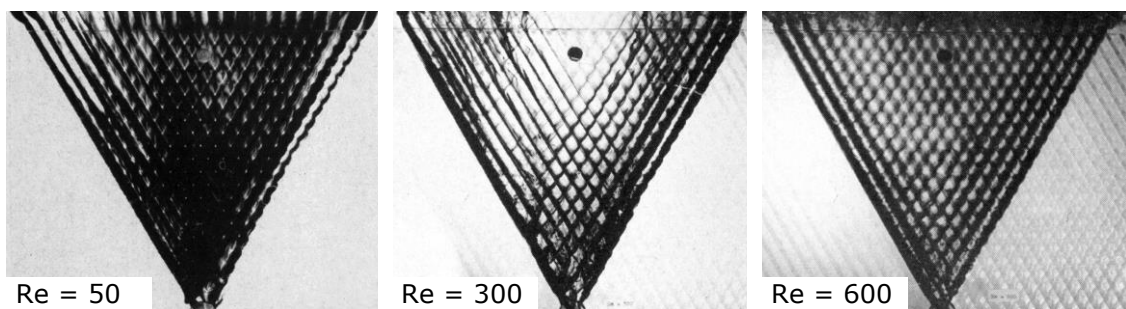


Abbildung 2.4: Visualisierte Gasströmung in einer strukturierten Packung mit Neigungswinkel $\varphi = 30^\circ$ bei verschiedenen Strömungsgeschwindigkeiten (Zogg, 1973)

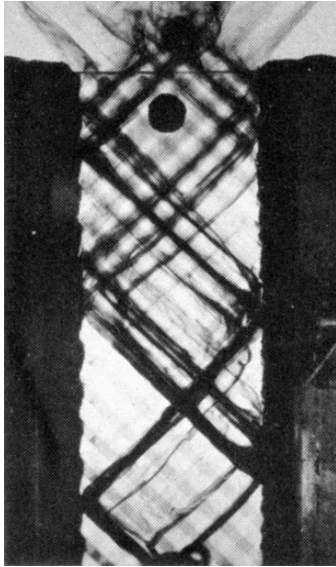


Abbildung 2.5: Strömungsverlauf an der Kolonnenwand in einer Packung mit $\varphi = 45^\circ$ und $Re = 200$ (Zogg, 1973)

Mahr und Mewes (2008) sowie Owens et al. (2009) verwendeten die Röntgentomographie als Messmethode und visualisierten die Strömung in strukturierten Packungen aus Blech durch Tracerpartikel, die eine hohe Absorptionsfähigkeit haben.

Diese Arbeiten zeigen, dass die Hauptströmungsrichtung der Gasphase der Neigung der Packungskanäle entspricht. Durch den Richtungswechsel an der Kolonnenwand, an Übergängen zum nächsten Packungselement sowie durch die Reibung von zwei benachbarten Gasströmen über die offene Wand der Kanäle wird die Gasphase durchmischt.

2.1.3 Flüssigkeitsströmung in strukturierten Packungen

Bei dem Einsatz von strukturierten Packungen wird eine gleichmäßige Verteilung der Flüssigkeit über die Packungsoberfläche in Form von Filmen angestrebt (Olujic, 1997). Ziel dabei ist eine möglichst große Phasengrenzfläche zwischen Gas- und Flüssigphase zu erzeugen und so einen optimalen Stofftransport zu gewährleisten. Jedoch treten im technischen Maßstab Fehlverteilungen auf, die die Phasengrenzfläche reduzieren und die Trennleistung beeinflussen (Stikkelman, 1989). Gegenstand zahlreicher Forschungsarbeiten ist es experimentell das

Strömungsverhalten und die Verteilung der Phasen innerhalb der Packung zu untersuchen.

Eine Möglichkeit Erkenntnisse über die Flüssigkeitsströmung in strukturierten Packungen zu gewinnen ist die experimentelle Untersuchung des Strömungsverhaltens von Flüssigkeiten auf geraden oder geneigten Platten bzw. auf Einzellagen von strukturierten Packungen. Shi und Mersmann (1985) untersuchten den Einfluss von Viskosität und Oberflächenspannung der Flüssigkeit auf das Strömungsverhalten auf verschiedenen Plattenmaterialien. Basierend auf diesen Ergebnissen schlugen sie eine Korrelation für die effektive Austauschfläche in Packungskolonnen vor.

Andere Arbeiten befassen sich mit dem Einfluss der Oberflächengeometrie von strukturierten Packungen auf die Flüssigkeitsströmung, die effektive Austauschfläche und den Stofftransport (Zhao und Cerro, 1992; Shetty und Cerro, 1993; Valluri et al., 2005; Argyriadi et al., 2006; Wierschem et al., 2010; Kohrt et al., 2011). Es zeigt sich, dass die Oberflächenbeschaffenheit der Packung in Bezug auf Rauigkeit und Struktur die Flüssigkeitsverteilung und den Benetzungswinkel beeinflussen und somit den Anteil der benetzten Oberfläche bestimmen. Bei gleicher Benetzung ist ein Einfluss der Packungsoberfläche auf den Stofftransport hauptsächlich bei flüssigseitig limitierten Stoffsystemen feststellbar (Kohrt et al., 2011). In Abhängigkeit der Oberflächengeometrie kommt es zu lokalen Verwirbelungen der Flüssigkeit an der Packungsoberfläche und zu einem verbesserten Stofftransport. Des Weiteren kann die Struktur der Oberfläche dazu beitragen eine gleichmäßige und laminare Filmströmung auszubilden.

Durch experimentelle Untersuchungen an einzelnen Lagen einer strukturierten Packung haben Shetty und Cerro (1997) gezeigt, dass bedingt durch die makroskopische Struktur der Packungslagen die Flüssigkeit in einem effektiven Strömungswinkel α über die Oberfläche fließt. Dieser stimmt in etwa mit dem von Zogg (1973) theoretisch ermittelten Strömungswinkel überein (s. Abbildung 2.6).

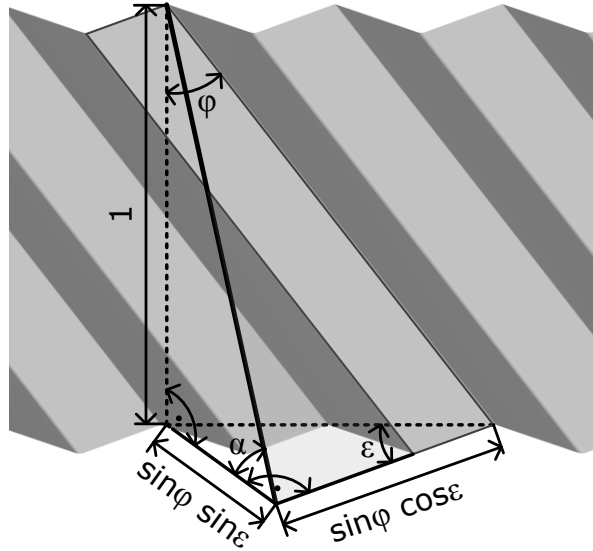


Abbildung 2.6: Grafische Ermittlung des effektiven Strömungswinkels der Flüssigkeit in Faltblattpackungen nach Zogg (1973).

Der Winkel ε kann als Hilfsgröße über den Neigungswinkel φ und dem Faltungswinkel γ_0 der Packung berechnet werden:

$$\varepsilon = \arctan \frac{\cos \varphi}{\tan \frac{\gamma_0}{2}} \quad (2.1)$$

Der effektive Strömungswinkel α ergibt sich somit als

$$\alpha = \arctan \frac{\cot \varphi}{\sin \left(\arctan \frac{\cos \varphi}{\tan \gamma_0 / 2} \right)} \quad (2.2)$$

Im Rahmen einer ihrer Arbeit beobachteten Shetty und Cerro (1997), dass sich zwar Filmströmung auf der oberen Seite der Faltblattstruktur ausbildet, auf der unteren Seite der Faltung die Flüssigkeit allerdings eher in Form von Rinnsalen fließt. Dieses Phänomen führt zu einer verschlechterten Flüssigkeitsverteilung über die Packungsoberfläche. Luo et al. (2009) untersuchten den Einfluss der Gasströmung auf die Rinnsalströmung in einem Kanal in Gegenstromführung. Es zeigte sich, dass die Breite des Rinnsals weitgehend unabhängig von der Gasgeschwindigkeit ist und erst bei hohen Gasgeschwindigkeiten eine Verminderung der Rinnsalbreite um 10 bis 20% beobachtet werden kann.

Studien der Flüssigkeitsströmung auf einer Platte oder einer einzelnen Packungslage bieten nur eine eingeschränkte Erkenntnis über die reale Strömung der Flüssigkeit innerhalb der Packungskolonne. Zum einen fehlt der Einfluss der Gegenlage und zum anderen ist auf Basis einer Einzellage die Flüssigkeitsverteilung über mehrere Packungslagen hinweg nicht feststellbar. In vielen Studien zur Untersuchung der Flüssigkeitsverteilung in Packungskolonnen wird deshalb die Flüssigkeit unterhalb der Packung aufgefangen. Dabei wird eine Vorrichtung benutzt, die den Querschnitt in mehrere Abschnitte unterteilt, so dass eine Messung der Flüssigkeitsverteilung über den Kolonnenquerschnitt möglich ist (Hoek et al., 1986; Olujić et al., 2006; Pavlenko et al., 2006). Die Arbeiten unterscheiden zwischen lokalen Ungleichverteilungen, die aufgrund der charakteristischen Packungsgeometrie entstehen, und großräumigen Ungleichverteilungen, die durch Randgängigkeit oder schlechte Flüssigkeitsverteiler entstehen. Auch Stikkelman (1989) beobachtete eine charakteristische Ungleichverteilung bei strukturierten Packungen, die nach mehr als drei Lagen konstant bleibt. Unabhängig von dem eingesetzten Flüssigkeitsverteiler geht die Flüssigkeitsverteilung über den Kolonnenquerschnitt nach einer bestimmten Schichtungshöhe in diese natürliche Ungleichverteilung über.

Die Methode des segmentierten Auffangens der Flüssigkeit liefert nur eine sehr geringe lokale Auflösung in Bezug auf die Flüssigkeitsverteilung über den Querschnitt. Des Weiteren ist es schwierig diese Methode mit Gas im Gegenstrom anzuwenden.

Für die nicht-invasive Beobachtung der Flüssigkeitsströmung sind insbesondere tomographische Methoden gut geeignet (Marchot et al., 2001; Spiegel und Meier, 2003). Zu den bekanntesten tomographischen Methoden zählen die Gamma- (Gamma-CT) und Röntgencomputertomographie (XCT). Diese liefern Bilder der Dichteverteilung im Querschnitt, da der Schwächungskoeffizient für viele Materialien proportional zu ihrer Dichte ist. Daneben gibt es elektrische Tomographieverfahren, deren Ergebnis Bilder der Verteilung von elektrischen Eigenschaften der Stoffe wie Leitfähigkeit oder Impedanz sind (Reinecke et al., 1998; Brunazzi, 2001). Weitere tomographische Methoden sind die Magnetresonanztomographie (Sankey et al., 2009) und die Positronen-Emissions-

Tomographie. Eine Übersicht der tomographischen Methoden, die zur Untersuchung von Strömungen in verfahrenstechnischen Apparaten eingesetzt werden können, ist in Schubert et al. (2011) gegeben.

Die Messung mit Gamma-CT liefert einen integralen Wert des gesamten Flüssigkeitsinhalts in dem gemessenen Kolonnenquerschnitt. Suess und Spiegel (1992) wendeten Gamma-CT an, um die Flüssigkeitsverteilung über die Höhe einer Kolonne zu ermitteln. Dabei stellten sie fest, dass sich die Flüssigkeit an den Übergängen zweier Packungselemente aufstaut. Auf Basis dieser Ergebnisse entwickelten sie eine neue Packungsgeometrie, die sogenannte Hochleistungspackung. Die Hochleistungspackung zeichnet sich dadurch aus, dass der Neigungswinkel der Kanäle sich auf den äußersten 2-3 cm eines Packungselements verändert und eine senkrechte Ausrichtung annimmt. Dadurch wird ein besserer Übergang der Gas- und Flüssigkeitsströmung von einem Element der Packung zum nächsten ermöglicht und die Kapazität der strukturierten Packung in Bezug auf die Flüssigkeitsbelastung signifikant erhöht.

Die Röntgentomographie ist ein örtlich auflösendes Messverfahren und liefert Schnittbilder des gemessenen Querschnitts. Mittlerweile wurde die mit dieser Technologie erzielbare Auflösung so stark verbessert, dass nicht nur die Flüssigkeitsverteilung über den Querschnitt quantifiziert, sondern auch die Phasengrenzfläche gemessen werden kann (Aferka et al., 2007; Green et al., 2007; Alix und Raynal, 2008). Einsichten in die Flüssigkeitsströmung mit und ohne Gasgegenstrom innerhalb der strukturierten Packung liefern Arbeiten, die an der Universität von Liège durchgeführt worden sind. Hier wird eine hochauflösende XCT-Messapparatur verwendet, um charakteristische Daten über spezifische Packungsoberfläche, Flüssigkeits-hold-up und die Phasengrenzfläche zwischen Gas- und Flüssigkeitsphase zu ermitteln. Dabei werden die Messungen in vielen Querschnitten über die Kolonnennhöhe und bei verschiedenen Betriebsbedingungen durchgeführt (Aferka et al., 2010a; Aferka et al., 2011). Die Ergebnisse zeigen, dass sich die lokale Flüssigkeitsverteilung über die Kolonnenhöhe verändert. Des Weiteren konnte anhand der Querschnittsbilder gezeigt werden, dass die Packungsoberfläche nicht komplett mit Flüssigkeit benetzt ist und die Dicke des Flüssigkeitsfilms von der makroskopischen Faltblattstruktur beeinflusst wird.

Green et al. (2007) beobachteten, dass sich Flüssigkeitszwickel dort zwischen zwei Packungslagen bilden, wo sich die Lagen berühren (s. Abbildung 2.7).

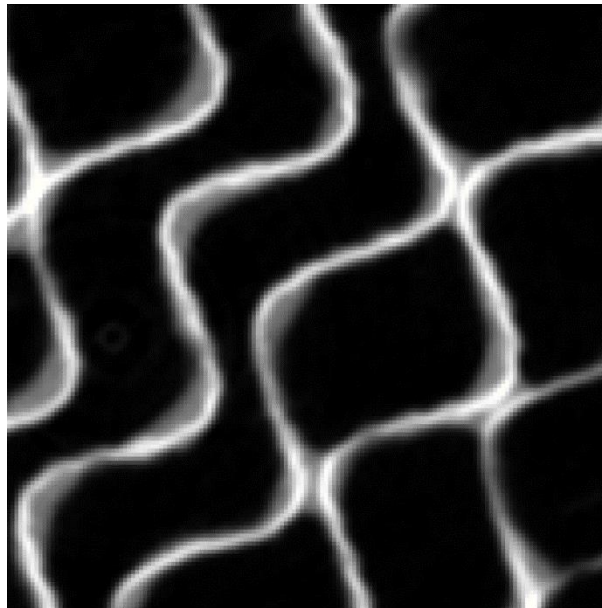


Abbildung 2.7: Querschnittsbild einer benetzten Packung mit Zwickelbildung an Kontaktpunkten zweier Faltblattlagen (Green et al., 2007)

Sowohl das segmentierte Auffangen der Flüssigkeit als auch die hier genannten tomographischen Methoden haben den großen Nachteil, dass eine Messung mehrere Sekunden oder Minuten dauert. Dadurch ist es nur möglich eine stationäre Strömung unterhalb und leicht oberhalb des Staupunktes zu beobachten. Je näher die Betriebsbedingungen an der Flutgrenze liegen, desto dynamischer ist die Flüssigkeitsströmung innerhalb der Kolonne und die Genauigkeit der beschriebenen Messmethoden nimmt stark ab. Aus diesem Grund gibt es nur wenige Untersuchungen der Flüssigkeitsströmung am Flutpunkt. Um die Strömungsphänomene am Flutpunkt zu beobachten werden Modellgeometrien wie parallele Platten (Drosos et al., 2006) oder Rohrgeometrien (Ousaka et al., 2006) verwendet und die Strömung mit einer Hochgeschwindigkeitskamera aufgenommen. In beiden Arbeiten wird beobachtet, dass sich bei höheren Gasgeschwindigkeiten Wellen auf der Flüssigkeitsoberfläche bilden, die eine "Brücke" mit den Wellen des Flüssigkeitsfilms auf der gegenüberliegenden Wand bilden können. Die Beobachtung dieser Phänomene in einer realen strukturierten Packung war bis vor Kurzem nicht möglich, da die Interaktion der Flüssigkeitsfilme zwischen zwei Metalllagen von außen nicht mit den klassischen Tomographieverfahren aufgenommen werden konnte. Am Helmholtz-Zentrum-

Dresden-Rossendorf (HZDR) wurde eine neuartige tomographische Messmethode entwickelt: die ultraschnelle Röntgentomographie (Bieberle et al., 2009; Schubert et al., 2011). Diese Messmethode bietet die technische Möglichkeit Flüssigkeitsströmung in der Nähe des Flutpunkts beobachten zu können. Vor Beginn der vorliegenden Arbeit wurde sie allerdings noch nicht zu diesem Zweck eingesetzt.

2.1.4 Einfluss der Viskosität auf Fluidodynamik und Trennleistung

Physikalische Eigenschaften der flüssigen Phase wie Viskosität und Oberflächenspannung haben einen großen Einfluss auf die Performance von Packungskolonnen. Sie beeinflussen Benetzungseigenschaften und das Strömungsverhalten innerhalb der strukturierten Packung. Fluiddynamische Parameter wie der Flüssigkeits-hold-up und damit die Kapazitätsgrenzen hängen von der Viskosität der Flüssigkeit ab. Auch die Trennleistung wird durch die Viskosität der Flüssigkeit beeinflusst. Obwohl Modelle zur Berechnung der Trennleistung wie die von Billet und Schultes (1993) oder das von Rocha et al. (1996) Stoffeigenschaften in ihren Korrelationsgleichungen berücksichtigen, wurde der Einfluss jeder einzelnen physikalischen Eigenschaft nicht separat voneinander untersucht. Vielmehr werden die Parameter an Trennleistungsmessungen von niedrigviskosen Systemen angepasst (Böcker und Ronge, 2005). Wang et al. (2006) zeigen, dass die Korrelationen für effektive Austauschfläche aus den gängigen Modellen zur Berechnung der Trennleistung von Packungskolonnen sehr unterschiedliche Werte liefern. Auch Delaloye et al. (1991) zeigen, dass z.B. die Viskosität in den Korrelationen zur Berechnung von Stofftransportkoeffizienten mit zum Teil unterschiedlichen Vorzeichen im Exponenten berücksichtigt wird.

Die Ursache hierfür ist, dass es schwierig ist den Einfluss von physikalischen Eigenschaften auf alle fluiddynamische und Stofftransport-Parameter systematisch und unabhängig voneinander zu untersuchen. So wird zum Beispiel die effektive Austauschfläche meistens indirekt über chemische Absorptionsmessungen

bestimmt. Es ist aber kaum möglich die Viskosität der Flüssigkeit zu variieren, ohne Stofftransportparameter wie den Diffusionskoeffizienten zu verändern.

Tsai (2010) hat in seiner Arbeit den Einfluss von Viskosität und Oberflächenspannung auf die effektive Stoffaustauschfläche untersucht. Die effektive Stoffaustauschfläche wurde dabei aus Messungen der Absorption von CO₂ in wässriger Natronlauge bestimmt. Bei der Wahl der Additive, mit denen die physikalischen Eigenschaften variiert wurden, wurde darauf geachtet, dass die Stofftransportkoeffizienten konstant bleiben. Allerdings war es so nicht möglich die Viskosität als einzigen Parameter zu variieren. Gleichzeitig änderte sich in seiner Arbeit die Oberflächenspannung der eingesetzten Flüssigkeit. In seinen Versuchen hat Tsai (2010) die Viskosität zwischen 1 und 14 mPas variiert. Seine Ergebnisse zeigen keinen Einfluss der Viskosität auf die effektive Stoffaustauschfläche.

Die Untersuchung der Viskosität auf den Flüssigkeits-hold-up und die Kapazität ist ohne Probleme mit konventionellen Methoden wie dem Auslitern oder Auswiegen möglich. Suess und Spiegel (1992) zeigten, dass mit der Steigerung der Viskosität der Flüssigkeitsinhalt innerhalb von strukturierten Packungen steigt und der Flutpunkt zu niedrigeren Gasbelastungen verschoben wird. Das bedeutet, dass die Kapazität mit steigender Viskosität sinkt. Um Ursachen für diesen Effekt zu finden, muss man die Strömungsphänomene innerhalb der Packung verstehen. Einige Untersuchungen zum Einfluss der Viskosität auf das Strömungsverhalten wurden anhand einer Einzellage durchgeführt. Shi und Mersmann (1985) untersuchten den Einfluss von Viskosität, Oberflächenspannung und Kontaktwinkel auf die Strömung eines Rinnsals einer geneigten Platte. Dabei stellten sie fest, dass die Breite und Dicke eines Rinnsals mit höherer Viskosität leicht ansteigt. Auch Stoter (1993) stellt in seiner Arbeit fest, dass die Breite eines Rinnsals mit steigender Viskosität größer wird. Die Tatsache, dass sowohl der Hold-up als auch die Rinnsalbreite mit steigender Viskosität steigen, lässt den Rückschluss zu, dass die Austauschfläche zwischen Gas und Flüssigkeit auch größer werden müsste. Die oben genannten Ergebnisse von Tsai (2010) widersprechen dieser Annahme. Das zeigt, dass weitere Untersuchungen mit anderen Methoden notwendig sind, um den Einfluss der Viskosität auf die Strömung in der realen Packungsgeometrie zu verstehen.

Auch der Einfluss der Viskosität auf die Trennleistung von Packungskolonnen ist nicht systematisch untersucht worden. Eine der wenigen Arbeiten auf diesem Gebiet ist von Böcker und Ronge (2005) durchgeführt worden. Sie untersuchten den Einfluss der Viskosität bei der Destillation eines organischen Testsystems durch Zugabe eines Polymers. Dabei stellten sie fest, dass die Trennleistung mit steigender Viskosität rapide absinkt.

2.2 Modellierung strukturierter Packungen

Für die rechnergestützte Auslegung und Optimierung von Packungskolonnen werden Modelle angewendet, die die Performance der gewünschten strukturierten Packung in Bezug auf Fluidodynamik und Trennleistung beschreiben. Ziel ist dabei eine möglichst genaue Dimensionierung, um Investitions- und Betriebskosten zu minimieren. Die Genauigkeit und die Vorhersagbarkeit der Modelle und damit die Genauigkeit der Dimensionierung der Kolonne hängen dabei von einer geeigneten Beschreibung der realen Vorgänge innerhalb der strukturierten Packung ab.

Parameter der Packungsgeometrie wie Faltwinkel und Oberflächenbeschaffenheit sowie die physikalischen Eigenschaften der in Kontakt tretenden Phasen beeinflussen die Strömung beider Phasen, den Stoff- und Wärmetransport. So ist es praktisch kaum möglich auf rein theoretischer Basis die Fluidodynamik, den Wärme- und den Stofftransport in einer kompletten Packungskolonne zu beschreiben. Aus diesem Grund beinhalten die existierenden Modelle gewisse Vereinfachungen und empirische Parameter. Die Modellierungstiefe und der Umfang der verwendeten empirischen Größen bestimmen die Einsatzmöglichkeiten der Modelle zur Beschreibung der Transportphänomene und die Übertragbarkeit auf andere Packungen und Stoffsysteme.

2.2.1 Übersicht Modellierungsansätze

Gleichgewichtsstufenmodell

Das älteste Modell, das zur Beschreibung von Trennapparaten verwendet wird, ist das Gleichgewichtsstufenmodell. Es wurde im 19ten Jahrhundert von Sorel (1893) entwickelt. Basis des Modells ist die Unterteilung der Kolonne in axiale Segmente.

Jedes Segment entspricht dabei einer theoretischen Trennstufe. Es wird die Annahme getroffen, dass sowohl die Gas- als auch die Flüssigphase ideal durchmischt sind und die aus der Stufe austretenden Ströme sich im thermodynamischen Gleichgewicht befinden. So lässt sich bei Kenntnis des Gleichgewichtsverhaltens relativ leicht die Anzahl der Trennstufen bestimmen, die theoretisch zum Erreichen der gewünschten Trennung benötigt werden.

Packungskolonnen werden in Segmente unterteilt, deren Höhe als HETP- (Height Equivalent to a Theoretical Plate) bzw. HTU- (Height of a Theoretical Unit) -Wert experimentell bestimmt werden. Dabei werden Einflüsse verschiedener Parameter wie Packungsgeometrie, physikalische Eigenschaften und Betriebsbedingungen in einem Bruttoparameter, dem Stoffdurchgangskoeffizienten, zusammengefasst. Eine Übertragbarkeit der Bruttoparameter auf andere Packungsgeometrien, Betriebspunkte oder Stoffsysteme, als die in der Messung verwendeten, ist nur sehr begrenzt möglich.

Rate-based Modell

Kinetik-basierte Modelle (rate-based Modelle) sind eine Weiterentwicklung des Gleichgewichtsstufenmodells. Sie greifen ebenfalls auf das Konzept der Trennstufen zurück, allerdings gehen sie nicht davon aus, dass in jeder Stufe das thermodynamische Gleichgewicht erreicht wird. Vielmehr wird die Prozesskinetik, d.h. die Wärme- und Stoffübergangsraten, berücksichtigt. Die Höhe einer Stufe wird nicht festgelegt. Die Mindestanzahl an Stufen ergibt sich aus der numerischen Betrachtung. Dabei wird die Anzahl der Stufen so weit erhöht, bis die Anzahl der Stufen das numerische Ergebnis nicht mehr beeinflusst.

Verschiedene Modellvorstellungen können zur Beschreibung des Stoffaustausches zwischen Gas- und Flüssigphase angewendet werden (siehe z.B. Taylor und Krishna, 1993; Kenig, 2000). Am häufigsten wird das Zweifilmmodell von Lewis und Whitman (1924) verwendet. Dieses beruht auf der Vorstellung, dass sich an der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit zwei stagnierende Filme ausbilden, in denen der gesamte Stoffübergangswiderstand liegt. Stoff- und Wärmeübergang finden in diesen Filmen ausschließlich durch molekulare Diffusion senkrecht zur Phasengrenzfläche statt. Direkt an der Phasengrenze befinden sich Gas- und Flüssigphase im thermodynamischen Gleichgewicht und es

gilt die Kontinuitätsbedingung der Flüsse. An die stagnierenden Filme schließen sich die Kernphasen an, die als vollständig durchmischt angenommen werden. In Abbildung 2.8 ist eine Rate-based-Stufe zur Beschreibung der Transportvorgänge in einem Trennprozess basierend auf der Zweifilmtheorie dargestellt.

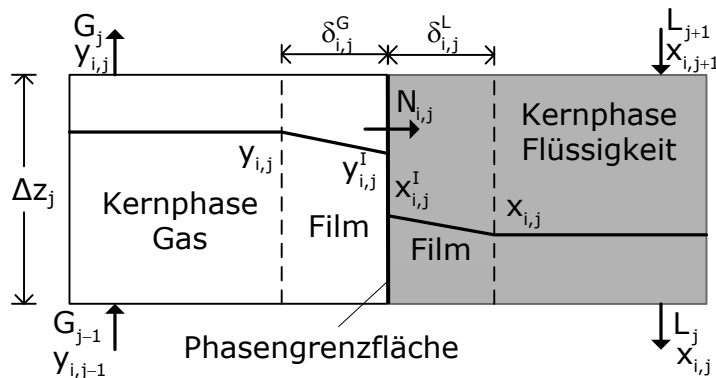


Abbildung 2.8: Rate-based-Stoffaustauschstufe basierend auf der Zweifilmtheorie

Der Modellansatz bedient sich gemittelter Größen in Form von Korrelationen, mit denen Wärme- und Stofftransport in Abhängigkeit der Packungsgeometrie, Fluidodynamik und Stoffdaten berechnet wird. So werden fluiddynamische Parameter (z.B. Flüssigkeits-hold-up und Druckverlust) und Stofftransportparameter (z.B. effektive Stoffaustauschfläche und Stofftransportkoeffizienten) verwendet. Eine große Anzahl von Korrelationen für diese Parameter für verschiedene Packungsgeometrien ist in der Literatur verfügbar.

Wegen ihrer breiten Datenbasis haben sich z.B. die vollständigen Ansätze von Rocha, Bravo und Fair (Bravo et al., 1985; Rocha et al., 1993, 1996), Billet und Schultes (Billet und Schultes, 1993, 1995) sowie das „Delft“-Modell (Olujic, 1997; Olujic et al., 1999) als geeignet erwiesen, um Fluidodynamik und Stofftransport von Packungen mit Faltblattgeometrie zu beschreiben. Die Rate-based-Modellierung hat unter Verwendung der Zweifilmtheorie eine breite Anwendbarkeit und besitzt einen direkten Bezug zu Kolonneneinbauten und zum Kolonnendesign. Allerdings hängen Genauigkeit und Vorhersagbarkeit der erzielbaren Simulationsergebnisse extrem von der Eignung der zur Verfügung stehenden Parameterkorrelationen ab (Shilkin und Kenig, 2005; Shilkin, 2007).

HA-Modell

Die Modellierung von Packungskolonnen mit dem Ansatz der hydrodynamischen Analogien (HA) ermöglicht es, fluiddynamische Gleichungen für die Beschreibung der Transportphänomene in Packungskolonnen im technischen Maßstab anzuwenden. Dabei wird die komplexe reale Strömung als Kombination vereinfachter fluiddynamischer Elemente dargestellt. So können Geschwindigkeitsprofile vereinfacht bestimmt werden. Die Kenntnis des Strömungsbildes erlaubt die Anwendung rigoroser partieller Differentialgleichungen zur Berechnung des Wärme- und Stofftransports. Empirische Wärme- und Stofftransportkoeffizienten werden somit nicht benötigt (Shilkin und Kenig, 2005; Shilkin, 2007).

Computational Fluid Dynamics (CFD)

Die direkte Anwendung von fluiddynamischen Gleichungen (fluiddynamischer Ansatz) zur Beschreibung der Transportprozesse ist für einfache mehrphasige Strömungen und einfache Geometrien mit Hilfe der Methoden der Computational Fluid Dynamics (CFD) möglich. Dafür wird die Geometrie des Trennapparates z.B. mit der Finite-Volumen-Methode diskretisiert (siehe z.B. Paschedag, 2004). Anschließend werden gekoppelte, partielle Differentialgleichungen zur Bilanzierung des Impuls-, Wärme- und Stofftransports iterativ gelöst.

So können hoch aufgelöste lokale Geschwindigkeits-, Temperatur- und Konzentrationsfelder in kleinen repräsentativen Elementen der Packung berechnet werden. Da die mehrphasige Strömung innerhalb der Packung dynamisch ist, verändert sich die Lage der Phasengrenzfläche über die Zeit. So müssen für die Berechnung des Stofftransports nicht nur die Bilanzgleichungen gelöst, sondern auch die Lage der Phasengrenze zwischen Gas und Flüssigkeit verfolgt werden. Für die Berechnung der komplexen realen Vorgänge in Packungskolonnen im technischen Maßstab mittels CFD ist damit der Rechenaufwand zur Zeit zu groß.

2.2.2 Vergleich und Einordnung der Modellierungsansätze

Für die Berechnung des Stofftransports in Packungskolonnen gilt: je höher die Modellierungstiefe ist, desto geringer ist die fluiddynamische Komplexität, die durch das Modell beschrieben werden kann. Dieser Zusammenhang ist in Abbildung 2.9 dargestellt. Die Auswahl eines geeigneten Modellierungsansatzes muss in Abhängigkeit der vorherrschenden Strömung in der zu modellierenden Kolonne und dem abzubildenden Betriebsbereich getroffen werden. Für sehr komplexe und chaotische Strömungen, wie sie zum Beispiel nahe des Flutpunkts in einer Kolonne vorherrschen, ist zum Beispiel ein kinetisch-basiertes Modell geeignet. Laminare Strömungen unterhalb des Staupunkts können mit dem HA-Modell beschrieben werden. Die Gasströmung in sich kreuzenden Packungskanälen kann mit CFD modelliert werden. Der Anwendungsbereich der verschiedenen Modellansätze kann durch einen komplementären Einsatz der Modelle erweitert werden. So können zum Beispiel Transportkoeffizienten mittels CFD-Modellierung bestimmt (virtuelle Experimente) und im kinetisch-basierten Modell eingesetzt werden. (Raynal und Royon-Lebeaud, 2007; Kenig, 2008, 2009)

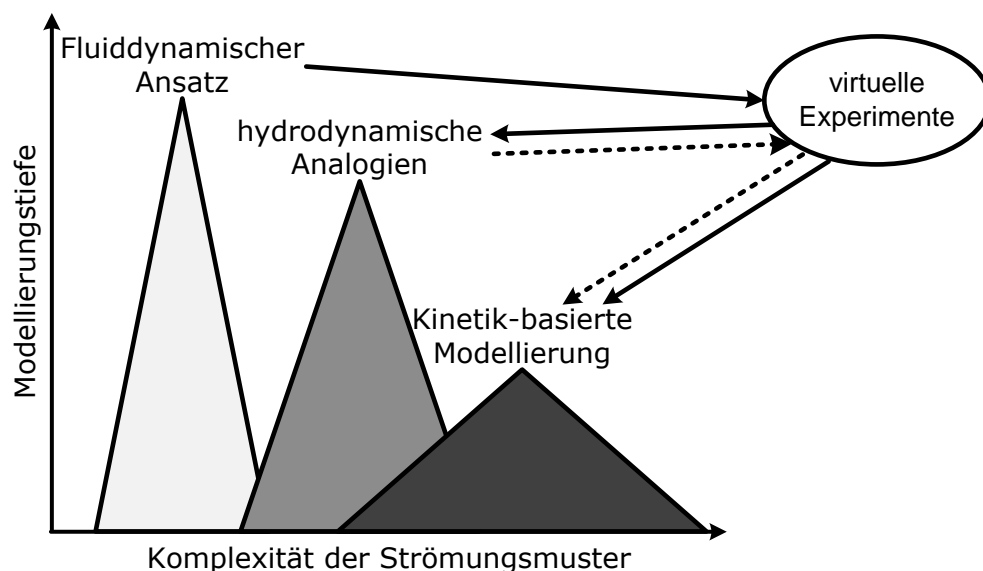


Abbildung 2.9: Eignung von Modellierungsansätzen in Abhängigkeit der fluiddynamischen Komplexität: komplementäre Verwendung verschiedener Modelle (Kenig, 2009)

Im Rahmen dieser Arbeit wird der Stofftransport in einer Kolonne gefüllt mit strukturierten Packungen modelliert. Der zu modellierende Betriebsbereich ist unterhalb des Staupunkts. Die Packungsgeometrie und die laminare Strömung

erlauben die Anwendung des HA-Modells. Aus diesem Grund wird in der vorliegenden Arbeit der Ansatz der hydrodynamischen Analogien verwendet, um den Einfluss der Viskosität auf den Stofftransport zu modellieren. Im folgenden Kapitel wird das HA-Modell, das von Shilkin und Kenig (2005) entwickelt und in dieser Arbeit als Basis für die Modellierung verwendet wurde, vorgestellt.

2.2.3 Modell basierend auf Hydrodynamischen Analogien

Shilkin und Kenig (2005) schlagen vor zur Beschreibung des Stofftransportes in Kolonnen mit Faltblattpackungen die reale Strömung im Modell auf eine geringe Zahl relevanter fluiddynamischer Phänomene zu reduzieren (Shilkin und Kenig, 2005; Shilkin et al., 2006). Hinsichtlich der Flüssigkeit haben folgende Phänomene wesentlichen Einfluss:

- Die Flüssigkeit fließt in Form eines laminaren Films an der Oberfläche des Faltblatts, wobei die Strömungsrichtung einen minimalen Fließwinkel α zur Horizontalen bildet.
- Der Strömungswechsel der Flüssigkeit an den Faltungen der Lagen wird als idealer Mischungspunkt angenommen.
- Die laminare oder turbulente Gasströmung wird im Gegenstrom zur Flüssigkeit durch die Kanäle geleitet, die durch die Packungsgeometrie vorgegeben sind. Anhand des hydraulischen Durchmessers kann die dreieckige Form der Kanäle als eine zylindrische Geometrie abgebildet werden.
- Die Kolonnenwand und die Übergänge von Packungselementen werden aufgrund der dort stattfindenden Durchmischung als ideale Mischungspunkte in der Gasphase betrachtet.

