

Detaillierte Untersuchungen der Strömungs- und Transportvorgänge in Kolonnen mit Anstaupackungen

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

genehmigte
DISSERTATION

von
Steve Flechsig M.Sc.
aus Schlema

Tag des Kolloquiums: 18. Juli 2023

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

Korreferent: *Prof. Dr.-Ing. Markus Schubert*

Vorwort

Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit zusammengefassten Ergebnisse entstanden während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Lehrstuhl für Fluidverfahrenstechnik der Fakultät Maschinenbau an der Universität Paderborn. Zunächst möchte ich mich besonders bei meinem Doktorvater Prof. Dr.-Ing. Eugeny Kenig für sein Vertrauen, sein Engagement und seine wissenschaftliche Anleitung bedanken. Außerdem möchte ich ihm für die wertvollen Diskussionen danken, welche zu meinem individuellen und fachlichen Fortschritt in hohem Maße beigetragen haben. Für die Übernahme des Koreferats danke ich darüber hinaus Herrn Prof. Dr.-Ing. Markus Schubert. Danken möchte ich auch Frau Prof. Dr. Tina Kasper für die Teilnahme an der Prüfungskommission sowie Herrn Prof. Dr.-Ing. Elmar Moritzer für die Übernahme des Vorsitzes.

Die Untersuchungen der Strömungs- und Transportvorgänge in Kolonnen mit Anstaupackungen erfolgten im Rahmen eines DFG-geförderten Kooperationsprojekts (KE 837/26-1, HA 3088/10-1) mit der TU-Dresden und dem Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf. Ich danke der DFG für die Förderung des Projekts. Meinen Projektpartnern aus Dresden, Prof. Dr. Uwe Hampel, Prof. Dr.-Ing. Markus Schubert und Johanna Sohr, danke ich für die sehr gute Zusammenarbeit und den intensiven Austausch bei den zahlreichen, angenehmen Projekttreffen.

Besonderer Dank gilt den Technikumsmitarbeitern des Lehrstuhls. Ohne die tatkräftige Unterstützung von Franz Kapla, Mirko Fölling und Klaus-Dieter Beckmann wären die experimentellen Untersuchungen nicht möglich gewesen. Meinen Kolleginnen und Kollegen danke ich für die freundschaftliche Zusammenarbeit und die wertvollen Anregungen während meiner Promotion. Ein besonderes Vergnügen war der Austausch mit Alexander Salten und Andreas Schulz. Nicole Lutters, die mir stets mit Tat und Rat zur Seite stand, möchte ich ebenfalls besonders danken. Dankeschön möchte ich auch meinen Studenten sagen, welche durch ihre Abschlussarbeiten sowie ihre Tätigkeiten als studentische Hilfskräfte großen Anteil am Gelingen meiner Arbeit haben. Einen ganz besonderen Dank möchte ich in diesem Zusammenhang an Yaroslav Utchenko richten.

Herzlicher Dank gebührt meinen Eltern und meinem Bruder, die mich in jeder Lebenslage unterstützt haben. Besonderer Dank gilt auch meinen Schwiegereltern. Den letzten Dank möchte ich an die wichtigste Person meines Lebens richten. Für die Liebe und die Freude entlang meines Weges danke ich unbeschreiblich meiner Ehefrau Viola Hollenhorst.

Ihr alle habt mich während meiner gesamten Promotionszeit besonders motiviert. Ich danke Euch vielmals!

Kurzfassung

Die Einbauten sind ein wichtiger Bestandteil von thermischen Trennapparaten, da sie einen substanziellen Einfluss auf die wesentlichen Leistungsmerkmale wie Druckverlust, Kapazität und Trenneffizienz haben. Die Effizienz und die Kapazität von solchen Trennapparaten kann durch den Einsatz von Anstaupackungen gesteigert werden. Dieser integrierte Einbautentyp ist eine Kombination von zwei abwechselnd angeordneten, handelsüblichen Strukturpackungen, die sich in Bezug auf ihre Belastungsgrenzen differenzieren lassen. Dabei entstehen im Betrieb belastungsabhängige, in ihrer Trennwirkung unterschiedliche Regime. Neben rieselfilmartigen Strömungsmustern treten auch Sprudelregime in Erscheinung, die besonders zur Erhöhung der Trennleistung beitragen. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde ein rate-based-Modell entwickelt, welches die Auswirkungen der vorherrschenden Regime in Anstaupackungen berücksichtigt. Basierend auf experimentellen Daten zur CO_2 -Absorption und Ergebnissen aus tomographischen Untersuchungen wurden Abhängigkeiten der modellspezifischen Parameter identifiziert und anschließend regimespezifisch ins Modell implementiert. Das anhand der experimentellen Daten zur CO_2 -Absorption verifizierte Modell kann grundsätzlich auch zum Design von Kolonnen mit Anstaupackungen bei anderen thermischen Trennverfahren, wie der Rektifikation, eingesetzt werden, bei der unter gewissen Voraussetzungen die Anwendung von Anstaupackungen besonders vorteilhaft ist.

Abstract

Column internals play an important part in fluid separation processes due to their substantial influence on key performance characteristics, such as pressure drop, capacity and separation efficiency. The efficiency and capacity of separation columns can be increased by the application of sandwich packings. This integrated type of internals represents a combination of two alternating, commercially available structured packings with different load limits. During the operation, different load-dependent regimes with specific separation performance arise. In addition to film-like flow patterns, froth regimes also occur, which substantially contribute to separation efficiency enhancement. In this work, a rate-based-model was developed to consider the impact of load-dependent regimes in sandwich packings. Based on experimental data on CO_2 -absorption and results from tomographic investigations, dependencies of the model-specific parameters were identified and subsequently regime-specifically implemented into the model. The model, which was verified on the basis of experimental data on CO_2 -absorption, can basically be used for the column design with sandwich packings of other separation processes, such as distillation, in which the application of sandwich packings can be particularly advantageous.

Publikationen

Zeitschriftenartikel

Yildirim, Ö., Flechsig, S., Brinkmann, U., Kenig, E.Y., 2015. Application of the Wallis plot for the determination of the loading limits of structured packings and sandwich packings. *Chemical Engineering Transactions* 45, 1165-1170.

Yildirim, Ö., Flechsig, S., Brinkmann, U., Kenig, E.Y., 2015. Bestimmung der Lastgrenzen konventioneller Strukturpackungen und Anstaupackungen mithilfe des Wallis-Plots. *Chemie Ingenieur Technik* 87, 1348-1356.

Flechsig, S., Yildirim, Ö., Kenig, E.Y., 2016. Sandwich Packings: State of the Art. *ChemBioEng Reviews* 3, 174-185.

Flechsig, S., Sohr, J., Schubert, M., Hampel, U., Kenig, E.Y., 2018. Rate-based modelling of CO₂ absorption with sandwich packings. *Chemical Engineering Transactions* 69, 169-174.

Sohr, J., Schubert, M., Flechsig, S., Kenig, E.Y., Hampel, U., 2018. Experimental investigation of fluid dynamics in sandwich packings with ultrafast X-ray tomography. *Chemical Engineering Transactions* 69, 727-732.

Flechsig, S., Borgolte, T., Utchenko, Y., Sohr, J., Schubert, M., Hampel, U., Kenig, E.Y., 2019. Rate-based-Modellierung von CO₂-Absorptionskolonnen mit Anstaupackungen. *Chemie Ingenieur Technik* 91, 125-138.

Sohr, J., Flechsig, S., Kenig, E.Y., Schubert, M., Hampel, U., 2019. Experimental Investigation of the Froth Height in Columns with Sandwich Packings. *Chemie Ingenieur Technik* 91, 139-144.

Sohr, J., George, M., Bieberle, G.R., Flechsig, S., Kenig, E.Y., Schubert, M., Hampel, U., 2019. Comparative assessment of different image processing methods to determine the gas-liquid interfacial area in froth regimes of sandwich packings from ultrafast X-ray tomography image data. *Chemical Engineering Research and Design* 147, 676-688.

Flechsig, S., Sohr, J., Schubert, M., Hampel, U., Kenig, E.Y., 2022. A new tomography-based approach to the description of conventional structured packings and Sandwich packings. *Chemical Engineering and Processing - Process Intensification* 171, 108530.

Konferenzbeiträge

Yildirim, Ö., Flechsig, S., Brinkmann, U., Kenig, E.Y., 2012. Anwendung des Wallis-Plots zur Bestimmung der Lastgrenzen von Anstaupackungen. Jahrestreffen der ProcessNet-Fachausschüsse Computational Fluid Dynamics und Fluidverfahrenstechnik, Weimar.

Flechsig, S., Yildirim, Ö., Kenig, E.Y., 2015. Untersuchungen zum Holdup von Anstaupackungen. ProcessNet-Jahrestreffen der Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Membrantechnik, Bremen.

Flechsig, S., Yildirim, Ö., Kenig, E.Y., 2015. Holdup investigations in sandwich packings. CAPE Forum, Paderborn.

Flechsig, S., Sohr, J., Schubert, M., Hampel, U., Kenig, E.Y., 2017. Anwendung von Anstaupackungen bei der CO₂-Absorption in wässrigen Aminlösungen. ProcessNet-Jahrestreffen der Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Membrantechnik, Köln.

Flechsig, S., Utchenko, Y., Sohr, J., Schubert, M., Hampel, U., Kenig, E.Y., 2017. Experimentelle Untersuchungen zum Einfluss von Betriebs- und Designparameter auf das Absorptionsverhalten von Anstaupackungen. Jahrestreffen der Fachgemeinschaft Prozess-, Apparate- und Anlagentechnik, Würzburg.

Sohr, J., Litzka, A., Schubert, M., Flechsig, S., Kenig, E.Y., Hampel, U., 2017. Untersuchung heterogener Strömungsmuster in Anstaupackungen mittels ultraschneller Röntgentomographie: Methode und Validierung. ProcessNet-Jahrestreffen der Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Membrantechnik, Köln.

Koke, I., Ehlenbröker, U., Flechsig, S., Schmid, H.J., 2017. Umgang mit Heterogenität - Tutorienprogramm und Vertiefungsberatung zur Unterstützung in kritischen Studienphasen. Tagungsband zum 3. Symposium zur Hochschullehre in den MINT-Fächern, Nürnberg.

Flechsig, S., Sohr, J., Schubert, M., Hampel, U., Kenig, E.Y., 2018. Experimental investigations and rate-based modeling of CO₂ absorption with sandwich packings. AIChE Congress, Frankfurt am Main.

Flechsig, S., Sohr, J., Schubert, M., Hampel, U., Kenig, E.Y., 2018. Rate-based modelling of CO₂ absorption with sandwich packings. 11th International Conference Distillation & Absorption, Florence.

Flechsig, S., Sohr, J., Schubert, M., Hampel, U., Kenig, E.Y., 2018. Rate-based-Modellierung von CO₂-Absorptionskolonnen mit Anstaupackungen. ProcessNet-Jahrestreffen der Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Membrantechnik, München.

Sohr, J., Schubert, M., Flechsig, S., Kenig, E.Y., Hampel, U., 2018. Experimental investigation of fluid dynamics in sandwich packings with ultrafast X-ray tomography. 11th International Conference Distillation & Absorption, Florence.

Sohr, J., Schubert, M., Flechsig, S., Kenig, E.Y., Hampel, U., 2018. Fluid-dynamische Untersuchung von Anstaupackungen mittels ultraschneller Röntgentomographie. ProcessNet-Jahrestreffen der Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Membrantechnik, München.

Flehsig, S, Utchenko, Y., Sohr, J., Schubert, M., Hampel, U., Kenig, E.Y., 2019. Partieller Einsatz von teilweise gefluteten Packungen. ProcessNet-Jahrestreffen der Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Membrantechnik, Potsdam.

Sohr, J., Bieberle, M., Flehsig, S., Kenig, E.Y., Schubert, M., Hampel, U., 2019. Bestimmung der Gas-Flüssigkeits-Grenzfläche in Anstaupackungen mittels ultraschneller Röntgentomographie. ProcessNet-Jahrestreffen der Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Membrantechnik, Potsdam.

Inhaltsverzeichnis

Vorwort	iv
Kurzzusammenfassung	vi
Publikationen	x
Symbolverzeichnis	xiii
1 Einleitung	1
2 Stand des Wissens	3
2.1 Konventionelle Einbauten für thermische Trennapparate	3
2.1.1 Kolonnenböden	5
2.1.2 Strukturierte Packungen	8
2.2 Ansätze zur Prozessintensivierung	13
2.2.1 Anstaupackungen	15
2.2.2 Reaktive Absorption von Kohlenstoffdioxid mit wässrigen Aminlösungen .	23
2.3 Ansätze zur Bestimmung der Trennleistung bei der Reaktivabsorption	27
2.3.1 Gleichgewichtsstufenmodell	27
2.3.2 HTU-NTU-Modell	29
2.3.3 Rate-based-Modell basierend auf der Zweifilmtheorie	31
2.3.4 Bestimmung von Modellparametern	37
2.4 Schlussfolgerungen und Ziele der Arbeit	40
3 Experimentelle Untersuchungen von Anstaupackungen	43
3.1 Fluidodynamik	43
3.1.1 Messungen des Druckverlusts, des Holdups und der Lastgrenzen	44
3.1.2 Ultraschnelle Röntgentomographie	49
3.2 Eigene Untersuchungen zur CO ₂ -Absorption	54
3.2.1 Aufbau der Technikumsanlage	54
3.2.2 Versuchsdurchführung im Kreislaufbetrieb	56
3.2.3 Versuchsauswertung	58
3.2.4 Untersuchter Parameterbereich	61
3.2.5 Validierung der Messergebnisse	62

3.2.6	Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen	63
3.3	Zusammenfassung	66
4	Modellierung der Fluidodynamik basierend auf tomographischen Untersuchungen	67
4.1	Ansatz für strukturierte Packungen	68
4.2	Ansatzweiterungen für Anstaupackungen	70
4.3	Holdup in rieselfilmartigen Strömungsmustern und in Sprudelregimen	72
4.4	Spezifischer Druckverlust der Gasphase	74
4.5	Bestimmung der Lastgrenzen	79
4.6	Überlagertes Wachstum der Sprudelschicht	83
4.7	Anwendung des Modells	84
4.8	Zusammenfassung	89
5	Modellierung von Absorptionskolonnen mit Anstaupackungen	91
5.1	Rate-based-Ansatz zur Berücksichtigung des heterogenen Strömungsmusters . . .	91
5.2	Implementierung und Simulationsablauf	93
5.3	Bestimmung der Modellparameter	95
5.3.1	Phasengrenzfläche	97
5.3.2	Stoffübergangskoeffizienten	99
5.4	Studie zur Gitterunabhängigkeit	103
5.5	Verifizierung des Modells anhand experimenteller Daten	107
5.6	Zusammenfassung	110
6	Prozesssimulation zur Abgasreinigung eines industriellen Kraftwerks	111
6.1	Routine zur Simulation von Absorptionskolonnen im industriellen Maßstab . . .	111
6.2	Fallstudie: Industrielles Gaskraftwerk	112
6.3	Einfluss des Anstaupackungsdesigns auf die Leistungscharakteristik	116
6.3.1	Einfluss der geometrischen Oberfläche beider Lagen	116
6.3.2	Partieller Einsatz von teilweise gefluteten Packungen	118
6.4	Zusammenfassung	120
7	Zusammenfassung und Ausblick	121
	Anhang	125
	Literaturverzeichnis	156
	Erklärung zur Zitation aus studentischen Arbeiten	157

Symbolverzeichnis

Lateinische Buchstaben

Symbol	Bedeutung	Einheit
A	Fläche	m^2
A_B	Bohrungsquerschnittsfläche	m^2
A_K	Kolonnenquerschnittsfläche	m^2
A_T	Töpfchenquerschnittsfläche	m^2
a_B	Bohrungsflächenanteil	m^2m^{-2}
a_{CO_2}	Flächenanteil im Chromatogramm	m^2m^{-2}
a_{geo}	geometrische Oberfläche	m^2m^{-3}
a_{int}	spezifische Phasengrenzfläche	m^2m^{-3}
a_{spez}	spezifische Oberfläche	m^2m^{-3}
a_T	Töpfchenflächenanteil	m^2m^{-2}
B	Variationskoeffizient	-
C	Kapazitätsfaktor	m s^{-1}
c	Konzentration	mol m^{-3}
D	Diffusionskoeffizient	m^2s^{-1}
\bar{D}	mittlerer Diffusionskoeffizient	m^2s^{-1}
\bar{d}_{Bm}	repräsentativer mittlerer Blasendurchmesser	m
D_{eff}	effektiver Diffusionskoeffizient	m^2s^{-1}
d	Durchmesser	m
d_B	Bohrungsdurchmesser	m
d_h	hydraulischer Durchmesser	m
d_i	Triebkraft für den Stofftransport der Komponente i	m^{-1}
d_K	Kolonnendurchmesser	m
d_T	Töpfchendurchmesser	m
E	Enhancement-Faktor	-
E_A	Aktivierungsenergie	J mol^{-1}
e_i	Ladungszahl der Komponente i	-
F	Faradaykonstante	C mol^{-1}
F_G	Gasbelastungs-/F-Faktor	$\text{Pa}^{0.5}$

\hat{F}_G	normierter F-Faktor	-
$F_{G,FP}$	F-Faktor am Flutpunkt	Pa ^{0.5}
$F_{G,SP}$	F-Faktor am Staupunkt	Pa ^{0.5}
f	Fugazität	Pa
G	Molenstrom der Gasphase	mol s ⁻¹
g	Erdbeschleunigung	m s ⁻²
H	Höhe	m
H_{cL}	Höhe der klaren Flüssigkeitsschicht	m
H_{FS}	Füllstandshöhe der Flüssigkeit	m
H_K	Kolonnenhöhe	m
H_s	Henry-Koeffizient	Pa
H_{SPR}	Sprudelschichthöhe	m
H_T	Töpfchenhöhe	m
$HETS$	height equivalent to a theoretical stage	m
HTU	Höhe der Transfereinheit	m
h_G	spezifischer Gasholdup	m ³ m ⁻³
h_L	spezifischer Flüssigkeitsholdup	m ³ m ⁻³
h_m	spezifische molare Enthalpie	J mol ⁻¹
j	Diffusionsfluss	mol m ⁻² s ⁻¹
K_H	Lagenhöhenparameter	-
K_i	Verteilungskoeffizient der Komponente i	-
K_{LP}	Staupunktsfaktor	-
K_W	Wandinflussparameter	-
K_r	Reaktionsgleichgewichtskonstante	-
k_r	Reaktionsgeschwindigkeitskonstante	Abhängig von Reaktionsordnung
k_0	Stoßfaktor im Arrheniusansatz	Abhängig von Reaktionsordnung
L	Molenstrom Flüssigkeit	mol s ⁻¹
M	molare Masse	mol kg ⁻¹
m	Stauchungsparameter	-
N	Molenstrom	mol s ⁻¹
NTU	Anzahl der Transfereinheiten	-
n_B	Bohrungsanzahl	-
n_i	komponentenbezogener Stofffluss	mol m ⁻² s ⁻¹
n_{Komp}	Anzahl der Komponenten	-
n_{PU}	Anzahl Packungslagenübergänge	-
n_T	Töpfchenanzahl	-
n_{tot}	Gesamtstofffluss	mol m ⁻² s ⁻¹
n_{TS}	Anzahl theoretischer Stufen	-
O_P	Packungsoberfläche	m ²
p	Druck	Pa
p_s	Sättigungsdampfdruck	Pa
Δp	Druckverlust/-differenz	Pa
Δp_H	höhenbezogener Druckverlust	Pa m ⁻¹

R_G	allgemeine Gaskonstante	$\text{J mol}^{-1}\text{K}^{-1}$
R_i	komponentenbezogene Reaktionsrate	$\text{mol m}^{-3}\text{s}^{-1}$
r	Radius	m
r_r	Äquivalenzreaktionsgeschwindigkeit	$\text{mol m}^{-3}\text{s}^{-1}$
T	Temperatur	K
t	Zeit	s
u_G	Geschwindigkeit der Gasphase	m s^{-1}
u_L	Berieselungsdichte	$\text{m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$
V	Volumen	m^3
\dot{V}_G	Volumenstrom der Gasphase	m^3s^{-1}
V_K	Kolonnenvolumen	m^3
V_L	Volumen der flüssigen Phase	m^3
\dot{V}_L	Volumenstrom der Flüssigkeit	m^3s^{-1}
V_P	Packungsvolumen	m^3
v	Volumenanteil	m^3m^{-3}
w	Massenanteil	kg kg^{-1}
x	Molanteil in der Flüssigkeit	mol mol^{-1}
Y	molare Beladung im Gas	mol mol^{-1}
Y^*	molare Gasbeladung im Gleichgewicht	mol mol^{-1}
y	Molanteil im Gas	mol mol^{-1}
z	axiale Koordinate	m

Griechische Buchstaben

Symbol	Bedeutung	Einheit
$\alpha_{\beta,L}$	Fließwinkel der flüssigen Phase nach Olujić et al. (2004)	°
α_L	Fließwinkel der flüssigen Phase auf der Faltblattstruktur	°
α_P	Neigungswinkel der Packung zur Vertikalen	°
α_{Pu}	Winkel am Übergang zweier Packungslagen	°
β_G	gasseitiger Stoffübergangskoeffizient	m s^{-1}
β_L	flüssigkeitsseitiger Stoffübergangskoeffizient	m s^{-1}
β_{OG}	gasseitiger Stoffdurchgangskoeffizient	m s^{-1}
γ_i	Aktivitätskoeffizient	-
γ_{Abs}	CO ₂ -Abscheidegrad	-
Δ	Differenz	-
δ	Filmdicke	m
ε	Porosität	-
ε_P	Leerraumvolumen der Packung	-
η	dynamische Viskosität	Pa s
θ	variabler Winkel	°
λ	Wärmeleitfähigkeit	$\text{W m}^{-1}\text{K}^{-1}$

μ	chemisches Potenzial	J mol^{-1}
ν_r	stöchiometrischer Koeffizient	-
ξ	radiale Koordinate	m
π	Kreiszahl	-
ρ	Dichte	kg m^3
σ	Oberflächenspannung	N m^{-1}
ϕ	elektrisches Potenzial	V
ϕ_i	Fugazitätskoeffizient	-
Ψ	Widerstandsbeiwert	-
ω	Röntgenstrahlschwächung	-

Indizes

Symbol	Bedeutung
<i>AB</i>	Abscheidelage
<i>AN</i>	Anstaulage
<i>AP</i>	Anstaupackung
<i>aus</i>	austretend
<i>B</i>	Bulk
<i>ber</i>	berechnet
<i>dp</i>	Datenpunkte
<i>e</i>	Edukt
<i>eff</i>	effektiv
<i>ein</i>	eintretend
<i>exp</i>	experimentell
<i>Film</i>	rieselfilmartiges Strömungsmuster
<i>fl</i>	flüssig, berieselt
<i>Flut</i>	geflutet
<i>FP</i>	Flutpunkt
<i>G</i>	Gasphase
<i>Ges</i>	gesamt
<i>GF</i>	Gasfilm
<i>H</i>	auf die Höhe bezogen
<i>hin</i>	Hinreaktion
<i>hs</i>	hydrostatisch
<i>i</i>	Komponente, Laufindex
<i>Inert</i>	Inert
<i>int</i>	Phasengrenzfläche
<i>j</i>	Stufe, Laufindex
<i>k</i>	Phase, Laufindex
<i>L</i>	flüssige Phase
<i>LF</i>	Flüssigkeitsfilm
<i>OG</i>	overall gas

<i>OL</i>	overall liquid
<i>P</i>	Packung
<i>p</i>	Produkt
<i>PE</i>	Packungselement
<i>R</i>	Reaktion
<i>r</i>	Rest, Residual
<i>ruck</i>	Rückreaktion
<i>SP</i>	Staupunkt
<i>SPR</i>	Sprudelschicht
<i>T</i>	Töpfchen
<i>theo</i>	theoretisch
<i>tr</i>	trocken
<i>Seg</i>	Segment

Abkürzungen

Kürzel	Bedeutung
ACM	Aspen Custom Modeller®
B	Base
DEA	Diethanolamin
DFG	Deutsche Forschungsgemeinschaft
DGRA	Drahtgeweberandabweiser
DN	Durchmesser Nennweite
HZDR	Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf
MAE	mean average error
MDEA	Methyldiethanolamin
MEA	Monoethanolamin
PLS	Prozessleitsystem
SZRA	Sägezahnrandabweiser
UFXCT	ultraschnelle-Röntgentomographie

Dimensionslose Kennzahlen

Symbol	Bedeutung	Einheit
<i>Eu</i>	Euler-Zahl	-
<i>Fr</i>	Froude-Zahl	-
<i>Ha</i>	Hatta-Zahl	-
<i>Re</i>	Reynolds-Zahl	-
<i>Sc</i>	Schmidt-Zahl	-
<i>Sh</i>	Sherwood-Zahl	-
<i>We</i>	Weber-Zahl	-

1 Einleitung

Bei Trennapparaten, in denen die Gas- und Flüssigphase im Gegenstrom geführt werden, kommen als Kolonneneinbauten oftmals Füllkörper oder Böden zum Einsatz. Die Wahl eines geeigneten Einbautentyps beeinflusst die wesentlichen Leistungsmerkmale einer Kolonne, wie den Druckverlust, die fluiddynamischen Belastungsgrenzen und die Trenneffizienz. Eine Möglichkeit, die Trenneffizienz und die Kapazität gegenüber konventionellen Füllkörpern zu erhöhen und somit den Einsatz kompakterer Kolonnen zu verwirklichen besteht in der Anwendung von Anstaupackungen.

Anstaupackungen bestehen aus zwei alternierenden Lagen von Strukturpackungen mit unterschiedlichen geometrischen Oberflächen. Die untere Packungslage wird als Anstaulage bezeichnet und hat aufgrund der größeren geometrischen Oberfläche eine geringere Belastungsgrenze verglichen mit der darüberliegenden Abscheidelage. Dieser integrierte Packungstyp kann prinzipiell in Abhängigkeit der Durchsätze beider fluider Phasen in verschiedenen Belastungsbereichen betrieben werden. Bevorzugt werden jedoch Betriebsbedingungen zwischen den Lastgrenzen der Anstau- und Abscheidelage, da sich in diesem Bereich der Anstaubetrieb ausbildet.

Im Anstaubetrieb wird eine stabile fluiddynamische Funktion der Kolonne ermöglicht, die durch die Ausbildung eines heterogenen Strömungsmusters gekennzeichnet ist. Die Anstaulagen werden gezielt geflutet, sodass sich bis in die Abscheidelage hineinreichende Sprudelschichten ausbilden, welche aufgrund der intensiven Phasendurchmischung besonders zur Erhöhung der Trenneffizienz beitragen. Im oberen Bereich der Packungssegmente mit geringerer geometrischer Oberfläche bildet sich die für Strukturpackungen typische Rinnsal- bzw. Rieselfilmströmung aus. Zudem fungieren die Abscheidelagen als Tropfenabscheider und steigern die Kapazität der gesamten Packungskombinationen (Brinkmann et al., 2012). Obwohl der für die Trennverfahren vorteilhafte intensive Phasenkontakt der Anstaupackung bereits nachgewiesen wurde, fehlen verlässliche Auslegungsgrundlagen, welche die Leistungscharakteristik in Abhängigkeit von verschiedenen Geometrie- und Betriebsparametern vorhersagen können.

Zur Auslegung von Trennapparaten werden heutzutage rechnergestützte Modelle eingesetzt, wobei die Entwicklung eines entsprechenden Modells für die Beschreibung von Anstaupackungen aufgrund der hohen Komplexität des heterogenen Strömungsmusters eine besondere Herausforderung darstellt. Yildirim und Kenig (2015) entwickelten in einer vorangegangenen Studie ein Berechnungsmodell zur Bestimmung der Trennleistung von Anstaupackungen. Allerdings ist dieses Berechnungsmodell nicht in der Lage die Auswirkungen der verschiedenen fluiddynamischen Regime auf den Stofftransport zu berücksichtigen, da zum Zeitpunkt der Mo-

dellerstellung systematische Untersuchungen zum Einfluss der Betriebs- und Designparameter auf den Stofftransport und detaillierte Untersuchungen zur Fluidodynamik fehlten. Aufgrund des Mangels an veröffentlichten Daten insbesondere aus Trennleistungsmessungen konnte folglich keine Verifizierung der Modellgüte für verschiedene Geometrie- und Betriebsparameter erfolgen. Daher wurden in einem von der DFG geförderten Kooperationsprojekt der Universität Paderborn und der TU Dresden die Auswirkungen der einzelnen Strömungsregime auf die Fluidodynamik und den Stoffaustausch komplementär mit experimentellen und theoretischen Methoden untersucht. Für diesen Zweck wurden erstmalig Experimente an einer Absorptions-/Desorptionsanlage durch bildgebende Messungen der Strömung in Anstaupackungen ergänzt. An der Universität Paderborn wurde die CO₂-Absorption in einer Pilotanlage für verschiedene Design- und Betriebsparameter untersucht. Mithilfe der ultraschnellen Röntgentomographie wurde am Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf die Phasenverteilung innerhalb der Anstaupackung untersucht. Die Erkenntnisse und Daten aus den Untersuchungen mit beiden experimentellen Methoden dienen dazu ein prädiktiveres Modell zur Beschreibung der Fluidodynamik und des Stofftransports zu entwickeln.

Zur genaueren Zieldefinition der vorliegenden Arbeit werden in dem nachfolgenden Kapitel zunächst der Stand des Wissens und die für das Verständnis der Arbeit notwendigen Grundlagen aufgezeigt. Dieser Wissensstand beinhaltet zu Beginn die Charakterisierung und fluiddynamische Beschreibung von konventionellen Kolonneneinbauten für thermische Trennverfahren. Im Rahmen dieser Arbeit werden Anstaupackungen am Beispiel der reaktiven Absorption untersucht. Sowohl Anstaupackungen als auch die reaktive Absorption werden als Ansätze zur Prozessintensivierung verstanden und in dessen Zusammenhang ausführlich beschrieben. Darüber hinaus werden Konzepte zur Modellierung des Stofftransports dargelegt, die potenziell für die Beschreibung von Anstaupackungen bei der reaktiven Absorption in Frage kommen. Die sich aus dem Wissensstand ergebenden Schlussfolgerungen werden am Ende des nächsten Kapitels zusammengefasst, worauf aufbauend eine Konkretisierung der Zielstellung erfolgt und das Vorgehen bzw. die verwendeten Methoden thematisiert werden.

2 Stand des Wissens

2.1 Konventionelle Einbauten für thermische Trennapparate

Thermische Trennverfahren, wie Rektifikation, Absorption oder Desorption, werden eingesetzt, um gasförmige oder flüssige Gemische in ihre Bestandteile zu trennen. Die apparative Umsetzung dieser Trennverfahren wird meistens in Kolonnen realisiert, bei denen eine gas- bzw. dampfförmige und eine flüssige Phase kontinuierlich im Gegenstrom geführt werden. Um die beteiligten Phasen innerhalb der Kolonne gezielt in Kontakt zu bringen, werden Einbauten verwendet, die einen inhärenten Bestandteil von fluiden Trennapparaten darstellen und wesentlichen Einfluss auf deren Leistungscharakteristik haben.

Die konventionellen Kolonneneinbauten können in Böden und Füllkörper unterteilt werden, wobei sich Füllkörper wiederum in regellose Schüttungen und strukturierte Packungen klassifizieren lassen. Die Einbauten wirken sich sowohl auf das fluiddynamische Verhalten als auch auf die Trennleistung aus. Die Trennleistung bzw. die Trenneffizienz charakterisiert die Güte des Stofftransports zwischen den fluiden Phasen und bestimmt die Höhe der Kolonne, die für eine gegebene Trennaufgabe bzw. geforderte Reinheit benötigt wird.

Das fluiddynamische Verhalten von Einbauten lässt sich anhand der vorherrschenden Strömungsformen der Mehrphasenströmung und gewissen fluiddynamischen Parametern charakterisieren. Wichtige fluiddynamische Parameter sind der Druckverlust, der Flüssigkeitsinhalt und die Belastungsgrenzen. Diese fluiddynamischen Parameter können in Abhängigkeit von den Belastungsfaktoren beider Phasen beschrieben werden. Für den Gasbelastungs- bzw. F-Faktor F_G gilt:

$$F_G = \frac{\dot{V}_G}{A_K} \sqrt{\rho_G} = u_G \sqrt{\rho_G} \quad (2.1)$$

Die Belastung der flüssigen Phase wird als Berieselungsdichte u_L angegeben:

$$u_L = \frac{\dot{V}_L}{A_K} \quad (2.2)$$

Der Druckverlust der Gasphase ist eine sehr bedeutende Kenngröße für die Beurteilung von Einbauten. Er entsteht aufgrund von Strömungswiderständen und gibt Auskunft über die Dissipation der in der Strömung enthaltenen Energie. Der für das System nötige Energieeintrag, welcher einen wesentlichen Anteil bei den Betriebskosten ausmacht, ist maßgeblich vom Druck-

verlust abhängig. Bei Absorptionsprozessen bestimmt der Druckverlust die benötigte Leistung des Gebläses bzw. des Verdichters. Bei der Auslegung von Rektifikationsapparaten ergibt sich aus dem Druckverlust und dem Kopfdruk der Sumpfdruk und somit die Sumpftemperatur, wodurch folglich die Verdampferleistung festgelegt wird (Maćkowiak, 2003). Der absolute Druckverlust kann mit Hilfe von Druckmessstellen oberhalb und unterhalb der Einbauten experimentell bestimmt werden. Zur Beurteilung der Einbauten wird häufig der spezifische Druckverlust genutzt, der sich aus der absoluten Druckdifferenz entlang der Einbauten bezogen auf die Höhe der Einbauten ergibt:

$$\Delta p_H = \frac{\Delta p}{H_K} \quad (2.3)$$

Der Flüssigkeitsinhalt, auch Holdup h_L genannt, ist das Verhältnis von Flüssigkeitsvolumen, das sich innerhalb der Kolonne befindet, und einem Bezugsvolumen. Das Bezugsvolumen ist abhängig von den betrachteten Einbauten. Der Holdup wird für Vorhersagen von Druckverlust und Belastungsgrenzen verwendet. Außerdem spielt der Holdup bei der Dimensionierung von reaktiven Trennprozessen, bei denen Reaktionen und Trennvorgang in einem Apparat stattfinden, eine wichtige Rolle. Der Flüssigkeitsinhalt kann mit der sogenannten „Draining-Methode“ experimentell bestimmt werden (Behrens et al., 2006). Bei dieser Methode werden nach Erreichen eines stationären Betriebszustandes alle Ventile von Zu- und Ablauf beider Phasen geschlossen. Die Flüssigkeit sammelt sich folglich im Sumpf der Kolonne an. Anschließend kann das Volumen oder das Gewicht der Flüssigkeit bestimmt werden.

Sowohl bei Böden als auch bei Füllkörpern ist der Betriebsbereich durch verschiedene Belastungsgrenzen eingeschränkt. Grundlegend sind die minimalen Belastungsgrenzen von den maximalen Belastungsgrenzen zu unterscheiden. Mit den minimalen Grenzen geht lediglich ein Einbruch der Trenneffizienz einher. Die maximalen Kapazitätsgrenzen weisen, neben der erheblichen Minderung der Trennleistung und einem starken Anstieg des Druckverlusts, einen Zusammenbruch des Gegenstroms auf (Lohrengel, 2010).

Die Wahl und Dimensionierung der Einbauten ist ein wichtiger Auslegungsschritt, der in Abhängigkeit des betrachteten Trennverfahrens individuell erfolgen muss. Gemäß den Untersuchungen von Pilling und Holden (2009) gibt es nachfolgend aufgelistete Kriterien, die bei der Auswahl der eingesetzten Einbauten zu beachten sind:

- *Systemdruck*: Insbesondere bei Rektifikationsprozessen ist der Systemdruck ein Indikator für den Flüssigkeitsdurchsatz, wobei mit steigendem Druck der Flüssigkeitsdurchsatz zunimmt. Da strukturierte Packungen gegenüber Böden Vorteile bei niedrigeren Flüssigkeitsbelastungen (i.e., $< 50 \text{ m}^3 \text{m}^{-2} \text{h}^{-1}$) bieten, werden bei einem Systemdruck unterhalb von 2 bar bevorzugt Strukturpackungen eingesetzt.
- *Kolonnendurchmesser*: Bei Kolonnen, deren Durchmesser kleiner als 760 mm sind, gibt es praktische Einschränkungen für Böden und daher werden in diesem Fall Packungen bevorzugt verwendet.
- *Anzahl der flüssigen Phasen*: Wenn zwei flüssige Phasen vorhanden sind, neigen diese zur Entmischung, wodurch die Trenneffizienz verringert wird. Im Gegensatz zu Strukturpackungen bildet sich auf Böden ein hoch-turbulentes Strömungsregime, welches der Entmischung der Phasen entgegenwirkt. Das Ausmaß des potenziellen Problems ist stark

systemabhängig und sollte von Fall zu Fall beurteilt werden. Beim Vorliegen einer starken Entmischungsneigung von zwei Phasen werden Böden bevorzugt eingesetzt.

- *Thermische Produktzersetzung:* In Prozessen, bei denen thermische Degradation ein Problem darstellt, kann die Verwendung strukturierter Packungen zwei wesentliche Vorteile bieten. Erstens ist in strukturierten Packungen die Verweilzeit der Flüssigkeit geringer als die auf Böden, wodurch das Potenzial für die thermische Zersetzung geringer ist. Zweitens ermöglicht der geringere Druckverlust von Strukturpackungen niedrigere Sumpfdrucke und -temperaturen, wodurch ebenfalls das Zersetzungspotenzial kleiner ist.

2.1.1 Kolonnenböden

Bodenkolonnen können hinsichtlich der Flüssigkeitsführung in Kolonnen mit und ohne Zwangsführung unterteilt werden. Bei Kolonnen mit Zwangsführung, welche auch Querstromböden genannt werden, wird die flüssige Phase über Schächte von einem Boden zum nächsten geleitet. Hingegen fließen Gas- und Flüssigphase bei Dual-flow-Böden durch die selben Öffnungen eines Bodens.

In **Abbildung 2.1** ist die Führung der Phasen auf einem Querstromboden schematisch dargestellt. Bei Querstromböden fließt ausgehend von nach unten führenden Schächten ein flüssiges Gemisch horizontal auf einen Boden. Auf dem Boden tritt die flüssige Phase im Kreuzstrom mit der Gasphase in Kontakt. Nachdem die Flüssigkeit den Boden passiert hat, strömt sie über ein Wehr in einen weiteren Schacht, der die Flüssigkeit zum darunterliegenden Boden führt. Die Gasphase gelangt auf einen Boden durch die Gasdurchtrittsöffnung. Zwischen zwei Böden befindet sich oberhalb des Kontaktbereichs beider Phasen ein nicht-trennaktiver Bereich, durch den die Gasphase nach Austritt aus dem Kontaktbereich zum darüberliegenden Boden gelangt.

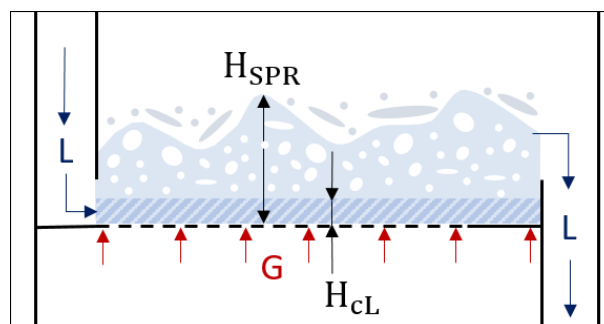


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der Strömungsführung auf einem Querstromboden (Siebboden).

Mögliche Bauformen der Gasdurchtrittsöffnung sind z.B. Siebe, Glocken und Ventile. Glocken sind im Vergleich zu den anderen Gasdurchtrittsöffnungen durch hohe Anschaffungskosten und durch einen relativ hohen Druckverlust gekennzeichnet. Jedoch verhindern Glocken konstruktiv ein Durchregnen und werden bei stark veränderlichen Gasmengen sowie bei hoher Verschmutzungsneigung eingesetzt. Hingegen sind Siebe aufgrund ihrer einfachen konstruktiven Gestaltung durch geringe Anschaffungskosten und einen vergleichsweise geringen Druckverlust

gekennzeichnet. Ventile können durch einen variabel einstellbaren Querschnitt der Gasdurchtrittsöffnung an die jeweiligen Gasbelastungen angepasst werden und ordnen sich hinsichtlich Druckverlust und Anschaffungskosten zwischen Sieben und Glocken ein (Stichlmair, 1978).

Abbildung 2.2 zeigt ein typisches Belastungskennfeld eines Querstrombodens. Der Betriebsbereich ist durch die minimalen und maximalen Belastungsgrenzen eingegrenzt. Die minimalen Belastungsgrenzen sind die Wehrüberlaufgrenze und die Durchregengrenze. Die Wehrüberlaufgrenze ist durch eine minimale Flüssigkeitsbelastung gekennzeichnet, bei der ein gleichmäßiger Flüssigkeitsüberlauf über alle Wehre nicht sichergestellt ist. Unterhalb der Durchregengrenze werden nicht mehr alle Gasdurchtrittsöffnungen eines Bodens vom Gas durchströmt, weshalb die Flüssigkeit durch diese Öffnungen hindurch regnet. Die maximalen Belastungsgrenzen eines Querstrombodens sind die Schachtstaugrenze und die Flutgrenze. Bei zu hoher Flüssigkeitsbelastung wird die Schachtstaugrenze erreicht, bei der sich die Flüssigkeit in den Schächten anstaut und der Gegenstrombetrieb folglich zusammenbricht. Für eine gegebene Flüssigkeitsbelastung kommt es bei zu hohen Gasbelastungen zum Fluten. Hierbei hindern die Reibungskräfte der Gasphase die Flüssigkeit beim Abfließen. Der Gegenstrombetrieb bricht ebenfalls zusammen und die Kolonne läuft folglich mit Flüssigkeit voll (Lohrengel, 2010).

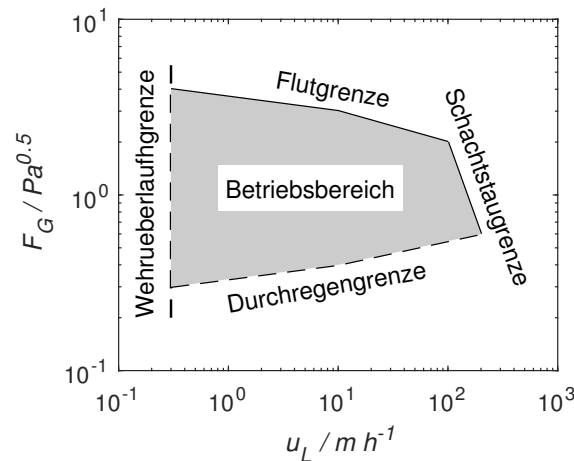


Abbildung 2.2: Typisches Belastungskennfeld für Querstromböden.

Im Betriebsbereich von Bodenkolonnen können sich unterschiedliche Strömungsregime in Abhängigkeit der Betriebsbedingungen, des Stoffsystems und der konstruktiven Gestaltung des Bodens ausbilden. In der Arbeit von Zuiderweg (1982) wird eine Aufteilung in drei Strömungsregime vorgenommen, welche in **Abbildung 2.3** schematisch dargestellt sind. Es wird unterschieden zwischen Blasen-, Sprudel- und Tropfenregime.

Blasenregime bilden sich bei hohen Flüssigkeitsbelastungen, hohen Flüssigkeitsschichten auf den Böden und sehr niedrigen Gasbelastungen in Verbindung mit hohen Drücken bzw. einer hohen Gasdichte. Die Gasphase liegt dispers in einer kontinuierlichen Flüssigkeit vor. Das Blasenregime wird meist mit der Hochdruckrektifikation in Verbindung gebracht (Wijn, 1999). Ausgehend vom Blasenregime wechselt mit steigender Gasgeschwindigkeit die Dispersion zu einem Sprudelregime, das bei der Mehrheit der industriellen Anwendungen von Bodenkolonnen angetroffen wird (Kister, 1992). Aufgrund von Dispergierungs- und Koaleszenzvorgängen liegt in der Sprudelschicht eine breite Verteilung der Blasengröße vor. Aus den unterschiedlichen

Durchmessern der einzelnen Blasen resultiert eine Verteilung der Aufstiegsgeschwindigkeit. In Sprudelregimen ist die Phasenverteilung durch sowohl enorme zeitliche als auch örtliche Änderungen gekennzeichnet. Hechler und Mersmann (1986) unterteilen die Sprudelschicht in verschiedene Zonen. Beginnend mit einer Bildungszone folgt eine darüber liegende Bulk-Zone. Oberhalb der eigentlichen Sprudelschicht wechseln die gasförmige- und flüssige Phase das disperse bzw. kontinuierliche Verhalten. Aus der Sprudelschicht werden von der Gasphase Tropfen mitgerissen. Dieser Tropfenmitriss wird als „Entrainment“ bezeichnet. In Sprudelschichten wird die Phasengrenze stetig erneuert und es bilden sich keine dicken Konzentrationsgrenzschichten, was sich positiv auf den Stofftransport auswirkt (Stichlmair, 1978).

Tropfenregime bilden sich bei niedrigen Flüssigkeitsbelastungen, niedrigen Flüssigkeitsschichten auf den Böden und hohen Gasbelastungen in Verbindung mit niedrigen Drücken (Wijn, 1999). In Tropfenregimen liegt die flüssige Phase dispers und die Gasphase kontinuierlich vor. Meist befindet sich auf dem Boden eine mit geringer Höhe ausgebildete Sprudelschicht (Kister, 1992). Tropfenregime werden gegenüber Blasenregimen häufiger bei industriellen Anwendungen angetroffen (Stichlmair, 1978).

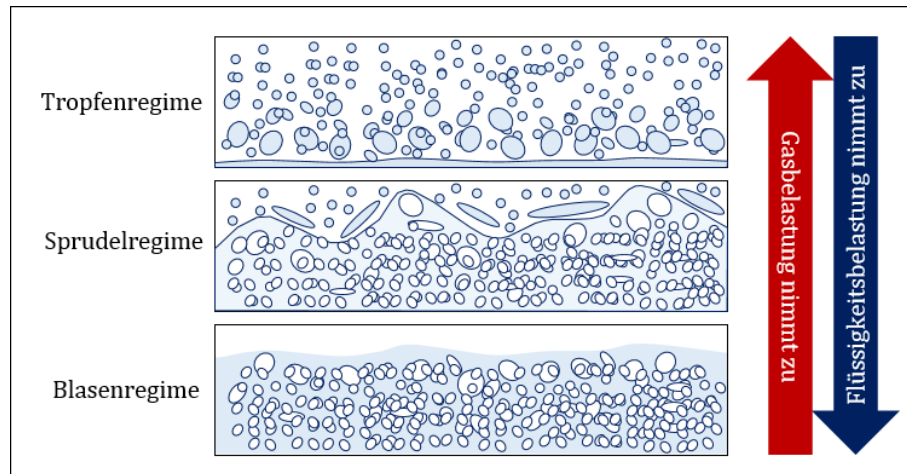


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der Strömungsregime auf Böden in Abhängigkeit der Fluidbelastungen.

Der Flüssigkeitsinhalt auf einem Boden wird durch das Verhältnis der Höhe der klaren Flüssigkeitsschicht H_{cL} und der Dispersions- bzw. Sprudelschichthöhe H_{SPR} (vgl. **Abbildung 2.1**) bestimmt (Lockett, 2009):

$$h_L = \frac{H_{cL}}{H_{SPR}} \quad (2.4)$$

Die Höhe der klaren Flüssigkeitsschicht ist die Höhe, auf welche die vom Gas durchströmte Flüssigkeit bei Abwesenheit des Gases zurückfallen würde. Die Höhe der klaren Flüssigkeitsschicht wird bei Vorhersagen der Trennleistung, der Kapazitätsgrenzen, des Druckverlusts und des Entrainments verwendet (Kister, 1992). Bei zweiphasigen Systemen lässt sich der Gasholdup h_G in der Sprudelschicht folgendermaßen ermitteln:

$$h_G = 1 - h_L \quad (2.5)$$

Zur Bestimmung des Druckverlusts in Bodenkolonnen wird häufig ein additiver Ansatz verwendet, bei dem sich der gesamte Druckverlust aus dem trockenen Druckverlust, dem Druckverlust, der beim Durchdringen der klaren Flüssigkeitsschicht vom Gas entsteht und einem Restdruckverlust zusammensetzt (Lockett, 2009):

$$\Delta p_{Ges} = \Delta p_{tr} + \Delta p_{hs} + \Delta p_r = \Delta p_{tr} + H_{cL} \cdot \rho_L \cdot g + \Delta p_r \quad (2.6)$$

Der Druckverlust, der beim Durchdringen der Flüssigkeitsschicht entsteht Δp_{hs} , wird durch die hydrostatische Druckdifferenz bestimmt, die aus dem Produkt von klarer Flüssigkeitshöhe, Gravitationskonstante und der Dichte der flüssigen Phase berechnet wird. In Anlehnung an den Druckverlust eines Rohres wird der trockene Druckverlust Δp_{tr} mittels auf Widerstandsbeiwerten basierenden Korrelationen berechnet. Der Restdruckverlust Δp_r kann interpretiert werden als der Druckverlust, der entsteht, um die Oberflächenspannung zu überwinden, damit Blasen an der Gasdurchtrittsöffnung gebildet werden (Bennett et al., 1983).

2.1.2 Strukturierte Packungen

In Strukturpackungen treten die im Gegenstrom geführten Phasen ständig in Kontakt, wodurch ein kontinuierlicher Stoffaustausch sichergestellt wird. Heutzutage werden Strukturpackungen je nach Applikation aus Keramik, Kunststoff, Karbon, Drahtgewebe oder Blech gefertigt. Der am häufigsten angewendete Packungstyp ist durch eine Faltblattstruktur gekennzeichnet (Brinkmann, 2014). Hierbei besteht eine Lage der strukturierten Packung aus parallel angeordneten, in Faltblatt-Struktur gewellten Blechen (**Abbildung 2.4** links). Ein wichtiger Designparameter ist die geometrische Oberfläche, die maßgebend für die sich ausbildende Phasengrenzfläche zwischen Gas- und Flüssigphase ist. Die gewellten Blechlagen bilden dreieckige Kanäle, die anhand eines hydraulischen Durchmessers d_h charakterisiert werden können. Der hydraulische Durchmesser eines Dreieckskanals ergibt sich aus der geometrischen Oberfläche a_{geo} und dem Leerraumvolumenanteil ε der Packung:

$$d_h = \frac{4 \cdot V_P}{O_P} = \frac{4 \cdot \varepsilon}{a_{geo}} \quad (2.7)$$

In **Abbildung 2.4** (rechts) ist eine schematische Darstellung der Wellblechstruktur und die resultierenden Strömungsrichtungen beider Phasen illustriert. Der Winkel der Faltblattstruktur zur Vertikalen α_p beträgt bei konventionellen Strukturpackungen meist 45° oder 60° , wobei mit einem höheren Neigungswinkel ein geringerer Druckverlust einhergeht. Jedoch verringert sich gleichzeitig mit steigendem Neigungswinkel die Trennleistung.

Die Strömungsrichtung der Gasphase entspricht dem Verlauf der Dreieckskanäle. Die Gasphase wird an den Kolonnenwänden und an den Übergängen zwischen zwei aufeinander angeordneten Packungslagen in den nachfolgenden Dreieckskanal umgelenkt. Der Winkel der Richtungsänderung an den Übergängen der Packungslagen ergibt sich durch eine Addition der Winkel an der Unterkante und Oberkante:

$$\alpha_{Pu} = \alpha_{Unterkante} + \alpha_{Oberkante} \quad (2.8)$$

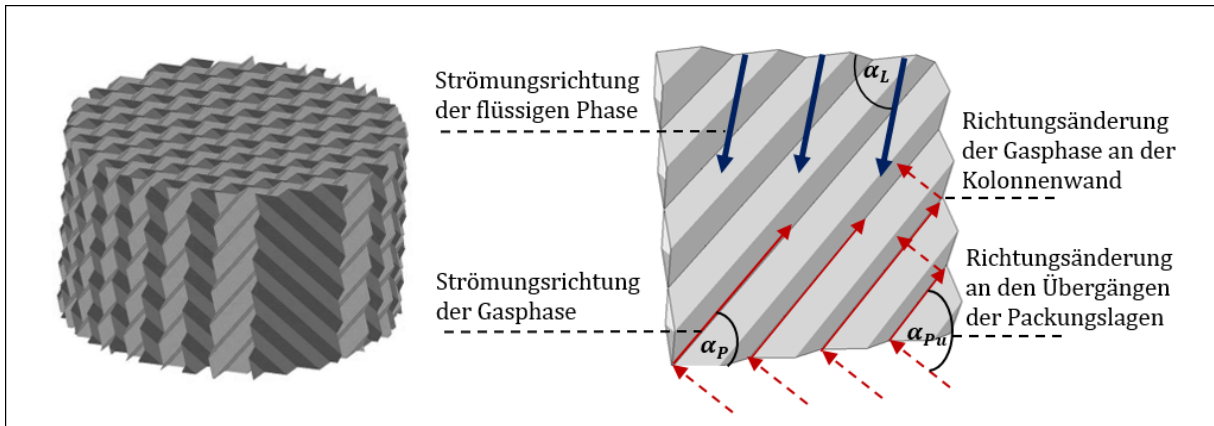


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung einer strukturierten Packung (Hüser, 2017) (links) sowie schematische Darstellung der Strömungsrichtungen beider Phasen auf der Faltblatt-Struktur (rechts).

Die Gasströme von benachbarten Dreieckskanälen vermischen sich, wodurch eine radiale Verteilung entsteht (Zogg, 1973). Lautenschleger et al. (2015) untersuchten die Gasströmung in strukturierten Packungen mit CFD-Methoden (Computational Fluid Dynamics). **Abbildung 2.5** zeigt Strömungslinien der Gasphase in einem Querschnitt der Dreieckskanäle basierend auf CFD-Simulationsergebnissen. Die simulierten Stromlinien der Gasphase zeigen einen Drall, der durch den Neigungswinkel der Kanäle und durch die Gas-Gas-Interaktionen an der offenen Seite der dreieckigen Kanäle verursacht wird. Des Weiteren geht aus dem Strömungsprofil hervor, dass die maximale Geschwindigkeit in der Kanalmitte vorliegt.

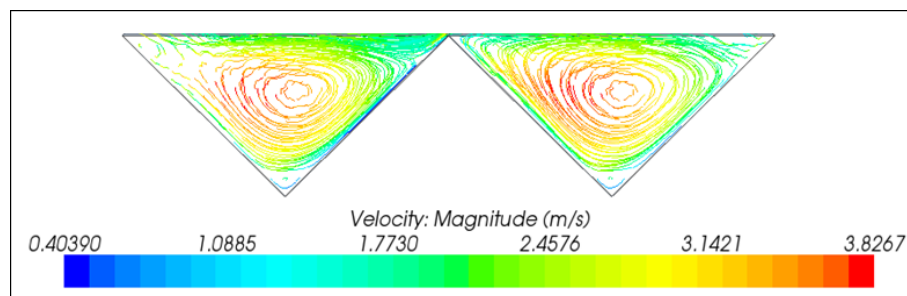


Abbildung 2.5: CFD-Simulationsergebnisse der einphasigen Gasströmung in den Dreieckskanälen von strukturierten Packungen (Lautenschleger et al., 2015).

Die von der Schwerkraft getriebene Flüssigkeit benetzt die Oberfläche der Wellbleche. Entscheidend für eine hohe Trennleistung ist eine gleichmäßig verteilte Benetzung. Experimentelle und numerische Untersuchungen der flüssigen Phase in strukturierten Packungen von Subramanian und Wozny (2012) zeigen eine Abhängigkeit der Benetzung und des effektiven Fließwinkels vom Flüssigkeitskontaktwinkel bzw. von der Oberflächenspannung. Bei wässrigen Systemen, die eine höhere Oberflächenspannung als organische Flüssigkeiten aufweisen, wird die Packungsoberfläche nicht vollständig von der Flüssigkeit benetzt. Um die mit Flüssigkeit benetzte Oberfläche zu vergrößern werden die Wellbleche mit Löchern und Prägungen versehen (Nicolaiewsky und Fair, 1999).

Die in **Abbildung 2.6** gezeigten Strömungsmuster der flüssigen Phase resultieren aus CFD-Simulationen, die für verschiedene Flüssigkeitsbelastungen mit dem Stoffsystem Wassers/Luft in einem periodischen Packungselement durchgeführt wurden (Olenberg und Kenig, 2020). Das periodische Element hat eine geometrischen Oberfläche von $250 \text{ m}^2 \text{m}^{-3}$ und besteht aus einem Ausschnitt von zwei benachbarten Wellblechlagen. Die Flüssigkeit ist auf der hinteren Wellblechlage mit einer Kanalarientierung von rechts oben nach links unten in blau gekennzeichnet, während die Flüssigkeit auf der vorderen Wellblechlage mit einer Kanalarientierung von links oben nach rechts unten in rot dargestellt ist. Generell lässt sich feststellen, dass sich die Benetzung mit zunehmender Flüssigkeitsbelastung verbessert. Jedoch wird die Packungsoberfläche trotz ideal eingestellter Eintrittsbedingungen selbst bei hohen Flüssigkeitsbelastungen nicht vollständig benetzt. Im oberen Teil des periodischen Elements folgt die Flüssigkeit den Packungskanälen in Form eines Rinnsals. Im mittleren Bereich des periodischen Elements befindet sich ein Kontaktpunkt der beiden Wellblechlagen, an dem sich die Rinnsale treffen und vermischen. Ausgehend von der Kontaktstelle stellt sich ein durchschnittlicher Fließwinkel der Flüssigkeit von ca. 60° zur Horizontalen ein (Olenberg und Kenig, 2020).

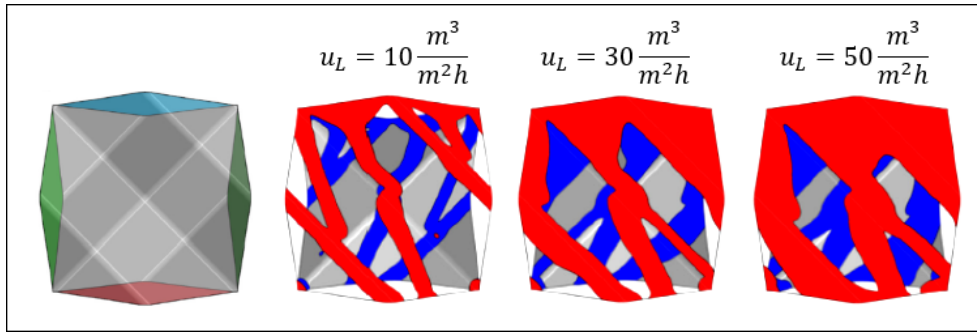


Abbildung 2.6: CFD-Simulationsergebnisse der Flüssigkeitsströmung in einem periodischen Element von strukturierten Packungen für verschiedene Berieselungsdichten (Olenberg und Kenig, 2020).

Vereinfachend wird in der hier vorliegenden Arbeit angenommen, dass der effektive Fließwinkel der flüssigen Phase (vgl. **Abbildung 2.4** rechts) ein gemittelter Winkel ist, der sich aus dem Neigungswinkel der Packungskanäle und der vertikal wirkenden Schwerkraft ergibt:

$$\alpha_L = \frac{\alpha_P + 90^\circ}{2} \quad (2.9)$$

Der Holdup h_L in Packungen wird im Gegensatz zu Böden anhand des gesamten Flüssigkeitsvolumen bezogen auf das Kolonnenvolumen definiert:

$$h_L = \frac{V_L}{V_K} \quad (2.10)$$

Mit steigendem Holdup verringert sich die für die Gasphase freie Kolonnenquerschnittsfläche, wodurch bei konstantem Gasvolumenstrom der Druckverlust erhöht wird. Im Gegenstrom ergibt sich der effektive Leerraumanteil ε_{eff} aus dem Leerraumanteil der Einbauten und dem Holdup:

$$\varepsilon_{eff} = \varepsilon - h_L \quad (2.11)$$

Stichlmair und Fair (1998) unterscheiden zwischen einem statischen und einem dynamischen Anteil des Holdups. Der statische Holdup entsteht aufgrund von Kapillarkräften und stellt einen Flüssigkeitsanteil dar, der nicht aktiv am Stoffaustausch beteiligt ist. Der dynamische Flüssigkeitsinhalt bezieht sich hingegen auf den Flüssigkeitsanteil, der sich lokal kontinuierlich erneuert und aktiv am Stoffaustausch teilnimmt.

Im Gegenstrombetrieb kommt es bei beiden Phasen zur Maldistribution, wobei zwischen radialer und axialer Maldistribution unterschieden wird (Schwartz und Smith, 1953). Die Maldistribution wirkt sich negativ auf die Trennleistung aus. An der Kolonnenwand ist der Leerraumvolumenanteil höher als im Kern der Kolonne. Daher ist der Strömungswiderstand nahe der Kolonnenwand geringer als der im Inneren der Kolonne, wodurch insbesondere die Gasphase zu einer Randgängigkeit neigt. Um der Maldistribution entgegenzuwirken werden die einzelnen Lagen einer strukturierten Packung in der Regel um 90° zueinander versetzt aufeinander in die Kolonne eingebaut. Zusätzlich werden die Packungslagen mit Wandabweiser versehen, welche die Phasen von der Kolonnenwand in das Innere der Kolonne leiten.

Mit der Kolonnenwand wird zudem der sogenannte Wandeffekt assoziiert, der den Einfluss der Kolonnenwand auf die Kapazität und den Druckverlust beschreibt. Dieser Einfluss ist umso bedeutender, je größer das Verhältnis von Kolonnenwandfläche zu Kolonnenvolumen ist. Mit kleiner werdendem Kolonnendurchmesser nimmt dieses Verhältnis und somit der Wandeffekt zu, wodurch sich die Kapazität verringert und der Druckverlust zunimmt (Olujić, 1999). Um den Einfluss der Kolonnenwand auf die Flüssigkeitsströmung zu berücksichtigen, wird in der vorliegenden Arbeit die spezifische Oberfläche a_{spez} verwendet, welche die geometrische Oberfläche der Packung und die Oberfläche der Kolonnenwand berücksichtigt:

$$a_{spez} = a_{geo} + \frac{\pi \cdot d_K \cdot H_K}{\frac{\pi}{4} \cdot d_K^2 \cdot H_K} = a_{geo} + \frac{4}{d_K} \quad (2.12)$$

Der Einfluss des Wandeffekts auf die Gasphase wird über den sogenannten Wandefflussparameter K_w berücksichtigt (Maćkowiak, 2003):

$$K_w = 1 - \frac{d_h}{d_K} \quad (2.13)$$

Abbildung 2.7 zeigt ein typisches Belastungskennfeld für Strukturpackungen. Der Betriebsbereich ist einerseits durch die Entnetzungsgrenze eingegrenzt, die eine minimale Belastungsgrenze darstellt. Unterhalb einer gewissen Berieselungsdichte ist die Benetzung derart gering, sodass die Trennleistung einbricht. Andererseits stellt die Flutgrenze die obere Belastungsgrenze dar. Mit steigender Berieselungsdichte verschiebt sich der F-Faktor am Flutpunkt zu geringeren Werten. Am Flutpunkt sind das Anstauen der Flüssigkeit und das Entrainment derart stark, sodass ein geordneter Gegenstrombetrieb nicht mehr gewährleistet ist. (Lohrengel, 2010).

Der Betriebsbereich von konventionellen Strukturpackungen kann in zwei Belastungsbereiche unterteilt werden, die durch die Gasbelastungen am Stau- und Flutpunkt eingegrenzt sind. Bei Gasbelastungen unterhalb des Staupunktes sind die Wechselwirkungen der beiden Phasen eher schwach, wohingegen im Belastungsbereich zwischen dem Stau- und Flutpunkt die Wechselwirkungen zwischen den Phasen intensiver sind. In **Abbildung 2.8** sind qualitative Verläufe des Druckverlusts (a) und des Holdups (b) einer Strukturpackung für zwei verschie-

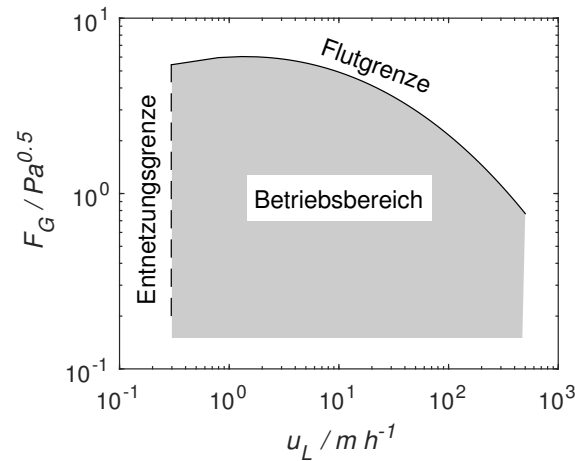


Abbildung 2.7: Typisches Belastungskennfeld für Strukturpackungen.

dene Berieselungsdichten dargestellt. Es ist ersichtlich, dass ein Zusammenhang zwischen den charakteristischen Verläufen von Druckverlust und Holdup besteht. Im Bereich niedriger Werte des F-Faktors steigt der Druckverlust nur geringfügig. Der Holdup scheint hier unabhängig von der Gasbelastung zu sein und nimmt für eine gegebene Flüssigkeitsbelastung einen konstanten Wert an. Aufgrund der Interaktionen beider Phasen wird die Flüssigkeit ab dem Staupunkt zunehmend verzögert und der Holdup steigt stetig. Zudem ist ein stärkeres Ansteigen des Druckverlusts zu beobachten. Bei Gasbelastungen nahe des Flutpunkts kommt es infolge eines vermehrten Aufstauens der Flüssigkeit zu einem rapiden Anstieg im Holdup-Profil, wodurch sich der Strömungswiderstand für die Gasphase enorm erhöht. Dies ist mit einem extremen Druckverlustanstieg verbunden. Mit steigender Berieselungsdichte folgt eine Erhöhung der Werte von Druckverlust und Holdup. Zudem kann eine Verschiebung von Staupunkt und Flutpunkt hin zu geringeren Werten der Gasbelastung beobachtet werden. Dies ist darauf zurückzuführen, dass aufgrund des geringeren freien Strömungsquerschnitts bei kleineren Gasvolumenströmen vermehrte Wechselwirkungen zwischen den Phasen auftreten.

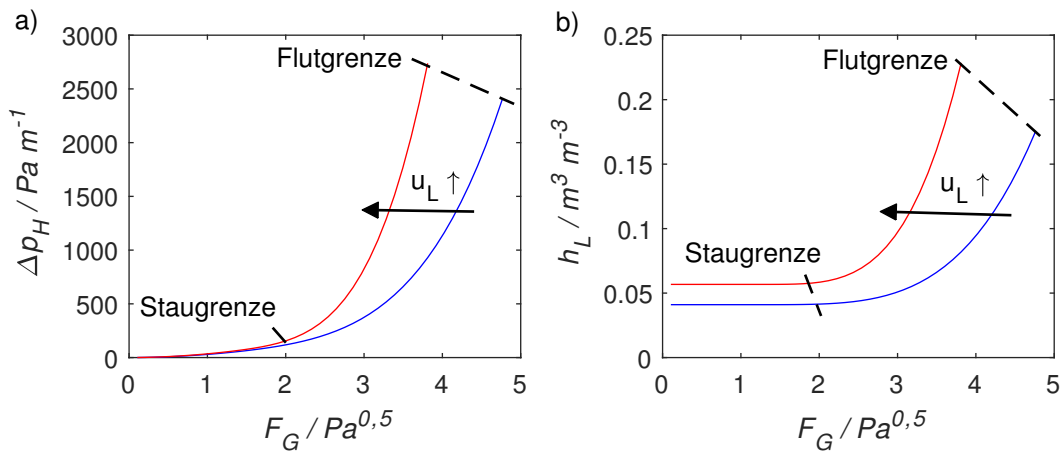


Abbildung 2.8: Profile von Druckverlust (a) und Holdup (b) einer strukturierten Packung in Abhängigkeit des F-Faktors für zwei verschiedene Berieselungsdichten.

Der Flutvorgang in Strukturpackungen resultiert gemäß den Untersuchungen von Bender und Moll (2003) aus einer Überlagerung von zwei Effekten, die an den Übergängen von zwei aufeinanderfolgenden Packungslagen auftreten. Zum einen bilden sich an den Übergängen Flüssigkeitsakkumulationen, da die Packungslagen zueinander verdreht sind und nur ein eingeschränkter Kontakt zwischen den Packungslagen besteht. Dadurch wird das Abfließen der Flüssigkeit verzögert. Zum anderen wird die Gasphase an den Übergängen umgelenkt, wodurch es zu Verwirbelungen kommt und intensive Interaktionen mit der Flüssigkeit resultieren.

Die experimentelle Bestimmung der F-Faktoren an den Stau- und Flutpunkten einer Strukturpackung kann anhand gemessener Druckverlust-Profile erfolgen. Nach Verschoof et al. (1999) kann die Gasbelastung am Staupunkt aufgrund der sich ändernden Steigung im Druckverlustprofil relativ leicht abgelesen werden. Hingegen wird die Bestimmung der Gasbelastung am Flutpunkt dadurch erschwert, dass es keine einheitliche Definition des Flutpunkts gibt (Kister, 1992). Die Bestimmung des F-Faktors am Flutpunkt kann ebenfalls aus gemessenen Druckverlustprofilen erfolgen, wobei die Gasbelastung am Flutpunkt an einem festgelegten Wert des Druckverlusts abgelesen wird. Rocha et al. (1993) legen den Wert für den Druckverlust am Flutpunkt bei ungefähr 1000 Pa/m fest. Im Gegensatz dazu zeigen Gualito et al. (1997) Druckverlustwerte am Flutpunkt von 3000 Pa/m und höher. In Untersuchungen zum Fluten in Strukturpackungen mit verschiedenen Stoffsystemen stellten Lockett et al. (2006) eine proportionale Abhängigkeit des Druckverlusts am Flutpunkt von der Dichte der flüssigen Phase fest.

2.2 Ansätze zur Prozessintensivierung

Ein wichtiger Trend in der verfahrenstechnischen Forschung ist unter dem Begriff *Prozessintensivierung* zusammengefasst. Das Ziel der Prozessintensivierung, wie es bereits in den späten 1970er Jahren formuliert wurde, ist die Steigerung der ökonomischen und ökologischen Effizienz chemischer Produktionswege (Becht et al., 2009). Die Maßnahmen zur Prozessintensivierung lassen sich in vier fundamentale Ebenen gliedern (Górak und Stankiewicz, 2011):

- Auf der *thermodynamische Ebene* spielt der Einsatz von alternativen Energieformen eine wichtige Rolle, um Zielmoleküle gezielt zu aktivieren und eine selektive, gradientenfreie Energiezufuhr zu ermöglichen.
- Auf der *zeitlichen Ebene* werden Prozessschritte zeitlich beeinflusst, um unerwünschte Phänomene wie z.B. Fouling zu minimieren.
- Die *räumliche Ebene* hat den Schwerpunkt eine strukturierte Prozessumgebung zu schaffen. Mittels definierten Geometrien sollen insbesondere ein hoher Stoff- und Energietransport und ein leichtes Scale-up erzielt werden.
- Die *funktionale Ebene* zielt auf die Nutzung von Synergieeffekten ab, um Effizienzsteigerungen und kleinere Apparate zu realisieren. Ein bewährtes Mittel auf dieser Ebene ist die *Prozessintegration*.

In **Abbildung 2.9** werden beispielhaft Ansätze zur Prozessintensivierung dargestellt, die sich der räumlichen und funktionalen Ebene zuordnen lassen. Auf der Seite der funktionalen Ebene

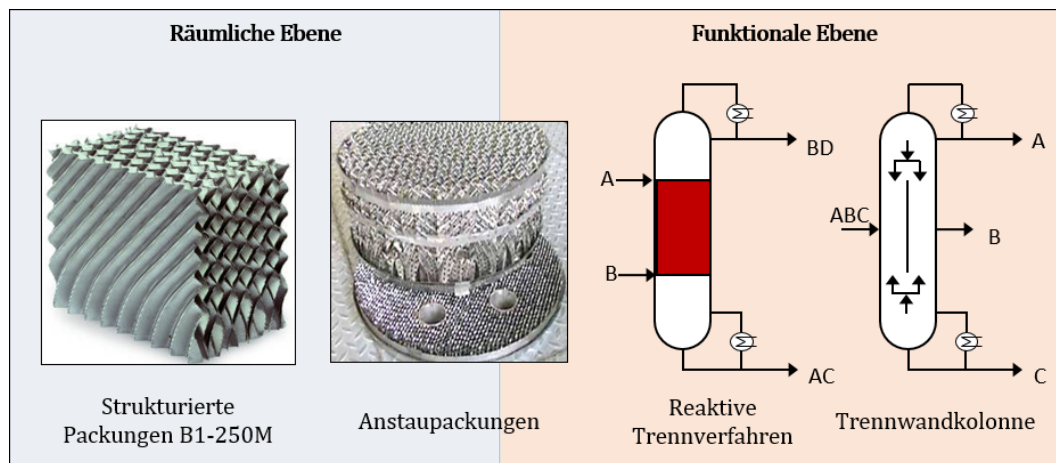


Abbildung 2.9: Ansätze zur Prozessintensivierung auf räumlicher und funktionaler Ebene.

ist von rechts beginnend die *Trennwandkolonne* dargestellt, bei der eine Integration von zwei Trennschritten in einem Apparat realisiert wird. Für die scharfe Trennung von Mehrkomponentengemischen wird meist eine Sequenz von Rektifikationsschritten benötigt. Im Falle von drei Komponenten sind mindestens zwei Kolonnen erforderlich. Durch den Einsatz von Trennwandkolonnen können Gemische aus drei Komponenten in Leicht-, Mittel- und Schwertsieder in lediglich einem Apparat aufgetrennt werden und zusätzlich wird durch die Wärmeintegration eine Energieeinsparung gegenüber einer Sequenz von Kolonnen erzielt (Yildirim et al., 2011). Bei den *reaktiven Trennverfahren* werden chemische Reaktionen und Trennverfahren in einem Apparat gekoppelt, wodurch gegenüber konventionellen Verfahren gesteigerte Umsätze und eine Erhöhung der Selektivität durch die Unterdrückung von Folgereaktionen erreicht werden können. Zudem werden mit diesem integrativen Ansatz sowohl die Anzahl der benötigten Apparate als auch die für die Trennung erforderliche Höhe der Apparate reduziert. Damit können die Investitionskosten im Vergleich zu einer Sequenz von Synthese und Trennverfahren gesenkt werden (Kenig et al., 2005). Eine Einteilung der reaktiven Trennverfahren kann basierend auf den Grundoperationen (Hoffmann und Sundmacher, 1997) oder den beteiligten physikalischen Phasen (Agar, 1999) erfolgen. Ein weiteres Kriterium, welches zur Klassifizierung herangezogen werden kann, ist die Art der Katalyse der chemischen Reaktion (Brinkmann, 2014). Es wird unterschieden zwischen:

- nicht-katalysierten Reaktionen
- homogen-katalysierten Reaktionen in der flüssigen Phase
- heterogen-katalysierten Reaktionen von Bestandteilen der flüssigen Phase an einem festen Katalysator
- heterogen-katalysierten Reaktionen von Bestandteilen der Gasphase an einem festen Katalysator

Auf der räumlichen Ebene sind die Einbauten von Trennverfahren häufig Gegenstand der Prozessintensivierungsansätze. In den vergangenen Jahrzehnten gab es enorme Bemühungen zur Entwicklung verbesserter Einbauten (Olujić et al., 2003). Diese Bemühungen führten z.B.

zur Entwicklung von Hochleistungspackungen (z.B. Montz Packung B1-250M; vgl. **Abbildung 2.9** links). Bei Hochleistungspackungen ändert sich im unteren Bereich der Packungslage der Neigungswinkel gleichmäßig von 45° auf 90° . Dadurch wird der Druckverlust verringert, der am Übergang zwischen zwei Packungslagen entsteht, und die Kapazität erhöht (Olujić et al., 2003). Eine weitere vielversprechende Entwicklung im Bereich der Einbauten ist die Anstaupackung.

2.2.1 Anstaupackungen

Das Konzept der Anstaupackung wurde in einer Zusammenarbeit der Julius Montz GmbH, der BASF AG und der TU Karlsruhe erarbeitet (Kaibel et al., 2000). Im Rahmen der Kooperation wurde eine teilweise geflutete Packung entwickelt, um die Verbesserung der Trennleistung im Bereich zwischen dem Stau- und Flutpunkt von strukturierten Packungen nutzbar zu machen. Die Verbesserung der Trennleistung in diesem Belastungsbereich beruht auf den verstärkten Wechselwirkungen zwischen beiden fluiden Phasen. Kolonnen mit strukturierten Packungen werden häufig unterhalb oder nahe des Staupunktes betrieben, um hydraulische Stabilität zu gewährleisten. Diese Einschränkung kann durch die Anwendung von Anstaupackungen überwunden werden.

In **Abbildung 2.10** ist schematisch der Aufbau der Anstaupackung und die vorherrschenden Strömungsmuster im Anstaubetrieb dargestellt. Wie bereits in **Abschnitt 1** erwähnt werden im Anstaubetrieb die Anstaulagen, welche in etwa ein Viertel der Höhe der Abscheidelagen aufweisen, gezielt vollständig geflutet. Hingegen werden die Abscheidelagen teilweise geflutet, wodurch Sprudelregime und rieselfilmartige Strömungsmuster in einer Abscheidelage koexistieren.

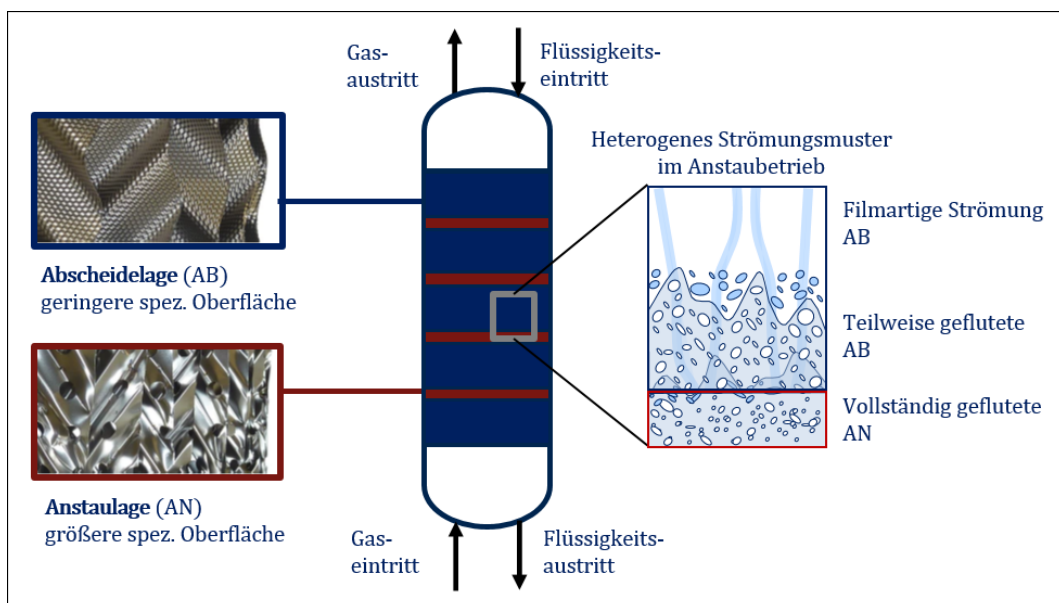


Abbildung 2.10: Aufbau von Anstaupackungen und Strömungsmuster im Anstaubetrieb.

Geometrischer Aufbau

In **Abbildung 2.11** (a) wird ein Foto eines Anstaupackungselements gezeigt, welches aus einer Anstaulage und einer darüber angeordneten Abscheidelage besteht. **Abbildung 2.11** (b) zeigt schematisch ein Anstaupackungselement mit Angaben zu den Höhen und Durchmessern. Vom Sumpf der Kolonne beginnend wird eine Abscheidelage in die Kolonne eingesetzt. Oberhalb der untersten Abscheidelagen werden entsprechend der Höhe der Kolonne mehrere Anstaupackungselemente eingebaut. Während die Lagen von konventionellen Strukturpackungen zueinander um 90° versetzt in Kolonnen eingebracht werden, können Anstaupackungen mit unterschiedlichen relativen Verdrehungen der einzelnen benachbarten Packungslagen eingebaut werden. In den ersten experimentellen Untersuchungen mit Anstaupackungen (Kaibel et al. (2000); Kashani (2002)) wurden alle Packungslagen mit einem Winkelversatz von 90° zueinander eingebaut. Diese Konfiguration wird in der vorliegenden Arbeit als *Konfiguration A* bezeichnet. Für nachfolgende experimentelle Untersuchungen wurde jedoch eine andere Konfiguration gewählt, nämlich, dass die Lagen eines Anstaupackungselements, bestehend aus einer Anstaulage und einer darüber angeordneten Abscheidelage, mit gleicher Orientierung in die Kolonne eingesetzt wurden, während nachfolgende Anstaupackungselemente mit dem oben genannten Versatz eingebaut wurden. Diese Konfiguration wird als *Konfiguration B* bezeichnet.

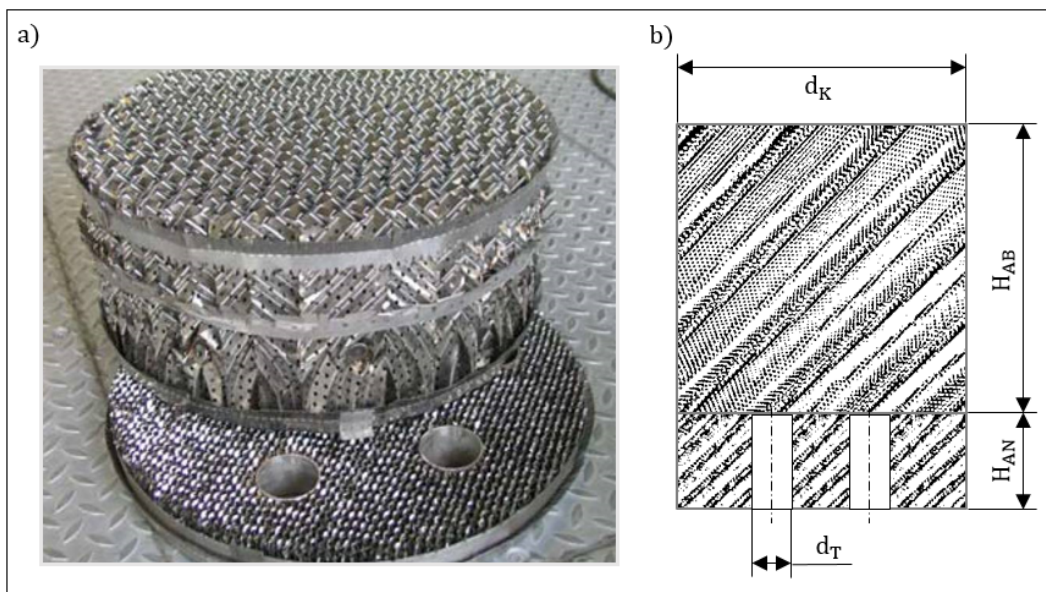


Abbildung 2.11: Foto einer Anstaupackung (a) (Jödecke et al., 2006) und schematische Darstellung einer Anstaupackung mit Angabe der Höhen und Durchmesser (b).

In Scale-up-Untersuchungen zeigte sich, dass sich in Kolonnen, ab einem Kolonnendurchmesser von 600 mm (DN600), kein vorteilhaftes Sprudelregime ausbildet (Jödecke et al., 2006). Stattdessen strömen beide Phasen in verschiedenen Bereichen des Kolonnenquerschnitts und ohne gewünschten Kontakt aneinander vorbei. Um dieser Problematik zu begegnen, wurden in die Anstaulagen sogenannte Töpfchen implementiert. Auf die Verwendung von Töpfchen wird durch ein „T“ in der Packungsbezeichnung hingewiesen (z.B. B1-750T). Wie in **Abbildung 2.11** (a) zu sehen ist, sind die Töpfchen nach oben offen. An der unteren Kante enthalten die Töpfchen eine gewisse Anzahl an Bohrungen. Die Töpfchen unterstützen das Abfließen der flüssigen Phase

und verbessern gleichzeitig die Verteilung der Gasphase über den Kolonnenquerschnitt. Außerdem stellen sie eine homogene Verteilung der Sprudelschicht über den gesamten Kolonnenquerschnitt her, was Fehlverteilungen reduziert und die Installation zusätzlicher Flüssigkeitsverteiler überflüssig macht (Flehsig et al., 2016). Das Verhältnis von Töpfchenfläche zu Kolonnenquerschnittsfläche wird als Töpfchenanteil bezeichnet:

$$a_T = \frac{n_T \cdot A_T}{A_K} = \frac{n_T \cdot d_T^2}{d_K^2} \quad (2.14)$$

Der Bohrungsanteil wird als Verhältnis der Bohrungsfläche und der Fläche eines Töpfchens definiert:

$$a_B = \frac{n_B \cdot A_B}{A_T} = \frac{n_B \cdot d_B^2}{d_T^2} \quad (2.15)$$

Der Volumenanteil der Töpfchen ist das Verhältnis von Töpfchenvolumen und dem gesamten Packungsvolumen:

$$v_T = \frac{V_T}{V_K} = \frac{n_{AN} \cdot n_T \cdot H_{AN} \cdot d_T^2}{(n_{AN} \cdot H_{AN} + n_{AB} \cdot H_{AB}) d_K^2} \quad (2.16)$$

Das Volumen der Töpfchen muss bei der Berechnung des volumetrischen Anteils der Anstaulagen berücksichtigt werden:

$$v_{AN} = \frac{V_{AN} - V_T}{V_K} = \frac{n_{AN} \cdot H_{AN} \cdot (d_K^2 - n_T \cdot d_T^2)}{(n_{AN} \cdot H_{AN} + n_{AB} \cdot H_{AB}) d_K^2} \quad (2.17)$$

Für den Volumenanteil der Abscheidelagen gilt die folgende Beziehung:

$$v_{AB} = \frac{V_{AB}}{V_K} = \frac{n_{AB} \cdot H_{AB}}{n_{AN} \cdot H_{AN} + n_{AB} \cdot H_{AB}} \quad (2.18)$$

Während die Höhe der Abscheidelagen in etwa der von konventionellen Strukturpackungen entspricht, ist die Höhe der Anstaulagen deutlich geringer. Folglich haben Anstaupackungen mehr Packungslagenübergänge pro Meter als konventionelle Packungen. Die auf den Meter bezogene Anzahl der Packungslagenübergänge in Anstaupackungen ist:

$$n_{Pu,AP} = \frac{1}{0,5 \cdot (H_{AB} + H_{AN})} = \frac{2}{H_{AB} + H_{AN}} \quad (2.19)$$

Untersuchungen zur Fluidodynamik

Die im Betrieb von Anstaupackungen auftretenden Strömungsmuster können anhand des Druckverlust- oder Holdupprofils eingeordnet werden. Brinkmann et al. (2012) führten einen Vergleich des Druckverlustprofils von Anstaupackungen mit dem von konventionellen Strukturpackungen durch. Ein analoger Vergleich für den Holdup wurde in der Arbeit von Flehsig et al. (2016) vorgenommen. **Abbildung 2.12** zeigt Druckverlust- (a),(c) und Holdupprofile (b), (d) in Abhängigkeit des F-Faktors bei konstanter Flüssigkeitsbelastung. Die in den **Abbildungen 2.12** (a), (b) dargestellten Verläufe des Druckverlusts und des Holdups gleichen den

Verläufen von zwei konventionell betriebene Strukturpackungen. Die roten Kurven entsprechen den Profilen einer Strukturpackung, die eine geometrische Oberfläche von $750 \text{ m}^2 \text{ m}^{-3}$ aufweist, während die blauen Kurven Profile darstellen, die bei der Verwendung einer Strukturpackung mit $250 \text{ m}^2 \text{ m}^{-3}$ resultieren. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurde auf eine Hervorhebung der Staupunkte in der gesamten Abbildung verzichtet. Bei einem Vergleich der Profile der beiden konventionellen Strukturpackungen zeigt sich, dass mit steigender Packungsoberfläche sowohl Druckverlust als auch Holdup höher sind. Zudem Verschieben sich die Kapazitätsgrenzen zu geringeren Werten des F-Faktors.

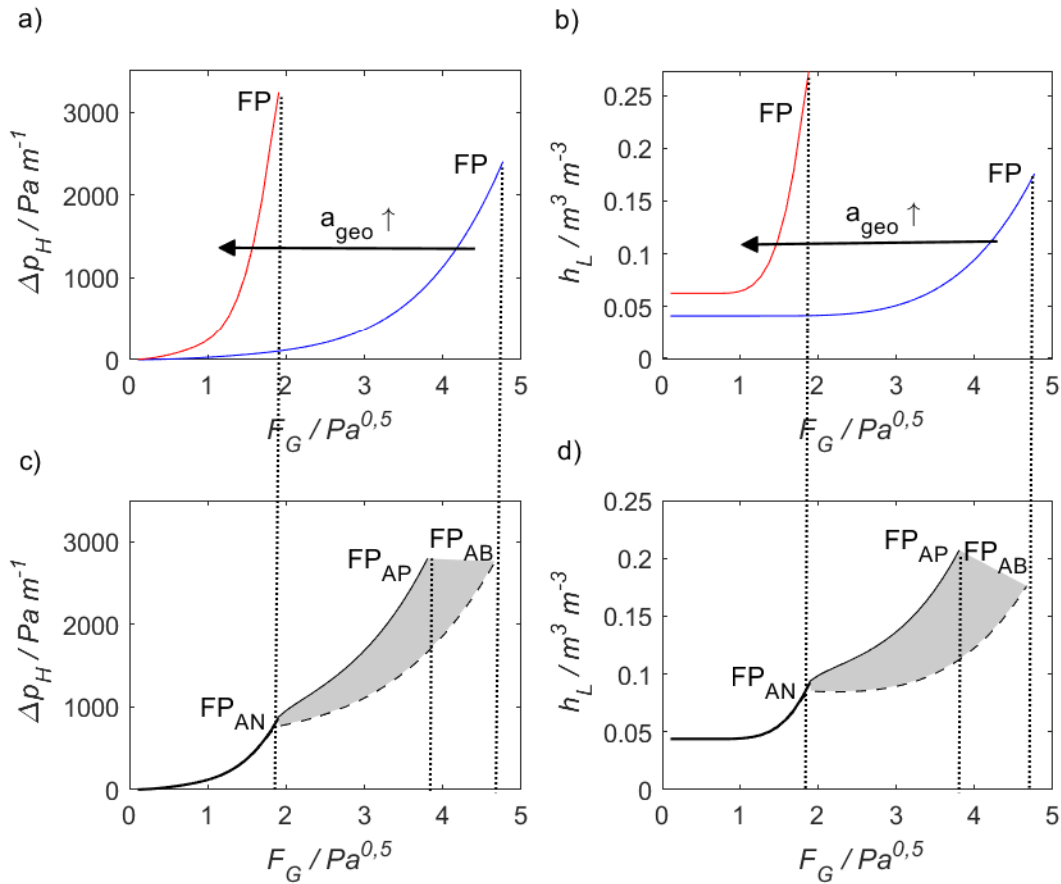


Abbildung 2.12: Profile von Druckverlust (a), (c) und Holdup (b), (d) von strukturierten Packungen (a), (b) und Anstaupackungen (c), (d) in Abhängigkeit des F-Faktors.

In den **Abbildungen 2.12** (c), (d) sind Holdup- und Druckverlustverläufe von einer Anstaupackung dargestellt. Im Gegensatz zu konventionellen Packungen ist das Verhalten beider fluid-dynamischer Kenngrößen von Anstaupackungen durch mehr charakteristische Punkte gekennzeichnet. Anhand der charakteristischen Punkte lässt sich der gesamte Betriebsbereich von Anstaupackungen in verschiedene Fluiddynamikbereiche einteilen:

- Bereich I: für $F_G < F_{G,SP,AN}$

Der Holdup ist in Bereich I unabhängig vom F-Faktor und der Druckverlust zeigt nur einen

geringfügigen Anstieg mit steigendem F-Faktor. In diesem Bereich arbeiten Anstaupackungen wie konventionelle strukturierte Packungen und in beiden Lagen liegen rieselfilmartige Strömungsmuster vor.

- Bereich II: für $F_{G,SP,AN} \leq F_G < F_{G,FP,AN}$
In diesem Bereich ist ein starker Anstieg von Holdup und Druckverlust zu verzeichnen. Dieser Anstieg deutet darauf hin, dass sich das Strömungsmuster in den Anstaulagen ändert. In den Anstaulagen sind die Phasenwechselwirkungen intensiviert und der Vorgang des Flutens tritt in Erscheinung. In der Abscheidelage entspricht das Strömungsmuster weiterhin dem von konventionellen Strukturpackungen.
- Bereich III: für $F_{G,FP,AN} \leq F_G \leq F_{G,FP,AP}$
Im Bereich zwischen den Lastgrenzen der Anstaulage und der Anstaupackung liegt der Anstaubetrieb vor. Die Anstaulagen sind vollständig geflutet und ausgehend von den Lagenübergängen wächst im unteren Teil der Abscheidelagen mit steigendem F-Faktor ein teilweise gefluteter Bereich. In früheren Arbeiten wurde der teilweise geflutete Bereich in der Abscheidelage als Sprudelschicht bezeichnet, wohingegen das Strömungsmuster in den gefluteten Anstaulagen als Blasenströmung angesehen wurde (vgl. z.B. Yildirim (2016)). Basierend auf tomographischen Untersuchungen der Strömung in Anstaupackungen konnte gezeigt werden, dass das dynamische Verhalten und die Morphologie der Strömung von den teilweise gefluteten Bereichen sowohl in den Abscheidelagen als auch in den Anstaulagen vergleichbar sind und als Sprudelregime charakterisiert werden können (Sohr et al., 2018). Sprudelschichten sind aufgrund extrem turbulenter Bedingungen durch eine starke Phasendurchmischung und einen hohen spezifischen Druckverlust gekennzeichnet. Aus der Sprudelschicht kommt es zum Entrainment. Die Tropfen werden oberhalb der Sprudelschicht in der Abscheidelage abgeschieden, wo weiterhin eine rieselfilmartige Strömung vorliegt. Mit steigendem F-Faktor wächst die Sprudelschichthöhe in den Abscheidelagen und Druckverlust und Holdup steigen an. Am Flutpunkt der Anstaupackung ist die Sprudelschicht entlang der gesamten Packungselemente vorherrschend.

Die gestrichelten Linien in den **Abbildungen 2.12** (c), (d) entsprechen theoretischen Profilen, die durch eine Aufsummierung von Druckverlust bzw. Holdup gemäß der Volumenanteile der beiden Packungslagen resultieren würden. Die durchgezogenen Linien repräsentieren die bei Anstaupackungen experimentell beobachteten Verläufe von Druckverlust und Holdup. Zwischen den gestrichelten und durchgezogenen Linien zeigt sich eine Differenz (grau markiert), welche auf das Wachstum der Sprudelschicht in der Abscheidelage zurückzuführen ist. Die Sprudelschicht in der Abscheidelage hat eine Erhöhung von Druckverlust und Holdup zur Folge, die sich nicht von den fluiddynamischen Kenngrößen konventioneller Strukturpackungen ableiten lässt. Bei einem Vergleich der F-Faktoren am Flutpunkt von konventionellen Strukturpackungen und Anstaupackungen wird deutlich, dass der Flutpunkt der Anstaulage näherungsweise dem der konventionellen Packung mit gleicher geometrischer Oberfläche entspricht. Allerdings ist die Gasbelastung am Flutpunkt der Anstaupackung zu niedrigeren Werten gegenüber der von konventionellen Packungen mit der gleichen geometrischen Oberfläche wie die Abscheidelage verschoben. Diese verringerte Kapazität bezeichnen Brinkmann et al. (2012) als *vorzeitiges Fluten* von Anstaupackungen und begründen dieses Phänomen mit dem Wachstum der Sprudelschicht in der Abscheidelage.

Die Erkenntnisse der charakteristischen Verläufe des Druckverlusts und des Holdups beruhen auf experimentellen Untersuchungen zur Fluidodynamik mit Anstaupackungen. Ein Überblick der durchgeführten Messreihen und der resultierenden Erkenntnisse aus den fluidodynamischen Untersuchungen mit Anstaupackungen wird in **Abschnitt 3.1** gegeben.

Ein erster Ansatz zur Berechnung des Druckverlusts in Anstaupackungen wurde in der Arbeit von Kashani et al. (2004) vorgeschlagen, bei dem sich der Druckverlust im Anstaubetrieb additiv aus vier Anteilen zusammensetzt:

$$\Delta p = \Delta p_1 + \Delta p_2 + \Delta p_3 + \Delta p_4 \quad (2.20)$$

- Δp_1 : Druckverlust der untersten Abscheidelage
- Δp_2 : Druckverlust der gefluteten Anstaulagen
- Δp_3 : Druckverlust in den teilweise gefluteten Abscheidelagen
- Δp_4 : Druckverlust im nicht gefluteten Bereich der Abscheidelagen

Für die Berechnung der einzelnen Druckverlustanteile in Gleichung 2.20 wurden aus der Literatur bekannte Korrelationen verwendet (Stichlmair et al. (1989); Engel (1999)). Dieser erste Ansatz konnte das komplexe Druckverlustprofil von Anstaupackungen nur bedingt abbilden. Insbesondere konnte der Druckverlust der mit steigendem F-Faktor wachsenden Sprudelschichthöhe vom Ansatz nicht erfasst werden. Daher wurde von Brinkmann et al. (2012) ein neuer Berechnungsansatz zur Bestimmung des Druckverlusts entwickelt, bei dem das Prinzip der additiven Aufteilung beibehalten und um eine Korrelation zur Berechnung der Sprudelschichthöhe erweitert wurde:

$$\begin{aligned} \Delta p_{AP} = & \Delta p_{H,AN} \cdot n_{AN} \cdot H_{AN} + \Delta p_{H,AB} \cdot H_{AB} + (n_{AB} - 1) \\ & \cdot [\Delta p_{H,AB} \cdot (H_{AB} - H_{SPR}) + \Delta p_{H,SPR} \cdot H_{SPR}] \end{aligned} \quad (2.21)$$

Als Grundlage zur Berechnung der einzelnen Druckverlustanteile wurde das Fluidodynamikmodell für Füllkörper und Strukturpackungen nach Maćkowiak (2003) verwendet, bei dem sich der Druckverlust im Gegenstrombetrieb aus einem trockenen und einem flüssigen Druckverlustanteil additiv zusammensetzt.

$$\Delta p_H = \Delta p_{H,tr} + \Delta p_{H,fl} \quad (2.22)$$

Die Belastungsgrenzen wurden mit dem von Maćkowiak (2003) vorgeschlagenen Tropfen-Schwebbett-Modell bestimmt. Für den Belastungsbereich oberhalb des Flutpunkts der Anstaulage wurden für den Druckverlust und den Holdup in der gefluteten Anstaulage sowie in der Sprudelschicht in der Abscheidelage Annahmen getroffen:

- Der flüssige Druckverlustanteil in der Anstaulage $\Delta p_{H,fl,AN}$ behält oberhalb des Flutpunkts der Anstaulage den Wert $\Delta p_{H,fl,AN}(F_{G,FP,AN})$ bei.
- Der Holdup in der Anstaulage $h_{L,AN}$ behält oberhalb des Flutpunkts der Anstaulage den Wert $h_{L,AN}(F_{G,FP,AN})$ bei.
- Der trockene Druckverlustanteil der Sprudelschicht entspricht dem der Abscheidelage ($\Delta p_{H,tr,SPR} = \Delta p_{H,tr,AB}$).

- Der flüssige Druckverlustanteil der Sprudelschicht entspricht dem der gefluteten Anstaulage ($\Delta p_{H,fl,SPR} = \Delta p_{H,fl,AN}(F_{G,FP,AN})$).
- Der Holdup in der Sprudelschicht entspricht dem der gefluteten Abscheidelage ($h_{L,SPR} = h_{L,AB}(F_{G,FP,AN})$).

Bei der Anwendung des Fluidodynamikmodells nach Brinkmann et al. (2012) auf experimentelle Druckverlustdaten von Anstaupackungen ergeben sich zum Teil nicht hinnehmbare Abweichungen zwischen den experimentellen Werten und dem vom Modell berechneten Werten (Yildirim et al., 2015). Es zeigte sich, dass eine vernünftige Übereinstimmung von berechneten und experimentell ermittelten Druckverlustwerten nur resultiert, wenn die Belastungsgrenzen von Anstaupackungen mit hinreichender Genauigkeit vorhergesagt werden können. Dies gilt insbesondere für den Flutpunkt der Anstaulage. Um die Genauigkeit bei der Flutpunktsbestimmung von Anstaupackungen zu erhöhen, wurde von Yildirim et al. (2015) die Anwendung des Wallis-Plots (Wallis, 1969) vorgeschlagen.

Um eine Dimensionierung der Töpfchen vornehmen zu können, untersuchte Yildirim (2016) deren Fluidodynamik. Der Holdup in den Töpfchen wurde unter der Annahme, dass ausschließlich Flüssigkeit durch die Töpfchen fließt, als Verhältnis des Flüssigkeitsfüllstandes in den Töpfchen und deren Höhe definiert:

$$h_{L,T} = \frac{H_{FS,T}}{H_T} \quad (2.23)$$

Zur Berechnung des Füllstandes in den Töpfchen wurde die Bernoulli-Gleichung angewendet. Unter Vernachlässigung des dynamischen Drucks ergibt sich der Füllstand zu:

$$H_{FS,T} = \frac{1}{2g} \left(\frac{u_L}{a_B} \right)^2 + \frac{\Delta p_{AN}}{\rho_L g} \quad (2.24)$$

Trotz einer vernünftigen Beschreibung der Fluidodynamik in den Töpfchen (Yildirim, 2016) und der verbesserten Flutpunktsbestimmung (Yildirim et al., 2015) bleiben gewisse Schwächen beim Ansatz nach Brinkmann et al. (2012) bestehen. Diese Schwächen resultieren u.a. deswegen, dass die gefluteten Bereiche in Anstaupackungen durch Gleichungen beschrieben werden, die für rieselfilmartige Strömungen entwickelt wurden, wodurch die Eigenschaften von Sprudelregimen nicht geeignet erfasst werden können.

Untersuchungen zur Trennleistung

Die erste Untersuchung zur experimentellen Bestimmung der Trennleistung von Anstaupackungen wurde von Kaibel et al. (2000) durchgeführt. In dieser Arbeit wurde die Trennleistung der Anstaupackung B1-500/b1-250 in einer DN100-Testkolonne mit Iso-Butanol/n-Butanol bei Drücken von 200 mbar und 1013 mbar vermessen. Es zeigte sich, dass die Trennleistung bei Betriebsbedingungen zwischen den Flutpunkten der beiden Packungslagen um 50 % gegenüber der Trennleistung bei Bedingungen unterhalb des Flutpunkts der Anstaulage erhöht ist.

Jödecke et al. (2006) verglichen experimentell die Trennleistung von einer Anstaupackung (B1-750T/B1-250M) mit der einer Hochleistungspackung (B1-250M). Zu diesem Zweck wurde eine Kolonne (DN500) der BASF AG (Ludwigshafen) mit 29 Anstaupackungselementen ausgerüstet

und das binäre Testsystem Methylcyclohexan/n-Heptan wurde bei vollständigem Rücklauf und Drücken von 1.6 sowie 4 bar untersucht. Für beide Drücke ergab sich eine Erhöhung der Trennleistung von etwa 30 % im Vergleich zu der der Hochleistungspackung.

Brinkmann et al. (2009) entwickelten zur Berechnung der Trennleistung einen Modellansatz, bei dem die Trennleistung pauschal für ein komplettes Anstaupackungselement bestimmt wurde. Yildirim und Kenig (2015) erweiterten den Ansatz, indem die jeweiligen Packungslagen einzeln berücksichtigt wurden. Beide Methoden berücksichtigen jedoch nicht die verschiedenen fluiddynamischen Regime, die den Stofftransport beeinflussen. Zudem war die Anzahl an veröffentlichten Daten aus Trennleistungsmessungen sehr klein, weshalb der Ansatz von Yildirim und Kenig (2015) ausschließlich mit den experimentellen Daten aus der Arbeit von Jödecke et al. (2006) geprüft werden konnte. Um die Auswirkungen der einzelnen Regime in einem Modell zur Bestimmung der Trennleistung in Anstaupackungen berücksichtigen zu können, sind einerseits experimentelle Daten zum Einfluss der Betriebs- und Designparameter auf das Trennverhalten notwendig. Darüber hinaus sind detaillierte Einblicke in die Strömung erforderlich, um die Auswirkungen der einzelnen Strömungsregime zu erfassen.

Merkmale und Einsatzgebiete

Bislang werden Anstaupackungen industriell kaum eingesetzt. Dies ist darauf zurückzuführen, dass es noch keine verlässlichen Auslegungsmethoden gibt, die den Einfluss von Betriebs- und Designparameter im gesamten Belastungsbereich erfassen können. Nichtsdestotrotz stellen Anstaupackungen eine attraktive Alternative zu konventionellen Kolonneneinbauten dar. In **Tabelle 2.1** sind einige Anwendungen zusammengestellt, bei denen die Besonderheiten von Anstaupackungen vorteilhaft eingesetzt werden können.

Tabelle 2.1: Mögliche Prozessanwendungen von Anstaupackungen.

Anwendung	Vorteil	Kommentar	Ref.
Kolonnenneubau	<ul style="list-style-type: none"> • hohe Trennleistung • gleichmäßige Phasenverteilung aufgrund der Sprudelschicht 	<ul style="list-style-type: none"> • benötigte Kolonnenhöhe ist kleiner als die von Strukturpackungen • Zusätzliche Flüssigkeitsverteiler werden nicht benötigt 	[1]
Homogen-katalysierte Reaktiv-Rektifikation	<ul style="list-style-type: none"> • Verweilzeit mittels Holdup einstellbar 	<ul style="list-style-type: none"> • bereits industriell angewendet 	[2]
Heterogen-katalysierte Reaktiv-Rektifikation	<ul style="list-style-type: none"> • Intensive Phasendurchmischung 	<ul style="list-style-type: none"> • Der Katalysator kann räumlich in Bereichen der Sprudelschicht eingebracht werden 	[3]
Revamp von Füllkörperkolonnen	<ul style="list-style-type: none"> • Kapazitätserhöhung bei gleicher Trennleistung 	<ul style="list-style-type: none"> • bereits industriell angewendet 	[4]
Mehrphasen- & Hochdruckrektifikation	<ul style="list-style-type: none"> • Intensive Phasendurchmischung 		[5]

[1]: Kashani et al. (2004); [2]: Olujić et al. (2003); [3]: Kaibel et al. (2000);

[4]: Metzen et al. (2010); [5]: Jödecke et al. (2006); [6]: Flechsig et al. (2019)

Anstaupackungen eignen sich aufgrund eines intensiven Phasenkontakts, mit dem ein im Vergleich zu herkömmlichen Strukturpackungen relativ hoher Druckverlust verbunden ist, vor allem für Hochdruckapplikationen oder zum Revamp bestehender Kolonnen, bei denen höhere Produktströme bei gleicher Trenneffizienz gefordert sind (Metzen et al., 2010). Anstaupackungen können zur Verbesserung von Kapazität und Effizienz beim Umbau von Bodenkolonnen aber auch von Packungskolonnen im Normal- und Überdruckbereich beitragen. Im Vergleich zu Böden sind keine Sicherheitsabstände nötig, um Tropfenmitriss zu vermeiden. Außerdem werden im Gegensatz zu Böden keine Flüssigkeitsschächte benötigt, weshalb Anstaupackungen auch bei Kolonnen mit kleinen Durchmessern eingesetzt werden können. Die flüssigkeitsverteilende Wirkung der gefluteten Bereiche in Anstaupackungen ermöglicht auch neue Anwendungen, bei denen Strukturpackungen bisher kaum Einsatz fanden. Dies betrifft insbesondere Systeme, bei denen die flüssige Phase die Packungsoberfläche schlecht benetzt oder Systeme, bei denen mehrere flüssige Phasen auftreten. In diesem Zusammenhang wirken die intensiven Wechselwirkungen in der Sprudelschicht einer Entmischung der Phasen entgegen. Darüber hinaus bieten Anstaupackungen die Möglichkeit, den Flüssigkeitsinhalt bzw. die Verweilzeit mittels der Gasbelastung in weiten Bereichen zu variieren, weshalb sie besonders attraktiv für reaktive Trennverfahren sind. Olujić et al. (2003) berichten über eine industrielle Anwendung von Anstaupackungen, bei der eine gezielte Einstellung der Verweilzeit bei der homogen katalysierten Reaktivrektifikation vorteilhaft eingesetzt werden konnte. Um die industrielle Anwendung von Anstaupackungen im größeren Umfang zu ermöglichen, ist ein besseres Verständnis der Transportvorgänge in Anstaupackungen zielführend. Zu diesem Zweck werden Anstaupackungen im Rahmen der vorliegenden Arbeit am Beispiel der reaktiven Absorption untersucht.

2.2.2 Reaktive Absorption von Kohlenstoffdioxid mit wässrigen Aminlösungen

Bei der *chemischen Absorption*, welche auch reaktive Absorption oder Reaktivabsorption genannt wird, werden Absorption und chemische Reaktion in einem Apparat gekoppelt. Die Absorption stellt eine (selektive) Aufnahme von Gaskomponenten in einem Wasch- oder Lösungsmittel dar. Bei den chemischen Reaktionen der Reaktivabsorption handelt es sich meist um schnelle und instantane, nicht katalysierte Reaktionen in der flüssigen Phase (Kenig und Górak, 2005). Im Vergleich zur physikalischen Absorption wird aufgrund der Reaktion das Gleichgewicht für den Stofftransport günstig verschoben, wodurch die Lösungskapazität der übergehenden Komponente in der flüssigen Phase erhöht wird. Die Wirkung der chemischen Reaktionen bei reaktiven Absorptionsprozessen ist üblicherweise im Bereich niedriger Konzentrationen der übergehenden Komponente in der Gasphase vorteilhaft, wohingegen die physikalische Absorption bei hohen Konzentrationen der übergehenden Komponente vorzugsweise eingesetzt wird (Hochgesand, 1968).

Die Reaktivabsorption ist das am häufigsten industriell angewendete reaktive Trennverfahren. In einem Übersichtsbeitrag von Yildirim et al. (2012) werden bedeutende industrielle Anwendungen der Reaktivabsorption thematisiert. In **Tabelle 2.2** werden einige dieser Anwendungen aufgeführt. Es zeigt sich, dass neben der Aufbereitung bzw. Konditionierung von Gasströmen auch die Synthese von chemischen Produkten eine mögliche Anwendung der Reaktivabsorption

ist.

Tabelle 2.2: Anwendungen der reaktiven Absorption.

Anwendung	Reaktive Komponente	Ref.
Schwefelwasserstoff (H_2S)-Abtrennung z.B. Erdgasaufbereitung	Natriumhydroxid (NaOH) Natriumcarbonat (Na_2CO_3)	[1]
Salpetersäure-Produktion (HNO_3)	Stickstoffdioxid (NO_2) Wasser (H_2O)	[2]
Schwefeldioxid (SO_2)-Abtrennung z.B. Abgasentschwefelung	Natriumhydroxid (NaOH) Natriumcarbonat (Na_2CO_3)	[3] [4]
Kohlenstoffdioxid (CO_2)-Abtrennung z.B. Post Combustion Capture	Natriumhydroxid (NaOH) Kaliumcarbonat (K_2CO_3) Amine ($\text{NH}_x\text{-R}_x$)	[5] [6] [7]

[1]: Thiele und Spuhl (2008); [2]: Patwardhan et al. (2002); [3]: Schultes (1998);
[4]: Srivastava und Jozewicz (2001); [5]: Zeng et al. (2013); [6]: Behr et al. (2011);
[7]: Notz et al. (2011)

Eine weitere wichtige Anwendung der chemischen Absorption ist die Abtrennung von Kohlenstoffdioxid (CO_2) aus Kraftwerksabgasen. Die Konzentration von CO_2 in Kraftwerksabgasen variiert je nach Art des Brennstoffs zwischen 3 und 16 mol-% (Rolker und Arlt, 2006) (vgl. **Tabelle 2.3**).

Tabelle 2.3: Typische Zusammensetzungen von Kraftwerksabgasen (Rolker und Arlt, 2006).

Brennstoff	N_2 mol-%	CO_2 mol-%	O_2 mol-%	H_2O mol-%	NO_x ppm	SO_2 ppm
Kohle	70-75	12-16	3-4	6-7	400	150
Erdgas	70-75	3-5	10-12	7-10	50	10

Die einem Kraftwerk nachgelagerte Abtrennung von CO_2 aus Abgasen kann in einer Absorptions-/Desorptionsanlage erfolgen, die schematisch in **Abbildung 2.13** als Kreislaufprozess dargestellt ist. Bei der Absorption wird das CO_2 -reiche Rohgas im Gegenstrom zum Lösungsmittel gereinigt und verlässt die Absorptionskolonne CO_2 -arm am Kopf. Das Lösungsmittel, welches in der Absorptionskolonne mit CO_2 beladen wird, wird ausgehend vom Sumpf der Absorptionskolonne zum Desorber geführt, wo das beladene Lösungsmittel regeneriert wird. Die Regeneration des Lösungsmittels kann entweder durch Entspannung oder mittels Strippen mit Luft, Dampf bzw. Inertgas erfolgen (Olajire, 2010). Das mit CO_2 -angereicherte Gas verlässt den Desorber am Kopf und das regenerierte Lösungsmittel wird wieder zum Absorber geführt. Aufgrund der unterschiedlichen Temperaturniveaus im Ab- und Desorber bietet sich ein innerer Wärmeübertrager an, der zur Vorwärmung des beladenen Lösungsmittels dient.