Die Geometrie der strukturierten Packungen mit konventioneller Faltblattstruktur weist einen besonders hohen Grad an Regelmäßigkeit auf. Die dargestellten relevanten Strömungsformen folgen dieser Regelmäßigkeit und können daher in Form einer hydrodynamischen Analogie (HA) auf ein stark vereinfachtes, physikalisches Modell übertragen werden (Shilkin et al., 2006; Abbildung 2.10).

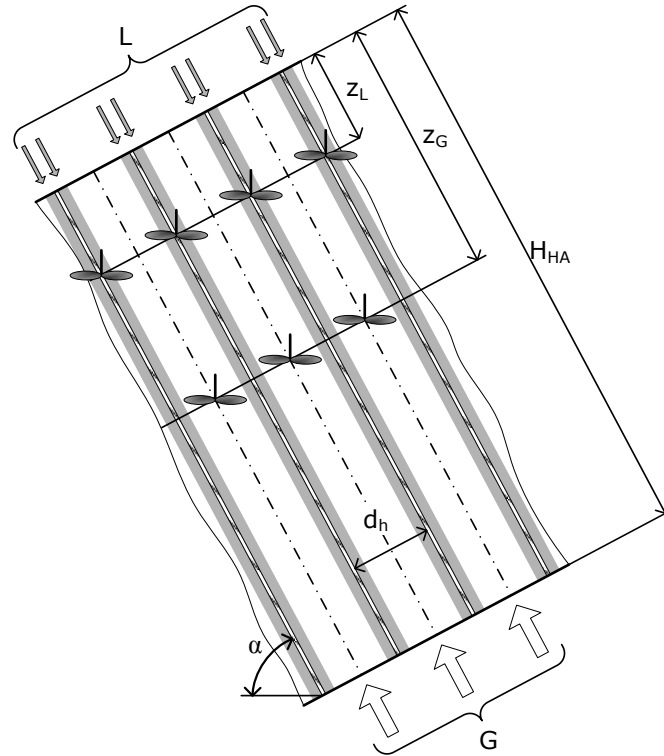


Abbildung 2.10: Physikalisches Modell der hydrodynamischen Analogie zur Beschreibung der Strömung in Packungen mit konventioneller Faltblattgeometrie (Shilkin, 2007)

Die Packung wird als Bündel zylindrischer Kanäle mit einem Durchmesser, der dem hydraulischen Durchmesser der Packungskanäle entspricht, abgebildet. Die Parameter zur Beschreibung des Kanalbündels wie Anzahl und Durchmesser der Kanäle können aus der Packungsgeometrie bestimmt werden; die Herleitung der im Folgenden dargestellten Parametergleichungen wird durch Shilkin (2007) ausführlich beschrieben.

Der hydraulische Durchmesser d_h der Faltblattkanälen ist:

$$d_h = \frac{4 \cdot \varepsilon_P}{a_P} = \frac{\varepsilon_P \cdot b_0 \cdot H_F}{s_0} \quad (2.3)$$

Der Neigungswinkel α der zylindrischen Kanäle entspricht dem Winkel effektiven Strömungswinkel (vgl. Abbildung 2.6). Daraus resultiert die Anzahl der Kanäle N_{HA} der strukturierten Packung:

$$N_{HA} = \frac{a_P \cdot \sin \alpha \cdot d_P^2}{4 \cdot d_h} \quad (2.4)$$

Die Länge der Kanäle lässt sich bestimmen über

$$H_{HA} = \frac{H_p}{\sin \alpha} \quad (2.5)$$

Die Flüssigkeit strömt in Form laminarer Filme an der inneren Oberfläche der Kanäle herab. Die Gasströmung bewegt sich entgegen gerichtet und kann laminaren oder turbulenten Charakter annehmen. Die Durchmischung beider Phasen erfolgt jeweils nach Durchströmen einer mischungsfreien Weglänge z_L bzw. z_G :

$$z_L = \frac{s_0}{\tan(\varphi) \cdot \cos(\arctan(\cos(\varphi) \cdot \cot(\gamma_0 / 2))) \cdot \sin \alpha} \quad (2.6)$$

$$z_G = \frac{\sum_{i=1}^{(n_p/2)} 2 \cdot B_{F,i_F} \cdot H_L}{\sum_{i=1}^{(n_p/2)} (2 \cdot (B_{F,i} \cdot \cos \varphi + H_L \cdot \sin \varphi) - b_0)} \quad (2.7)$$

mit $n_p = \frac{d_K}{H_F}$

$$\text{und } B_{F,i} = \sqrt{d_K^2 - \left(H_F \cdot \left(\frac{n_p}{2} - 2 \cdot (i_F - 1) \right) \right)^2}$$

Die Berechnung der mischungsfreien Weglänge z_G berücksichtigt die Vermischung der Gasphase an der Kolonnenwand. Durch die geneigte Geometrie besitzen die dreieckigen Kanäle der Packung unterschiedliche Längen, bis sie an die Kolonnenwand stoßen. Insbesondere bei Kolonnen mit einem Durchmesser, der kleiner ist als die Packungshöhe, ist dieser Effekt signifikant. Daher wird eine mittlere Kanallänge ermittelt. Der Laufindex i_F in Gleichung (2.7) zählt die einzelnen Faltblätter des Packungselements.

Die laminare, vollständig entwickelte Filmströmung der flüssigen Phase kann mit der Navier-Stokes-Gleichungen beschrieben werden:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \mu_L \frac{\partial u_L}{\partial r} \right) - \frac{\partial P_L}{\partial x} + \rho_L g \sin \alpha = 0, \quad (2.8)$$

$$\frac{\partial P_L}{\partial r} = 0 \quad (2.9)$$

Je nach Gasbelastung kann die Gasphase auch turbulent sein. Aus diesem Grund wird zur Beschreibung des Gasstroms die Boussinesq-Approximation verwendet Shilkin (2007).

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \mu_G \frac{\partial u_G}{\partial r} \right) - \frac{\partial P_G}{\partial x} + \rho_G g \sin \alpha = 0, \quad \mu_G = \mu_G^{\text{lam}} + \mu_G^{\text{turb}}, \quad (2.10)$$

$$\frac{\partial P_G}{\partial r} = 0 \quad (2.11)$$

Für laminare Gasströme wird $\mu_G^{\text{turb}} = 0$.

Zur Lösung des Gleichungssystems werden folgende Randbedingungen festgelegt:

- Haftbedingung an der Kanalwand ($r = R_H$) für die flüssige Phase:

$$u_L \Big|_{r=R_H} = 0 \quad (2.12)$$

- Symmetriebedingung an der Symmetrieachse ($r = 0$) eines Kanals:

$$\frac{\partial u_G}{\partial r} \Big|_{r=0} = 0 \quad (2.13)$$

- An der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit ($r = R_H - \delta$) sind Geschwindigkeit und Schubspannung über konjugierte Randbedingungen gekoppelt:

$$u_G = u_L \quad (2.14)$$

$$\mu_L \frac{\partial u_L}{\partial r} \Big|_{r=R_H-\delta} = \mu_G \frac{\partial u_G}{\partial r} \Big|_{r=R_H-\delta} \quad (2.15)$$

Die Gleichungen (2.8)-(2.11) und die Randbedingungen werden durch das Massenerhaltungsgesetz vervollständigt. Die Volumenströme der Gas- bzw. Flüssigphase in einem Kanal L und G sind dabei:

$$G = 2\pi \int_0^{R_H - \delta} u_G(r) r dr \quad (2.16)$$

$$L = -2\pi \int_{R_H - \delta}^{R_H} u_L(r) r dr \quad (2.17)$$

Das Ergebnis der Lösung der aufgeführten hydrodynamischen Gleichungen sind die Geschwindigkeitsprofile $u(x,r)$ für beide Phasen und die Filmdicke der flüssigen Phase δ . Eine schematische Darstellung einer zweiphasigen Kanalströmung, bei der die beiden Phasen im Gegenstrom geführt werden, ist in Abbildung 2.11 zu sehen. (Shilkin, 2007)

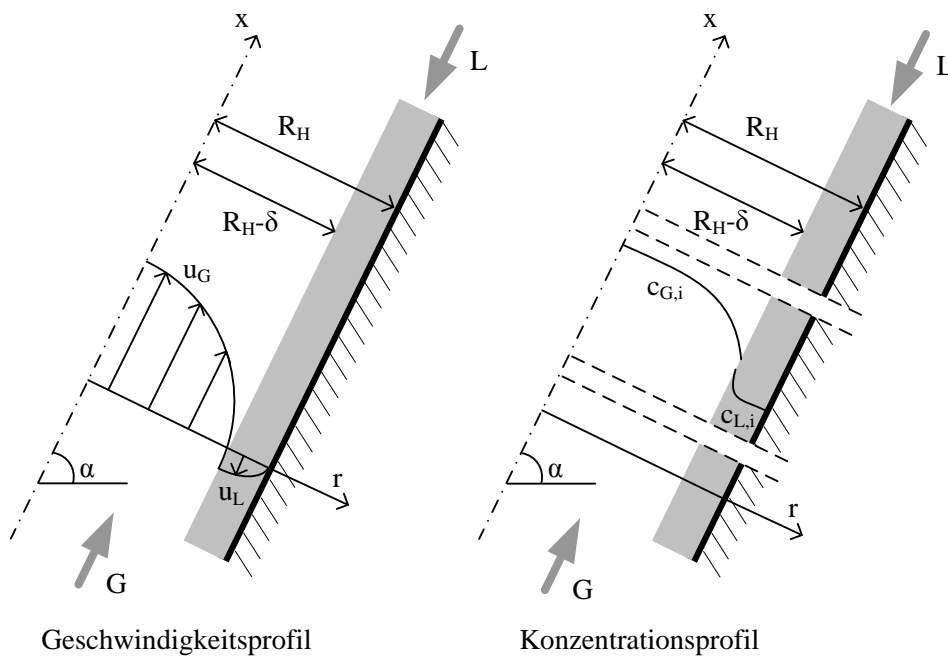


Abbildung 2.11: Geschwindigkeits- und Konzentrationsprofile einer zweiphasigen Strömung im Gegenstrom (Shilkin, 2007).

In einem System mit N Komponenten kann der Wärme- und Stofftransport durch nachfolgende Transportgleichungen beschrieben werden, wobei der turbulente Anteil nur für turbulente Gasströmungen gilt.

$$u(r) \frac{\partial T}{\partial x} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \cdot \left(\frac{\lambda}{\rho \cdot c_p} + \frac{\mu^{\text{turb}}}{\rho} \right) \frac{\partial T}{\partial r} \right) \quad (2.18)$$

$$u(r) \frac{\partial c_i}{\partial x} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r D_{i,k} \frac{\partial c_i}{\partial r} \right), \quad D_i = D_i^{\text{eff}} + \frac{\mu^{\text{turb}}}{\rho}, \quad i = 1 \dots N \quad (2.19)$$

Es gelten folgende Randbedingungen:

- Am Eintritt ($x = 0$) für beide Phasen

$$T = T^0, \quad c_i = c_i^0 \quad (2.20)$$

- Kein Wärme- und Stofftransport an der Kanalwand ($r = R_H$) und an der Symmetrieachse ($r = 0$).

$$\frac{\partial T}{\partial r} = 0, \quad \frac{\partial c_i}{\partial r} = 0 \quad (2.21)$$

- An der Phasengrenzfläche ($r = R_H - \delta$) gilt die Kontinuitätsbedingung und das thermodynamische Gleichgewicht zwischen den beiden Phasen:

$$D_{L,K} \frac{\partial c_{L,i}}{\partial r} \Big|_{r=R_H-\delta} = D_{G,i} \frac{\partial c_{G,i}}{\partial r} \Big|_{r=R_H-\delta} \quad (2.22)$$

$$T_G = T_L, \quad c_{G,i} = K_i c_{L,i} \quad (2.23)$$

- Die Kontinuitätsbedingung des Wärmeübergangs an der Phasengrenzfläche ($r = R_H - \delta$) stellt eine Verbindung zwischen Konzentration und Temperatur an dieser Stelle her.

$$\lambda_L \frac{\partial T_L}{\partial r} = \lambda_G \frac{\partial T_G}{\partial r} + \sum_{i=1}^n \Delta H_i D_{L,i} \frac{\partial c_{L,i}}{\partial r} \quad (2.24)$$

Für die idealen Mischungspunkte in der Gas- und Flüssigphase (Übergänge der Packungselemente, Mischungspunkte nach einem Abstand von z_G und z_L) werden die Konzentration und Temperatur als ideal durchmischt über den jeweiligen Film

angenommen. Hierfür wird ein integraler mittlerer Wert nach den folgenden Gleichungen bestimmt:

$$\bar{c}_{G,i}(x) = \frac{\int_0^{R_H-\delta} c_{G,i}(x,r) u_G(r) r dr}{\int_0^{R_H-\delta} u_G(r) r dr}, \quad \bar{c}_{L,i}(x) = \frac{\int_{R_H-\delta}^{R_H} c_{L,i}(x,r) u_L(r) r dr}{\int_{R_H-\delta}^{R_H} u_L(r) r dr} \quad (2.25)$$

$$\bar{T}_G(x) = \frac{\int_0^{R_H-\delta} T_G(x,r) u_G(r) r dr}{\int_0^{R_H-\delta} u_G(r) r dr}, \quad \bar{T}_L(x) = \frac{\int_{R_H-\delta}^{R_H} T_L(x,r) u_L(r) r dr}{\int_{R_H-\delta}^{R_H} u_L(r) r dr} \quad (2.26)$$

Die numerische Lösung der Gleichungen (2.18) und (2.19) mit den aufgeführten Randbedingungen liefert radiale (s. Abbildung 2.11) und axiale Konzentrations- und Temperaturprofile. Durch die Bildung von integralen Mittelwerten entsprechend Gleichungen (2.25) und (2.26) werden gemittelte axiale Profile über die Kolonnenhöhe bestimmt (Shilkin und Kenig 2005).

Ein Programmcode in FORTRAN wurde von Shilkin (2007) entwickelt, mit dem die Gleichungen zur Bestimmung der Hydrodynamik und der Transportphänomene numerisch gelöst werden. Für die numerische Lösung werden die Transportgleichungen entdimensioniert und diskretisiert. Der Gas- und der Flüssigkeitsfilm werden in Diskrete unterteilt. Die Anzahl der Diskrete wird über eine Gitterunabhängigkeitsstudie für den jeweiligen Anwendungsfall bzw. jedes Stoffsystem festgelegt. Die Lösung der Transportgleichungen erfolgt in mehreren Iterationsschritten, bis eine Konvergenz der Konzentrationsprofile erreicht ist. Eine genaue Beschreibung der Entdimensionierung, Diskretisierung und des Lösungsalgorithmus ist in Shilkin (2007) gegeben.

Shilkin (2007) zeigt, dass das vorgestellte HA-Modell in der Lage ist Rektifikationsprozesse mit zwei und drei Komponenten zu beschreiben. Brinkmann et al. (2014) zeigen, dass das Modell auch für reaktive Absorptionssysteme anwendbar ist. Im Bereich geringer Gasbelastungen ist die Übereinstimmung der Konzentrationsprofile zwischen Experiment und Simulation ausgezeichnet. Teilweise werden deutlich exaktere Ergebnisse als mit dem zu Vergleichszwecken betrachteten Zweifilmmodell erzielt. Das HA-Modell wurde jedoch bisher nur für Stoffsysteme mit niedriger Viskosität der flüssigen Phase angewendet.

3 Ziele der Arbeit

Bei der Auslegung von Packungskolonnen werden häufig empirische und semi-empirische Korrelationsgleichungen zur Berechnung von fluiddynamischen Größen und Stofftransportparametern benutzt. Die Parameter der Korrelationsgleichungen werden an experimentelle Daten angepasst, so dass der Anwendungsbereich in Bezug auf Packungstyp und physikalische Eigenschaften der Gas- und Flüssigphase begrenzt ist. Für Stoffsysteme mit einer hohen Viskosität der flüssigen Phase sind die Korrelationen aus der Literatur für die Berechnung von Stofftransportparametern ohne zusätzliche experimentelle Daten nicht anwendbar.

Ziel dieser Arbeit war es einen Modellierungsansatz zu entwickeln, der den Einfluss der Viskosität der flüssigen Phase auf die Trennleistung von strukturierten Packungen vorhersagen kann, ohne Korrelationen für Stofftransportparameter zu verwenden. Dazu soll das bereits vorhandene HA-Modell entsprechend erweitert werden.

Voraussetzung für die Entwicklung von hydrodynamischen Analogien zwischen der realen Flüssigkeitsströmung und vereinfachten fluiddynamischen Elementen ist das Verständnis der Strömungsphänomene innerhalb der Kolonne. Um den Einfluss der Viskosität auf die Flüssigkeitsströmung über den gesamten Betriebsbereich zu erfassen, soll im Rahmen dieser Arbeit die Röntgen-Tomographie angewendet werden. Bisherige Arbeiten, in denen die Flüssigkeitsströmung mit tomographischen Methoden untersucht wurde, befassten sich nicht mit dem Einfluss der Viskosität und lieferten qualitative Ergebnisse. Im Rahmen dieser Arbeit soll, neben den tomographischen Messungen mit viskosen Systemen, eine Methode entwickelt werden, um die Flüssigkeitsströmung in den tomographischen Querschnittsbildern quantitativ auszuwerten. Desweiteren sollen Parameter, die den Einfluss der Viskosität wiedergeben, entwickelt und im HA-Modell eingesetzt werden.

In der Literatur finden sich sehr wenige experimentelle Daten, die den Einfluss der Viskosität auf die Trennleistung von strukturierten Packungen zeigen. Die Daten, die es gibt, eigneten sich nicht, um das erweiterte HA-Modell zu validieren. Aus diesem Grund sollen eigene Trennleistungsmessungen in einer Packungskolonne durchgeführt und das in dieser Arbeit entwickelte Modell mit den experimentellen Daten validiert werden.

4 Tomographische Untersuchungen

Zur Untersuchung der Flüssigkeitsströmung in strukturierten Packungen wurden in dieser Arbeit zwei verschiedene röntgentomographische Messmethoden eingesetzt. Diese unterscheiden sich dadurch, dass die eine Methode zeitlich integrale und örtlich hoch aufgelöste Bilder liefert, während die zweite Methode zwar eine schwächere örtliche Auflösung hat, dafür aber eine hohe Bildrate pro Messzeit aufweist. Durch den sich ergänzenden Einsatz beider Methoden ist es zum ersten Mal möglich den gesamten Betriebsbereich bis zum Fluten der Packungskolonne tomographisch zu untersuchen.

4.1 Grundlagen der Röntgentomographie

Die Tomographie ist ein bildgebendes Messverfahren mit dem Ziel ein Schnittbild des zu untersuchenden Objektes zu erzeugen. Das Schnittbild liefert Informationen über die Verteilung von unterschiedlichen Stoffen im Querschnitt eines Gegenstandes. Diese Technologie wurde ursprünglich für die Medizintechnik entwickelt. Später wurde sie eingesetzt, um die Verteilung von Gas-, Flüssig- und Festphase in verfahrenstechnischen Apparaten wie chemischen Reaktoren mit Katalysatorschüttung und Packungskolonnen zu untersuchen. Der größte Vorteil von tomographischen Messmethoden gegenüber konventionellen Methoden zur Untersuchung von Fluidverteilungen ist, dass sie nicht invasiv sind (Reinecke et al., 1997).

Im Rahmen dieser Arbeit wird ausschließlich Röntgen Computer Tomographie (engl. X-Ray Computer Tomography, XCT) eingesetzt. Im folgenden Kapitel werden nur die Grundlagen dieses Messprinzips kurz dargestellt. Weiterführende Informationen zur Röntgentomographie sind in Fachbüchern wie von Metzler (1991) und Morneburg (1995) zu finden.

4.1.1 Messprinzip der Röntgentomographie

Bei der Röntgen Computer Tomographie (XCT) wird das zu untersuchende Objekt von Röntgenstrahlen durchdrungen. Dafür wird ein Strahl durch eine Röntgenquelle erzeugt. Dieser wird durch einen Kollimator auf einen flachen Fächerstrahl reduziert und durchdringt das Messobjekt. Durch Wechselwirkungen des Röntgenstrahls und der Elektronen des durchstrahlten Materials wird der Röntgenstrahl geschwächt. Der geschwächte Wert (Projektion) wird durch einen Detektor auf der anderen Seite des Objektes erfasst. Um ein Querschnittsbild des Objektes zu erhalten, müssen Projektionsdaten aus vielen verschiedenen Winkeln aufgenommen werden. Dafür wird entweder eine relative Drehbewegung des Messsystems zum Untersuchungsobjekt realisiert (klassische CT) oder eine Eigenrotation des Untersuchungsobjektes genutzt (winkelaufgelöste CT), um mehrere hunderte Durchleuchtungsprojektionen aus verschiedenen Winkelpositionen aufzunehmen. Aus dieser Projektionsdatenmatrix (Sinogramm) kann anschließend mit Hilfe von CT-Rekonstruktionsalgorithmen ein überlagerungsfreies Schnittbild generiert werden. Auf dem resultierenden Bild entspricht der Grauwert eines Pixels dem integralen Schwächungswert an diesem Punkt. Bei der winkelaufgelösten CT können alle mit konstanter Drehzahl rotierenden Bestandteile des Untersuchungsobjektes, zum Beispiel rotierende Flüssigkeits- oder Gasfelder, rekonstruiert werden. In Abbildung 4.1 ist das Prinzip der XCT dargestellt (Toye et al., 1995).

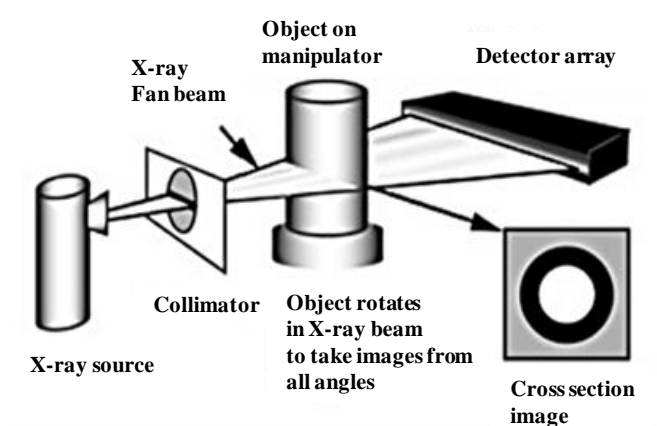


Abbildung 4.1: Prinzip der Tomographie, Quelle Bild: (Toye et al., 1995)

Das resultierende Querschnittsbild stellt einen zeitlichen Mittelwert der Projektionsdaten über die Dauer der Messung dar. Die Messdauer hängt von der Belichtungszeit und von der Anzahl der Projektionen ab. Die örtliche Auflösung des Bildes hängt von dem Auflösungsvermögen des Detektors, der Brennfleckgröße der Röntgenquelle und der Dicke des Fächerstrahls ab. Die geometrischen Abmessungen eines Pixels auf einem tomographischen Bild werden durch die örtliche Auflösung bestimmt (Toye et al., 1995).

4.2 Messungen mittels konventioneller XCT

Tomographische Untersuchungen der Strömung in strukturierten Packungen mit einem konventionellen Tomographen wurden in Zusammenarbeit mit dem Institut für Chemieingenieurwesen (Laboratoire de Génie Chimique) der Universität Liège in Belgien durchgeführt und in Janzen et al. (2013b) veröffentlicht. Die für dieses Kapitel verwendeten Daten sind in Teilen der Arbeit von Steube (2011) entnommen worden.

4.2.1 Messapparatur an der Universität in Liège

Ein Röntgentomograph wurde an der Universität Liège konzipiert und aufgebaut. Der Röntgenstrahlgenerator, ein Baltograph, erzeugt eine Strahlung mit einer maximalen Beschleunigungsspannung von 420kV. Die ölgekühlte Röntgenröhre hat einen maximalen Röhrenstrom von 8mA. Sie erzeugt einen Röntgenstrahl, der durch einen Kollimator bis auf einen flachen Fächerstrahl mit einer Dicke von 1mm ausgeblendet wird. Der lineare Detektor besteht aus 1280 Photodioden. Die Belichtungszeit pro Projektion beträgt zwischen 0,67 und 15 ms. Weitere technische Spezifikationen des Tomographen sind in Toye et al. (2005) gegeben. Bei der Verwendung des Tomographen kann eine örtliche Auflösung von 0,36mm erreicht werden. Das bedeutet, dass ein Pixel auf dem tomographischen Bild eine Fläche $0,36 \times 0,36 \text{ mm}^2$ hat.

Die Röntgenquelle und der Detektor sind auf einem in der Höhe verstellbarem Metallarm montiert. Bei dem tomographischen Aufbau in Liège bleiben das Quellen-Detektor-System während der Messung statisch, während sich das Objekt dreht. Dafür befindet sich das Messobjekt auf einem rotierenden Tisch. Es ist möglich Objekte mit einem Durchmesser von bis zu 0,45 m und einer Höhe von bis

zu 3,78 m zu vermessen. Eine schematische Darstellung des Tomographen ist in Abbildung 4.2 zu sehen.

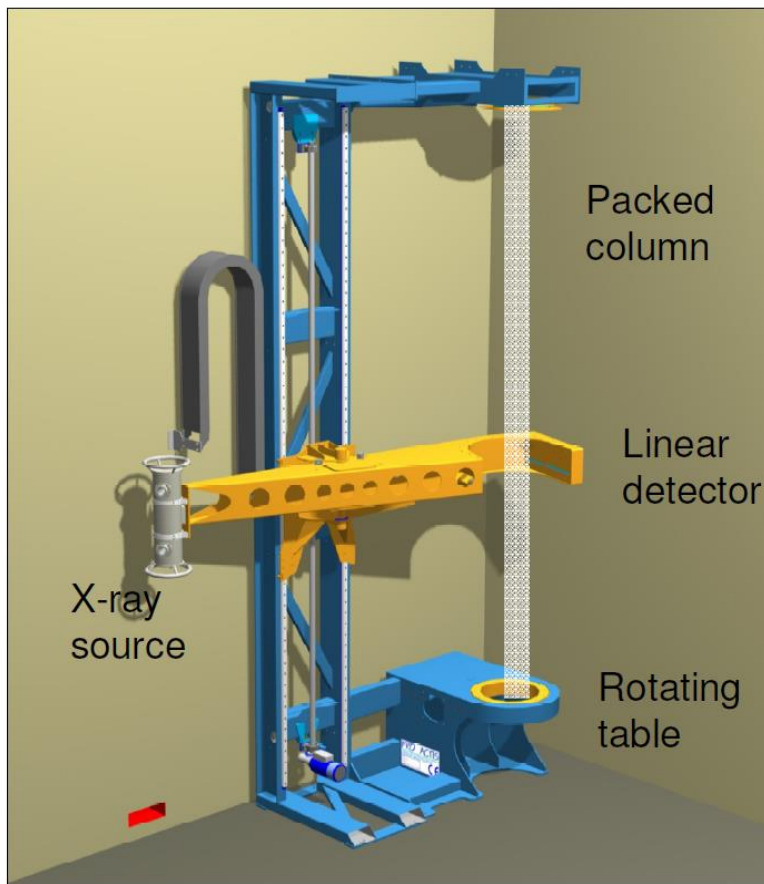


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung des Röntgentomographen an der Universität Liège.
(Aferka et al., 2010a)

4.2.2 Versuchsaufbau und -durchführung

Bei den tomographischen Messungen an der Universität Liège wird eine Kolonne aus durchsichtigem Kunststoff mit einem inneren Durchmesser von 105 mm verwendet. In dieser Arbeit wird der Packungstyp MellapakPlus 752.Y der Firma Sulzer Chemtech untersucht. MellapakPlus ist eine Hochleistungspackung mit einer spezifischen Oberfläche von ca $500 \text{ m}^2/\text{m}^3$. Die geometrischen Charakteristika der untersuchten Packung sind in Tabelle 4.1 gegeben.

Tabelle 4.1: Geometrische Charakteristika von MellapakPlus 752.Y (Sulzer Chemtech)

	MellapakPlus 752.Y
Höhe des Packungelements [mm]	200
Durchmesser [mm]	100
Spezifische Oberfläche [m^2/m^3]	510
Lückengrad	97,5 %
Neigungswinkel	45°
Basislänge [mm]	9,85
Faltblatthöhe [mm]	6,50

Die Kolonne ist mit vier Elementen der strukturierten Packung gefüllt. Die Elemente sind jeweils um 90° zu einander versetzt aufeinander geschichtet. Über den Packungselementen befindet sich eine Schicht Raschig-Ringe, um eine Verteilung der Flüssigkeit über den Kolonnenquerschnitt zu begünstigen. Die Kolonne ist über einem Flüssigkeitsbehälter so montiert, dass sie sich drehen kann. Die zu untersuchende Flüssigkeit wird im Kreislauf aus dem Flüssigkeitsbehälter in die Kolonne gepumpt. Über einen Flüssigkeitsverteiler mit einer Tropfendichte von 4000 Tropfen/ m^2 wird die Flüssigkeit über der Schüttung aus Raschig-Ringen aufgegeben. Unterhalb der Packung tropft die Flüssigkeit direkt in den Flüssigkeitsbehälter.

Es ist prinzipiell auch möglich Luft als Gasphase im Gegenstrom durch die Kolonne zu führen. Im Rahmen dieser Arbeit werden allerdings Messungen ohne Gasströmung und nur mit Flüssigkeitsströmung durchgeführt. Da unterhalb des Staupunkts kein wesentlicher Einfluss der Gasströmung auf die Flüssigkeitsströmung besteht, sind die Ergebnisse repräsentativ für den Belastungsbereich unterhalb des Staupunkts.

Als Flüssigphase werden Wasser und wässrige Glycerin-Lösungen eingesetzt. Durch einen unterschiedlichen Gewichtsanteil an Glycerin kann die Viskosität der Lösung gezielt eingestellt werden. Es werden drei Viskositäten (1, 10 und 20 mPas) untersucht. Durch die Zugabe von Glycerin werden Oberflächenspannung und

Dichte der Flüssigkeit nur leicht beeinflusst. Die physikalischen Eigenschaften der verwendeten Lösungen sind in Tabelle 4.2 aufgelistet.

Tabelle 4.2: Physikalische Eigenschaften der verwendeten Lösungen

	Viskosität [mPas]	Glycerin-Anteil [mol/mol] [kg/kg]		Dichte [kg/m ³]	Oberflächenspannung [N/m]
Wasser	1	0.000	0.000	998.20	0.0738
Wasser-Glycerin 1	10	0.216	0.585	1152.14	0.0717
Wasser-Glycerin 2	20	0.298	0.685	1178.39	0.0709

Vor jeder Messung wird die Kolonne vollständig mit Wasser geflutet, um reproduzierbare Benetzungseigenschaften der strukturierten Packung zu gewährleisten. Die Flüssigkeitsbelastung wird zwischen 4,6 und 23,1 m³/m²h variiert. Nachdem bei der jeweils eingestellten Flüssigkeitsbelastung ein stationärer Zustand erreicht ist, wird die tomographische Messung gestartet. Gemessen werden Querschnitte im Abstand von 1 cm über eine Gesamthöhe von 70cm. Ein Radiogramm der Packungskolonne mit dem eingezeichneten Messbereich ist in Abbildung 4.3 zu sehen.

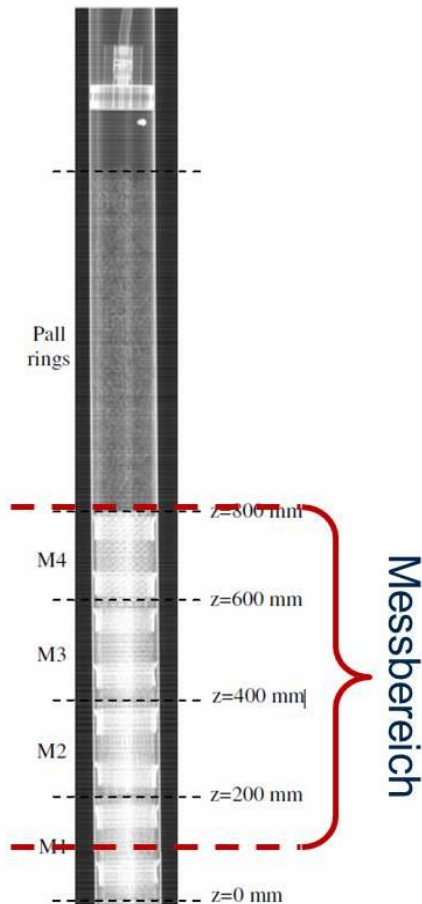


Abbildung 4.3: Radiogramm der verwendeten Packungskolonne. Eingezeichnet ist der Bereich, der in dieser Arbeit vermessen und ausgewertet wurde. Quelle Bild Radiogramm: Aferka et al. (2010a)

4.2.3 Bildnachbearbeitung

Eine Rekonstruktion der Projektionsdaten liefert Querschnittsbilder der berieselten Kolonne, auf denen alle drei im Querschnitt vorhandenen Phasen - Fest, Gas und Flüssigkeit - in unterschiedlichen Graustufen zu sehen sind. Ein Beispiel ist in Abbildung 4.4 (a) präsentiert. Das Ziel der tomographischen Messungen ist es Informationen nur über die Flüssigkeitsströmung zu gewinnen. Daher ist eine Bildnachbearbeitung notwendig, um die Bilder qualitativ und quantitativ in Bezug auf die Flüssigkeitsverteilung im gemessenen Querschnitt auswerten zu können. Eine Vorgehensweise zur Nachbearbeitung der tomographischen Bilder wurde von Aferka et al. (Aferka et al., 2007; Aferka et al., 2008, 2010a) und Viva et al. (Viva et al., 2011) entwickelt.

Diese Methode wird auch im Rahmen dieser Arbeit verwendet. Dabei müssen zunächst alle Pixel identifiziert werden, die allein die Flüssigkeit repräsentieren. Für diesen Zweck wird die Packungskolonie in trockenem Zustand an denselben Messhöhen vermessen, an denen auch die Messungen mit Flüssigkeitsbelastung durchgeführt werden. Um die metallischen Packungslagen „rauszurechnen“ werden dann direkt während der Rekonstruktion die Projektionsdaten der trockenen Packung (Abbildung 4.4 (b)) von denen der berieselten Packung (Abbildung 4.4 (a)) subtrahiert. Das Ergebnis ist ein Graustufenbild, das nur die Dichteverteilung der Gas- und Flüssigphase beinhaltet (s. Abbildung 4.4 (c)).

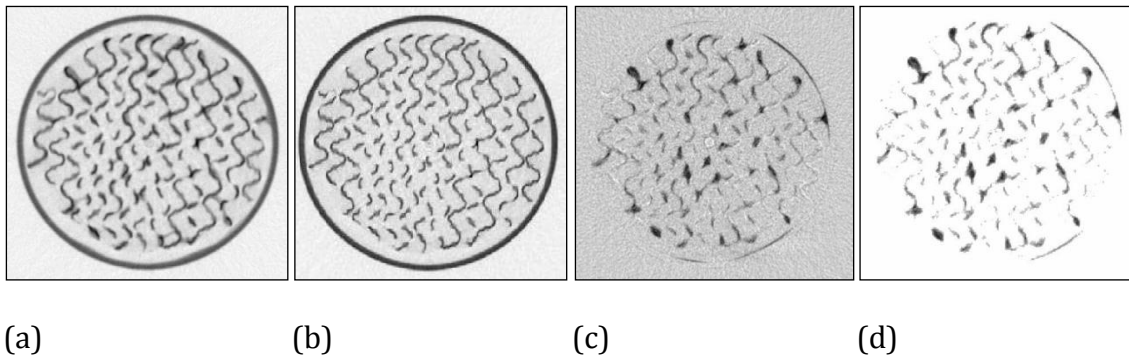


Abbildung 4.4: Tomographische Querschnittsbilder in verschiedenen Nachbearbeitungsstufen: (a)-unbearbeitetes Bild der berieselten Kolonne; (b)-unbearbeitetes Bild der trockenen Kolonne; (c)-Bild der Flüssigkeitsströmung nach Subtraktion der trockenen Packung $((c)=(a)-(b))$; (d)-Ergebnisbild nach Schwellwertbestimmung und entfernen des Bildrauschens

Um das Bildrauschen zu entfernen und um alle Pixel eindeutig der Gas- und der Flüssigphase zuzuordnen, wird nach dem Verfahren von Otsu (1979) der Schwellwert des Bildes bestimmt. Alle Pixel, die dunkler als dieser Schwellwert sind, werden zur Flüssigkeit zugeordnet (Flüssigkeitspixel), während alle Pixel, die heller sind, als Gasphase angesehen werden (Gaspixel). Allen Gaspixeln wird der Graustufenwert der Farbe Weiß zugewiesen. Das Ergebnis der Bildnachbearbeitung sind Bilder auf denen nur noch die Flüssigkeit in Graustufen zu sehen ist. Ein Beispiel für ein Ergebnisbild ist in Abbildung 4.4 (d) zu sehen.