Für die Abtrennung von CO_2 werden als Lösungsmittel *Natrium- und Kaliumcarbonate*, *Ammoniak*, *Aminosäuresalze*, *ionische Flüssigkeiten* sowie *Aminoalkohole* verwendet. Die bei der chemischen Absorption von CO_2 eingesetzten Aminoalkohole bzw. Amine sind Gegenstand der aktuellen Forschung, die darauf abzielt effiziente Lösungsmittel zu identifizieren, bei denen

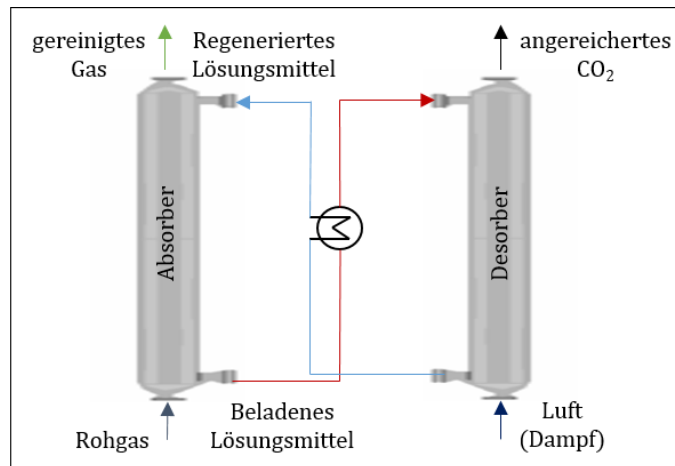


Abbildung 2.13: Schema des Kreislaufprozesses aus Absorption und Desorption zur Abscheidung von CO_2 .

eine vorteilhafte Kombination verschiedener Eigenschaften auftritt. Unter anderem werden Mischungen von verschiedenen Aminen untersucht (Sakwattanapong et al. (2009); Dey und Aroonwilas (2009)). Zudem werden Systeme aus Aminen und Promotoren betrachtet, wie z. B. Piperazin (Dugas und Rochelle, 2009) oder Methanol (Sema et al., 2013).

Aminoalkohole sind insbesondere durch eine hohe Beladungskapazität gekennzeichnet (Bottoms, 1931). Die Beladung gibt die Molmasse der Gaskomponente an, die von einem Mol Lösungsmittel aufgenommen werden kann. Im Allgemeinen weisen Aminoalkohole in ihrer chemischen Struktur mindestens eine Hydroxylgruppe und eine Aminogruppe auf. Die Hydroxylgruppen erhöhen die Wasserlöslichkeit und verringern den Dampfdruck des Aminoalkohols. Die Aminogruppe sorgt für die Alkalinität in wässrigen Lösungen, die für die Absorption von sauren Gasen notwendig ist. Die Aminoalkohole lassen sich in primäre ($-\text{NH}_2$), sekundäre ($-\text{NHR}$) und tertiäre Amine ($-\text{NR}_2$) unterteilen.

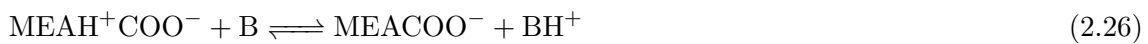
In **Tabelle 2.4** sind Eigenschaften, die bei der Auswahl des Lösungsmittels eine wichtige Rolle spielen, von primären, sekundären und tertiären Aminen dargestellt. Primäre Amine weisen im Vergleich zu sekundären und tertiären Aminen höhere Reaktionsgeschwindigkeiten auf. Die Reaktions- und Verdampfungsenthalpie stehen in direktem Zusammenhang mit dem für die Regeneration des Lösungsmittels erforderlichen Energieeintrag, der somit für primäre Amine gegenüber sekundären und tertiären Aminen am höchsten ist. Primäre Amine sind stärker korrosiv als sekundäre oder tertiäre Amine. Die Korrosivität muss bei der Auswahl des Apparatematerials berücksichtigt werden. Die Beladungskapazität steigt von primären zu tertiären Aminen an. Dies impliziert höhere Aminkonzentrationen von primären Aminen für mit tertiären Aminen vergleichbare Abscheidungsraten bei der chemischen Absorption.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde Monoethanolamin (MEA) in wässriger Lösung für die Untersuchungen zur CO_2 -Absorption verwendet. Die chemische Struktur von MEA ist in **Abbildung 2.14** zu sehen. Die Reaktion von MEA mit CO_2 kann anhand des Zwitterion-Mechanismus beschrieben werden (Danckwerts, 1979). Hierbei ist die Reaktion zwischen CO_2 und MEA durch die Bildung eines Zwitterions ($\text{MEA}^+\text{H}^+\text{COO}^-$) als Zwischenprodukt gekennzeichnet. Anschließend erfolgt basierend auf einer Deprotonierung des Zwitterions durch eine

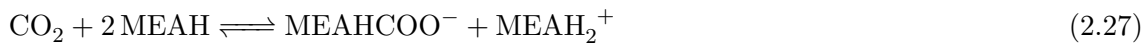
Tabelle 2.4: Qualitativer Vergleich der Eigenschaften von verschiedenen Aminen (Yildirim et al., 2012)

Primär z.B. MEA	Sekundär z.B. DEA	Tertiär z.B. MDEA
schnell	← Reaktionskinetik	langsam
hoch	← Reaktionsenthalpie	niedrig
hoch	← Verdampfungsenthalpie	niedrig
hoch	← Korrosionsneigung	niedrig
niedrig	← Beladungskapazität	hoch

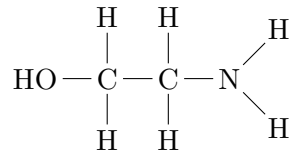
Base (B) die Bildung von Carbamat (MEACOO^-) (Vaidya und Kenig, 2007):



Bei einer Deprotonierung des Zwitterions durch MEA ergibt sich die Gesamtreaktion wie folgt:



Anhand von Gleichung 2.27 wird deutlich, dass MEA und CO_2 im Verhältnis 2:1 miteinander reagieren, wodurch die maximale CO_2 -Aufnahmekapazität bei einem Wert von $0.5 \text{ mol}_{\text{CO}_2}/\text{mol}_{\text{MEA}}$ begrenzt ist.

**Abbildung 2.14:** Chemische Struktur von Monoethanolamin (MEA).

Der Stofftransport von CO_2 aus der Gasphase in die flüssige Phase bei der chemischen Absorption mit wässrigen MEA-Lösungen wird durch das Zusammenwirken mehrerer Phänomene beeinflusst. Die CO_2 -Moleküle werden innerhalb der Gasphase durch eine Überlagerung von Diffusion und Konvektion an die Phasengrenzfläche transportiert. An der Phasengrenzfläche gehen die CO_2 -Moleküle in die flüssige Phase über. Der Übergang kann theoretisch bis zur Einstellung des Phasengleichgewichts erfolgen, welches jedoch in Gegenstromprozessen üblicherweise nicht eintritt. Bei rein physikalischen Absorptionsprozessen wird die Triebkraft für den Übergang einer Komponente aus der Gasphase in die flüssige Phase dadurch aufrechterhalten, dass sich die übergehende Komponente wiederum durch Konvektion und Diffusion von der Phasengrenzfläche entfernt. Durch die chemischen Reaktionen bei der Reaktivabsorption und die damit einhergehende Bindung von CO_2 an Komponenten des Lösungsmittels wird sowohl das thermodynamische Gleichgewicht zwischen den Phasen als auch die Stofftransportmechanismen

entscheidend beeinflusst. Die Menge an CO_2 , die physikalisch in die flüssige Phase übergehen kann, wird durch die Umwandlung des CO_2 erhöht. Außerdem wird durch das abreagierende CO_2 die Triebkraft für den Stofftransport erhöht.

2.3 Ansätze zur Bestimmung der Trennleistung bei der Reaktivabsorption

Bei reaktiven Absorptionsprozessen treten Transportphänomene und Reaktionen simultan auf. Zudem kommt es in Mehrkomponentensystemen zu komplexen Kopplungen seitens der Thermodynamik und der Diffusion (Kenig und Górak, 2005). Die Trennleistung von derart komplexen Systemen kann mit auf Stufen basierenden Modellierungskonzepten bestimmt werden. Hierbei wird die Kolonne in alternierende Bilanzräume (Stufen) unterteilt (vgl. **Abbildung 2.15**). Die Verbindung der einzelnen Stufen erfolgt basierend auf Massen- und Energiebilanzen (Taylor und Krishna, 1993). Zur Bestimmung der Trennleistung bei der Reaktivabsorption können die nachfolgend aufgelisteten Ansätze verwendet werden:

- Gleichgewichtsstufenmodell
- HTU/NTU Modell (height of a transfer unit/number of transfer units)
- Rate-based-Modell

Sowohl das HTU/NTU- als auch das rate-based-Modell sind kinetisch basierte Ansätze, wobei das rate-based-Modell der rigorosere Ansatz ist. Zur Berücksichtigung der simultan ablaufenden Reaktionen gibt es nachfolgend aufgeführte Ansätze:

- Annahme eines instantan einstellenden Reaktionsgleichgewichts
- Enhancement-Faktoren
- Direkte Berücksichtigung der Reaktionskinetik

2.3.1 Gleichgewichtsstufenmodell

Das Modell der theoretischen Trennstufe, auch *Gleichgewichtsmodell* genannt, ist das einfachste und am weitesten verbreitete Modell zur Beschreibung von thermischen Trennverfahren. Das Gleichgewichtsmodell beruht auf folgenden Annahmen (Bird et al., 2007):

- Die aus einer Stufe austretenden Phasen stehen im thermodynamischen Gleichgewicht
- Die Phasen sind innerhalb einer Stufe vollständig durchmischt
- Es tritt keine Rückvermischung z.B. aufgrund von Tropfenmitriss der Flüssigkeit durch die entgegenströmende Gasphase auf

Das thermodynamische Gleichgewicht liegt vor, wenn sich die betrachteten Phasen im thermischen ($T_G = T_L$), mechanischen ($p_G = p_L$) und chemischen ($\mu_{i,G} = \mu_{i,L}$) Gleichgewicht befinden.

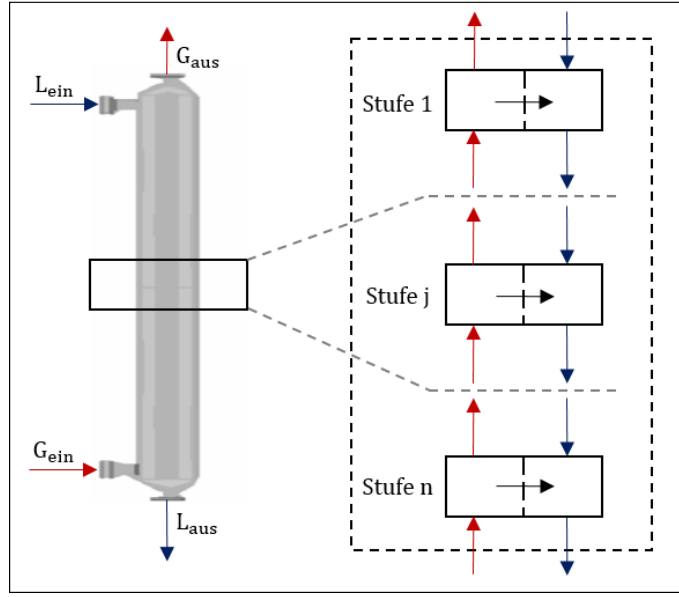


Abbildung 2.15: Diskretisierung von Absorptionskolonnen in Stufen.

An Stelle des Gleichgewichts des chemischen Potentials μ_k kann das Gleichgewicht der Fugazitäten $f_{i,k}$ betrachtet werden. Die Fugazität wurde von G.N. Lewis im Jahr 1901 entdeckt und stellt einen Pseudo-Druck dar (Seader und Henley, 2006). Zur Berücksichtigung des nicht-idealen Verhaltens der flüssigen Phase können zusätzlich noch Aktivitätskoeffizienten $\gamma_{i,L}$ zum Einsatz kommen. Wenn beide Phasen ideales Verhalten aufweisen, ist es möglich das chemische Gleichgewicht durch die Gleichheit der Partialdrücke $p_{i,k}$ zu beschreiben. Zur Berechnung des Gleichgewichts wird häufig der Verteilungskoeffizient K_i verwendet:

$$K_i = \frac{y_i}{x_i} \quad (2.28)$$

Je nach Abweichung des betrachteten Stoffsystems vom Idealzustand werden verschiedene Ansätze zur Bestimmung des Verteilungskoeffizienten angewendet (vgl. **Tabelle 2.5**). Zur Berechnung von Aktivitäts- γ_i oder Fugazitätskoeffizienten φ_i werden thermodynamische Modelle verwendet, wie beispielsweise UNIQUAC, NRTL oder zur Berücksichtigung von Elektrolytsystemen eNRTL (Poling et al., 2020).

Das Gleichgewicht der aus einer Stufe austretenden Stoffströme entspricht einem Idealzustand, der im Betrieb nicht erreicht wird. Basierend auf dem Gleichgewichtsstufenmodell kann die Anzahl an theoretischen Stufen, die notwendig ist, um eine gegebene Trennaufgabe zu lösen, sowohl mit grafischen als auch algebraischen Methoden ermittelt werden. Ein Konzept, um ausgehend von der Anzahl der theoretischen Stufen die Kolonnenhöhe zu bestimmen, beruht auf der Anwendung von HETS-Werten (height equivalent to a theoretical stage). Mit nachfolgender Gleichung kann basierend auf HETS-Werten und der Anzahl der theoretischen Stufen die Kolonnenhöhe berechnet werden:

$$H_K = HETS \cdot n_{TS} \quad (2.29)$$

Tabelle 2.5: Ansätze zur Bestimmung von Verteilungskoeffizienten (Seader und Henley, 2006)

Bezeichnung	Gleichung	Anwendung
Equation of state	$K_i = \varphi_{i,L}/\varphi_{i,G}$	Kohlenwasserstoffe und leichte Gasmischungen im Bereich von kryogener bis kritischer Temperatur
Aktivitätserweiterung	$K_i = \varphi_{i,L}\gamma_{i,L}/\varphi_{i,G}$	Alle Mischungen von Umgebungs- bis annähernd kritischer Temperatur
Erweitertes Raoult'sches Gesetz	$K_i = p_{s,i}\gamma_{i,L}/P$	Gelöste Komponente liegt in der Mischung konzentriert vor
Erweitertes Henry'sches Gesetz	$K_i = H_{s,i}\gamma_{i,L}/P$	Gelöste Komponente liegt in der Mischung stark verdünnt vor

Bei Mehrkomponentensystemen sollte berücksichtigt werden, dass die HETS-Werte der einzelnen Komponenten sich maßgeblich voneinander unterscheiden können. Folglich kann eine nicht-differenzierte Anwendung von HETS-Werten zu fehlerhaften Berechnungsergebnissen führen (Taylor et al., 2003).

Bei reaktiven Trennprozessen müssen darüber hinaus die chemischen Reaktionen im Gleichgewichtsstufenmodell berücksichtigt werden. Um einen geeigneten Ansatz zur Berücksichtigung der Reaktionen zu wählen, kann zunächst eine Bewertung der Reaktionsgeschwindigkeit in Bezug auf die Geschwindigkeit des physikalischen Stofftransports erfolgen. Eine Bewertungskennzahl, mit der eine Klassifizierung verschiedener Regime bei reaktiven Trennverfahren möglich ist, ist die Hatta-Zahl. Die Hatta-Zahl stellt das Verhältnis der maximal möglichen Reaktions- und Stoffübertragungsraten dar:

$$Ha^2 = \frac{\text{Reaktionsrate}}{\text{Stofftransportrate}} \quad (2.30)$$

Bei hohen Werten der Hatta-Zahl handelt es sich um eine sehr schnelle oder instantane Reaktion, die unter der Annahme eines Reaktionsgleichgewichts zufriedenstellend beschrieben werden. Wenn die Reaktionsgeschwindigkeit in Bezug auf die Geschwindigkeit des Stofftransports geringer wird, nimmt der Einfluss der Reaktionskinetik zu und wird somit zu einem dominierenden Faktor des Prozesses (Kenig und Górak, 2005). Die Reaktionskinetik wird folglich in die Massen- und Energiebilanzen integriert. Dieser Ansatz ist weit verbreitet (siehe z. B. Holma und Sohlo (1979)) und wird auch als *erweitertes Gleichgewichtsmodell* bezeichnet (Klöker et al., 2005). Jedoch ist das erweiterte Gleichgewichtsmodell mit der Berücksichtigung von kinetisch-kontrollierten Reaktionen physikalisch inkonsistent (Kenig et al., 2001) und kann die kinetischen Wechselwirkungen von Stofftransport und Reaktion nicht geeignet abbilden (Hüpen, 2008).

2.3.2 HTU-NTU-Modell

Ein einfacher kinetisch-basierter Ansatz zur Bestimmung der Kolonnenhöhe ist das von Chilton und Colburn (1935) vorgeschlagene *HTU/NTU Modell* (height of transfer units/number of transfer units). Ausgehend von einem differentiellen Volumenelement einer Absorptionskolonne wird unter Berücksichtigung des Stoffdurchgangs bei diesem Ansatz die Kolonnenhöhe als

Produkt aus den Werten HTU und NTU bestimmt:

$$H_K = HTU \cdot NTU = HTU_{OG} \cdot NTU_{OG} = HTU_{OL} \cdot NTU_{OL} \quad (2.31)$$

Sowohl HTU als auch NTU können in Abhängigkeit des dominierenden Transportwiderstands ausgehend von der flüssigen oder gasförmigen Phase definiert werden. Der NTU-Wert, der ausschließlich von den thermodynamischen Eigenschaften des Stoffsystems und nicht von den Einbauten bzw. der Strömungsart abhängig ist, wird als Integral über dem Kehrwert der treibenden Kraft des Stofftransports entlang der Kolonnenhöhe ausgedrückt:

$$NTU_{OG} = \int_{Y_{ein}}^{Y_{aus}} \frac{dY}{Y - Y^*} \quad (2.32)$$

Neben bestimmten Sonderfällen, für die es analytische Lösungen für das Triebkraftintegral in Gleichung 2.32 gibt, besteht die Möglichkeit dieses Integral mittels numerischer Methoden zu lösen, wenn Gleichungen für Bilanz- und Gleichgewichtslinie bekannt sind.

Anhand des HTU-Wertes können Stofftransportkinetik und Phasengrenzfläche, die im Zusammenhang mit den Strömungsprozessen in den Einbauten stehen, in die Bestimmung der Kolonnenhöhe einfließen. Wird die Betrachtung auf die Gasseite bezogen, wird der HTU-Wert folgendermaßen bestimmt:

$$HTU_{OG} = \frac{\dot{G}_{Inert} \cdot M_G}{\beta_{OG} \cdot a_{int} \cdot \rho_G \cdot A_K} \quad (2.33)$$

Unter der Annahme, dass die Gleichgewichtslinie linearisiert werden kann, ergibt sich der Stoffdurchgangskoeffizient β_{OG} aus einer Summe der Übergangswiderstände von der gasförmigen und flüssigen Phase unter Einbeziehung des Verteilungskoeffizienten K_i :

$$\frac{1}{\beta_{OG}} = \frac{1}{\beta_G} + \frac{K_i}{\beta_L} \quad (2.34)$$

Um chemische Reaktionen im Filmbereich der flüssigen Phase zu berücksichtigen, werden häufig sogenannte Enhancement-Faktoren verwendet. Der Enhancement-Faktor ist definiert als das Verhältnis des Stoffübergangskoeffizienten mit $(\beta_{L,R})$ und ohne (β_L) Reaktion bei gleicher Triebkraft für den Stofftransport.

$$E = \frac{\beta_{L,R}}{\beta_L} \quad (2.35)$$

Bei der Anwendung von Enhancement-Faktoren kann Gleichung 2.34 wie folgt umformuliert werden.

$$\frac{1}{\beta_{OG}} = \frac{1}{\beta_G} + \frac{K_i}{E \cdot \beta_L} \quad (2.36)$$

Die Bestimmung der Enhancement-Faktoren hängt von der Art und der Ordnung der Reaktion ab. Last und Stichlmair (2002) geben einen guten Überblick zu den verschiedenen Ansätzen Enhancement-Faktoren in Abhängigkeit der Hatta-Zahl zu bestimmen. Jedoch ist

es nicht möglich, Enhancement-Faktoren für reversible, parallele oder konsekutive Reaktionen theoretisch abzuleiten. In der Arbeit von Putta et al. (2017) werden 24 Enhancement-Faktor-Modelle für die CO₂-Absorption in wässrigen MEA-Lösungen mit experimentellen Daten aus vier verschiedenen Absorbertypen im Labormaßstab verglichen. Allein die schiere Anzahl an Enhancement-Faktor-Modellen, über die in der Literatur berichtet wird, zeigt die Unsicherheit bei der Anwendung des Konzepts für das betrachtete Reaktionssystem. Im Rahmen dieser Enhancement-Faktor-Modelle werden grobe Vereinfachungen angenommen, deren Zulässigkeit und somit die Anwendung der Modelle auf reaktive Absorberkolonnen im industriellen Maßstab als fragwürdig erscheint.

Um insbesondere kinetisch kontrollierte Reaktionen im Filmbereich geeignet abzubilden, bietet sich somit eine direkte Berücksichtigung der Reaktionskinetik an. Dabei ist mehr Rigorosität bei der Beschreibung des Stofftransports notwendig.

2.3.3 Rate-based-Modell basierend auf der Zweifilmtheorie

Ein rigoroserer Ansatz zur Beschreibung von Transportphänomenen und Reaktionen ist durch die Anwendung von Stofftransporttheorien auf das Stufenkonzept gegeben. Bei diesem Ansatz können die Kinetik des Mehrkomponenten-Stoff- und Wärmeübergangs sowie die chemischen Reaktionen direkt berücksichtigt werden. Als Theorie zur Beschreibung des Stofftransports zwischen zwei fluiden Phasen können u.A. die Zweifilmtheorie nach Lewis und Whitman (1924), die Penetrationstheorie nach Higbie (1935) oder die Oberflächenerneuerungstheorie nach Danckwerts (1951) zum Einsatz kommen. Bei der Anwendung der Theorien auf das Stufenkonzept sind zur Beschreibung des Stoff- und Wärmetransports gewisse Modellparameter notwendig. Diese Modellparameter werden mittels Korrelationen bestimmt, welche üblicherweise Abhängigkeiten der Einbautengeometrie, der Fluidodynamik und des Stoffsystems aufweisen. In diesem Zusammenhang erweist sich die Zweifilmtheorie als vorteilhaft, da für diese Theorie eine Vielzahl vorhandener Korrelationen zur Beschreibung verschiedener Einbautentypen und Stoffsysteme zur Verfügung steht.

In **Abbildung 2.16** ist eine rate-based-Stufe für die reaktive CO₂-Absorption mit wässrigen Aminlösungen basierend auf der Zweifilmtheorie dargestellt. Der Zweifilmtheorie liegen folgende Annahmen zugrunde:

- Der Stofftransportwiderstand liegt in zwei stagnierenden Filmen, in denen der Stofftransport senkrecht zur Phasengrenze abläuft.
- An der Phasengrenze liegt zwischen den in Kontakt tretenden Phasen das thermodynamische Gleichgewicht vor.
- Die Kernphasen werden als vollständig durchmischt angenommen, weshalb hier weder Konzentrations- noch Temperaturgradienten auftreten.
- Die Phasen strömen in Form einer Kolbenströmung durch die Kolonne, wobei die reale Fluidodynamik in den Einbauten durch Korrelationen berücksichtigt werden kann.

Zur Berücksichtigung der Fluidodynamik werden Korrelationen für den Druckverlust, den Holdup und die fluidodynamischen Belastungsgrenzen verwendet. Die Bestimmung der genannten

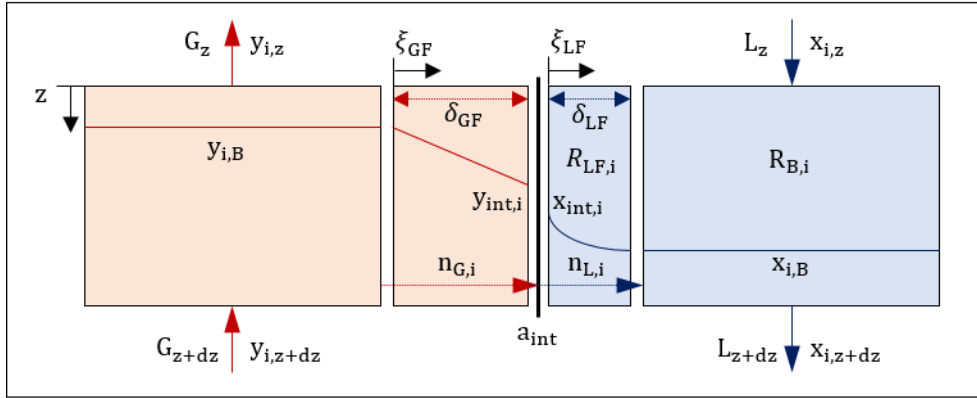


Abbildung 2.16: Rate-based Stufe basierend auf der Zweifilmtheorie.

Parameter hängt im besonderen Maße von den betrachteten Einbauten ab.

Bei den innerhalb der Zweifilmtheorie auftretenden Filmen handelt es sich nicht um reale Filme, sondern um Filme, die sich ausschließlich aus der Modelltheorie ergeben. Die Filmdicken können nicht direkt experimentell bestimmt werden und stellen wesentliche Modellparameter im Rahmen der Zweifilmtheorie dar. Die Filmdicke δ der jeweiligen Phase kann durch das Verhältnis des mittleren Diffusionskoeffizienten \bar{D} und dem Stoffübergangskoeffizienten β berechnet werden:

$$\delta_{GF/LF} = \frac{\bar{D}_{G,L}}{\beta_{G/L}} \quad (2.37)$$

Gemäß Taylor und Krishna (1993) liegt die Dicke des Flüssigkeitsfilms im Bereich von 0.01 bis 0.1 mm und die Dicke des Gasfilms im Bereich von 0.1 bis 1 mm. Für die jeweilige Filmdicke wird bei reaktiven Mehrkomponentensystemen häufig ein gemittelter Wert für alle Komponenten angenommen. Diese Vereinfachung ist notwendig, um in der Filmphase ein einheitliches Reaktionsvolumen für alle Komponenten definieren zu können (Hüpen, 2008). Zusätzlich muss aufgrund der gegenseitigen Abhängigkeit von Stoff- und Wärmetransport in beiden Phasen mit einer einheitlichen Filmdicke gerechnet werden. Dies hat für die Gasphase keine Auswirkungen, da die Filmdicken für den Stoff- und Wärmetransport im gleichen Größenbereich liegen (Frank et al., 1995). In der flüssigen Phase ist jedoch die Filmdicke für den Wärmetransport um den Faktor 2 bis 5 größer als die für den Stofftransport. Sensitivitätsuntersuchungen von Kucka (2003) und Hüpen (2008) haben jedoch gezeigt, dass auch hier eine einheitliche Filmdicke δ_{Lf} genutzt werden kann. Ein weiterer wesentlicher Modellparameter ist die spezifische Phasengrenzfläche, welche den Zusammenhang zwischen Stofffluss und Stoffstrom gewichtet. Eine Beschreibung der Methoden zur Ermittlung von Modellparametern erfolgt in **Abschnitt 2.3.4**.

Bilanzierung der Kernphasen

Die differentielle Stoffbilanz für die Kernphase des Gases lautet im stationären Zustand für jede Komponente i wie folgt:

$$\frac{\partial G y_{B,i}}{\partial z} = n_{G,B,i} a_{int} A_K, \quad i = 1, \dots, n_{G,Komp} \quad (2.38)$$

Die differentielle Stoffbilanz für die Kernphase der Flüssigkeit lässt sich unter Berücksichtigung von Reaktionen folgendermaßen ausdrücken:

$$\frac{\partial Lx_{B,i}}{\partial z} = n_{L,B,i}a_{int}A_K + R_{B,i}h_LA_K, \quad i = 1, \dots, n_{L,Komp} \quad (2.39)$$

Die Berechnung der komponentenbezogenen Reaktionsrate R_i wird in **Abschnitt 2.3.3** beschrieben. Zudem gilt in jedem Bilanzraum einer rate-based Stufe die Summationsbedingung der Stoffmengenanteile:

$$\sum_{i=1}^{n_{L,Komp}} x_i = \sum_{i=1}^{n_{G,Komp}} y_i = 1 \quad (2.40)$$

Zur Bestimmung des Wärmetransports in den Kernphasen werden die Enthalpiebilanzen für beide Phasen unter Vernachlässigung von Energieverlusten wie folgt definiert:

$$\frac{\partial Lh_{m,L,B}}{\partial z} = q_L a_{int} A_K \quad (2.41)$$

$$\frac{\partial Gh_{m,G,B}}{\partial z} = q_G a_{int} A_K \quad (2.42)$$

Beschreibung der Filme

Die differentielle Bilanz zur Beschreibung des Gasfilms kann entlang der Filmkoordinate ξ_{GF} für jede Komponente i wie folgt formuliert werden:

$$\frac{\partial n_{GF,i}}{\partial \xi_{GF}} = 0 \quad (2.43)$$

Der in Gleichung 2.43 enthaltene molare Stofffluss n_i setzt sich aus einem konvektiven und einem diffusiven Anteil zusammen, weshalb ein geeigneter Ansatz zur Beschreibung des diffusiven Transports erforderlich ist. In binären Stoffsystemen sind Triebkraft und Stofffluss direkt proportional zueinander. In Mehrkomponentensystemen können aufgrund intermolekularer Wechselwirkungen sogenannte diffusive Kreuzeffekte auftreten, wodurch eine direkte Proportionalität zwischen Triebkraft und Stofffluss nicht zwingend gegeben ist. Folgende Phänomene können auftreten (Krishna und Wesselingh, 1997):

- Diffusionsbarrieren: Kein Diffusionsfluss einer Komponente trotz bestehender eigener Triebkraft
- Osmotische Diffusion: Diffusionsfluss einer Komponente ohne eigene Triebkraft
- Umgekehrte Diffusion: Diffusionsfluss einer Komponente entgegen der eigenen Triebkraft

In Mehrkomponentensystemen können folgende Ansätze zur Beschreibung der Diffusion angewendet werden:

- Verallgemeinertes Fick'sches Gesetz
- Maxwell-Stefan Ansatz
- Konzept der effektiven Diffusionskoeffizienten

Das verallgemeinerte Fick'sche Gesetz berücksichtigt die Abhängigkeit des Diffusionsflusses einer Komponente von den Konzentrationsgradienten aller Komponenten (Cussler, 2011).

$$\dot{j}_i = -c_{tot} \sum_{j=1}^{n_{Komp}-1} D_{ij} \nabla y_j, \quad i = 1, \dots, n_{Komp} \quad (2.44)$$

Die Diffusionskoeffizienten D geben nach dem verallgemeinerten Fick'schen Gesetz die intermolekularen Wechselwirkungen nicht direkt wieder, sind nicht symmetrisch ($D_{1,2} \neq D_{2,1}$) und können sowohl positive als auch negative Vorzeichen annehmen.

Der Maxwell-Stefan Ansatz ist physikalisch fundiert und kann aus der kinetischen Gastheorie hergeleitet werden. Die Maxwell-Stefan Gleichung lässt sich für reale Fluide in allgemeiner Form wie folgt ausdrücken (Krishna und Wesselingh, 1997):

$$d_i = - \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^{n_{Komp}-1} \frac{y_i \dot{j}_j - y_j \dot{j}_i}{c_{tot} D_{ij}}, \quad i = 1, \dots, n_{Komp} \quad (2.45)$$

Die Maxwell-Stefan Diffusionskoeffizienten sind stets positiv und symmetrisch ($D_{1,2} = D_{2,1}$) (Hüpen, 2008). Unter der Annahme eines konstanten Drucks und der Vernachlässigung weiterer Kräfte kann anstelle der Triebkraft d_i für ein ideales Fluid der Konzentrationsgradient verwendet werden:

$$d_i = \nabla y_i, \quad i = 1, \dots, n_{Komp} \quad (2.46)$$

Das Konzept der effektiven Diffusionskoeffizienten stellt eine Vereinfachung des verallgemeinerten Fick'schen Gesetzes dar, bei dem der Diffusionsfluss einer Komponente nur in Abhängigkeit des eigenen Konzentrationsgradienten beschrieben wird (Kenig, 2000).

$$\dot{j}_i = -c_{tot} D_{eff,i} \nabla y_i, \quad i = 1, \dots, n_{Komp} \quad (2.47)$$

Im Gegensatz zu den Ansätzen nach Maxwell-Stefan und Fick werden beim Konzept der effektiven Diffusionskoeffizienten die Diffusionskopplungen zwischen Komponenten nicht erfasst, weshalb es fraglich ist, ob durch die Verwendung von effektiven Diffusionskoeffizienten die Qualität der Berechnungen maßgebend negativ beeinträchtigt wird. Schneider (2001) zeigt jedoch anhand seiner Untersuchungen zur Kokereiabgasreinigung, dass die übergehenden Stoffströme, die basierend auf dem Maxwell-Stefan Ansatz berechnet wurden, nur geringfügig von denen abweichen, die mit effektiven Diffusionskoeffizienten berechnet wurden. Zudem wird durch die Entkopplung der Diffusionsflüsse das komplexe Gleichungssystem vereinfacht (Kucka, 2003), wodurch sowohl das Konvergenzverhalten als auch die Rechenzeit positiv beeinflusst wird. Aus den genannten Gründen wird in der vorliegenden Arbeit zur Beschreibung der molekularen Diffusion das Konzept der effektiven Diffusionskoeffizienten angewendet. Die Bestimmung des molaren Stoffflusses im Gasfilm $n_{G,i}$ erfolgt somit durch nachfolgende Gleichung:

$$n_{G,i} = y_{i,Gf} n_{G,tot} - c_{G,tot} D_{G,eff,i} \frac{\partial y_{GF,i}}{\partial \xi_{GF}}, \quad i = 1, \dots, n_{G,Komp} \quad (2.48)$$

Im Gegensatz zum Gasfilm, werden bei der differentiellen Bilanz im Film der flüssigen Phase sowohl Stofftransport als auch Reaktion anhand der komponentenbezogenen Reaktionsrate $R_{LF,i}$ berücksichtigt:

$$\frac{\partial n_{LF,i}}{\partial \xi_{LF}} = R_{LF,i}, \quad i = 1, \dots, n_{L,Komp} \quad (2.49)$$

Aufgrund der Reaktionen im Film der flüssigen Phase entstehen bei dem System CO_2 und MEA ionische Komponenten. Zur Beschreibung der Mehrkomponentendiffusion im Flüssigfilm kann für verdünnte Elektrolytlösungen die Nernst-Planck-Gleichung verwendet werden (Taylor und Krishna, 1993). Hierbei wird zusätzlich die Migration der Elektrolytkomponenten berücksichtigt:

$$n_{LF,i} = -c_{LF,tot} D_{L,eff,i} \left(\frac{\partial x_{LF,i}}{\partial \xi_{LF}} + x_{LF,i} e_i \frac{F}{R_G T} \frac{\partial \phi}{\partial \xi_{LF}} \right) + x_{LF,i} n_{L,tot}, \quad i = 1 \dots n_{L,Komp} - 1 \quad (2.50)$$

Neben der Summationsbedingung gilt in der flüssigen Phase aufgrund der ionischen Komponenten die Elektroneutralitätsbedingung, bei der neben dem Molanteil der Komponente x_i auch die Ladungszahl der Komponente e_i berücksichtigt wird:

$$\sum_{i=1}^{n_{L,Komp}} x_i e_i = 0 \quad (2.51)$$

Die differentiellen Bilanzen zur Beschreibung des Wärmetransports in den Filmen lauten wie folgt:

$$\frac{\partial q_{GF}}{\partial \xi_{GF}} = 0 \quad (2.52)$$

$$\frac{\partial q_{LF}}{\partial \xi_{LF}} = 0 \quad (2.53)$$

Durch eine Überlagerung von Konvektion und Wärmeleitung kann der Wärmefluss in beiden Filmen wie folgt beschrieben werden:

$$q_{LF} = \sum_{i=1}^{n_{L,Komp}} (n_{LF,i} h_{m,LF,i}) - \lambda_{LF} \frac{\partial T_{Lf}}{\partial \xi_{LF}} \quad (2.54)$$

$$q_{GF} = \sum_{i=1}^{n_{G,Komp}} (n_{GF,i} h_{m,GF,i}) - \lambda_{GF} \frac{\partial T_{GF}}{\partial \xi_{GF}} \quad (2.55)$$

Bedingungen an der Phasengrenzfläche

Im Gegensatz zum Gleichgewichtsstufenmodell wird bei kinetisch basierten Ansätzen das thermodynamische Gleichgewicht ausschließlich an der Phasengrenze angenommen. Auf die Bestimmung der für die Gleichgewichtsberechnung notwendigen Verteilungskoeffizienten wurde bereits in **Abschnitt 2.3.1** eingegangen. Für den Stoff- und Wärmefluss gilt jeweils die Konti-

nuitätsbedingung an der Phasengrenze. Ein Übergang der ionischen Komponenten in die Gasphase erfolgt hierbei nicht.

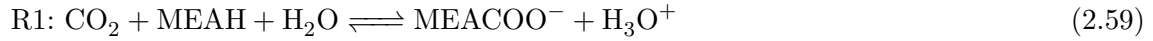
$$n_{GF,i}|_{\xi_{GF}=\delta_{GF}} = n_{LF,i}|_{\xi_{LF}=0}; \quad i = 1, \dots, n_{\text{molekulare Komponenten}} \quad (2.56)$$

$$0 = n_{LF,i}|_{\xi_{LF}=0}; \quad i = 1, \dots, n_{\text{Elektrolyte}} \quad (2.57)$$

$$q_{GF}|_{\xi_{GF}=\delta_{GF}} = q_{LF}|_{\xi_{LF}=0} \quad (2.58)$$

Implementierung des Reaktionssystems

Das Reaktionssystem von CO₂, Wasser und MEA besteht aus parallel und konstitutiv ablaufenden, reversiblen Reaktion:



Hierbei verläuft die Umsetzung von CO₂ zu Hydrogenkarbonat und zu Carbamat (R1-R2) kinetisch kontrolliert ab. Die Reaktionen R3-R5 sind instantan ablaufende Reaktionen. Die Berechnung der komponentenbezogenen Reaktionsraten R_i erfolgt über die Äquivalenzreaktionsgeschwindigkeiten r_r und die stöchiometrischen Koeffizienten $\nu_{i,r}$.

$$R_i = \sum_r (\nu_{i,r} r_r); \quad i = 1, \dots, n_{L,Komp} \quad (2.64)$$

Die Äquivalenzreaktionsgeschwindigkeit von reversiblen, kinetisch kontrollierten Reaktionen kann wie folgt bestimmt werden:

$$r_r = k_{r,hin} \prod_e (x_e \varphi_e)^{\nu_{e,r}} - k_{r,rück} \prod_p (x_p \varphi_p)^{\nu_{p,r}} \quad (2.65)$$

Die Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten k_r werden mit Hilfe des Arrhenius-Ansatzes berechnet:

$$k_r = k_{0,r} e^{-\frac{E_A}{R_G T}} \quad (2.66)$$

Die Reaktionsgleichgewichtskonstante K_r verbindet die Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten für die Hin- und Rückreaktion miteinander:

$$k_{r,rück} = \frac{k_{r,hin}}{K_r} \quad (2.67)$$

Zur Beschreibung von instantan ablaufende Reaktionen wird das Massenwirkungsgesetz verwendet.

$$K_r = \frac{\prod_p (x_p \gamma_p)^{\nu_{p,r}}}{\prod_e (x_e \gamma_e)^{\nu_{e,r}}} \quad (2.68)$$

Die Reaktionsgleichgewichtskonstanten können mit dem nachfolgenden Ansatz berechnet werden:

$$\ln K_r = a + \frac{b}{T} + cT + d \ln T \quad (2.69)$$

Für die Berechnung der Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten (Gleichung 2.66) werden Koeffizienten benötigt, die **Tabelle 2.6** entnommen werden können. Die Koeffizienten der Reaktion R1 basieren auf den Messungen von Pinset et al. (1956) und die der Reaktion R2 beruhen auf Messungen von Hikita et al. (1977). Die Koeffizienten in Gleichung 2.69 zur Berechnung der Gleichgewichtskonstanten für die Reaktionen R3 bis R5 (Austgen et al., 1989) sind in **Tabelle 2.7** zusammengefasst.

Tabelle 2.6: Koeffizienten zur Berechnung der Geschwindigkeitskonstanten in Gleichung 2.66.

Reaktion	$k_{0,r,hin}$	$E_{A,hin}$	$k_{0,r,rück}$	$E_{A,rück}$
R1	$1,33 \cdot 10^{17}$	55470,91	$3,02 \cdot 10^{14}$	41264,26
R2	$6,63 \cdot 10^{16}$	107416,54	$6,50 \cdot 10^{27}$	95383,68

Tabelle 2.7: Koeffizienten zur Berechnung der Gleichgewichtskonstanten in Gleichung 2.69.

Reaktion	a	b	c	d
R3	+0,7996	-8094,81	0,0	-0,007484
R4	+216,049	-12431,7	-35,4819	0,0
R5	+132,899	-13445,9	-22,4773	0,0

2.3.4 Bestimmung von Modellparametern

Zur Anwendung von rate-based Modellen werden diverse Modellparameter benötigt, die im Allgemeinen von Betriebsbedingungen, den Stoffeigenschaften und den Geometrieparametern der betrachteten Einbauten abhängig sind. Diese Modellparameter können wie folgt gegliedert werden:

- Parameter zur Beschreibung der Stofftransportkinetik:
 - Der Stoffübergangskoeffizient der flüssigen Phase β_L bzw. die Dicke des flüssigen Films δ_L
 - Der Stoffübergangskoeffizient der Gasphase β_G bzw. die Dicke des Gasfilms δ_L

- Fluiddynamische Parameter, die direkten Einfluss auf den Stofftransport bzw. auf die Reaktionen haben:
 - Die spezifische Phasengrenzfläche a_{int}
 - Der Flüssigkeitsholdup h_L
- Fluiddynamische Parameter, die einen engen Bezug zu den Strömungsvorgängen in den Einbauten der Kolonne herstellen:
 - Der spezifische Druckverlust Δp_H
 - Die fluiddynamischen Belastungsgrenzen

Im vorliegenden Abschnitt werden die Parameter zur Beschreibung der Stofftransportkinetik und die spezifische Phasengrenzfläche thematisiert, die zusammenfassend als Stofftransportparameter bezeichnet werden. Auf die verbleibenden fluiddynamischen Parameter wurde bereits in **Abschnitt 2.2.1** eingegangen.

Die Berechnungen von Stofftransportparametern zur Anwendung in rate-based-Modellen erfolgt mittels einbauten-spezifischer Korrelationen (Wesselingh, 1997). Heutzutage steht eine enorme Anzahl an Korrelationen zur Berechnung der Stofftransportparameter zur Verfügung. In einem Übersichtsbeitrag von Wang et al. (2005) wurden die Ergebnisse verschiedener Korrelationen zur Bestimmung der Stofftransportparameter verglichen. Die Autoren stellten fest, dass die Anwendung der Korrelationen oft auf die untersuchten Stoffsysteme, Einbauten und Betriebsbedingungen beschränkt sind. Darüber hinaus verglichen Razi et al. (2012) die Ergebnisse verschiedener Korrelationen am Beispiel der reaktiven CO₂-Absorption in wässrigen MEA-Lösungen in strukturierten Packungen. Zum einen zeigte sich, dass mit der Anwendung dieser Korrelationen in großtechnischen Füllkörperkolonnen eine große Unsicherheit verbunden ist, da die Korrelationen auf im Pilotmaßstab durchgeführten Messungen basieren. Zum anderen sind die Ergebnisse der verschiedenen Korrelationen eher kontrovers und spannen einen sehr großen Wertebereich auf. Die Autoren nennen für die beobachteten Probleme zwei wichtige Gründe. Erstens kann die Modelltheorie, auf der die Korrelationen basieren, viele Annahmen enthalten, die nicht allgemein gültig sind. Zweitens ist die zugrundeliegende Datenbasis zur Validierung der Korrelationen unzureichend oder von unzureichender Qualität.

Neuere Untersuchungen zur experimentellen Bestimmung von Stofftransportparametern zeigen die Notwendigkeit eines standardisierten Versuchsaufbaus auf (Hoffmann et al. (2007); Rejl et al. (2009); Kunze et al. (2012); Wolf et al. (2015)). Die Standardisierung der Experimente spielt eine Schlüsselrolle für die Bestimmung verlässlicher Stofftransportparameter, um die Übertragbarkeit auf andere Kolonnenkonfigurationen zu gewährleisten. Bei der Standardisierung der Experimente gilt es verschiedene Einflussfaktoren zu berücksichtigen:

- Anlagen- und Kolonnenkonfiguration (Vorsättigung, Kolonnendurchmesser, Gas- und Flüssigkeitsverteilung usw.)
- Betriebsbedingungen (stationärer Zustand, Flüssigkeits- und Gasbelastung, Temperatur usw.)
- Probenahme, Messgeräte und Methoden
- Einsatz geeigneter Stoffsysteme (Testsysteme)

- Ansätze zur Bestimmung der Parameter aus experimentellen Daten

Die experimentelle Bestimmung der Stoffübergangskoeffizienten und der spezifischen Phasengrenzfläche basiert üblicherweise auf Messungen der Konzentrationen am Ein- und Ausgang der Trennapparate. Jedoch ist eine direkte experimentelle Bestimmung von Stoffübergangskoeffizienten bei Gegenstromtrennverfahren in Kolonnen mit den derzeitigen experimentellen Methoden nahezu unmöglich. Um die Stoffübergangskoeffizienten direkt zu bestimmen, ist es notwendig die genaue Lage der bewegten Phasengrenzfläche zu kennen, um die Konzentrationen der jeweiligen Komponenten an der Grenzfläche zu messen. Die Bestimmung der Stoffübergangskoeffizienten erfolgt daher über eine Abschätzung basierend auf volumetrischen Stoffdurchgangskoeffizienten ($\beta_{OG}a_{eff}$), die mit Hilfe von Konzentrationsmessungen bestimmt werden können.

Als theoretischer Ansatz zur Ermittlung von Stofftransportparametern aus Konzentrationsmessungen wird für Strukturpackungen häufig das HTU-NTU-Modell verwendet (Duss et al. (2001); Tsai et al. (2011); Kunze et al. (2015)). Auf der Basis von Konzentrationsmessungen lässt sich jedoch nur das Produkt aus Stoffdurchgangskoeffizienten und Phasengrenzfläche bestimmen. Zur individuellen Bestimmung von Stoffübergangskoeffizienten und Phasengrenzfläche werden einerseits Messungen mit verschiedenen Stoffsystemen in verschiedenen Apparaten kombiniert und andererseits vereinfachende Annahmen oder bereits entwickelte Korrelationen verwendet. Eine umfangreiche Übersicht zu den verschiedenen Methoden Stofftransportparameter individuell zu bestimmen wird in der Arbeit von Hegely et al. (2017) gegeben. Da der Umfang dieser Thematik enorm ist, wird nachfolgend nur kurz auf die Probleme der individuellen Bestimmung von Stofftransportparametern am Beispiel der spezifischen Phasengrenzfläche eingegangen.

Eine verlässliche Bestimmung der spezifischen Phasengrenzfläche ist wesentlich, da diese einen sehr sensitiven Einfluss auf die Simulationsergebnisse von kinetisch basierten Modellen hat. Eine häufig in der Literatur anzutreffende Methode zur Bestimmung der Phasengrenzfläche basiert auf der chemischen Absorption von CO_2 aus Luft in wässrige NaOH Lösungen. Die spezifische Phasengrenzfläche wird hierbei mit dem aus Messungen abgeleiteten, gasseitigen volumetrischen Stoffdurchgangskoeffizienten und einem theoretischen Stoffdurchgangskoeffizienten bestimmt (Kunze et al., 2015).

$$a_{int} = \frac{(\beta_{OG}a_{int})_{exp}}{(\beta_{OG})_{theo}} \quad (2.70)$$

Der theoretische Stoffdurchgangskoeffizient kann mit Hilfe von Gleichung 2.36 berechnet werden. Der Widerstand der flüssigen Phase kann für das betrachtete Stoffsystem unter der Annahme einer sehr schnellen, irreversiblen Reaktion pseudo-erster Ordnung vernachlässigt werden. Bei diesen Reaktionen resultieren hohe Enhancement-Faktoren, die als Funktion der Hatta-Zahl bestimmt werden können. Für die Ermittlung des Stoffübergangskoeffizienten der Gasphase werden in der Literatur folgende Methoden bzw. Annahmen verwendet:

1. Der gasseitige Widerstand wird auch vernachlässigt (Kunze et al., 2015). Jedoch ist der einzige Fall, bei dem eine Vernachlässigung zulässig ist, wenn diese Phase ausschließlich aus der gelösten Komponente besteht, da es in diesem Fall keinen Konzentrationsgradienten gibt. Diese Annahme trifft nicht auf das Stoffsystem CO_2 in konzentrierter NaOH-Lösung zu.

2. Der Stoffübergangskoeffizient der Gasphase wird mit einer bereits vorhandenen Korrelation berechnet (Hoffmann et al., 2007). Der Fehler in der Berechnung wirkt sich direkt auf die ermittelte Phasengrenzfläche aus.
3. Der Stoffübergangskoeffizient der Gasphase wird für das gleiche Stoffsystem z.B. in einem Fallfilmabsorber vermessen (Tsai et al., 2011). In Fallfilmabsorbern liegt eine definierte Phasengrenzfläche vor, welche somit bekannt ist. Daher ist es möglich den Stoffübergangskoeffizienten der Gasphase apparatespezifisch experimentell zu bestimmen. Bei dieser Methode ist die Übertragbarkeit der Kinetik aus Fallfilmabsorbern auf Kolonnen fragwürdig, da sich die Strömungsprozesse in den beiden Apparaten wesentlich voneinander unterscheiden. Der Fehler bei der Übertragung des Stoffübergangskoeffizienten der Gasphase ist unbekannt und wirkt sich wiederum direkt auf die ermittelte Phasengrenzfläche aus.

Alle drei Methoden führen unweigerlich zu fehlerhaften Bestimmungen der Phasengrenzfläche, wobei mit der Ermittlung von Stoffübergangskoeffizienten ähnliche Herausforderungen einhergehen. Das Problem besteht darin, dass eine Gleichung mit drei Unbekannten (zwei Stoffübergangskoeffizienten und Phasengrenzfläche) beliebig viele Lösungen hat. Unter bestimmten Voraussetzungen ist es zulässig, einen der beiden Phasenwiderstände zu vernachlässigen. Dadurch bleibt eine Gleichung mit zwei Unbekannten übrig, die wiederum beliebig viele Lösungen hat. Diese Schwierigkeit kann umgangen werden, indem mindestens ein Stofftransportparameter unabhängig bestimmt wird. Es bietet sich an die spezifische Phasengrenzfläche mittels tomographischen Methoden zu bestimmen.

2.4 Schlussfolgerungen und Ziele der Arbeit

Anstaupackungen stellen eine Kombination strukturierter Packungssegmente mit unterschiedlicher geometrischer Oberfläche dar. Charakteristisch für Anstaupackungen sind der intensive Gas-Flüssig-Phasenkontakt und hohe Stoffaustauschraten. Trotz des großen Potenzials besetzen Anstaupackungen industriell nur kleine Nischen, da vertrauenswürdige Auslegungsmethoden fehlen. Die Schwierigkeit bei der Modellierung von Anstaupackungen besteht darin, dass die Transportvorgänge gleichzeitig in verschiedenen Strömungsformen betrachtet werden müssen. Brinkmann et al. (2009) entwickelten einen ersten Modellansatz, bei dem das komplette Anstaupackungselement als eine rate-based-Stufe angesehen wird. Yildirim und Kenig (2015) erweiterten den Ansatz, indem die jeweilige Packungslage einzeln als rate-based-Stufe betrachtet wurde. Diese Methoden berücksichtigten jedoch nicht die verschiedenen fluiddynamischen Regime, die den Stofftransport beeinflussen.

Für einen erweiterten Modellansatz, der die Anstaupackung in fluiddynamische Regime unterteilt, sind systematische Untersuchungen zum Einfluss der Betriebs- und Designparameter der Packungssegmente auf Stofftransport und Fluidodynamik grundlegend. Insbesondere ist eine detaillierte Beschreibung der charakteristischen, dynamischen Strömungsmuster in beiden Packungslagen als Basis für eine verlässliche Modellierung notwendig. Außerdem bedarf es experimenteller Daten zur Trennleistung von Anstaupackungen für die Verifizierung des erweiterten Modellansatzes.

Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist die Entwicklung eines rate-based-Modells zur Beschreibung des Stofftransports in Anstaupackungen, welches in der Lage ist das heterogene Strömungsmuster zu berücksichtigen. Zu diesem Zweck werden experimentelle und theoretische Methoden komplementär eingesetzt. Um die Auswirkungen der einzelnen Strömungsregime experimentell zu bestimmen, werden Untersuchungen an einer Absorptions-/ Desorptionsanlage durch bildgebende Messungen in Anstaupackungen ergänzt.

Mithilfe von Daten aus Messungen mit der ultraschnellen Röntgentomographie wird die Phasenverteilung innerhalb der Anstaupackung untersucht. Die Messdaten werden verwendet, um Korrelationen für Phasengrenzfläche, Holdup und Druckverlust zu entwickeln. Außerdem werden die auf den tomographischen Untersuchungen basierenden Erkenntnisse und Korrelationen genutzt, um einen neuen Modellansatz zur Beschreibung der Fluidodynamik in Anstaupackungen zu entwickeln, der die Grundlage für die Beschreibung des Stofftransports darstellt. Zur Verifizierung des neuen Modellansatzes werden die aus der Literatur verfügbaren Daten zum Druckverlust und Holdup in Anstaupackungen verwendet. Zu diesem Zweck werden die verfügbaren Daten zunächst in einer Datenbasis zusammengeführt.

Der Stofftransport in Anstaupackungen wird anhand experimenteller Daten zur reaktiven CO_2 -Absorption ausgewertet. In diesem Zusammenhang erfolgt eine Verifizierung des entwickelten rate-based-Modells für Anstaupackungen und eine regimeabhängige Bestimmung des Stoffübergangskoeffizienten der Gasphase.

3 Experimentelle Untersuchungen von Anstaupackungen

Im vorliegenden Kapitel werden die experimentellen Studien zu Anstaupackungen thematisiert, welche sich in Untersuchungen zur Fluidodynamik und zum Stofftransport gliedern. Dementsprechend gliedert sich das vorliegende Kapitel in zwei Teile. Aufbauend auf dem in **Kapitel 2** vorgestellten Stand des Wissens zu Anstaupackungen wird im ersten Teil zunächst ein Überblick über die in der Literatur dokumentierten fluiddynamischen Experimente dargestellt. Dieser Überblick soll die zusammengestellte Datenbasis aufzeigen, welche für das Modell zur Beschreibung der Fluidodynamik in Anstaupackungen (siehe **Kapitel 4**) herangezogen wurde. Weiterhin werden im ersten Teil die am Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf vorgenommenen tomographischen Untersuchungen sowie deren Ergebnisse erläutert. Die Ergebnisse der tomographischen Untersuchungen sind grundlegend für die im Rahmen der vorliegenden Arbeit entwickelten Ansätze zur Beschreibung der Strömungs- und Transportprozesse in Anstaupackungen. Im Fokus des zweiten Teils des vorliegenden Kapitels stehen die eigenen Untersuchungen zum Stofftransport in Anstaupackungen, welche zur reaktiven CO₂-Absorption mit Lösungen aus Wasser und MEA durchgeführt wurden. Die Erkenntnisse und die erhobenen Daten aus den eigenen experimentellen Untersuchungen dienen der Entwicklung und Verifizierung eines rate-based Modells zur Bestimmung der Trennleistung von Anstaupackungen, das in **Kapitel 5** behandelt wird.

3.1 Fluidodynamik

Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit zusammengestellte Datenbasis zur Fluidodynamik in Anstaupackungen basiert auf Ergebnissen aus Untersuchungen, die mit unterschiedlichen experimentellen Methoden ermittelt wurden. Zum einen wurden in der Literatur veröffentlichte experimentelle Daten zum Druckverlust und Holdup in Anstaupackungen zusammengetragen, wobei beide Parameter integral entlang der gesamten Kolonne gemessen wurden. Dies bedeutet, dass für einen Betriebspunkt nur ein entlang aller Lagen und Strömungsregime gemittelter Wert bestimmt wurde. Zusätzlich zu den integralen Messdaten von Anstaupackungen wurden auch integrale Messdaten aus Kolonnen mit herkömmlichen strukturierten Packungen in der Datenbasis berücksichtigt. Auf diese Weise können die Auswirkungen unterschiedlicher Strömungsmuster und Packungslagen auf fluiddynamische Parameter analysiert werden. Darüber hinaus wurden Daten aus tomographischen Messungen zur Phasenverteilung in An-

staupackungen genutzt, um detaillierte Einblicke in die sich entwickelnden Strömungsregime zu erhalten sowie fluiddynamische Parameter insbesondere in gefluteten Bereichen zu bestimmen. Außerdem wurden Ergebnisse aus einphasigen CFD Simulationen (z.B. aus Olenberg et al. (2018)) der Gasströmung analysiert, um den Einfluss des Neigungswinkels auf den spezifischen Druckverlust in periodischen Elementen von strukturierten Packungen zu identifizieren.

3.1.1 Messungen des Druckverlusts, des Holdups und der Lastgrenzen

Alle integralen Messungen von Druckverlust und Holdup in Anstaupackungen wurden mit Packungen des Typs B1 der Firma Montz durchgeführt. Die geometrischen Eigenschaften der verwendeten Packungen sind in **Tabelle 3.1** angegeben.

Tabelle 3.1: Geometrische Eigenschaften der verwendeten Packungen.

Packungstyp	Geometrische Oberfläche a_{geo} [m ² m ⁻³]	Leerraumvolu- menanteil ε_P [-]	Hydraulischer Durchmesser d_h [m]	Winkel α_P [°]
B1-125	125	0.99375	0.0318	45
B1-150.60	150	0.9925	0.0265	60
B1-250	250	0.9875	0.0158	45
B1-250M	250	0.9875	0.0158	53.8
B1-500	500	0.975	0.0078	45
B1-750	750	0.9625	0.00513	45
B1-1000	1000	0.95	0.0038	45

In **Tabelle 3.2** sind die geometrischen und betrieblichen Parameter zusammengefasst, die bei den Messungen des trockenen und berieselten Druckverlusts verwendet wurden. Die Versuche wurden bei Umgebungsbedingungen mit dem System Luft/Wasser durchgeführt. Es wurden verschiedene Berieselungsdichten und jeweils F-Faktoren bis zum Flutpunkt untersucht. Zur Bestimmung der Auswirkungen von geometrischen Parametern auf den Druckverlust wurden die geometrischen Oberflächen der beiden Packungslagen, die Höhe der Anstaulage und der Neigungswinkel der Abscheidelage im Rahmen verschiedener Experimentalserien variiert. Zudem beinhalten die Experimente Untersuchungen mit unterschiedlichen Töpfchenanteilen, wobei Werte zwischen 0 % und 30 % realisiert wurden.

Anfänglich wurden Anstaupackungen der ersten Generation untersucht. Anstaupackungen der ersten Generation sind dadurch gekennzeichnet, dass keine Töpfchen verwendet wurden und der Einbau der einzelnen Packungslagen Konfiguration A entspricht (vgl. **Abschnitt 2.2.1**). Kashani et al. (2004) führten umfangreiche experimentelle Untersuchungen zur Fluidodynamik von Anstaupackungen durch. Neben der geometrischen Oberfläche von der Anstau- und Abscheidelage wurde auch der Einfluss verschiedener Wandabweiser auf das fluiddynamische Verhalten von Anstaupackungen untersucht, wobei Wandabweiser aus Drahtgewebe (DGRA) und Sägezahnrandabweiser (SZRA) eingesetzt wurden. Bei allen weiteren Untersuchungen wurden Sägezahnrandabweiser verwendet.

Tabelle 3.2: Verwendete experimentelle Druckverlustuntersuchungen.

AN	Höhe AN [mm]	a_T [-]	AB	Höhe AB [mm]	d_K [mm]	u_L [$\text{m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$]	Konfig.	Randabweiser	Quelle
Anstaupackungen									
B1-1000	30	0	B1-250	200	300	0;2;5;10;25;50	A	SZRA	Kashani (2002)
B1-750	30	0	B1-250	200	300	0;2;5;10;25;50	A	SZRA	Kashani (2002)
B1-750	30	0	B1-125	200	300	0;2;5;10;25	A	SZRA	Kashani (2002)
B1-500	30	0	B1-250	200	300	0;2;5;10;25;50	A	SZRA	Kashani (2002)
B1-500	30	0	B1-125	200	300	0;2;5;10;25;50	A	SZRA	Kashani (2002)
B1-1000	30	0	B1-250	200	300	0;2;5;10;25;50	A	DGRA	Kashani (2002)
B1-1000	30	0	B1-125	200	300	0;2;5;10;25;50	A	DGRA	Kashani (2002)
B1-750	50	0.1	B1-250M	200	500	0;1;5;10;20;50	B	SZRA	Jödecke et al. (2006)
B1-1000	50	0	B1-250	200	900	0;2;5;10;20;50	B	SZRA	Kaibel (2008)
B1-750	50	0.1	B1-250M	210	1450	0;2;5;10;20;50	B	SZRA	Kaibel (2008)
B1-750	50	0.1;0.3	B1-125	210	500	50;100	B	SZRA	Metzen et al. (2010)
B1-750	50	0.1	B1-125	210	500	0;1;5;10;20;50	B	SZRA	Brinkmann et al. (2012)
B1-750	50	0.1	B1-150.60	220	500	0;1;5;10;20;50	B	SZRA	Brinkmann et al. (2012)
B1-750	50	0.1	B1-250M	210	500	0;1;5;10;20;50	B	SZRA	Brinkmann et al. (2012)
B1-750	30;50;70	0	B1-250	196	100	0;5;10;20;50	B	SZRA	Flehsig et al. (2017)
Konventionelle Strukturpackungen									
			B1-750	200	600	0;2;5;10;20;50			Brinkmann et al. (2012)
			B1-500	200	600	0;2;5;10;20;50			Brinkmann et al. (2012)
			B1-250	200	600	0;5;10;20;50			Brinkmann et al. (2012)
			B1-250M	200	600	0;5;10;20;50			Brinkmann et al. (2012)
			B1-250	200	450;800	0			Olujć (1999)
CFD mit $\alpha_P = [45^\circ; 60^\circ; 70^\circ]$									
			B1-250		0				Olenberg et al. (2018)

Nachfolgend wurden Untersuchungen der 2. Generation von Anstaupackungen unternommen, bei denen in die Anstaulagen Töpfchen implementiert wurden und der Lagenversatz entsprechend Konfiguration B gewählt wurde. Jödecke et al. (2006) und Kaibel (2008) untersuchten den Einfluss des Kolonnendurchmessers auf das fluiddynamische Verhalten von Anstaupackungen. Anhand von Druckverlustmessungen an Kolonnen mit einem Durchmesser von 1450 mm konnte gezeigt werden, dass Anstaupackungen der 2. Generation auch bei größeren Durchmessern stabil im Anstaubereich betrieben werden können. In einer Arbeit von Metzen et al. (2010) wurden die Auswirkungen des Töpfchenanteils auf das Druckverlustprofil von Anstaupackungen ermittelt. Aus den Untersuchungen ging hervor, dass durch eine Erhöhung des Töpfchenanteils der Flutpunkt der Anstaulage gezielt herabgesetzt werden kann. Im Rahmen des PRO INNO II Kooperationsprojekts „Untersuchungen des Einsatzes von strukturierten Packungen im Anstaubereich zur Erhöhung der Trennleistung“ wurden verschiedene Anstaupackungskombinationen der 2. Generation und konventionelle Strukturpackungen hinsichtlich des Druckverlusts untersucht (Brinkmann et al., 2012). Darüber hinaus wurde in weiteren Messungen der Einfluss der Anstaulagenhöhe auf den Druckverlust analysiert. Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit verwendete Datenbasis zur Fluidodynamik wurde zudem um Messreihen des trockenen Druckverlusts in Strukturpackungen mit verschiedenen Kolonnendurchmessern (Olujić, 1999) und CFD Simulationsergebnissen zum trockenen Druckverlust in periodischen Packungselementen mit unterschiedlichem Neigungswinkel der Packungskanäle (Olenberg et al., 2018) erweitert.

Die qualitativen Verläufe des Druckverlusts von Struktur- und Anstaupackungen wurden bereits in den **Abschnitten 2.1.2 und 2.2.1** diskutiert. Zur quantitativen Erörterung sind in **Abbildung 3.1** der gemessene Druckverlust der Anstaupackung B1-750T/B1-250M als Funktion des F-Faktors für eine Berieselungsdichte von $10 \text{ m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$ im Vergleich zu dem von zwei konventionellen strukturierten Packungen (B1-750 und B1-250M) dargestellt. Das Druckverlustprofil der Anstaupackung ordnet sich quantitativ zwischen denen der beiden Strukturpackungen ein. Bei einem F-Faktor von ungefähr $2 \text{ Pa}^{0.5}$ steigt das Profil von der B1-750 infolge des Flutens stark an. Die Anstaulage flutet bei einem vergleichbarem F-Faktor (HL FP) und der spezifische Druckverlust erreicht bei diesem Betriebspunkt annähernd 1000 Pa m^{-1} . Die obere Kapazitätsgrenze der Anstaupackung wird bei einem F-Faktor von ungefähr $4 \text{ Pa}^{0.5}$ erreicht. Es ist deutlich zu erkennen, dass im Vergleich zum Flutpunkt der konventionellen Packung B1-250M der F-Faktor am Flutpunkt der Anstaupackung (SP FP) zu einem niedrigeren Wert verschoben ist.

In den Arbeiten von Kashani (2002) und Yildirim (2016) wurden integrale Holdupmessungen mit Anstaupackungen durchgeführt. Die im Rahmen beider Arbeiten verwendeten geometrischen und betrieblichen Parameter sind in **Tabelle 3.3** zusammengefasst. Kashani (2002) hat den Holdup in Anstaupackungen ohne Töpfchen vermessen. Im Gegensatz dazu ermittelte Yildirim (2016) experimentell den Holdup in Anstaupackungen mit einem Töpfchenflächenanteil von 12 % in den Anstaulagen. In den Experimenten wurden die Auswirkungen der geometrischen Oberfläche und des Neigungswinkels der Abscheidelage untersucht. Außerdem wurden Holdup-Daten von konventionellen strukturierten Packungen von Brinkmann et al. (2012) in die Datenbank aufgenommen. Die untersuchten Berieselungsdichten umfassen Werte von 2 bis $25 \text{ m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$.

Abbildung 3.2 zeigt den Einfluss der geometrischen Oberfläche der Abscheidelage auf den Holdup. Die Holdupergebnisse resultieren aus Messungen in einer DN300 Kolonne bei einem

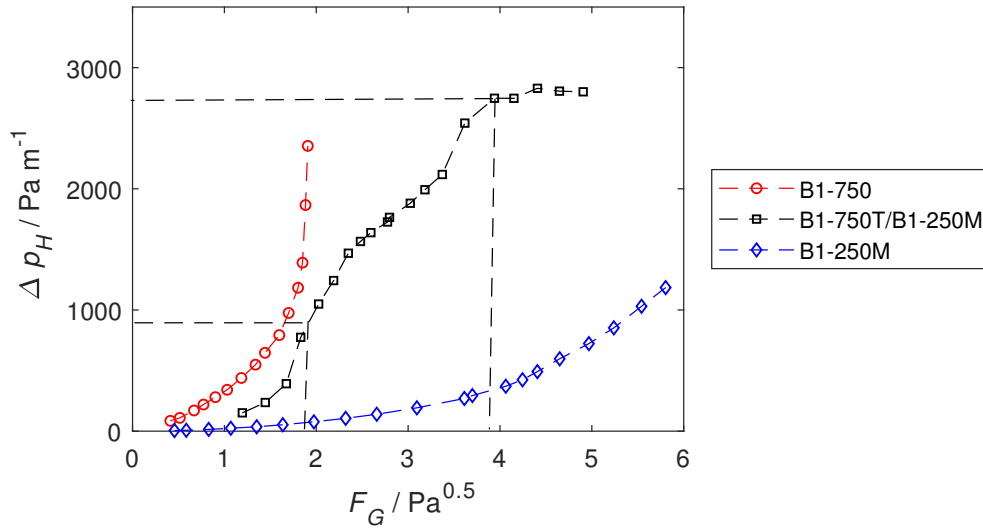


Abbildung 3.1: Experimenteller Druckverlust von zwei konventionellen Packungen (Brinkmann, 2014) und einer Anstaupackung (Jödecke et al., 2006) als Funktion des F-Faktors für eine Berieselungsdichte von $10 \text{ m}^3 \text{m}^{-2} \text{h}^{-1}$.

Töpfchenanteil von 12 %. Es ist zu erkennen, dass eine Erhöhung der spezifischen Oberfläche der Abscheidelage höhere Holdupwerte im Bereich niedriger Gasbelastungen und im Anstaubereich zur Folge hat. Der Anstaubereich befindet sich zwischen den Lastgrenzen der Anstaulage und dem der Anstaupackung. Die Gasbelastungen am Flutpunkt der Anstaulage liegen für beide Kombinationen bei ungefähr $1.5 \text{ Pa}^{0.5}$. Mit steigender geometrischer Oberfläche steigt auch der Strömungswiderstand und die obere Lastgrenze der Anstaupackung wird zu kleineren Gasbelastungen verschoben.

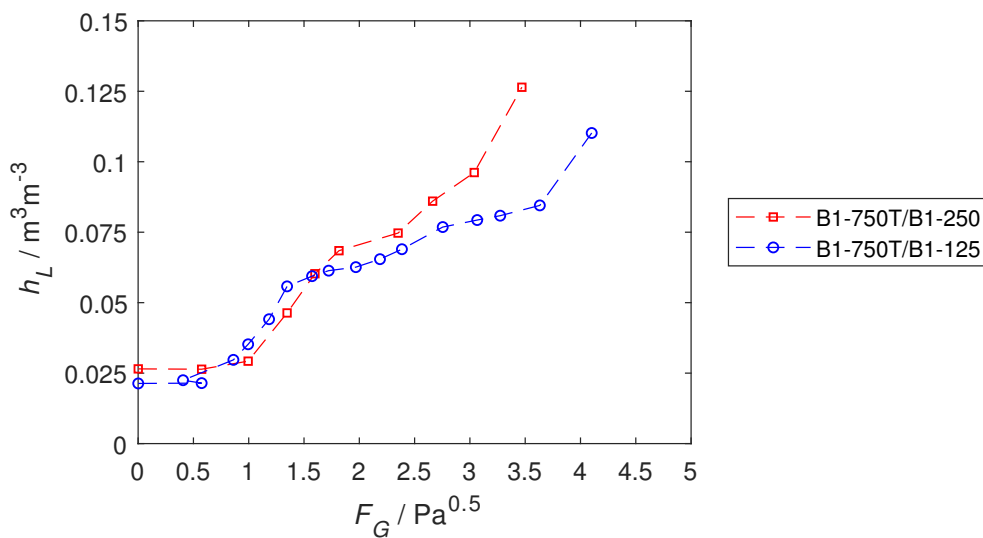


Abbildung 3.2: Einfluss der geometrischen Oberfläche der Abscheidelage auf das Profil des experimentell bestimmten Holdups (Yildirim, 2016) als Funktion des F-Faktors für eine Berieselungsdichte von $5 \text{ m}^3 \text{m}^{-2} \text{h}^{-1}$.

Tabelle 3.3: Verwendete experimentelle Holdupuntersuchungen.

AN	Höhe AN [mm]	a_T [-]	AB	Höhe AB [mm]	d_K [mm]	u_L [m ³ m ⁻² h ⁻¹]	Konfig.	Randabweiser	Quelle
Anstaupackungen									
B1-1000	30	0	B1-250	200	300	2;5;10;25	A	SZRA	Kashani (2002)
B1-750	30	0	B1-250	200	300	2;5;10;25	A	SZRA	Kashani (2002)
B1-750	30	0	B1-125	200	300	2;5;10;25	A	SZRA	Kashani (2002)
B1-500	30	0	B1-250	200	300	2;5;10;25	A	SZRA	Kashani (2002)
B1-500	30	0	B1-125	200	300	2;5;10;25	A	SZRA	Kashani (2002)
B1-750	50	0.12	B1-125	210	300	5;10;20	B	SZRA	Yildirim (2016)
B1-750	50	0.12	B1-250	210	300	5;10;20	B	SZRA	Yildirim (2016)
B1-750	50	0.12	B1-250.60	210	300	5;10;20	B	SZRA	Yildirim (2016)
Konventionelle Strukturpackungen									
B1-500	200			600		2;5;10;25			Brinkmann et al. (2012)
B1-250	200			600		2;5;10;25			Brinkmann et al. (2012)

Eine genaue Bestimmung der Flutpunkte von Anstaupackungen ist für die Beschreibung der Fluidodynamik unerlässlich. Die Gasgeschwindigkeit am Flutpunkt von Strukturpackungen wird üblicherweise aus experimentellen Druckverlustprofilen bestimmt (Lockett et al., 2006). Bei Anstaupackungen können die Gasbelastungen der Flutpunkte beider Lagen aus dem charakteristischen Druckverlustverlauf (vgl. **Abbildung 3.1**) abgelesen werden (Yildirim et al., 2012). Auf diese Weise wurden Flutpunkte von Anstaupackungen und strukturierten Packungen basierend auf den Messungen aus **Tabelle 3.2** ermittelt. Die ermittelten Werte der F-Faktoren am Flutpunkt sind in den **Tabellen A.1 und A.2** im **Anhang** zusammengefasst.

Um die Auswirkungen der einzelnen Strömungsregime in Kolonnen mit Anstaupackungen auf den Druckverlust und den Holdup zu untersuchen, sind Einblicke in die lokalen Strömungsmuster erforderlich, die auf der Basis fortschrittlicher tomographische Methoden erhalten werden können.

3.1.2 Ultraschnelle Röntgentomographie

Die *Computertomographie* (CT) kann zur nicht-invasiven Visualisierung des Flüssigkeitsströmungsmusters in Füllkörperkolonnen eingesetzt werden. Schubert et al. (2011) geben einen umfassenden Überblick über die Möglichkeiten und Grenzen von verschiedenen tomographischen Techniken für die Strömungsbildgebung und -analyse. Neben dem Holdup können basierend auf tomographischen Methoden die Gas-Flüssigkeits-Grenzfläche und die damit verbundene Benetzung der Packungsoberfläche lokal ermittelt werden. Um die Ergebnisse in Form von Querschnittsbildern zu visualisieren, werden Röntgenprojektionen rekonstruiert. Zur Rekonstruktion sind Projektionen aus verschiedenen Winkeln notwendig. Folglich muss entweder die Strahlungsquelle um die Kolonne rotieren oder die Kolonne muss um ihre eigene Achse rotiert werden.

Erste Versuche, die CT für fluiddynamische Untersuchungen in Füllkörperkolonnen einzusetzen, wurden von Suess und Spiegel (1992) unternommen. Ihre mit Gammastrahlen-CT gewonnenen Ergebnisse zeigten, dass sich der Flüssigkeitsinhalt entlang der Kolonnenachse verändert und sich die Flüssigkeit am Übergang zweier benachbarter Packungslagen vermehrt ansammelt, von wo aus der Flutvorgang initiiert wird. Die Gruppe aus Liège untersuchte die Zweiphasenströmung in Füllkörperschichten mit Röntgen-CT. Unter anderem bestimmten Aferka et al. (2011) mit dieser Methode die Verteilung des Flüssigkeits-Holdups und die spezifische Gas-Flüssigkeits-Grenzfläche. Mittlerweile gibt es CT-Systeme, die eine sehr hohe räumliche Auflösung ermöglichen. Zum Beispiel erreichten Schug und Arlt (2016) Auflösungen mit Pixelgrößen von $81 \mu\text{m} \times 81 \mu\text{m} \times 57 \mu\text{m}$. Ihre Untersuchungen zeigten, dass die Filmdicke von wässrigen Systemen stark von den Vorhersagen der Nusselt-Theorie abweicht. Außerdem stellte sich heraus, dass insbesondere Packungen mit großer geometrischer Oberfläche nur teilweise benetzt sind.

Allerdings ist die zeitliche Auflösung von den zuvor genannten CT-Systemen auf etwa eine Sekunde begrenzt, was ein ernsthaftes Hindernis für die Analyse von hoch-dynamischen Mehrphasenströmungen darstellt. In Anbetracht der rasanten zeitlichen Änderungen der Phasenverteilung in Sprudelregimen mit Zeitskalen bis hinunter zu wenigen Millisekunden sind hohe zeitliche Auflösungen erforderlich. Solche hohen zeitlichen Auflösungen können mit der

am Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf entwickelten *ultraschnellen Röntgentomographie* (UFXCT) erreicht werden (Fischer et al. (2008); Fischer und Hampel (2010)). Im Gegensatz zu konventionellen CT-Systemen ist hier keine mechanische Rotation erforderlich. Stattdessen basiert die UFXCT auf der elektromagnetischen Ablenkung eines Elektronenstrahls auf ein Wolframtarget, bei der in dessen Brennpunkt eine sehr schnell rotierende Röntgenquelle entsteht. Damit sind Bildraten von bis zu 8000 Bildern pro Sekunde möglich, wodurch hochdynamische Mehrphasenströmungen visuell erfasst werden können.

Experimenteller Aufbau

Abbildung 3.3 zeigt ein Fließbild (a) und ein Foto (b) des Versuchsaufbaus für die fluiddynamischen Messungen in Anstaupackungen mit der UFXCT (Sohr et al., 2018). Das Detektorsystem ist als Ring um eine Plexiglaszylinderkammer mit einem Durchmesser von 100 mm angeordnet. Das UFXCT wurde bei den fluiddynamischen Untersuchungen in Anstaupackungen mit Scanraten von 1000 Querschnittsbildern pro Sekunde betrieben, welche sich hervorragend zur Erfassung der räumlich und zeitlich fluktuierenden Gas-Flüssigkeits-Grenzflächen in Sprudelregimen eignen. Dabei wird eine räumliche Auflösung von etwa 1 mm erreicht. Für die fluiddynamischen Untersuchungen in Anstaupackungen wurde das Testsystem Wasser/Luft bei Umgebungsbedingungen verwendet. Um reproduzierbare Ergebnisse zu erzielen, wurde die Temperatur der Phasen kontrolliert und die Gasphase mit Wasser gesättigt.

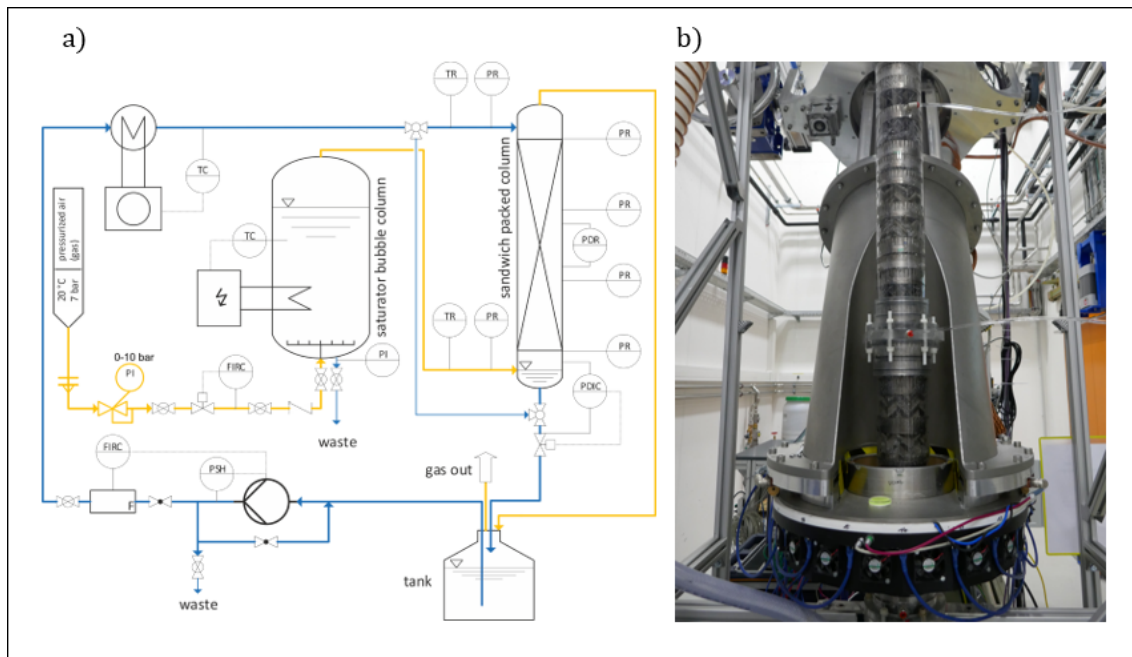


Abbildung 3.3: Fließbild des Versuchsaufbaus (a) und Foto des Versuchsstands am ultraschnellen Röntgentomographen (b) (Sohr et al., 2018).

Während der tomographischen Messungen wurden die Volumenströme beider Phasen und der Druckverlust entlang der Kolonne aufgezeichnet. Bei den Experimenten wurden die Berieselungsdichte und der F-Faktor systematisch variiert und die dynamischen Strömungen in Anstaupackungen nicht-invasiv visualisiert und charakterisiert (Sohr et al., 2018). Bei den einzelnen Versuchspunkten wurde die Packung B1-250 als Abscheidelage verwendet, während die geometrische

Oberfläche der Anstaulage variiert wurde (B1-500, B1-750, B1-1000). Um eine hohe Bildqualität zu gewährleisten, wurden Titanpackungen verwendet, da sie im Vergleich zu Stahlpackungen eine geringere Röntgenstrahlschwächung aufweisen. Die Scans wurden an ausgewählten Positionen in der Anstau- bzw. in der Abscheidelage für eine Dauer von jeweils 10 Sekunden durchgeführt. Zusätzlich wurden axiale Scans entlang eines gesamten Anstaupackungselements aufgenommen, um die Höhe der Strömungsregime in den jeweiligen Packungslagen zu bestimmen (Sohr et al., 2019b).

Bestimmung fluiddynamischer Parameter

Um aus den gemessenen Daten der Röntgenstrahlschwächung ω fluiddynamische Parameter zu ermitteln, wurden diverse Algorithmen und Bildnachbearbeitungsverfahren entwickelt und angewendet (Sohr et al., 2018). Die Bestimmung des Holdups im gescannten Kolonnenquerschnitt erfolgte pixelweise anhand von Referenzmessungen der trockenen Packung und der vollständig gefluteten Packung desselben Querschnitts:

$$h_L(r, \theta, t) = \frac{\omega_{exp}(r, \theta, t) - \omega_{tr}(r, \theta)}{\omega_{Flut}(r, \theta) - \omega_{tr}(r, \theta)} \quad (3.1)$$

Zur Unterscheidung von Filmströmung und Sprudelregime eignet sich der Variationskoeffizient $B_L(t)$. Dieser wird aus der pixelweisen Abweichung des Holdups vom Querschnittsmittelwert berechnet und stellt ein Maß für die Dynamik der Strömung dar.

$$B(t) = \frac{\sqrt{\frac{1}{n_r n_\theta} \sum_r \sum_\theta (h_L(r, \theta, t) - \bar{h}_L(t))^2}}{\bar{h}_L(t)} \quad (3.2)$$

In **Abbildung 3.4** sind beispielhaft Holdup und Variationskoeffizient in drei verschiedenen Querschnitten für eine Messdauer von 10 Sekunden dargestellt. Die gelben Bereiche entsprechen der flüssigen Phase, während die blauen Bereiche die Gasphase darstellen. Holdup und Variationskoeffizient nehmen in rieselfilmartigen Strömungen in der Abscheidelage geringere Werte im Vergleich zu denen in Sprudelregimen an. Zudem zeigen Holdup und Variationskoeffizient in Sprudelregimen ein fluktuierendes Verhalten in Abhängigkeit der Zeit. Die Werte von Holdup und Variationskoeffizient im Sprudelregime der Abscheidelage sind etwas gegenüber denen in der Anstaulage erhöht. Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit verwendeten Holdup-Messdaten aus der UFXCT wurden am Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf ermittelt und bereitgestellt. Eine Auflistung der verwendeten Holdup-Messdaten befindet sich in der **Tabelle A.3** im **Anhang**.

Abbildung 3.5 zeigt die Phasenverteilung in einem Längsschnitt entlang eines Anstaupackungselements für verschiedene F-Faktoren. Zusätzlich sind die Mittelwerte der Flüssigkeitsinhalte und Variationskoeffizienten für die entsprechenden Querschnitte abgebildet. Beim Längsschnitt, der aus Messungen mit einem F-Faktor von $1.1 \text{ Pa}^{0.5}$ resultiert, sind die Werte des Holdups und des Variationskoeffizienten im unteren Teil der Anstaulage hoch. Diese hohen Werte weisen eindeutig auf die Bildung eines Sprudelregimes hin. Die Anstaulage ist jedoch nicht vollständig geflutet. Oberhalb des Sprudelregimes in der Anstaulage kann eine rieselfilmartige Strömung identifiziert werden, die durch kleine Werte von Holdup und Variationskoeffizient gekennzeichnet

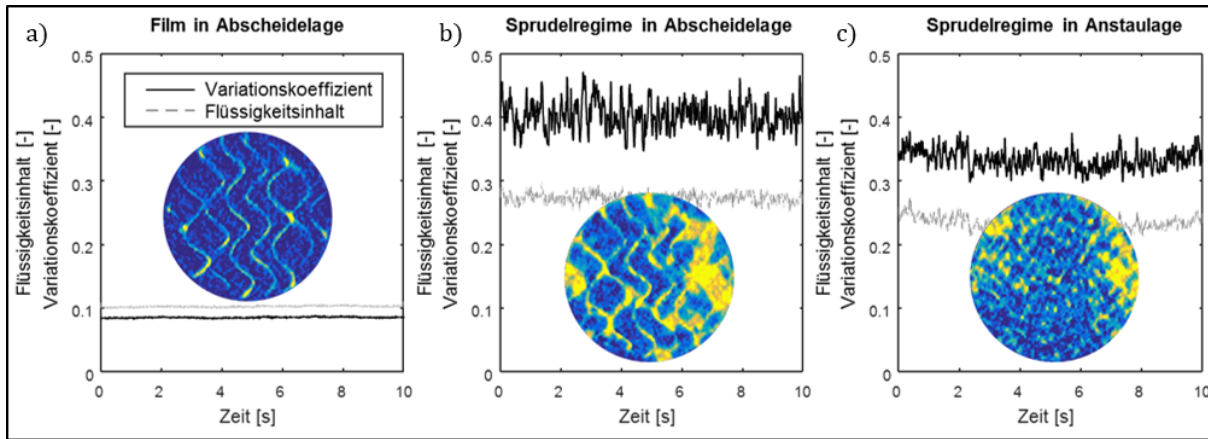


Abbildung 3.4: Flüssigkeitsinhalt, Variationskoeffizient und die dazugehörige Phasenverteilung in drei Querschnitten: Film in der Abscheidelage (a), Sprudelregime in der Abscheidelage (b), Sprudelregime in der Anstaulage (c) (Sohr et al., 2018).

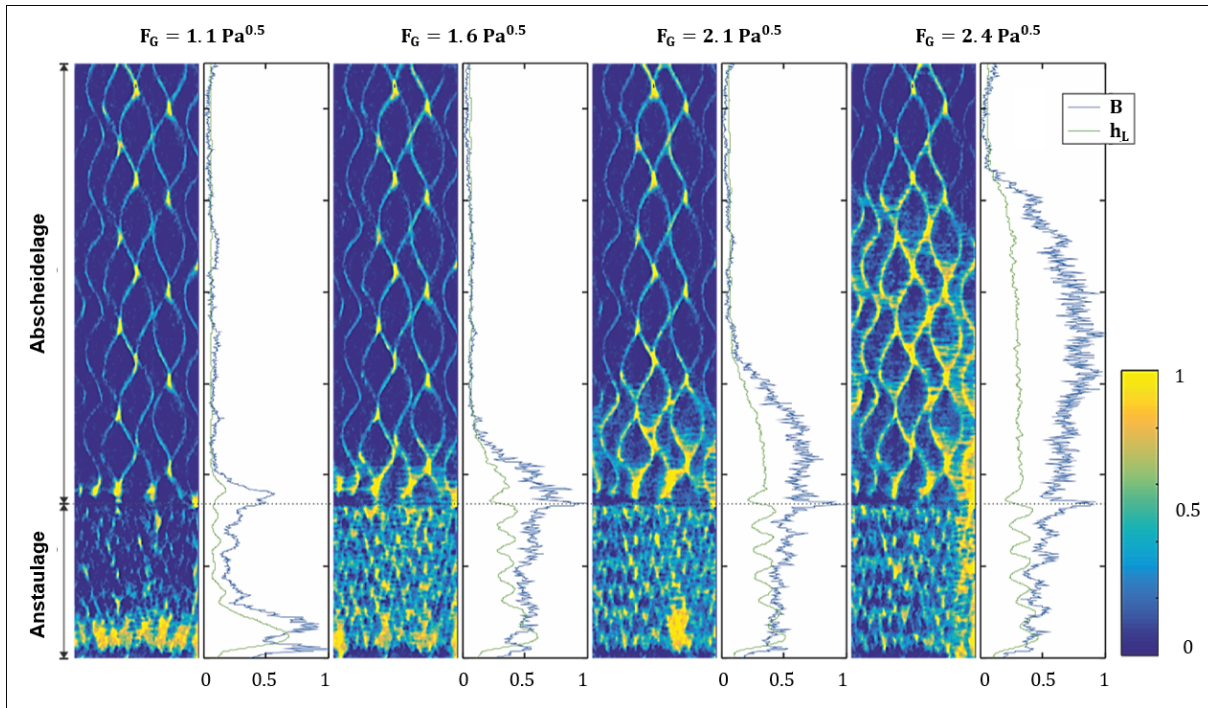


Abbildung 3.5: Phasenverteilung, Holdup und Variationskoeffizient in einem Anstaupackungselement für verschiedene F-Faktor-Werte bei einer Berieselungsdichte von $10 \text{ m}^3 \text{m}^{-2} \text{h}^{-1}$ (Sohr et al., 2019b).

net ist. Am Übergang der beiden Packungslagen ist ein Ausschlag des Variationskoeffizienten zu sehen. Dieser Ausschlag lässt sich durch Flüssigkeitsakkumulationen erklären. Oberhalb dieses Übergangs dominiert in der Abscheidelage das rieselfilmartige Strömungsmuster mit einer mäßigen Benetzung. Bei rieselfilmartigen Strömungen wird die Flüssigkeit aufgrund von Adhäsions- und Oberflächenspannungskräften an den Kontaktstellen zwischen zwei benachbarten Blechen zurückgehalten (Große Daldrup et al., 2019). Im Bild des Längsschnittes, welches

bei einem F-Faktor von $1.6 \text{ Pa}^{0.5}$ ermittelt wurde, ist die Anstaulage vollständig geflutet. Außerdem bildet sich nun ein Sprudelregime in der Abscheidelage oberhalb des Übergangs beider Packungslagen. Die Höhe der Sprudelschicht in der Abscheidelage nimmt mit steigendem F-Faktor kontinuierlich zu.

Neben der Bestimmung der Phasenverteilung, des Holdups und des Variationskoeffizienten wurden die zeitlich hoch aufgelösten Messdaten aus der UFXCT verwendet, um die Phasengrenzfläche in Sprudelregimen zu ermitteln (Sohr et al., 2019a). Der entwickelte Algorithmus zur Bestimmung der Gas-Flüssigkeits-Phasengrenzfläche basiert auf der Level-Set-Methode und ermöglicht auch bei örtlichen Grauwertschwankungen aufgrund von Bildrauschen sowie Artefakten eine zuverlässige Grenzflächen-Detektion.

In **Abbildung 3.6** ist die auf die geometrische Oberfläche bezogene Phasengrenzfläche in Sprudelregimen als Funktion des Verhältnisses von Gas- zu Flüssigkeitsgeschwindigkeit für verschiedene Packungen dargestellt. Entgegen bisheriger Annahmen ist die Phasengrenzfläche im Sprudelregime nahezu unabhängig sowohl von der Berieselungsdichte als auch von der Gasbelastung. Signifikanten Einfluss hat hingegen die geometrische Packungsoberfläche. So wurde in der Anstaulage ($750 \text{ m}^2\text{m}^{-3}$ geometrische Packungsoberfläche) mit ca. $420 \text{ m}^2\text{m}^{-3}$ eine deutlich größere Phasengrenzfläche gemessen als in der Abscheidelage ($250 \text{ m}^2\text{m}^{-3}$ spezifische Packungsoberfläche) mit ca. $200 \text{ m}^2\text{m}^{-3}$. In der Abscheidelage wird jedoch fast die bei vollständiger Benetzung der Packungsoberfläche erreichbare Gas-Flüssigkeits-Phasengrenzfläche erzielt. In den engen Kanälen der Anstaulage ist die Phasengrenzfläche im Vergleich zur spezifischen Packungsoberfläche jedoch aufgrund vollständig gefluteter Kanäle deutlich geringer. Es wird deutlich, dass sich dieser Effekt mit zunehmender geometrischer Packungsoberfläche stärker ausprägt. Die mit der UFXCT bestimmten Messdaten zur Phasengrenzfläche im Sprudelregime von Anstaupackungen können **Tabelle A.4** (siehe **Anhang**) entnommen werden.

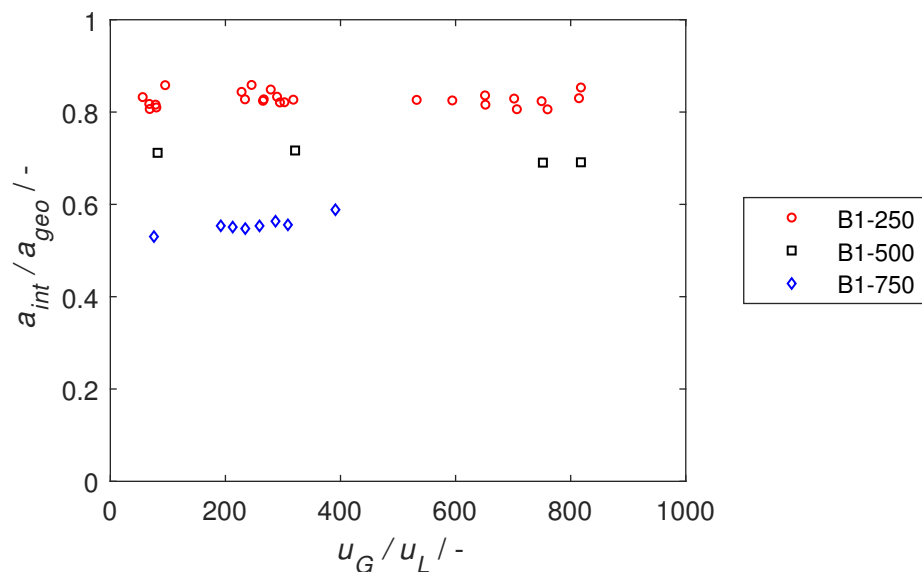


Abbildung 3.6: Einfluss des Phasendurchsatzverhältnisses und der geometrischen Oberfläche auf die normierte Phasengrenzfläche im Sprudelregime (Sohr et al., 2019a).

3.2 Eigene Untersuchungen zur CO₂-Absorption

Da bislang kaum experimentelle Daten zum Trennverhalten von Anstaupackungen zur Verfügung standen, wurden im Rahmen des von der DFG geförderten Kooperationsprojekts „Experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Fluidodynamik und zum Stofftrennverhalten von Anstaupackungen“ erstmalig umfangreiche Messungen zum Stofftransport durchgeführt. An der Universität Paderborn wurden zu diesem Zweck mit verschiedenen Anstaupackungen Technikumsversuche zur CO₂-Absorption in wässrigen MEA-Lösungen durchgeführt. Die Anfang des letzten Jahrzehnts in Betrieb genommene Technikumsanlage wurde konzipiert, um neue Lösungsmittel und innovative Einbauten untersuchen zu können. Eine umfangreiche Darstellung zum Aufbau und zur Funktionsweise der Technikumsanlage kann der Arbeit von Hüser (2017) entnommen werden.

Die in diesem Kapitel dargestellten experimentellen Untersuchungen und Daten sind in Teilen den Arbeiten von Utchenko (2017), Hammami (2017) wie auch Ohlbrock (2018) entnommen worden.

3.2.1 Aufbau der Technikumsanlage

Hauptbestandteile der SPS-gesteuerten Technikumsanlage (vgl. **Abbildung 3.7**) sind die Absorptions- und die Desorptionskolonne. Die wesentlichen Kenndaten beider Kolonnen sind in **Tabelle 3.4** zusammengefasst. Weitere Bestandteile der Anlage sind ein Vorsättiger, ein Nachwäscher, die Vorratsbehälter für die flüssige Phase und ein Strang zum Recycling des CO₂. Darüber hinaus enthält die Anlage diverse Wärmeübertrager, Pumpen, Gebläse und Ventile.

Tabelle 3.4: Kenndaten der Kolonnen im Kreislaufbetrieb.

Absorptionskolonne	
Packungshöhe	3.2 m
Kolonnendurchmesser	0.1 m
F-Faktor	0.6-3.5 Pa ^{0.5}
CO ₂ -Konzentration	1-15 Vo-%
Gastemperatur	20-40°C
Flüssigkeitsbelastung	10-50 m ³ m ⁻² h ⁻¹
Lösungsmitteltemperatur	20-60°C
Druck	Atmosphärendruck
Desorptionskolonne	
Packungshöhe	3.2 m
Kolonnendurchmesser	0.3 m
Flüssigkeitsbelastung	1.5-7 m ³ m ⁻² h ⁻¹
Lösungsmitteltemperatur	bis Siedetemperatur
Druck	Atmosphärendruck-1.2 bar

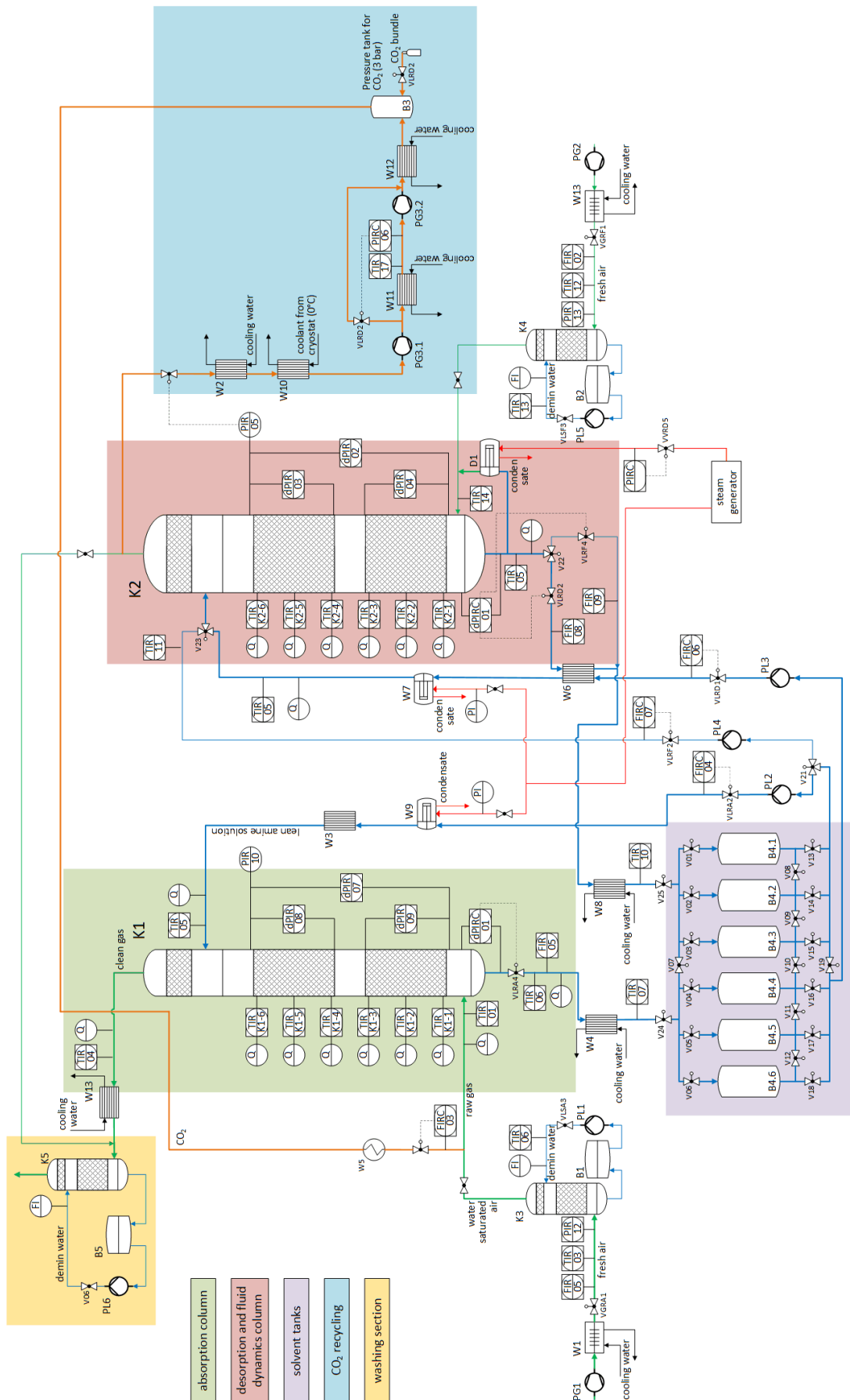


Abbildung 3.7: Fließbild der Technikumsanlage (Hüser, 2017).

Zum Messen und Überwachen ist die Technikumsanlage mit diversen Messstellen versehen. Der Flüssigkeitsmassenstrom wird mit Coriolisschleifen (Micro Motion, CMF 050) erfasst. Der Luftvolumenstrom wird mit Vortex-Durchflussmessern (Rosemount, 8800D) bestimmt und der beigemischte CO_2 -Strom wird mit Hilfe eines thermischen Massendurchflussreglers (Bürkert, 8626) eingestellt. Die Druckdifferenz der Einbauten wird mit Transmittern (Emerson Rosemount, 3051) entlang der gesamten Kolonnen und für die obere und untere Hälfte separat gemessen. Die Temperaturüberwachung und das Messen der Gastemperaturprofile in beiden Kolonnen erfolgt über mehrere PT100 Widerstandsthermometer.

Durch die Verwendung von Probenahmeverrichtungen in speziellen Messflanschen, die jeweils zwischen den 0.5 m Kolonnenschüssen eingebracht sind, können axiale Konzentrations- und Temperaturprofile gemessen werden. **Abbildung 3.8** zeigt eine technische Querschnittzeichnung des Messflansches. Die Konzentrationen der Gasphase werden mithilfe eines direkt mit der Probenahme verbundenen Gaschromatographen (Clarus, 680) erfasst. Die Konzentrationen der Flüssigkeitsproben, welche mit einer Spritze aus der Entnahmestelle gezogen werden, werden offline im Labor analysiert.

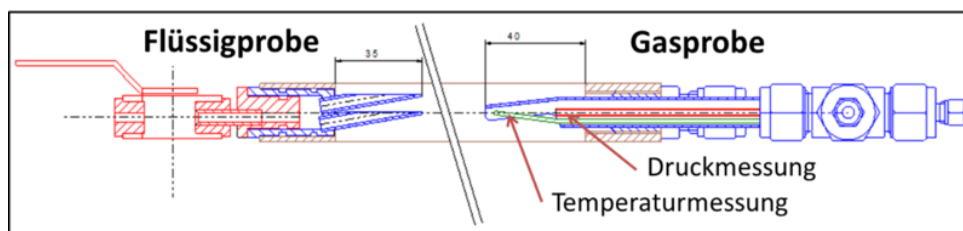


Abbildung 3.8: Querschnittzeichnung des Messflansches (Hüser, 2017).

Die Anlage wird teilweise manuell und teilweise über das *Prozessleitsystem* (PLS) DeltaV der Firma Emerson Process Management GmbH & Co. OHG gesteuert. Im PLS werden die Prozessgrößen dargestellt bzw. in Diagrammen visualisiert. Die Messdaten werden in einem Intervall von 10 Sekunden aufgenommen und gespeichert.

3.2.2 Versuchsdurchführung im Kreislaufbetrieb

Die experimentellen Untersuchungen dienen der Ermittlung des Trennverhaltens von Anstaupackungen. Vor den Untersuchungen wurde die Absorptionskolonne mit Anstaupackungen bestückt. Zur Probenahme mussten Bohrungen in die Anstaupackungen vor dem Einbau in die Kolonne eingebracht werden. Zudem wurde vor der eigentlichen Versuchsdurchführung ein flüssiges Gemisch bestehend aus MEA und Wasser in einem der Vorratsbehälter hergestellt. Bei den Experimenten wurden die Absorptionskolonne K1 und die Desorptionskolonne K2 im Kreislauf betrieben. Das Gas und die Flüssigkeit werden mittels Gebläse bzw. Pumpen gefördert. Der Durchfluss wird über diverse Ventile geregelt, die ausgehend vom PLS über entsprechende Messstellen gesteuert werden können.

Für die Absorption wird ein Gemisch aus Umgebungsluft und CO_2 erzeugt. Das CO_2 wird ausgehend von einem Flaschenbündel bereitgestellt. Die Umgebungsluft wird mit Hilfe des Gebläses PG1 zunächst durch den Wärmeübertrager W1 und durch die Sättigungskolonne K3

gefördert. In der Sättigungskolonnen K3 wird die Umgebungsluft mit Wasserdampf vollständig gesättigt. Im Wärmeübertrager W1 stellt sich die gewünschte Eintrittstemperatur des Gases ein. Danach wird die gesättigte Umgebungsluft mit dem durch den Wärmeübertrager W5 geförderten CO₂-Strom vermischt. Das erzeugte Rohgas gelangt am Sumpf in die Kolonne K1. Im Gegenstrom dazu wird das Lösungsmittel, bestehend aus MEA und Wasser, am Kopf eingespeist. Hierzu fördert die Pumpe PL2 das Lösungsmittel aus einem der sechs zur Verfügung stehenden Vorratsbehälter. Das Lösungsmittel strömt durch die Wärmeübertrager W9 und W3, wobei das Lösungsmittel in W9 aufgeheizt wird und im Wärmeübertrager W3 die Temperaturfeineinstellung vorgenommen werden kann. Das aus der Absorptionskolonne austretende, gereinigte Gas wird im Wärmeübertrager W11 abgekühlt. Zum Auswaschen des enthaltenen Amins strömt das Gas in den Nachwäscher K5 und wird danach an die Umgebung abgegeben. Bevor das beladene Lösungsmittel in einen der Behälter fließt, wird es im Wärmeübertrager W4 abgekühlt, da die maximal zulässige Temperatur für die Behälter bei 30°C liegt. Das beladene Lösungsmittel wird mit Hilfe der Pumpen PL3 und PL4 in die Desorptionskolonne gefördert. Um das beladene Lösungsmittel vorzuwärmen, fließt es im Gegenstrom zum regenerierten Lösungsmittel durch einen inneren Wärmeübertrager (W6). Um die gewünschte Eintrittstemperatur zu realisieren, kann das beladene Lösungsmittel zusätzlich mit dem dampfbeheizten Wärmeübertrager W7 nachgeheizt werden. Dazu wird im Verdampfer D1 Strippdampfstrom erzeugt. Die Temperatur des Heizdampfes lässt sich über den Druck im Desorbersumpf einstellen. Der Strippdampf wird am Sumpf der Kolonne im Gegenstrom zum beladenen Lösungsmittel eingespeist und nimmt das CO₂ aus der flüssigen Phase auf. Durch das Kondensieren des Wasserdampfes wird die für die CO₂-Aufnahme benötigte Absorptionseenthalpie kompensiert. Das aus dem Desorbersumpf austretende regenerierte Lösungsmittel fließt zum Aufheizen des beladenen Lösungsmittels in den Wärmeübertrager W6. Bevor das regenerierte Lösungsmittel zurück in einen der Vorratsbehälter fließt, wird es im Wärmeübertrager W8 abgekühlt.

Der am Kopf der Kolonne austretende Strippgasstrom wird mit Hilfe des Gebläses PG3.1 zum CO₂-Recycling geleitet. Die Abkühlung des Strippgasstroms erfolgt in zwei Schritten in den Wärmeübertragern W2 und W6. Um ein vollständiges Kondensieren des Wasserdampfes zu realisieren, wird im Wärmeübertrager W6 die Temperatur des Kühlmittels mit einem Kyrostat auf 0°C reduziert. Um Lösungsmittelverluste und Konzentrationsänderungen zu vermeiden, wird das Kondensat aus den Wärmeübertragern W2 und W6 mit Hilfe der Schlauchpumpe PL7 in den Vorratsbehälter zurück geleitet. Mit dem Verdichter PG3.2 kann das CO₂ komprimiert werden und im Behälter B3 zur Wiederverwendung gelagert werden.

Die Sicherheitsrelevante Temperaturüberwachung des Prozesses erfolgt über die Messstellen *TIR07* und *TIR10*. Die Temperaturprofile in den Kolonnen können über die Messstellen *TIRK1-1* bis *TIRK2-6* erfasst werden. Die Füllstandsregelung im Sumpf der Kolonnen erfolgt über den Differenzdruck an den Stellen *dPIRC01* und *dPIRC06*. Der Kopfdruck der Kolonnen wird an den Stellen *PIR05* bzw. *PIR10* gemessen. Zur Bestimmung des Druckverlusts entlang der Kolonnen dienen die Differenzdruckstellen *dPIR02* bis *dPIR04* (Kolonne K1) bzw. *dPIR07* bis *dPIR09* (Kolonne K2).

Vor der Entnahme von Proben zur Messung der Konzentrationen muss sichergestellt sein, dass sich ein stationärer Zustand eingestellt hat. Der stationäre Zustand ist dadurch gekennzeichnet, dass sich die Werte der ein- und austretenden Volumenströme sowie der Temperaturen entlang

der Kolonne zeitlich nicht mehr wesentlich ändern. Die Einstellung des stationären Zustands hat je nach Versuchspunkt zwischen zwei und vier Stunden gedauert.

Die Konzentrationen in der Gasphase werden mittels Gaschromatographie bestimmt. Das Gas wird ausgehend von den diversen Messstellen der Kolonnen mit Hilfe einer Vakuumpumpe über ein Mehrportalventil zum GC geleitet. Um die im Gas enthaltene Flüssigkeit vollständig zu verdampfen, sind die Rohrleitungen auf 120°C beheizt. Bei der Gaschromatographie werden die zu analysierenden Verbindungen mit Hilfe einer mobilen Phase durch eine Trennsäule transportiert. Dabei wird die mobile Phase lediglich als Trägergas genutzt und geht keine Wechselwirkungen mit den Komponenten ein. Als stationäre Phase dient ein Feststoff, an welchem die zu trennenden Komponenten adsorbiert werden. Die Zeit, die ein Molekül zum Durchqueren der Säule benötigt, ist Abhängig von der Größe der Moleküle und wird Retentionszeit genannt. Die Auswertung erfolgt in sogenannten Chromatogrammen. Die Zuordnung der Komponenten in den Chromatogrammen erfolgt über die Retentionszeit. Über die Fläche unterhalb der einzelnen Peaks in den Chromatogrammen kann auf die Konzentration geschlossen werden. Die Auswertung der Chromatogramme wird in **Abschnitt 3.2.3** beschrieben.

Die entnommenen Flüssigkeitsproben werden geteilt und auf ihren CO₂- und Amingehalt untersucht. Die Bestimmung der CO₂-Konzentration erfolgt volumetrisch in einer Chittick-Apparatur, in der das CO₂ in der flüssigen Probe mit konzentrierter Salzsäure ausgetrieben wird. Aus dem Volumen des ausgetriebenen CO₂ kann die Konzentration in der Probe berechnet werden. Der zweite Teil der Probe wird mit verdünnter Salzsäure titriert. Die Salzsäure reagiert mit der Aminogruppe des Lösungsmittels. Aus dem Verbrauch an Salzsäure bis zum Wendepunkt der pH-Kurve kann auf die Konzentration des Amins geschlossen werden.

3.2.3 Versuchsauswertung

Für die Auswertung der aufgenommenen Messdaten sind zum Teil gewisse Umrechnungen notwendig. Bei der flüssigen Phase werden sowohl Massen- als auch Volumenstrom des Gemischs am Eingang der Kolonnen gemessen. Folglich kann mit Hilfe von Gleichung 2.2 die Berieselungsdichte bestimmt werden.