4.2.4 Bestimmung des Flüssigkeitsinhalts der Packung

Um den Flüssigkeitsinhalt im Querschnitt der Kolonne zu bestimmen, reicht es nicht aus das Verhältnis der Anzahl aller Flüssigkeitspixel im nachbearbeiteten tomographischen Bild zu der Summe aller Pixel im Querschnitt zu bestimmen. Da die Auflösung des Tomographen nicht so hoch ist, dass sehr dünne Strukturen genau aufgelöst werden können, kommt es zu einer „Verschmierung“ der Phasengrenzen. Das bedeutet, dass die Phasengrenze innerhalb von Pixeln verläuft. Dieses Phänomen, auch partieller Volumeneffekt genannt, tritt u. A. wegen der unterschiedlichen lokalen Schwächungseigenschaften in einem Mehrphasensystem auf. So beeinflussen sehr dichte Materialien wie Metall den Schwächungskoeffizienten von direkt angrenzenden, weniger dichten Stoffen wie Gas oder Flüssigkeit. Viva et al. (2011) beschreiben diesen Effekt und entwickeln eine Vorgehensweise den Flüssigkeits-hold-up auf tomographischen Bildern unter Berücksichtigung dieser Problematik zu bestimmen. Sie nehmen an, dass der Graustufenwert proportional zu dem Flüssigkeitsanteil in einem Pixel ist. Um den Anteil zu bestimmen, wird in jedem Bild der dunkelste Pixel gesucht. Es wird angenommen, dass dieser Pixel ausschließlich Flüssigkeit repräsentiert, während alle anderen Flüssigkeitspixel einer bestimmten Mischung aus Gas und Flüssigkeit entsprechen. Alle Pixel des Querschnittsbildes werden mit dem Graustufenwert des dunkelsten Pixels normiert, so dass diese einen Wert zwischen 0 und 1 erhalten. Dabei steht ein Wert von 0 für reines Gas und ein Wert von 1 für reine Flüssigkeit. Der Hold-up wird anschließend als Verhältnis der Summe aller normierten Werte zu der Summe aller Pixel im Kolonnenquerschnitt berechnet. Dieses Vorgehen wurde von Viva et al. (2011) mit konventionellen Messungen validiert.

Für alle 70 vermessenen Querschnitte der berieselten Packung wird die Auswertungsmethode von Viva et al. (2011) angewendet, um den Hold-up der Flüssigkeit in der Packung zu bestimmen. Die Ergebnisse sind in Form von axialen Profilen in Abbildung 4.5 und Abbildung 4.6 dargestellt. Um eine bessere Orientierung über die Lage der tomographischen Messpunkte zu erhalten, sind schematisch die Packungslagen (PL1-PL4) neben dem Diagramm abgebildet. Gestrichelte rote Linien zeigen den Übergang zwischen zwei Packungslagen an. Für jede gemessene Viskosität (1, 10 und 20 mPas) wurden die

Flüssigkeitsbelastungen zwischen 5 und 23 m³/m²h variiert. Der Einfluss der Flüssigkeitsbelastung wird beispielhaft für die Vermessung der Wasser-Glycerin-Mischung mit einer Viskosität von 10 mPas in Abbildung 4.5 gezeigt. In Abbildung 4.6 ist der Einfluss der Viskosität bei einer Flüssigkeitsbelastung von 17 m³/m²h dargestellt.

Zunächst wird deutlich, dass der Flüssigkeitsinhalt in der Packung über die Kolonnenhöhe nicht konstant ist, sondern ein ausgeprägtes Profil aufweist. Der relative Verlauf dieses Profils bleibt für alle Betriebszustände und Viskositäten gleich. So sinkt der Hold-up an den Enden der Packungselemente bis zu einem minimalen Wert an den Übergängen zwischen zwei Elementen. Dieses Phänomen kann durch die Geometrie der verwendeten Hochleistungspackung erklärt werden. Durch die vertikale Ausrichtung der Packungskanäle an den oberen und unteren Rändern des Elements strömt die Flüssigkeit hier schneller und bildet dünnere Filme aus, so dass der Flüssigkeits-hold-up sinkt. Dies lässt den Rückschluss zu, dass die lokale Packungsgeometrie einen großen Einfluss auf den Hold-up und damit auch auf die Flüssigkeitsströmung hat.

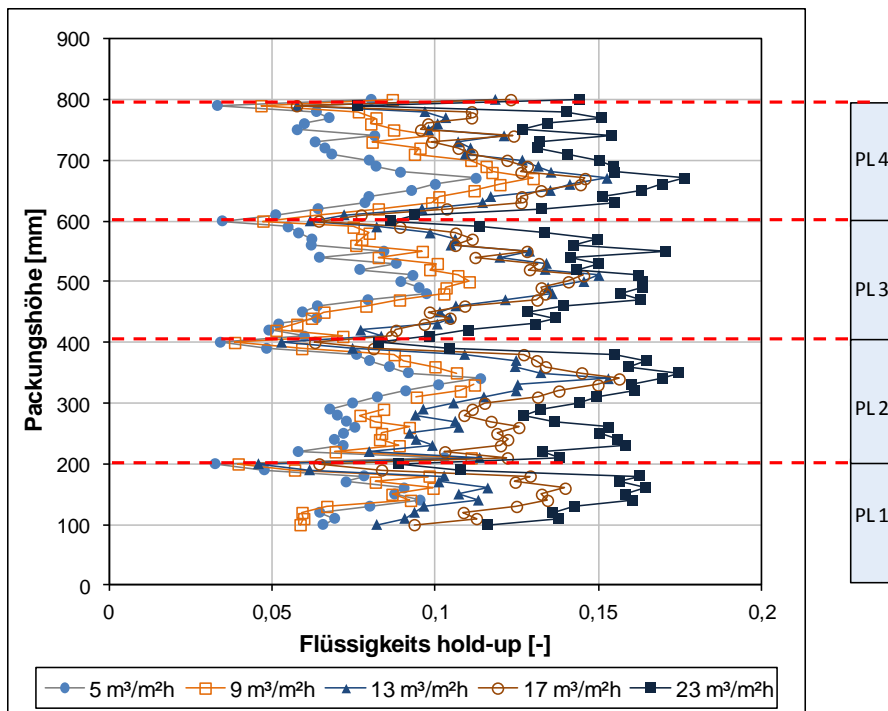


Abbildung 4.5: Verteilung des Flüssigkeitsinhalts der Packung über die Kolonnenhöhe. Dargestellt ist der Einfluss der Flüssigkeitsbelastung bei einer Viskosität von 10 mPas. Als Orientierungshilfe sind die 4 gemessenen Packungslagen schematisch dargestellt. Gestrichelte Linien kennzeichnen die Übergänge zwischen den Packungselementen.

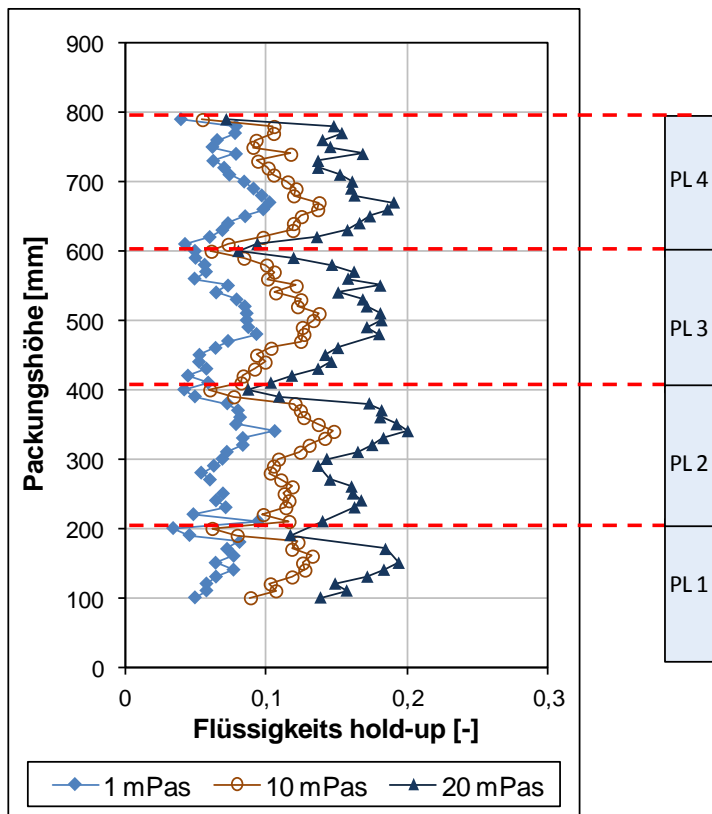


Abbildung 4.6: Verlauf des Flüssigkeitsinhalts der Packung über die Kolonnenhöhe. Dargestellt ist der Einfluss der Viskosität der Flüssigkeit bei einer Flüssigkeitsbelastung von $17\text{m}^3/\text{m}^2\text{h}$. Als Orientierungshilfe sind die 4 gemessenen Packungslagen schematisch dargestellt. Gestrichelte Linien kennzeichnen die Übergänge zwischen den Packungselementen.

Um einen besseren Überblick über den Einfluss der variierten Parameter zu erhalten, werden Durchschnittswerte des Flüssigkeits-hold-up über die Kolonnenhöhe berechnet. In Abbildung 4.7 entspricht jeder Punkt dem Durchschnittswert eines axialen Profils für jede gemessene Parameterkombination von Viskosität und Flüssigkeitsbelastung. Es ist deutlich zu sehen, dass der Flüssigkeitsinhalt in der Kolonne sowohl mit der Flüssigkeitsbelastung als auch mit der Viskosität steigt. Diese Ergebnisse korrespondieren mit den Erkenntnissen von Suess und Spiegel (1992).

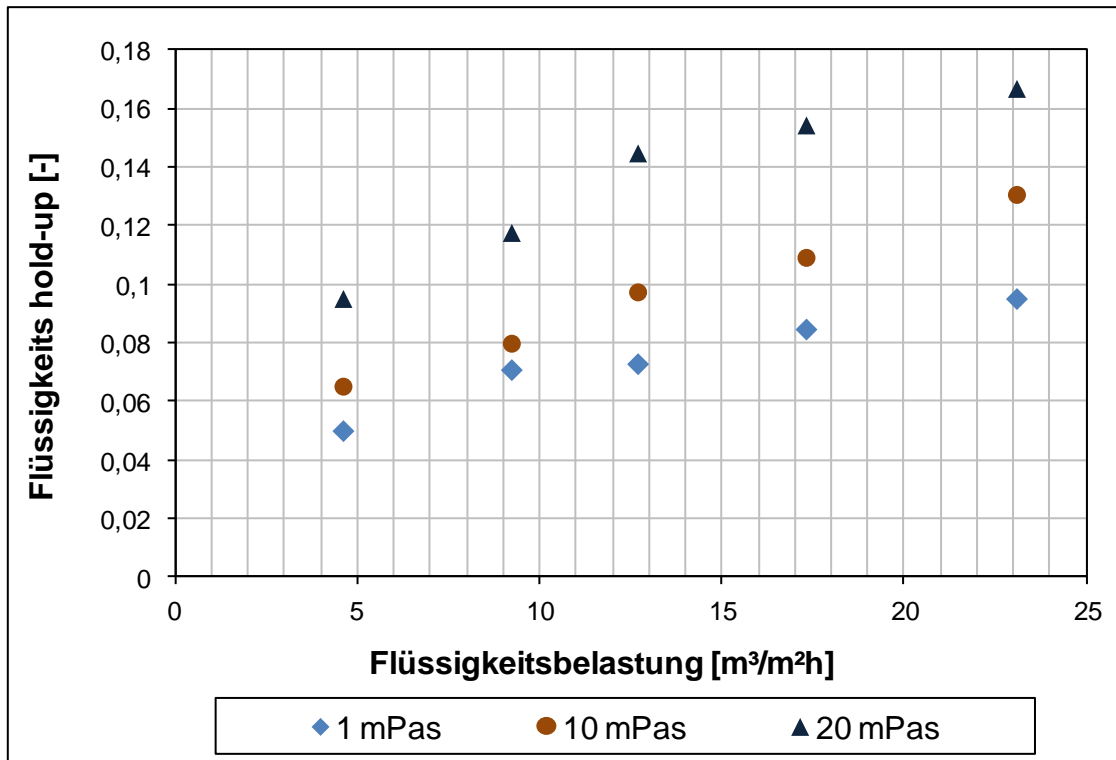


Abbildung 4.7: Durchschnittswerte des Flüssigkeitsinhalts der Packung über die gesamte vermessene Kolonnenhöhe in Abhängigkeit von der Flüssigkeitsbelastung und der Viskosität.

4.2.5 Bestimmung der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit

Die hohe Auflösung des Tomographen in Liège ermöglicht es, die Phasengrenze zwischen Gas und Flüssigkeit zu bestimmen. Zunächst wird das Bild der trockenen Packung auf dem Bild der berieselten Packung überlagert. Es entsteht ein dreifarbiges Bild wie es in Abbildung 4.8 gezeigt ist. Es ist nun möglich alle Flüssigkeitspixel zu identifizieren, die Gaspixel als Nachbarn haben. Weiterhin wird die Anzahl der direkten Gasnachbarn bestimmt. Aus diesen beiden Werten kann der Umfang der Flüssigkeitspixel berechnet werden, die in Kontakt mit Gaspixeln sind. Das Verhältnis des Umfangs zu der Summe aller Pixel im Kolonnenquerschnitt ergibt den benetzten Anteil der spezifischen Packungsoberfläche. Dieses Vorgehen wurden von Aferka et al (Aferka et al., 2010b) und Viva et al. (Viva et al., 2011) entwickelt und mit einer konventionellen Methode (CO₂-Absorption in Natronlauge) für Wasser validiert.

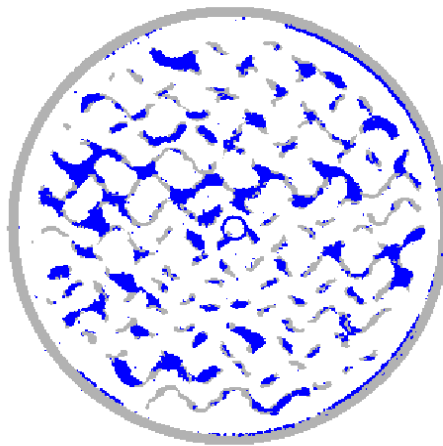


Abbildung 4.8: Tomographisches Bild der berieselten Packung mit allen drei Phasen. Blau: Flüssigkeit, grau: Metall, weiß: Gas

Als Ergebnis werden axiale Profile der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit analog zu denen des Flüssigkeitsinhalts der Packung erhalten. Die axialen Profile sind in Abbildung 4.9 in Abhängigkeit von der Flüssigkeitsbelastung bei einer Viskosität von 10 mPas und in Abbildung 4.10 in Abhängigkeit von der Viskosität bei einer Flüssigkeitsbelastung von $17 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$ dargestellt. Aus dem Verlauf der Phasengrenzfläche über die Kolonnenhöhe wird ersichtlich, dass auch hier sich ein bestimmtes Profil durch die Packungsgeometrie ergibt, das unabhängig von Betriebsbedingungen oder Viskosität ist. Lediglich der absolute Wert wird mit steigender Flüssigkeitsbelastung und mit höherer Viskosität größer.

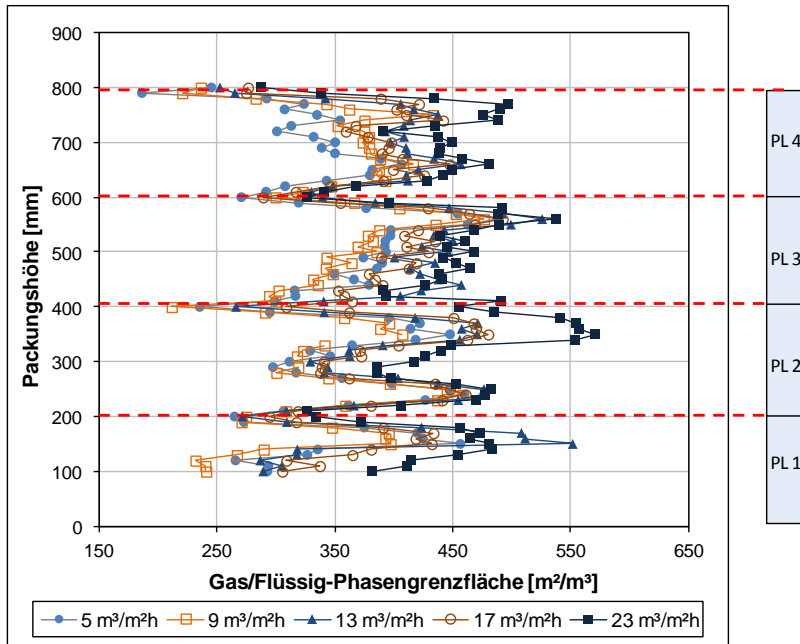


Abbildung 4.9: Verlauf der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit über die Kolonnenhöhe. Dargestellt ist der Einfluss der Flüssigkeitsbelastung bei einer Viskosität von 10 mPas.

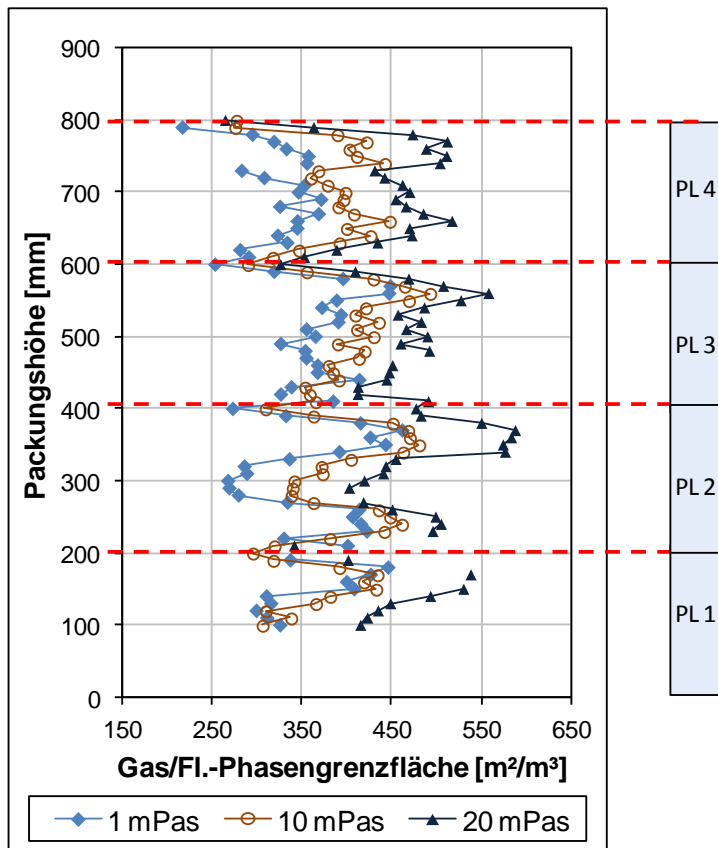


Abbildung 4.10: Verlauf der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit über die Kolonnenhöhe. Dargestellt ist der Einfluss der Viskosität der Flüssigkeit bei einer Flüssigkeitsbelastung von 17 $\text{m}^3/\text{m}^2\text{h}$.

Die aus den axialen Profilen erhaltenen Durchschnittswerte sind in Abbildung 4.11 dargestellt. Analog zum Hold-up wird die Phasengrenzfläche sowohl mit der Flüssigkeitsbelastung als auch mit der Viskosität größer.

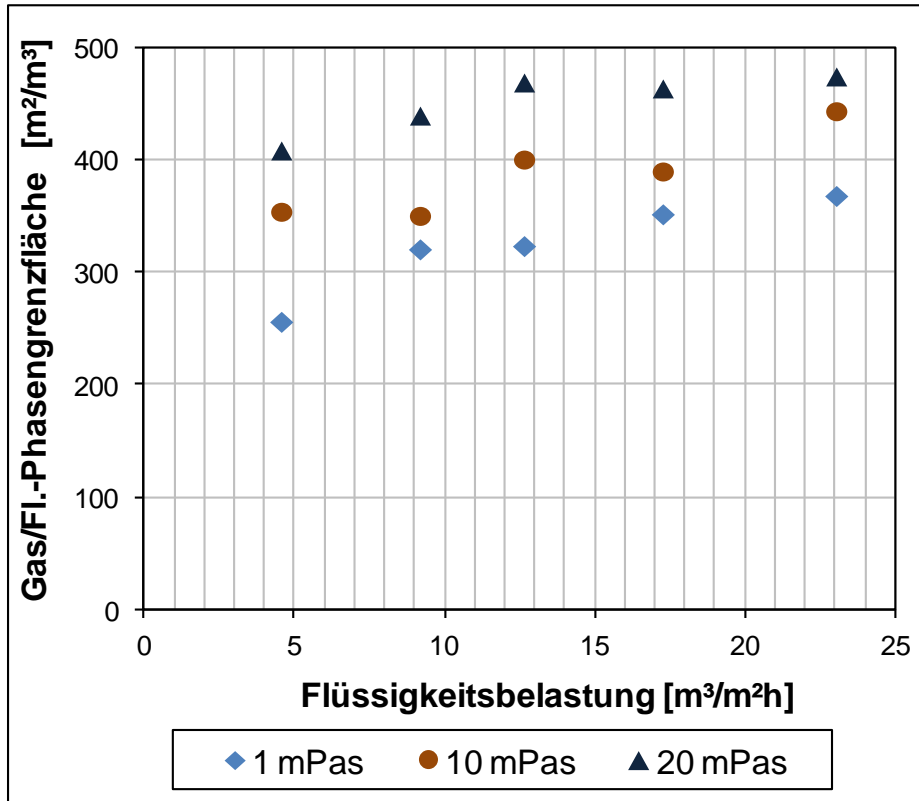


Abbildung 4.11: Durchschnittswerte der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit über die gemessene Packungshöhe in Abhängigkeit der Flüssigkeitsbelastung und Viskosität.

Dass eine steigende Flüssigkeitsbelastung zu einer Erhöhung der Phasengrenzfläche führt, ist ein zu erwartendes Ergebnis. Diesen Zusammenhang haben auch Tsai et al. (2009) bei ihren Messungen festgestellt. Allerdings haben sie keinen Einfluss der Viskosität auf die Phasengrenzfläche in ihrer Arbeit feststellen können. Im Gegensatz dazu zeigen die Ergebnisse aus den tomographischen Untersuchungen einen deutlichen Anstieg der Phasengrenzfläche mit steigender Viskosität. Diese Diskrepanz der Ergebnisse lässt sich durch die Unterschiede der physikalischen Eigenschaften der in der jeweiligen Arbeit verwendeten Flüssigkeiten erklären. Um Stofftransporteigenschaften konstant zu halten, haben Tsai et al. (2009) ein Additiv benutzt, um die Viskosität zu variieren, das gleichzeitig die Oberflächenspannung beeinflusst hat. Dies kann dazu geführt

haben, dass dadurch die Flüssigkeitsströmung und die resultierende Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit beeinflusst wurden. Durch die Verwendung von Wasser-Glycerin-Lösungen, wie es in dieser Arbeit gemacht wurde, verändert sich die Oberflächenspannung kaum in dem vermessenen Viskositätsbereich. Vor allem bei den Wasser-Glycerin-Mischungen mit 10mPas und 20mPas ist die Oberflächenspannung fast identisch (s. Tabelle 4.2). Folglich kann angenommen werden, dass bei den Ergebnissen der tomographischen Messungen der Einfluss der Viskosität auf die Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit richtig wiedergegeben wird.

4.3 Messungen mittels ultraschneller XCT

Die klassische Röntgentomographie ist in ihrem Einsatz zur Untersuchung der Strömung in Packungskolonnen dadurch begrenzt, dass sie ein über die Messzeit zeitlich integriertes Querschnittsbild erstellt. Finden während der Messung Fluktuationen der Flüssigkeit statt, werden diese zeitlich gemittelt dargestellt. Damit sind Messungen nur bei konstanter Strömung, wie sie unterhalb des Staupunkts auftritt, möglich. Je näher der Betriebszustand der Packungskolonne dem Flutpunkt ist, umso mehr verhält sich die Flüssigkeitsströmung instationär.

Um die Strömung innerhalb der strukturierten Packung am Flutpunkt untersuchen zu können, wird in Zusammenarbeit mit dem Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf (HZDR) eine neuartige tomographische Messmethode eingesetzt – die ultraschnelle Röntgentomographie. Die Ergebnisse dieser Zusammenarbeit wurden von Janzen et al. (2013a) veröffentlicht.

4.3.1 Messprinzip und Apparatur am HZDR

Der am HZDR entwickelte ultraschnelle Elektronenstrahl-Röntgentomograph „ROFEX“ (**RO**ssendorf **F**ast **E**lectron beam **X**-ray tomograph) ist ein leistungsfähiges, nicht invasives und bildgebendes Messsystem. Die für die Computertomographie essentielle Erfassung von Durchstrahlungsprojektionen aus unterschiedlichen Aufnahmewinkeln wird bei diesem Verfahren nicht durch die mechanische Drehung von Objekt oder Quelle-Detektor-Verbund erreicht. Stattdessen wird ein Elektronenstrahl auf ein teilkreisförmiges Wolframtarget fokussiert und gleichzeitig mit hoher Frequenz periodisch abgelenkt, so dass ein auf dem Target wandernder Brennfleck und damit eine um das Objekt rotierende Röntgenquelle erzeugt wird. Mit dieser Röntgenstrahlung wird das Untersuchungsobjekt aus einer Vielzahl von Winkeln durchstrahlt. Ein das Objekt umgebender, statischer Röntgendetektorring (240 Einzeldetektoren) misst die durch das Objekt geschwächte Röntgenstrahlung mit hoher Frequenz synchron zur Strahlablenkung. Aus dem Datensatz von Projektionen einer einzelnen Umdrehung des Elektronenstrahls wird ein Schnittbild der Schwächungsverteilung im Objekt rekonstruiert (Bieberle et al., 2009; Schubert et al., 2011).

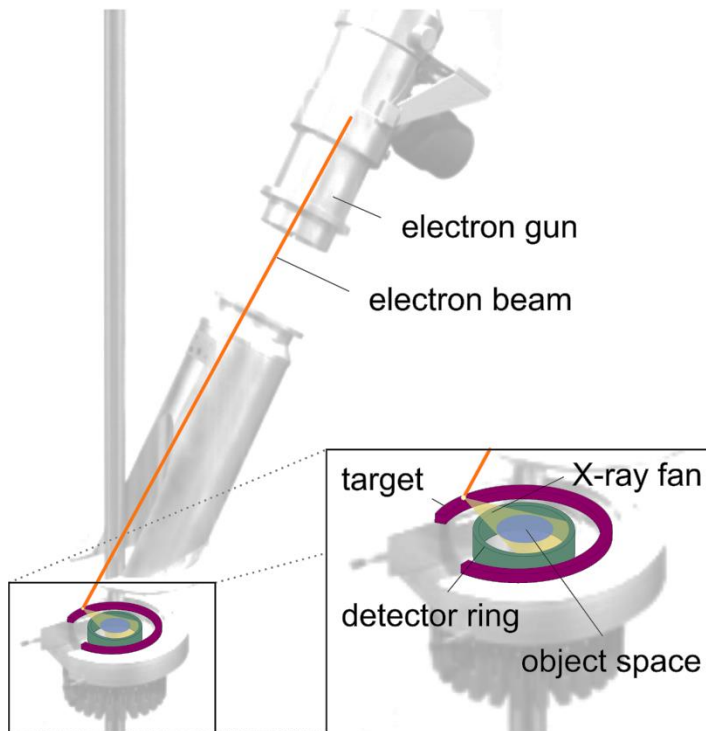


Abbildung 4.12: Messprinzip der ultraschneller Röntgentomographie (Quelle Bild: HZDR)

In Abbildung 4.12 ist das Messprinzip schematisch dargestellt. Mit diesem Messprinzip ist es möglich tomographische Messungen mit einer Bildrate von bis zu 7000Hz und einer örtlichen Auflösung von 1mm durchzuführen. Eine detailliertere Beschreibung des Messverfahrens und der Messapparatur wurde von Fischer und Hampel (2010) veröffentlicht.

4.3.2 Versuchsaufbau und -durchführung

Bei den Untersuchungen mit ROFEX wird eine Plexiglaskolonne mit einem Innendurchmesser von 80mm verwendet. Wasser wird über einen Vorratsbehälter im Kreislauf gefahren. Luft wird als Gasgegenstrom verwendet. In Abbildung 4.13 ist ein schematisches Fließbild des Kolonnen Set-ups dargestellt. Es werden Betriebspunkte mit Flüssigkeitsbelastungen zwischen 14,6 und 25,6 $\text{m}^3/\text{m}^2\text{h}$ und F-faktoren zwischen 0,6 und 3,5 $\text{Pa}^{0,5}$ eingestellt.

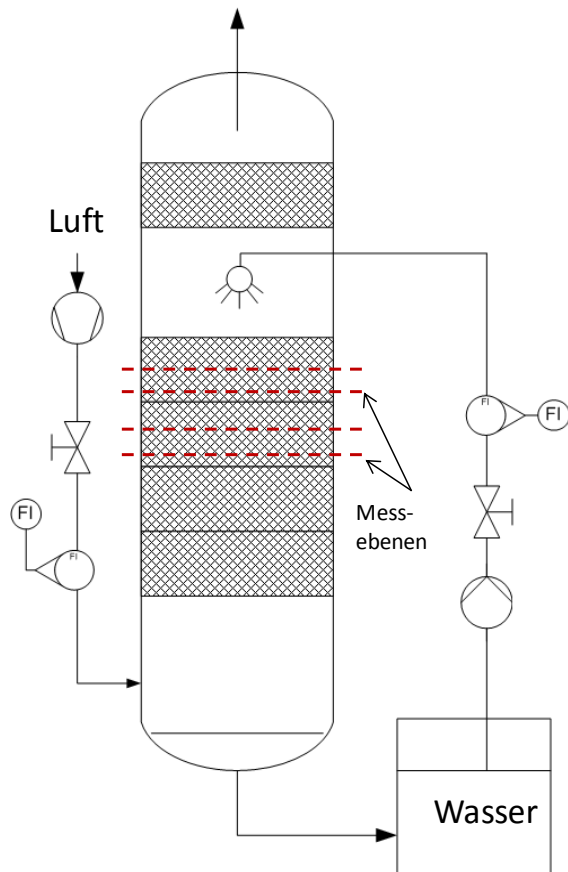


Abbildung 4.13: Schematische Darstellung des Kolonnen Set-ups

Es werden zwei verschiedene Packungen des Typen B1MN der Firma Montz untersucht. Es handelt sich dabei um Hochleistungspackungen mit einem Neigungswinkel von 45° im Hauptbereich der Packung. Am unteren Teil einer Packungslage verändert sich die Ausrichtung der Kanäle vom 45° Winkel zu einer senkrechten Ausrichtung, so dass die Flüssigkeit leichter in die nächste Lage ablaufen kann. Die verwendeten Packungen unterscheiden sich in ihrer spezifischen Oberfläche (350 und $500 \text{ m}^2/\text{m}^3$). Das Packungsbett besteht jeweils aus vier Elementen desselben Packungstyps, die um 90° zueinander versetzt übereinander gestapelt sind. In Abbildung 4.14 sind Bilder einer Einzellage mit der spezifischen Geometrie des B1MN Packungstyps und der beiden eingesetzten Packungen zu sehen.

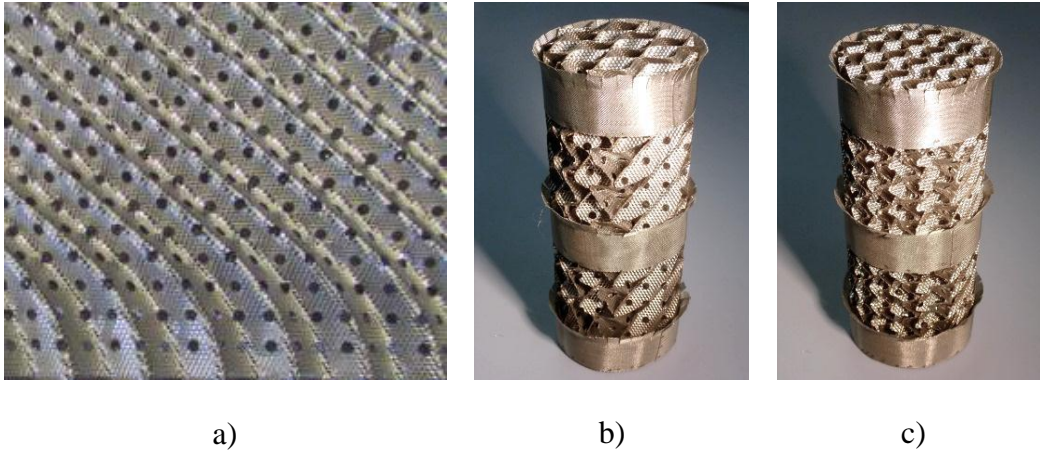
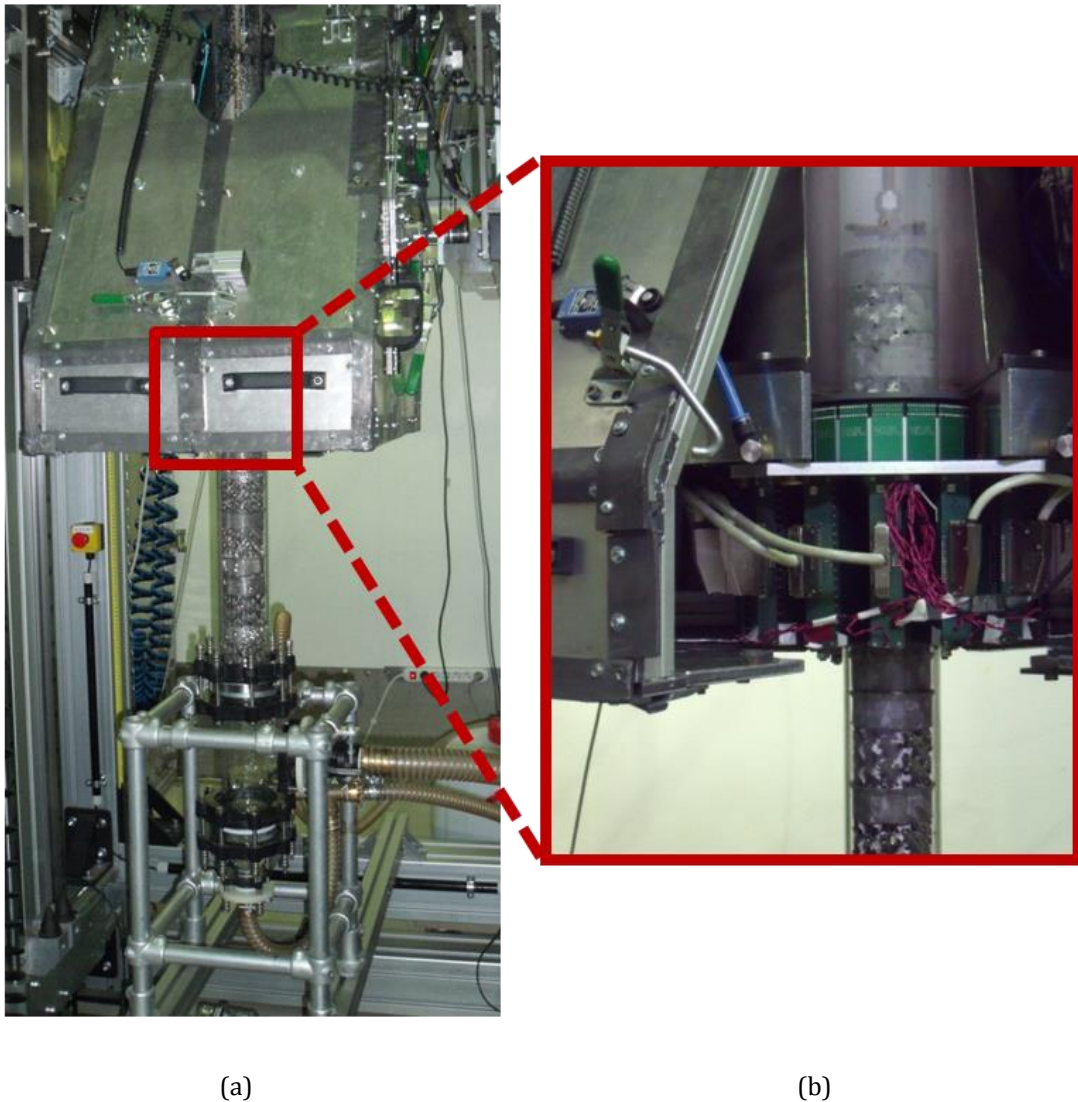


Abbildung 4.14: Bei der Messung mit ultraschneller Röntgentomographie verwendete Packungstypen. a: Bild einer Einzellige (Quelle Bild: Montz); b: Montz B1-350MN, c: Montz B1-500MN

In Abbildung 4.15 a ist der gesamte Versuchsaufbau mit der eingebauten Kolonne gezeigt. In Bild 4.15 b ist der Strahlenschutzmantel geöffnet und der Detektorring ist zu sehen. Es ist möglich den Tomographen in der Höhe zu verstellen, so dass die Strömung an verschiedenen Messebenen über die Kolonnenhöhe untersucht werden kann. Da bei den Messungen mit ROFEX das zeitliche Verhalten der Strömung im Fokus steht, werden nur vier Messebenen gewählt, die sich in zwei Packungselementen jeweils in der Mitte eines Packungselements und ca. 1 cm oberhalb des Übergangs zum nächsten Element befinden. Diese Messebenen sind in Abbildung 4.13 durch rote gestrichelte Linien angedeutet.