Die Messung des Gasvolumenstroms erfolgt nur direkt hinter dem Gebläse. Auf weitere Messstellen wurde bei der Anlage verzichtet, um den Druckverlust nicht zusätzlich zu erhöhen. Zur Umrechnung der Volumenströme zwischen zwei Zuständen kann ein aus der thermischen Zustandsgleichung abgeleiteter Ausdruck verwendet werden, dem die Annahme eines idealen Gases zugrunde liegt:

$$\frac{p_1 \cdot V_1}{T_1 \cdot n_1} = \frac{p_2 \cdot V_2}{T_2 \cdot n_2} = \text{const.} = R \quad (3.3)$$

Der Volumenstrom am Sumpf kann folglich in Abhängigkeit des dort gemessenen Drucks und der Temperatur bestimmt werden:

$$\dot{V}_{\text{Sumpf}} = \frac{T_{\text{Sumpf}}}{T_{\text{Gebläse}}} \frac{p_{\text{Gebläse}}}{p_{\text{Sumpf}}} \dot{V}_{\text{Gebläse}} \quad (3.4)$$

Der Gesamtvolumenstrom am Sumpf der Kolonne ergibt sich zu:

$$\dot{V}_{\text{Sumpf}} = \dot{V}_{\text{Gebläse}} + \dot{V}_{\text{CO}_2} \quad (3.5)$$

Der Luftvolumenstrom am Sumpf der Kolonne ist:

$$\dot{V}_{\text{Luft, Sumpf}} = y_{\text{Luft, Sumpf}} \cdot \dot{V}_{\text{Sumpf}} \quad (3.6)$$

Ausgehend von Gleichung 3.3 folgt für den Luftvolumenstrom am Kopf der Kolonne:

$$\dot{V}_{\text{Luft, Kopf}} = \frac{T_{\text{Kopf}}}{T_{\text{Sumpf}}} \frac{p_{\text{Sumpf}}}{p_{\text{Kopf}}} \dot{V}_{\text{Luft, Sumpf}} \quad (3.7)$$

Schließlich kann der Gesamtvolumenstrom am Kopf der Kolonne anhand der Summe der einzelnen Volumenströme der jeweiligen Komponenten wie folgt berechnet werden:

$$\dot{V}_{\text{Kopf}} = \dot{V}_{\text{Luft, Kopf}} + \dot{V}_{\text{CO}_2, Kopf} + \dot{V}_{\text{H}_2\text{O, Kopf}} = \dot{V}_{\text{Luft, Kopf}} \cdot \left(1 + \frac{y_{\text{CO}_2, Kopf}}{y_{\text{Luft, Kopf}}} + \frac{y_{\text{H}_2\text{O, Kopf}}}{y_{\text{Luft, Kopf}}} \right) \quad (3.8)$$

Die Gasproben werden online mit Hilfe des Gaschromatographen vermessen. Die erhaltenen Chromatogramme zeigen das Detektorsignal über der Retentionszeit (vgl. **Abbildung 3.9**). Der erste Peak stellt das Signal für Luft dar und der zweite Peak das Signal für CO₂. Die Integrale der Peaks werden berechnet und ins Verhältnis gesetzt. Dieses Verhältnis entspricht dem Volumenverhältnis von Luft und CO₂ in der Probe. Mit Hilfe eines zuvor vermessenen Testgases kann die Konzentration an CO₂ im Gemisch CO₂ / Luft bestimmt werden. Hierzu wird zunächst der Flächenanteil von CO₂ im Chromatogramm des Testgases ermittelt:

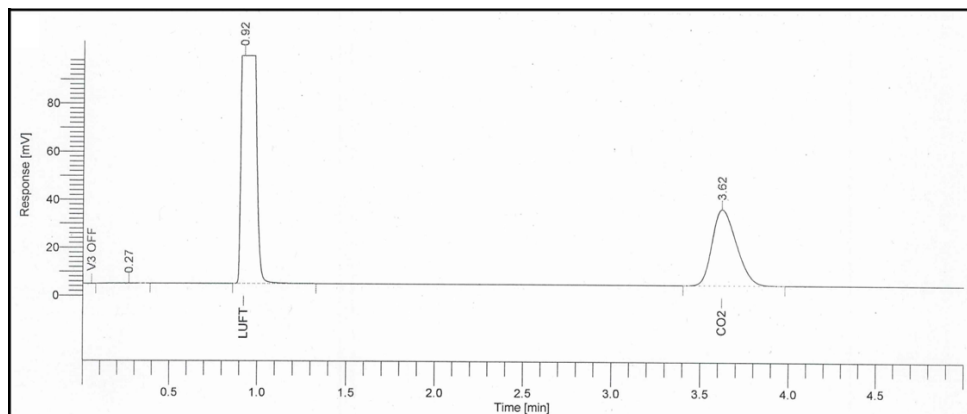


Abbildung 3.9: Beispielhaftes Chromatogramm, bei dem das Detektorsignal über der Retentionszeit dargestellt ist.

$$a_{\text{CO}_2, \text{Testgas}} = \frac{A_{\text{CO}_2, \text{Testgas}}}{A_{\text{CO}_2, \text{Testgas}} + A_{\text{Luft, Testgas}}} \quad (3.9)$$

Anschließend wird der Flächenanteil von CO₂ im Chromatogramm der Probe bestimmt:

$$a_{\text{CO}_2, \text{Probe}} = \frac{A_{\text{CO}_2, \text{Probe}}}{A_{\text{CO}_2, \text{Probe}} + A_{\text{Luft, Probe}}} \quad (3.10)$$

Anhand der beiden zuvor bestimmten Flächenanteile und der bekannten CO₂ Konzentration des Testgases kann die Konzentration in der Probe berechnet werden:

$$y_{\text{CO}_2, \text{ Probe}} = y_{\text{CO}_2, \text{ Testgas}} \frac{a_{\text{CO}_2, \text{ Probe}}}{a_{\text{CO}_2, \text{ Testgas}}} \quad (3.11)$$

Der bei der CO₂ Konzentrationsmessung gemachte Fehler wird ausführlich in der Arbeit von Hüser (2017) diskutiert und liegt bei ca. $\pm 3.5 \%$. Des Weiteren wird angenommen, dass die Gasphase innerhalb der Kolonnen mit Wasser gesättigt ist. Die Sättigungskonzentration des Wassers in der jeweiligen Gasprobe kann abhängig von Druck und Temperatur berechnet werden. Die Zusammensetzung der flüssigen Phase wird über die Kombination von zwei verschiedenen Messungen bestimmt. Die Bestimmung des CO₂-Anteils erfolgt dabei mit der Chittick-Apparatur. Die Berechnung der CO₂-Konzentration erfolgt aus dem freigesetzten Volumen:

$$w_{\text{CO}_2} = \frac{R_G T_{\text{Messung}} M_{\text{CO}_2}}{p_{\text{Messung}} V_{\text{CO}_2} m_{\text{Einwaage}}} \quad (3.12)$$

Die Bestimmung der MEA Konzentration in der flüssigen Probe erfolgt mittels Titration. Die Amin-Konzentration errechnet sich aus dem Verbrauch an Salzsäure (t : Titer der HCl-Lösung):

$$w_{\text{Amin}} = \frac{V_{\text{HCl}} c_{\text{HCl}} t M_{\text{Amin}}}{m_{\text{Einwaage}}} \quad (3.13)$$

Hüser (2017) hat zur Bestimmung der Reproduzierbarkeit der Messung verschiedene Proben bei zwei Konzentrationen und sowohl mit als auch ohne CO₂ analysiert. Die Standardabweichung der Messungen lag im Schnitt bei 0.04 Gew.-%. Die zur Messung der verschiedenen Größen eingesetzten Messgeräte bzw. Messprinzipien weisen gemäß der Herstellerangaben gewisse Messungenauigkeiten auf. In **Tabelle 3.5** sind die Messfehler der einzelnen Messgrößen aufgelistet.

Tabelle 3.5: Messfehler der einzelnen Messgrößen.

Messgröße	Gerät/Messprinzip	Fehler in %
Massenstrom Flüssigkeit	Coriolisschleife Micro Motion CMF 050	≤ 0.12
Luftvolumenstrom	Vortex-Durchflussmessgerät Rosemount 8800 D	≤ 0.26
Volumenstrom des CO ₂ -Stromes	Mass Flow Controller Bürkert 8626	≤ 0.27
Temperatur	Widerstandsthermometer PT100 A	≤ 0.32
Differenzdruck	Drucktransmitter Emerson Rosemount 3051	≤ 0.12
MEA-Konzentration Flüssigkeit	Potentiometrische Titration	≤ 5
CO ₂ -Konzentration Gasphase	Gaschromatograph Clarus 680	≤ 0.86
CO ₂ -Konzentration Flüssigkeit	Chittick-Apparatur	≤ 5

3.2.4 Untersucher Parameterbereich

Für die Untersuchungen zur CO₂-Absorption mit Anstaupackungen wurden die in **Tabelle 3.6** aufgeführten Packungskombinationen verwendet. Mit diesen Kombinationen konnte der Einfluss der geometrischen Oberfläche der Anstaulage, die Höhe der Anstaulage und der Neigungswinkel der Abscheidelage auf das Trennverhalten von Anstaupackungen untersucht werden.

Tabelle 3.6: Bei den Experimenten zur CO₂-Absorption untersuchte Packungskombinationen.

Nr.	Abscheidelage	Höhe [m]	Anzahl [-]	Anstaulage	Höhe [m]	Anzahl [-]
1	B1-250	0.196	13	B1-500	0.05	12
2	B1-250	0.196	14	B1-750	0.03	13
3	B1-250	0.196	13	B1-750	0.05	12
4	B1-250	0.196	12	B1-750	0.07	11
5	B1-250	0.196	13	B1-1000	0.05	12
6	B1-250.60	0.2	13	B1-750	0.05	12

Mit den verschiedenen Packungskombinationen wurden Versuche bei unterschiedlichen Betriebsbedingungen durchgeführt. In diesem Zusammenhang wurden die nachfolgenden Parameter in den angegebenen Grenzen variiert:

- Gewichtskonzentration von MEA beim Lösungsmiteleintritt
 w_{MEA} [g g⁻¹]: ≈ 0.18 ; ≈ 0.3
- Molare Konzentration von CO₂ am Gaseintritt
 y_{CO_2} [mol mol⁻¹]: ≈ 0.05 ; ≈ 0.09 ; ≈ 0.13
- Temperatur der flüssigen Phase beim Kolonneneintritt
 $T_{L, ein}$ [°C]: $\approx 20 - 40$
- Temperatur der Gashase beim Kolonneneintritt
 $T_{G, ein}$ [°C]: $\approx 20 - 40$
- Berieselungsdichte
 u_L [m³m⁻²h⁻¹]: ≈ 10 ; ≈ 25 ; ≈ 40
- F-Faktor
 F_G [Pa^{0.5}]: $\approx 0.7 - 2.5$

Bei den Messungen wurden zwei respektive drei verschiedene Werte für die Konzentrationen an MEA im Lösungsmittel und an CO₂ in der Gasphase sowie für die Berieselungsdichte untersucht. Hingegen wurden die Werte der Temperaturen beider Phasen und des F-Faktors in den angegebenen Grenzen variiert. Jedoch wurden nicht für alle Packungskombinationen alle Betriebsparameter im gleichen Umfang vermessen. Zunächst wurden mit den Packungskombinationen Nr. 2 und 3 Screeningversuche durchgeführt, wobei alle aufgeführten Betriebsbedingungen untersucht wurden. Diese Untersuchungen dienten unter anderem dazu, ein Verständnis des Anlagenverhaltens zu erlangen. Mit den anderen Packungskombinationen wurden keine Variationen der Temperaturen beider Phasen durchgeführt. Zudem wurde nur noch ein Wert für die

MEA-Gewichtskonzentration (0.18 g g^{-1}) verwendet. Für alle Packungskombinationen wurden die Berieselungsdichte, der F-Faktor und die CO_2 -Konzentration des Gases variiert. Insgesamt wurden 65 Versuchspunkte vermessen. Die Betriebsbedingungen der einzelnen Versuche sind in **Tabelle A.5** im **Anhang** aufgeführt.

3.2.5 Validierung der Messergebnisse

Da die generierten Messdaten unter anderem zur Verifizierung von Simulationsergebnissen dienen sollen, wurden zur Überprüfung der Experimente die CO_2 -Mengenströme beider Phasen bilanziert. Zum einen kann der übergehende Stoffmengenstrom betrachtet werden. Der übergehende Stoffmengenstrom kann ausgehend von der Gasphase oder ausgehend von der flüssigen Phase bilanziert werden:

$$L_{\text{CO}_2,\text{aus}} - L_{\text{CO}_2,\text{ein}} = G_{\text{CO}_2,\text{ein}} - G_{\text{CO}_2,\text{aus}} \quad (3.14)$$

Abbildung 3.10 zeigt ein Paritätsdiagramm des übergehenden CO_2 Stoffmengenstroms. Es wird deutlich, dass die Bilanz (Gleichung 3.14) nicht vollständig aufgeht. Dies kann auf die resultierende Messungenauigkeit aufgrund der sehr kleinen Konzentrationen in beiden Phasen zurückgeführt werden. Bei einem Großteil der Messpunkte ist der Fehler in der Bilanz jedoch unterhalb von 10 %, was als gut bewertet werden kann. Bei neun Messpunkten ist der Fehler in der Bilanz des übergehenden Stoffmengenstroms oberhalb von 20 %. Diese Messpunkte wurden nachfolgend nicht weiter berücksichtigt.

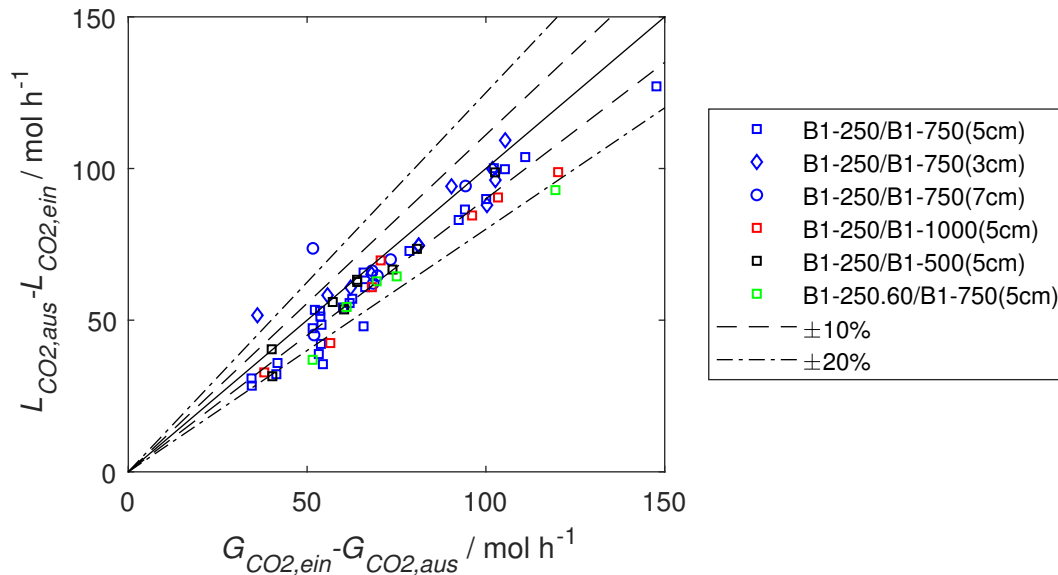


Abbildung 3.10: Paritätsdiagramm der übergehenden CO_2 -Mengenströme.

3.2.6 Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen

Die im Rahmen der experimentellen Untersuchungen zur CO₂-Absorption mit Anstaupackungen ermittelten Messdaten und Profile sind im **Anhang** in den **Tabellen A.6 bis A.9** zusammengefasst. Im Folgenden wird ein Vergleich der Versuchsergebnisse gezeigt, die aus Versuchen mit unterschiedlichen Berieselungsdichten, unterschiedlichen geometrischen Oberflächen der Anstaulage sowie unterschiedlicher CO₂-Konzentration im Rohgas resultierten. Die wichtigsten Betriebsparameter am Eintritt in die Absorptionskolonne sowie Ergebnisse der betrachteten Versuche können **Tabelle 3.7** entnommen werden.

Tabelle 3.7: Wichtige Prozessparameter ausgewählter Versuchspunkte.

Prozessparameter	C40.3	C42.1	C60.1	C60.2	C60.3	C61.1	C64.1
<u>Einbauten</u>							
Anstaulage $a_{geo,AN}$ [m ² m ⁻³]	750	750	1000	1000	1000	1000	500
Abscheidelage $a_{geo,AB}$ [m ² m ⁻³]	250	250	250	250	250	250	250
<u>Eintritt Gasphase</u>							
F-Faktor F_G [Pa ^{0.5}]	1.57	1.42	1.45	1.47	1.42	1.58	1.57
Druck $p_{G,ein}$ [bar]	1.039	1.031	1.052	1.052	1.047	1.058	1.004
Temperatur $T_{G,ein}$ [°C]	28.4	31.0	28.6	28.8	30.0	27.7	29.0
CO ₂ -Konzentration $y_{CO_2,ein}$ [mol mol ⁻¹]	0.057	0.055	0.136	0.088	0.054	0.060	0.063
<u>Eintritt flüssige Phase</u>							
Berieselungsdichte u_L [m ³ m ⁻² h ⁻¹]	9.9	40.6	25.5	25.5	25.5	10.0	10.0
Temperatur $T_{L,ein}$ [°C]	43.4	38.6	39.1	40.7	40.1	43.8	42.2
MEA-Konzentration $w_{L,MEA,ein}$ [g g ⁻¹]	0.179	0.182	0.188	0.182	0.178	0.201	0.192
<u>Ergebnisse</u>							
spez. Druckverlust Δp_H [Pa m ⁻¹]	780	1540	2250	2160	1990	1810	270
Abscheidegrad γ_{Abs} [-]	0.43	0.81	0.60	0.71	0.85	0.56	0.39

Ein Blick auf die Tabelle macht deutlich, dass die Werte der MEA-Konzentration im Lösungsmittel am Eintritt in die Absorptionskolonne und folglich auch die Werte der CO₂-Beladung bei den einzelnen Versuchen geringfügig voneinander abweichen. Da die CO₂-Abscheidung stark von diesen Eintrittsbedingungen abhängig ist, müssen diese Unterschiede bei der Interpretation der Ergebnisse berücksichtigt werden. Der in der Tabelle aufgeführte CO₂-Abscheidegrad γ_{Abs} kann mit Gleichungen 3.15 berechnet werden:

$$\gamma_{Abs} = \frac{G_{CO_2, ein} - G_{CO_2, aus}}{G_{CO_2, ein}} \quad (3.15)$$

In **Abbildung 3.11** ist ein Vergleich der gemessenen Profile der CO₂-Beladung in der flüssigen Phase (a) und der Temperatur der Gasphase (b) bei unterschiedlichen Berieselungsdichten anhand der Experimente C40.3 und C42.1 dargestellt. Die Versuche wurden mit der Anstaupackung

B1-750/B1-250 durchgeführt. Die Berieselungsdichte lag für C40.3 bei $9.9 \text{ m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$ und für C42.1 bei $40.6 \text{ m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$. Der CO_2 -Abscheidegrad steigt bei Erhöhung der Berieselungsdichte von 0.43 % auf 0.81 % und der spezifische Druckverlust steigt von 780 auf 1540 Pa m^{-1} (vgl. **Tabelle 3.7**). Die Profile der CO_2 Beladung der flüssigen Phase von beiden Versuchspunkten haben ihre höchsten Gradienten in unterschiedlichen Bereichen der Kolonne. Während beim Versuch mit niedrigerer Berieselungsdichte (C40.3) die höchsten Änderungen der CO_2 Beladung in der oberen Kolonnenhälfte stattfinden, sind die Änderungen der Beladung beim Versuch C42.1 in der unteren Kolonnenhälfte stärker. Die Änderungen der CO_2 Beladungen korrespondieren mit den maximalen Temperaturen in der Gasphase. In Bereichen, in denen mehr CO_2 in die flüssige Phase übergeht, wird auch mehr Reaktionswärme frei, welche die flüssige Phase und folglich auch die Gasphase aufheizt. Bei geringerer Berieselungsdichte wird die flüssige Phase und die Gasphase stärker aufgeheizt. Dies kann darauf zurückgeführt werden, dass die abgegebene Absorptionsenthalpie und die Reaktionswärme von einer deutlich geringeren Menge an Lösungsmittel aufgenommen wird. Das Temperaturprofil zeigt für den Versuch C40.3 einen „Temperatur-Bauch“ in der unteren Kolonnenhälfte. Im Allgemeinen liegt der Bauch mit kleiner werdenden L/G-Verhältnis (Quotient des flüssig- und gasseitigen Stoffmengenstroms) näher am Kolonnensumpf. Gleiches Verhalten wurde von Kvamsdal und Rochelle (2008) gezeigt.

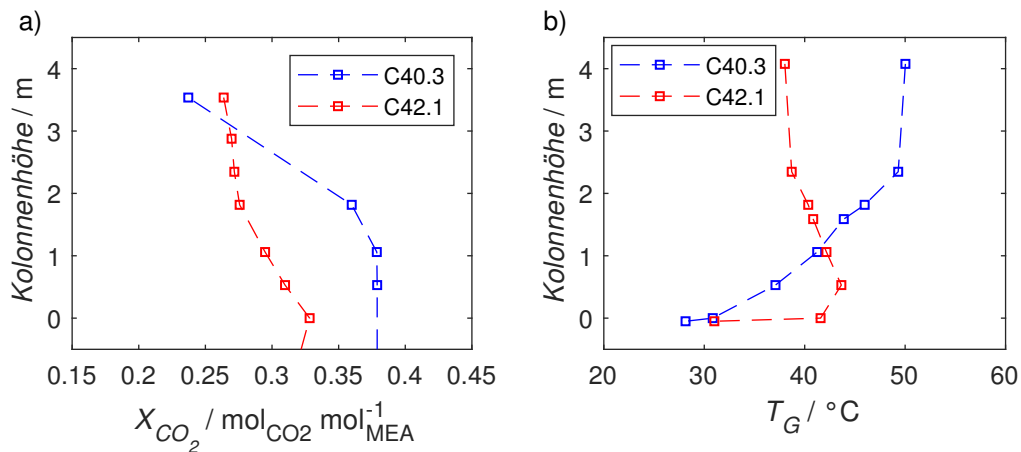


Abbildung 3.11: Einfluss der Berieselungsdichte (C40.3: $9.9 \text{ m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$; C42.1 $40.6 \text{ m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$) auf die Kolonnenprofile der CO_2 -Beladung in der flüssigen Phase (a) und der Temperatur der Gasphase (b).

In **Abbildung 3.12** ist der Einfluss der spezifischen Oberfläche der Anstaulage auf die CO_2 -Konzentration in der Gasphase (a) und auf das Temperaturprofil der Gasphase (b) veranschaulicht. Es wird deutlich, dass mit wachsender spezifischer Oberfläche der Anstaulage die CO_2 -Austrittskonzentration sinkt und somit die Trenneffizienz wie erwartet steigt. Der Abscheidegrad der B1-750/B1-250 (C40.3) ist im Vergleich zu dem der B1-500/B1-250 (C64.1) um 10 % erhöht (vgl. **Tabelle 3.7**). Durch die Verwendung der B1-1000/B1-250 (C61.1) lässt sich der Abscheidegrad gegenüber dem der B1-500/B1-250 (C64.1) um 44 % erhöhen. Jedoch resultiert für die B1-1000/B1-250 (C61.1) ein um den Faktor 6.7 höherer Druckverlust, bezogen auf den Druckverlust der B1-500/B1-250 (C64.1). Die für die drei Packungskombinationen gemessenen Temperaturprofile sind qualitativ sehr ähnlich und unterscheiden sich quantitativ nur

geringfügig. Die Temperaturprofile zeigen, dass sich die Gasphase im unteren Bereich der Kolonne erhitzt. Im oberen Bereich der Kolonne bleibt die Temperatur der Gasphase für alle drei Versuche nahezu konstant. Das Temperaturprofil, das aus der Messung mit der B1-1000 als Anstaulage (C61.1) resultiert, weist im unteren Bereich der Kolonne etwas höhere Temperaturen im Vergleich zu denen der beiden anderen Packungskombinationen (C64.1, C40.3) auf. Dies ist darauf zurückzuführen, dass beim Versuch C61.1 etwas mehr CO_2 in die flüssige Phase überging und folglich etwas mehr Reaktionswärme in der flüssigen Phase frei wurde.

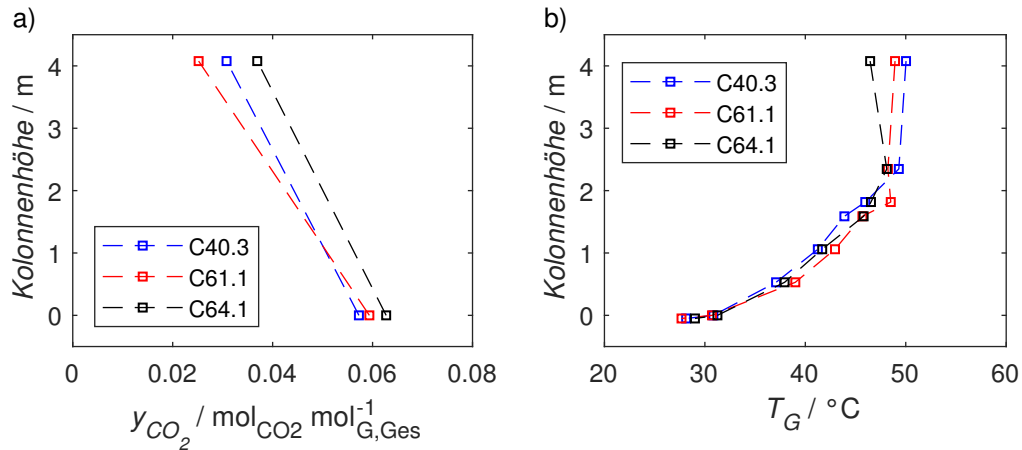


Abbildung 3.12: Einfluss der geometrischen Oberfläche der Anstaulage (C64.1: B1-500; C40.3: B1-750; C61.1: B1-1000) auf die CO_2 -Konzentration in der Gasphase (a) und das Temperaturprofil der Gasphase (b).

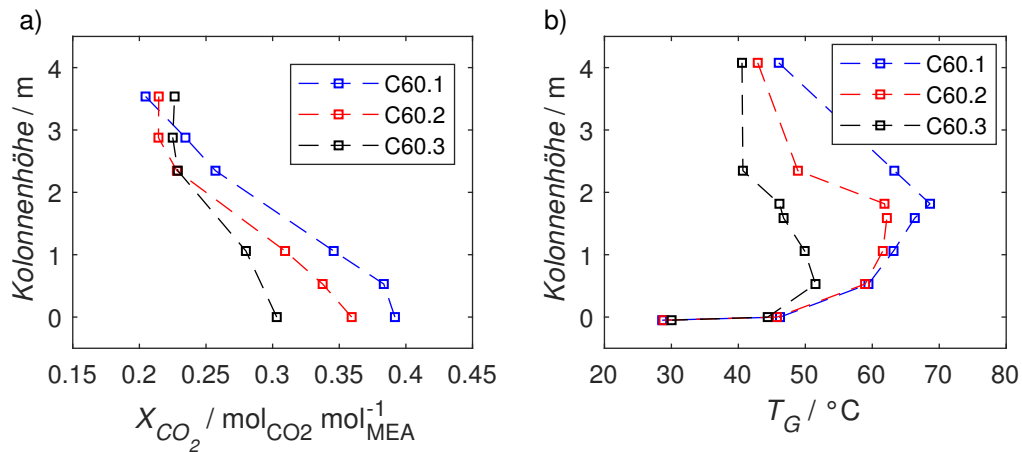


Abbildung 3.13: Einfluss der CO_2 -Eintrittskonzentration der Gasphase (C60.1: $0,136 \text{ mol mol}^{-1}$; C60.2: $0,088 \text{ mol mol}^{-1}$; C60.3: $0,054 \text{ mol mol}^{-1}$) auf die Kolonnenprofile der CO_2 -Beladung in der flüssigen Phase (a) und der Temperatur der Gasphase (b).

In **Abbildung 3.13** sind Profile der CO_2 Beladung der flüssigen Phase (a) und der Gasphasentemperatur (b) für unterschiedliche CO_2 Eintrittskonzentrationen der Gasphase dargestellt. Die Versuche wurden mit der Anstaupackung B1-1000/B1-250 durchgeführt. Die Konzentration im

Rohgas lag für den Versuch C60.1 bei etwa $0.136 \text{ mol mol}^{-1}$, für den Versuch C60.2 bei etwa $0.088 \text{ mol mol}^{-1}$ und für den Versuch C60.3 bei $0.054 \text{ mol mol}^{-1}$. Die CO_2 -Abscheidegrade sinken erwartungsgemäß mit steigender CO_2 Eintrittskonzentration von etwa 85 % auf etwa 71 % bzw. 60 %. Zudem wird mit steigender CO_2 Eintrittskonzentration der Temperatur-Bauch stärker ausgeprägt. Dies ist darauf zurückzuführen, dass trotz des geringen CO_2 -Abscheidegrades der übertragene Stoffmengenstrom an CO_2 höher ist und somit die frei werdende Reaktionswärme größer. Dass der übertragene Stoffmengenstrom an CO_2 mit steigender CO_2 Eintrittskonzentration größer ist, wird anhand der Profile der CO_2 Beladung in der flüssigen Phase deutlich.

3.3 Zusammenfassung

Im vorliegenden Kapitel wurden die experimentellen Untersuchungen zur Fluidodynamik und zum Trennverhalten in Anstaupackungen thematisiert. Vor dem DFG-geförderten Kooperationsprojekt „Experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Fluidodynamik und zum Stofftrennverhalten von Anstaupackungen“ lagen keine systematischen Untersuchungen zum Einfluss von Betriebs- und Designparametern auf das Stofftrennverhalten in Anstaupackungen vor. Jedoch wurden bereits diverse Studien zum Druckverlust und Holdup in Anstaupackungen durchgeführt. Die in der Literatur verfügbaren Daten aus den diversen Studien zur Fluidodynamik in Anstaupackungen wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit in einer Datenbank zusammengefasst. Bei diesen Studien wurden beide fluiddynamischen Parameter integral vermessen, wodurch die Auswirkungen einzelner Strömungsregime auf fluiddynamische Parameter nicht identifiziert werden können.

Zur Identifizierung dieser individuellen Auswirkungen wurden am Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf Untersuchungen mit der ultraschnellen Röntgentomographie in einer Kolonne mit Anstaupackungen durchgeführt. Basierend auf den tomographischen Messungen konnten erstmalig fluiddynamische Parameter wie Phasenverteilung, Holdup und Phasengrenzfläche regimespezifisch bestimmt werden. Die gewonnenen Erkenntnisse fließen in die Entwicklung von Modellen zur Beschreibung der Fluidodynamik und der Trennleistung von Kolonnen mit Anstaupackungen ein. Aus den erhobenen Messdaten der tomographischen Untersuchungen werden außerdem Korrelationen für den Holdup und die Phasengrenzfläche in Sprudelregimen abgeleitet, für welche es bislang keine Korrelation in der Literatur gibt.

Darüber hinaus wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit erstmalig umfangreiche Messungen zum Trennverhalten in Anstaupackungen durchgeführt. Hierzu wurde die CO_2 -Absorption in wässrigen Monoethanolamin-Lösungen im Technikumsmaßstab untersucht. Mit den für die Experimente zur Verfügung stehenden Anstaupackungskombinationen konnte der Einfluss der geometrischen Oberfläche der Anstaulage, die Höhe der Anstaulage und der Neigungswinkel der Abscheidelage auf das Trennverhalten von Anstaupackungen untersucht werden. Zudem wurden betriebliche Parameter variiert. Die gewonnen Messdaten zur Trennleistung in Anstaupackungen werden zur Verifizierung eines rate-based-Modellierungsansatzes verwendet. Außerdem werden Korrelationen zum Stoffübergang basierend auf den Daten aus den Trennleistungsmessungen entwickelt.

4 Modellierung der Fluidodynamik basierend auf tomographischen Untersuchungen

Eine verlässliche Bestimmung fluidodynamischer Parameter ist essenziell für die Auslegung von Kolonnen mit konventionellen Strukturpackungen und Anstaupackungen. Jedoch ist die Mehrphasenströmung in Packungskolonnen durch komplexe Phänomene gekennzeichnet, wie z.B. der Phasenfehlverteilung, dem Entrainment und dem Flutvorgang. Trotz der Tatsache, dass diese Phänomene seit Jahrzehnten untersucht werden, ist eine vollständige rigorose Beschreibung der Fluidodynamik in Packungskolonnen nach wie vor nicht möglich. Heutzutage gibt es eine Vielzahl von vorgeschlagenen Ansätzen zur Beschreibung der Fluidodynamik in Packungskolonnen. Im Allgemeinen werden bei diesen Ansätzen vereinfachende Annahmen in Bezug auf das vorherrschende Strömungsmuster getroffen.

Kürzlich führten Wolf-Zöllner et al. (2019) einen umfassenden Vergleich der Güte von verfügbaren Korrelationen für Druckverlust, Holdup und Flutpunkte (Stichlmair et al. (1989), Rocha et al. (1993), Billet und Schultes (1999), Maćkowiak (2003), Olujić et al. (2007)) durch. Die Berechnungsergebnisse der Korrelationen wurden anhand von experimentellen Daten bewertet, die an zwei verschiedenen Anlagenstandorten gemessen wurden. Das Modell nach Maćkowiak (2003) zeigt gute Ergebnisse für Gasbelastungen unterhalb des Staupunktes, wobei die durchschnittliche Abweichung zwischen den Berechnungsergebnissen und den experimentellen Werten unter 30 % liegt. Diese relativ gute Übereinstimmung resultiert aus der Verwendung von packungsspezifischen Konstanten, die aus den Ergebnissen von trockenen Druckverlustmessungen abgeleitet werden können. Die Berechnungsergebnisse können jedoch im Belastungsbereich oberhalb des Staupunktes von den experimentellen Daten abweichen. Daher haben Wolf-Zöllner et al. (2019) modifizierte Parameter und Konstanten für eine bessere Vorhersage im Bereich zwischen dem Stau- und Flutpunkt ermittelt. Es ist jedoch fraglich, ob der Belastungsbereich oberhalb des Staupunktes mit Gleichungen beschrieben werden kann, die aus Annahmen für Filmströmungen abgeleitet wurden, obwohl in diesem Belastungsbereich an den Packungslagenübergängen ein partiell gefluteter Bereich in Erscheinung tritt. Eine vernünftige Beschreibung von partiell gefluteten Bereichen ist bei der Modellierung der Fluidodynamik in Anstaupackungen von besonderer Bedeutung.

Das aktuellste fluiddynamische Modell für Anstaupackungen wurde von Brinkmann et al. (2012) entwickelt und basiert auf einem additiven Ansatz, bei dem Druckverlustanteile der Anstaulage, der Abscheidelage und der Sprudelschicht in der Abscheidelage berücksichtigt werden. Zur Berechnung der einzelnen Druckverlustanteile wurde der Ansatz nach Maćkowiak

(2003) verwendet (vgl. **Abschnitt 2.2.1**). Somit wurden die teilweise gefluteten Bereiche in Anstaupackungen anhand von Gleichungen beschrieben, die für filmartige Strömungsmuster gelten, ohne dass die Eigenschaften der gefluteten Bereiche bzw. der Sprudelregime direkte Berücksichtigung fanden.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird für die Modellierung der Fluidodynamik in Anstaupackungen ein regimeabhängiger Ansatz verfolgt, der auf den Erkenntnissen und Messdaten der tomographischen Untersuchungen beruht (vgl. **Abschnitt 3.1.2**). Unter bestimmten Betriebsbedingungen ist das Strömungsmuster in Anstaupackungen vergleichbar mit dem von konventionellen strukturierten Packungen. Daher wurde zunächst ein Ansatz zur Beschreibung der Fluidodynamik in Strukturpackungen entwickelt, auf dem basierend die Strömungscharakteristik in Anstaupackungen durch gewisse Erweiterung abgebildet werden kann.

4.1 Ansatz für strukturierte Packungen

Beim Ansatz für Strukturpackungen werden zur Beschreibung des gesamten Belastungsbereiches zwei Strömungsregime berücksichtigt, nämlich rieselfilmartige Strömungen und Sprudelregime. **Abbildung 4.1** zeigt die in Strukturpackungen vorherrschenden Strömungsmuster in verschiedenen Belastungsbereichen. Bei Gasbelastungen unterhalb des Staupunktes sind ausschließlich rieselfilmartige Strömungen innerhalb der einzelnen Packungslagen zu erkennen. Der Flutvorgang, der zu einem Wechsel der vorherrschenden Strömungsregime von Rieselfilmen zu Sprudelregimen innerhalb der Packungen führt, wird auf der Basis der volumetrischen Anteile beider Regime modelliert. Der Flutvorgang beginnt am Staupunkt, bei dem sich eine infinitesimal kleine Sprudelschicht an den Packungslagenübergängen bildet (Sprudelschicht mit $H_{SPR} \cong 0$). Am Flutpunkt nimmt die Sprudelschicht die gesamte Packungslage ein. Die Abhängigkeit der Sprudelschichthöhe vom F-Faktor kann zwischen Stau- und Flutpunkt durch eine biquadratische Funktion angenähert werden,

$$H_{SPR} = H_{PE} \cdot \hat{F}_G^4 \quad (4.1)$$

wobei ein auf die Lastgrenzen normierter F-Faktor verwendet wird:

$$\hat{F}_G = \begin{cases} 0 & F_G < F_{G,SP} \\ \frac{F_G - F_{G,SP}}{F_{G,FP} - F_{G,SP}} & F_{G,SP} \leq F_G \leq F_{G,FP} \\ 1 & F_G > F_{G,FP} \end{cases} \quad (4.2)$$

Der volumetrische Anteil der Sprudelschicht kann folgendermaßen bestimmt werden:

$$v_{SPR} = \frac{n_{SPR} \cdot H_{SPR} \cdot A_K}{V_{P,Ges}} \quad (4.3)$$

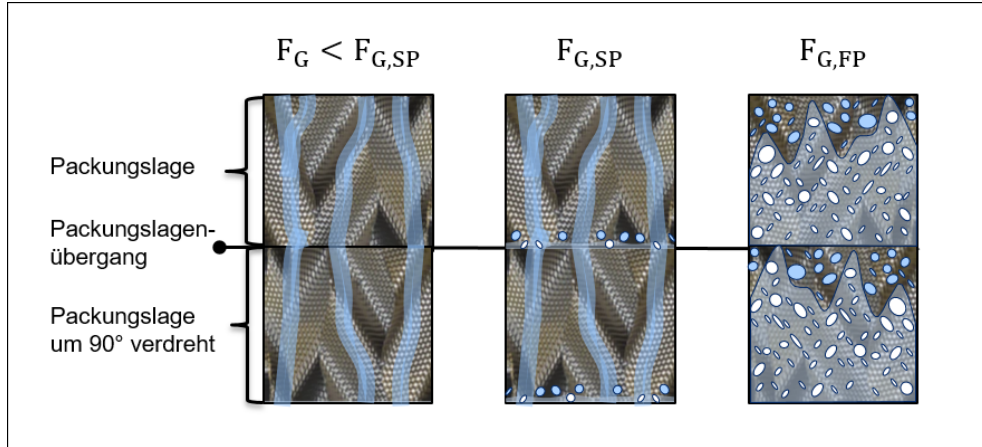


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung der Strömungsformen in strukturierten Packungen in verschiedenen Belastungsbereichen.

Der volumetrische Anteil der rieselfilmartigen Strömungsbereiche kann mit Hilfe der Summationsbedingung berechnet werden:

$$v_{Film} = 1 - v_{SPR} \quad (4.4)$$

Entweder nimmt eines der beiden Regime das gesamte Packungsvolumen $V_{P,Ges}$ ein oder beide Regime koexistieren im Belastungsbereich zwischen Stau- und Flutpunkt. Folglich setzt sich der spezifische Druckverlust im gesamten Belastungsbereich aus zwei Druckverlusttermen für rieselfilmartige Strömungen und Sprudelregime entsprechend ihrer volumetrischen Anteile zusammen:

$$\Delta p_{H,Ges} = v_{Film} \cdot \Delta p_{H,Film} + v_{SPR} \cdot \Delta p_{H,SPR} \quad (4.5)$$

Analog gilt für den Holdup:

$$h_{L,Ges} = v_{Film} \cdot h_{L,Film} + v_{SPR} \cdot h_{L,SPR} \quad (4.6)$$

Das Vorgehen zur Bestimmung der regimespezifischen Druckverlustanteile ist in **Abbildung 4.2** schematisch dargestellt. Für die Berechnung des Druckverlusts in rieselfilmartigen Strömungsmustern kann ein etablierter Ansatz auf der Basis von Widerstandsbeiwerten verwendet werden. Mit diesem Ansatz können sowohl trockener als auch berieselter Druckverlust korreliert werden. Im Allgemeinen enthalten Korrelationen Koeffizienten, deren Werte bestimmt werden, sodass die Abweichungen zwischen den Berechnungsergebnissen der Korrelation und den zugrunde gelegten Messwerten minimal wird. Dieser Vorgang kann als Anpassung der Koeffizienten bezeichnet werden. Als Datengrundlage für die Anpassung der in der Korrelation für den trockenen Druckverlust enthaltenen Koeffizienten wurden Ergebnisse aus trockenen Druckverlustmessungen und Simulationsergebnisse aus einphasigen CFD-Untersuchungen verwendet. Für den berieselten Druckverlust, der als Funktion des trockenen Druckverlusts korreliert werden kann, wurden Daten aus Messungen des berieselten Druckverlusts zur Bestimmung der Koeffizienten herangezogen.

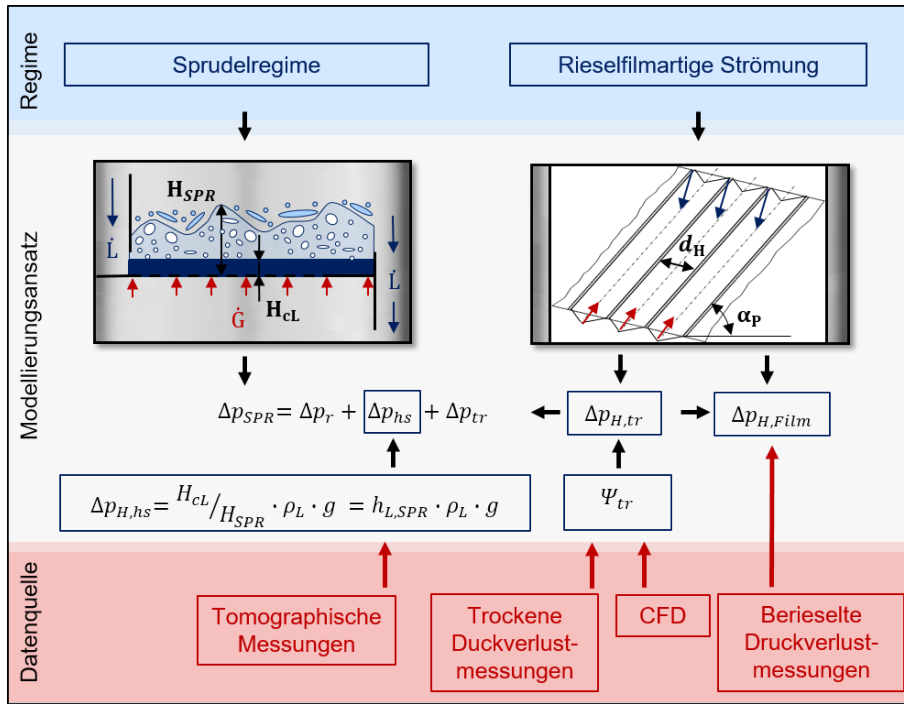


Abbildung 4.2: Regimeabhängige Modellierungsansätze.

Um den Druckverlust des Sprudelregimes in Strukturpackungen zu modellieren, wird eine Analogie zu Sprudelregimen auf Böden angenommen. Nach Lockett (2009) besteht der gesamte Druckverlust einer Sprudelschicht auf einem Boden anteilig aus einem Restdruckverlust, dem trockenen Druckverlust und der hydrostatischen Druckdifferenz, welche die Gasphase zum Durchdringen der Flüssigkeit überwinden muss (vgl. **Abschnitt 2.1.1**). Der Restdruckverlust, der auf die Bildung von Blasen beim Eintritt der Gasphase in die Sprudelschicht zurückgeführt werden kann, ist im Vergleich zu den beiden anderen Druckverlustanteilen eher gering. Die spezifische hydrostatische Druckdifferenz kann mit dem Produkt der Flüssigkeitsdichte ρ_L , der Fallbeschleunigung g und dem Verhältnis von klarer Flüssigkeitshöhe H_{CL} zu Höhe der Sprudelschicht H_{SPR} bestimmt werden (vgl. **Abbildung 4.2**). Da das Verhältnis von klarer Flüssigkeitshöhe und Sprudelschichthöhe als Flüssigkeits-Holdup in Sprudelregimen definiert ist, kann dieser Holdup zur Bestimmung der spezifischen hydrostatischen Druckdifferenz in Strukturpackungen genutzt werden. Der Holdup von Sprudelregimen in Packungen kann basierend auf Messungen mit der UFXCT experimentell ermittelt werden.

4.2 Ansatzerweiterungen für Anstaupackungen

Anstaupackungen bestehen aus alternierenden Anstau- und Abscheidelagen. Der gesamte Holdup setzt sich aus Holdup-Bestandteilen der jeweiligen Lage entsprechend ihrer volumetrischen Anteile zusammen, wobei in jeder Lage beide Regime betrachtet werden müssen:

$$h_{L,AP,Ges} = (v_{AN} - v_T)h_{L,AN} + v_T \cdot h_{L,T} + v_{AB} \cdot h_{L,AB} \quad (4.7)$$

Darüber hinaus ist ein Holdup-Bestandteil für die Töpfchen $h_{L,T}$ in Gleichung 4.7 enthalten. Da angenommen werden kann, dass ausschließlich die flüssige Phase durch die Töpfchen strömt, ist der Holdup vom Füllstand der Flüssigkeit abhängig. Der Füllstand kann basierend auf dem Bernoulli-Ansatz (Yildirim, 2016) mit Gleichung 2.24 bestimmt werden.

Im Gegensatz zum Holdup wird der Einfluss der Töpfchen auf den Druckverlust implizit über die Querschnittsverringering der Kolonne in den Anstaulagen berücksichtigt. Der trockene Druckverlust in Anstaupackungen setzt sich aus Druckverlustanteilen beider Lagen zusammen. Der gesamte berieselte Druckverlust enthält Anteile beider Regime in beiden Lagen:

$$\Delta p_{H,AP,Ges} = v_{AN} \cdot \Delta p_{H,AN} + v_{AB} \cdot \Delta p_{H,AB} \quad (4.8)$$

Während die volumetrischen Anteile der vorherrschenden Regime in konventionellen strukturierten Packungen durch die Gleichungen 4.1-4.4 beschrieben werden, ist ihre Berechnung in Anstaupackungen aufgrund der alternierenden Anordnung und dem vorzeitigen Fluten (vgl. **Abschnitt 2.2.1**) komplexer. Die volumetrischen Anteile der Sprudelschicht und der rieselfilmartigen Strömung in den Anstaulagen können mit den Gleichungen 4.1-4.4 bestimmt werden, da angenommen werden kann, dass der Flutvorgang in den Anstaulagen vergleichbar mit dem in Strukturpackungen ist. Für den normierten F-Faktor der Anstaulage gilt somit analog zu Gleichung 4.2:

$$\hat{F}_{G,AN} = \begin{cases} 0 & F_G < F_{G,SP,AN} \\ \frac{F_G - F_{G,SP,AN}}{F_{G,FP,AN} - F_{G,SP,AN}} & F_{G,SP,AN} \leq F_G \leq F_{G,FP,AN} \\ 1 & F_G > F_{G,FP,AN} \end{cases} \quad (4.9)$$

Hingegen beeinflussen zwei Phänomene das Wachstum der Sprudelschicht in den Abscheidelagen. Zum einen wird das Anwachsen der Sprudelschicht in den Abscheidelagen zu einem gewissen Teil durch den für strukturierte Packungen typischen Flutvorgang verursacht. Der zur Charakterisierung des packungstypischen Flutvorgangs in den Abscheidelagen verwendete normierte F-Faktor wird ebenfalls analog zu Gleichung 4.2 definiert:

$$\hat{F}_{G,AB} = \begin{cases} 0 & F_G < F_{G,SP,AB} \\ \frac{F_G - F_{G,SP,AB}}{F_{G,FP,AB} - F_{G,SP,AB}} & F_{G,SP,AB} \leq F_G \leq F_{G,FP,AB} \\ 1 & F_G > F_{G,FP,AB} \end{cases} \quad (4.10)$$

Zum anderen wächst die Sprudelschicht in den Abscheidelagen aufgrund der bereits vollständig gefluteten Anstaulagen. Die Sprudelschicht in den vollständig gefluteten Anstaulagen breitet sich mit wachsendem F-Faktor in die Abscheidelagen hinein aus. Dieses Wachstum überlagert das Wachstum, das auf den packungstypischen Flutvorgang zurückzuführen ist, und wird daher im Folgenden als überlagertes Wachstum der Sprudelschicht bezeichnet. Der normierte F-Faktor, der zur Beschreibung des überlagerten Wachstums verwendet wird, ist in Abhängigkeit der

Lastgrenzen beider Lagen definiert:

$$\hat{F}_{G,AP} = \begin{cases} 0 & F_G < F_{G,FP,AN} \\ \frac{F_G - F_{G,FP,AN}}{F_{G,FP,AB} - F_{G,FP,AN}} & F_{G,FP,AN} \leq F_G \leq F_{G,FP,AB} \\ 1 & F_G > F_{G,FP,AB} \end{cases} \quad (4.11)$$

Die Berechnung der Sprudelschichthöhe, die dem überlagerten Wachstum zugeordnet wird, kann, wie bereits von Brinkmann et al. (2012) vorgeschlagen, in Abhängigkeit des normierten F-Faktors $\hat{F}_{G,AP}$ durch eine Wurzelfunktion angenähert werden:

$$H_{SPR,AP} = H_S \cdot \sqrt{\hat{F}_{G,AP}} \quad (4.12)$$

Die Berechnung der maximalen Sprudelschichthöhe H_S , die dem überlagerten Wachstum zugeordnet werden kann, wird in **Abschnitt 4.6** erläutert. Die Sprudelschichthöhe in der Abscheidelage kann die geometrische Höhe der Abscheidelage nicht überschreiten. Um diese Begrenzung einzuhalten, wird die Sprudelschichthöhe, die dem packungstypischen Flutvorgang zugeordnet werden kann, wie folgt bestimmt:

$$H_{SPR,AB} = (H_{AB} - H_{SPR,AP}) \cdot \hat{F}_{G,AB}^4 \quad (4.13)$$

Der volumetrische Anteil der Sprudelschicht in den Abscheidelagen ergibt sich aus einer Superposition der beiden Höhen:

$$v_{SPR,AB} = \frac{n_{SPR} \cdot (H_{SPR,AB} + H_{SPR,AP}) \cdot A_K}{V_{P,Ges}} \quad (4.14)$$

Für die Auswertung des gesamten Druckverlusts und Holdups sind Korrelationen zur Berechnung des Holdups in den jeweiligen Regimen, des trockenen Druckverlusts, des berieselten Druckverlusts in beiden Regimen und der Lastgrenzen erforderlich. Da für Anstaupackungen keine Korrelationen für die genannten fluidodynamischen Parameter existieren, wurden solche Korrelationen basierend auf den in **Abschnitt 3.1** dargestellten Untersuchungen entwickelt.

4.3 Holdup in rieselfilmartigen Strömungsmustern und in Sprudelregimen

Bei Gasbelastungen unterhalb des Staupunktes kann der Holdup von Rieselfilmen als unabhängig von der Gasbeladung angenommen werden, weshalb der Holdup in diesem Belastungsbereich auch als minimaler Holdup bezeichnet wird. Der minimale Holdup wird in der Regel durch Korrelationen bestimmt, die auf empirischen oder semi-empirischen Ansätzen beruhen. Zum Beispiel haben Bremer und Kalis (1987) eine semi-empirische Korrelation entwickelt, die aus einer Bilanz von Widerstands- und Schwerkraft der flüssigen Phase resultiert. Bei diesem Ansatz wird eine voll ausgebildete Filmströmung auf den gewellten Blechen der Strukturpackungen angenommen, was bedeutet, dass die Filmdicke gemäß der Nusselt-Theorie bestimmt werden kann. Diese An-

nahme stimmt jedoch nicht überein mit den experimentellen Beobachtungen, die für wässrige Systeme gemacht wurden, bei denen insbesondere Rinnsale auftreten.

Buchanan (1969) entwickelte hingegen eine Korrelation für den minimalen Holdup auf einer rein empirischen Grundlage mit Hilfe einer Dimensionsanalyse, aus der eine Abhängigkeit des minimalen Holdups von der Reynolds- und Froude-Zahl hervorgeht. Dieser Ansatz wird im Rahmen dieser Arbeit als Basis zur Entwicklung einer Korrelation für den minimalen Holdup verwendet. Um eine bessere Übereinstimmung mit der eigenen Datenbasis zu erzielen und um den Einfluss sowohl unterschiedlicher geometrischer Oberflächen als auch unterschiedlicher Neigungswinkel der Packungskanäle auf den minimalen Holdup zu berücksichtigen, wurden zur Berechnung des Holdups in rieselfilmartigen Strömungsmustern gewisse Modifikationen vorgenommen:

$$h_{L, Film} = 0.88 \cdot \frac{Fr_{L,P}^{0.255/\varepsilon}}{Re_L^{0.164 \cdot \varepsilon}} \quad (4.15)$$

wobei die packungsspezifische Froude-Zahl verwendet wird:

$$Fr_{L,P} = \left(\frac{u_L}{\varepsilon_P} \cdot \cos \alpha_L \right)^2 \cdot \frac{a_{spez}}{g} \quad (4.16)$$

Die Reynolds-Zahl der flüssigen Phase wird hierbei mit folgender Gleichung bestimmt:

$$Re_L = \frac{u_L \cdot \rho_L}{a_{spez} \cdot \eta_L} \quad (4.17)$$

Aus der gesamten Holdup-Datenbasis (vgl. **Tabelle 3.3**) lassen sich 120 Messpunkte dem minimalen Holdup zuordnen. Die Koeffizienten in Gleichung 4.15 wurden mit der Methode der kleinsten Fehlerquadrate bestimmt. In **Abbildung 4.3** ist ein Paritätsdiagramm der berechneten und gemessenen minimalen Holdup-Werte dargestellt. Für die untersuchten Betriebsbedingungen und Geometrien liegen die Werte des minimalen Holdups im Bereich zwischen 0.02 und 0.1 m³m⁻³. Bis auf wenige Punkte, die aus Messungen mit großen geometrischen Oberflächen und geringen Berieselungsdichten resultieren, liegen die Abweichungen innerhalb von ±15 %. Der mittlere absolute Fehler (MAE) von 10.7 % wurde wie folgt berechnet:

$$MAE = \frac{\sum \frac{|h_{L,i,exp} - h_{L,i,ber}|}{h_{L,i,exp}}}{n_{dp}} \quad (4.18)$$

Während der minimale Holdup durch konventionelle Messverfahren innerhalb der Grenzen der Messunsicherheiten bestimmt werden kann, kann der Holdup des Sprudelregimes in strukturierten Packungen nicht mit solchen Messmethoden ermittelt werden. Hingegen stellt die UFXCT einen geeigneteren Weg zur Bestimmung des Holdups in Sprudelregimen dar. Wie in **Abschnitt 3.1.2** erwähnt, wurden umfangreiche tomographische Untersuchungen mit Anstau packungen in verschiedenen Belastungsbereichen durchgeführt. Ausgehend von allen Holdup-Werten, die mit der UFXCT gemessen wurden, wurden zunächst Holdup-Werte aussortiert, die nicht dem Sprudelregime zugeordnet werden konnten (vgl. **Tabelle A.3** im **Anhang**). Da die Phasenverteilung in Sprudelregimen sowohl räumlich als auch zeitlich stark variiert, wurden die verbleibenden 166 Messwerte zum Holdup in Sprudelregimen gemittelt. Hierbei wurden

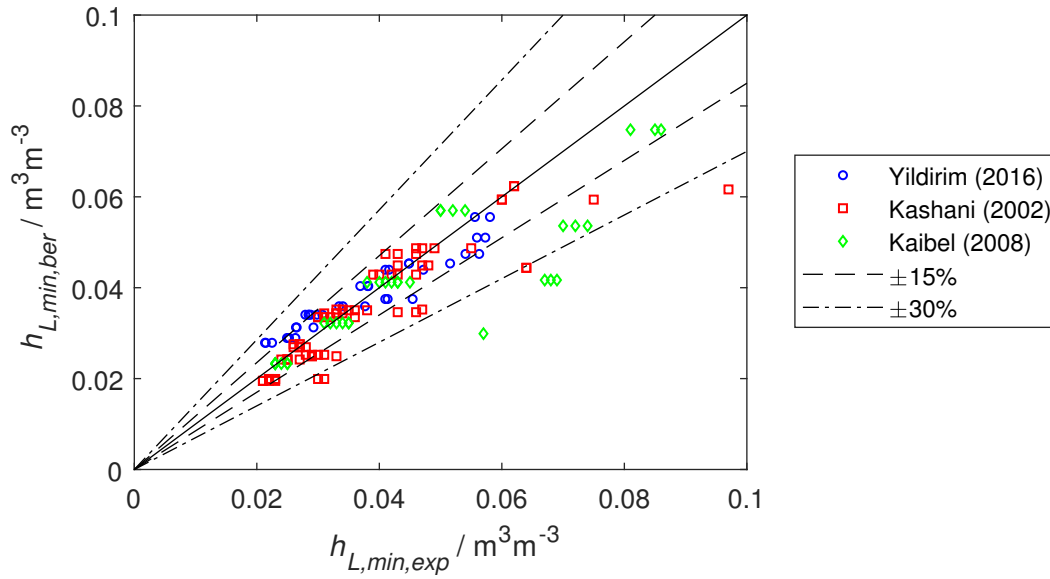


Abbildung 4.3: Paritätsdiagramm des berechneten und experimentell ermittelten minimalen Holdups.

Mittelwerte für dieselbe Packungsgeometrie und für die gleiche Berieselungsdichte in F-Faktor-Intervallen von $0.5 \text{ Pa}^{0.5}$ gebildet. Die daraus resultierenden 28 Mittelwerte dienten als Datenbasis zur Entwicklung einer Korrelation für die Berechnung des Holdups in Sprudelregimen. Hierbei wurde als empirischer Ansatz eine Potenzfunktion in Abhängigkeit der Phasendurchsätze gewählt:

$$h_{L,SPR} = \frac{0.57}{\varepsilon^{12}} \left(\frac{a_{spez}}{a_{geo}} \right)^{2.5} \left(\frac{u_L}{u_G} \cos(\alpha_L) \right)^{0.15} \quad (4.19)$$

Die Übereinstimmung zwischen den berechneten und gemessenen Holdup-Werten in Sprudelregimen ist in **Abbildung 4.4** zu sehen, wobei der MAE 12.0 % beträgt. Die Werte des Holdups in Sprudelregimen liegen im Bereich von 0.25 bis $0.5 \text{ m}^3\text{m}^{-3}$ und sind somit deutlich höher als die in rieselfilmartigen Strömungsmustern.

4.4 Spezifischer Druckverlust der Gasphase

Der Druckverlust der Gasphase ist ein wichtiger Parameter für die Bewertung von Gegenstromprozessen. Er entsteht aufgrund von Wechselwirkungen bzw. durch verschiedene Widerstände (Brinkmann, 2014):

- Reibung zwischen den Gasströmen benachbarter Dreieckskanäle
- Reibung an der Packungsoberfläche oder an der Phasengrenzfläche
- Durchdringung der Gasphase durch Flüssigkeitsschichten
- Richtungsänderungen an der Kolonnenwand
- Richtungsänderungen an den Kontaktpunkten der Packungslagenübergänge

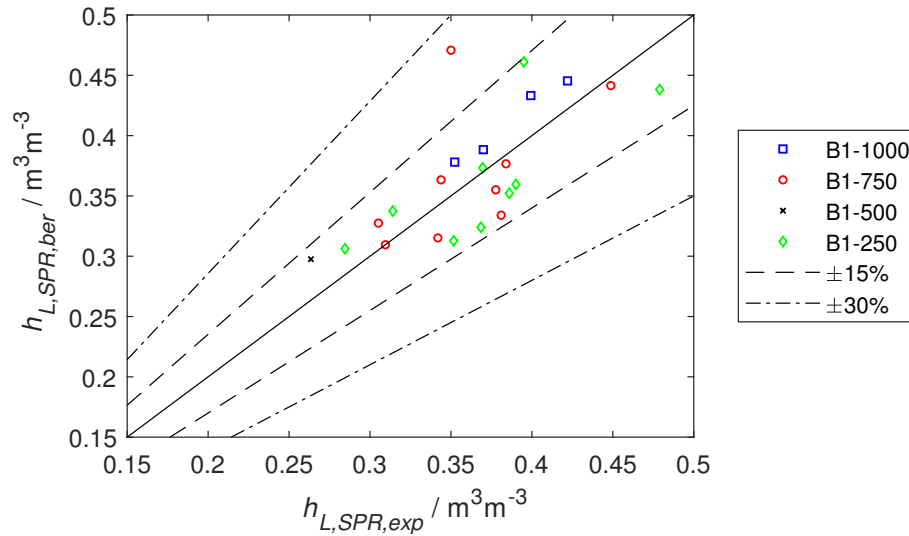


Abbildung 4.4: Paritätsdiagramm des berechneten und experimentell ermittelten Holdups im Sprudelregime.

Die Auswirkung der einzelnen Widerstände ist stark abhängig von den vorherrschenden Strömungsverhältnissen. In Sprudelregimen setzt sich der Druckverlust aus einem hydrostatischen Anteil, dem trockenen Druckverlust und einem Restdruckverlust zusammen.

$$\Delta p_{H,SPR} = \Delta p_{H,hs} + \Delta p_{H,tr} + \Delta p_{H,r} \quad (4.20)$$

Der Restdruckverlust berücksichtigt die Dissipation, die mit der Bildung von Blasen verbunden ist, die auftritt, wenn die Gasphase in die flüssige Phase eintritt. Der im Vergleich zu den beiden anderen Anteilen eher geringe Restdruckverlust kann entweder vernachlässigt werden oder alternativ mit einer geeigneten Korrelation aus der Literatur bestimmt werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Korrelation von Zelfel (1967) zur Bestimmung des Restdruckverlusts in Sprudelregimen verwendet. Da diese Korrelation für Böden entwickelt wurde, wurden geringfügige Anpassung vorgenommen, um die Korrelation auf Packungen anzuwenden. Der spezifische Restdruckverlust wird auf Basis der Euler-Zahl folgendermaßen berechnet:

$$\Delta p_{H,r} = Eu \frac{F_G^2}{2 \cdot H_{PE}} \quad (4.21)$$

wobei zur Bestimmung des spezifischen Restdruckverlusts die Höhe des betrachteten Packungselements verwendet wird. Die Euler-Zahl wird in Abhängigkeit der Weber-Zahl korreliert:

$$Eu = \begin{cases} 1.3020 \cdot We_{Blasen}^{-1.12} & We < 3.6 \\ 1.6936 \cdot We_{Blasen}^{-0.835} & We \geq 3.6 \end{cases} \quad (4.22)$$

Die Weber-Zahl wird hierbei mit einem charakteristischen Blasendurchmesser gebildet, der wie folgt definiert ist:

$$d_{Blasen} = \sqrt{\frac{\sigma_L}{\rho_G \cdot g}} \quad (4.23)$$

Somit ergibt sich die Weber-Zahl zu:

$$We_{Blasen} = \frac{F_G^2 \cdot d_{Blasen}}{\sigma_L} = \frac{F_G^2}{\sqrt{\sigma_L \cdot \rho_G \cdot g}} \quad (4.24)$$

Der größte Anteil des Druckverlusts in Sprudelregimen entsteht, wenn die Gasphase die flüssige Phase durchdringt. Als Ansatz zur Berechnung des Druckverlusts, der bei der Durchdringung entsteht, wird die spezifische hydrostatische Druckdifferenz verwendet, welche sich folgendermaßen bestimmen lässt:

$$\Delta p_{H,ha} = \rho_L \cdot g \cdot h_{L,SPR} \quad (4.25)$$

In Gleichung 4.25 ist die einzige unbekannte der Holdup in Sprudelregimen, der mit Gleichung 4.19 berechnet werden kann. Der nicht zu vernachlässigende trockene Druckverlust entsteht im wesentlichen durch Reibung und Richtungsänderungen. Ein häufig verwendeter Ansatz (vgl. z.B. Maćkowiak (2003)) zur Bestimmung des einphasigen Druckverlusts basiert auf der Verwendung von Widerstandsbeiwerten Ψ_{tr} :

$$\Delta p_{H,tr} = \Psi_{tr}(Re_G) \cdot \frac{F_G^2}{2 \cdot \varepsilon \cdot d_h \cdot K_W \cdot (1 - a_T)} \quad (4.26)$$

Zur Anwendung dieses Ansatzes wird eine Korrelation für den Widerstandsbeiwert benötigt. Als experimentelle Basis für diese Korrelation dienten im Rahmen dieser Arbeit die Messreihen zum trockenen Druckverlust, die in **Tabelle 3.2** aufgeführt sind. Der Widerstandsbeiwert kann aus diesen Messdaten durch Umstellen von Gleichung 4.26 ausgewertet werden. Zusätzlich zu den Messungen des trockenen Druckverlusts wurden Druckverlustprofile ausgewertet, die aus CFD-Simulationen von Olenberg et al. (2018) resultieren, um den Widerstandskoeffizienten der einphasigen Gasströmung zu bestimmen. Die CFD-Ergebnisse zum Druckverlust basieren auf Simulationen eines periodischen Packungselements, dessen Geometrie einer B1-250 entspricht. Bei den Simulationen wurden der Neigungswinkel der Packungskanäle und die Gasbelastung variiert. Wandeffekte werden bei diesen Simulationen nicht berücksichtigt, da periodische Elemente Kolonnen mit einem unendlich großen Durchmesser repräsentieren. Außerdem werden in Kolonnen mit strukturierten Packungen keine Töpfchen eingesetzt (resultierende Parameterwerte in Gleichung 4.26: $K_W = 1$, $a_T = 0$). Die ermittelten Widerstandsbeiwerte wurden dann als Funktionen der Reynolds-Zahl aufgetragen, die in diesem Zusammenhang wie folgt definiert wurde:

$$Re_{G,eff} = \frac{u_{G,Drahl} \cdot d_h \cdot \rho_G}{\eta_G} \quad (4.27)$$

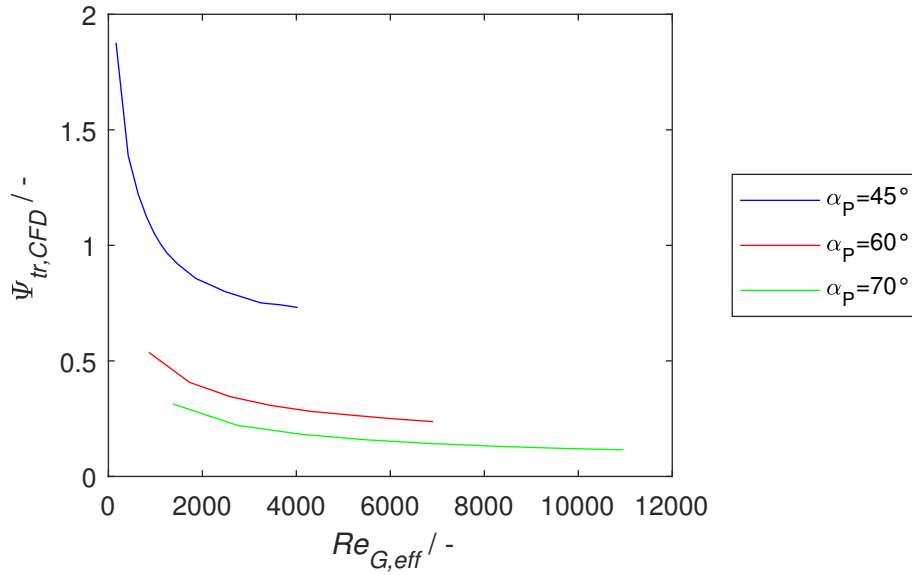


Abbildung 4.5: Aus CFD-Simulationen (Olenberg et al., 2018) resultierende Widerstandsbeiwerte als Funktion der Reynolds-Zahl für verschiedene Neigungswinkel der Packungskanäle.

Anstelle der häufig in der Literatur verwendeten effektiven Gasgeschwindigkeit wurde die Drallgeschwindigkeit $u_{G,Drall}$ in der Reynolds-Zahl verwendet, da die Stromlinien der Gasphase aus den CFD-Simulationen die Ausbildung einer Drallströmung zeigen. Die Drallgeschwindigkeit wurde wie folgt definiert:

$$u_{G,Drall} = \frac{u_G \cdot \tan \alpha_P}{\varepsilon \cdot (1 - a_T)} \quad (4.28)$$

Die Profile der aus den CFD-Simulationen erhaltenen Widerstandsbeiwerte sind als Funktion der Reynolds-Zahl in **Abbildung 4.5** veranschaulicht. Es ist offensichtlich, dass sich die Profile für verschiedene Neigungswinkel der Packungskanäle unterschiedlichen asymptotischen Werten für $Re_G \rightarrow \infty$ annähern. Diese Erkenntnis bestimmt maßgeblich die mathematische Form der Korrelation für den Widerstandsbeiwert. Unter der Berücksichtigung sowohl simulierter als auch gemessener Druckverlustprofile wurde die folgende Korrelation für den Widerstandsbeiwert entwickelt:

$$\Psi_{tr} = \frac{3.027}{Re_G^{0.435}} + 0.714 \cdot \left(\frac{\cot \alpha_P}{\varepsilon(1 - a_T)} \right)^{2.33} + \frac{n_{PU}}{76.88} \quad (4.29)$$

Die Korrelation für den Widerstandsbeiwert der einphasigen Gasströmung berücksichtigt neben Parametern der Packungsgeometrie auch die spezifische Anzahl der Packungslagenübergänge. Insgesamt wurden für die Anpassung der empirischen Koeffizienten 268 Messergebnisse zum trockenen Druckverlust von Anstau- und Strukturpackungen sowie 30 Datenpunkte aus CFD-Simulationen verwendet.

Abbildung 4.6 zeigt den trockenen Druckverlust als Funktion des F-Faktors. Es wird ein Vergleich von experimentellen Druckverlustprofilen (Symbole) von strukturierten Packungen

(Brinkmann et al., 2012) sowie Anstaupackungen (Jödecke et al., 2006) mit den nach den Gleichungen 4.26-4.29 berechneten Profilen (Linien) dargestellt. Der trockene Druckverlust der B1-750 wächst schneller an als der der B1-250M, was auf die engeren Packungskanäle zurückzuführen ist. Wie erwartet, ordnet sich das Druckverlustprofil der Anstaupackung B1-750T/B1-250M quantitativ zwischen den Profilen der beiden strukturierten Packungen ein. Die gemessenen Profile werden sowohl qualitativ als auch quantitativ gut von den berechneten Profilen wiedergegeben. Das Paritätsdiagramm (vgl. **Abbildung 4.7**) zeigt die Übereinstimmung zwischen allen gemessenen und berechneten Werten des trockenen Druckverlusts. Der MAE beträgt 7,5 %.

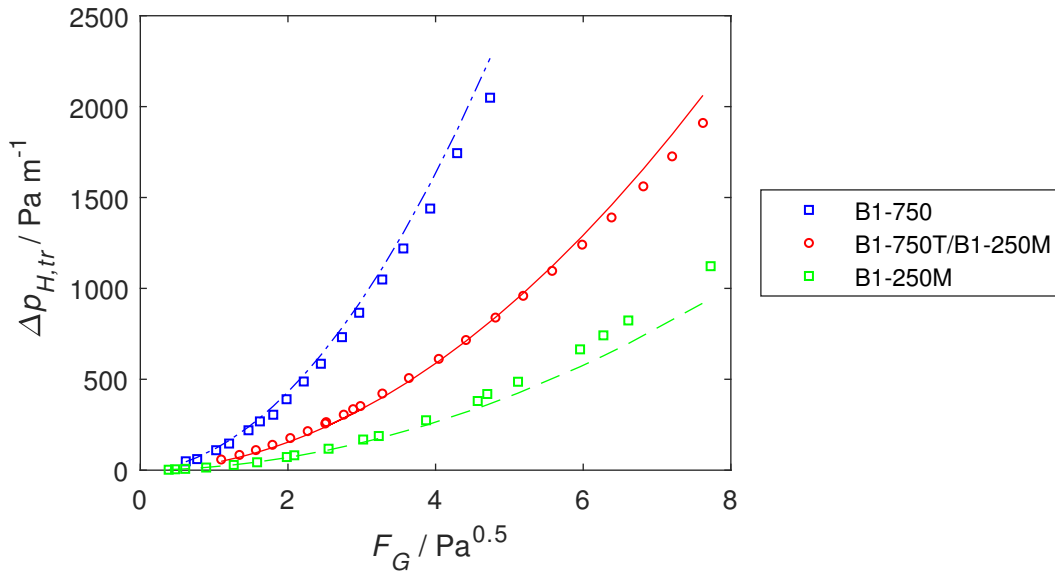


Abbildung 4.6: Trockener Druckverlust als Funktion des F-Faktors von Strukturpackungen und einer Anstaupackung.

Beim Druckverlust der Gasphase, der im Gegenstrom zur flüssigen Phase entsteht, sind, ähnlich wie beim trockenen Druckverlust, Reibung und Richtungsänderungen die wesentlichen Widerstände. Darüber hinaus treten im Gegenstrom Wechselwirkungen der Gasphase mit der flüssigen Phase auf, die einen zusätzlichen Widerstand für die Gasphase darstellen. Im Allgemeinen sind die Werte des berieselten Druckverlusts höher als die des trockenen Druckverlusts. Diese Erhöhung ist neben den Wechselwirkungen insbesondere auf die Verringerung des für die Gasphase freien Kanalquerschnitts zurückzuführen. Die Querschnittsverringern ist abhängig vom Holdup des rieselfilmartigen Strömungsmusters und vom Leerraumanteil der Packungen. Ein weiterer Widerstand für die Gasphase, der beim berieselten Druckverlust berücksichtigt werden sollte, resultiert aus Flüssigkeitsakkumulationen, die an den Packungslagenübergängen auftreten. Eine in der Literatur häufig getroffene und im Rahmen dieser Arbeit ebenfalls verwendete Annahme zur Entwicklung einer Korrelation für den berieselten Druckverlust ist, dass er ein Vielfaches des trockenen Druckverlusts ist (vgl. z.B. Maćkowiak (2003) oder Buchanan (1969)), wobei ein Faktor gebildet wird, der die zuvor genannten Einflüsse erfassen kann:

$$\Delta p_{H, Film} = \Delta p_{H, tr} \cdot f(h_{L, Film}, \varepsilon, n_{PT}, \dots) \quad (4.30)$$

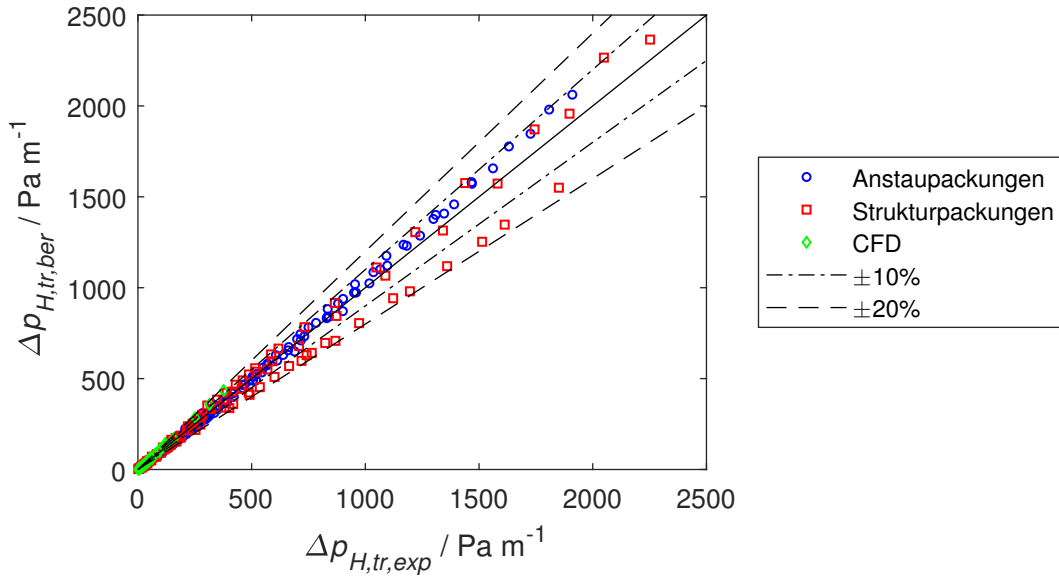


Abbildung 4.7: Paritätsdiagramm des berechneten und experimentell ermittelten trockenen Druckverlusts.

Als empirische Grundlage stehen die Messungen des berieselten Druckverlusts von Anstau- und Strukturpackungen aus **Tabelle 3.2** zur Verfügung. Um sicherzustellen, dass nur die Messdaten verwendet werden, bei denen der Einfluss des Sprudelregimes auf den Druckverlust minimal ist, wurden nur Messdaten berücksichtigt, deren Wert unterhalb von 400 Pa m^{-1} liegt. Diese Bedingung trifft auf 190 Messdaten von Anstaupackungen und auf 137 Messdaten von strukturierten Packungen zu. Diese Datenbasis und die zuvor aufgeführten Überlegungen führten zur Entwicklung der nachfolgend dargestellten Korrelation für den berieselten Druckverlust:

$$\Delta p_{H,Film} = \Delta p_{H,tr} \cdot \frac{(1 - h_{L,Film})^{14.45}}{(\varepsilon - h_{L,Film})^{24.45}} \cdot \left(\frac{n_{PT} \cdot \varepsilon \cdot \sin \alpha_P}{9.87 \cdot K_w (1 - a_T)} \right)^{0.77} \quad (4.31)$$

Ein Vergleich der Berechnungsergebnisse aus Gleichung 4.31 mit den experimentellen Werten des berieselten Druckverlusts ist in **Abbildung 4.8** zu sehen. Bis zu einem Wert von 150 Pa m^{-1} ist die Übereinstimmung gut. Bei höheren Werten des Druckverlusts werden die experimentellen Daten von den Berechnungen unterschätzt. Es ist zu beachten, dass der Druckverlust in Sprudelregimen noch nicht berücksichtigt wurde. Der MAE zwischen den gemessenen und den berechneten Werten beträgt 22.4 %.

4.5 Bestimmung der Lastgrenzen

Die Lastgrenzen von Packungskolonnen sind der Stau- und der Flutpunkt, der die obere Kapazitätsgrenze darstellt. Der Lastgrenzenbestimmung kommt bei der Modellierung der Fluidodynamik in Anstaupackungen eine besondere Bedeutung zu. Es ist notwendig, dass die Lastgrenzen sowohl der Anstaulage als auch der Abscheidelage mit ausreichender Genauigkeit bestimmt werden, damit berechnete Profile von Druckverlust und Holdup mit

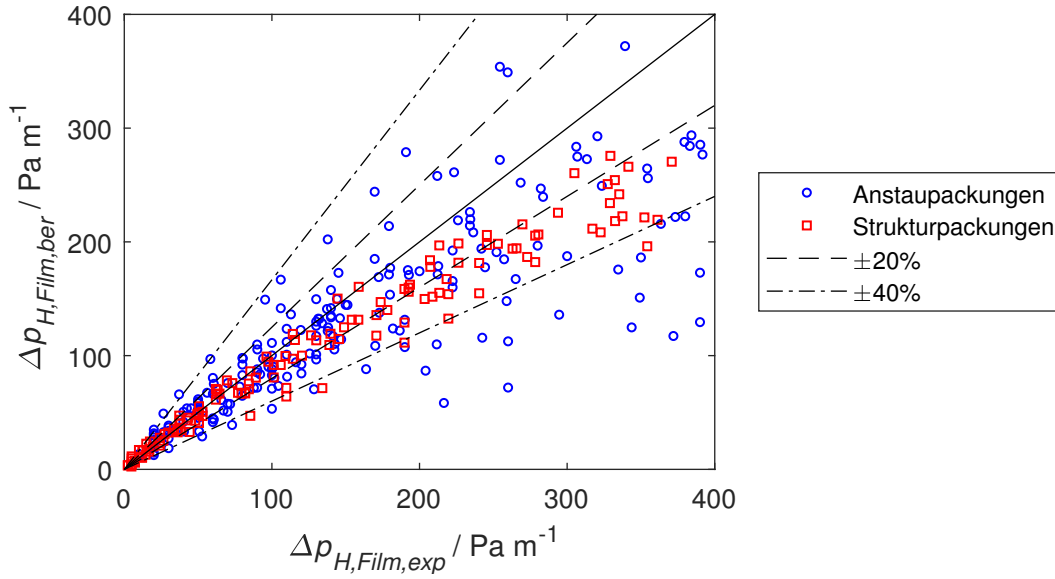


Abbildung 4.8: Paritätsdiagramm des berechneten und experimentell ermittelten berieselten Druckverlusts.

gemessenen Profilen übereinstimmen. Wegen der hohen Komplexität der mit den Lastgrenzen zusammenhängenden physikalischen Phänomene werden empirische bzw. semi-empirische Korrelationen für die Berechnung verwendet. Bei den semi-empirischen Korrelationen lassen sich das Rieselfilm-Gas-Schubspannungs-Modell nach Mersmann (1965) und das von Maćkowiak (2003) entwickelte Tropfen-Schwebebett-Modell hervorheben. Empirische Korrelationen zur Bestimmung der Lastgrenzen wurden unter anderem von Sherwood et al. (1938) und Wallis (1969) entwickelt. Im Allgemeinen stellen Korrelationen zur Bestimmung der Lastgrenzen einen funktionalen Zusammenhang zwischen der Gasbelastung am Flutpunkt und der entsprechenden Flüssigkeitsbelastung her. Für diesen funktionalen Zusammenhang werden im Rahmen dieser Arbeit Kapazitätsfaktoren für beide Phasen verwendet, die wie folgt definiert sind:

$$C_{G,FP} = \frac{u_{G,FP}}{K_W \cdot K_H} \cdot \frac{\sqrt{\rho_G}}{\sqrt{\rho_L - \rho_G}} = \frac{F_{G,FP}}{K_W \cdot K_H \cdot \sqrt{\rho_L - \rho_G}} \quad (4.32)$$

$$C_L = \frac{u_L \cdot \sqrt{\rho_L}}{\sqrt{\rho_L - \rho_G}} \quad (4.33)$$

Bei der Berechnung des Kapazitätsfaktors der Gasphase wird der Einfluss des Kolonnendurchmessers auf den Flutpunkt durch den Wandinflussparameter K_W berücksichtigt. Da beim vorliegendem Ansatz der Flutvorgang anhand des Wachstums der Sprudelschicht modelliert wird, sollten Packungslagen mit geringerer Höhe bei etwas niedrigeren F-Faktoren fluten als Packungslagen mit größerer Höhe. Um den Einfluss der Packungslagenhöhe zu erfassen, wird der Lagenhöhen-Parameter K_H eingeführt:

$$K_H = 1 - \frac{d_h}{H_{Pe}} \quad (4.34)$$

Beim Wallis-Plot ergibt sich durch das Auftragen der Wurzeln der Kapazitätsfaktoren für verschiedene Fluidbelastungen an der Flutgrenze von Strukturpackungen ein linearer Zusammenhang, wenn konstante geometrische und stoffliche Bedingungen vorliegen (McNulty und Hsieh, 1982). Schpigel und Meier (1994) zeigten mit ihren Untersuchungen, dass im Wallis-Plot unterschiedliche Steigungen für kleine und große Flüssigkeitsbelastungen auftreten. Yildirim et al. (2012) verwendeten den Wallis-Plot zur Bestimmung der Lastgrenzen von Anstau- und Strukturpackungen. Es wurde ebenfalls zwischen großen und kleinen Flüssigkeitsbelastungen unterschieden, wodurch sich zwei Bereiche für die Bestimmung der Flutpunkte ergaben und für jeden Bereich lineare Gleichungen angepasst wurden. Anstelle einer Bereichseinteilung in Abhängigkeit der Flüssigkeitsbelastung wird in dieser Arbeit eine Exponentialfunktion für die Entwicklung einer Korrelation zur Bestimmung von Lastgrenzen verwendet, die allgemein folgende Abhängigkeiten aufweist:

$$\frac{C_{G,FP}}{C_L} = K_1 \cdot \exp \left[-k_2 \cdot (We_L \cdot Fr_L \cdot h_{L,min})^{K_3} \right] \quad (4.35)$$

$$Fr_L = \frac{u_L^2 \cdot a_{geo}}{g} \quad (4.36)$$

$$We_L = \frac{u_L^2 \cdot \rho_L}{a_{geo} \cdot \sigma_L} \quad (4.37)$$

Die Flutpunkte von Anstau- und Strukturpackungen wurden anhand von berieselten Druckverlustprofilen ermittelt (vgl. **Abschnitt 3.1**). Die ermittelten Flutpunkte sind in den **Tabelle A.1** und **A.2** im **Anhang** dokumentiert. Eine Analyse der verfügbaren Datenbasis zeigt, dass die Gasbelastung am Flutpunkt sensitiv auf kleine Änderungen der geometrischen Konfiguration reagiert. Änderungen sowohl der Lagenorientierung als auch der Art der Wandabweiser (vgl. **Abschnitt 2.2.1**) führen zu deutlichen Verschiebungen des F-Faktors am Flutpunkt. Außerdem können die Lastgrenzen von Anstau-, Abscheidelagen und strukturierten Packungen nicht mit nur einer Gleichung und einem Satz an Koeffizienten ausreichend genau beschrieben werden. Es ist wahrscheinlich, dass die Geometrie der Packungslagenübergänge, an denen der Flutvorgang initiiert wird, einen wesentlichen Einfluss hat. Bei den Lastgrenzen der Abscheidelagen hat zudem das überlagerte Wachstum der Sprudelschicht eine entscheidende Wirkung. Diese Einflüsse machen eine einheitliche mathematische Beschreibung von Flutpunkten sehr schwierig. Daher wurden verschiedene Sätze an Koeffizienten für Gleichung 4.35 bestimmt, um eine ausreichende Qualität bei der Flutpunktberechnung zu erzielen. Die ermittelten Parameter und Koeffizienten sind in **Tabelle 4.1** zusammengefasst. Die Wahl der Parameter K_1 , K_2 und K_3 hängt von der Art der Packung, der relativen Orientierung aufeinanderfolgender Packungslagen und den verwendeten Wandabweisern ab.

In **Abbildung 4.9** ist der Kapazitätsfaktor der Gasphase am Flutpunkt als Funktion des Kapazitätsfaktors der flüssigen Phase dargestellt. Hierbei werden experimentelle Flutpunktdaten strukturierter Packungen (Symbole) mit den entsprechenden Berechnungen nach Gleichung 4.35 (Linien) verglichen, wobei für die Berechnungen die Parameter aus der ersten Zeile in **Tabelle 4.1** verwendet wurden. Mit steigendem Kapazitätsfaktor der flüssigen Phase und steigender geometrischer Oberfläche nimmt der Kapazitätsfaktor der Gasphase am Flutpunkt ab. Ein größerer Neigungswinkel der Packungskanäle bewirkt eine Verschiebung des Flutpunkts zu

Tabelle 4.1: Parameter für die Flutpunktsbestimmung in Gleichung 4.35.

Typ	Orientierung	Randabweiser	K1 /10 ⁷	K2	K3
SP		Drahtgewebe	1.6241	$\frac{25.31 \sin(\alpha_{PT})^{0.03}}{(\varepsilon/h_{L,min})^{0.17}}$	0.008
AN	A	Drahtgewebe	2.0452	$\frac{17.73 \varepsilon_{AB}^{0.35}}{\varepsilon_{AN}^{2.79}}$	0.02
AN	A	Saegezahn	4.6378	$\frac{19.5 \varepsilon_{AB}^{0.35}}{\varepsilon_{AN}^{2.79}}$	0.02
AN	B	Saegezahn	3.8287	$\frac{20.41}{\sin(\alpha_{PT})^{0.03}} \left(\frac{\varepsilon_{AB}}{\varepsilon_{AN}} \right)^{0.89}$	0.02
AB	A	Drahtgewebe	5.1932	$\frac{19.25}{\varepsilon_{AB}^{5.77}}$	0.02
AB	A	Saegezahn	6.6004	$\frac{19.73}{\varepsilon_{AB}^{4.76}}$	0.02
AB	B	Saegezahn	8.0741	$\frac{20.28}{\varepsilon_{AB}^{3.38}}$	0.02

höheren Werten des Kapazitätsfaktors der Gasphase. Die Berechnungen können die experimentellen Daten sowohl qualitativ als auch quantitativ gut reproduzieren.

In **Abbildung 4.10** ist ein Paritätsdiagramm der experimentell ermittelten und berechneten F-Faktoren am Flutpunkt dargestellt. Es zeigt sich, dass ein Großteil der Punkte innerhalb des Bereichs mit weniger als 10 % Abweichung liegt. Der MAE zwischen den gemessenen und den berechneten Werten für 143 Flutpunkte von Anstau-, Abscheidelagen und konventionellen strukturierten Packungen beträgt 8.1 %.

Weiterhin ist die Berechnung des F-Faktors am Staupunkt notwendig, um die Sprudelschichthöhe und den entsprechenden volumetrischen Anteil der vorherrschenden Regime zu bestimmen. Maćkowiak (2003) schlug einen Ansatz vor, bei dem der Staupunkt in Abhängigkeit des Flutpunkts berechnet wird, wobei ein konstanter Staupunkt-Faktor zum Einsatz kommt:

$$F_{G,LP} = K_{LP} \cdot F_{G,FP} \quad (4.38)$$

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde dieser Ansatz zur Bestimmung des F-Faktors erweitert, um bessere Berechnungsergebnisse der Druckverlust- und Holdupprofile zu ermöglichen. Anstelle eines konstanten Staupunkt-Faktors wird hier der Faktor K_{LP} als Funktion des Holdups in rieselfilmartigen Strömungsmustern berechnet:

$$K_{LP} = 1 - \exp\left(\frac{h_{L,Film}}{-0.15}\right) \quad (4.39)$$

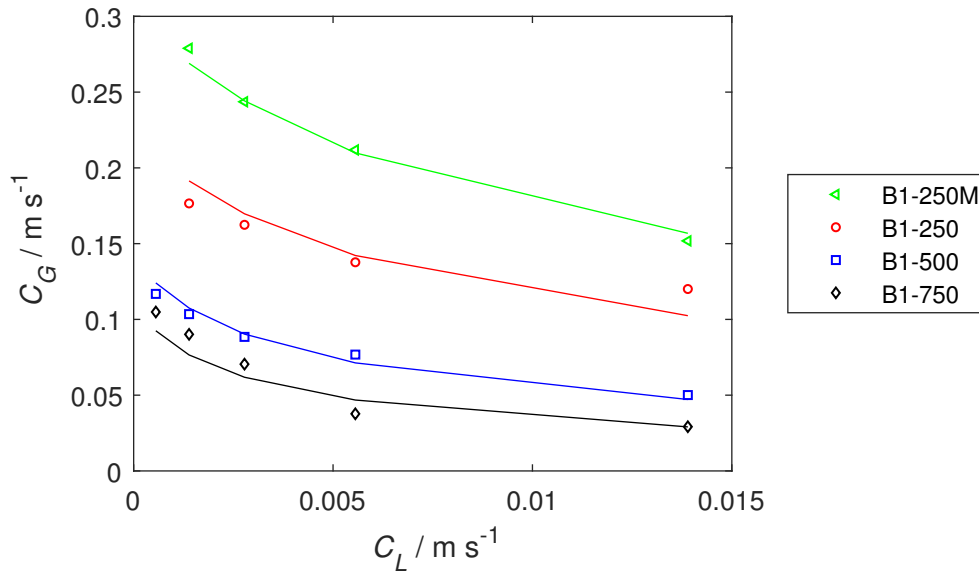


Abbildung 4.9: Experimentelle (Symbole) und berechnete (Linien) Kapazitätsfaktoren von strukturierten Packungen.

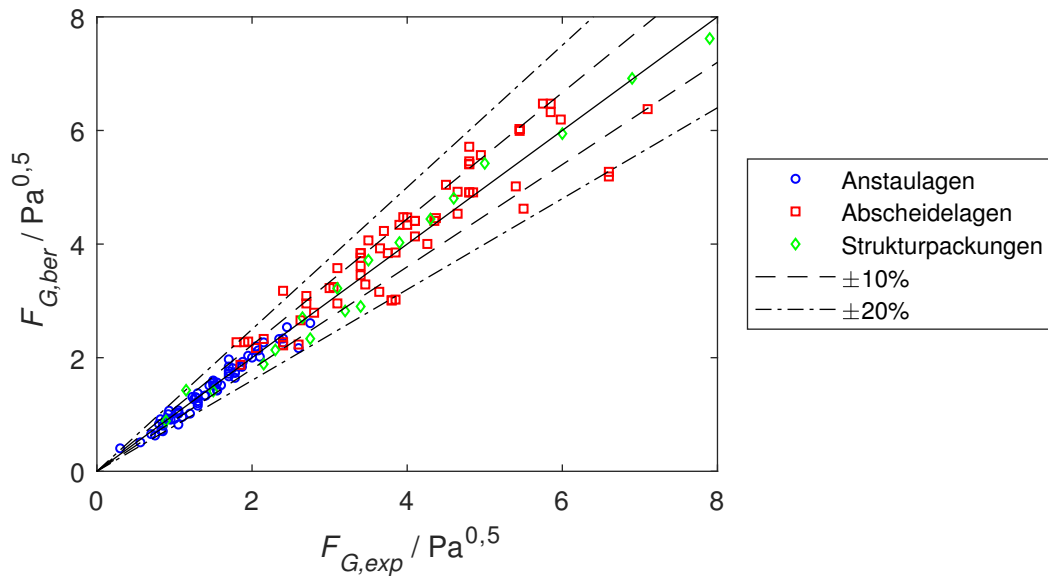


Abbildung 4.10: Paritätsdiagramm der berechneten und experimentell ermittelten Gasbelastungen am Flutpunkt.

4.6 Überlagertes Wachstum der Sprudelschicht

Wie bereits in **Abschnitt 2.2.1** thematisiert wurde, fluten Anstaulagen bei deutlich niedrigeren F-Faktoren als konventionelle strukturierte Packungen, welche die gleiche geometrische Oberfläche wie die Abscheidelage haben. Dies lässt sich durch das überlagerte Wachstum der Sprudelschicht in der Abscheidelage erklären. Das Verfahren zur Bestimmung der überlagerten Sprudelschichthöhe ist in **Abbildung 4.11** veranschaulicht. Die Symbole entsprechen einem

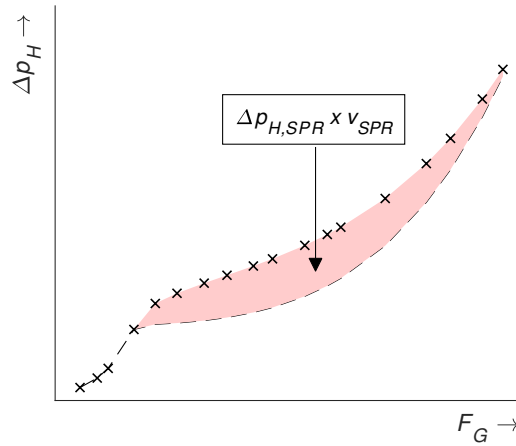


Abbildung 4.11: Qualitative Darstellung des Druckverlusts als Funktion des F-Faktors. Gegenüberstellung von experimentellen Daten (Symbole) mit Berechnungen (Linie), bei denen der Druckverlust des überlagerten Wachstums der Sprudelschicht vernachlässigt wird.

experimentellen Druckverlustprofil einer Anstaupackung, während die gestrichelte Linie den berechneten Druckverlust ohne Berücksichtigung des überlagerten Wachstums repräsentiert. Die Differenz zwischen den beiden Profilen (farbig hervorgehoben) lässt sich aus dem Produkt des spezifischen Druckverlusts in Sprudelregimen und dem entsprechenden volumetrischen Anteil bestimmen. Die Höhe der Sprudelschicht, die dem überlagerten Wachstum zugeordnet werden kann, ist im volumetrischen Anteil enthalten. Die Sprudelschichthöhe kann folglich durch die Kombination der Gleichungen 4.5, 4.8 und 4.14 sowie mit dem experimentellen Wert des gesamten Druckverlusts ermittelt werden:

$$H_{SPR,AP} = \frac{\left(\frac{\Delta p_{H,exp} - v_{AN} \cdot \Delta p_{H,Film,AN}}{v_{AB}} - \Delta p_{H,Film,AB} \right) \cdot V_{P,Ges}}{(\Delta p_{H,SPR,AB} - \Delta p_{H,Film,AB}) \cdot n_{SPR} \cdot A_K} - H_{SPR,AB} \quad (4.40)$$

Die Berechnung der Sprudelschichthöhe $H_{SPR,AP}$, die dem überlagerten Wachstum zugeordnet wird, erfolgt in Abhängigkeit des normierten F-Faktors $\hat{F}_{G,AP}$ anhand von Gleichung 4.12. Der Parameter H_s ist hierbei die maximale Höhe der Sprudelschicht, die sich aus dem überlagerten Wachstum ergibt. Dieser Parameter H_s wurde wie folgt korreliert:

$$\frac{H_s}{H_{AB}} = 0.282 \cdot \left(\frac{d_K^2 \cdot \sigma_L}{(\rho_L - \rho_G) \cdot g} \right)^{0.00625} \left(\frac{\varepsilon_{AB}}{\varepsilon_{AN}} \right)^{23.25} \frac{\sin(\alpha_{P,AB})^{2.14}}{(1 - a_T)^{1.24}} \quad (4.41)$$

4.7 Anwendung des Modells

Für die komplexen Phänomene, die im Gegenstrombetrieb von Packungskolonnen auftreten, kann die Verifizierung von Modellen anhand eines Vergleichs von berechneten Parametern mit den unter Versuchsbedingungen gemessenen Parametern erfolgen. Zu diesem Zweck werden die

in **Kapitel 4** dargestellten Gleichungen auf die in **Tabelle 3.2** und **Tabelle 3.3** angegebenen Versuchsbedingungen angewendet.

Abbildung 4.12 zeigt Holdup-Profile der Strukturpackung B1-250 (a) und der Anstaupackung B1-125/B1-500 (b) als Funktion des F-Faktors für verschiedene Berieselungsdichten. In beiden Diagrammen sind sowohl berechnete als auch experimentell bestimmte Holdup-Profile abgebildet, wobei die Messdaten aus den Arbeiten von Brinkmann et al. (2012) und Kashani (2002) stammen. Allgemein gilt, je höher die Berieselungsdichte, desto höher ist der Holdup. Bei niedrigen Werten des F-Faktors bleibt der Holdup unabhängig von der Berieselungsdichte konstant. Ab einem gewissen Wert des F-Faktors ist bei jedem einzelnen Profil ein Anstieg des Holdups festzustellen, der auf das Wachstum der Sprudelschicht zwischen den Belastungsgrenzen zurückzuführen ist. Die F-Faktoren am Flutpunkt sind mit zunehmender Berieselungsdichte zu niedrigeren Werten verschoben. Während es bei den Profilen der Strukturpackung nur einen Anstieg des Holdups gibt, ist das Profil der Anstaupackung durch die Belastungsgrenzen der Anstau- und Abscheidelage gekennzeichnet. Nach Überschreiten des F-Faktors am Staupunkt der Anstaulage wächst die Sprudelschicht, bis die gesamte Packungslage am Flutpunkt von der Sprudelschicht eingenommen wird. Ab dem Flutpunkt der Anstaulage sind die Steigungen der Holdup-Profile zunächst wieder geringer als die zwischen Stau- und Flutpunkt der Anstaulage. In der Nähe des Flutpunkts der Abscheidelage wird die Steigung der Profile wieder größer. Zwischen den Flutpunkten der Anstau- und Abscheidelage wächst die Sprudelschicht in der Abscheidelage. In diesem Bereich erfolgt das Wachstum der Sprudelschicht sowohl durch den packungstypischen Flutvorgang als auch durch das überlagerte Wachstum (vgl. **Abschnitt 4.2** und **Abschnitt 4.6**). Die gemessenen und berechneten Profile stimmen qualitativ gut überein. Quantitativ sind in einigen Bereichen Abweichungen zu erkennen. Bei Anstaupackungen sind die Abweichungen bei kleinen Berieselungsdichten im Bereich zwischen den Flutpunkten der Anstau- und Abscheidelage höher. Es ist zu beachten, dass keine tomographischen Messungen mit Berieselungsdichten unterhalb von $5 \text{ m}^3 \text{m}^{-2} \text{h}^{-1}$ durchgeführt wurden. Folglich ist insbesondere die Berechnung des Holdups in Sprudelregimen bei sehr geringen Berieselungsdichten mit gewissen Unsicherheiten behaftet.

Der Holdup im gesamten Lastbereich von Anstaupackungen besteht aus mehreren Bestandteilen. Um ein besseres Verständnis des Zusammenwirkens der verschiedenen Holdup-Bestandteile zu vermitteln, zeigt **Abbildung 4.13** (a) den Holdup als Funktion des F-Faktors für die B1-750T/B1-250M. Der Töpfchenanteil lag bei den Versuchen bei 12 %. Die experimentellen Werte (Kreise) wurden bei einer Berieselungsdichte von $10 \text{ m}^3 \text{m}^{-2} \text{h}^{-1}$ in einer DN300-Kolonne mit dem System Wasser/Luft bei Umgebungsbedingungen ermittelt (Yildirim, 2016). Der berechnete, gesamte Holdup (schwarze Linie) besteht aus den Bestandteilen des Sprudelregimes und des rieselfilmartigen Strömungsmusters von den Anstau- und Abscheidelagen. Es ist deutlich zu erkennen, dass der Holdup des rieselfilmartigen Strömungsmusters unabhängig vom F-Faktor ist. Der Holdup in den Sprudelregimen nimmt mit steigendem F-Faktor bei konstanter Berieselungsdichte ab. Die Werte des Holdups sind bei größerer spezifischer Oberfläche höher, und zwar unabhängig vom Regime. Die einzelnen Holdup-Bestandteile werden anhand ihrer volumetrischen Anteile quantifiziert und als Funktionen des F-Faktors in **Abbildung 4.13** (b) dargestellt. Für jeden gegebenen F-Faktor-Wert ist die Summe aller volumetrischen Anteile gleich eins. Die volumetrischen Anteile der beiden Regime zeigen entgegengesetzte Tendenzen, d.h. der volume-

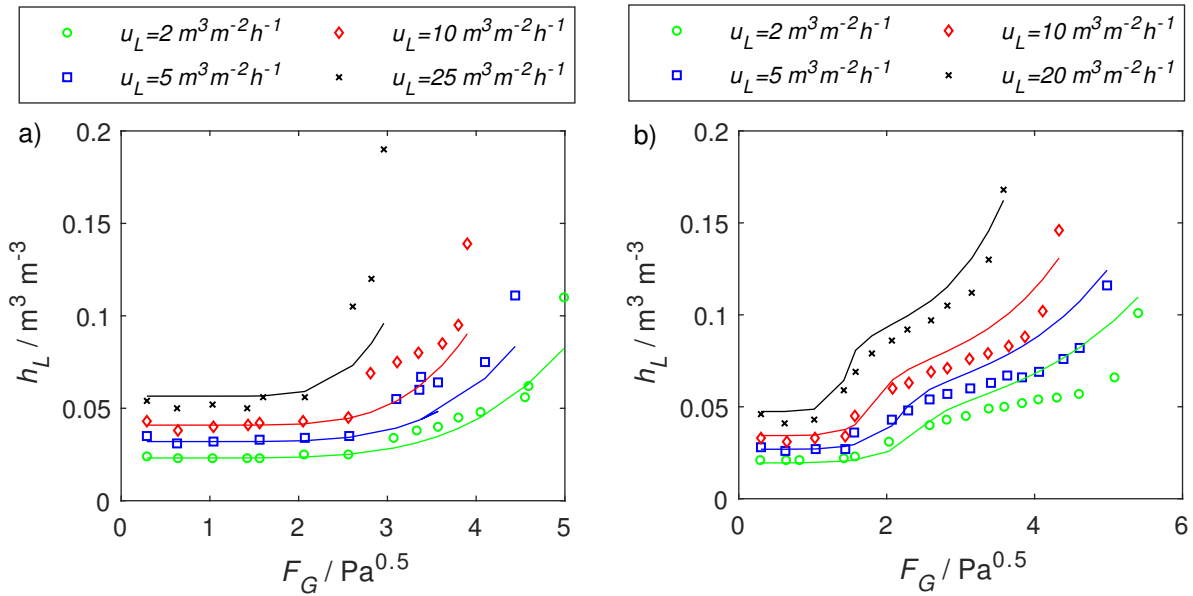


Abbildung 4.12: Experimenteller (Symbole) und berechneter (Linien) Holdup als Funktion des F-Faktors für strukturierte Packungen (a) und Anstaupackungen (b) bei verschiedenen Berieselungsdichten.

trische Anteil des Sprudelregimes nimmt in gleichem Maße zu, wie der volumetrische Anteil der rieselfilmartigen Strömungsmuster abnimmt. Es zeigt sich, dass die Kolonne für den höchsten gemessenen Wert des F-Faktors nicht vollständig geflutet ist, da der volumetrische Anteil des rieselfilmartigen Strömungsmusters in der Abscheidelage noch nicht Null ist.

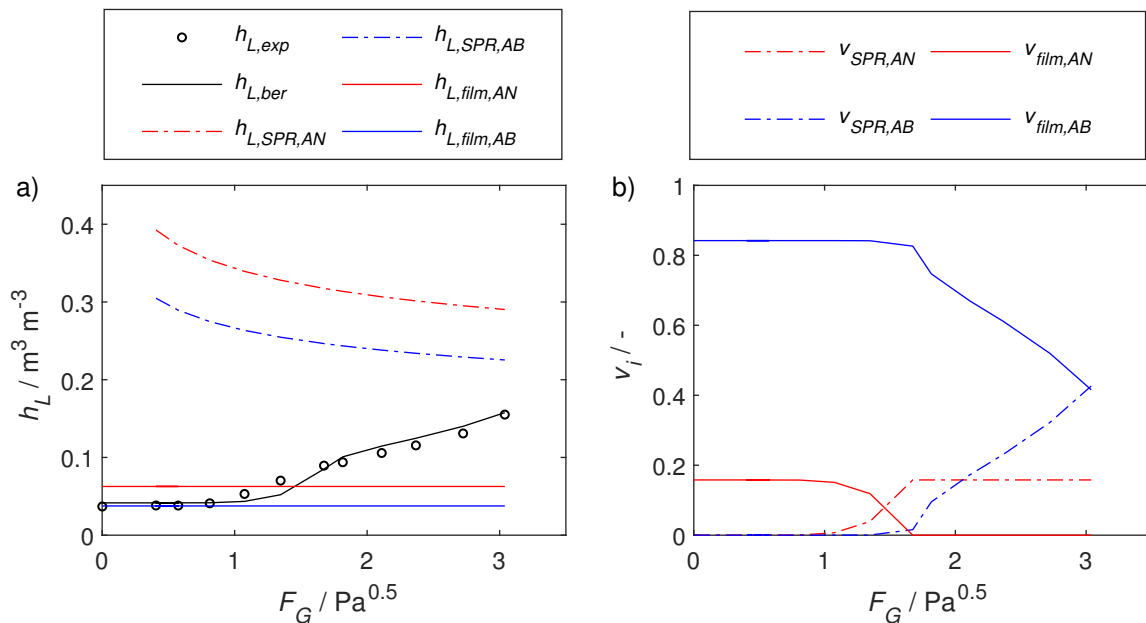


Abbildung 4.13: Holdup (a) und Volumenanteile der vorherrschenden Regime (b) als Funktionen des F-Faktors für die B1-750T/B1-250M.

Abbildung 4.14 zeigt gemessene Druckverlustprofile der strukturierten Packung B1-250M (Brinkmann (2014), (a)) und der Anstaupackung B1-125/B1-500 mit Wandabweisern aus Drahtgewebe (Kashani (2002), (b)) sowie die dazugehörigen berechneten Profile. Die Druckverlustkurven sind als Funktion des F-Faktors für verschiedene Berieselungsdichten aufgetragen. Die Beschreibung der Druckverlustprofile ist ähnlich wie die der Holdup-Profile, wobei der einzige signifikante Unterschied das Verhalten bei niedrigen F-Faktoren ist, bei denen ein leichter Anstieg des Druckverlusts beobachtet werden kann. Die gemessenen und berechneten Profile des Druckverlusts stimmen im gesamten Betriebsbereich für beide Einbauten gut überein.

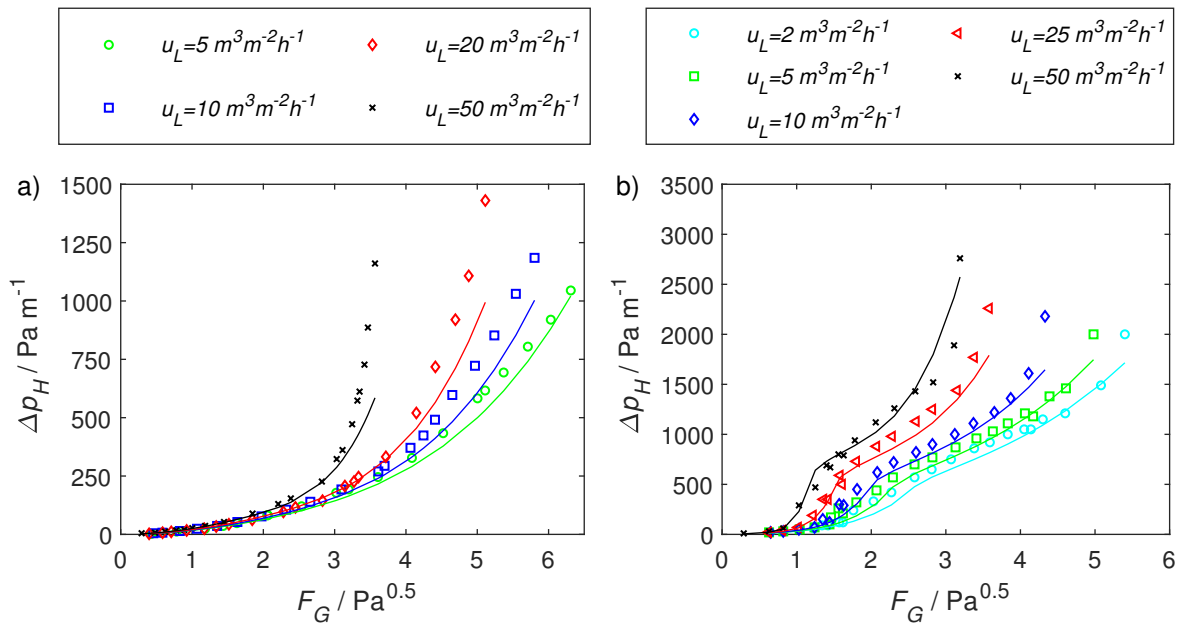


Abbildung 4.14: Experimenteller (Symbole) und berechneter (Linien) Druckverlust als Funktion des F-Faktors für strukturierte Packungen (a) und Anstaupackungen (b) bei verschiedenen Berieselungsdichten.

Das Zusammenwirken der verschiedenen Druckverlustbestandteile ist in **Abbildung 4.15** (a) als Funktion des F-Faktors für die Anstaupackung B1-750T/B1-125 dargestellt. Der Töpfchenanteil lag bei den Versuchen bei 10.2 %. Die experimentellen Werte (gekreuzte Symbole) wurden bei einer Berieselungsdichte von $20 \text{ m}^3 \text{m}^{-2} \text{h}^{-1}$ in einer DN500 Kolonne ermittelt (Brinkmann, 2014). Ähnlich wie beim Holdup setzt sich der berechnete Gesamtdruckverlust (schwarze Linie) aus Bestandteilen beider Strömungsregime für beide Packungslagen zusammen. Bei rieselfilmartigen Strömungsmustern ist der funktionale Zusammenhang sowohl in der Anstau- als auch in der Abscheidelage zwischen Druckverlust und dem F-Faktor näherungsweise quadratisch, wobei mit zunehmender geometrischer Oberfläche höhere Druckverlustwerte bei gleichen F-Faktor-Werten resultieren. Der Druckverlust in Sprudelregimen setzt sich wiederum aus verschiedenen Bestandteilen zusammen. Die hydrostatische Druckdifferenz in Sprudelregimen ist proportional zum Holdup in Sprudelregimen und nimmt daher mit zunehmender Gasgeschwindigkeit ab. Der trockene Druckverlust wächst annähernd quadratisch mit dem F-Faktor. Die Druckverlustbestandteile der beiden Regime in den Packungslagen werden entsprechend ihrer volumetrischen Anteile aufsummiert, die in **Abbildung 4.15** (b) abgebildet sind. Gemäß der Modellrechnungen

liegen die beiden höchsten F-Faktoren oberhalb des Flutpunkts der Abscheidelage, da hier der volumetrische Anteil des Sprudelregimes in der Abscheidelage dem geometrischen Volumenanteil der Abscheidelage entspricht.

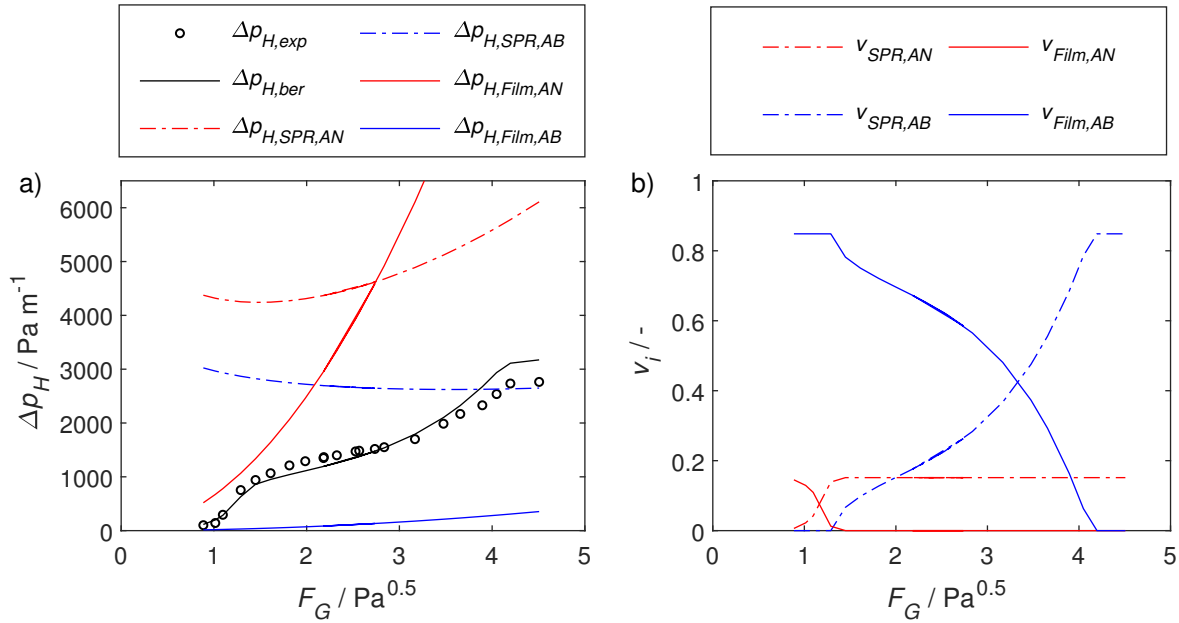


Abbildung 4.15: Druckverlust (a) und Volumenanteile der vorherrschenden Regime (b) als Funktionen des F-Faktors für die B1-750T/B1-125.