(a)

(b)

Abbildung 4.15: a: Bild des gesamten Versuchsaufbaus mit Kolonne im ROFEX Tomograph. b: Packungskolonne und Detektorring sichtbar beim offenen Schutzmantel.

Da das Hauptziel des ROFEX die zeitliche Untersuchung der Strömung ist, ist die Fahrstuhlvorrichtung zur Höhenverstellung des Tomographen nicht darauf ausgelegt, immer exakt dieselbe Höhe anzufahren, wie es bei dem Aufbau in Liege der Fall ist. Dies ist aber essentiell für die Bildnachbearbeitung, wenn man die trockene Packung herausrechnen möchte. Aus diesem Grund werden bei der Versuchsdurchführung die Aufnahmen der trockenen und der berieselten Packung sequentiell bezüglich der Messebenen durchgeführt. Das bedeutet, dass eine Messebene eingestellt wird. Zuerst wird die trockene Packung vermessen und anschließend Messungen bei unterschiedlichen Betriebspunkten durchgeführt. Erst wenn die Packung wieder getrocknet ist, wird die nächste Messebene

vermessen. Dieses Vorgehen hat den Nachteil, dass Messfehler bezüglich des Gas- und Flüssigkeitsvolumenstrom bei jedem Messpunkt stärker eingehen als bei einer konstanten Einstellung der Volumenströme und anschließender Vermessung unterschiedlicher Messebenen.

Bei allen Messungen wird über eine Dauer von 2ms mit einer Bildrate von 2000Hz gemessen.

4.3.3 Bildanalyse und Auswertung

Nach der Rekonstruktion der Projektionsdaten werden die Bilder analog zu dem in Kapitel 4.2.3 beschriebenem Verfahren nachbearbeitet. Der Unterschied in den Ergebnissen ist zum Einen die örtliche Auflösung, die bei der Ultraschnellen XCT mit 1mm schlechter ist als die mit dem klassischen Tomographen in Liège. Zum Anderen werden Bildsequenzen von 4000 Bildern pro Messpunkt erhalten. Diese können in Form von Videos betrachtet werden. In Janzen et al. (2013a) sind einige Videos als Beispiele in der online Version sichtbar.

4.3.4 Dynamik der Flüssigkeitsströmung und -verteilung

Auf den Videos der Strömung in der Packung Montz B1-350MN unterhalb des Flutpunkts und unter Flutbedingungen sind deutliche Unterschiede im Strömungsverhalten sichtbar. Während unterhalb des Flutpunkts keine zeitliche Änderung der Strömung in radialer Richtung zu sehen ist, zeigen die Messergebnisse am Flutpunkt eine deutliche Fluktuation der Flüssigkeit. Es sind sich verbreitende Filme zu sehen, die koaleszieren und wieder auseinander brechen. Außerdem sieht man, dass der lokale Wert des Flüssigkeitsinhalts der Packungskanäle stark variiert. Bei der Montz B1-500MN ist die Fluktuation der Strömung am Flutpunkt wesentlich schwächer ausgeprägt als bei der Packung Montz B1-350MN.

Um diese Beobachtung quantitativ zu beurteilen, wird der zeitliche Verlauf des Flüssigkeitsinhalts der Packung betrachtet. Die Bestimmung des Flüssigkeitsinhalts erfolgt analog zu den Untersuchungen mit klassischer Tomographie. Die Darstellung der Ergebnisse für eine Messebene erfolgt als Funktion der Zeit. In Abbildung 4.16 sind die Verläufe des Flüssigkeitsinhalts bei

einer Flüssigkeitsbelastung von $15 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$ für beide Packungen dargestellt. Dabei repräsentiert die dunkelblaue Linie den Zustand unterhalb des Staupunkts und die braune Linie die Messung am Flutpunkt. Wie zu erwarten ist der Hold-up der Flüssigkeit am Flutpunkt in beiden Packungstypen deutlich höher als unterhalb des Staupunkts. Während der zeitliche Verlauf des Flüssigkeitsinhalts unterhalb des Flutpunkts für beide Packungen nur leicht schwankt, ist ein deutlicher Unterschied im Kurvenverlauf der Messwerte im Flutzustand zu sehen. Bei der B1-500MN Packung ist kein wesentlicher Unterschied im Kurvenverlauf bei beiden Betriebszuständen zu sehen (s. Abbildung 4.16 a). Bei der weniger dichten Packung B1-350MN dagegen, variiert der Flüssigkeitsanteil am Flutpunkt zwischen den Werten von 0,08 und 0,19 (s. Abbildung 4.16 b).

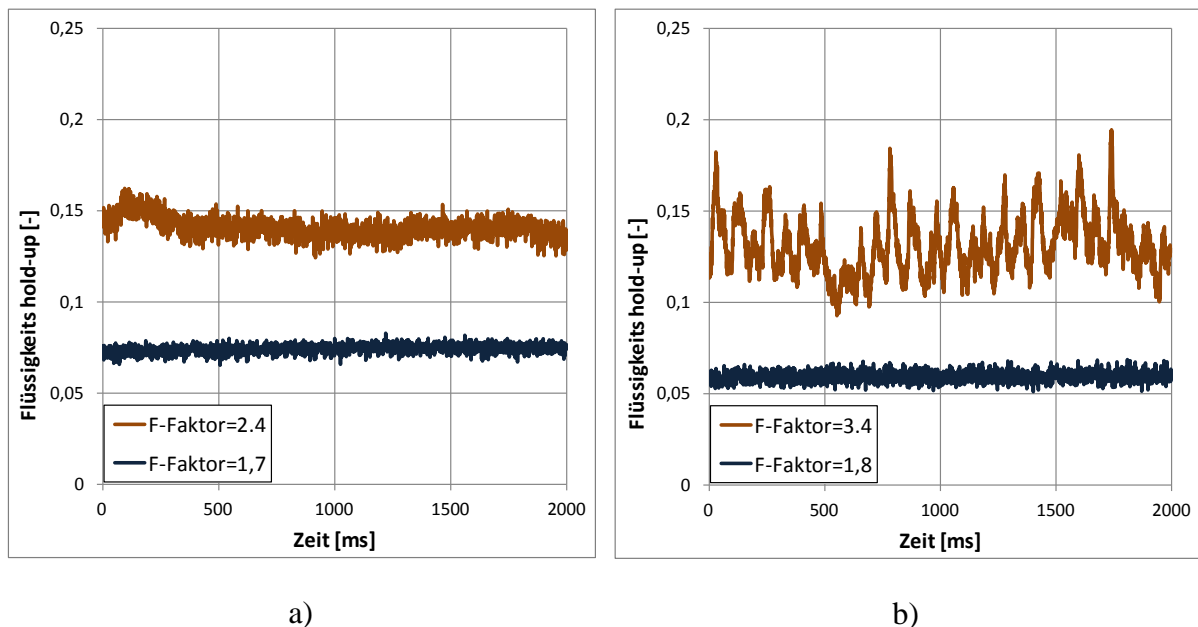


Abbildung 4.16: Zeitlicher Verlauf des Flüssigkeits-hold-ups bei einer Flüssigkeitsbelastung von $15 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$. a-Montz B1-500MN, b-Montz B1-350MN

Um den Einfluss der spezifischen Packungsoberfläche auf das Strömungsverhalten zu verstehen, wird die lokale Flüssigkeitsverteilung im Querschnitt über die gesamte Messzeit betrachtet. Zunächst werden zeitlich gemittelte Bilder des Flüssigkeitsanteils erzeugt. Dafür werden die bearbeiteten Bilder, auf denen nur noch die flüssige Phase zu sehen ist, mit einem selbst geschriebenen Programm in Matlab analysiert und verarbeitet. Für jede gemessene Einstellung wird ermittelt, wie oft ein Pixel über die gesamte Messdauer an derselben Stelle im Bild der

flüssigen Phase zugewiesen wurde. Die Häufigkeit des Auftretens von Flüssigkeit in jedem Pixel wird durch die Gesamtzahl der Bilder (4000) geteilt. Ein Pixel im Querschnitt, der in jedem Bild der flüssigen Phase zugewiesen wurde, hat den Wert 1 und ist dunkelblau eingefärbt. Ein Pixel, der immer der Gas-Phase zugewiesen wurde, hat den Wert null und ist weiß in der gewählten Darstellung. Alle blauen Farbnuancen dazwischen geben wieder, wie häufig ein Pixel der flüssigen Phase zugewiesen wurde. Die resultierenden Bilder der über die Zeit gemittelten Flüssigkeitsverteilung für beide Packungstypen bei unterschiedlichen Betriebsbedingungen sind in Abbildung 4.17 dargestellt.

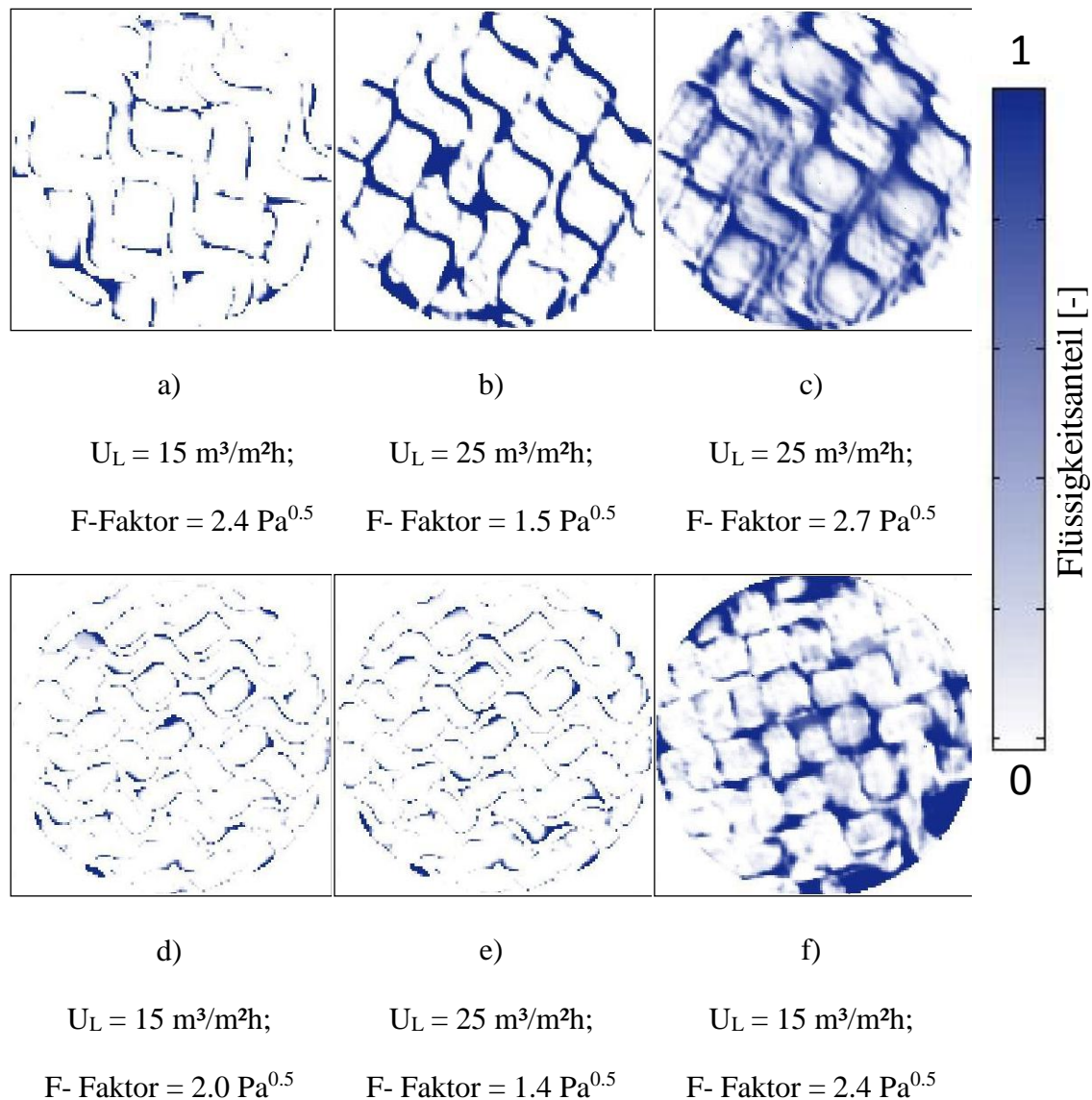


Abbildung 4.17: Zeitlich gemittelte Bilder der Flüssigkeitsverteilung im Querschnitt der berieselten Packung bei unterschiedlichen Betriebsbedingungen: a-c B1-350MN, d-f: B1-500MN

Im Prinzip entsprechen diese Bilder zeitlich integrierten Bildern, die bei tomographischen Messungen mit einem klassischen Röntgentomograph entstehen würden. Dunkle Flächen entsprechen Regionen, in denen Flüssigkeit über die gesamte Messzeit vorhanden war, während weiße Flächen die Abwesenheit von Flüssigkeit und damit die Gasphase repräsentieren. Schattierungen dazwischen zeigen Regionen, in denen nur über eine bestimmte Dauer der Messzeit Flüssigkeit vorhanden ist. Der Grauwert ist damit proportional zu der Dauer des Vorhandenseins von Flüssigkeit während der Messung.

Die in Abbildung 4.17 a, b, d und e dargestellten zeitlich gemittelten Bilder zeigen die Flüssigkeitsverteilung bei Betriebsbedingungen unterhalb des Flutpunktes für beide untersuchten Packungstypen. Bei der Betrachtung der entsprechenden Videosequenzen können keine signifikanten Fluktuationen der Flüssigkeit beobachtet werden. Dementsprechend ist der Kontrast zwischen den Bereichen, in denen Flüssigkeit auftritt, und den Regionen, in denen nur Gas strömt, sehr hoch. In diesem Betriebsbereich ist für die Untersuchung der Flüssigkeitsströmung in beiden Packungstypen die Messung mit einem konventionellen, örtlich hochauflösendem Tomographen zulässig, da über die Messzeit keine bis leichte Fluktuationen der Flüssigkeit vorhanden sind.

Anhand der Bilder ist deutlich zu sehen, dass die Flüssigkeit in Form von Filmen über die Packungslagen strömt. Die Filmdicke ist in der B1-350MN Packung (Abbildung 4.17 a, b) deutlich größer als die in der dichteren B1-500MN Packung (Abbildung 4.17 d, e). Dieses Phänomen lässt sich durch die Unterschiede in der spezifischen Oberfläche der Packungen erklären. Die gleiche Menge Flüssigkeit wird im Fall der 500er Packung auf einer größeren Oberfläche verteilt, so dass sich dünnere Filme bilden.

Die Flüssigkeitsverteilung im Querschnitt unter Flutbedingungen ist in Abbildung 4.17 c für die B1-350MN und in Abbildung 4.17 f für die B1-500MN Packung dargestellt. Die starken Fluktuationen in der B1-350MN Packung, die in den Videosequenzen zu sehen sind, zeigen sich durch ein breites Spektrum an Graustufen in dem zeitlich-gemittelten Bild. Außerdem besitzen fast alle Pixel einen Graustufenwert größer 0, was zeigt, dass Flüssigkeit in nahezu dem gesamten Querschnitt über einen bestimmten Zeitraum während der Messung aufgetreten ist. Im Gegensatz dazu ist im zeitlich gemittelten Bild der B1-500MN

Packung (Abbildung 4.17 f) ein größerer Kontrast zwischen hellen und dunklen Pixeln festzustellen. Das bedeutet, dass Flüssigkeit in bestimmten Regionen der Packung über die gesamte Messdauer vorhanden ist, während in anderen Bereichen der Packung ausschließlich Gas strömt. Die Unterschiede im Strömungsverhalten am Flutpunkt in den beiden Packungen lassen sich durch die Packungsgeometrie erklären. Dadurch, dass in der B1-500MN Packung die Faltung feiner und damit die Packungskanäle kleiner sind, steht weniger Raum zwischen zwei Packungslagen für beide Phasen zur Verfügung als es in der B1-350MN Packung der Fall ist. Damit ist der Widerstand für die Gasströmung in der dichteren Packung höher, was sich auch im Druckverlust zeigt. Unter Flutbedingung kommt es anscheinend zu einer lokalen Phasentrennung: Gas und Flüssigkeit strömen vornehmlich durch unterschiedliche Bereiche der Packung. Da der Widerstand für die Gasströmung in der B1-350MN kleiner ist, strömen unter Flutbedingungen immer noch beide Phasen durch die Packungskanäle. Die starken Wechselwirkungen am Flutpunkt sorgen für Fluktuationen und führen zum Flüssigkeitsmitriss.

4.3.5 Vergleich mit konventionellen Messungen

Um die Messmethode der Ultraschnellen Tomographie zu validieren, werden Versuche zur konventionellen Bestimmung des Flüssigkeitsinhalts mit der Methode des Ausliterns durchgeführt. Dabei werden dieselbe Kolonne (80 mm Durchmesser) und die beiden Packungstypen B1-350MN und B1-500MN verwendet, die bei den Messungen im HZDR eingesetzt wurden.

Bei den Messungen wird eine Flüssigkeitsbelastung und ein Gasvolumenstrom eingestellt. Nach dem Erreichen eines stationären Betriebszustandes werden die Flüssigkeitszufuhr und der Auslass der Kolonne gleichzeitig verschlossen und die Gasströmung abgestellt. Die von der Packung abtropfende Flüssigkeit wird gesammelt und gewogen. Der Flüssigkeits-hold-up wird als das Verhältnis des abgetropften Flüssigkeitsvolumens zum Volumen der Packung in der Kolonne berechnet.

In Abbildung 4.18 sind die Ergebnisse aus konventioneller und tomographischer Messung des Flüssigkeits-hold-ups gegenüber gestellt. Jedes Diagramm stellt die Messungen bei einer bestimmten Flüssigkeitsbelastung dar, die sowohl bei der

konventionellen Messung als auch bei der Messung mittels Ultraschnellen Röntgentomographie eingestellt wurde. Die durchgezogene Linie in den Diagrammen repräsentiert die interpolierten Messwerte der konventionellen Messmethode mittels Ausliterns für verschiedene Gasbelastungen. Während der Messungen mittels Ultraschnellen Röntgentomographie wurden nur wenige Messebenen vermessen. Daher ist es nicht möglich einen Mittelwert für die gesamte Packung zu bilden. Folglich sind in den Diagrammen einzelne Punkte abgebildet, die den Flüssigkeits-hold-up in einer bestimmten Ebene der Packung bei einem eingestellten Betriebszustand zeigen. Diese entsprechen einem über die Messzeit gemittelten Wert. In der Legende sind die tomographischen Messpunkte mit "XCT" und der Messhöhe ab Beginn der Packung am Kolonnenkopf in mm beschriftet. So bedeutet "XCT-H146" Messung mittels ultraschneller Röntgentomographie auf einer Ebene der Packung, die 146 mm unterhalb des Packungsbeginns am Kolonnenkopf liegt.

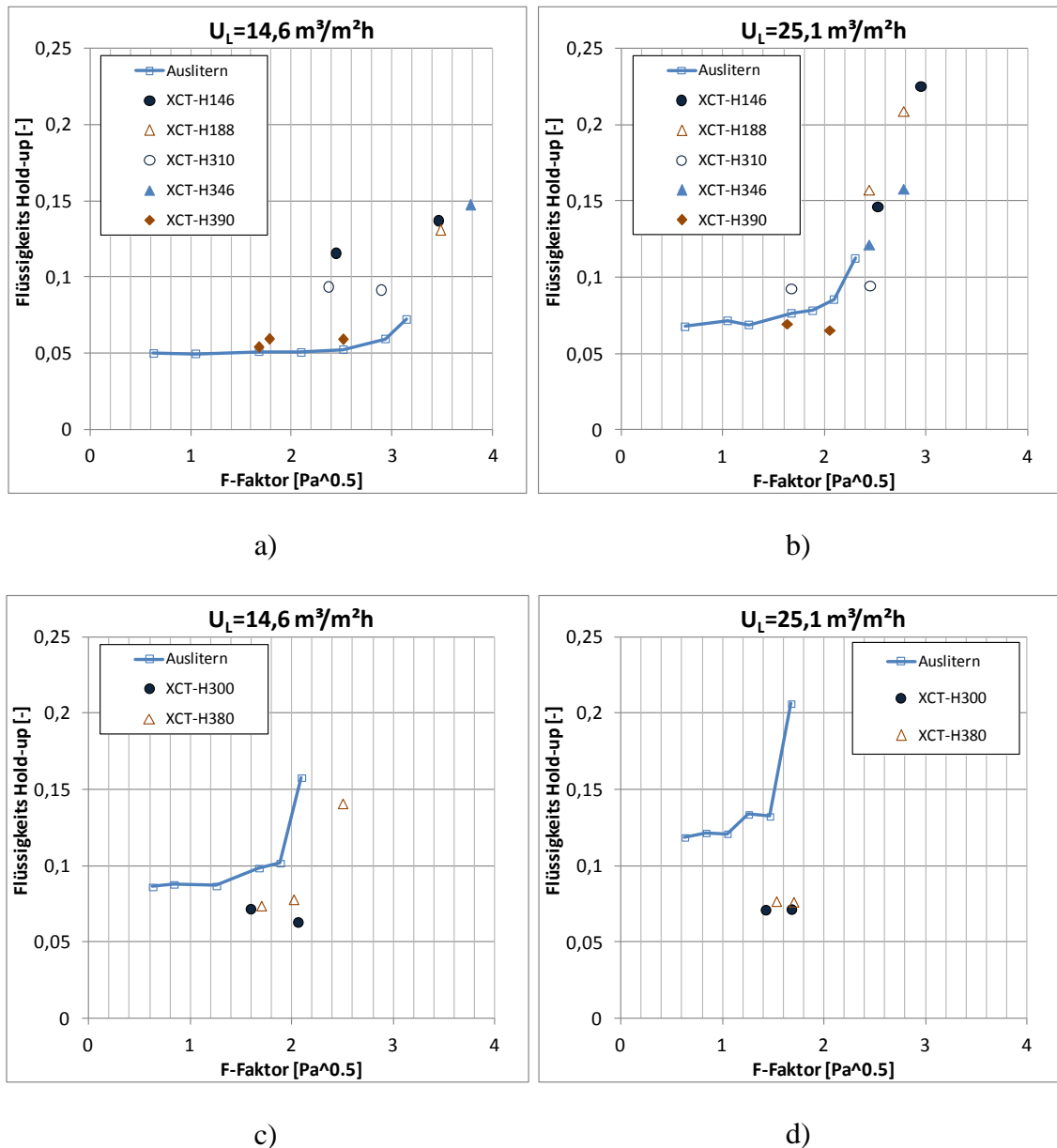


Abbildung 4.18: Flüssigkeits-hold-up in Abhängigkeit von der Flüssigkeitsbelastung und des Packungstyps. a-b: Montz B1-350MN, c-d: Montz B1-500MN. Vergleich von konventioneller Messmethode mittels Ausliterns und Bildauswertung von tomographischen Messungen mittels ultraschneller Röntgentomographie.

Eine Übereinstimmung zwischen den beiden Messmethoden ist für die B1-350MN Packung in Abbildung 4.18 a-b zu sehen. Insbesondere für eine Flüssigkeitsbelastung von $25 \text{ m}^3/(\text{m}^2\text{h})$ stimmen die Ergebnisse der Hold-up Messungen sehr gut überein. Hier sieht es so aus, dass die XCT-Messwerte unter Flutbedingungen eine Verlängerung der Kurve, die mit konventioneller Methode vermessen wurde, darstellen. Durch die instabilen Bedingungen beim Eintreten

des Flutens ist es unmöglich reproduzierbare Werte mit der konventionellen Messmethode zu messen. Ultraschnelle XCT ermöglicht es einen breiteren Betriebsbereich oberhalb des Flutpunkts zu untersuchen.

Bei dem Vergleich der Messwerte der B1-500MN Packung (Abbildung 4.18 c-d) wird ersichtlich, dass der durch die XCT Messung ermittelte Flüssigkeits-hold-up kleiner ist als der durch die konventionelle Methode gemessenen Wert. Wie oben erwähnt, sind die Flüssigkeitsfilme in der dichten Packung dünner, so dass vermutlich die örtliche Auflösung des Tomographen nicht ausreichend ist, diese Filme gut genug aufzulösen, um eine quantitative Auswertung des Hold-ups durchführen zu können. In diesem Fall haben Ungenauigkeiten in der Auflösung und bei der Bildnachbearbeitung einen größeren Einfluss und führen zu einer Unterschätzung des Flüssigkeitsinhalts.

4.3.6 Erkenntnisse durch ultraschnelle Röntgentomographie

Die neuartige Messmethode der Ultraschnellen Röntgentomographie liefert bis jetzt einzigartige Erkenntnisse über das Strömungsverhalten der Gas- und Flüssigphase in strukturierten Packungen über den gesamten Betriebsbereich. Durch die niedrige örtliche Auflösung des Tomographen ist zwar die quantitative Auswertung von dünnen Flüssigkeitsfilmen ungenau, doch liefern die Ergebnisse wichtige qualitative Aussagen.

Die Ergebnisse dieser Arbeit bestätigen die Annahme, dass unterhalb des Flutpunkts die Flüssigkeitsströmung örtlich und zeitlich konstant ist. Somit liefern in diesem Betriebsbereich klassische tomographische Methoden, die zeitlich integrierte Strömungsbilder erzeugen, ebenfalls örtlich genaue Ergebnisse in Bezug auf die Flüssigkeitsströmung.

Die hohe zeitliche Auflösung ermöglicht es erstmals die Fluidodynamik innerhalb der Packung am Flutpunkt und sogar über diesen hinaus nicht-invasiv zu beobachten und den Hold-up der Flüssigkeit in diesem Betriebsbereich zu bestimmen. Außerdem ist es möglich den Einfluss der Packungsgeometrie auf die Fluidodynamik am Flutpunkt zu beobachten. Die Unterschiede zwischen den untersuchten Packungsgrößen sind deutlich: in der Packung mit einer spezifischen Oberfläche von $350 \text{ m}^2/\text{m}^3$ sind die Wechselwirkungen zwischen den beiden

Phasen im gesamten Querschnitt sehr stark. Es bilden sich Flüssigkeitsbrücken und reißen wieder auf. Die Strömung hat einen sehr dynamischen Charakter. Im Gegensatz dazu kann in der Packung mit einer spezifischen Oberfläche von $500 \text{ m}^2/\text{m}^3$ eine Aufteilung von Gas und Flüssigkeit über den Kolonnenquerschnitt beobachtet werden. Dabei sind einzelne Kanäle der Packung vollständig mit Wasser gefüllt, während andere Bereiche der Packung trocken bleiben (Vergleiche Abbildung 4.17). Aufgrund dieser Beobachtung können Rückschlüsse auf den Stoffaustausch im Bereich des Flutens gezogen werden. So lässt sich sagen, dass der Stoffaustausch in der 350er Packung durch die dynamische Strömung bei Flutbedingungen wahrscheinlich intensiviert wird, während in der 500er Packung durch die auftretende Maldistribution der Stoffaustausch zwischen Gas- und Flüssigphase am Flutpunkt schlechter wird.

4.4 Zusammenfassung

Zwei verschiedene tomographische Messmethoden wurden eingesetzt, um die Flüssigkeitsströmung innerhalb von strukturierten Packungen zu beobachten und zu vermessen: zum einen wurde ein klassischer, örtlich hochauflösender Röntgentomograph, an der Universität Liège, und zum anderen ein neues tomographisches Verfahren, die "Ultraschnelle Röntgentomographie", am Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf (HZDR) angewendet.

An der Universität in Liège wurde die Flüssigkeitsverteilung im Kolonnenquerschnitt in einer Kolonne mit einem Innendurchmesser von 100mm, die mit der Packung MellapakPlus 752.Y gefüllt ist, tomographisch vermessen. Dabei wurden die Viskosität und die Flüssigkeitsbelastung variiert. Die Messungen wurden ohne Gasströmung durchgeführt, da in dem untersuchten Betriebsbereich unterhalb des Staupunkts kein wesentlicher Einfluss der Gasströmung auf die Flüssigkeitsströmung besteht. Für jede eingestellte Viskosität und Flüssigkeitsbelastung wurden Querschnittsbilder in einem Abstand von 1cm über eine Kolonnenhöhe von 70cm aufgenommen. Auch von der trockenen Packung wurden auf denselben Messebenen Bilder aufgenommen. Dadurch war es möglich, bei der Nachbearbeitung der Querschnittsbilder die Metalllagen der Packung "rauszurechnen". Als Ergebnis wurden Querschnittsbilder der Kolonne erhalten, in denen nur zwei Phasen, Gas und Flüssigkeit, sichtbar sind. Durch Überlagerung

dieser Bilder und der Bilder der trockenen Packung konnten alle drei Phasen, fest, gas- und flüssigförmig, dargestellt werden.

Die Ergebnisbilder der tomographischen Messungen wurden zunächst nach einer in Vorarbeiten an der Universität in Liège entwickelten Methode bezüglich Flüssigkeits-hold-up und der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit ausgewertet. Die Ergebnisse sind axiale Kolonnenprofile für jede der vermessenen Betriebsbedingungen und Viskositäten. Aus den Kolonnenprofilen werden Durchschnittswerte für jede Einstellung bestimmt. Die Auswertung der Bilder zeigt, dass mit steigender Viskosität und mit steigender Flüssigkeitsbelastung sowohl der Hold-up in der Packung als auch die Phasengrenzfläche größer werden.

Der Nachteil der klassischen Röntgentomographie ist, dass eine Messung mehrere Sekunden bis Minuten dauert. Das zu untersuchende Objekt muss aus unterschiedlichen Winkeln mit einem Röntgenstrahl durchdrungen werden, um später ein Bild des gesamten Querschnitts rekonstruieren zu können. Dazu wird entweder das Objekt oder die Röntgenquelle mit dem Detektor gedreht. Beides ist in der Drehgeschwindigkeit begrenzt. Die Kolonne darf nur so schnell gedreht werden, dass die Fliehkräfte auf die Flüssigkeitsströmung keinen Einfluss haben, während die Drehgeschwindigkeit des Quelle-Detektor-Verbundes mechanische Grenzen aufweist. Damit ist das Ergebnis der tomographischen Messung ein zeitlich gemittelt Bild. Dadurch kann die Strömung in einer Packungskolonne mit klassischer Röntgentomographie nur im stationären Bereich und damit unterhalb des Staupunktes untersucht werden. Bei der Ultraschnellen Röntgentomographie, die am HZDR entwickelt wurde, wird durch einen Elektronenstrahl eine rotierende Röntgenquelle erzeugt. Mit diesem Messprinzip ist es möglich, tomographische Messungen mit einer Bildrate von bis zu 7000Hz durchzuführen. Die örtliche Auflösung ist dabei mit $1 \times 1 \text{ mm}^2$ pro Pixel schwächer als z.B. bei dem hochauflösenden Tomographen in Liège mit $0,36 \times 0,36 \text{ mm}^2$ pro Pixel. Die hohe zeitliche Auflösung der Ultraschnellen Röntgentomographie ermöglicht es, die Flüssigkeitsströmung innerhalb der Packung im gesamten Betriebsbereich bis zum Flutpunkt zu beobachten.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die ultraschnelle Röntgentomographie eingesetzt, um die Dynamik der Flüssigkeitsströmung innerhalb der Packung zu beobachten. Dadurch war es möglich den Einsatzbereich der klassischen Tomographie in Bezug

auf die Lastzustände in der Kolonne zu verifizieren. Dazu wurden tomographische Messungen einer Kolonne mit einem Innendurchmesser von 80mm bei verschiedenen Lastzuständen und in vier verschiedenen Ebenen der Packung gemacht. Es wurde sowohl die Flüssigkeitsbelastung als auch die Gasbelastung variiert. Das vermessene Stoffsystem war Wasser-Luft. Es wurden zwei unterschiedliche Hochleistungspackungen der Firma Montz eingesetzt: Montz B1-350MN und Montz B1-500MN, die sich durch ihre spezifische Oberfläche von $350 \text{ m}^2/\text{m}^3$ und $500 \text{ m}^2/\text{m}^3$ unterscheiden. Der Flüssigkeits-hold-up wurde bestimmt und der zeitliche Verlauf ausgewertet. Neben der Auswertung der Bilder bezüglich des Flüssigkeits-hold-up, ist es erstmals möglich die Flüssigkeitsströmung innerhalb einer strukturierten Packung als Film zu beobachten. Insbesondere am Flutpunkt zeigt sich die Flüssigkeitsströmung ein sehr dynamische Verhalten. Die Änderung in der Flüssigkeitsfilmdicke und die Ausbildung von Flüssigkeitsbrücken zwischen den Strömungen auf den gegenüberliegenden Packungslagen ist sichtbar. Auch ein Unterschied zwischen dem Strömungsverhalten in den beiden untersuchten Packungstypen wird deutlich. So ist die Fluktuation der Flüssigkeit in der Montz B1-350MN Packung stärker ausgeprägt als in der Packung mit einer höheren spezifischen Oberfläche. In dieser bilden sich dafür stärker Bereiche aus, in denen nur Gas oder nur Flüssigkeit befindet.

Die Ergebnisse bestätigen die Annahme, dass unterhalb des Staupunkts die Flüssigkeitsströmung örtlich und zeitlich konstant ist. Somit liefern in diesem Betriebsbereich klassische tomographische Methoden, die zeitlich integrierte Strömungsbilder erzeugen, ebenfalls örtlich genaue Ergebnisse in Bezug auf die Flüssigkeitsströmung. Die hohe zeitliche Auflösung ermöglicht es erstmals, die Fluidodynamik innerhalb der Packung am Flutpunkt nicht-invasiv zu beobachten und den Flüssigkeits-hold-up der Flüssigkeit in diesem Betriebsbereich zu bestimmen.

5 Analyse der Flüssigkeitsströmung

In bisherigen Arbeiten, in denen tomographische Messungen zur Untersuchung von berieselten Packungskolonnen durchgeführt wurden, beschränkte sich die quantitative Auswertung der Querschnittsbilder auf die Bestimmung von Flüssigkeits-hold-up und der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit. Die Form der Flüssigkeitsströmung wurde qualitativ bewertet (Aferka et al., 2007; Green et al., 2007; Alix und Raynal, 2008).

Im Rahmen dieser Arbeit wurden hydrodynamische Analogien zwischen der realen Strömung und vereinfachten fluiddynamischen Elementen gebildet. Dafür mussten nicht nur die vereinfachten Strömungselemente identifiziert, sondern auch quantifiziert werden. In den folgenden Kapiteln wird die Entwicklung und Anwendung der Methode zur Auswertung der tomographischen Bilder hinsichtlich der Morphologie der Flüssigkeitsströmung vorgestellt (s. Janzen et al., 2013b). Dabei werden die tomographischen Querschnittsbilder verwendet, die mit dem klassischen Röntgentomographen in Liège vermessen wurden.

5.1 Identifizierung der Strömungsmuster

Die tomographische Messmethode ermöglicht es die reale Strömung innerhalb der strukturierten Packung zu erfassen. Anhand von einem Beispiel der in Abbildung 5.1 dargestellten Flüssigkeitsströmung in einem Kolonnenquerschnitt werden vorhandene Strömungsmuster identifiziert. Vorwiegend sind dünne, wellenförmige Strömungsformen zu sehen (beispielhaft mit grünen Vierecken gekennzeichnet). Es handelt sich dabei um die Flüssigkeit, die in Form von Filmen über die gewellten Packungslagen fließt. Dass Flüssigkeitsfilme die dominierende Strömungsform sind, stimmt mit den Beobachtungen anderer Arbeiten (Green et al., 2007; Alekseenko et al., 2008; Aferka et al., 2011) überein.