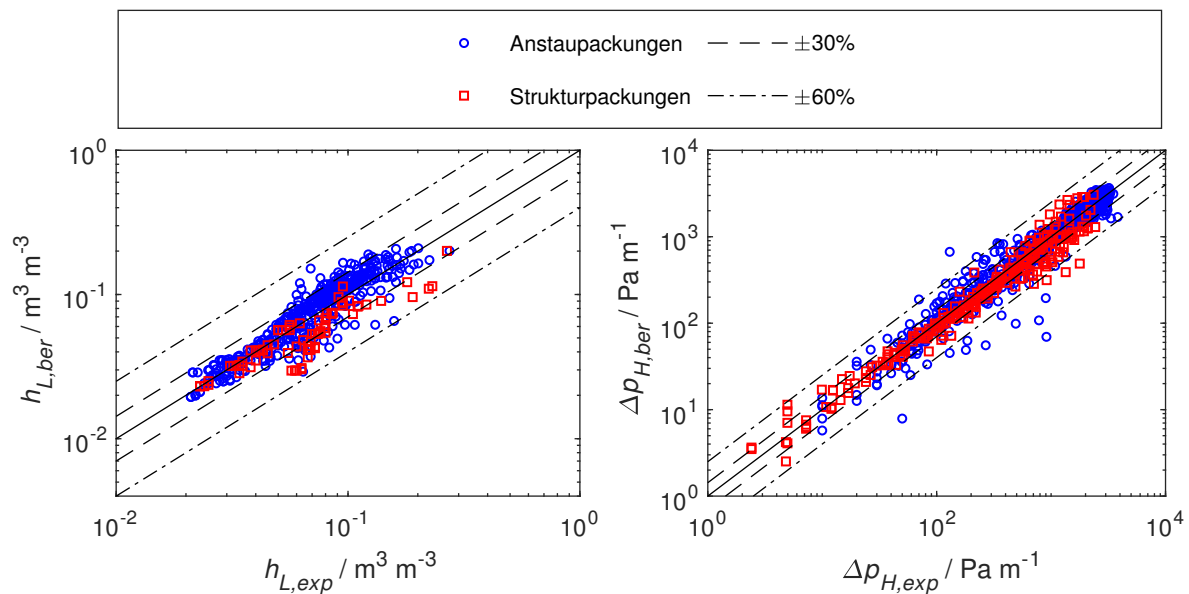


Abbildung 4.16: Paritätsdiagramm aller berechneten und experimentell ermittelten Holdup- (a) und Druckverlustwerte (b).

In **Abbildung 4.16** (a) ist ein Paritätsdiagramm von berechneten und experimentell ermittelten

Holdup-Werten dargestellt. Die höchsten Abweichungen ergeben sich bei Bedingungen, die für Berieselungsdichten unterhalb von $5 \text{ m}^3 \text{m}^{-2} \text{h}^{-1}$ ermittelt wurden, für die keine tomographischen Daten des Holdups in Sprudelregimen vorliegen, weshalb die Berechnungen in diesem Bereich mit höheren Unsicherheiten behaftet sind. Der MAE aller Holdup-Werte (510 Datenpunkte) beträgt 19.1 %. Ein Vergleich zwischen allen berechneten und gemessenen Druckverlustwerten ist in **Abbildung 4.16** (b) illustriert. Der MAE-Wert aller Druckverlustwerte (1595 Datenpunkte) beträgt 18.1 %.

4.8 Zusammenfassung

Im vorliegenden Kapitel wurde ein neuer Modellierungsansatz zur Beschreibung der Fluid-dynamik von Struktur- und Anstaupackungen aufgezeigt. Beim vorgeschlagenen Ansatz wird der Flutvorgang innerhalb von Packungen als Strömungsformwechsel von rieselfilmartigen Strömungsmustern zu Sprudelregimen beschrieben. Die Modellentwicklung basiert auf einer Kombination aus integralen Druckverlust- und Holdup-Messungen, Ergebnissen von einphasigen CFD-Simulationen sowie tomographischen Untersuchungen. Um den Holdup und Druckverlust im gesamten Betriebsbereich der beiden Einbauten zu bestimmen, wurden Korrelationen für den Holdup in beiden Strömungsregimen, für den trockenen Druckverlust, für den berieselten Druckverlust in beiden Regimen sowie Gasgeschwindigkeiten an Belastungsgrenzen entwickelt. Die individuellen Packungslagen von Anstaupackungen werden im Modellierungsansatz durch ihre geometrischen Volumenanteile berücksichtigt. Der Flutpunkt von Anstaupackungen ist im Vergleich zu dem von Strukturpackungen zu niedrigeren F-Faktor-Werten verschoben. Diese Verschiebung kann auf das Wachstum der Sprudelschicht in der Abscheidelage zurückgeführt werden. Zusätzlich zum Wachstum der Sprudelschicht, das durch den packungstypischen Flutvorgang verursacht wird, erfolgt ein überlagertes Wachstum der Sprudelschicht in der Abscheidelage. Das überlagernde Wachstum wird durch die Ausbreitung der Sprudelschicht aus der vollständig gefluteten Anstaulage in die Abscheidelage verursacht. Für die Bestimmung der Sprudelschichthöhe, die dem überlagerten Wachstum zugeordnet werden kann, wurde ebenfalls eine Berechnungsvorschrift vorgeschlagen.

Die gemessenen Druckverlust- und Holdup-Profile werden von den Modellrechnungen gut wiedergegeben. Der spezifische Druckverlust wird im gesamten Betriebsbereich von Anstau- und Strukturpackungen mit einer mittleren Abweichung von 18.1 % ermittelt. Die Unsicherheit der Holdup-Berechnungen beträgt 19.1 %. Das vorgeschlagene Modell zur Beschreibung der Fluid-dynamik bildet die Grundlage für die im nachfolgenden Kapitel dargestellte rate-based-Modellierung von Anstaupackungen.

5 Modellierung von Absorptionskolonnen mit Anstaupackungen

Die Trennleistung von Kolonnen mit Böden oder strukturierten Packungen wird häufig mit auf Stufen basierenden Modellierungskonzepten bestimmt (vgl. **Abschnitt 2.3**). Eine geeignete Methode zur Bestimmung der Trennleistung bei der reaktiven Absorption ist das rate-based Stufenkonzept, welches meistens auf der Zwei-Film-Theorie basiert (vgl. **Abschnitt 2.3.3**). Im Rahmen der Zwei-Film-Theorie wird davon ausgegangen, dass die wesentlichen Stofftransportwiderstände in zwei stagnierenden Filmen auf beiden Seiten der Phasengrenzfläche liegen, an der das thermodynamische Phasengleichgewicht herrscht. Hüser (2017) entwickelte ein rate-based-Modell zur Beschreibung der reaktiven CO₂-Absorption in wässrige Aminlösungen für Strukturpackungen. Dieses Modell baut auf den Entwicklungsarbeiten von Kucka et al. (2003) und Hüpen und Kenig (2005) auf. Im Rahmen dieser Arbeit wurde der von Hüser (2017) bereitgestellte Programm-Code modifiziert, um die Besonderheiten bei der Bestimmung der Trennleistung von Anstaupackungen zu berücksichtigen.

5.1 Rate-based-Ansatz zur Berücksichtigung des heterogenen Strömungsmusters

Mittels rate-based-Ansätzen können die individuellen Merkmale verschiedener Einbauten durch die Verwendung von Korrelationen für Druckverlust, Holdup, Kapazitätsgrenzen, Stoffübergangskoeffizienten und Phasengrenzfläche berücksichtigt werden. Bei der Anwendung des rate-based-Ansatzes auf den Anstaubetrieb von Anstaupackungen bieten sich verschiedene Optionen an, die sich hinsichtlich der Komplexität unterscheiden (siehe **Abbildung 5.1** aus Yildirim und Kenig (2015)). Ein Anstaupackungselement kann entweder als ein Segment betrachtet werden (Ansatz I) oder entsprechend der Lagenstruktur in zwei sich abwechselnde Segmente unterteilt werden (Ansatz II). Darüber hinaus können Anstaupackungen durch drei alternierende Segmente dargestellt werden, wobei die einzelnen Segmente den verschiedenen Strömungsmustern zugeordnet werden (Ansatz III). Für jedes Segment sind unterschiedliche Korrelationen erforderlich, um die Besonderheiten jeder einzelnen Schicht bzw. jedes Strömungsregimes angemessen zu beschreiben.

Wie bereits in **Abschnitt 2.2.1** erwähnt wurde, entwickelten Brinkmann et al. (2009) eine

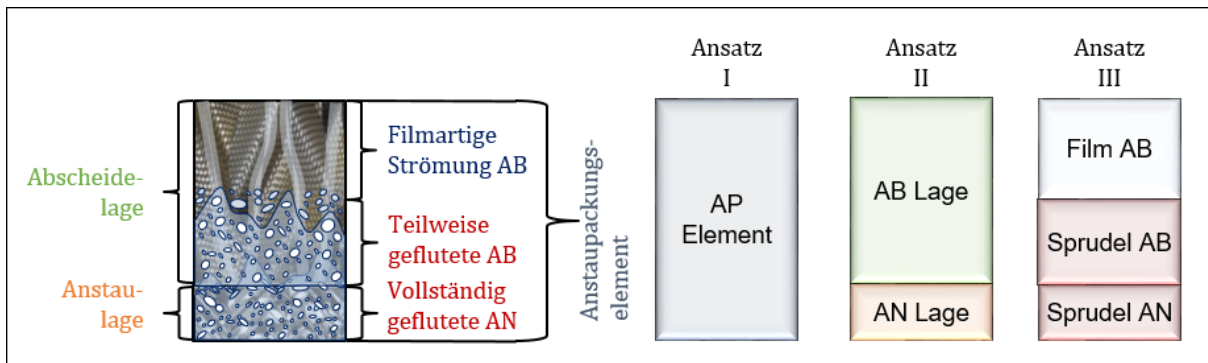


Abbildung 5.1: Verschiedene Modellierungsansätze für den Anstaubetrieb (Yildirim und Kenig, 2015).

Berechnungsmethode zur Bestimmung der Trennleistung von Anstaupackungen, die auf Ansatz I basierte. Hierbei wurden Stoffübergangskoeffizienten und Phasengrenzfläche mit Hilfe der Korrelationen von Billet und Schultes (1999) bestimmt, die für konventionelle Füllkörper entwickelt wurden. Yildirim und Kenig (2015) schlugen eine detailliertere Modellierungsmethode gemäß Ansatz II vor. Die Trennwirkung in den jeweiligen Segmenten wurde durch die Anwendung verschiedener Korrelationen berücksichtigt. Stoffübergangskoeffizienten und Phasengrenzfläche für das Segment Abscheidelage wurden wiederum mit den Korrelationen von Billet und Schultes (1999) abgeschätzt. Für das Segment der Anstaulage wurde eine Analogie zur Strömung auf Siebböden angenommen und folglich wurden Korrelationen verwendet, die ursprünglich für Siebböden (Zuiderweg, 1982) entwickelt wurden. Zur Anwendung der Phasengrenzflächenkorrelation auf Anstaupackungen mussten Anpassungen vorgenommen werden, da Anstaupackungen und Siebböden unterschiedliche Geometrieparameter aufweisen. Eine Verifizierung des entwickelten Modellierungsansatzes wurde mit verfügbaren Daten zur Trennleistung von Anstaupackungen von Jödecke et al. (2006) durchgeführt, wobei die Modellgüte aufgrund der geringen Menge an Daten nicht für verschiedene Geometrieparameter und Betriebsbedingungen überprüft werden konnte. Zudem ist Ansatz II nicht geeignet, um die Trennwirkungen der einzelnen Strömungsregime zu erfassen.

Bei dem im Rahmen der vorliegenden Arbeit entwickelten rate-based-Stufenmodell zur Beschreibung der Trennleistungen von Anstaupackungen werden alle möglichen Strömungsregime, die auftreten können, in Abhängigkeit des betrachteten Betriebsbereichs berücksichtigt (vgl. **Abbildung 5.2**). Die vorherrschenden Strömungsregime entlang eines Anstaupackungselements können sich in Abhängigkeit des F-Faktors im Zusammenhang mit den berechneten Stau- und Flutpunkten ändern. Insgesamt gibt es vier verschiedene Fluidodynamikbereiche, in denen es möglich ist, Anstaupackungen zu betreiben. Entsprechend der auftretenden Regime wird eine alternierende Unterteilung in zwei, drei bzw. vier Stufensegmente vorgenommen, wobei sowohl Sprudelregime in der Anstaulage und der Abscheidelage als auch Filmströmungen in beiden Packungslagen Berücksichtigung finden.

Für die Berechnung der Segmenthöhen wird das in **Kapitel 4** vorgestellte Modell zur Beschreibung der Fluidodynamik in Anstaupackungen verwendet. Im ersten Belastungsbereich herrscht sowohl in der Anstau- und Abscheidelage ein rieselfilmartiges Strömungsmuster. Die Höhe der

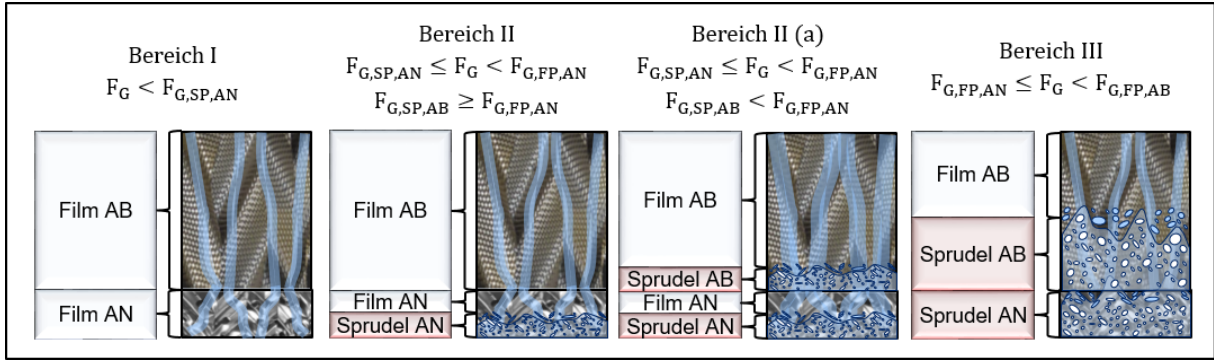


Abbildung 5.2: Regimeabhängige Segmentierung von Anstaupackungen für die verschiedenen Belastungsbereiche.

beiden Segmente wird durch die Höhe der verwendeten Packungslagen bestimmt. Im Bereich zwischen Stau- und Flutpunkt der Anstaulage bildet sich ausgehend von der Unterkante der Anstaulage eine Sprudelschicht, dessen Höhe $H_{SPR,AN}$ mit den Gleichungen 4.1 und 4.9 berechnet werden kann. Die Höhe des rieselfilmartigen Segments in der Anstaulage ergibt sich aus:

$$H_{Film,AN} = H_{AN} - H_{SPR,AN} \quad (5.1)$$

Der Betriebsbereich II (a) tritt ebenfalls zwischen dem Stau- und dem Flutpunkt der Anstaulage in Erscheinung. Jedoch bildet sich dieser Betriebsbereich nur, wenn der Wert des F-Faktors am Staupunkt der Abscheidelage kleiner als der am Flutpunkt der Anstaulage ist. Die Segmenthöhen in der Anstaulage sind analog zum Vorgehen im Bereich II zu bestimmen. Zur Berechnung der Sprudelschichthöhe in der Abscheidelage sind die Gleichungen 4.10 bis 4.13 und 4.41 anzuwenden. Im Bereich zwischen den Flutpunkten der Anstau- und Abscheidelage ist die Anstaulage vollständig geflutet. Folglich ist die Sprudelschichthöhe in der Anstaulage mit der Höhe der Anstaulage gleichzusetzen. Die Segmenthöhen der beiden Regime in der Abscheidelage werden analog zu Bereich II (a) ermittelt.

5.2 Implementierung und Simulationsablauf

Wie eingangs erwähnt wurde, entwickelte Hüser (2017) ein rate-based-Modell zur Bestimmung der Trennleistung von Strukturpackungen bei der reaktiven CO_2 -Absorption. Der Programm-Code von diesem Modell wurde in die kommerzielle Software Aspen Custom Modeler® (ACM) implementiert. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde dieser ACM-Programm-Code weiterentwickelt.

ACM ist ein Flowsheet-orientiertes Simulationstool, dessen Benutzeroberfläche als Screenshot in **Abbildung 5.3** zu sehen ist. Zur Lösung des nichtlinearen Gleichungssystems des rate-based-Modells bietet ACM einen simultanen Gleichungslöser, der eine Unterteilung des Gleichungssystems in lineare und nichtlineare Blöcke durchführt. Außerdem weist ACM eine Schnittstelle

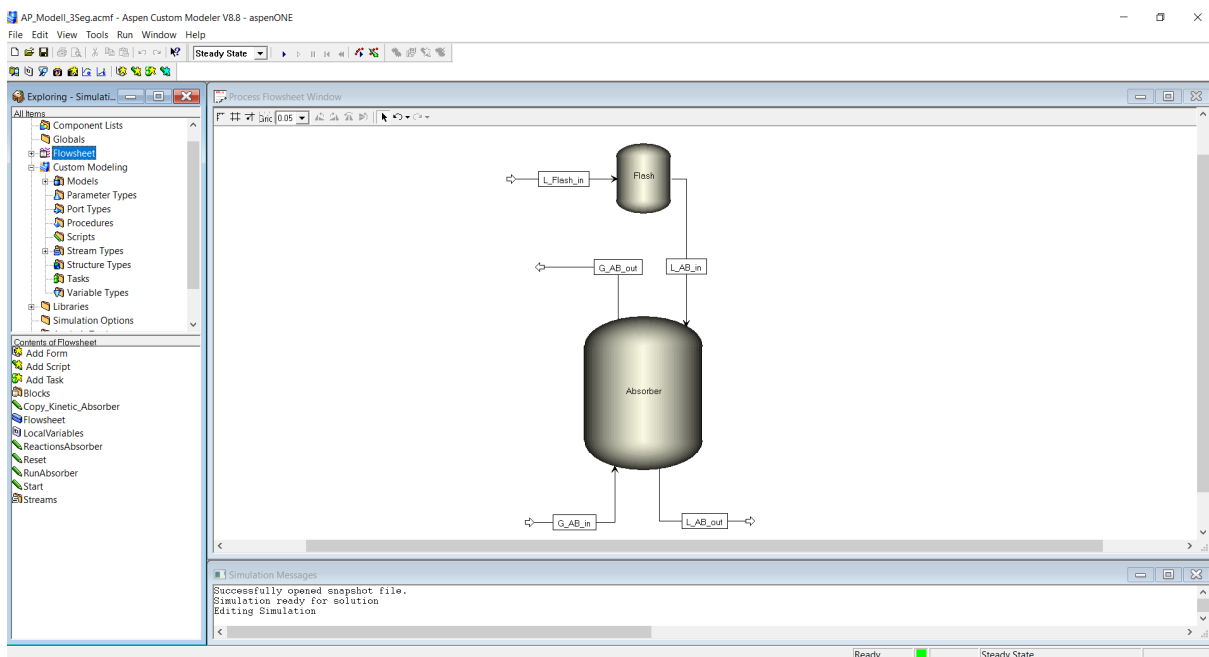


Abbildung 5.3: Screenshot der Benutzeroberfläche von Aspen Costum Modeler.

zu Aspen Properties® auf. Aspen Properties® stellt Stoffdaten entweder aus einer Datenbank oder verschiedenste Stoffdatenmodellen bereit, weshalb es nicht zwingend notwendig ist, Stoffdatenmodelle zu implementieren.

Das in **Abbildung 5.3** dargestellte, übergeordnete Flowsheet Modell besteht aus den Hauptmodellen Flash und Absorber. Das Modell Flash, welches keinen realen Apparat darstellt, ist notwendig, um aus einer vorgegebenen molekularen Zusammensetzung des flüssigen Eingangsstroms die ionische Zusammensetzung des Elektrolytsystems zu berechnen. Der austretende Flüssigkeitsstrom vom Flash entspricht dem in den Absorber eintretenden Flüssigkeitsstrom. Darüber hinaus ist das Modell Absorber mit dem vorgegebenen Eingangsstrom der Gasphase und den Austrittsströmen beider Phasen verknüpft.

Der hierarchische Aufbau des Absorber-Modells für die reaktive Absorption in Anstaupackungen ist in **Abbildung 5.4** schematisch dargestellt. Die Absorptionskolonne ist in verschiedene Stufen bzw. Segmente unterteilt. Die Reihenfolge der axialen Absorbersegmente (AN, SPR, AB) entspricht hierbei den typischerweise im Anstaubetrieb auftretenden Regimen (vgl. Bereich III in **Abbildung 5.2**). Jedes Segment greift auf die Untermodelle zu, welche die entsprechenden Bestandteile des rate-based-Ansatzes (vgl. **Abschnitt 2.3.3**) darstellen (Kernbereich der beiden Phasen, Filmbereiche und Phasengrenze). Zudem greift jedes Diskret des flüssigen Films sowie die Kernphasen der flüssigen Phase auf die jeweiligen Reaktionsuntermodelle zu. Die regimespezifischen Absorbersegmente greifen auf die jeweiligen Untermodelle Correlations zu, in denen die Berechnungen für Fluidodynamik- und Stofftransportparameter implementiert sind.

Das resultierende nichtlineare Gleichungssystem kann aufgrund der hohen Komplexität nicht direkt simultan gelöst werden. Daher ist in ACM eine Initialisierungsroutine implementiert, die schematisch in **Abbildung 5.5** illustriert ist. Die Initialisierungsroutine basiert auf einer sukzessiven Erhöhung der Modellkomplexität. Im ersten Schritt wird die Absorptionskolonne

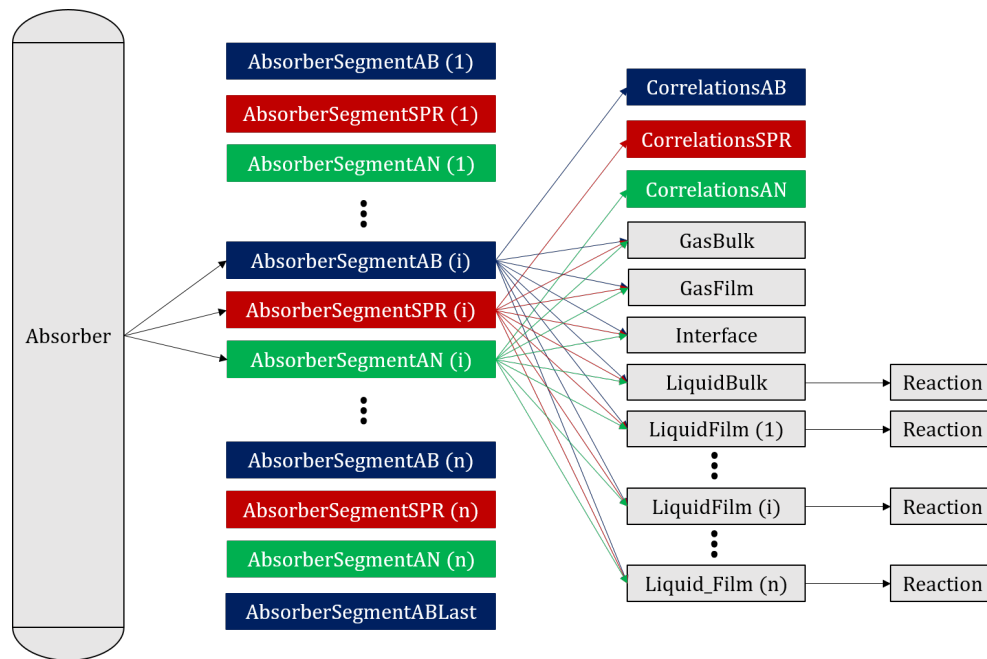


Abbildung 5.4: Modellaufbau für Absorptionskolonnen mit Anstaupackungen.

mit geeigneten Startwerten initialisiert, wobei weder Korrelationen, Stoffdaten noch Stoff- und Wärmetransport berechnet werden. Im nächsten Schritt kommt die Stoffdatenberechnung aus Aspen Properties® hinzu. Es folgt ein Hinzuschalten der Berechnungen aus dem Untermodell Correlations. Anschließend werden schrittweise komplexere Ansätze zur Bestimmung des Stofftransports simuliert. Danach werden zwei Detaillierungsgrade des Wärmetransports durchlaufen. Zuletzt werden die Reaktionen hinzugeschaltet. Da die Reaktionen zu starken Änderungen der Konzentrations- und Temperaturgradienten innerhalb der Kolonne führen, werden sie zunächst segment- und anschließend diskretweise im flüssigen Film hinzugeschaltet. Trotz dieser Routine kann es dazu kommen, dass in einem der Simulationsdurchläufe eine nicht-konvergente Lösung resultiert. In diesem Fall sollten Startwerte und Modellgleichungen geprüft werden. Zudem kann eine Erhöhung der Diskretanzahl im flüssigen Film Konvergenzprobleme beheben.

5.3 Bestimmung der Modellparameter

Wie bereits ausführlich in **Abschnitt 2.3.4** beschrieben wurde, ist für die Simulation von rate-based-Modellen die Berechnung von Modellparametern erforderlich. In **Kapitel 4** wurden Berechnungsmethoden für fast alle erforderlichen fluiddynamischen Modellparameter vorgestellt. Ein weiterer im eigentlichen Sinne fluiddynamischer Parameter, der aber zu den Stofftransportparametern zählt und zur Simulation benötigt wird, ist die Phasengrenzfläche. Zudem werden zur Beschreibung der Stofftransportkinetik die Stoffübergangskoeffizienten in beiden Phasen benötigt. Im vorliegenden Abschnitt werden Methoden zur Berechnung der zuvor genannten Stofftransportparameter von Anstaupackungen präsentiert.

Die Probleme, die bei der Bestimmung von Stofftransportparametern für Strukturpackungen

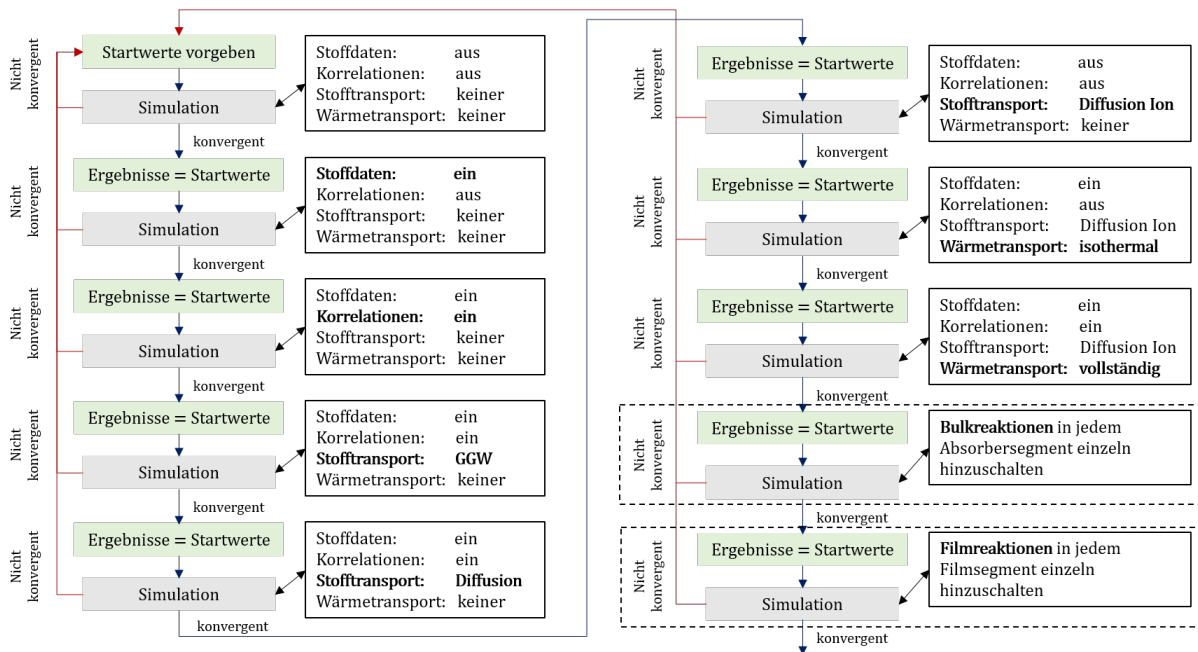


Abbildung 5.5: Prozedur zum Durchführen der Simulationen von Absorptionskolonnen in ACM.

resultieren, wurden ebenfalls in **Abschnitt 2.3.4** thematisiert. Im Vergleich zu Strukturpackungen ist für die Simulation von Kolonnen mit Anstaupackungen die Berechnung von deutlich mehr Modellparametern notwendig, da diese sowohl packungslagen- als auch regimeabhängig ermittelt werden müssen. Insbesondere lagen vor den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen keine Berechnungsmethoden zur Bestimmung der Modellparameter in Sprudelregimen vor.

In **Abbildung 5.6** werden beispielhaft mögliche Testsysteme dem dominierenden Widerstand zugeordnet und das angewendete Vorgehen zur Bestimmung der einzelnen Stofftransportmodellparameter schematisch dargestellt. Die Modellparameter können nicht durch klassische Stofftransportmessungen eines Stoffsystems ermittelt werden. Stattdessen ist eine Kombination verschiedener Experimente zwingend erforderlich. Mittels Tomographie (vgl. **Abschnitt 3.1.2**) kann die Phasengrenzfläche a_{int} unabhängig von der Stofftransportkinetik des Systems bestimmt werden. Somit können die Stofftransportmessungen in Packungskolonnen zur Bestimmung der Prozesskinetik genutzt werden, wobei wiederum eine Kombination von mindestens zwei Stoffsystemen notwendig ist, die sich in ihren dominierenden Widerständen unterscheiden. Bei den im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten experimentellen Untersuchungen wurde als Testsystem die reaktive Absorption von CO_2 aus Luft in wässrige MEA-Lösungen (vgl. **Abschnitt 3.2**) untersucht. Hier liegt zwar in Abhängigkeit der CO_2 - und MEA-Konzentrationen der dominierende Widerstand auf Seiten der Gasphase, jedoch ist der Einfluss des Widerstands in der flüssigen Phase in bestimmten Konzentrationsbereichen nicht zu vernachlässigen. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen beschränken sich auf die in **Abbildung 5.6** blau hervorgehobenen und durch die rot gestrichelte Linie umrandeten Bereiche. Daraus folgt, dass unter anderem der Stoffübergangskoeffizient der flüssigen Phase in Sprudel-

regimen $\beta_{L,SPR}$, die in Packungsstrukturen auftreten, nicht auf Basis der Experimente bestimmt werden kann. Für die Berechnung der Stofftransportparameter wurde eine Kombination von in der Literatur veröffentlichten Korrelationen und von im Rahmen des Projekts entwickelten Korrelationen verwendet. Die im Einzelnen verwendeten Berechnungsmethoden werden nachfolgend beschrieben.

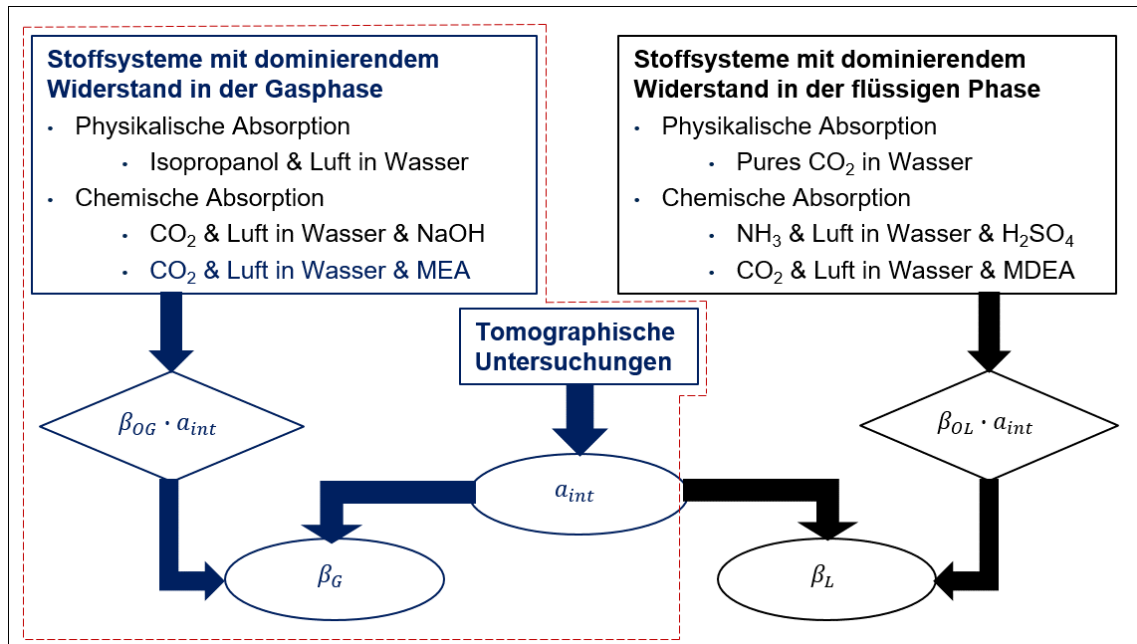


Abbildung 5.6: Vorgehen zur Bestimmung von Modellparametern.

5.3.1 Phasengrenzfläche

Für die Anwendung des rate-based-Modells für Anstaupackungen sind Korrelationen zur Berechnung der Phasengrenzfläche sowohl in Sprudelregimen als auch in rieselfilmartigen Strömungsmustern erforderlich. Für rieselfilmartige Strömungsmuster in strukturierten Packungen ist die Anzahl an in der Literatur verfügbaren Korrelationen zur Bestimmung der Phasengrenzfläche enorm groß. In einer Arbeit von Razi et al. (2012) wurden Ergebnisse verschiedener Korrelationen zur Bestimmung der Phasengrenzfläche verglichen. Es konnte am Beispiel der CO₂-Absorption mit wässrigen MEA-Lösungen gezeigt werden, dass die verschiedenen Berechnungen für die Phasengrenzfläche einen sehr großen Wertebereich aufspannen. Da es viele verschiedene Korrelationen gibt, die sich zudem in ihren Ergebnissen deutlich voneinander unterscheiden, wird die Auswahl einer geeigneten Korrelation zur Bestimmung der Phasengrenzfläche für rieselfilmartige Strömungsmuster in strukturierten Packungen erschwert. Eine häufig verwendete Phasengrenzflächenkorrelation wurde von Tsai et al. (2011) entwickelt. Hierbei resultieren Werte für die Phasengrenzfläche im Verhältnis zur spezifischen Packungsoberfläche bei mittleren Flüssigkeitsbelastungen von etwa 0.8 bis über 1. Neuere tomographische Untersuchungen von strukturierten Packungen zeigen jedoch, dass selbst bei hohen Flüssigkeitsbelastungen eine nicht annähernd vollständige Benetzung der Packungsoberfläche

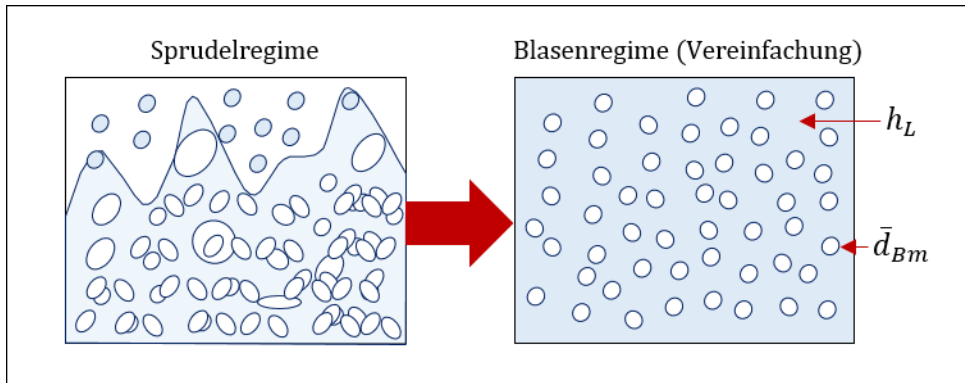


Abbildung 5.7: Geometrische Vereinfachung von Sprudelregimen anhand eines Blasenregimes.

für wässrige Systeme vorliegt (Schug und Arlt, 2016). Folglich wird angenommen, dass bei wässrigen Systemen Korrelationen verwendet werden sollten, die geringe bzw. moderate Werte für die Phasengrenzfläche von Filmströmungen in strukturierten Packungen vorhersagen.

Eine eher moderate Vorhersage, die nicht auf packungsspezifische Koeffizienten angewiesen ist und darüber hinaus noch Packungen mit großer spezifischer Oberfläche berücksichtigen kann, basiert auf dem Modell nach Olujić et al. (2007). Die Phasengrenzfläche wird basierend auf einer von Onda et al. (1968) entwickelten Korrelation in Abhängigkeit der Reynolds-, Weber- und Froude-Zahl der flüssigen Phase berechnet:

$$a_{int,Film} = a_{geo} \left[1 - \exp \left(-1,45 \left(\frac{0,075}{\sigma_L} \right)^{0.75} Re_L^{0.1} Fr_L^{-0.05} We_L^{0.2} \right) \right] \quad (5.2)$$

Zur Entwicklung einer Korrelation für die Phasengrenzfläche im Sprudelregime wurden 38 Datenpunkte der Tomographiemessungen herangezogen. Obwohl Sprudelregime in Packungen aufgrund des intensiven Impulsaustausches der fluiden Phasen entstehen, zeigen die ermittelten Phasengrenzflächen keine signifikante Abhängigkeit von deren Belastungen (vgl. **Abbildung 3.6**). Dagegen hat die geometrische Oberfläche der Packungslagen einen großen Einfluss auf die Phasengrenzfläche. Zur Entwicklung eines Ansatzes zur Beschreibung der Phasengrenzfläche wird anstelle des geometrisch sehr komplexen Konstrukts der Sprudelschicht ein Blasenregime betrachtet (siehe **Abbildung 5.7**). Das Blasenregime kann im Gegensatz zum Sprudelregime durch einfache geometrische Kenngrößen, wie den Gas-Holdup und einen repräsentativen mittleren Blasendurchmesser, charakterisiert werden. Basierend auf dieser geometrischen Vereinfachung kann die Phasengrenzfläche eines derartigen dispersen Zweiphasensystems mit Hilfe der nachfolgenden Gleichung berechnet werden (Blaß, 1988):

$$a_{int,SPR} = \frac{6 \cdot h_G}{\bar{d}_{Bm}} = \frac{6(1 - h_{L,SPR})}{\bar{d}_{Bm}} \quad (5.3)$$

Zur Berechnung des Holdups in Sprudelschichten kann Gleichung 4.19 verwendet werden. Der in Gleichung 5.3 enthaltenen repräsentativen mittleren Blasendurchmessers wird in Anlehnung zum Ansatz nach Bals (2002) in Abhängigkeit der Froude-, Weber- und Reynolds-Zahl sowie dem hydraulischen Durchmesser der Packungskanäle korreliert:

$$\bar{d}_{Bm} = 0.41 \cdot d_h \left(\frac{Fr_{L,P} \cdot Re_L}{We_L^2} \right)^{0.15} \quad (5.4)$$

In **Abbildung 5.8** ist ein Vergleich der aus den tomgraphischen Untersuchungen ermittelten Werte der Phasengrenzfläche in Sprudelregimen mit den entsprechenden berechneten Werten zu sehen. Die Abweichungen zwischen den berechneten Phasengrenzflächenwerten und den experimentell ermittelten Werten liegen meist unterhalb von $\pm 10\%$, wobei der MAE 4.1 % beträgt.

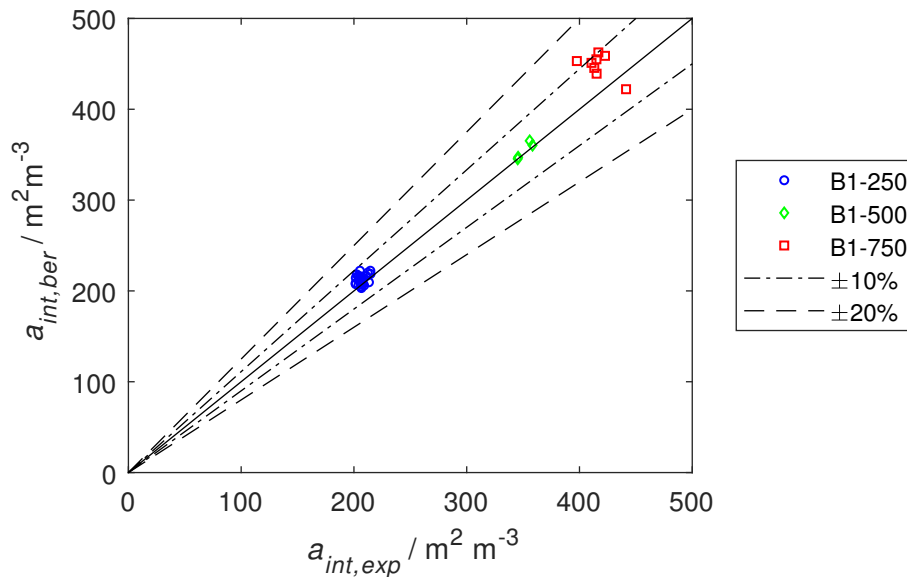


Abbildung 5.8: Paritätsdiagramm der mittels Tomographie ermittelten und berechneten Werte der Phasengrenzfläche in Sprudelregimen.

5.3.2 Stoffübergangskoeffizienten

Zur Beschreibung der Stofftransportkinetik in Anstaupackungen ist die Berechnung der Stoffübergangskoeffizienten von beiden Phasen sowohl in reiselfimartigen Strömungsmustern als auch in Sprudelregimen notwendig. Wie bereits in **Abschnitt 5.3** erwähnt, können die Stoffübergangskoeffizienten der flüssigen Phase nicht direkt auf der Basis der durchgeführten experimentellen Untersuchungen ausgewertet werden. Daher wurden geeignete Korrelationen aus der Literatur gewählt und in das rate-based-Modell implementiert. Die Berechnung des flüssigkeitsseitigen Stoffübergangskoeffizienten von Rieselfilmströmungen erfolgt mit der von Olujić et al. (2004) vorgeschlagenen Korrelation:

$$\beta_{L,Film} = 2 \sqrt{\frac{\bar{D}_{L,eff} \cdot u_{L,eff}}{0.9\pi \cdot d_{h,G}}} \quad (5.5)$$

wobei sich der für das Gas freie hydraulische Durchmesser $d_{h,G}$ aus geometrischen Parametern

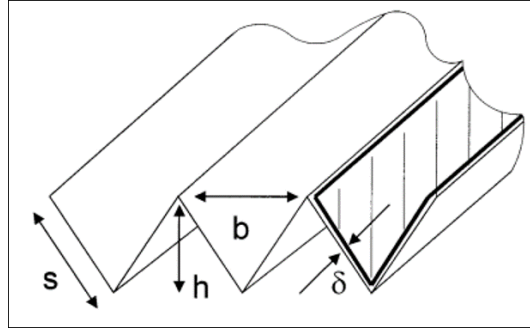


Abbildung 5.9: Schematische Darstellung der Dreieckskanäle von Strukturpackungen mit Angabe von geometrischen Parametern nach Olujić et al. (1999).

des Dreieckkanals berechnen (vgl. **Abbildung 5.9**) lässt:

$$d_{h,G} = \frac{\frac{(bh - \delta_L s)^2}{bh}}{\sqrt{\left(\frac{bh - \delta_L s}{2h}\right)^2 + \left(\frac{bh - \delta_L s}{b}\right)^2} + \frac{bh - \delta_L s}{2h}} \quad (5.6)$$

Die mittlere Filmdicke der flüssigen Phase δ_L kann mit Hilfe des bekannten Zusammenhangs nach Nußelt bestimmt werden:

$$\delta_L = \left(\frac{3\eta_L u_{L,eff}}{\rho_L g a_{geo} \sin(\alpha_{\beta,L})} \right)^{1/3} \quad (5.7)$$

Der effektive Fließwinkel der Flüssigkeit $\alpha_{\beta,L}$ kann folgendermaßen ermittelt werden:

$$\alpha_{\beta,L} = \arctan \left[\frac{\cos(90 - \alpha_P)}{\sin(90 - \alpha_P) \cdot \cos \left[\arctan \left(\frac{b}{2h} \right) \right]} \right] \quad (5.8)$$

Die effektive Geschwindigkeit der flüssigen Phase $u_{L,eff}$ ist hierbei wie folgt definiert:

$$u_{L,eff} = \frac{u_L}{\varepsilon \cdot h_{L,Film} \cdot \sin(\alpha_{\beta,L})} \quad (5.9)$$

Yildirim und Kenig (2015) schlugen für die Berechnung des flüssigkeitsseitigen Stoffübergangskoeffizienten im Sprudelregime von Anstaupackungen vor, die Korrelation nach Zuiderweg (1982) zu verwenden, die ursprünglich für Siebböden entwickelt wurde. Diese Korrelation wird im Rahmen der vorliegenden Arbeit ebenfalls verwendet:

$$\beta_{L,SPR} = 0.024 \cdot \bar{D}_{L,eff}^{0.25} \quad (5.10)$$

Zur Bestimmung der regimeabhängigen gaseitigen Stoffübergangskoeffizienten wurden die experimentellen Untersuchungen zur CO₂-Absorption (**Abschnitt 3.2**) herangezogen. Da bei dem komplexen Reaktionssystem von CO₂ und MEA schnelle reversible Reaktionen bestimmend sind, kann der gaseitige Stoffübergangskoeffizient nicht mit dem HTU-NTU

Konzept und der Verwendung von Enhancement-Faktoren basierend auf gemessenen Ein- und Austrittskonzentrationen ausgewertet werden. Einerseits ist bei diesem Reaktionssystem die Berechnung des Enhancement-Faktors mit großer Unsicherheit verbunden. Andererseits können mit dem HTU-NTU-Modell nur pauschal, entlang der gesamten Kolonne gemittelte Werte der Stoffübergangskoeffizienten bestimmt werden. Somit ist auf diese Weise die für die Beschreibung der Trennleistung von Anstaupackungen notwendige regimeabhängige Ermittlung der Stoffübergangskoeffizienten nicht möglich.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden daher zur Bestimmung der gasseitigen Stoffübergangskoeffizienten Sensitivitätsstudien mit dem in diesem Kapitel vorgestellten rate-based-Modell durchgeführt. Hierbei wurden für die Bedingungen der in **Tabelle 5.1** aufgezeigten Versuche Simulationen unternommen, bei denen ausschließlich die gasseitigen Stoffübergangskoeffizienten variiert wurden, bis eine Übereinstimmung zwischen simulierten und gemessenen Konzentrationen vorlag. Der Vorteil gegenüber einer pauschalen Auswertung mit dem HTU-NTU-Modell und Enhancement-Faktoren besteht darin, dass die Kinetik der chemischen Reaktionen anhand der in **Abschnitt 2.3.3** dargestellten Gleichungen und Koeffizienten berücksichtigt wird. Die aus den Sensitivitätsstudien ermittelten Stoffübergangskoeffizienten dienten als Grundlage zur Entwicklung entsprechender Korrelationen. Für die Korrelationen des gasseitigen Stoffübergangskoeffizienten wurde jeweils als Ansatz für beide Regime der dimensionslose Zusammenhang von Sherwood-, Reynolds- und Schmidt-Zahl verwendet:

$$Sh_G = k_4 \cdot Re_G^{k_5} \cdot Sc_G^{k_6} \quad (5.11)$$

Mit:

$$Sh_G = \frac{\beta_G \cdot d_h}{\bar{D}_{G,eff}} \quad (5.12)$$

$$Re_G = \frac{2 \cdot u_{G,eff} \cdot d_h \cdot \rho_G}{3 \cdot \eta_G \cdot \varepsilon} \quad (5.13)$$

$$Sc_G = \frac{\eta_G}{\rho_G \cdot \bar{D}_{G,eff}} \quad (5.14)$$

Für die Bestimmung der Koeffizienten in Gleichung 5.11 wurden die in **Tabelle 5.1** aufgeführten Parameter verwendet. Im ersten Schritt wurde der gasseitige Stoffübergangskoeffizient in rieselfilmartigen Strömungsmustern mithilfe von experimentellen Daten aus Messungen mit konventionellen Packungen von Hüser (2017) und Messungen mit Anstaupackungen (eigene Experimente, vgl. **Abschnitt 3.2**) ausgewertet, die dem Bereich I (vgl. **Abbildung 5.2**) zugeordnet werden konnten. Für die Auswahl der zuvor genannten Messungen wurde darauf geachtet, dass kein Einfluss von Sprudelregimen vorhanden war. Aus dieser Auswertung folgte für die Berechnung des gasseitigen Stoffübergangskoeffizienten in rieselfilmartigen Strömungsmustern:

$$Sh_{G,Film} = \frac{1}{2} \sqrt{Re_G \cdot Sc_G} \quad (5.15)$$

Tabelle 5.1: Verwendete Versuche und Parameter für die Anpassung der Koeffizienten in Gleichung 5.11.

Versuch/ Packung	Bereich/ Regime	h_L m^3m^{-3}	ρ_G kg m^{-3}	$\bar{D}_{G,eff}$ cm^2s^{-1}	$\eta_G \cdot 10^{-5}$ Pa s	u_G m s^{-1}	β_G m s^{-1}
Strukturpackungen							
A8/B1-250	Film	0.048	1.14	0.1999	1.76	1.28	0.020
A9/B1-250	Film	0.048	1.17	0.1931	1.76	1.36	0.020
A10/B1-250	Film	0.048	1.09	0.2289	1.80	1.32	0.020
A14/B1-250	Film	0.076	1.09	0.2297	1.80	1.33	0.021
Anstaupackungen							
C40.1/B1-250	I/Film	0.038	1.04	0.2614	1.85	0.77	0.016
C40.1/B1-750	I/Film	0.050	1.04	0.2614	1.85	0.77	0.029
C49.1/B1-250	I/Film	0.043	1.04	0.2635	1.84	0.78	0.016
C49.1/B1-750	I/Film	0.061	1.04	0.2635	1.84	0.78	0.026
C62.1/B1-250	I/Film	0.038	1.04	0.2580	1.84	0.74	0.015
C62.1/B1-1000	I/Film	0.050	1.04	0.2580	1.84	0.74	0.028
C66.1/B1-250	I/Film	0.082	1.07	0.2446	1.82	0.75	0.016
C66.1/B1-500	I/Film	0.010	1.07	0.2446	1.82	0.75	0.027
C51.1/B1-250	III/Film	0.063	1.05	0.2525	1.84	1.37	0.027
C51.1/B1-250	III/SPR	0.414	1.05	0.2525	1.84	1.37	0.065
C51.1/B1-750	III/SPR	0.414	1.05	0.2525	1.84	1.37	0.065
C46.1/B1-250	II/Film	0.064	0.98	0.2778	1.85	1.40	0.029
C46.1/B1-750	II/Film	0.084	0.98	0.2778	1.85	1.40	0.044
C46.1/B1-750	II/SPR	0.395	0.98	0.2778	1.85	1.40	0.065
C45.1/B1-250	III/Film	0.063	1.07	0.2427	1.83	1.45	0.027
C45.1/B1-250	III/SPR	0.401	1.07	0.2427	1.83	1.45	0.065
C45.1/B1-750	III/SPR	0.401	1.07	0.2427	1.83	1.45	0.065
C45.2/B1-250	III/Film	0.063	1.07	0.2391	1.83	1.41	0.026
C45.2/B1-250	III/SPR	0.401	1.07	0.2391	1.83	1.41	0.065
C45.2/B1-750	III/SPR	0.401	1.07	0.2391	1.83	1.41	0.065
C45.3/B1-250	II/Film	0.063	1.06	0.2451	1.83	1.34	0.026
C45.3/B1-750	II/Film	0.083	1.06	0.2451	1.83	1.34	0.039
C45.3/B1-750	II/SPR	0.400	1.06	0.2451	1.83	1.34	0.065
C42.1/B1-250	III/Film	0.081	1.05	0.2449	1.82	1.39	0.026
C42.1/B1-250	III/SPR	0.534	1.05	0.2449	1.82	1.39	0.130
C42.1/B1-750	III/SPR	0.535	1.05	0.2449	1.82	1.39	0.130

Anschließend konnte der gaseitige Stoffübergangskoeffizient in Sprudelregimen als einzige verbleibende Unbekannte mit Messdaten von Anstaupackungen der Bereiche II und III bestimmt werden, woraus folgende Korrelation resultierte:

$$Sh_{G,SPR} = \frac{2}{3} \sqrt{Re_G \cdot Sc_G} \quad (5.16)$$

Die aus den Simulationen erhaltenen Sherwood-Zahlen (Punkte) und die mit den Gleichungen 5.15 und 5.16 berechneten Sherwood-Zahlen (Linien) sind in **Abbildung 5.10** als Funktion des Produkts von Reynolds- und Schmidt-Zahl aufgetragen. Es wird deutlich, dass die resultierenden Sherwood-Zahlen der Gasphase im Sprudelregime höher als die in rieselfilmartigen Strömungsmuster sind. Die aus den Simulationen ausgewerteten Sherwood-Zahlen werden von den mit den Korrelationen berechneten Werten qualitativ vernünftig wiedergegeben, wobei quantitativ insbesondere für die Berechnungen des Stoffübergangskoeffizienten im Sprudelregime Abweichungen auftreten. Der MAE aller Werte beträgt 19.1 %.

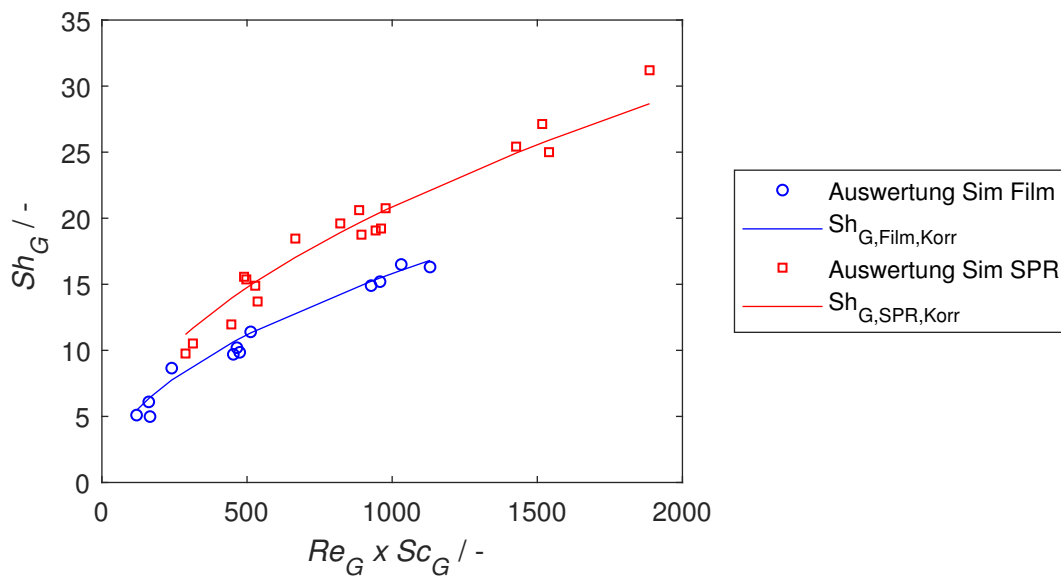


Abbildung 5.10: Sherwood-Zahl der Gasphase in Abhängigkeit des Produkts von Reynolds- und Schmidt-Zahl.

5.4 Studie zur Gitterunabhängigkeit

Die Simulationsergebnisse des im vorliegenden Kapitel vorgestellten rate-based-Modells zur Bestimmung der Trennleistung in Anstaupackungen hängen von einem axialen und einem radialen Diskretisierungsparameter ab. Um die Anzahl der Gitterpunkte zu identifizieren, aus der numerisch-unabhängige Simulationsergebnisse resultieren, wurde eine Studie zur Gitterunabhängigkeit durchgeführt. In axialer Richtung wurde der Einfluss der Stufenanzahl auf die CO_2 -Austrittskonzentration in der Gasphase untersucht. Zudem wurde die Abhängigkeit der CO_2 -Austrittskonzentration in der Gasphase von der Anzahl der Gitterpunkte im Film der

flüssigen Phase ermittelt.

Aufgrund der Reaktionen im Film der flüssigen Phase sind die Konzentrationsprofile entlang der Filmkoordinate nicht linear und müssen diskretisiert werden. Die Diskretisierung kann einerseits äquidistant erfolgen, wobei die Länge der Diskrete $\delta_{L,j}$ von der gesamten Filmlänge δ_{LF} und der Anzahl der Gitterstellen $n_{L,Seg}$ abhängt:

$$\delta_{L,j} = \frac{\delta_{LF}}{n_{L,Seg}} \quad (5.17)$$

Um die notwendige Anzahl der Gitterpunkte im Film der flüssigen Phase zu minimieren und damit den Rechenaufwand zu verringern, kann die Diskretisierung auch nicht-äquidistant vorgenommen werden. Bei dieser Methode wird die jeweilige Länge von einem Diskret folgendermaßen bestimmt (von Harbou et al., 2014):

$$\delta_{L,j} = \delta_{LF} \left[\left(\frac{j}{n_{LF}} \right)^{1/m} - \left(\frac{j-1}{n_{LF}} \right)^{1/m} \right] \quad (5.18)$$

Durch Variation des Parameters m kann die Stauchung der Diskrete beeinflusst werden, wobei mit steigendem Abstand zur Phasengrenzfläche die Länge der Diskrete für positive Werte von m , die größer als eins sind, zunimmt. Für m gleich eins lässt sich Gleichung 5.18 in Gleichung 5.17 überführen.