Neben der Filmströmung sind Ansammlungen von Flüssigkeit dort zu sehen, wo zwei benachbarte Packungslagen sich berühren. Aufgrund von Adhäsionskräften

und Oberflächenspannung bilden sich an solchen Kontaktstellen konkave Rinnsale aus. In Abbildung 5.1 sind einige Beispiele dieser Strömungsform, die wir „Flüssigkeitszwickel“ nennen, in blau eingekreist. Mit der verwendeten tomographischen Messmethode ist es nicht möglich Aussagen über das dynamische Fließverhalten der Flüssigkeitszwickel zu treffen. Es ist also nicht ersichtlich, ob die Flüssigkeit an den Kontaktstellen statisch verweilt, kontinuierlich durchfließt oder sporadisch erneuert wird und wieder abfließt. Wir gehen von der Annahme aus, dass die Flüssigkeit, die sich in den Kontaktpunkten befindet, von beiden benachbarten Lagen stammt und sich wieder auf beide Lagen verteilt. Somit findet in den Kontaktpunkten eine Durchmischung der Flüssigkeit statt.

Wo Maldistribution zu hohen lokalen Flüssigkeitsbelastungen führt, ist der gesamte Raum zwischen zwei Packungslagen mit Flüssigkeit gefüllt. Diese „gefluteten“ Bereiche (gekennzeichnet durch rot gestrichelte Kreise in Abbildung 5.1) sind die dritte Strömungsform, die durch die Analyse der tomographischen Bilder identifiziert werden kann.

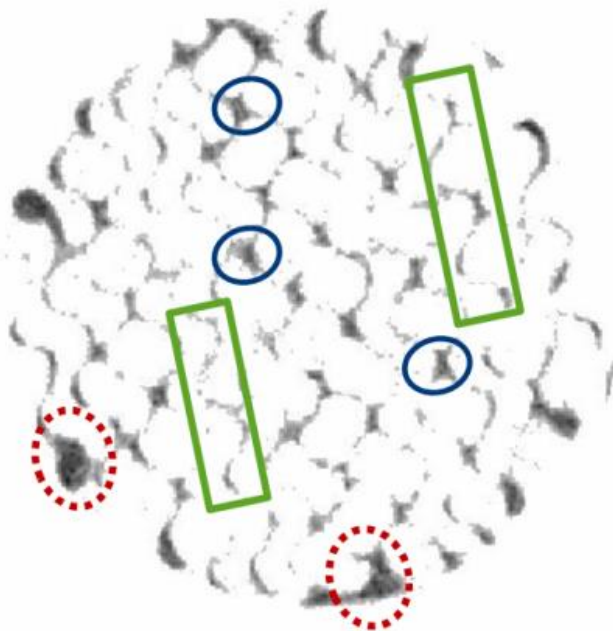


Abbildung 5.1: Illustration der identifizierten Strömungsmuster: grüne Vierecke - Filmströmung, blaue Kreise - Flüssigkeitszwickel, rot gepunktete Kreise - geflutete Bereiche.

5.2 Entwicklung einer Bildanalysemethode

Nach der qualitativen Analyse der Bilder und der Identifikation der drei Strömungsformen (Filmströmung, Zwickelflüssigkeit und geflutete Bereiche) wird eine Bildanalysemethode entwickelt, um eine quantitative Auswertung der tomographischen Bilder zu ermöglichen. Ziel dabei ist es den Anteil der jeweiligen Strömungsform am gesamten Flüssigkeits-hold-up der Packung in Abhängigkeit von physikalischen Eigenschaften und Betriebsbedingungen zu ermitteln.

5.2.1 Feret Durchmesser

Um die Form der Flüssigkeitsstrukturen im Querschnittsbild zu beurteilen, wird der Feret-Durchmesser als Hilfsgröße herangezogen. Dieser Parameter wird in der Feststoffverfahrenstechnik verwendet, um die Größe eines Partikels zu beschreiben. Der Feret-Durchmesser ist definiert als der Abstand zweier paralleler Tangenten, die an einer beliebigen Stelle an der Projektionsfläche eines Partikels angelegt werden. Für jede Fläche können ein minimaler F_{min} und ein maximaler F_{max} Feret-Durchmesser bestimmt werden. Das ist beispielhaft in Abbildung 5.2 dargestellt.

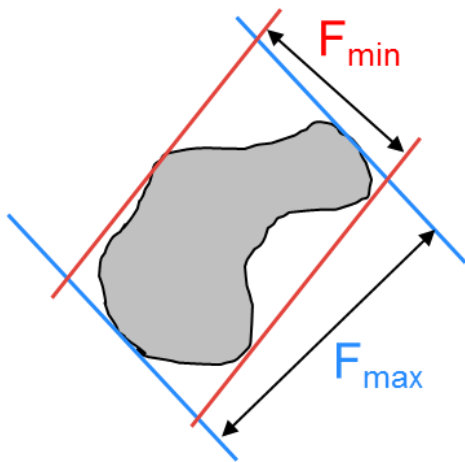


Abbildung 5.2: Maximaler und minimaler Feret-Durchmesser einer Fläche.

5.2.2 Identifizierung von Flüssigkeitsformen

Für die Analyse der Strömungsmorphologie sind Größe und Form der Flüssigkeitsstrukturen ausschlaggebend. Voraussetzung dabei ist, dass diese Strukturen als einzelne Pixelflächen erkannt werden. Erst wenn dies der Fall ist, können Parameter wie Feret-Durchmesser und die Größe der Pixelfläche bestimmt und die Fläche als eine bestimmte Strömungsform identifiziert werden. Um das zu erreichen wurde ein Algorithmus für die Auswertung der tomographischen Bilder entwickelt.

Im ersten Schritt werden einzelne Flächen aus zusammenhängenden grauen Pixeln identifiziert. Diese grauen Flächen sind von weißen Pixeln umgeben. Das heißt, dass es zwischen zwei einzelnen Flächen keinen Berührungspunkt mit anderen grauen Pixeln gibt, sondern es muss sich mindestens ein weißer Pixel dazwischen befinden. Charakteristische geometrische Größen wie Querschnittsfläche, minimaler und maximaler Feret-Durchmesser werden für jede der erkannten Flächen bestimmt. Dabei können der minimale und maximale Feret-Durchmesser auch als Seitenlängen des Parallelogramms betrachtet werden, das die jeweilige Fläche mit minimalem Überschuss an weißen Pixeln einschließt (vgl. auch Abbildung 5.2).

Bevor die Zuweisung der Pixelflächen zu einer der drei Strömungsformen erfolgen kann, muss bedacht werden, dass nicht jede Pixelfläche zwingend als eine einzelne Strömungsform direkt identifiziert werden kann. Vielmehr können die Pixelflächen mehrere Strömungsformen beinhalten. Zum Beispiel geht Filmströmung in der Nähe von einem Kontaktpunkt zwischen zwei Packungslagen fließend in Zwickelflüssigkeit über, so dass diese im tomographischen Bild eine zusammenhängende graue Fläche bilden. Aus diesem Grund müssen bei Bedarf die Pixelflächen in mehrere kleinere Flächen unterteilt werden, die jeweils eine einzelne Strömungsform beinhalten.

Um zu entscheiden, ob eine Pixelfläche unterteilt werden muss und an welcher Stelle dies erfolgen soll, müssen geeignete Kriterien bestimmt werden. Dies bedarf zunächst einer näheren Betrachtung der Gas- und Flüssigkeitsströmung anhand der tomographischen Bilder. Da die Flüssigkeit größtenteils als dünner Film auf der Packungsoberfläche herabfließt, sind auf den nachbearbeiteten

tomographischen Bildern (rausgerechnete Metalllagen) relativ große, weiße Flächen, die die Gasphase repräsentieren, durch signifikant kleinere, graue Flüssigkeitsstrukturen umgeben. Wenn sich also zum Beispiel auf beiden gegenüberliegenden Lagen ein durchgehender Flüssigkeitsfilm befindet, der in Zwickelflüssigkeit an den Kontaktpunkten übergeht, kann eine zusammenhängende Fläche aus grauen Pixeln eine Form, wie sie beispielhaft in Abbildung 5.3 als blaue Form dargestellt ist, haben. Dabei sind große, weiße Flächen durch graue Pixel eingeschlossen. Daraus kann der Rückschluss gezogen werden, dass, immer dann, wenn eine zusammenhängende Fläche aus grauen Pixeln mehrere Strömungsformen beinhaltet, gleichzeitig eine große Menge an weißen Pixeln eingeschlossen ist. Das impliziert, dass der Anteil an weißen Pixeln an der gesamten Fläche des Feret-Parallelogramms sehr groß ist. Folglich kann das Verhältnis zwischen der grauen Pixelfläche und der gesamten Fläche des Feret-Parallelogramms als Kriterium genutzt werden, um zu entscheiden, ob eine Pixelfläche unterteilt werden muss oder nicht. Wenn das Verhältnis der Flächen klein ist, bedeutet es, dass viele Gaspixel eingeschlossen sind und die analysierte Pixelfläche mehrere Strömungsformen beinhaltet.

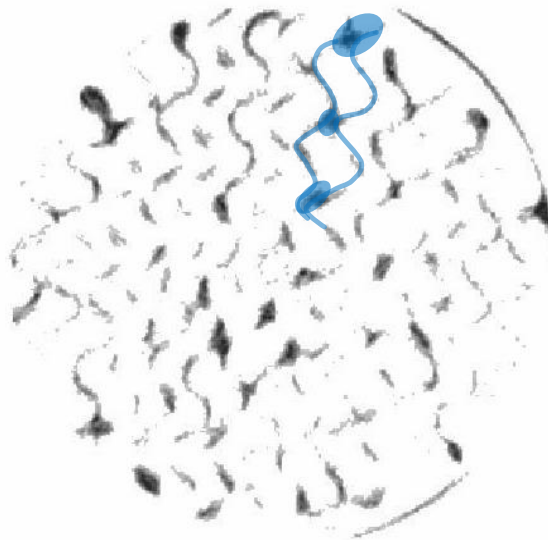


Abbildung 5.3: Querschnittsbild der Flüssigkeitsströmung in der strukturierten Packung. In Blau hervorgehoben ein Beispiel für eine zusammenhängende Pixelfläche bestehend aus Flüssigkeitsfilmen, Zwickelflüssigkeit und gefülltem Bereich der Packung.

Wenn bei der Analyse eines Bildes festgestellt wird, dass eine Pixelfläche aus mehreren Strömungsformen besteht, muss diese an einer oder mehreren geeigneten Stellen so unterteilt werden, dass anschließend die einzelnen Strömungsformen als einzelne Flächen vorliegen. Welche Stellen dafür geeignet sind, wird bei der Betrachtung der tomographischen Querschnittsbilder deutlich. Strömungsformen wie Zwickelflüssigkeit oder gefüllte Bereiche sind entweder als einzelnstehende graue Flächen zu sehen, oder sie grenzen an Filmströmung an. Genau an dieser Angrenzung sollten die einzelnen Formen getrennt werden, um die jeweiligen Flächen eindeutig als unterschiedliche Strömungsformen zu identifizieren. Somit sind dünne Strukturen, die Filmströmung darstellen, geeignete Stellen, um eine größere Pixelfläche zu teilen.

Besonders dünne Bereiche müssen in der Pixelfläche identifiziert und diese Pixel gelöscht werden, um zwei getrennte Strömungsstrukturen zu erhalten. Es werden also Pixelstellen gesucht, die aus wenigen angrenzenden grauen Pixeln bestehen und die von weißen Pixel umgeben sind. Dafür wird jedes Flüssigkeitspixel in Bezug auf Typ und Anzahl der Pixeln in seiner Umgebung analysiert. Wenn bei einem Flüssigkeitspixel die meisten Pixel in der näheren Umgebung Gaspixeln sind, gehört das gerade untersuchte Flüssigkeitspixel zu einem dünnen Flüssigkeitsfilm.

Ein Flüssigkeitsfilm hat eine bestimmte Dicke und besteht somit meistens aus mehr als einer Lage grauer Pixel. Deswegen muss eine weitläufigere Umgebung als die direkt angrenzenden Pixel analysiert werden, um zu entscheiden, ob das gerade untersuchte Flüssigkeitspixel Teil einer Filmströmung oder einer größeren Strömungsform ist. Wie viele Pixel einen dünnen Flüssigkeitsfilm darstellen hängt von der Auflösung des verwendeten Tomographen ab. Für jede Messapparatur muss also individuell bestimmt werden, wie viele umgebende Pixel und in welcher Entfernung analysiert werden müssen. In den Querschnittsbilder der berieselten Kolonne, die durch den Röntgentomographen in Liège erhalten wurden, werden dünne Filme mit einer Dicke von zwei Pixeln abgebildet. Deswegen ist es ausreichend, die Umgebung in einem Abstand von drei Pixeln ausgehend vom untersuchten Flüssigkeitspixel zu betrachten, um zu beurteilen, ob dieser Teil eines dünnen Films ist. Das ergibt eine Fläche von insgesamt sieben mal sieben Pixeln, wobei der gerade untersuchte Flüssigkeitspixel sich genau in der Mitte dieses Quadrats befindet. Weiterhin erweist sich die gewundene Form der

Flüssigkeitsfilme, die durch die Geometrie der Lagen vorgegeben ist, bei diesem Schritt der Bildanalyse als sehr vorteilhaft: Die Packungslagen und damit auch die Flüssigkeitsfilme sind meistens diagonal im Bild ausgerichtet. Ist ein Flüssigkeitspixel Teil eines Flüssigkeitsfilms, befinden sich Flüssigkeitspixel in diagonalen Richtung im untersuchten Quadrat der benachbarten Pixel. Pixel, die direkt an das gerade untersuchte Pixel angrenzen, müssen bei der Analyse der Pixel nicht berücksichtigt. Um zu entscheiden, ob ein Pixel zur Filmströmung gehört, reicht es vier Pixel zu untersuchen, die sich jeweils drei Pixel nach rechts, links, oben und unten vom untersuchten Pixel aus befinden. Wenn drei dieser Pixel weiß und damit Gaspixel sind, befindet sich der untersuchte Flüssigkeitspixel in einem dünnen Flüssigkeitsfilm und wird „gelöscht“, also in ein weißes Pixel verwandelt.

Um die Vorgehensweise zu veranschaulichen ist ein Beispiel in Abbildung 5.4 dargestellt. In dieser Abbildung stellen die mit „X“ oder „Y“ gekennzeichneten Kästchen Pixel dar, die zur flüssigen Phase gehören, während die mit „0“ gekennzeichneten Kästchen zur Gasphase gehörende Pixel darstellen. In Abbildung 5.4a ist eine zusammenhängende Fläche aus Flüssigkeitspixeln zu sehen, die durch weiße Gaspixel umgeben ist. Das Pixel, das gerade analysiert wird, ist mit einem schwarzen Rahmen hervorgehoben. Die benachbarten Pixel, die in einem Abstand von 3 Pixeln betrachtet werden, sind mit einem roten Rahmen markiert. Drei der vier benachbarten Pixel sind Gaspixel. Somit wird das untersuchte Pixel (schwarz umrahmt) als zu einem dünnen Film zugehörig erkannt und gelöscht. In Abbildung 5.4b ist das entsprechende Kästchen mit einer 0 gekennzeichnet und ist damit ein Gaspixel. Jetzt wird das nächste Pixel rechts von dem gerade gelöschten untersucht. Dieses ist in Abbildung 5.4b analog zu Abbildung 5.4a mit einem schwarzen Rahmen hervorgehoben. Die benachbarten Pixel sind wieder mit einem roten Rahmen betont. Auch in diesem Fall handelt es sich bei dreien der vier benachbarten Pixel um Gaspixel. Somit wird das schwarz umrahmte Pixel gelöscht. In Abbildung 5.4c ist zu erkennen, dass die ursprüngliche Strömungsstruktur, die eine zusammenhängende Pixelfläche war, nun durch eine Lage von weißen Pixeln getrennt ist. Damit werden in diesem Fall zwei einzelne, kleinere Pixelflächen erkannt, die zur Verdeutlichung in Abbildung 5.4c aus jeweils unterschiedlich benannten Kästchen, „X“ und „Y“, bestehen.

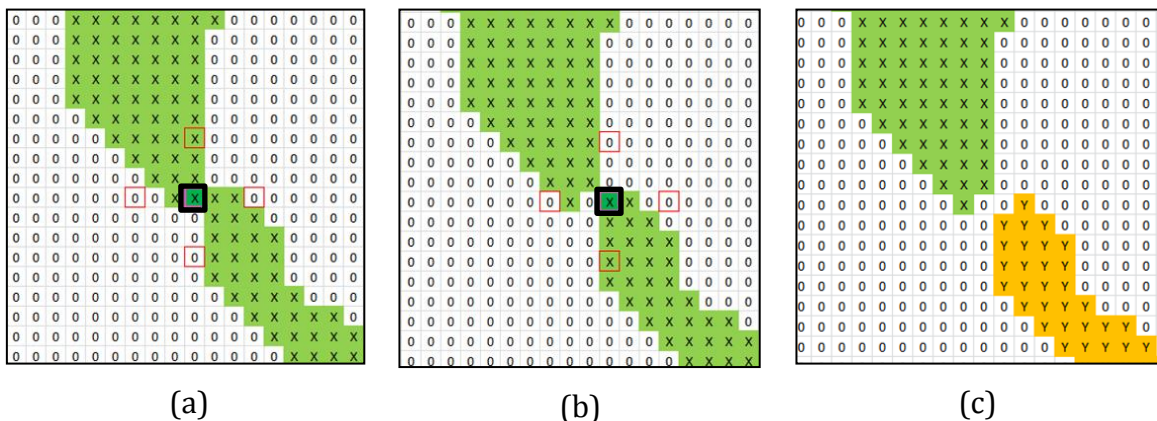


Abbildung 5.4: Beispielhafte Darstellung der Identifizierung von dünnen Filmen und der Teilung von größeren Strukturen. Mit "X" und "Y" gekennzeichnete Felder stellen die Flüssigkeitspixel und mit "0" gekennzeichnete die Gaspixel dar. In den Bildern a und b ist das gerade analysierte Pixel mit einem schwarzen Rand und die 4 angrenzenden Pixel, die für die Bewertung des analysierten Pixels betrachtet werden, mit einem roten Rand hervorgehoben; In Bild c sind die analysierten Pixel gelöscht und es entstehen zwei separate Strukturen.

Zusammengefasst läuft die Prozedur zur Teilung von Flüssigkeitspixelflächen wie folgt ab:

1. Schritt: Erkennen von zusammenhängenden Pixelflächen.
2. Schritt: Bestimmen des maximalen und minimalen Feret-Durchmessers
3. Schritt: Berechnung und Beurteilung des Verhältnisses von Pixelfläche zum Feret-Parallelogramm
4. Schritt: Wenn das berechnete Verhältnis kleiner als ein vorgegebener Wert ist, wird jedes einzelne Flüssigkeitspixel mit der im Beispiel beschriebener Prozedur bezüglich seiner Umgebung analysiert und u.U. gelöscht
5. Schritt: Die Schritte 1-4 werden so lange wiederholt, bis das Feret-Parallelogramm für jede Fläche so passt, dass das Verhältnis der Flächen den vorgegeben Wert nicht unterschreitet.

Um ein geeignetes Kriterium für das Verhältnis der Flüssigkeitspixelflächen zur gesamten Fläche des Feret-Parallelogramms zu bestimmen, wurden verschiedene Werte vorgegeben und die Ergebnisse der Trennungsprozedur beurteilt. Die Identifikation und Trennung der Pixelflächen funktioniert gut, wenn die Fläche der

Flüssigkeitspixel mindestens 50% des Feret-Parallelogramms ausfüllt, die Grenze für das Verhältnis der Flächen also bei 0,5 liegt.

5.2.3 Klassifizierung der Strömungsformen

Nachdem die Flüssigkeitspixelflächen erkannt und in einzelne Strukturen aufgeteilt wurden, muss im nächsten Schritt analysiert werden, um welche Strömungsform es sich jeweils handelt. Um das beurteilen zu können, sind Größe und Form der Strömungsstrukturen ausschlaggebend. Der minimale und maximale Feret-Durchmesser dienen dabei als Parameter für eine quantitative Aussage. So ist der minimale Durchmesser äquivalent zur Dicke einer Strömungsstruktur, während das Verhältnis von maximalem zu minimalem Feret-Durchmesser Rückschlüsse über die Form zulässt. Aus dem Quotienten kann geschlossen werden, ob es sich bei der untersuchten Pixelfläche eher um eine runde oder eine längliche Form handelt. Grundlegende Überlegungen zum Zusammenhang von Größe und Form der drei Strömungsformen sind in Abbildung 5.5 dargestellt und können wie folgt beschrieben werden:

- Filmströmung: dünne und längliche Strukturen (Abbildung 5.5a)
- Zwickelflüssigkeit: relative kleine und runde Strukturen (Abbildung 5.5b)
- Geflutete Bereiche: große und eher runde Strukturen (Abbildung 5.5c)

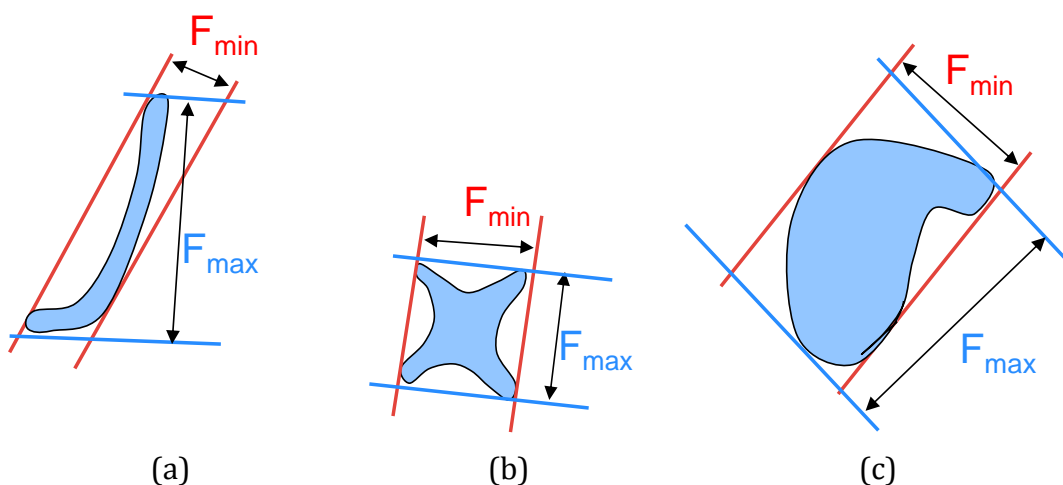


Abbildung 5.5: Schematische Darstellung der verschiedenen Strömungsformen und der dazugehörigen minimalen und maximalen Feret-Durchmesser. a: Filmströmung; b: Zwickelflüssigkeit; c: gefluteter Bereich.

Flüssigkeitspixelflächen, die zur Filmströmung gehören, können aufgrund ihrer Form von den Strukturen, die zu Flüssigkeitszwickeln zählen, unterschieden werden. Das Verhältnis von maximalem zu minimalem Feret-Durchmesser sollte deutlich unterschiedlich sein: ein großer Wert steht für die länglichen Filmströmungsstrukturen und ein kleiner Wert für die runden Flüssigkeitszwickel. Die Abgrenzung zu gefluteten Bereichen erfolgt über ein Kriterium bezüglich der Größe bzw. der Dicke einer Pixelfläche. Ist der minimale Feret-Durchmesser einer Flüssigkeitspixelfläche größer als ein bestimmter Wert $F_{\min,1}$, sollte diese als gefluteter Bereich identifiziert werden.

Um die Kriterien für die Zuordnung der Pixelflächen zu einer der drei Strömungsformen festzulegen, wurden verschiedene Werte für das Verhältnis von F_{\max}/F_{\min} und den Wert für $F_{\min,1}$ im Rahmen einer Sensitivitätsstudie ausprobiert. Dabei wurden die Ergebnisse der Identifizierung und Zuordnung visuell dargestellt. Jede erkannte Pixelfläche auf dem tomographischen Querschnittsbild der Flüssigkeitsströmung wurde mit einem Rechteck gekennzeichnet, dessen Seitenlängen F_{\max} und F_{\min} der jeweiligen Pixelfläche sind. Das Feret-Parallelogramm wird also als „Feret-Rechteck“ dargestellt. Zusätzlich wurden verschiedene Farben verwendet, um die Zuordnung der einzelnen Pixelflächen zu den Strömungsformen zu visualisieren. So wurde die Farbe Grün für Filmströmung, Blau für Zwickelflüssigkeit und Rot für gefüllte Bereiche verwendet. Da die Feret-Rechtecke örtlich über den ihnen zugehörigen Pixelflächen angeordnet sind, kann man auf den Ergebnisbildern sehen, welche Pixelflächen durch den Bild-Analyse-Algorithmus identifiziert und zu welcher Strömungsform diese jeweils zugeordnet wurden. Ein Beispiel für ein solches Ergebnisbild ist in Abbildung 5.6 gegeben.

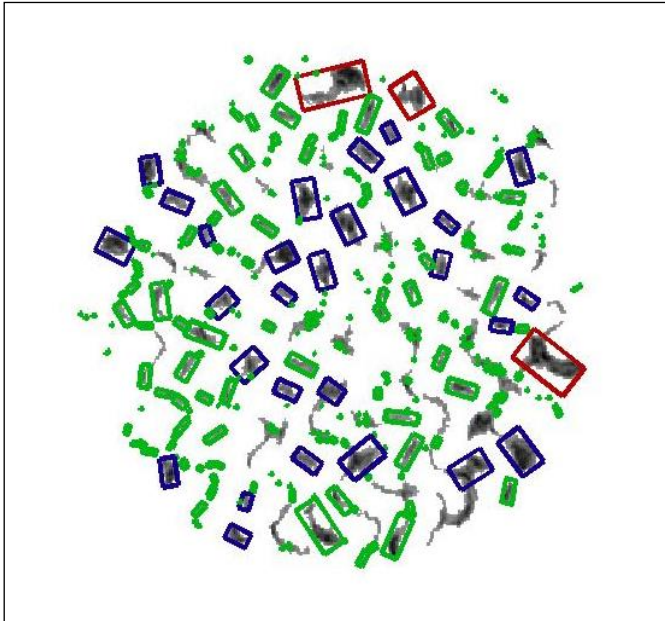


Abbildung 5.6: Bildliche Darstellung der Zuordnung von Pixelstrukturen zu den einzelnen Strömungsformen: grün - Filmströmung, blau - Zwickelflüssigkeit, rot - gefüllte Bereiche.

Die Ergebnisbilder der ersten Sensitivitätsstudie haben gezeigt, dass die beiden bisher vorgestellten Kriterien nicht ausreichend sind, um zufriedenstellende Ergebnisse der Zuordnung der Strömungsformen zu erzielen. Viele kleine Flüssigkeitsstrukturen, bestehend aus nur wenigen Pixeln, haben üblicherweise eher eine runde Form und werden somit zur Zwickelflüssigkeit zugewiesen. Dabei handelt es sich meistens um Pixelflächen, die zur Filmströmung gehören, jedoch auf dem Bild keine durchgehende Verbindung zu anderen Pixeln der gleichen Strömungsform haben. Um das zu berücksichtigen, wurde eine zweite Grenze für den minimalen Feret-Durchmesser $F_{\min,2}$ eingeführt. Alle Flüssigkeitsstrukturen, deren minimaler Feret-Durchmesser kleiner ist als der Wert $F_{\min,2}$, wurden zur Filmströmung zugeordnet.

Weiterhin müssen auch die Pixel, die während der Erkennungs- und Teilungsprozedur der Strömungsstrukturen gelöscht werden, bei der Auswertung bezüglich der Strömungsformen berücksichtigt werden. Da es sich, wie oben beschrieben, um Pixel an sehr dünnen Stellen der Filmströmung handelt, werden alle gelöschten Pixel eben dieser Strömungsform zugewiesen.

Erneut wurden verschiedene Werte für die vorgeschlagenen Kriterien ausprobiert und die Zuordnung der Pixelflächen zu den jeweiligen Strömungsformen

begutachtet. Die Beurteilung der Zuordnung erfolgte dabei visuell durch die Betrachtung der Ergebnisbilder (vgl. Abbildung 5.6). Die besten Ergebnisse für die Zuordnung der Strömungsformen wurden mit den in Tabelle 5.1 dargestellten Kriterien erzielt:

Tabelle 5.1: Kriterien für die Erkennung und Zuordnung von Pixelstrukturen.

Strömungsform	Kriterium 1	Kriterium 2	Kriterium 3
Filmströmung	$F_{\max}/F_{\min} > 2$ und $F_{\min} < 6 \text{ mm}$	$F_{\min} < 2.4 \text{ mm}$	gelöschte Pixel
Zwickelflüssigkeit	$F_{\max}/F_{\min} < 2$ und $2.4 \text{ mm} < F_{\min} < 6 \text{ mm}$		
Geflutete Bereiche	$F_{\min} > 6 \text{ mm}$		

Aus der Entwicklung der Kriterien ergeben sich für die Filmströmung drei Kriterien, die jeweils separat gültig sind. Das bedeutet, dass sowohl alle Pixelflächen, die länglich sind ($F_{\max}/F_{\min} > 2$) und deren minimaler Feret-Durchmesser kleiner als 6 mm ist, als auch alle kleinen runden Flächen mit F_{\min} kleiner als 2.4 mm zur Filmströmung eingeordnet werden. Zusätzlich werden alle gelöschten Pixel als zur Filmströmung zugehörig gezählt.

Als Zwickelflüssigkeit werden alle Pixelflächen identifiziert, deren Verhältnis von F_{\max}/F_{\min} kleiner als zwei und gleichzeitig F_{\min} zwischen 2.4 und 6mm ist. Alle länglichen und runden Strukturen mit einem minimalen Feret-Durchmesser größer als 6mm werden als geflutete Bereiche erkannt.

Nach dem Durchlauf des Bildanalysealgorithmus, wird der Anteil jeder der drei Strömungsformen am gesamten Flüssigkeits-hold-up im analysierten Kolonnenquerschnittsbild berechnet. Dafür werden alle Pixel der Strömungsstrukturen in der jeweiligen Kategorie summiert und durch die Gesamtanzahl aller Flüssigkeitspixel im Bild geteilt.

5.2.4 Implementierung der Methode in MatLab

Die vorgestellte Bildanalysemethode wird in MatLab implementiert. Dies hat den Vorteil, dass bereits in einer Tool-box vorhandene Subprogramme genutzt werden können. So wird ein vorhandenes MatLab-Programm zur Erkennung von zusammenhängenden Pixeln genutzt. Auch ein Programm zur Bestimmung der Feret-Durchmesser ist in der MatLab Tool-box enthalten.

Die Prozedur zur Analyse und Unterteilung von Strömungsstrukturen, die Klassifizierung der Strömungsformen und die Ausgabe der Ergebnisbilder mit überlagerten Feret-Rechtecken werden als eigene Subroutinen programmiert.

5.3 Ergebnisse

Um den Einfluss der Flüssigkeitsbelastung und der Viskosität auf die Strömungsmorphologie zu bestimmen, werden alle tomographischen Querschnittsbilder der Flüssigkeitsströmung mit der entwickelten Bildanalysemethode ausgewertet. Nach der Identifizierung der einzelnen Flüssigkeitsstrukturen und ihrer Klassifizierung wird der Beitrag jeder Strömungsform zu dem gesamten Flüssigkeitsinhalt innerhalb der Packung als Anteil berechnet.

Analog zur Auswertung von Flüssigkeits-hold-up und Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit ist es möglich, aufgrund der vielen Messebenen die Ergebnisse in Form eines axialen Kolonnenprofils darzustellen. In Abbildung 5.7 sind für jede der drei Strömungsformen die axialen Profile des Anteils am gesamten Flüssigkeits-hold-up in jeweils einem einzelnen Diagramm dargestellt (a: geflutete Bereiche; b: Flüssigkeitszwickel; c: Filmströmung). Dabei handelt es sich um Ergebnisse für eine mit reinem Wasser (Viskosität = 1mPas) berieselte Kolonne. Der Einfluss der Flüssigkeitsbelastung wird dargestellt, indem für die Flüssigkeitsbelastungen von 4, 13 und 23 m³/(m²h) jeweils eine Linie im Diagramm zu sehen ist. Um den Übergang der Packungslagen zu verdeutlichen, sind die Packungslagen schematisch in Abbildung 5.7 dargestellt und die Höhe an den Übergängen mit einer roten Linie in allen Diagrammen markiert.

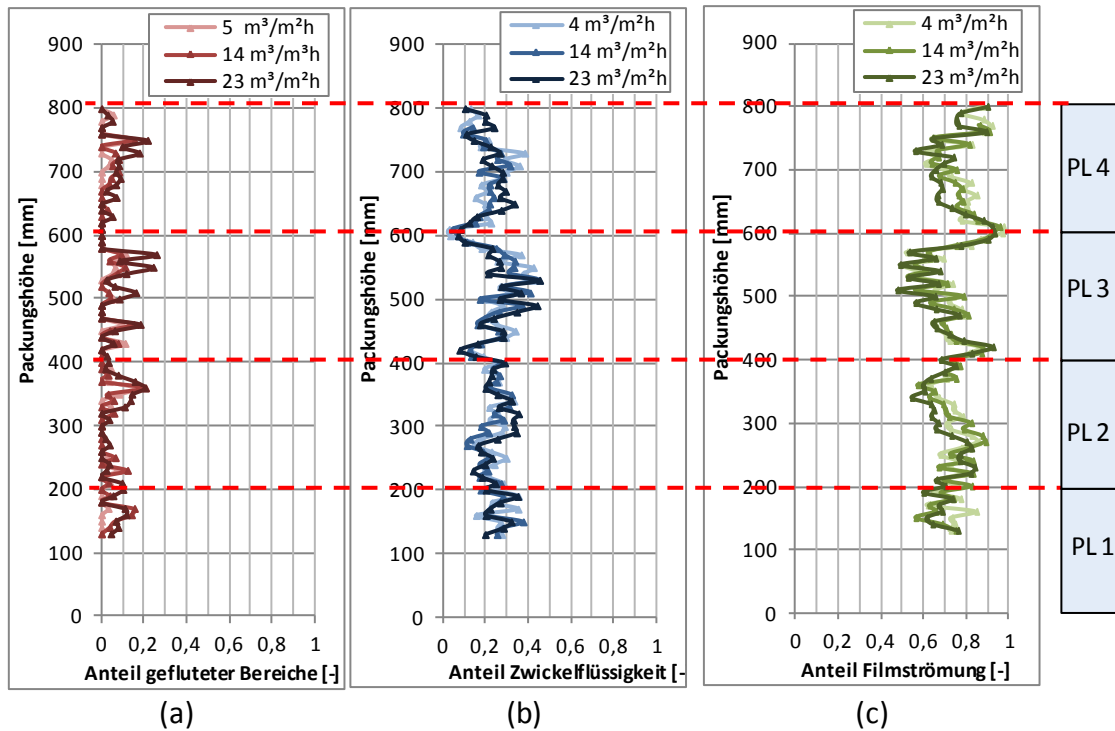


Abbildung 5.7: Anteil der jeweiligen Strömungsform am gesamten Flüssigkeits-hold-up in der vermessenen strukturierten Packung als axiale Profile über die Kolonnenhöhe. Dargestellt ist der Einfluss der Flüssigkeitsbelastung bei einer Viskosität von 1mPas (Wasser). a: Anteil der gefluteten Bereiche, b: Anteil der Zwickelflüssigkeit, c: Anteil der Filmströmung

Alle Strömungsformen variieren in ihrem Anteil am gesamten Flüssigkeits-hold-up in jeder Messebene. Trotzdem ist ein charakteristisches axiales Profil für jede Strömungsform über die gemessene Packungshöhe erkennbar. Dabei wiederholen sich Tendenzen in jeder Packungslage. So ist der Anteil der gefluteten Bereiche über einen großen Teil der Packungshöhe mit weniger als 10% niedrig (Abbildung 5.7a). Jeweils ca 50 mm unterhalb eines Übergangs zwischen zwei Packungslagen bildet sich dabei ein Maximum aus, wobei der Anteil an gefluteten Bereichen bis zu 25% ansteigt. Der lokale Anteil an Zwickelflüssigkeit variiert zwischen 5 und 45% (Abbildung 5.7b). An den Packungsübergängen haben die axialen Profile ein Minimum, während in dem restlichen Bereich der Packung der Anteil an Zwickelflüssigkeit zwischen ca. 18 und 45% variiert. Filmströmung macht mit einem Bereich zwischen 50 und 90% wie erwartet den größten Anteil am gesamten Flüssigkeits-hold-up aus (Abbildung 5.7c). Charakteristisch für den Anteil der Filmströmung ist ein Maximum im axialen Verlauf an den Übergängen der Packungslagen.

Die Tendenzen im axialen Verlauf der jeweiligen Strömungsform lassen sich mit der Struktur der vermessenen Packung des Typs MellapakPlus erklären. Durch die vertikale Ausrichtung der gefalteten Kanäle am oberen und unteren Ende der Packungslage kann die Flüssigkeit an den Übergängen der Packungselemente besser abfließen. Das bedeutet, dass an den Kontaktpunkten zwischen zwei Packungslagen weniger Flüssigkeit akkumuliert und der Anteil an Zwickelflüssigkeit in diesem Bereich minimal ist. Gleichzeitig ist der Anteil an Filmströmung maximal. Nachdem die Flüssigkeit den vertikalen Bereich verlässt wird sie durch die Umlenkung auf 45° Kanäle aufgestaut. Dadurch entstehen die Maxima im Anteil der gefluteten Bereiche.

Die lokalen Schwankungen von Messebene zu Messebene sind abhängig von der jeweiligen Packungsstruktur im Querschnitt, die sich durch die Anordnung der gefalteten Einzellagen ergibt. Diese beeinflusst die Anzahl an Kontaktpunkten in jeder Messebene.

Anhand der Diagramme in Abbildung 5.7 ist zu erkennen, dass die Flüssigkeitsbelastung keinen Einfluss auf den qualitativen Verlauf der axialen Profile hat. Quantitativ steigt der Anteil an gefluteten Bereichen mit steigender Flüssigkeitsbelastung, während der Anteil der Filmströmung sinkt. Im Gegensatz dazu scheint sich der Anteil an Zwickelflüssigkeit kaum zu ändern.

Um den Einfluss der Viskosität auf die Strömungsmorphologie zu zeigen, werden in Abbildung 5.8 die axialen Profile der einzelnen Strömungsformen für die vermessenen Viskositäten beispielhaft bei einer Flüssigkeitsbelastung von $17 \text{ m}^3/(\text{m}^2\text{h})$ gezeigt.

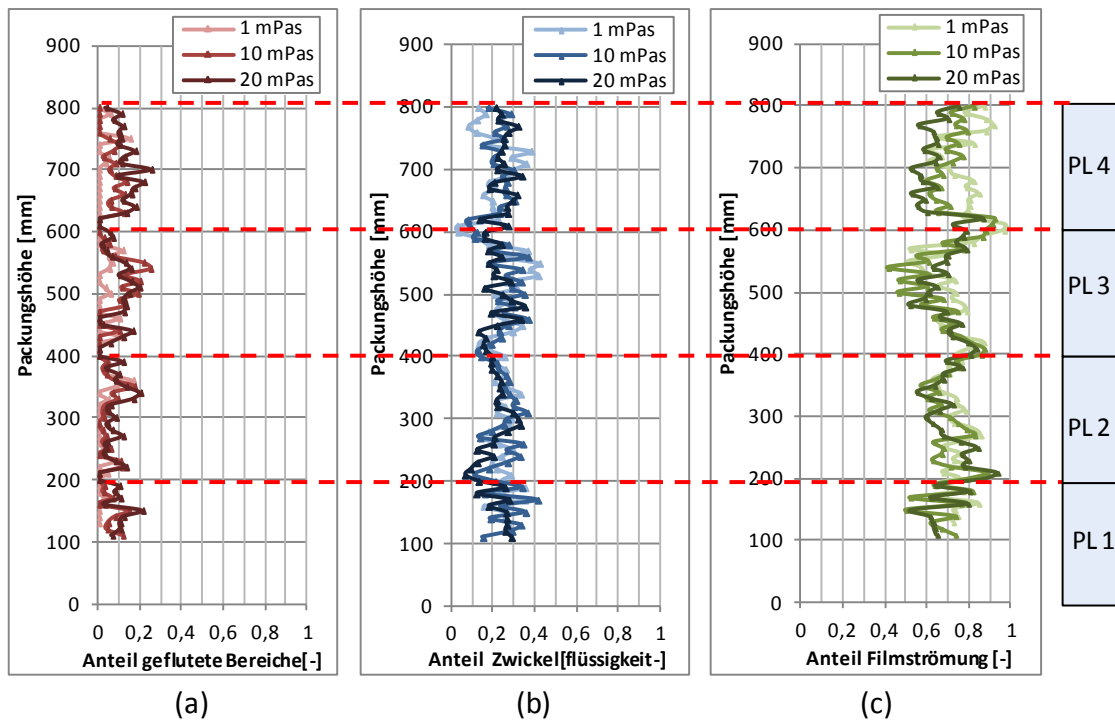


Abbildung 5.8: Anteil der jeweiligen Strömungsform am gesamten Flüssigkeits-hold-up in der vermessenen strukturierten Packung als axiale Profile über die Kolonnenhöhe. Dargestellt ist der Einfluss der Viskosität bei einer Flüssigkeitsbelastung von $17 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$. a: Anteil der gefluteten Bereiche, b: Anteil der Zwickelflüssigkeit, c: Anteil der Filmströmung.

Analog zu den Ergebnissen in Abbildung 5.7 ist es ersichtlich, dass der qualitative axiale Verlauf der Anteile der einzelnen Strömungsformen am gesamten Flüssigkeits-hold-up unabhängig von der Viskosität der Flüssigkeit ist. Die quantitativen Werte sind hingegen sowohl von der Flüssigkeitsbelastung als auch von der Viskosität abhängig. Verglichen mit der Flüssigkeitsbelastung scheint die Viskosität einen größeren Einfluss auf die Verteilung der Strömungsformen zu haben. Der Anteil der gefluteten Bereiche steigt stärker mit höherer Viskosität an, während gleichzeitig der Anteil der Filmströmung stärker sinkt im Vergleich zu der Änderung bei steigender Flüssigkeitsbelastung. Der Anteil an Zwickelflüssigkeit scheint unabhängig von dem variierten Parameter Viskosität zu sein.

Um den globalen Effekt der Flüssigkeitsbelastung und der Viskosität auf die Strömungsmorphologie zu untersuchen, werden Mittelwerte über die gesamte vermessene Kolonnenhöhe berechnet. In Abbildung 5.9 sind die Ergebnisse bezüglich des Beitrags jeder Strömungsform zum gesamten Flüssigkeits-hold-up

zu sehen. Dabei sind die gemittelten Anteile des Flüssigkeits-hold-up über die Flüssigkeitsbelastung aufgetragen. Für jede vermessene Viskosität ist ein Verlauf des Anteils der jeweiligen Strömungsform am gesamten Flüssigkeits-hold-up zu sehen.

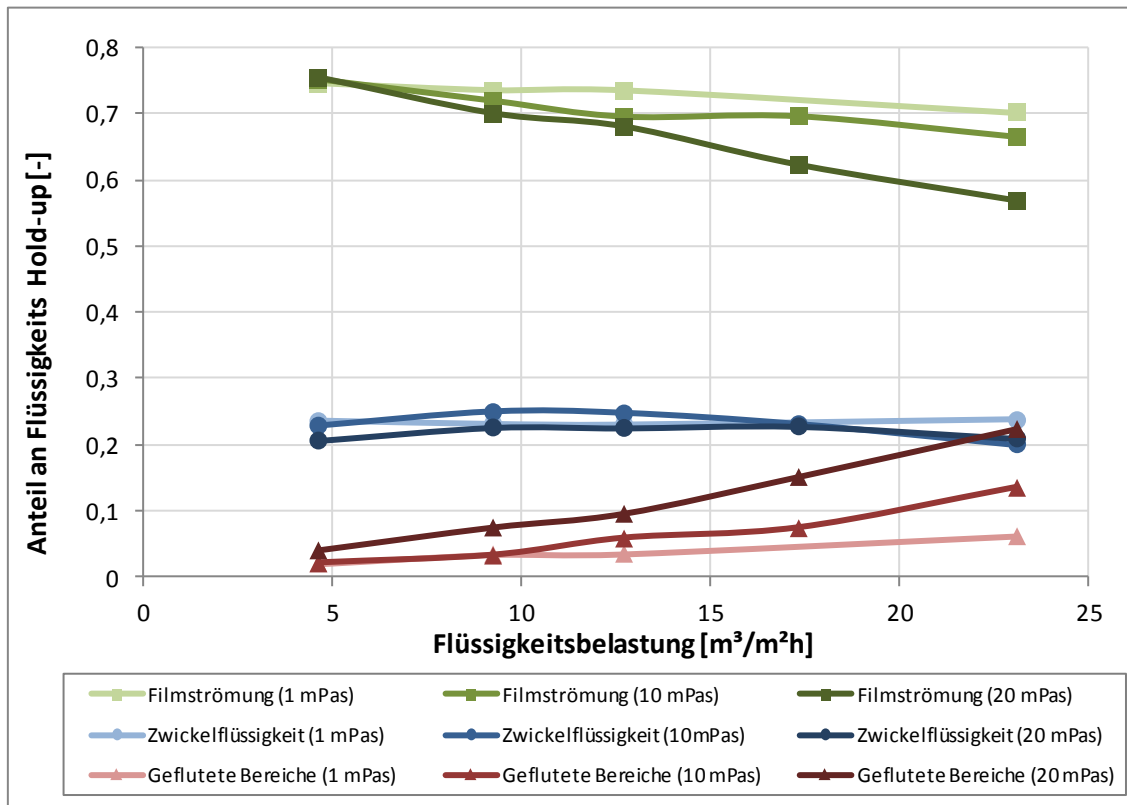


Abbildung 5.9: Anteil der jeweiligen Strömungsform am gesamten Flüssigkeits-hold-up in der vermessenen strukturierten Packung als Mittelwert über die Packungshöhe. Dargestellt ist der Einfluss der Flüssigkeitsbelastung und der Viskosität. Grüne Quadrate: Anteil der Filmströmung; blaue Kreise: Anteil der Zwickelflüssigkeit; rote Dreiecke: Anteil der gefluteten Bereiche.

Der mittlere Anteil der Filmströmung macht zwar den größten Teil aus, sinkt aber sowohl mit steigender Flüssigkeitsbelastung als auch mit steigender Viskosität. Dabei steigt in gleichem Maße der Anteil an gefluteten Bereichen an. Das bedeutet, dass mit Erhöhung der beiden variierten Parameter der Anteil der Packung steigt, der komplett mit Flüssigkeit ausgefüllt ist. Damit wird der Bereich der Packung größer, in dem kein Stoffaustausch stattfinden kann. Die Packung wird „verstopft“. Das erklärt warum es unter gleichen Betriebsbedingungen in einer

Packungskolonnen bei einem System mit hoher Viskosität zu einem früheren Fluten der Kolonne kommt als bei einem niedrigviskosen System.

Das erstaunlichste Ergebnis ist allerdings, dass der Anteil der Zwickelflüssigkeit von beiden variierten Parametern auch im Mittelwert völlig unabhängig ist. Es kann also der Rückschluss gezogen werden, dass der Anteil an Zwickelflüssigkeit am gesamten Flüssigkeits-hold-up nur von der lokalen Packungsgeometrie abhängig ist. Die Anzahl der Kontaktpunkte zwischen zwei Packungslagen in einem Kolonnenquerschnitt ist also für den Anteil an Flüssigkeit ausschlaggebend, der sich an diesen Stellen ansammelt und so zum gesamten Flüssigkeits-hold-up beiträgt.

Für ein besseres Verständnis der Strömungsmorphologie werden die Ergebnisbilder der Bildanalysemethode herangezogen. In Abbildung 5.10 sind drei solcher Bilder zu sehen. Die hier dargestellten Bilder wurden auf derselben Messebene aufgenommen, bei derselben Flüssigkeitsbelastung von $17 \text{ m}^3/(\text{m}^2\text{h})$ und unterschiedlichen Viskositäten (1, 10 und 20 mPas).

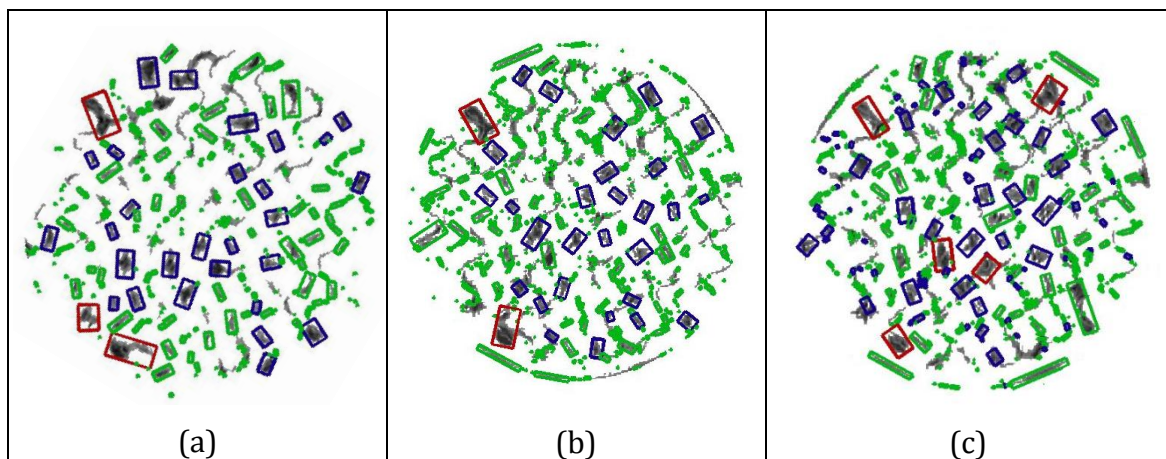


Abbildung 5.10: Bildliche Darstellung der drei Strömungsformen im tomographischen Querschnittsbild der benetzten Packung. Die Feret-Rechtecke sind eingezeichnet über den klassifizierten und zugeordneten Pixeln. Grün: Filmströmung; blau: Zwickelflüssigkeit; rot: geflutete Bereiche. Zu sehen ist der Einfluss der Viskosität in der gleichen Messebene: a: 1 mPas; b: 10 mPas; c: 20 mPas.

Die Zunahme des gesamten Flüssigkeitsinhalts und der Anzahl der gefluteten Bereiche mit steigender Viskosität ist klar in Abbildung 5.10 (vgl a, b und c) zu

sehen. Grün, die Farbe mit der die als Filmströmung identifizierten Pixel gekennzeichnet sind, überwiegt in jedem Bild. Weiterhin ist erkennbar, dass zwar die Anzahl der als Zwickelflüssigkeit klassifizierten Strömungsstrukturen (blaue Rechtecke) ungefähr konstant bleibt, der Anteil der Fläche, die diese Strukturen im gesamten Querschnitt einnehmen, jedoch steigt. Es scheint also, dass der Anteil dieser Fläche proportional zum gesamten Flüssigkeits-hold-up steigt. Dieser Zusammenhang wird in Abbildung 5.11 deutlich. Hier sind die Beiträge jeder Strömungsform zum gesamten Flüssigkeits-hold-up als absolut Werte dargestellt. Die Summe der Werte aller Strömungsformen für einen Betriebspunkt und eine Viskosität ergibt den gesamten Flüssigkeits-hold-up bei den entsprechenden Bedingungen. Der gesamte Flüssigkeits-hold-up in der Packung in Abhängigkeit von Flüssigkeitsbelastung und Viskosität ist in Abbildung 4.7 dargestellt.

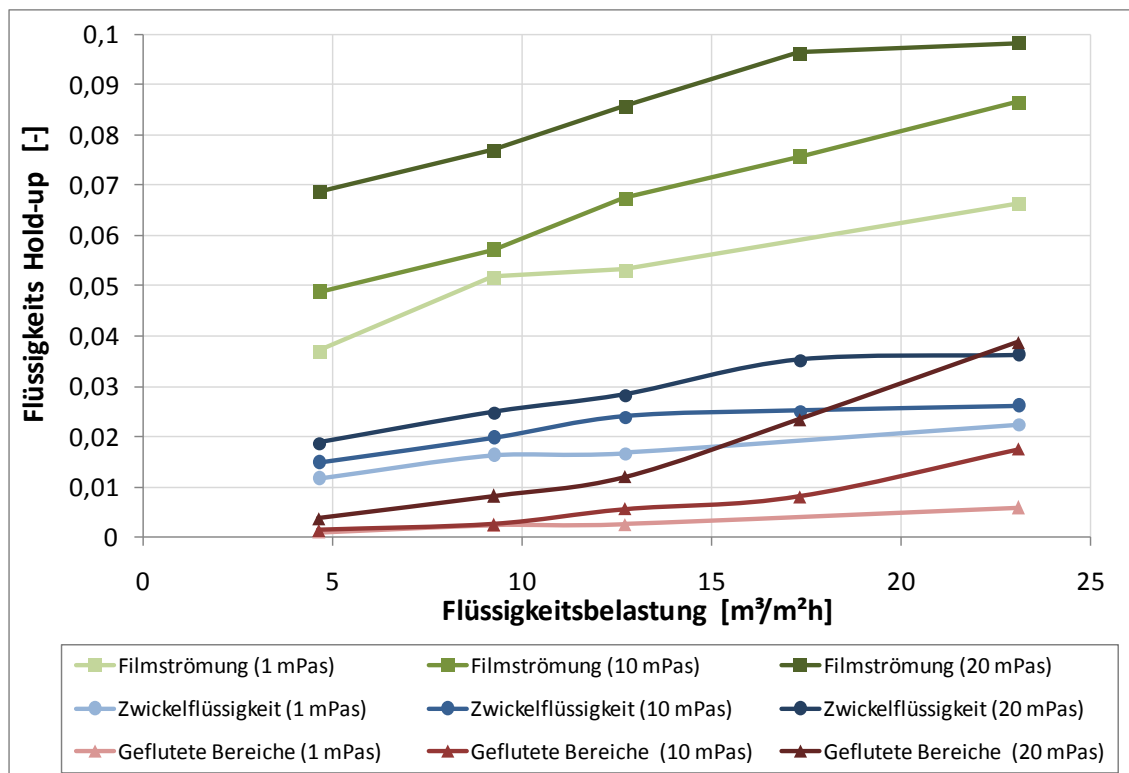


Abbildung 5.11: Absolute Werte des Flüssigkeits-hold-up der jeweiligen Strömungsform in der vermessenen strukturierten Packung als Mittelwert über die Packungshöhe. Dargestellt ist der Einfluss der Flüssigkeitsbelastung und der Viskosität. Grüne Quadrate: Hold-up der Filmströmung; blaue Kreise: Hold-up der Zwickelflüssigkeit; rote Dreiecke: Hold-up der gefluteten Bereiche.

Abbildung 5.11 zeigt, dass der Hold-up jeder Strömungsform sowohl mit steigender Flüssigkeitsbelastung als auch mit steigender Viskosität zunimmt. Dies

liefert wichtige Erkenntnisse insbesondere für die Filmströmung. Zwar sinkt der Anteil der Filmströmung am gesamten Hold-up, aber absolut gesehen führt eine steigende Flüssigkeitsbelastung und eine höhere Viskosität zu mehr Filmströmung innerhalb der Packung. Dadurch steigt die benetzte Oberfläche der strukturierten Packung und die Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit nimmt zu (s. Abbildung 4.11).

Die im Vergleich zum gesamten Flüssigkeits-hold-up überproportionale Steigung der Flüssigkeit in den gefüllten Bereichen erklärt, warum die Zunahme der Phasengrenzfläche flacher verläuft als die Zunahme des Hold-up mit steigender Viskosität und steigender Flüssigkeitsbelastung.

Zusammenfassend lässt die hier angewendete quantitative Analyse der Strömungsmorphologie innerhalb der strukturierten Packung folgende Rückschlüsse zu:

- Die lokale Struktur der Packung (Anzahl von Kontaktpunkten, Übergänge zwischen den Lagen) beeinflusst den axialen Verlauf jeder der drei identifizierten Strömungsformen.
- Filmströmung ist die dominierende Strömungsform. Sowohl eine Steigerung der Flüssigkeitsbelastung als auch eine Erhöhung der Viskosität führen zu mehr Filmströmung und damit zu einer größeren Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit. Allerdings ist der Anstieg im Vergleich zur Zunahme des gesamten Flüssigkeitsinhalts unterproportional, so dass der Anteil am Hold-up bei steigender Viskosität und Flüssigkeitsbelastung sinkt.
- Der Anteil an gefluteten Bereichen wird überproportional im Vergleich zum gesamten Flüssigkeitsinhalt mit steigender Flüssigkeitsbelastung und steigender Viskosität an.
- Der Anteil der Zwickelflüssigkeit am gesamten Flüssigkeitsinhalt bleibt bei allen variierten Parametern konstant und ist nur von der lokalen Packungsstruktur abhängig.

6 Modellierung

Das von Shilkin und Kenig (2005) entwickelte Modell basierend auf hydrodynamischen Analogien ist geeignet Strömungs- und Stofftransportvorgänge in strukturierten Packungen zu beschreiben und wird daher als Grundlage in dieser Arbeit gewählt. Bei den Destillationssystemen, für die das Modell zunächst angewendet wurde, handelt es sich um organische Stoffe mit einer niedrigen Oberflächenspannung und sehr guten Benetzungseigenschaften. Die Annahme einer gleichmäßigen Filmströmung über die Packungsoberfläche ist damit gerechtfertigt.

Bei wässrigen Systeme wird die Packungsoberfläche nicht vollständig benetzt, da die Oberflächenspannung der Flüssigphase hoch ist. Auch der Einfluss der Viskosität auf die Flüssigkeitsströmung ist im Modell nicht implementiert. Wie die Analyse der Strömungsmorphologie in Kapitel 5 zeigt, ist die Annahme einer vorherrschenden Filmströmung für die Beschreibung der Flüssigkeitsströmung nicht ausreichend. Eine genauere Modellierung der Flüssigkeitsströmung ist insbesondere für die Beschreibung von Stofftransport in Systemen mit einem Stofftransportwiderstand auf der flüssigen Seite von Bedeutung. Dies trifft häufig auf Trennaufgaben bei der Absorption und Desorption in Packungskolonnen zu. Aus diesem Grund wird das HA-Modell im Rahmen dieser Arbeit für die Beschreibung des Strömungs- und Trennverhaltens wässriger viskoser Systeme erweitert.

Für die Erweiterung des HA-Modells für viskose Systeme wurden zunächst hydrodynamische Analogien zwischen der realen Flüssigkeitsströmung und vereinfachten fluidodynamischen Elementen gebildet. Dabei wurden die Erkenntnisse aus der Analyse der Strömungsmorphologie (s. Kapitel 5) genutzt. Im folgenden wird die Vorgehensweise erläutert. Anschließend wird das physikalische Modell und die neuen Modellparameter vorgestellt.

6.1 Schlussfolgerungen aus der Bildanalyse

Anhand der Ergebnisse der tomographischen Untersuchungen und insbesondere der Bildanalyse bezüglich der Morphologie der Flüssigkeitsströmung lassen sich wichtige Schlussfolgerungen ziehen, die zur Formulierung von hydrodynamischen Analogien führen. Als Ergebnisse der Bildanalyse können folgende Punkte genannt werden:

1. Die Flüssigkeit strömt über die Packungslagen zum größten Teil in Form von Filmen.
2. Die Packungsoberfläche wird nicht vollständig benetzt.
3. Es gibt Bereiche der Packung, die vollständig mit Flüssigkeit gefüllt sind.
4. An den Kontaktpunkten zwischen zwei Lagen bilden sich Flüssigkeitszwickel aus.

Punkt 1 bestätigt die bisherige Modellierung der Flüssigphase als Filmströmung in Packungskanälen. Neben den benetzten Bereichen gibt es auch Teile der Packung, in denen nur eine Phase vorkommt, entweder nur die Gasphase (Punkt 2) oder nur die flüssige Phase (Punkt 3). Offensichtlich kann in diesen Bereichen kein Stofftransport stattfinden. Wie schon in Kapitel 5.1 diskutiert, werden Flüssigkeitszwickel aus den Strömungen gebildet, die ursprünglich von zwei parallelen Packungslagen stammen, so dass man hier von einer Durchmischung der Flüssigkeit ausgehen kann.

6.2 Physikalisches Modell

Aus den Schlussfolgerungen lässt sich das physikalische Modell der hydrodynamischen Analogien für strukturierte Packungen auf drei Kanaltypen erweitern. Es gibt Kanäle, die benetzt sind und in denen Stoffaustausch zwischen Gas- und Flüssigphase stattfindet, trockene Kanäle (reine Gasströmung) und mit Flüssigkeit gefüllte Kanäle (reine Flüssigkeitsströmung). Aus der Erkenntnis, dass sich Flüssigkeitszwickel an den Kontaktpunkten von zwei Lagen ausbilden und die Flüssigkeit dort offenbar durchmischt wird, ergeben sich neue Mischungspunkte der flüssigen Phase. Das sich daraus ergebende physikalische Modell ist in Abbildung 6.1 dargestellt.

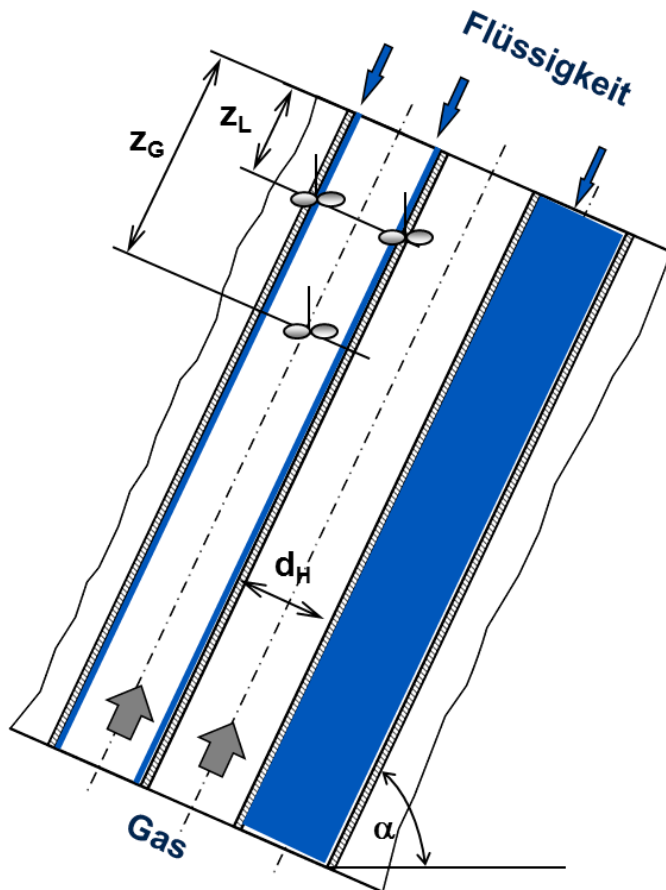


Abbildung 6.1: Erweitertes physikalisches Modell der hydrodynamischen Analogien für die Gas- und Flüssigkeitsströmung in einer strukturierten Packung.

Die ursprüngliche Modellierung der Packung als Bündel zylindrischer Kanäle bleibt grundsätzlich erhalten. Auch die Mischungspunkte der Gasphase bleiben gleich. Neu ist die Berücksichtigung von zwei neuen Kanaltypen: trockene und mit Flüssigkeit gefüllte Kanäle. Der Abstand zwischen den Mischungspunkten der Flüssigströmung ändert sich durch die Erkenntnisse aus der Bildanalyse der tomographischen Messungen.

6.3 Modellparameter

Die Anzahl der gesamten Kanäle ergibt sich aus der Geometrie der Packung (s. auch Kapitel 2.2.3). Gleichzeitig ist sie die Summe aller benetzten (Gas und Flüssigkeit), trockenen (nur Gas) und gefüllten Kanäle(nur Flüssigkeit):

$$N_{HA,ges} = N_{HA,GL} + N_{HA,G} + N_{HA,L} \quad (6.1)$$

Der gesamte Flüssigkeits-hold-up ist definiert als der Anteil des Kolonnenvolumens, das von der Flüssigkeit eingenommen wird.

$$h_L = \frac{V_L}{V_{\text{ges}}} \quad (6.2)$$

Der Flüssigkeitsvolumenstrom verteilt sich nur auf die benetzten und gefüllten Kanäle. Die Analyse der tomographischen Bilder bringt als Ergebnis den gesamten Flüssigkeits-hold-up im Kolonnenquerschnitt.

Anzahl gefluteter Kanäle $N_{HA,L}$

Die Auswertung der Bilder hinsichtlich der Strömungsmorphologie liefert den Anteil der Flüssigkeit, der sich in den gefluteten Bereichen der Packung befindet. Der Anteil der gefüllten Bereiche am gesamten Flüssigkeits-hold-up ist der Quotient aus dem Flüssigkeitsvolumen in den gefüllten Bereichen und dem gesamten Flüssigkeitsvolumen in der Kolonne:

$$h_{L,\text{full}}^A = \frac{V_{L,\text{full}}}{V_L} \quad (6.3)$$

Das Verhältnis der Anzahl der vollständig gefüllten Kanälen zur gesamten Anzahl der Kanäle in der Packung entspricht dem Verhältnis des Volumens, das mit Flüssigkeit gefüllt ist, zum gesamten Packungsvolumen.

$$\frac{N_{HA,L}}{N_{HA}} = \frac{V_{L,\text{full}}}{V_{\text{ges}}} \quad (6.4)$$

Einsetzen von Gl (6.2) und (6.3) in Gl (6.4) liefert die Anzahl der gefluteten Kanäle:

$$N_{HA,L} = h_L \cdot h_{L,\text{full}}^A \cdot N_{HA} \quad (6.5)$$

Durch Einsetzen der Werte für Flüssigkeits-hold-up und des Anteils der gefluteten Kanäle aus der Bildauswertung der tomographischen Messungen wird die Gesamtzahl der mit Flüssigkeit gefüllten Kanäle für jeden Betriebspunkt berechnet.

Anzahl benetzter Kanäle $NC_{G,L}$

Die Anzahl der benetzten Kanäle wird über die Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit, die ebenfalls das Ergebnis der Bildauswertung ist, bestimmt. Das Verhältnis der benetzten Kanäle zur Summe aller Kanäle ist gleich dem Verhältnis der effektiven Austauschfläche zur spezifischen Packungsoberfläche:

$$\frac{a_{GL}}{a_P} = \frac{N_{HA,GL}}{N_{HA}} \quad (6.6)$$

Anzahl trockener Kanäle NC_G

Die Anzahl der trockenen Kanäle wird nach Bestimmung der Anzahl der gefluteten und benetzten Kanäle aus Gleichung (6.1) bestimmt:

$$N_{HA,G} = N_{HA} - (N_{HA,GL} + N_{HA,L}) \quad (6.7)$$

Abstand zwischen den Mischungspunkten

Im ursprünglichen Modell von Shilkin und Kenig (2005) ist der Abstand zwischen den Mischungspunkten der flüssigen Phase die Strecke, die die Flüssigkeit zwischen zwei Faltungskanten der Packungslage zurück gelegt hat. Dabei wird angenommen, dass die gesamte Flüssigkeit durch die Umlenkung an den Kanten durchmischt wird.

Die Analyse der tomographischen Bilder zeigt, dass die Flüssigkeit an den Kontaktpunkten zweier Lagen durchmischt wird, nämlich dort, wo sich Flüssigkeitszwickel ausbilden. Desweiteren zeigt die quantitative Auswertung der tomographischen Bilder, dass im Kolonnenquerschnitt nur ein bestimmter Teil der Flüssigkeit in Form von Flüssigkeitszwickeln vorliegt. Das liegt daran, dass die Flüssigkeit größtenteils in Form von Filmen an der Packungsoberfläche herunter fließt. Betrachtet man nur einen dreieckigen Kanal der strukturierten Packung, sammelt sich nur ein Teil der Flüssigkeit an einem Kontaktpunkt zweier Lagen. Dies ist deutlich auf den tomographischen Bildern zu erkennen. Das bedeutet, dass nicht die gesamte Flüssigkeit nach der Strecke zwischen zwei Kontaktpunkten durchmischt wird, sondern nur der Teil, der als Flüssigkeitszwickel vorliegt. Die Strecke, die die Flüssigkeit in einem Packungskanal zurücklegen muss bis sie

vollständig durchmischt wird, verlängert sich proportional zu dem Anteil der Flüssigkeitszwickel am gesamten Hold-up.

Somit ergibt sich der neue Abstand zwischen zwei Mischungspunkten in der flüssigen Phase aus dem Abstand zweier Kontaktpunkte geteilt durch den Anteil der Flüssigkeit, die als Zwickelflüssigkeit vorliegt (s. Gl. (6.8)). Zwei gegenüberliegende Packungslagen berühren sich an den Spitzen der Faltblätter. Damit ergibt sich der Abstand zwischen den Kontaktpunkten aus der Faltblattgeometrie und dem Neigungswinkel der Lagen (s. Abbildung 2.2).

$$z_L = \frac{\text{Strecke zwischen Kontaktpunkten}}{\text{Holdup Anteil der Flüssigkeitszwickel}} = \frac{b_0}{\sin(2\varphi) \cdot h_{L,\text{full}}^A} \quad (6.8)$$

Der Stofftransport wird nur in den benetzten Kanälen berücksichtigt. An den Mischungspunkten der Flüssigkeit findet ein Ausgleich der radialen Konzentrationsprofile der flüssigen Phase statt (s. Gl. (2.25)).

In den trockenen und vollständig mit Flüssigkeit gefüllten Kanälen findet kein Stofftransport statt. Somit bleibt die Konzentration in der jeweiligen Phase unverändert gleich den Eintrittsbedingungen. Axiale Konzentrationsprofile werden als Durchschnittswert jeder Phase gewichtet mit der Anzahl der Kanäle berechnet. Dafür werden zunächst integrale Mittelwerte über den Radius, entsprechend Gleichungen (2.25) berechnet, die die axialen Profile nur in den benetzten Kanälen darstellen. Um den Mittelwert über den gesamten Kolonnenquerschnitt zu ermitteln, wird für jede Phase und für jeden axialen diskreten Punkt ein Mittelwert der Konzentration der jeweiligen Komponente gebildet:

$$\bar{C}_{L,K}^*(x) = \frac{\bar{C}_{L,K}(x) \cdot NC_{G,L} + C_{L,K}^0 \cdot NC_L}{NC_{G,L} + NC_L} \quad (6.9)$$

$$\bar{C}_{G,K}^*(x) = \frac{\bar{C}_{G,K}(x) \cdot NC_{G,L} + C_{G,K}^0 \cdot NC_G}{NC_{G,L} + NC_G} \quad (6.10)$$

Der bestehende Fortran Programmcode (s. Kapitel 2.2.3) wurde durch die hier vorgestellten Modellparameter erweitert.

7 Stofftransportmessungen und Modellvalidierung

Das HA-Modell liefert Konzentrationsprofile und erlaubt damit die Berechnung der Trennleistung einer Kolonne. Für die Validierung des Modells werden demnach Stofftransportmessungen benötigt. Da in der Literatur keine experimentellen Daten zu Stofftransportmessungen in Packungskolonnen, bei denen alleine die Viskosität variiert wurde, gefunden wurden, wurden im Rahmen dieser Arbeit eigene Stofftransportmessungen durchgeführt. Ein Versuchsstand, der eine berieselte Kolonne mit der benötigten Peripherie umfasst, wurde aufgebaut und in Betrieb genommen. Im Folgenden wird das in dieser Arbeit verwendete Stoffsystem, der Versuchsaufbau und die Durchführung der Stofftransportmessungen erläutert. Die Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen zum Einfluss der Viskosität auf den Stofftransport werden gezeigt und diskutiert. Anschließend werden die Simulationsergebnisse des erweiterten HA-Modells mit den experimentellen Daten verglichen und das Modell validiert. Die Ergebnisse wurden in Große Daldrup et.al. (2109) veröffentlicht. Teile des Inhaltes dieses Kapitels sind aus der Studienarbeit von Knoke (2012) entnommen worden.

7.1 Stofftransportmessungen

7.1.1 Verwendetes Stoffsystem

Bei der Auswahl eines geeigneten Stoffsystems für die Validierung des erweiterten HA-Modells musste berücksichtigt werden, dass es sich um ein System mit einem Stofftransportwiderstand auf der flüssigen Seite handelt. Nur so kann durch einen Vergleich zwischen experimentellen und simulierten Werten beurteilt werden, ob die Erweiterung des HA-Modells in Bezug auf die Flüssigkeitsströmung den Einfluss auf den Stofftransport richtig wieder gibt. Weiterhin sollte eine Änderung

der Viskosität der flüssigen Phase keine zusätzliche Änderung der Oberflächenspannung mit sich bringen, da dies einen großen Einfluss auf die Benetzungseigenschaften hätte.

Unter diesen Aspekten wurde die Desorption von CO_2 aus mit CO_2 gesättigtem Wasser sowie wässrigen Glycerin-Lösungen als Stoffsystem für die Modellvalidierung ausgewählt. Die Zusammensetzung der flüssigen Phase ist somit bei den Stofftransportmessungen fast identisch mit der Zusammensetzung bei den tomographischen Untersuchungen. Dadurch ist die Anwendbarkeit des erweiterten Ha-Modells und die Verwendung der Ergebnisse aus der Bildanalyse der XCT Bilder als Parameter im HA-Modell möglich.

Als Gasphase wurde Luft im Gegenstrom verwendet, in die das CO_2 aus der flüssigen Phase desorbiert.

7.1.2 Versuchsaufbau und –durchführung

Der verwendete experimentelle Versuchsaufbau entspricht in vielen Teilen dem Versuchsaufbau in Liège: es wurde wie bei den tomographischen Messungen eine Kolonne mit einem Durchmesser von 100mm eingesetzt. Die Kolonne ist mit 4 Packungselementen des Typ MellapakPlus.500Y gefüllt. Dieser Packungstyp ist identisch mit der Packung, die bei den Untersuchungen mit dem klassischen Tomographen in Liège verwendet wurde. Der prinzipielle Versuchsaufbau ist in Abbildung 7.1 dargestellt. Die Flüssigkeit wird in einem Behälter vorgelegt (2), zum Kopf der Kolonne (1) gepumpt und auf dem Weg in einem Pufferbehälter mit CO_2 begast (3). Der Flüssigkeitsvolumenstrom wird mit Hilfe eines Rotameters (4) gemessen und eingestellt. Die Flüssigkeit wird durch einen Flüssigkeitsverteiler mit 13 Tropfstellen über den Packungsquerschnitt verteilt (s. Abbildung 7.2a). Die Flüssigkeit rieselt an der Packung herunter und befindet sich in Phasenkontakt mit der im Gegenstrom geführten Luft (5), die am Kolonnensumpf eingespeist wird. Der Gasvolumenstrom wird ebenfalls über einen Rotameter eingestellt. Am Kolonnensumpf läuft die Flüssigkeit in den Vorlagebehälter zurück.

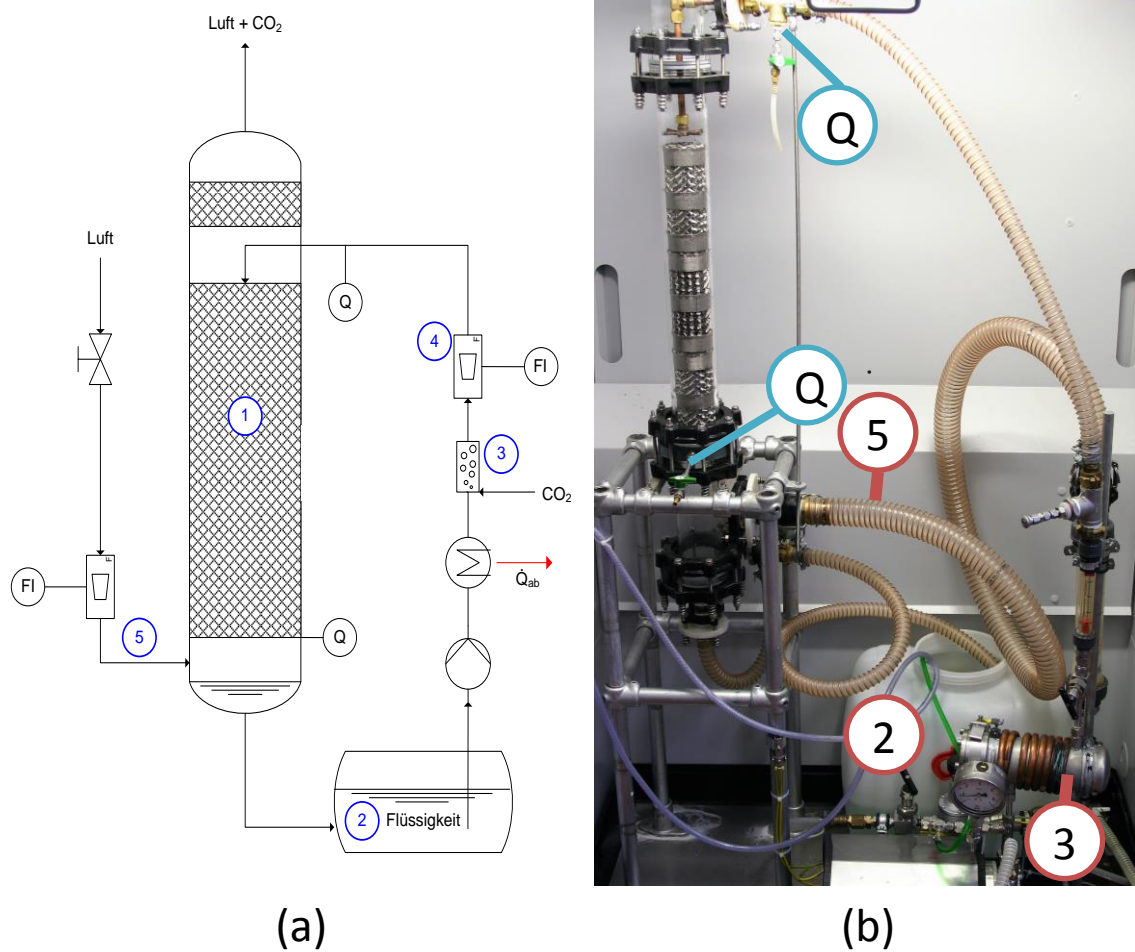


Abbildung 7.1: schematische Darstellung (a) und Foto (b) des verwendeten Versuchsaufbaus für die Desorptionsmessungen von CO₂ aus Wasser und wässrigen Glycerin-Lösungen. 1 - Kolonne; 2 - Vorlagebehälter für Flüssigkeit; 3 - Pufferbehälter für CO₂ Sättigung; 4 - Flüssigkeitsrotameter; 5 - Gaseintritt in Kolonne; Q - Probenahmestellen.



Abbildung 7.2: Foto des Flüssigkeitsverteilers (a) und des Probenahme­flansches (b).

Das experimentelle Set-up beinhaltet weiterhin zwei Stellen zur Probenahme der flüssigen Phase (Indikator Q in Abbildung 7.1): am Kolonnenkopf und -sumpf. Am Kolonnenkopf kann Flüssigkeit direkt aus dem Zulauf zum Flüssigkeitsverteiler als Seitenstrom über einen Schlauch an einem Dreiwegehahn entnommen werden. Am Sumpf der Kolonne befindet sich direkt unterhalb der Packung eine Probenahmeverrichtung (s. Abbildung 7.2b). Diese besteht aus einem Flansch, in dem mittig ein ca. 8 cm langes Halbrohr befestigt ist. Der Flansch wird so unterhalb der Packung aufgebracht, dass sich das Röhrchen um 90° versetzt zu den Packungslagen orientiert ist und die geöffnete Seite des Halbrohres nach oben zeigt. So wird von jeder Lage etwas von der abfließenden Flüssigkeit aufgefangen und eine repräsentative Flüssigkeitsprobe über den gesamten Packungsquerschnitt entnommen. Das Gitter unterhalb des Halbrohres ermöglicht es den Probenahmeplanche auch für Kolonnen, die mit losen Füllkörpern gefüllt sind, zu verwenden.

Bei der Probenahme wird Natronlauge in einem Behälter vorgelegt. Flüssigkeit aus der Probenahmestelle wird erst abgeführt, um die im Schlauch stagnierte Menge zu entfernen. Anschließend wird die Flüssigkeit aus der Kolonne über einen Schlauch unter Spiegel in die Natronlauge geleitet. Sobald die beiden Flüssigkeiten in Kontakt kommen, reagiert das CO₂ mit der Natronlauge und wird chemisch gebunden. Die Natronlauge n-lösung wird vor und nach der Probenahme titriert. Dadurch lässt sich die verbrauchte Natronlauge menge bestimmen und damit die CO₂-Konzentration in der Flüssigkeitsprobe zurückrechnen.

Um eine möglichst hohe CO₂ Konzentration in der flüssigen Phase zu erreichen, wird CO₂ in die Flüssigkeit in einem Pufferbehälter (s. Abbildung 7.1) eingepertlt. Dabei entsteht eine reine CO₂ Gasphase in dem Pufferbehälter. Der Flüssigkeitsstand kann über ein Schauglas kontrolliert werden. So wird eine gute Vermischung der flüssigen Phase und ein hoher Partialdruck von CO₂ in der Gasphase sichergestellt. Um die Lösungswärme abzuführen, wird der Pufferbehälter mit Kühlwasser über eine Vollrohrschalange auf dem Mantel von außen gekühlt.

Die flüssige Phase setzt sich hauptsächlich aus Wasser (H₂O) und Glycerin (C₃H₈O₃) zusammen, wobei die Anteile an Glycerin von der jeweils eingestellten Viskosität abhängen. Da sich mit dem Anteil an Glycerin auch die Dichte der Flüssigkeit leicht

ändert (s. Tabelle 4.2), muss das Rotameter für jede Wasser-Glycerin-Mischung durch Auslitern kalibriert werden.

Die Versuche wurden bei unterschiedlichen Flüssigkeitsbelastungen (ca. 5, 10, 15, 20 und 25 m³/(m²h) und verschiedenen Gasbelastungen (0,64 und 1,02 Pa^{0,5}) durchgeführt. Diese Betriebsbedingungen wurden bei drei Viskositäten der flüssigen Phase (1, 10 und 20 mPas) eingestellt und die Konzentrationen am Kopf und Sumpf der Kolonne gemessen.

7.1.3 Ergebnisse der Stofftransportmessungen

Eine Übersicht der gemessenen CO₂ Konzentrationen in Abhängigkeit der Betriebsbedingungen und Viskosität ist in Tabelle 7.1 gegeben.

Tabelle 7.1: Messwerte der CO₂ Konzentrationen am Kolonnenkopf und -sumpf bei den untersuchten Betriebsbedingungen und Viskositäten.

		1 mPas		10 mPas		20 mPas	
F-Faktor	Flüssigkeits- belastung	X _{Kopf}	X _{Sumpf}	X _{Kopf}	X _{Sumpf}	X _{Kopf}	X _{Sumpf}
[Pa^0.5]	[m³/m²h]	[mmol/mol]					
0,64	5,1	0,404	0,081	0,524	0,313	0,397	0,317
	10,2	0,433	0,101	0,354	0,261	0,434	0,374
	14,0	0,474	0,130	0,302	0,242	0,486	0,422
	19,1	0,500	0,147	0,370	0,331	0,300	0,279
	25,5	0,525	0,201	0,472	0,437	0,451	0,421
1,02	5,1	0,361	0,096	0,367	0,297	0,417	0,373
	10,2	0,480	0,152	0,275	0,242	0,489	0,430
	14,0	0,550	0,165	0,322	0,279	0,414	0,381
	19,1	0,456	0,147	0,489	0,439	0,485	0,462
	25,5	0,407	0,131	0,400	0,367	0,436	0,415

Um den Einfluss der variierten Parameter auf den Stofftransport zu bewerten wurde die Desorptionsrate DR aus den gemessenen Konzentrationen berechnet. Diese ist definiert als der Anteil der desorbierten Menge an CO₂ zur gesamten, in den Prozess eingetragenen Menge CO₂. Es gilt:

$$DR \equiv \frac{L \cdot (X_{\text{Kopf}} - X_{\text{Sumpf}})}{L \cdot X_{\text{Kopf}}} = \frac{X_{\text{Kopf}} - X_{\text{Sumpf}}}{X_{\text{Kopf}}} \approx \frac{X_{\text{Kopf}} - X_{\text{Sumpf}}}{X_{\text{Kopf}}} \quad (7.1)$$

In Abbildung 7.3 und Abbildung 7.4 sind die berechneten Werte der CO₂-Desorptionsraten bei verschiedenen Viskositäten in Abhängigkeit der Flüssigkeitsbelastung aufgetragen. In Abbildung 7.3 sind die Ergebnisse der Messungen bei einer Gasbelastung von $f=0,64 \text{ Pa}^{0,5}$ und in Abbildung 7.4 bei einer Gasbelastung von $f=1,02 \text{ Pa}^{0,5}$ dargestellt.

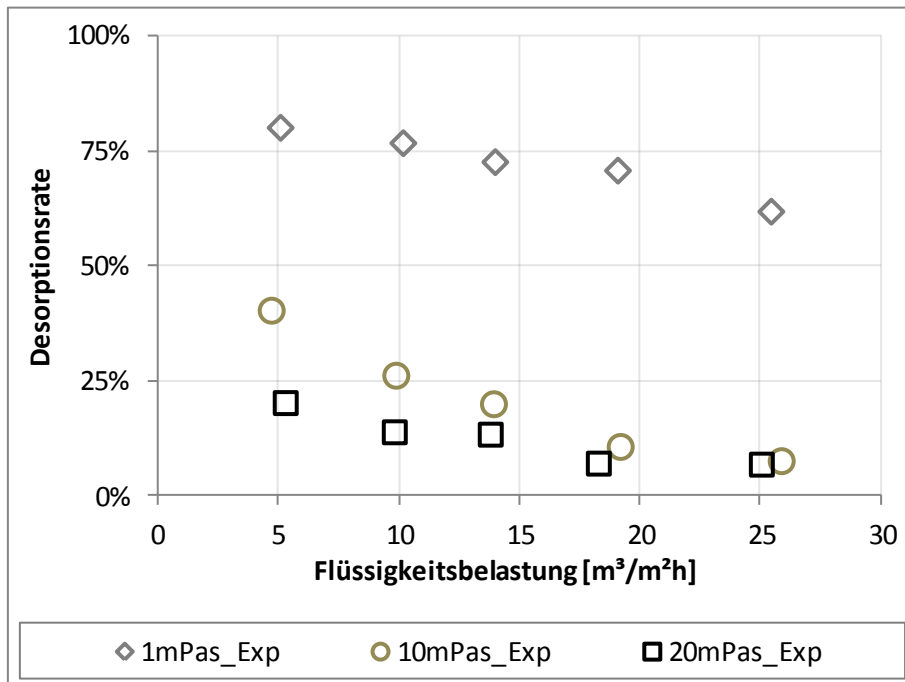


Abbildung 7.3: Experimentelle Ergebnisse der Stofftransportmessungen: Desorptionsrate bei unterschiedlicher Viskosität der flüssigen Phase in Abhängigkeit der Flüssigkeitsbelastungen bei einem F-Faktor von $f=0,64 \text{ Pa}^{0,5}$.

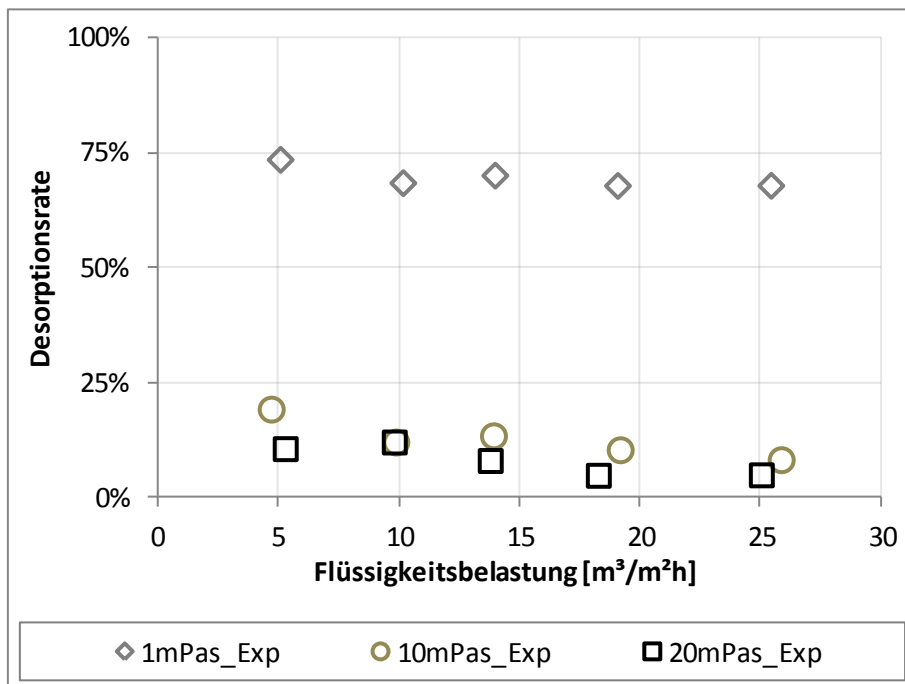


Abbildung 7.4: Experimentelle Ergebnisse der Stofftransportmessungen: Desorptionsrate bei unterschiedlicher Viskosität der flüssigen Phase in Abhängigkeit der Flüssigkeitsbelastungen bei einem F-Faktor von $f=1,02 \text{ Pa}^{0,5}$.

Mit steigender Viskosität sinkt die Desorptionsrate wie in Abbildung 7.3 und 7.4 deutlich zu sehen ist. Damit wird der negative Einfluss hoher Viskosität auf die Trennleistung eindeutig gezeigt. Insbesondere der Unterschied zwischen den Desorptionsraten bei einer Viskosität von 1mPas und bei 10mPas ist sehr stark. Bei einer Erhöhung der Viskosität von 10 mPas auf 20 mPas sinkt die Desorptionsrate zwar immer noch deutlich, aber in der Tendenz weniger stark als bei der Erhöhung von 1 mPas auf 10 mPas. Auch durch eine steigende Flüssigkeitsbelastung sinkt die Desorptionsrate. Der Einfluss der Flüssigkeitsbelastung ist schwächer als der Einfluss der Viskosität. Die Gasgeschwindigkeit hat zumindest in dem untersuchten Bereich keinen großen Einfluss auf die Trennleistung.

Die Auswertung der tomographischen Bilder zeigt, dass sowohl mit steigender Viskosität als auch mit steigender Flüssigkeitsbelastung die Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit größer wird (vgl. Abbildung 4.11). Trotzdem sinkt die Trennleistung. Das führt zu der Schlussfolgerung, dass der Stofftransport in dem untersuchten Stoffsystem durch andere Phänomene als nur durch die

Phasengrenzfläche dominiert wird. Die Änderung der Viskosität geht in den Diffusionskoeffizienten ein (s. Gl. 6.19). Bei einer höheren Viskosität wird der Diffusionskoeffizient kleiner. Des Weiteren steigt die Filmdicke mit höherer Viskosität und höherer Flüssigkeitsbelastung. Dadurch wird der Stofftransport ebenfalls langsamer.

Die Analyse der Strömungsmorphologie auf Basis der tomographischen Messungen hat gezeigt, dass ein signifikanter Teil der Flüssigkeitsströmung sich in gefüllten Bereichen zwischen den Packungslagen befindet. In diesen Bereichen ist die Packung "verstopft" und die Flüssigkeit nimmt nicht mehr am Stoffaustausch teil. In diesem Zusammenhang ist eine erneute Bewertung von Abbildung 5.9 und Abbildung 5.11 sinnvoll: sowohl die absolute Flüssigkeitsmenge als auch der Anteil am Flüssigkeitsinhalt der gefüllten Bereiche steigt mit steigender Flüssigkeitsbelastung und steigender Viskosität. Der Anteil an gefüllten Bereichen steigt stärker mit steigender Viskosität als mit steigender Flüssigkeitsbelastung. Auch auf die Desorptionsrate hat die Viskosität einen höheren Einfluss als die Flüssigkeitsbelastung. Dies lässt die Schlussfolgerung zu, dass der Anteil an gefüllten Bereichen einen Hauptbeitrag zu der Verschlechterung des Stofftransports mit steigender Viskosität leistet.

7.2 Modellvalidierung

7.2.1 Stoffdaten für das HA-Modell

Im Rahmen dieser Arbeit wird das HA-Modell zur Beschreibung der Desorption von CO₂ aus Wasser und wässrigen Glycerin-Lösungen bei Umgebungsdruck angewendet. In dem HA-Modell benötigte Stoffdaten sind die Dichten und die Viskosität beider Phasen sowie die Oberflächenspannung der Flüssigkeit. Des Weiteren gehen die Diffusionskoeffizienten, Aktivitäts- und Henrykoeffizienten in die Berechnung des Stofftransports ein. Die Stoffdaten werden als Funktionen in Fortran-Subroutinen in dem Modellcode implementiert.

Bei den Stofftransportmessungen wurde Luft als Gasstrom verwendet. Luft besteht hauptsächlich aus Stickstoff. Bei der Simulation der CO₂ Desorption aus Wasser und Wasser-Glycerin Lösungen muss die Konzentration von CO₂ und Wasser in der Gasphase berücksichtigt werden. So wird die Gasphase in den Simulationen als Stickstoffstrom mit einer CO₂-Konzentration von 0,004 Mol-% (übliche Konzentration in der Luft) und einer H₂O-Konzentration von 0,4 Mol-% (durchschnittliche Luftfeuchtigkeit) beschrieben. Bei den untersuchten Betriebsbedingungen kann die Gasphase als ideal angenommen werden. Die Dichte des Gases kann demnach aus dem idealen Gasgesetz bestimmt werden:

$$\rho_G = \frac{P \cdot M_m}{R \cdot T} \quad (7.2)$$

Die mittlere Molmasse M_m errechnet sich aus der Molmasse M_i der Reinstoffe und den Molanteilen der einzelnen Komponenten in der Gasphase:

$$M_m = \sum_{i=1}^n y_i \cdot M_i \quad (7.3)$$

Die Berechnung der Viskosität der Gasmischung erfolgt nach der Methode von Wilke (Poling et al., 2001):

$$\mu_G = \frac{\sum_{i=1}^n y_i \cdot \mu_i}{\sum_{j=1}^n y_j \cdot \Phi_{ij}} \quad (7.4)$$

Die Bestimmung des Parameters Φ_{ij} erfolgt nach folgender Gleichung (Poling et al., 2001):

$$\Phi_{ij} = \left(\frac{M_j}{M_i} \right)^{0,5} = \Phi_{ji}^{-1} \quad (7.5)$$

Die Reinstoffviskositäten der Komponenten in der Gasphase werden in Abhängigkeit von der Temperatur nach folgender Gleichung bestimmt (VDI, 2005):

$$\mu_G = A_G + B_G T + C_G T^2 + D_G T^3 + E_G T^4 \quad (7.6)$$

Die für die Gleichung benötigten Parameter sind in Tabelle 7.2 gegeben.

Tabelle 7.2: Parameter für die Berechnung der Reinstoffviskosität der Gasphasenkomponenten (VDI, 2005):

	A_G	B_G	C_G	D_G	E_G
H₂O	-1.0718E-06	3.5E-08	3.58E-12	0	0
CO₂	-1.8024E-06	6.6E-08	-3.7E-11	1.586E-14	3E-18
N₂	-0.00000102	7.5E-08	-5.9E-11	3.23E-14	6.73E-18

Die physikalischen Eigenschaften der flüssigen Phase (s. Tabelle 7.3) werden durch die Konzentration von Glycerin in Wasser beeinflusst:

Tabelle 7.3: Physikalische Eigenschaften der verwendeten Lösungen

	Glycerin-Anteil		Viskosität	Dichte	Oberflächenspannung
	[mol/mol]	[kg/kg]	[mPas]	[kg/m ³]	[N/m]
Wasser	0.000	0.000	0.98	998.20	0.0738
Wasser-Glycerin 1	0.216	0.585	10.02	1152.14	0.0717
Wasser-Glycerin 2	0.298	0.685	19.96	1178.39	0.0709

Für die Bestimmung effektiver Diffusionskoeffizienten existieren verschiedene Ansätze. Ein Überblick ist in Poling et al. (2001) dargestellt. Dabei unterscheiden sich die Berechnungsmethoden für die Gas- und Flüssigphase.

Für die Berechnung der effektiven Diffusionskoeffizienten der Gasphase werden zunächst die binären Diffusionskoeffizienten benötigt. Bei niedrigen Drücken kann

für die Bestimmung der binären Diffusionskoeffizienten $D_{ij,G}$ in der Gasphase eine empirische Korrelation von Fuller angewendet werden (Poling et al., 2001):

$$D_{ij,G} = \frac{0,0143 \cdot T^{1,75}}{P \cdot \sqrt{M_{ij}} \cdot \left[(\chi_v)_i^{1/3} + (\chi_v)_j^{1/3} \right]^2} \quad (7.7)$$

Der Volumenparameter χ ist für die einzelnen Komponenten der Gasphase in Tabelle 7.4 gegeben. Die binäre Molmasse der Komponenten M_{ij} wird nach folgender Gleichung bestimmt (Poling et al., 2001):

$$M_{ij} = 2 \cdot \left[\left(\frac{1}{M_i} \right) + \left(\frac{1}{M_j} \right) \right]^{-1} \quad (7.8)$$

Aus den binären Diffusionskoeffizienten werden die effektiven Diffusionskoeffizienten $D_{eff,i,G}$ in der Gasphase nach dem Ansatz von Wilke berechnet (Taylor und Krishna, 1993):

$$D_{eff,i,G} = \frac{1 - y_i}{\sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^n \frac{y_j}{D_{ij,G}}} \quad (7.9)$$

Für die Komponenten der flüssigen Phase werden zunächst binäre Diffusionskoeffizienten bei unendlicher Verdünnung berechnet, aus denen danach binäre Koeffizienten in konzentrierter Lösung bestimmt werden. Die Berechnung der binären Diffusionskoeffizienten D_{ij,L^∞} bei unendlicher Verdünnung erfolgen nach der Methode von Wilke-Chang, die eine empirische Modifikation der Stokes-Einstein-Beziehung ist (Poling et al., 2001):

$$D_{ij,L^\infty}^\infty = 7,4 \cdot 10^{-15} \cdot \frac{(\phi_j \cdot M_j)^{0,5} \cdot T}{\mu_j \cdot V_i^{0,6}} \quad (7.10)$$

Die für diese Gleichung benötigten Parameter sind in Tabelle 7.4 aufgeführt.

Tabelle 7.4: Parameter für die Berechnung der Diffusionskoeffizienten (Poling et al., 2001).

	Molmasse M_i [kg kmol ⁻¹]	Volumenparameter χ_v [-]	Molares Volumen bei Normalsiedepunkt V_i [m ³ mol ⁻¹]	Assoziationsfaktor ϕ [-]
H₂O	18,02	13,1	21	2,6
CO₂	44,01	26,9	35	1
N₂	28,01	18,5	14	1
C₃H₈O₃	92,09	-	87	1

Für die Berechnung der Diffusionskoeffizienten $D_{ij,L}$ in konzentrierter Lösung wird der von erweiterte Vignes Ansatz verwendet (Taylor und Krishna, 1993):

$$D_{ij,L} = \left(D_{ij,L}^{\infty} \right)^{\frac{1+x_j-x_i}{2}} \cdot \left(D_{ji,L}^{\infty} \right)^{\frac{1+x_i-x_j}{2}} \quad (7.11)$$

Die Umrechnung der binären Diffusionskoeffizienten auf effektive Diffusionskoeffizienten in der flüssigen Phase erfolgt, wie auch die Berechnung der effektiven Diffusionskoeffizienten von Komponenten in der Gasphase, über den Ansatz von Wilke. Für Komponenten in der flüssigen Phase gilt somit (Taylor und Krishna, 1993):

$$D_{eff,i,L} = \frac{1-x_i}{\sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^n \frac{x_j}{D_{ij,L}}} \quad (7.12)$$

Die Berechnung des Phasengleichgewichts erfolgt nach dem Henry-Gesetz. Bei den Betriebsbedingungen des untersuchten Stoffsystems kann die Gasphase als ideal betrachtet werden. Die Nichtidealität von Wasser wird durch den Aktivitätskoeffizienten berücksichtigt. Das modifizierte Henry'sche Gesetz nimmt somit folgende Form an (Goeddecke, 2006.):

$$y_i = \frac{\gamma_i \cdot H_i}{P_{ges}} \cdot x_i \quad (7.13)$$

Der Aktivitätskoeffizient von Wasser kann über die Aktivität berechnet werden, die das Produkt aus Stoffmengenanteil und Aktivitätskoeffizient ist:

$$a_w = x_w \cdot \gamma_w \quad (7.14)$$

Die Aktivität von Wasser wird nach der Gibbs-Duhem-Gleichung berechnet (Edwards et al., 1978). Die benötigten Parameter zur Berechnung der Aktivität von Wasser für das untersuchte Stoffsystem sind in Brettschneider et al. (2004) gegeben.

Für die Berechnung des Henry-Koeffizienten der Komponenten Wasser und Stickstoff wird folgende Gleichung benutzt (Edwards et al., 1978; Brettschneider et al., 2004):

$$H_i = \exp \left(a_H + \frac{b_H}{T} + c_H \cdot \ln T + d_H \cdot T \right) \quad (7.15)$$

die Koeffizienten sind:

Tabelle 7.5: Koeffizienten zur Berechnung des Henry-Koeffizienten mit Gleichung (7.15).

	a_H	b_H	c_H	d_H
H₂O	66,41843682	-7362,7	-9	0,006952
N₂	-10.3495	-2953.5	10.396	-0.054006

Der Henry Koeffizient von CO₂ wird durch den Glycerinanteil in der Wasser-Glycerin Mischung beeinflusst. Kiss et. al. (1937) haben die Löslichkeit von CO₂ in einem Wasser-Glycerin-Gemisch experimentell untersucht und geben den Henrykoeffizienten als Verhältnis von Flüssigphasenkonzentration zum Partialdruck in der Gasphase an. Gleichung (7. 16) ist eine Anpassung an die experimentellen Daten (s. Abbildung 7.5), die die Abhängigkeit des Henrykoeffizienten von CO₂ in einem Wasser-Glycerin-Gemisch von Temperatur und Flüssigkeitszusammensetzung beschreibt.

$$k_H^{-1} = (a \cdot T_c + b)w_{Gly}^2 + (c \cdot T_c + d)w_{Gly} + (e \cdot T_c + f) \quad (7.16)$$

Die Parameter in Gleichung (7.16) sind:

Tabelle 7.6: Parameter zur Berechnung des Henrykoeffizienten für CO₂ nach Gleichung (7. 16)

a	b	c	d	e	f
-0,041	2,882	0,038	3,414	0,065	1,304

Für die Anwendung in Gleichung (7.13) wird der Henry-Koeffizient wie folgt umgerechnet:

$$H_i = \frac{\rho_{L,m}}{M_{L,m} \cdot k_{H,i}} \quad (7.17)$$

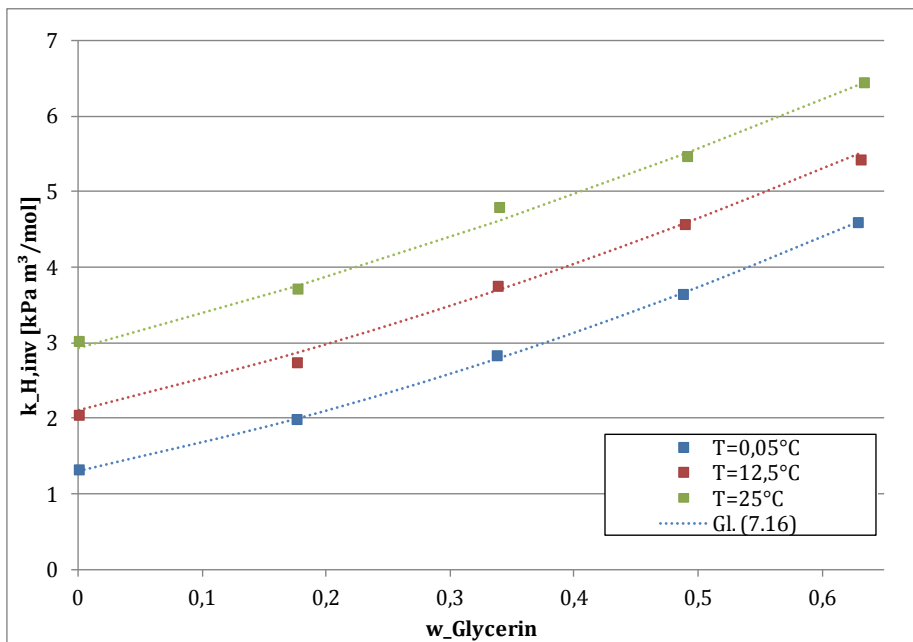


Abbildung 7.5: Experimenteller Henry Koeffizient von CO₂ in Wasser-Glycerin-Mischungen und Anpassung durch Gleichung (7. 16).

7.2.2 Simulationsergebnisse und Modellvalidierung

Um zu prüfen, ob das erweiterte HA-Modell in der Lage ist die experimentell ermittelte Trennleistung viskoser wässriger Systeme korrekt wiederzugeben, werden die experimentellen Betriebspunkte mit dem HA-Modell nachsimuliert.

Zunächst wird aus den geometrischen Daten der Packung der hydraulische Durchmesser und die Gesamtanzahl der Kanäle im HA-Modell nach Gleichung (2.4) ermittelt. Die Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit und die Anteile der Strömungsformen am Flüssigkeits-hold-up, die durch die Bildanalyse der tomographischen Messungen ermittelt wurden, dienen als Eingangsparameter. Aus dem Anteil der gefüllten Bereiche am Hold-up wird die Anzahl der gefüllten Kanäle nach Gleichung (6.5) ermittelt. Von der Gesamtanzahl der Packungskanäle werden die gefüllten Kanäle abgezogen. Die Anzahl der trockenen und benetzten Kanäle wird auf Basis der Phasengrenze zwischen Gas und Flüssigkeit berechnet (s. Gleichungen (6.6) und (6.7)). Der Abstand zwischen den Mischungspunkten der flüssigen Phase ergibt sich aus der Packungsgeometrie und dem Anteil der Zwickelflüssigkeit am Flüssigkeits-hold-up (s. Gleichung (6.8)). Des Weiteren dienen die Betriebsparameter des jeweiligen Messpunkts (Temperatur, Druck, Packungsgeometrie, Flüssigkeits- und Gasbelastung) sowie die Zusammensetzung der Gas- und Flüssigphase als Eingangsgrößen für das HA-Modell.

Nach der Berechnung der fluiddynamischen Parameter wie der Filmdicke und der Geschwindigkeitsprofile in beiden Phasen werden die Stofftransportgleichungen wie in Kapitel 2.2.3 und Shilkin (2007) beschrieben numerisch gelöst. Die radialen Konzentrationsprofile in den benetzten Kanälen werden gemittelt, um axiale Profile zu erhalten. Die Konzentration in der flüssigen Phase wird mit der unveränderten Konzentration in den gefüllten Kanälen gemittelt, wobei die Anzahl des jeweiligen Kanaltyps berücksichtigt wird. Das gleiche Vorgehen wird für die Konzentration der Gasphase der benetzten Kanäle und die trockenen Kanälen angewendet. Das Ergebnis für jeden Betriebspunkt sind axiale Konzentrationsprofile für die Gas- und Flüssigphase.

Als Vergleichsparameter zwischen Simulation und Experiment wird die Desorptionsrate gewählt (s. Gleichung (7.1)). In Abbildung 7.6 und in Abbildung 7.7 sind die jeweils aus Experiment bzw. Simulation berechneten Werte der CO₂-

Desorptionsrate bei verschiedenen Viskositäten in Abhängigkeit von der Flüssigkeitsbelastung vergleichend aufgetragen. In Abbildung 7.6 sind die Ergebnisse der Messungen und Simulationen bei einer Gasbelastung von $f=0,64$ $\text{Pa}^{0,5}$ und in Abbildung 7.7 bei einer Gasbelastung von $f=1$ $\text{Pa}^{0,5}$ dargestellt.

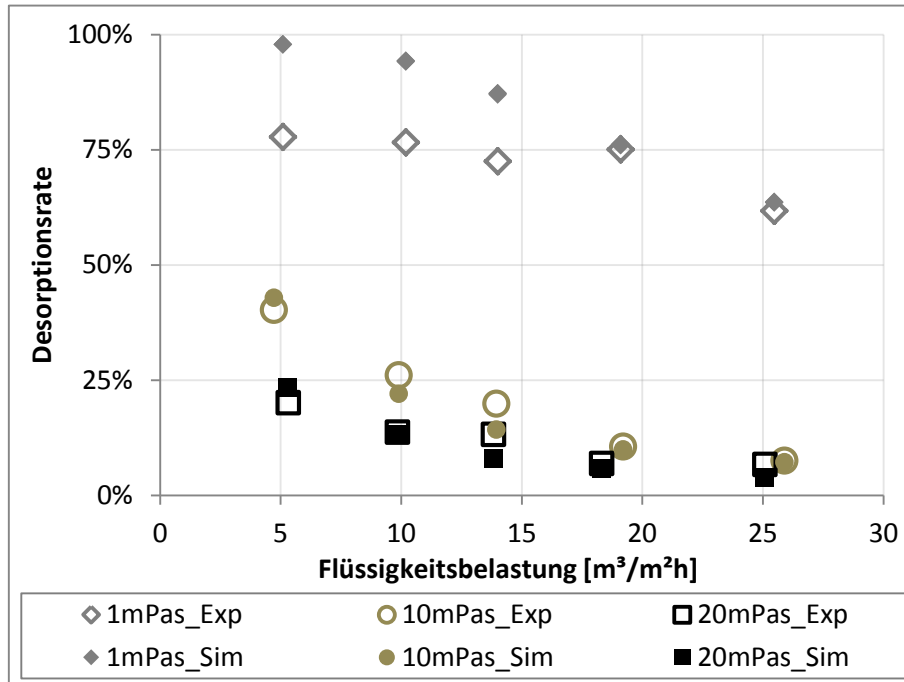


Abbildung 7.6: Vergleich der simulierten und experimentellen Desorptionsrate bei verschiedenen Flüssigkeitsbelastungen bei einem F-Faktor von $f=0,64$.

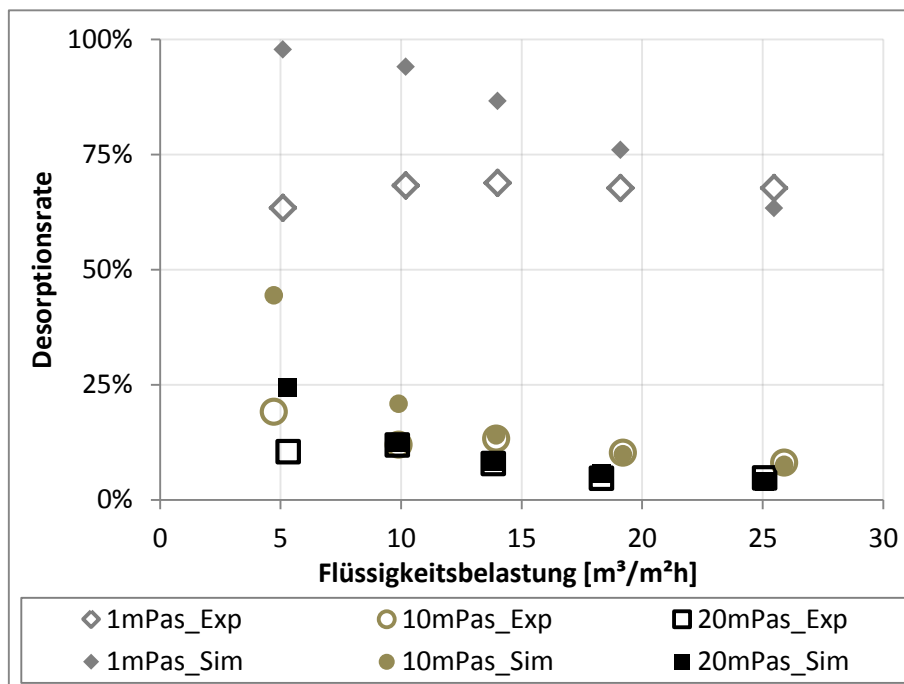


Abbildung 7.7: Vergleich der simulierten und experimentellen Desorptionsrate bei verschiedenen Flüssigkeitsbelastungen bei einem F-Faktor von $f=1$.

Eine insgesamt gute Übereinstimmung zwischen den experimentellen und den simulierten Werten ist zu sehen. Insbesondere bei den höheren Viskositäten von 10 und 20mPas konnte die Desorptionsrate mit dem HA-Modell für beide Gasbelastungen gut vorhergesagt werden. Der Einfluss der Viskosität auf den Stofftransport wird von dem Modell richtig wiedergegeben.

Andererseits sind signifikante Abweichungen zwischen Experiment und Simulation bei kleinen Flüssigkeitsbelastungen und einer Viskosität von 1mPas zu beobachten. Besonders bei der höheren Gasbelastung (s. Abbildung 7.7) ist eine große Abweichung zwischen simulierten und experimentellen Werten bei einer Viskosität von 1mPas zu erkennen. Offensichtlich wird die Trennleistung im Bereich niedriger Flüssigkeitsbelastungen mit dem Modell überschätzt. Bei diesen Betriebsbedingungen ist die Messungenauigkeit sowohl bei den tomographischen Untersuchungen als auch bei den Stofftransportmessungen am höchsten.

Die Filmdicke der Flüssigkeitsströmung ist bei geringer Flüssigkeitsbelastung und niedriger Viskosität sehr gering. Die Ungenauigkeit durch die tomographische Messung ist umso größer, je dünner der Flüssigkeitsfilm ist. Damit steigt auch die

Ungenauigkeit bei der Bildbearbeitung und -Auswertung der tomographischen Bilder. So ist es wahrscheinlich, dass bei der Bildauswertung die Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit bei geringen Flüssigkeitsbelastungen und Wasser als Flüssigphase überschätzt wurde. Weiterhin wird bei der Bildanalyse nicht unterschieden, ob es sich bei der Flüssigkeit um herab rieselnde Flüssigkeit oder um stagnierende, nicht am Stofftransport beteiligte Flüssigkeit, handelt. Die Phasengrenzfläche geht als Eingangsparameter in das HA-Modell ein und beeinflusst das Simulationsergebnis signifikant. Eine Überschätzung der Phasengrenzfläche führt damit automatisch zu einer Überschätzung des Stofftransports durch das Modell.

Auch bei den Stofftransportmessungen steigt die Messungenauigkeit mit sinkender Flüssigkeitsbelastung. Das liegt hauptsächlich an der verwendeten Methode zur Messung des Flüssigkeitsvolumenstroms, dem Rotameter. Der relative Messfehler steigt mit sinkender Flüssigkeitsbelastung.

Insgesamt konnte durch den Vergleich der simulierten und experimentellen Werten gezeigt werden, dass das erweiterte HA-Modell in der Lage ist den Einfluss der Viskosität auf den Stofftransport bei der CO₂-Desorption aus Wasser und Wasser-Glycerin-Mischungen in einer Kolonne, die mit einer Packung des Typs MellapakPlus 752.Y gefüllt ist, richtig wiederzugeben. Der Einfluss der Betriebsbedingungen wird ebenfalls von dem Modell richtig vorhergesagt. Für den vorgeschlagenen Ansatz der Modellierung auf Basis tomographischer Untersuchungen ist dies wichtig, da bei den tomographischen Messungen in Liège kein Gas im Gegenstrom geführt wurde. Lediglich die Flüssigkeitsbelastung wurde variiert. Die gute Übereinstimmung zwischen simulierten und experimentellen Desorptionsraten zeigt, dass für die Modellierung der Flüssigkeitsströmung in dem untersuchten Betriebsbereich XCT Messungen mit reiner Flüssigkeitsströmung ausreichend sind.

7.3 Zusammenfassung und Ausblick

Um das erweiterte HA-Modell zu validieren, wurden Stofftransportmessungen in einer Kolonne mit einem Innendurchmesser von 100mm durchgeführt. Dabei wurde analog zu den tomographischen Messungen Wasser und Wasser-Glycerin-Lösungen als flüssige Phase verwendet. Diese wurde mit CO₂ angereichert und über eine strukturierte Packung des Typs Sulzer MellapakPlus 752.Y gegeben. Luft wurde als Gasphase im Gegenstrom geführt. Das CO₂ desorbiert in die Gasphase, während die Flüssigkeit über die Packung rieselt. Die CO₂-Konzentration wurde am Eintritt in die Kolonne und unterhalb der Packung gemessen. Die Ergebnisse der Stofftransportmessungen wurden als Desorptionsrate in Abhängigkeit der Viskosität und der Betriebsbedingungen dargestellt. Die Stofftransportmessungen zeigen eine deutliche Abhängigkeit der Desorptionsrate von der Viskosität. Mit steigender Viskosität sinkt die Desorptionsrate deutlich ab. Auch mit steigender Flüssigkeitsbelastung sinkt die Desorptionsrate, allerdings ist der Einfluss nicht so ausgeprägt wie der Einfluss der Viskosität.

Die experimentell untersuchten Betriebsbedingungen und der Viskositätsbereich der flüssigen Phase wurden mit dem erweiterten HA-Modell simuliert. Als Eingangsparameter dienen dem Modell lediglich die Packungsgeometrie, Eintrittsbedingungen der Ströme und die fluiddynamischen Parameter, die mittels tomographischer Messungen ermittelt wurden. Dazu zählen der Flüssigkeitsinhalt in der Packung, die Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit und die Anteile der drei identifizierten Strömungsformen am gesamten Flüssigkeits-Hold-up.

Durch den Vergleich der Simulationsergebnisse mit den experimentell ermittelten Desorptionsraten konnte gezeigt werden, dass die vorgeschlagene Modellierungsmethode den Einfluss der Viskosität auf den Stofftransport gut vorhersagen kann.

Die vorgeschlagene Methode zur Modellierung des Stofftransports auf Basis tomographischer Untersuchungen wurde anhand eines Packungstyps entwickelt. Die Validierung des erweiterten HA-Modells erfolgte mit einem Stoffsystem, das

dem Stoffsystem bei den tomographischen Messungen entspricht. In weiteren Arbeiten sollten Stofftransportmessungen und Simulationen mit dem in dieser Arbeit verwendeten Packungstyp MellapakPlus 752.Y, aber mit einem anderen Stoffsystem durchgeführt werden. So kann gezeigt werden, dass der Einfluss der tomographisch ermittelten Strömungsparameter auf den Stofftransport auch für andere Stoffsysteme gilt. Anschließend sollte der in dieser Arbeit vorgeschlagene Modellierungsansatz für weitere Packungstypen angewendet werden.

8 Zusammenfassung

Obwohl bekannt ist, dass die Viskosität von Flüssigkeiten einen Einfluss auf die Trennleistung und die Kapazität von Packungskolonnen hat, sind die meisten Korrelationen zur Berechnung des Stoffaustausches an Messdaten von niedrigviskosen Systemen angepasst. Wichtig für die Entwicklung von prädiktiven Modellen ist neben einer systematischen Untersuchung des Trennverhaltens das Verständnis der Strömungsphänomene innerhalb der strukturierten Packung.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde der Einfluss der Viskosität auf das Strömungs- und Trennverhalten in Packungskolonnen untersucht. Als Stoffsystem wurde Wasser-Glycerin/Luft gewählt, wobei die Viskosität der Flüssigkeit durch verschiedene Anteile von Glycerin variiert wurde. Der Einfluss der Viskosität auf die Flüssigkeitsströmung und auf den Stofftransport wurde in einem Bereich von 1-20 mPas untersucht.

Zwei unterschiedliche tomographische Messmethoden wurden eingesetzt, um die Flüssigkeitsströmung nicht-invasiv zu beobachten und zu vermessen: zum einen die klassische, örtlich hochauflösende Röntgentomographie und zum anderen ein neues tomographisches Verfahren, die "Ultra schnelle Röntgentomographie". Durch den Einsatz beider Messmethoden war es möglich den gesamten Betriebsbereich bis zum Flutpunkt tomographisch zu untersuchen.

Die örtlich hoch aufgelösten Querschnittsbilder der Packungskolonne, die mit der klassischen Röntgentomographie gemacht wurden, wurden in dieser Arbeit nicht nur dazu verwendet den Flüssigkeits-hold-up in der Kolonne und die Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit zu bestimmen, sondern auch um die Art der Flüssigkeitsströmung zu beobachten und auszuwerten. Es wurden drei Strömungsformen identifiziert: Filmströmung auf der Packungsoberfläche, Flüssigkeitszwickel an den Kontaktpunkten zwischen zwei Packungslagen und geflutete Bereiche der Packung. Ein Verfahren zur automatisierten Auswertung der tomographischen Bilder wurde entwickelt. Dabei werden die Pixel, die die

Flüssigkeit darstellen, unter Verwendung von geometrischen Parametern den drei Kategorien der Flüssigkeitsströmung zugewiesen. Dadurch ist eine quantitative Auswertung der Flüssigkeitsmorphologie im Kolonnenquerschnitt möglich.

Durch die Bildauswertung wird für jedes Querschnittsbild der Anteil der jeweiligen Strömungsform am gesamten Flüssigkeits-hold-up in jedem Bild ermittelt. Somit können die Ergebnisse sowohl als Profil über die Kolonnenhöhe als auch als gemittelte Werte für die gesamte Kolonne dargestellt werden. Die Ergebnisse zeigen, dass es charakteristische Profile in Abhängigkeit der Packungsgeometrie über die Kolonnenhöhe gibt. Die dominierende Strömungsform ist dabei die Filmströmung. Der geringste Anteil der Flüssigkeit befindet sich in den gefluteten Bereichen. Mit steigender Flüssigkeitsbelastung und mit steigender Viskosität nimmt der absolute Hold-up in jeder Kategorie zu, allerdings nicht proportional zur Zunahme des gesamten Hold-up in der Kolonne. So nimmt der Anteil der Filmströmung am gesamten Flüssigkeitsinhalt mit steigender Viskosität und Flüssigkeitsbelastung ab, während der Anteil der gefluteten Bereiche steigt. Lediglich der Hold-up-Anteil der Flüssigkeit, die sich in Form von Zwickelflüssigkeit in der Packung befindet, bleibt bei allen gemessenen Betriebsbedingungen konstant. Der Einfluss der Viskosität ist dabei stärker ausgeprägt als der Einfluss der Flüssigkeitsbelastung.

Die Beobachtungen und Ergebnisse der tomographischen Untersuchungen wurden in einem Modell, das auf hydrodynamischen Analogien zwischen der realen Strömung und einfachen fluiddynamischen Elementen basiert, implementiert. Zur Erfassung der effektiven Stoffaustauschfläche und der gefüllten Packungsbereiche wurde die Packung als eine Kombination von benetzten, vollständig gefüllten und trockenen zylindrischen Kanälen modelliert. Die Anzahl der jeweiligen Kanäle wird durch die quantitativen Ergebnisse der Bildauswertung hinsichtlich der drei Kategorien der Flüssigkeitsströmung bestimmt. Mit dem erweiterten HA-Modell kann der Stofftransport in einer strukturierten Packung in Abhängigkeit von der Viskosität berechnet werden.

Um die Ergebnisse des HA-Modells zu validieren, wurden Stofftransportmessungen des Systems CO₂ Desorption aus Wasser und Wasser-Glycerin-Lösungen durchgeführt. Luft wurde als Gasphase im Gegenstrom geführt. Die CO₂-Konzentration wurde am Eintritt in die Kolonne und unterhalb der

Packung gemessen. Die vermessenen Betriebspunkte wurden mit dem erweiterten HA-Modell simuliert. Die Ergebnisse Stofftransportmessungen und der Simulationen wurden als Desorptionsrate in Abhängigkeit der Viskosität und der Betriebsbedingungen dargestellt. Eine gute Übereinstimmung zwischen den experimentellen und den simulierten Werten der Desorptionsrate über den gesamten untersuchten Betriebsbereich konnte für die Viskosität von 10 und 20 mPas gezeigt werden. Die Abweichungen zwischen Experiment und Modell bei geringen Flüssigkeitsbelastungen und einer Viskosität von 1 mPas können auf Messungenauigkeiten in diesem Bereich zurück geführt werden. Es konnte gezeigt werden, dass das auf Basis tomographischer Untersuchungen erweiterte HA-Modell den Einfluss der Viskosität auf den Stofftransport vorhersagen kann.

Die quantitative Auswertung der tomographischen Bilder hinsichtlich der Strömungsformen und die Verwendung dieser Ergebnisse im HA-Modell ist eine wichtige Neuerung, um den Einfluss der Flüssigkeitsströmung auf den Stofftransport korrekt zu beschreiben. So kann insbesondere die Abhängigkeit der Trennleistung von der Viskosität der flüssigen Phase prädiktiv modelliert werden.

Zukünftig sollte der Ansatz, der in dieser Arbeit entwickelt wurde, auch für andere Packungstypen und andere Stoffsysteme angewendet werden. Die quantitative Auswertung der Strömungsformen kann außerdem benutzt werden, um Korrelationen für fluiddynamische Parameter wie der Flüssigkeits-Hold-up und die Phasengrenzfläche zu erweitern.

Symbolverzeichnis

Lateinische Buchstaben

Variable	Definition	Einheit
a	Aktivität	-
a _{GL}	effektive Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit	m ² / m ³
a _P	spezifische Packungsoberfläche	m ² / m ³
A _q	Querschnittsfläche	m ²
b ₀	Grundseitenlänge der Faltung von Packungen mit Faltblattstruktur	m
B _F	Breite eines Faltblatt-Basiselements	m
c	Konzentration	mol/m ³
D	Diffusionskoeffizient	m ² /s
DR	Desorptionsrate	-
d _H	hydraulischer Durchmesser	m
d _K	Innendurchmesser der Kolonne	m
d _P	Packungsdurchmesser	m
F	Feret-Durchmesser	m
F _G	Gasbelastungsfaktor, F-Faktor (= u _G · √ρ _G)	Pa ^{0,5}
g	Gravitationskonstante	m/s ²
G	Gas-Molentrom	kmol/s
H	Henry-Koeffizient	Pa

H_F	Höhe der Faltung von Packungen mit Faltblattstruktur	m
H_{HA}	Länge eines Strömungskanals im HA-Modell	m
H_L	Höhe einer Packungslage	m
H_P	Gesamthöhe der Packung	m
ΔH	spezifische Verdampfungsenthalpie	kJ/mol
h_L	Flüssigkeitsinhalt/ hold-up	m^3/m^3
h_L^A	Anteil am Flüssigkeitsinhalt	-
i_F	Laufindex: Faltblätter eines Packungselements	-
k_H	Henry-Koeffizient	mol/(Pa m^3)
K	Phasengleichgewichtskonstante	-
L	Flüssigkeits-Molenstrom	kmol/s
M	Molmasse	kg/kmol
N_{HA}	Anzahl der Kanäle im HA-Modell	-
n_P	Anzahl Packungslagen	-
P	Druck	Pa
Δp_H	Druckverlust bezogen auf die Packungshöhe	Pa/m
r	radiale Koordinate	m
R	ideale Gas-Konstante	kJ/(kgK)
Re	Reynoldszahl	
R_H	hydraulischer Kanalradius	m
s_0	Seitenlänge der Faltung von Packungen	m
T	Temperatur	K
u	Geschwindigkeit	m/s
V	Volumen	m^3
\dot{V}	Volumenstrom	m^3/h

V_i	molares Volumen bei Normalsiedepunkt	m^3/mol
w_L	spezifische Flüssigkeitsbelastung	$\text{m}^3/(\text{m}^2 \text{ h})$
w	Massenanteil	
x	axiale Koordinate	m
x_i	Molanteil in der Flüssigphase der Komponente i	-
X	Beladung in der flüssigen Phase	-
y_i	Molanteil in der Gasphase der Komponente i	-
z	mischungsfreie Weglänge	m
Δz	Höhe eines Diskrets	m

Griechische Buchstaben

Variable	Definition	Einheit
α	Fließwinkel der Flüssigkeit	-
γ	Aktivitätskoeffizient	-
γ_0	Faltungswinkel von Faltblattpackungen	
δ	Dicke des Flüssigkeitsfilms	m
ε	Winkel s. Gl. (2.1)	-
ε_P	Lückenvolumen der Packung	m^3/m^3
φ	Neigungswinkel der Falblattstruktur	-
χ_v	Volumenparameter	-
ϕ	Assoziationsfaktor des Lösemittels	-
λ	Wärmeleitfähigkeit	$\text{J}/\text{m}/\text{s}/\text{K}$
μ	dynamische Viskosität	Pa s
ρ	Dichte	kg/m^3

Indices (hochgestellt)

Variable	Definition
eff	effektiv
lam	laminar
turb	turbulent
0	Eintritt in Kolonne
∞	unendliche Verdünnung

Indices (tiefgestellt)

Variable	Definition
HA	HA-Modell
i	Laufindex der Komponenten
j	Laufindex der Diskrete in axialer Richtung
full	gefüllt
ges	gesamt
G	Gasphase
L	Flüssigphase
m	mittlere
max	maximal
min	minimal
w	Wasser

Literaturverzeichnis

- Aferka, S., Crine, M., Saroha, A.K., Toye, D., Marchot, P., 2007. In situ measurements of the static liquid holdup in Katapak-SP12 (TM) packed column using X-ray tomography. *Chemical Engineering Science* 62, 6076-6080.
- Aferka, S., Marchot, P., Crine, M., Toye, D., 2008. Interfacial area measurement in a Katapak SP12 catalytic distillation column using high energy X-ray CT, CHISA 2008, Prague.
- Aferka, S., Marchot, P., Crine, M., Toye, D., 2010a. Interfacial area measurement in a catalytic distillation packing using high energy X-ray CT. *Chemical Engineering Science* 65, 511-516.
- Aferka, S., Viva, A., Brunazzi, E., Marchot, P., Crine, M., Toye, D., 2010b. Liquid load point determination in a reactive distillation packing by X-Ray Tomography. *Canadian Journal of Chemical Engineering* 88, 611-617.
- Aferka, S., Viva, A., Brunazzi, E., Marchot, P., Crine, M., Toye, D., 2011. Tomographic measurement of liquid hold up and effective interfacial area distributions in a column packed with high performance structured packings. *Chemical Engineering Science* 66, 3413-3422.
- Alekseenko, S.V., Markovich, D.M., Evseev, A.R., Bobylev, A.V., Tarasov, B.V., Karsten, V.A., 2008. Experimental investigation of liquid distribution over structured packing. *AIChE Journal* 54, 1424-1430.
- Alix, P., Raynal, L., 2008. Liquid distribution and liquid hold-up in modern high capacity packings. *Chemical Engineering Research and Design* 86, 585-591.
- Argyriadi, K., Vlachogiannis, M., Bontozoglou, V., 2006. Experimental study of inclined film flow along periodic corrugations: The effect of wall steepness. *Physics of Fluids* 18, 1-15.
- Bieberle, M., Fischer, F., Schleicher, E., Koch, D., Menz, H.J., Mayer, H.G., Hampel, U., 2009. Experimental two-phase flow measurement using ultra fast limited-angle-type electron beam X-ray computed tomography. *Experiments in Fluids* 47, 369-378.
- Billet, R., Mackowiak, J., 1979. Liquid-phase mass transfer in absorption packed-columns. *Chemical Engineering Communications* 3, 1-14.
- Billet, R., Schultes, M., 1993. Predicting mass transfer in packed columns. *Chemical Engineering and Technology* 16, 1-9.
- Billet, R., Schultes, M., 1995. Fluid dynamics and mass transfer in the total capacity range of packed columns up to the flood point. *Chemical Engineering and Technology* 18, 371-379.
- Böcker, S., Ronge, G., 2005. Distillation of viscous systems. *Chemical Engineering and Technology* 28, 25-28.

- Bravo, J.L., Rocha, J.A., Fair, J.R., 1985. Mass transfer in gauze packings. *Hydrocarbon Processing* 64, 91-95.
- Brettschneider, O., Thiele, R., Faber, R., Thielert, H., Wozny, G., 2004. Experimental investigation and simulation of the chemical absorption in a packed column for the system $\text{NH}_3\text{-CO}_2\text{-H}_2\text{S-NaOH-H}_2\text{O}$. *Separation and Purification Technology* 39, 139-159.
- Brinkmann, U., Janzen, A., Kenig, E.Y., 2014. Hydrodynamic analogy approach for modelling reactive absorption. *Chemical Engineering Journal* 250, 342-353.
- Brunazzi, E., 2001. A capacitance probe and a new model to identify and predict the capacity of columns equipped with structured packings. *Industrial and Engineering Chemistry Research* 40, 1205-1212.
- Delaloye, M.M., Vonstockar, U., Lu, X.P., 1991. The influence of viscosity on the liquid-phase mass-transfer resistance in packed-columns. *Chemical Engineering Journal and the Biochemical Engineering Journal* 47, 51-61.
- Drosos, E.I.P., Paras, S.V., Karabelas, A.J., 2006. Counter-current gas-liquid flow in a vertical narrow channel-liquid film characteristics and flooding phenomena. *International Journal of Multiphase Flow* 32, 51-81.
- Edwards, T.J., Maurer, G., Newman, J., Prausnitz, J.M., 1978. Vapor-liquid-equilibria in multicomponent aqueous-solutions of volatile weak electrolytes. *AIChE Journal* 24, 966-976.
- Fischer, F., Hampel, U., 2010. Ultra fast electron beam X-ray computed tomography for two-phase flow measurement. *Nuclear Engineering and Design* 240, 2254-2259.
- Focke, W.W., Knibbe, P.G., 1986. Flow Visualization in Parallel-Plate Ducts with Corrugated Walls. *Journal of Fluid Mechanics* 165, 73-77.
- Goedecke, R., 2006. *Fluid-Verfahrenstechnik*. Wiley-VCH, Weinheim.
- Green, C.W., Farone, J., Briley, J.K., Eldridge, R.B., Ketcham, R.A., Nightingale, B., 2007. Novel application of X-ray computed tomography: Determination of gas/liquid contact area and liquid holdup in structured packing. *Industrial and Engineering Chemistry Research* 46, 5734-5753.
- Große Daldrup, A., Crine, M., Marchot P., Toye D., Kenig E.Y., 2019. An approach to separation efficiency modelling of structured packings based on X-ray tomography measurements: application to aqueous viscous systems. *Chemical Engineering Science* 204, 310-319.
- Hoek, P.J., Wesselingh, J.A., Zuiderweg, F.J., 1986. Small-Scale and large-scale liquid maldistribution in packed-columns. *Chemical Engineering Research and Design* 64, 431-449.
- Janzen, A., Schubert, M., Barthel, F., Hampel, U., Kenig, E.Y., 2013a. Investigation of dynamic liquid distribution and hold-up in structured packings using ultrafast electron beam X-ray tomography. *Chemical Engineering and Processing* 66, 20-26.
- Janzen, A., Steube, J., Aferka, S., Kenig, E.Y., Crine, M., Marchot, P., Toeye, D., 2013b. Investigation of liquid flow morphology inside a structured packing using X-ray tomography. *Chemical Engineering Science* 102, 451-460.

- Kenig, E.Y., 2000. Modeling of multicomponent mass transfer in separation of fluid mixtures. VDI Verlag, Düsseldorf.
- Kenig, E.Y., 2008. Complementary modelling of fluid separation processes. Chemical Engineering Research and Design 86, 1059-1072.
- Kenig, E.Y., 2009. Modeling fluid separation processes using a complementary approach. Chemical Product and Process Modeling 4, 1-20.
- Kenig, E.Y., Müller, I., Brinkmann, U., 2007. Modelling of hydrodynamics and transport phenomena in monolithic structures, 4th Int. Berlin Workshop on Transport Phenomena with Moving Boundaries, Berlin.
- Kiss, A. v., Lajtai, I., Thury, G., 1937. Über die Löslichkeit von Gasen in Wasser-Nichtelektrolytgemischen, Zeitschrift für Anorganische und Allgemeine Chemie 233, 346-352.
- Kister, H.Z., 1992. Distillation design. McGraw-Hill, New York.
- Knoke, T. (Betreuerin: Anna Janzen), 2012. Erweiterung und Validierung des HA-Modells zur Beschreibung des Trennverhaltens viskoser wässriger Systeme in Packungskolonnen. Universität Paderborn, Lehrstuhl für Fluidverfahrenstechnik, unveröffentlichte Studienarbeit, Paderborn.
- Kohrt, M., Ausner, I., Wozny, G., Repke, J.U., 2011. Texture influence on liquid-side mass transfer. Chemical Engineering Research and Design 89, 1405-1413.
- Kolev, N., 2006. Packed Bed Columns. Elsevier B. V., Amsterdam.
- Lewis, W.K., Whitman, W.G., 1924. Principles of gas absorption. Industrial and Engineering Chemistry Fundamentals 16, 1215-1220.
- Luo, S., Li, H., Fei, W., Wang, Y.D., 2009. Liquid film characteristics on surface of structured packing. Chinese Journal of Chemical Engineering 17, 47-52.
- Mackowiak, J., 2010. Fluid dynamics of packed columns. Springer, Berlin.
- Mahr, B., Mewes, D., 2008. Two-phase flow in structured packings: Modeling and calculation on a macroscopic scale. AIChE Journal 54, 614-626.
- Marchot, P., Toye, D., Pelsser, A.M., Crine, M., L'Homme, G., Olujic, Z., 2001. Liquid distribution images on structured packing by X-ray computed tomography. AIChE Journal 47, 1471-1476.
- Metzler, J.B., 1991. Metzler Physik. Metzlersche Verlagsbuchhandlung und Carl Ernst Poeschel Verlag, Stuttgart.
- Morneburg, H., 1995. Bildgebende Systeme für die medizinische Diagnostik. Publics MCD Verlag, München.
- Olujic, Ž., 1997. Development of a complete simulation model for predicting the hydraulic and separation performance of distillation columns equipped with structured packings. Chemical and Biochemical Engineering Quarterly 11, 31-46.
- Olujic, Ž., Baak, R., Haaring, J., Kaibel, B., Jansen, H., 2006. Liquid distribution properties of conventional and high capacity structured packings. Chemical Engineering Research and Design 84, 867-874.

- Olujic, Ž., Kamerbeek, A.B., de Graauw, J., 1999. A corrugation geometry based model for efficiency of structured distillation packing. *Chemical Engineering and Processing* 38, 683-695.
- Otsu, N., 1979. A threshold selection method from gray-level histograms. *IEEE Trans. Systems, Man and Cybernetics* 9, 62-65.
- Ousaka, A.D., Kariyasaki, A., Fukano, T., 2006. Prediction of flooding gas velocity in gas-liquid counter-current two-phase flow in inclined pipes. *Nuclear Engineering and Design* 236, 1282-1292.
- Owens, S.A., Kossmann, A., Farone, J., Eldridge, B.R., Ketcham, R.A., 2009. Flow field visualization in structured packing using real time X-ray radiography. *Industrial and Engineering Chemistry Research* 48, 3606-3618.
- Paschedag, A., 2004. *Computational Fluid Dynamics in der Verfahrenstechnik: Allgemeine Grundlagen und Mehrphasige Anwendungen*. Wiley-VCH, Weinheim.
- Pavlenko, A.N., Pecherkin, N.I., Chekhovich, V.Y., Zhukov, V.E., Sunder, S., Houghton, P., Serov, A.F., Nazarov, A.D., 2006. Separation of mixtures and distribution of a liquid on a structured packing in a large-scale model of a distillation column. *Theoretical Foundations of Chemical Engineering* 40, 329-338.
- Poling, B.E., Prausnitz, J.M., O'Connell, J.P., 2001. *The properties of gases and liquids*. McGraw-Hill, New York, London.
- Raynal, L., Royon-Lebeaud, A., 2007. A multi-scale approach for CFD calculations of gas-liquid flow within large size column equipped with structured packing. *Chemical Engineering Science* 62, 7196-7204.
- Reinecke, N., Petritsch, G., Schmitz, D., Mewes, D., 1997. Tomographic measuring techniques - Visualisation of binary flow. *Chemie Ingenieur Technik* 69, 1379-1394.
- Reinecke, N., Petritsch, G., Schmitz, D., Mewes, D., 1998. Tomographic measurement techniques - Visualization of multiphase flows. *Chemical Engineering and Technology* 21, 7-18.
- Rocha, J.A., Bravo, J.L., Fair, J.R., 1993. Distillation columns containing structured packings - a comprehensive model for their performance .1. Hydraulic Models. *Industrial and Engineering Chemistry Research* 32, 641-651.
- Rocha, J.A., Bravo, J.L., Fair, J.R., 1996. Distillation columns containing structured packings: A comprehensive model for their performance. 2. Mass-transfer model. *Industrial and Engineering Chemistry Research* 35, 1660-1667.
- Sankey, M.H., Holland, D.J., Sederman, A.J., Gladden, L.F., 2009. Magnetic resonance velocity imaging of liquid and gas two-phase flow in packed beds. *Journal of Magnetic Resonance* 196, 142-148.
- Schönbucher, A., 2002. *Thermische Verfahrenstechnik*. Springer, Berlin.
- Schubert, M., Bieberle, A., Barthel, F., Boden, S., Hampel, U., 2011. Advanced tomographic techniques for flow imaging in columns with flow distribution packings. *Chemie Ingenieur Technik* 83, 979-991.

- Shetty, S., Cerro, R.L., 1993. Flow of a thin-film over a periodic surface. *International Journal of Multiphase Flow* 19, 1013-1027.
- Shetty, S., Cerro, R.L., 1997. Fundamental liquid flow correlations for the computation of design parameters for ordered packings. *Industrial and Engineering Chemistry Research* 36, 771-783.
- Shi, M.G., Mersmann, A., 1985. Effective interfacial area in packed columns. *German Chemical Engineering* 8, 87-96.
- Shilkin, A., 2007. Modelling transport phenomena in structured packings using hydrodynamic analogy. VDI Verlag, Düsseldorf.
- Shilkin, A., Kenig, E.Y., 2005. A new approach to fluid separation modelling in the columns equipped with structured packings. *Chemical Engineering Journal* 110, 87-100.
- Shilkin, A., Kenig, E.Y., Olujic, Z., 2006. A hydrodynamic-analogy-based model for efficiency of structured packing distillation columns. *AIChE Journal* 52, 3055-3066.
- Sorel, E., 1893. *La rectification de l'alcool*. Gauthier-Villars et fils, Paris.
- Spiegel, L., Meier, W., 2003. Distillation columns with structured packings in the next decade. *Chemical Engineering Research and Design* 81, 39-47.
- Steube, J. (Betreuerin: Anna Janzen), 2011. Experimental investigation of liquid distribution in structured packing using X-Ray tomography, Universität Paderborn, Lehrstuhl für Fluidverfahrenstechnik, unveröffentlichte Diplomarbeit, Paderborn.
- Stikkelman, R.M., 1989. Gas and liquid maldistributions in packed columns. *Chemisch Boeken Centrum*, Delft.
- Stoter, F., 1993. Modelling of maldistribution in structured packings: from detail to column design. doctoral thesis ISBN 90-370-0084-3, Delft.
- Suess, P., Spiegel, L., 1992. Hold-up of Mellapak structured packings. *Chemical Engineering and Processing* 31, 119-124.
- Taylor, R., Krishna, R., 1993. *Multicomponent mass transfer*. John Wiley & Sons, New York.
- Toye, D., Marchot, P., Crine, M., Lhomme, G., 1995. Analysis of liquid flow distribution in trickling flow reactor using computer-assisted X-Ray tomography. *Chemical Engineering Research and Design* 73, 258-262.
- Toye, D., Crine, M., Marchot, P., 2005. Imaging of liquid distribution in reactive distillation packings with a new high-energy X-ray tomograph. *Measurement Science and Technology* 16, 2213-2220.
- Tsai, R.E., 2010. Mass transfer area of structured packing. *Electronic Theses and Dissertations*, The University of Texas, Austin.
- Tsai, R.E., Seibert, A.F., Eldridge, R.B., Rochelle, G.T., 2009. Influence of viscosity and surface tension on the effective mass transfer area of structured packing. *Energy Procedia* 1, 1197-1204.

- Valluri, P., Matar, O.K., Hewitt, G.F., Mendes, M.A., 2005. Thin film flow over structured packings at moderate Reynolds numbers. *Chemical Engineering Science* 60, 1965-1975.
- VDI, 2005. VDI-Wärmeatlas. 10. Auflage, Springer, Berlin.
- Viva, A., Aferka, S., Brunazzi, E., Marchot, P., Crine, M., Toye, D., 2011. Processing of X-ray tomographic images: A procedure adapted for the analysis of phase distribution in MellapakPlus 752.Y and Katapak-SP packings. *Flow Measurement and Instrumentation* 22, 279-290.
- Wang, G.Q., Yuan, X.G., Yu, K.T., 2006. A method for calculating effective interfacial area of structured packed distillation columns under elevated pressures. *Chemical Engineering and Processing* 45, 691-697.
- Wierschem, A., Pollak, T., Aksel, N., 2010. Wirbelunterdrückung in Filmen, ProcessNet-Fachausschuss Fluidverfahrenstechnik, Fulda.
- Zhao, L., Cerro, R.L., 1992. Experimental characterization of viscous film flows over complex-surfaces. *International Journal of Multiphase Flow* 18, 495-516.
- Zogg, M., 1973. Mass-Transfer in sulzer mesh packings. *Chemie Ingenieur Technik* 45, 67-74.