Tabelle 5.2: Durchgeführte Simulationsstudien zur Bestimmung der Anzahl der Gitterpunkte im Film der flüssigen Phase.

Studien Nr.	$y_{CO_2, ein}$ mol mol ⁻¹	F_G Pa ^{0.5}	$x_{MEA, ein}$ mol mol ⁻¹	$x_{CO_2, ein}$ mol mol ⁻¹	u_L m ³ m ⁻³	m -
1	0.038	1.31	0.119	0.034	42.3	1;2;5;10;20
2	0.038	1.31	0.060	0.017	38.1	1;5;10
3	0.038	1.81	0.119	0.034	11.2	1;5;10;15

Für die Bestimmung der Parameter m und $n_{L,Seg}$, die zu einer gitterunabhängigen Lösung führen, wurden die in **Tabelle 5.2** aufgeführten Simulationsstudien durchgeführt. Bei diesen Simulationsstudien wurde die Packungskombination B1-750/B1-250M untersucht, wobei drei Abscheidelagen und zwei Anstaulagen betrachtet wurden. Bei den Studien wurden die Einflüsse der Konzentrationen in der flüssigen Phase, die Belastungen beider Phasen und des Stauchungsparameters m auf die für eine numerisch-unabhängige erforderliche Anzahl der Gitterpunkte im Film der flüssigen Phase untersucht. Zur Bewertung der Gitterunabhängigkeit wurde folgendes Kriterium verwendet:

$$\Delta_{y_{CO_2}} = |y_{CO_2, n_j} - y_{CO_2, n_{j-1}}| < 1 \cdot 10^{-5} \text{ mol mol}^{-1} \quad (5.19)$$

In **Abbildung 5.11** ist die resultierende CO₂-Austrittskonzentration der Gasphase als Funktion der Anzahl der Filmsegmente für verschiedene Stauchungsparameter m zu sehen. Es zeigt sich, dass unabhängig vom Parameter m alle Kurven konvergieren und sich asymptotisch ei-

ner gewissen Austrittskonzentration annähern, die für alle Kurven für $n_{L,Seg} \rightarrow \infty$ gleich sein sollte. Es scheint jedoch eine geringfügige Diskrepanz zwischen diesen Austrittskonzentrationen vorhanden zu sein, die als akzeptabel eingestuft wird. Außerdem wird deutlich, dass bei einem äquidistanten Abstand der Gitterpunkte ($m = 1$) gegenüber einem nicht-äquidistanten Abstand deutlich mehr Segmente im Film der flüssigen Phase für eine gitterunabhängige Lösung notwendig sind. Für $m = 2; \dots; 10$ ist die Tendenz zu erkennen, dass mit steigendem Parameter m die CO_2 -Konzentration höher ist. Diese Tendenz ist für einen Wert des Parameters m von 20 nicht mehr zu sehen. Um diese Besonderheit zu verstehen, müssen die Konzentrationsprofile im Film der flüssigen Phase betrachtet werden.

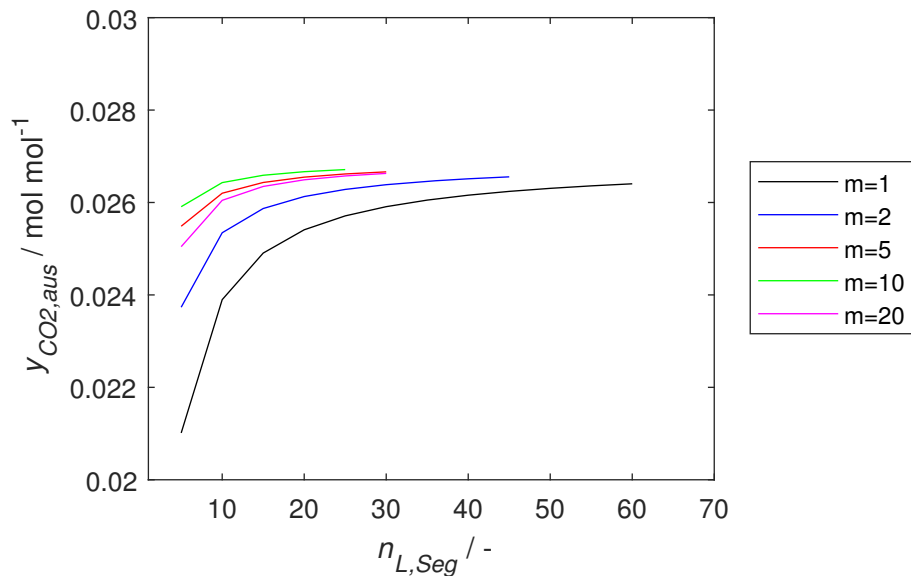


Abbildung 5.11: CO_2 -Kolonnenaustrittskonzentration der Gasphase in Abhängigkeit der Anzahl der Filmsegmente im Film der flüssigen Phase für verschiedene Stauungsparameter m (vgl. Studie 1, **Tabelle 5.2**).

Abbildung 5.12 illustriert die CO_2 -Konzentration im flüssigen Film für verschiedene Diskretisierungsparameter. Die Profile lassen sich zur qualitativen Erörterung in zwei Bereiche einteilen. Im ersten Bereich, welcher an die Phasengrenzfläche anschließt, sind die Konzentrationsänderungen in den Profilen relativ groß. Diese starken Änderungen sind auf die Reaktionen zurückzuführen. Mit abnehmender CO_2 -Konzentration werden die Reaktionsraten kleiner und folglich sind die Änderungen in den Profilen im zweiten Bereich eher gering. Um eine gitterunabhängige Lösung zu erhalten, ist es wesentlich, dass in dem Bereich, in dem die Reaktionen dominant sind, genügend Segmente für eine vernünftige Annäherung des Profils verwendet werden. Zudem sollte das zum Bulk anknüpfende Segment nicht größer als die Länge des zweiten Bereichs sein. Letzteres ist für das Profil für $m = 10$ und $n_{L,Seg} = 15$ nicht gegeben. Der Beginn des letzten Segments ist bei der schwarzen Linien durch eine Unstetigkeit bei etwa $1 \cdot 10^{-6}$ m gekennzeichnet. Folglich kann mit diesen Diskretisierungsparametern ($m = 10$ und $n_{L,Seg} = 15$) der Bereich, in dem die Reaktionen dominant sind, nicht ausreichend aufgelöst werden. Für die Erhöhung von m auf 20 (vgl. **Abbildung 5.11**) verschiebt sich die Unstetigkeit hin zu einem kleineren Abstand von der Phasengrenzfläche, wodurch die Profilannäherung verschlechtert

wird.

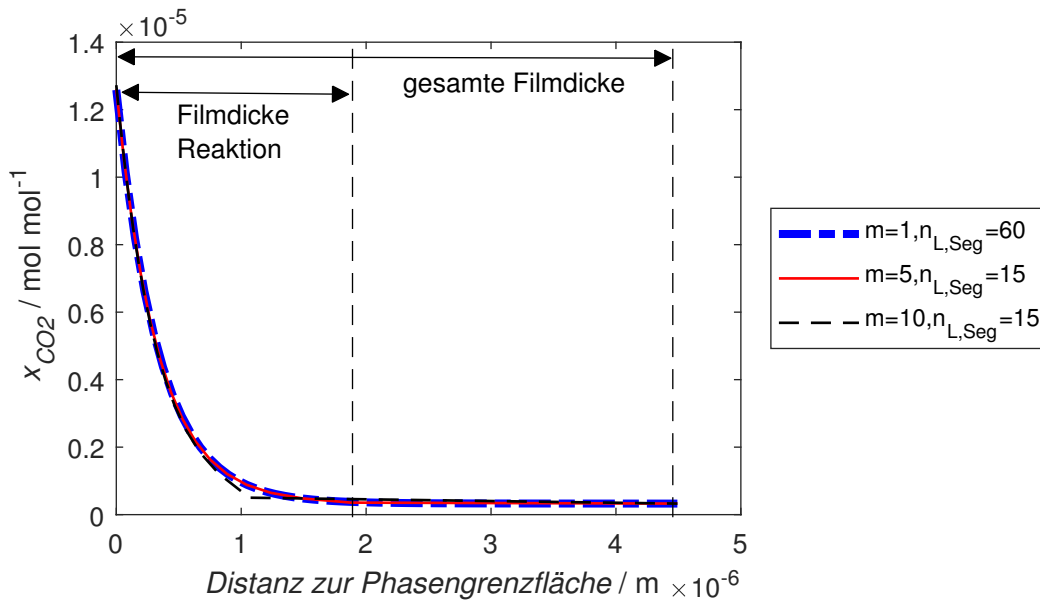


Abbildung 5.12: CO₂-Konzentration im flüssigen Film als Funktion des Abstands zur Phasengrenzfläche für verschiedene Diskretisierungsparameter (vgl. Studie 1, **Tabelle 5.2**).

Die Ergebnisse der beiden anderen Simulationsstudien in **Tabelle 5.2** sind im **Anhang** zu finden. Bei den Studien zwei und drei ist die erforderliche Anzahl an Segmenten im Film der flüssigen Phase geringer als die in Studie eins (siehe **Abbildungen A.1** und **A.2**). Insgesamt lässt sich festhalten, dass die Gitterunabhängigkeit bei jeder einzelnen Simulation geprüft werden sollte und ein enormer Rechenaufwand durch die Verwendung von nicht-äquidistanten Gitterabständen eingespart werden kann. Zur Überprüfung sollten die Konzentrationsprofile im flüssigen Film betrachtet werden. Der Wert des Parameters m sollte im Bereich zwischen 5 und 15 in Abhängigkeit der Eintrittsbedingungen der beiden Phasen gewählt werden. An dieser Stelle sei noch angemerkt, dass mit steigenden Werten von m weniger Konvergenzprobleme resultieren. Die für eine gitterunabhängige Lösung notwendige Segmentanzahl $n_{L,Seg}$ muss in Abhängigkeit der Eintrittsbedingungen beider Phasen und des Parameters m gewählt werden. Hierbei hat sich eine Anzahl zwischen 12 und 25 Segmenten als zielführend erwiesen.

Zur Überprüfung der Gitterunabhängigkeit in axialer Richtung wurde der Einfluss der Anzahl der axialen Segmente auf die Austrittskonzentration untersucht. In **Abbildung 5.13** sind simulierte CO₂-Konzentrationsprofile der Gasphase entlang der Kolonnenhöhe zu sehen. Bei den Simulationen wurden die Versuchsbedingungen entsprechend des Versuchs C49.1 (vgl. **Tabelle A.5** im **Anhang**) verwendet. Bei Anstaupackungen hängt die kleinstmögliche Anzahl an axialen Stufen mit der Anzahl der fluiddynamischen Regime zusammen. Im betrachteten Fall war die Kolonne mit 12 Anstaupackungselementen und einer zusätzlichen Abscheidelage bestückt. Somit ergeben sich (12 Anstaupackungen \times 3 Regime + 1 Abscheidelage) 37 Stufensegmente für diese Konfiguration. Die nächst feinere Segmentierung ergibt sich dadurch, dass das größte Segment (Filmströmung in der Abscheidelage) in zwei Segmente geteilt wird, wodurch 50 axiale Stufensegmente resultieren. Es zeigt sich, dass die Profile, die für die beiden Segmentierungen

ermittelt wurden, fast vollständig deckungsgleich sind. Die relative Abweichung zwischen den CO_2 -Austrittskonzentrationen von beiden Simulationen beträgt 0.1 %. Da der Rechenaufwand der feineren Segmentierung deutlich erhöht ist, wurde bei den nachfolgenden Simulationen ein Stufensegment pro auftretendem fluiddynamischen Regime verwendet (vgl. **Abbildung 5.2**).

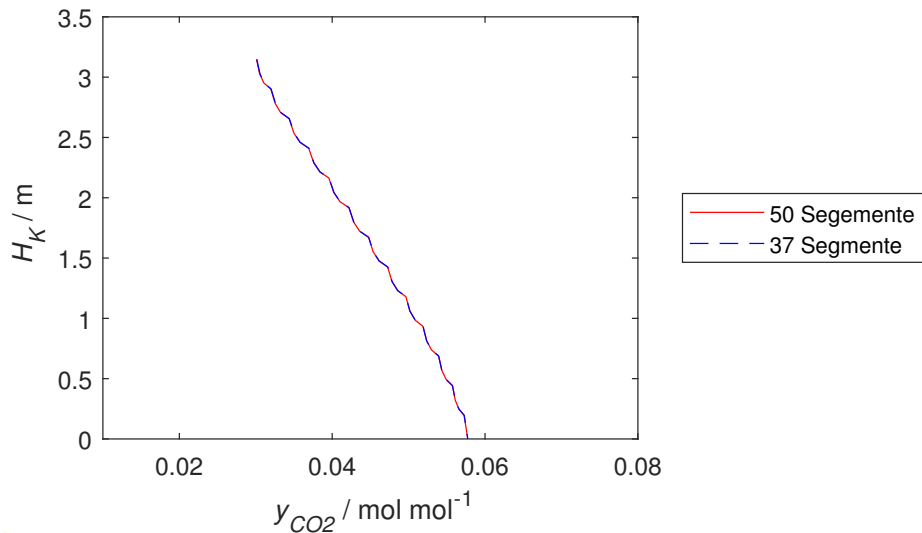


Abbildung 5.13: Einfluss der Anzahl an axialen Diskreten auf die CO_2 -Konzentration der Gasphase in Abhängigkeit der Kolonnenhöhe.

5.5 Verifizierung des Modells anhand experimenteller Daten

Die Verifizierung des rate-based-Modells zur Beschreibung des Stofftransports bei der reaktiven Absorption mit Anstaupackungen erfolgt durch einen Vergleich von Simulationsergebnissen mit experimentellen Daten (siehe **Tabelle A.5** im **Anhang**). In **Abbildungen 5.14** ist ein solcher Vergleich für die CO_2 -Gasphasenkonzentration (a), die Gasphasentemperatur (b) und die CO_2 -Beladung der flüssigen Phase (c) gezeigt. Bei den drei für die Simulationen ausgewählten Versuchen wurde als Abscheidelage die B1-250 verwendet. Als Anstaulagen kamen die B1-500, die B1-750 und B1-1000 zum Einsatz. Bei den Versuchen wurde jeweils der Anstaubetrieb verwirklicht. **Abbildungen 5.14** (a) kann entnommen werden, dass der Wert der CO_2 -Eintrittskonzentrationen zwischen 0.05 und 0.057 mol mol⁻¹ betrug. Zudem wird deutlich, dass mit zunehmender spezifischer Oberfläche der Anstaulage die Austrittskonzentration des CO_2 in der Gasphase sinkt und somit die Stofftransporteffizienz erwartungsgemäß erhöht wird. Die Austrittskonzentrationen aus den Messungen werden von den Simulationsergebnissen unterschätzt, wobei die Tendenz qualitativ wiedergegeben werden kann. Die simulierten Konzentrationsprofile weisen eine stufenförmige Änderung der Steigung auf, die auf die unterschiedlichen Trennwirkungen der einzelnen Regime zurückgeführt werden kann.

Der Wert der CO_2 -Eingangsbeladung in der flüssigen Phase war bei dem Versuch C61.2 geringer als die entsprechenden Werte der beiden anderen Versuche (vgl. **Abbildungen 5.14** (c)). Da die Differenz zwischen Eintrittsbeladung und maximaler Beladungskapazität für den Versuch C61.2

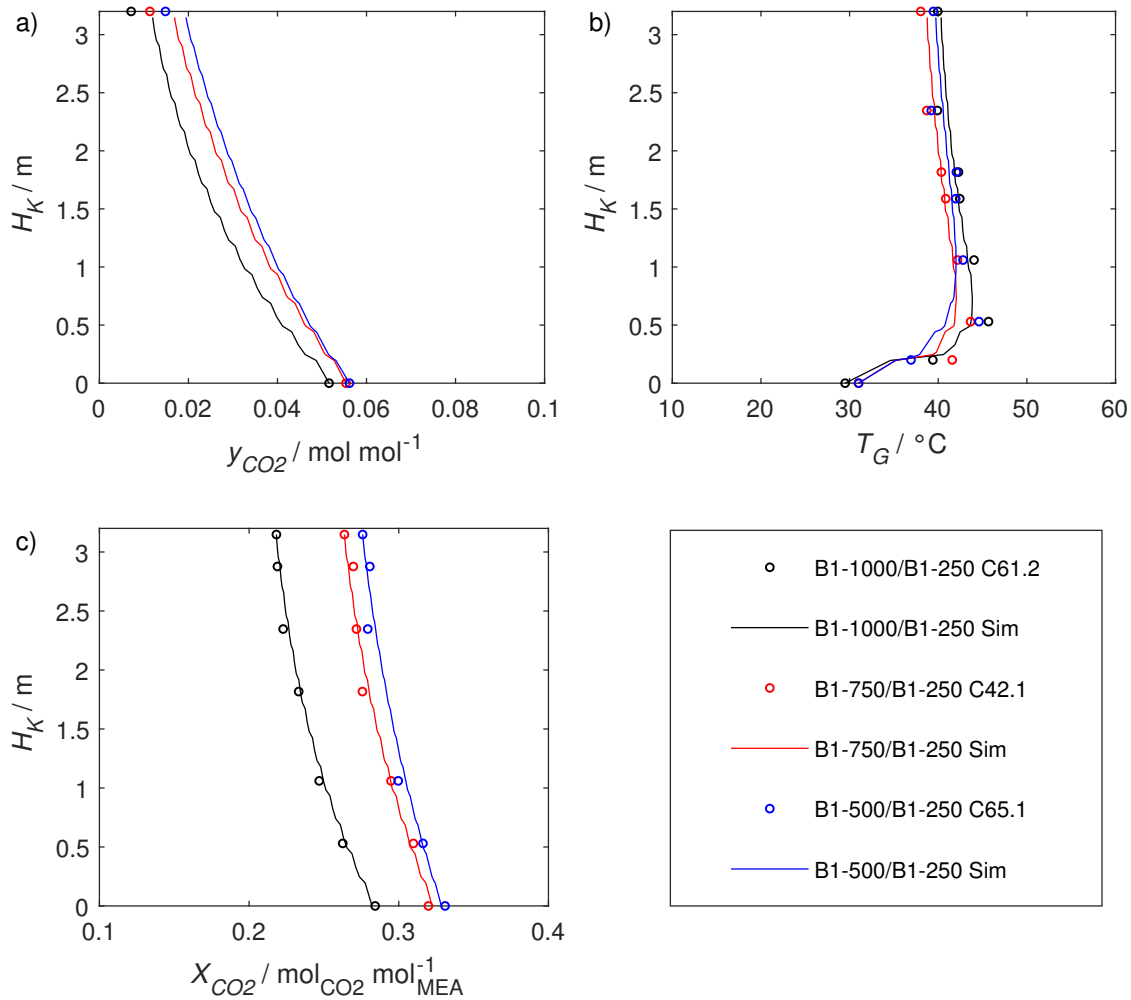


Abbildung 5.14: Experimentelle Daten und Simulationsergebnisse der CO₂-Konzentration in der Gasphase (a), der Gasphasentemperatur (b) und der CO₂-Beladung in der flüssigen Phase (c).

größer ist, ist das Potenzial für die CO₂-Absorption höher. Folglich ist eine größere Änderung der CO₂-Beladung in der flüssigen Phase zwischen Eintritt und Austritt für den Versuch C61.2 zu sehen. Diese größere Änderung führt zu einem höheren Temperaturanstieg in der Kolonne (vgl. **Abbildungen 5.14** (b)), wobei bei den Profilen der Temperaturbauch im unteren Bereich der Kolonne auftritt. Die gemessenen Temperatur- und Beladungsprofile werden von den simulierten Profilen sowohl qualitativ als quantitativ gut reproduziert. Die Diskrepanz zwischen den guten Ergebnissen bei der Beladung und der Temperatur gegenüber den mäßigen Ergebnissen bei der CO₂-Gasphasenkonzentration lässt sich durch die sehr geringen CO₂-Konzentrationen in der Gasphase erklären, bei denen sich bereits kleine Messfehler in der Bilanz stark auswirken. Die Güte des im vorliegenden Kapitel beschriebenen Modells zeigt sich für die in **Tabelle A.5** (siehe **Anhang**) aufgeführten Messungen anhand der in **Abbildungen 5.15** dargestellten Paritätsdiagramme. Für die gemessenen und simulierten Absorptionsraten (a), welche sich aus der

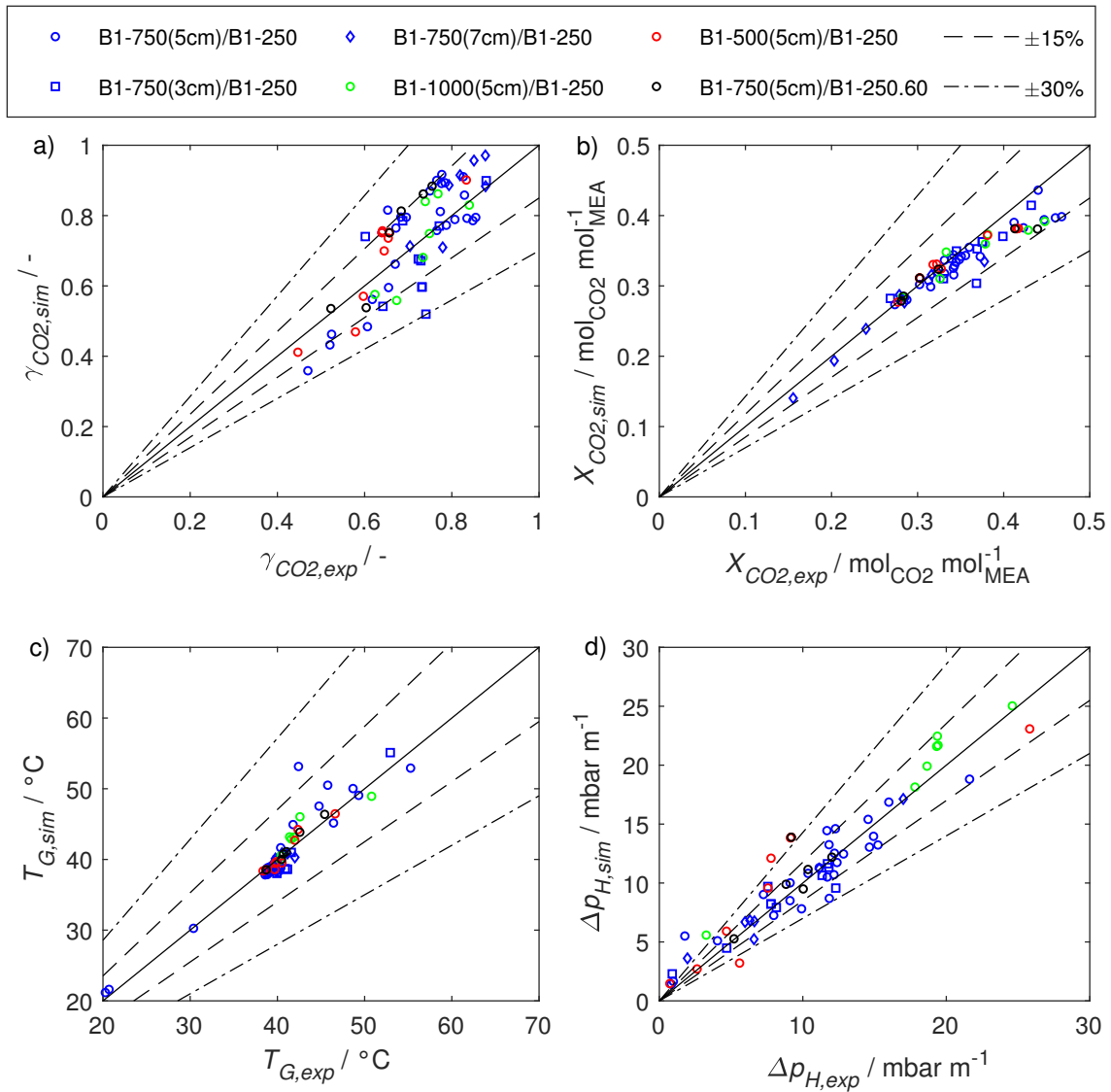


Abbildung 5.15: Paritätsdiagramme des CO_2 -Abscheidegrads (a), der CO_2 -Beladung in der flüssigen Phase (b), der Gasphasentemperatur (c) und des spezifischen Druckverlusts (d).

Differenz der CO_2 -Molenströme am Ein- und am Austritt bezogen auf den Eintrittsmolenstrom ergeben, liegen die maximalen Abweichungen unterhalb von $\pm 30\%$. Der Großteil der experimentellen Daten wird jedoch mit einer Genauigkeit von $\pm 15\%$ berechnet. Der MAE aller aus den Messungen und Simulationen bestimmten Absorptionsraten beträgt 11.5% . Sowohl für die CO_2 -Austrittsbeladung der flüssigen Phase (b) als auch für die Gasphasentemperaturen (c) am Austritt der Kolonne können die gemessenen Ergebnisse, bis auf jeweils einen Punkt, mit einer Genauigkeit von $\pm 15\%$ berechnet werden. Der MAE der CO_2 -Austrittsbeladung der flüssigen Phase ist 5.0% und der MAE bei den Austrittstemperaturen der Gasphase beträgt 2.9% . Für die gemessenen und aus den Simulationen resultierenden spezifischen Druckverluste (d) ergibt sich eine vernünftige Übereinstimmung. An dieser Stelle sei angemerkt, dass die Lastgrenzen beider Lagen für die Verifizierung des Stofftransportmodells nicht mit den in **Abschnitt 4.5**

dargestellten Gleichungen berechnet wurden. Die Werte der Lastgrenzen wurden vorgegeben, um eine höhere Genauigkeit bei der Berechnung der fluiddynamischen Parameter zu erzielen. Dies war notwendig, da bei den Experimenten mehrere Messstellen entlang der Kolonnen die Strömung in den Packungen beeinflusste. Der MAE aller aus den Messungen und Simulationen bestimmten Druckverlustwerte ist 16.8 %.

5.6 Zusammenfassung

Im vorliegenden Kapitel wurde ein Modellierungsansatz zur Beschreibung der reaktiven CO₂-Absorption in Anstaupackungen beschrieben. Da die verschiedenen Fluiddynamikregime in Anstaupackungen unterschiedliche Auswirkungen auf den Stofftransport aufweisen, werden Absorptionskolonnen mit Anstaupackungen als eine Folge von abwechselnden Segmenten dargestellt. Unter Berücksichtigung des vorherrschenden Betriebsbereichs erfolgt die Unterteilung eines Anstaupackungselements in entweder zwei, drei oder vier Stufensegmente. Die Höhen der in Abhängigkeit der fluiden Belastungen auftretenden Stufensegmente werden mit dem in **Kapitel 4** dargestellten Modell zur Beschreibung der Fluiddynamik bestimmt.

Das entwickelte rate-based-Modell wurde in die kommerzielle Software Aspen Custom Modeler® (ACM) implementiert, welches ein Flowsheet-orientiertes Simulationstool ist. ACM ermöglicht durch die Verknüpfung zu Aspen Properties® die Berechnung von Stoffdaten und verfügt über numerische Methoden zur Lösung von Gleichungssystemen. Um das resultierende nichtlineare Gleichungssystem zu lösen, wird eine Initialisierungsroutine verwendet, die auf einer sukzessiven Erhöhung der Modellierungstiefe basiert.

Jedes regimeabhängige Stufensegment wird durch einen der Fluiddynamik entsprechenden Satz von Korrelationen beschrieben. Die Phasengrenzflächen und die Stoffübergangskoeffizienten werden mit einer Kombination von in der Literatur veröffentlichten Korrelationen und eigens entwickelten Korrelationen ermittelt. Die Phasengrenzfläche und der Stoffübergangskoeffizient der flüssigen Phase von Rieselfilmströmungen werden mit Korrelationen von Olujić et al. (2004) berechnet. Der flüssigkeitsseitige Stoffübergang in Sprudelregimen wurde mit der Korrelation von Zuiderweg (1982) bestimmt. Für die Berechnung der Phasengrenzfläche in Sprudelregimen wurde eine auf tomographischen Messungen basierenden Korrelation entwickelt, die auf einem Ansatz für die Phasengrenzfläche in Blasenregimen beruht. Die gasseitigen Stoffübergangskoeffizienten der Rieselfilmströmungen und der Sprudelregime wurden jeweils mit dem Zusammenhang von Sherwood-, Reynolds- und Schmidt-Zahl korreliert.

Um eine Abhängigkeit der Simulationsergebnisse von dem verwendeten numerischen Gitter zu vermeiden, wurde eine Gitterunabhängigkeitsstudie durchgeführt. Bei dieser Studie wurden die Diskretisierungsparameter identifiziert, die sowohl in axialer als auch radialer Richtung benötigt werden, um Gitterunabhängigkeit zu erzielen.

Ein Vergleich der mit dem rate-based-Modell für Anstaupackungen erhaltenen Simulationsergebnisse mit experimentellen Daten verdeutlicht, dass das Modell die Auswirkungen wesentlicher Geometrie- und Betriebsparameter erfassen kann. Der MAE der für den Vergleich herangezogenen Mess- und Simulationsergebnisse beträgt für die Absorptionsrate 11.5 %, für die CO₂-Austrittsbeladung der flüssigen Phase 5.0 %, für die Austrittstemperatur der Gasphase 2.9 % und für den spezifischen Druckverlust 16.8 %.

6 Prozesssimulation zur Abgasreinigung eines industriellen Kraftwerks

Auf der Basis von Prozesssimulationen kann die Leistungscharakteristik von Anstaupackungen mit der von Strukturpackungen verglichen werden. Wesentliche Kenngrößen für den Vergleich der Leistungscharakteristik sind die für eine Trennaufgabe benötigte Kolonnenhöhe und der zu erwartende Druckverlust. Die Trennaufgabe, die zum Vergleich der beiden Einbauten untersucht wird, ist die reaktive CO₂-Abscheidung aus Kraftwerksabgasen in wässrige Lösungen mit MEA. Das Ziel der Trennaufgabe besteht darin, dass 90 % des im Abgas enthaltenen CO₂ abgeschieden wird. Für die nachfolgend dargestellten Simulationen zur Abgasreinigung in Anstau- und Strukturpackungen wurden das in **Kapitel 4** vorgestellte Modell zur Beschreibung der Fluidodynamik und das rate-based-Modell zur Beschreibung des Stofftransports verwendet, welches in **Kapitel 5** präsentiert wurde.

6.1 Routine zur Simulation von Absorptionskolonnen im industriellen Maßstab

Der Simulationsablauf von Absorptionskolonnen im industriellen Maßstab unterscheidet sich von dem, der in **Kapitel 5** zur Simulation von Kolonnen im Technikumsmaßstab gezeigt wurde. Für die Anpassung des Simulationsablaufs von Absorptionskolonnen im industriellen Maßstab gibt es zwei wesentliche Gründe. Zum einen ist die für die Trennaufgabe benötigte Kolonnenhöhe vor der Simulation unbekannt und kann lediglich grob abgeschätzt werden. Zum anderen traten insbesondere bei den Simulationen von Kolonnen mit Anstaupackungen im industriellen Maßstab Konvergenzprobleme auf.

Aus diesen Gründen wurde zur Simulation von Kolonnen im industriellen Maßstab eine Routine verwendet, die schematisch in **Abbildung 6.1** dargestellt ist und auf einer sukzessiven Zuschaltung neuer Stufen basiert. Zu Beginn wird eine Ausgangskonfiguration mit n Stufen gemäß dem in **Abschnitt 5.2** gezeigten Ablauf simuliert. Ausgehend von einer konvergenten Simulation dieser Ausgangskonfiguration werden der Kolonne j Stufen hinzugefügt. Da die neuen Stufen geeignete Initialwerte benötigen, werden alle Parameter und Variablen aus der Stufe n an alle neuen Stufen übergeben. Die neue Konfiguration wird mit dem höchsten Detaillierungsgrad (vgl. **Abbildung 5.5**) simuliert. Wenn die neue Kolonnenkonfiguration ausreicht, um die geforderte

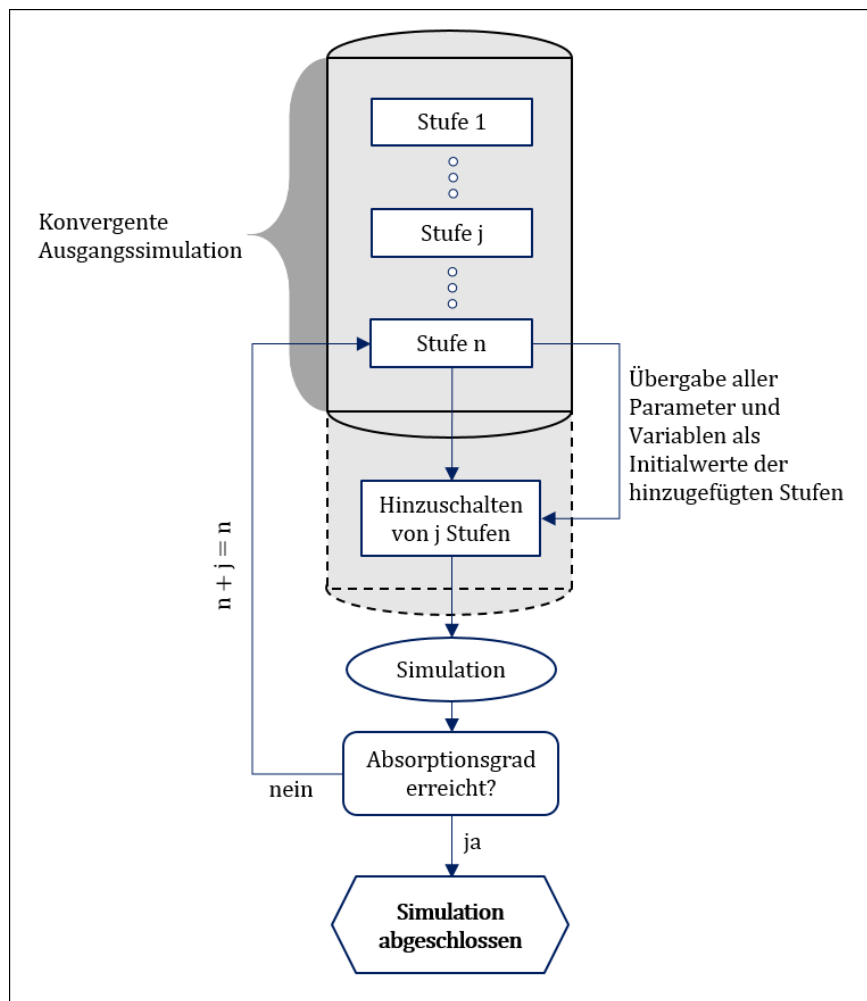


Abbildung 6.1: Simulationsablauf von Kolonnen im industriellen Maßstab.

Reinheit zu erzielen, ist die Simulation abgeschlossen. Sonst wird das Vorgehen wiederholt, bis die geforderte Reinheit erreicht wird. Durch die gezeigte Routine ist es möglich, sich Schritt für Schritt der für die geforderte Reinheit benötigten Kolonnenhöhe anzunähern. Zudem traten auf diese Weise keine Konvergenzprobleme auf.

6.2 Fallstudie: Industrielles Gaskraftwerk

Um die Leistungscharakteristiken von Anstau- und Strukturpackungen zu vergleichen, wurde eine Simulationsstudie zur Reinigung des Abgases eines industriellen Gaskraftwerks durchgeführt. Die Prozessbedingungen des Abgasstroms und die des Lösungsmittels am Kolonneneintritt wurden aus einem Fallbeispiel übernommen, welches in der Arbeit von Hüser (2017) aufgezeigt wird. Bei diesem Fallbeispiel wurde die Reinigung eines Abgases aus einem Gaskraftwerk mit einer Leistung von 420 MWe betrachtet. Die Betriebsbedingungen und Zusammensetzung sind in **Tabelle 6.1** aufgeführt. Als Ziel der Trennaufgabe wurde ein CO₂-Abscheidegrad (vgl. Gleichung 3.15) von 90 % festgelegt.

Tabelle 6.1: Eintrittsbedingungen an der Absorptionskolonne für die Simulationen (Hüser, 2017).

Prozessparameter	Symbol	Einheit	Wert
Gasphase am Kolonneneintritt			
Temperatur	$T_{G, \text{ein}}$	°C	54.28
Konzentration CO ₂	$y_{\text{ein}, \text{CO}_2}$	mol mol ⁻¹	0.0476
Konzentration H ₂ O	$y_{\text{ein}, \text{H}_2\text{O}}$	mol mol ⁻¹	0.0889
Konzentration N ₂	$y_{\text{ein}, \text{N}_2}$	mol mol ⁻¹	0.8635
Gasvolumenstrom	$\dot{V}_{G, \text{ein}}$	m ³ s ⁻¹	450
Flüssige Phase am Kolonneneintritt			
Temperatur	$T_{L, \text{ein}}$	°C	30
Konzentration CO ₂	$x_{\text{ein}, \text{CO}_2}$	mol mol ⁻¹	0.034
Konzentration MEA	$x_{\text{ein}, \text{MEA}}$	mol mol ⁻¹	0.119
Konzentration H ₂ O	$x_{\text{ein}, \text{H}_2\text{O}}$	mol mol ⁻¹	0.846

Für die Simulationen von Absorptionskolonnen sowohl mit Strukturpackungen als auch mit Anstaupackungen wurde jeweils eine Referenzkonfiguration gewählt. Die für die Referenzkonfigurationen festgelegten Designparameter sind in **Abbildung 6.2** zu sehen. Die Designparameter für die Simulation der Absorptionskolonne mit Strukturpackungen wurden in Anlehnung an die Arbeit von Hüser (2017) gewählt, in der die B1-250 verwendet wurde. Der Wert der Lagenhöhe der bei der Simulation verwendeten Strukturpackung betrug 196 mm. Der betrachtete Durchmesser ist aufgrund der großen Mengen an Rauchgas auf den maximal realisierbaren Wert von 15 m festgesetzt. Bei der von Hüser (2017) durchgeführten Simulationsstudie wurde der Rauchgasstrom auf zwei Kolonnen aufgeteilt, um einen möglichst geringen Druckverlust zu erzielen. Dieser Ansatz wurde bei der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Simulation mit Strukturpackungen ebenfalls verwendet. Als Referenzkonfiguration für Anstaupackungen wurde die Packungskombination B1-250M/B1-750T mit einem Töpfchenflächenanteil von 15 % verwendet. Für die Höhe einer Anstaulage wurde ein Wert von 50 mm vorgegeben, wohingegen die Höhe einer Abscheidelage auf 196 mm festgelegt wurde. Im Gegensatz zur Referenzkonfiguration mit Strukturpackungen, bei dem das Rohgas auf zwei Kolonnen aufgeteilt wurde, werden Anstaupackungen üblicherweise gezielt bei hohen Belastungen betrieben, um eine erhöhte Trenneffizienz zu erhalten, weshalb die Trennaufgabe in nur einer Kolonne mit einem Durchmesser von 15 m umgesetzt wurde.

Mit den zuvor beschriebenen Designparametern wurden Simulationen durchgeführt, deren Kennwerte und wesentliche Ergebnisse in **Tabelle 6.2** zusammengefasst sind. Bei der Simulation der Strukturpackungskolonne (SP Ref.) wurde eine Berieselungsdichte von 8.94 m³m⁻²h⁻¹ verwendet. Die Berieselungsdichte bei der Referenzsimulation mit Anstaupackungen (AP Ref.) wurde so eingestellt, dass das gleiche L/G-Verhältnis wie bei der Simulation mit der Strukturpackung resultiert, bei der sich das Rohgas auf zwei Kolonnen aufteilt. Der resultierende F-Faktor stellt sich durch die Vorgaben des Gasmolenstroms und des Eintrittsdrucks der Gasphase ein. Die Werte des Drucks am Eintritt der Gasphase von den jeweiligen Simulationen ergeben sich aus

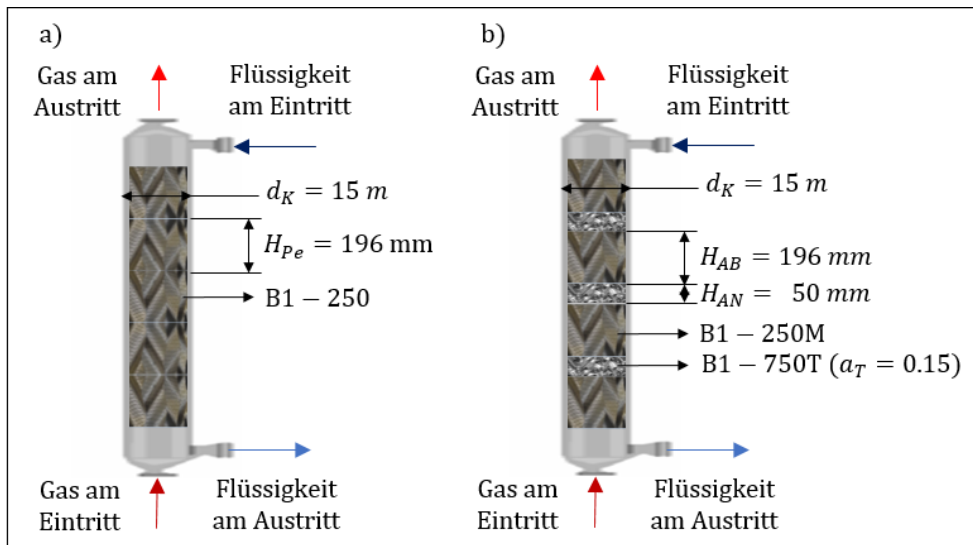


Abbildung 6.2: Festgelegte Packungen und Designparameter für die Simulationen der Basis-konfiguration von Strukturpackungen (a) und von Anstaupackungen (b).

der Summe von Druckverlust und Umgebungsdruck. Bei der Simulation SP Ref. ergab sich ein spezifischer Druckverlust von 0.61 mbar m^{-1} , wohingegen bei der Simulation AP Ref. ein deutlich höherer spezifischer Druckverlust von 17.9 mbar m^{-1} resultierte. Bei einem Vergleich der für die Trennaufgabe benötigten Kolonnenhöhe von beiden Simulationen zeigt sich, dass Anstaupackungen für den geforderten Abscheidegrad nur 30 % der Höhe benötigen. Jedoch ist der absolute Druckverlust der Anstaupackungskonfiguration um fast den Faktor neun gegenüber dem der Struktupackungskonfiguration erhöht. Der absolute Druckverlust ergibt sich aus einer Multiplikation des spezifischen Druckverlusts mit der Kolonnenhöhe und der Anzahl der Kolonnen. Hierbei wurden jedoch keine zusätzlichen Flüssigkeitsverteiler berücksichtigt, die bei konventionellen Packungskolonnen etwa alle 8 m benötigt werden.

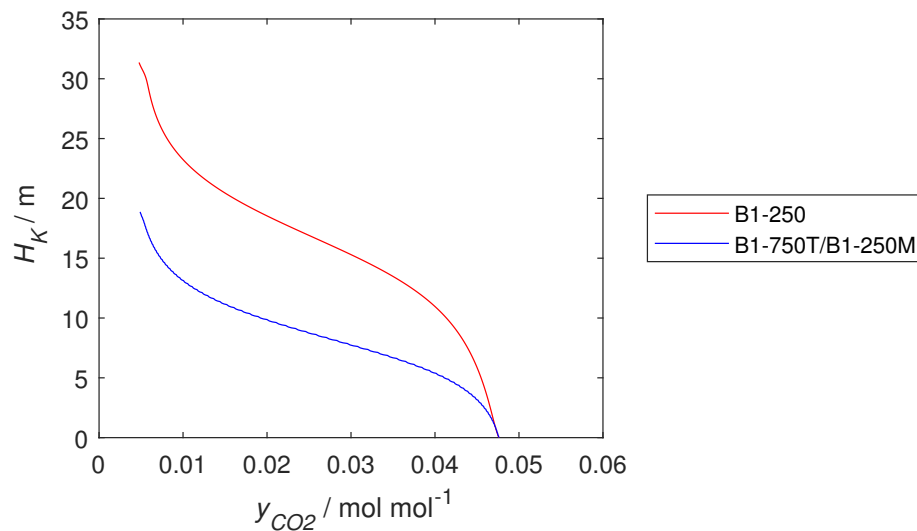
Die erforderliche Kolonnenhöhe aus der SP Ref. Simulation lag bei 31.36 m. An dieser Stelle sei angemerkt, dass sich aus der von Hüser (2017) durchgeführten Simulation mit den gleichen Design- und Eintrittsbedingungen eine erforderliche Kolonnenhöhe von 32 m ergab. Hüser (2017) verwendete zur Bestimmung der Phasengrenzfläche die von Tsai et al. (2011) vorgeschlagene Korrelation und zur Ermittlung der Stoffübergangskoeffizienten die von Billet und Schultes (1999) entwickelten Korrelationen. Obwohl im Rahmen dieser Arbeit die in **Abschnitt 5.3** gezeigten Korrelationen zur Berechnung der Modellparameter verwendet werden, aus denen andere Werte für die Phasengrenzfläche und die Stoffübergangskoeffizienten resultieren, ist die resultierende Kolonnenhöhe annähernd gleich.

In **Abbildung 6.3** ist das CO_2 -Konzentrationsprofil der Gasphase entlang der Kolonnenhöhe aus den Simulationen mit der Struktur- und der Anstaupackung aufgetragen. Die Konzentrationsprofile, die aus beiden Simulationen resultieren, sind qualitativ ähnlich. Jeweils im oberen und unteren Bereich der simulierten Kolonnen sind die Änderungen der CO_2 -Konzentration geringer als die Änderungen im mittleren Bereich der Kolonne. Im oberen Kolonnenbereich resultieren die geringeren Änderungen aus den sehr geringen CO_2 -Konzentrationen in der Gasphase, mit denen eine geringe Triebkraft für den Stofftransport aus der Gasphase verbunden ist. Im unteren Bereich der Kolonne werden die geringeren Änderungen der CO_2 -Konzentration dadurch verur-

Tabelle 6.2: Eintrittsbedingungen und Ergebnisse der Simulationen von Kolonnen mit Struktur- und Anstaupackungen.

Parameter	Symbol	Einheit	SP Ref. B1-250	AP Ref. B1-750T/ B1-250M
Belastungen der Phasen				
Berieselungsdichte	u_L	$\text{m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$	8.94	17.88
F-Faktor	F_G	$\text{Pa}^{0.5}$	1.48	2.44
Druck	$p_{G,\text{ein}}$	bar	1.10	1.45
Leistungsparameter				
Kolonnenhöhe	H_K	m	2·31.4	18.9
Spez. Druckverlust	Δp_H	mbar m^{-1}	0.61	17.90
Absoluter Druckverlust	Δp	mbar	38	337.83
Absorptionsgrad	γ_{CO_2}	%	90.2	90.1

sacht, dass die CO_2 -Beladung in der flüssigen Phase entlang der Kolonne anwächst, wodurch die Reaktionsraten nach und nach geringer werden. Insbesondere im unteren Bereich der Kolonne hebt sich die verbesserte Trennung mit Anstaupackungen gegenüber der der Strukturpackungen hervor. Anstaupackungen weisen im Vergleich zu Strukturpackungen einen deutlich erhöhten Holdup auf, wodurch im unteren Bereich der Kolonne für die Reaktionen eine höhere Verweilzeit zur Verfügung steht.

**Abbildung 6.3:** CO_2 -Konzentration in der Gasphase entlang der Kolonnenhöhe der Strukturpackung B1-250 und der Anstaupackung B1-750T/B1-250M.

6.3 Einfluss des Anstaupackungsdesigns auf die Leistungscharakteristik

In **Abschnitt 6.2** wurde gezeigt, dass Anstaupackungen und Strukturpackungen sich in Bezug auf ihre Performancewerte Druckverlust und erforderliche Kolonnenhöhe deutlich voneinander unterscheiden. Durch die Anwendung von Anstaupackungen wird die Kolonnenhöhe, die für die geforderte Reinheit notwendig ist, deutlich verringert. Der verringerte apparative Aufwand führt zu geringeren Investitionskosten. Jedoch weisen Anstaupackungen im Vergleich zu Strukturpackungen einen deutlich erhöhten Druckverlust auf, der sich nachteilig auf die Betriebskosten auswirkt.

Ausgehend von der Referenzpackungskombination B1-750T/B1-250M wurden Simulationsstudien für die in **Tabelle 6.1** beschriebene Trennaufgabe mit veränderten Geometrieparametern durchgeführt, um Maßnahmen zu identifizieren, die zu einem geringeren absoluten Druckverlust von Kolonnen mit Anstaupackungen führen. Dafür wurde in einem ersten Schritt der Einfluss der geometrischen Oberfläche der jeweiligen Lagen auf die Leistungskennwerte der Anstaupackungen untersucht.

6.3.1 Einfluss der geometrischen Oberfläche beider Lagen

Um die Auswirkungen der geometrischen Oberfläche der Anstaulage auf den resultierenden Druckverlust und die erforderliche Kolonnenhöhe zu bestimmen, wurden Simulationen durchgeführt, deren Ergebnisse in **Tabelle 6.3** zusammengefasst sind. Bei den Simulationen zur Variation der Geometrieparameter von Anstaupackungen wurden die gleichen Eintrittsbedingungen für beide Phasen verwendet, die auch bei der Simulation mit der Referenzpackungskombination B1-750T/B1-250M eingestellt wurden.

Tabelle 6.3: Ergebnisse der Simulationsstudie zum Einfluss der geometrischen Oberfläche der Anstaulage.

Parameter	Symbol	Einheit	1. B1-1000T/ B1-250M	AP Ref. B1-750T/ B1-250M	2. B1-500T/ B1-250M
Leistungsparameter					
Kolonnenhöhe	H_K	m	16.6	18.9	21.9
Spez. Druckverlust	Δp_H	mbar m ⁻¹	21.75	17.90	14.84
Absoluter Druckverlust	Δp	mbar	361.2	337.8	324.9
Absorptionsgrad	γ_{CO_2}	%	90.1	90.1	90.2

In **Abbildung 6.4** wird der aus den Simulationen resultierende Einfluss der geometrischen Oberfläche der Anstaulage auf die für die Trennaufgabe nötige Kolonnenhöhe und den absoluten Druckverlust veranschaulicht. Es zeigt sich, dass mit steigender Oberfläche der Anstaulage die resultierende Kolonnenhöhe abnimmt und der absolute Druckverlust ansteigt. Ursächlich

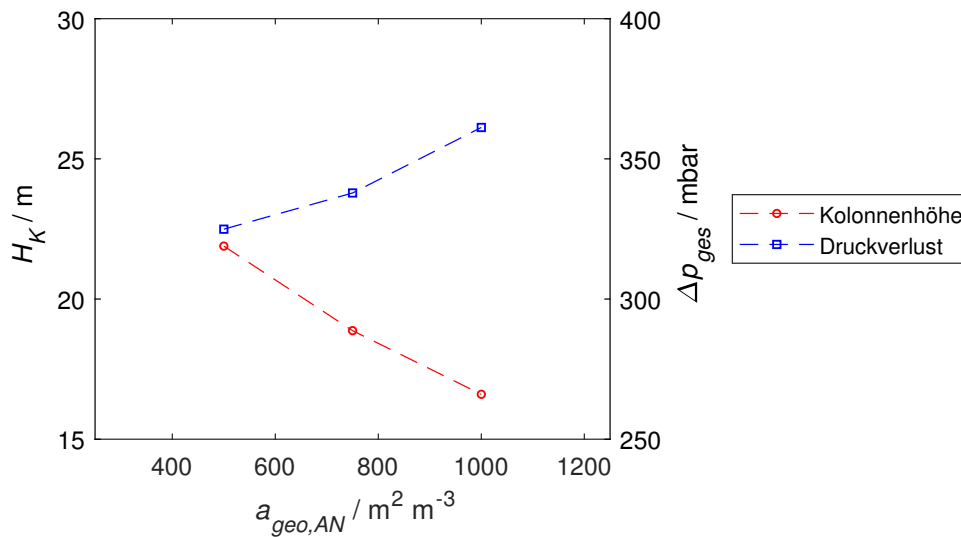


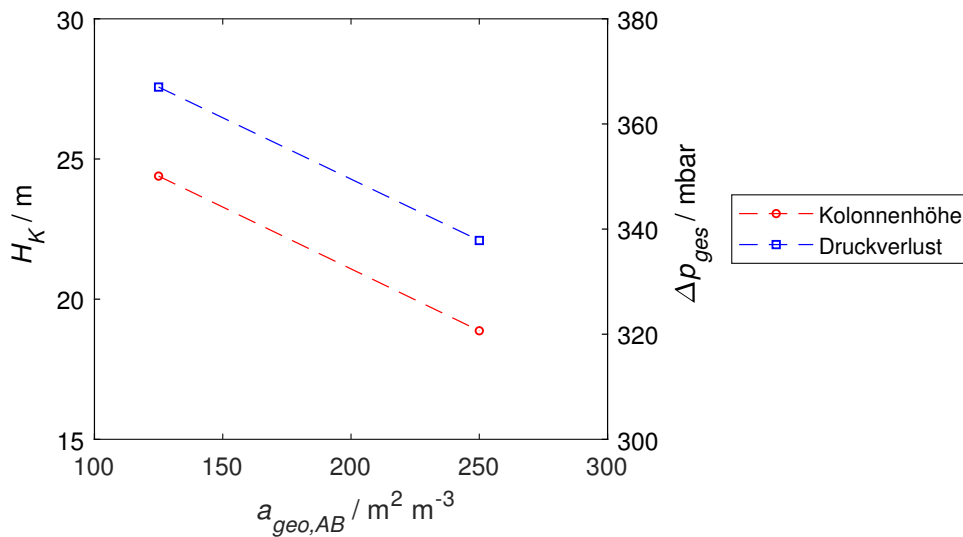
Abbildung 6.4: Einfluss der geometrischen Oberfläche der Anstaulage auf die resultierende Kolonnenhöhe und den absoluten Druckverlust.

für beide Tendenzen ist die Sprudelschichthöhe. Mit steigender geometrischer Oberfläche der Anstaulage verschiebt sich der Flutpunkt der Anstaulage hin zu kleineren Werten. Dadurch ist im Anstaubetrieb bei konstanter Gasbelastung mit steigender geometrischer Oberfläche der Anstaulage die Sprudelschicht höher. Die Sprudelregime weisen im Vergleich zu rieselfilmartigen Strömungsmustern sowohl einen höheren spezifischen Druckverlust als auch eine höhere Trenneffizienz auf. Ein Vergleich der Leistungsparameter aus den Simulationen mit der B1-1000T/B1-250M und der B1-500T/B1-250M zeigt, dass der spezifische Druckverlust der B1-500T/B1-250M um 32 % gegenüber dem der B1-1000T/B1-250M verringert ist, wobei die erforderliche Kolonnenhöhe nur um 24 % ansteigt. Es ist daher mit Blick auf den absoluten Druckverlust vorteilhaft, eine kleinere geometrische Oberfläche der Anstaulage zu verwenden. Jedoch muss berücksichtigt werden, dass die fluiddynamische Stabilität des Anstaubetriebs bei der Verwendung der B1-500T als Anstaulage bei derart großen Kolonnendurchmessern noch nicht in der Praxis bestätigt wurde. Daher wird bei den nachfolgend aufgezeigten Simulationen als Anstaulage die B1-750T verwendet.

Die Ergebnisse der Simulationen zum Einfluss der geometrischen Oberfläche der Abscheidelage auf den resultierenden Druckverlust und die erforderliche Kolonnenhöhe sind in **Tabelle 6.4** zusammengefasst und in **Abbildung 6.5** illustriert. Obwohl der spezifische Druckverlust mit steigender geometrischer Oberfläche der Abscheidelage zunimmt, sinkt mit steigender geometrischer Oberfläche der absolute Druckverlust von 367.0 auf 337.8 mbar. Dies ist darauf zurückzuführen, dass durch die Verwendung der B1-125M als Abscheidelage der spezifische Druckverlust nur um 16 % gegenüber der B1-250M abnimmt, wohingegen in gleicher Richtung die erforderliche Kolonnenhöhe um 23 % zunimmt. Es zeigt sich somit, dass die Anstaupackungskombination B1-750T/B1-250M gegenüber der Kombination B1-750T/B1-125M vorteilhaft ist, da sowohl die erforderliche Kolonnenhöhe als auch der absolute Druckverlust geringer sind.

Tabelle 6.4: Ergebnisse der Simulationsstudie zum Einfluss der geometrischen Oberfläche der Abscheidelage.

Parameter	Symbol	Einheit	3. B1-750T/ B1-125M	AP Ref B1-750T/ B1-250M
Leistungsparameter				
Kolonnenhöhe	H_K	m	24.4	18.9
Spez. Druckverlust	Δp_H	mbar m ⁻¹	15.05	17.90
Absoluter Druckverlust	Δp	mbar	367.0	337.8
Absorptionsgrad	γ_{CO_2}	%	90.1	90.1

**Abbildung 6.5:** Einfluss der geometrischen Oberfläche der Abscheidelage auf die resultierende Kolonnenhöhe und den absoluten Druckverlust.

6.3.2 Partieller Einsatz von teilweise gefluteten Packungen

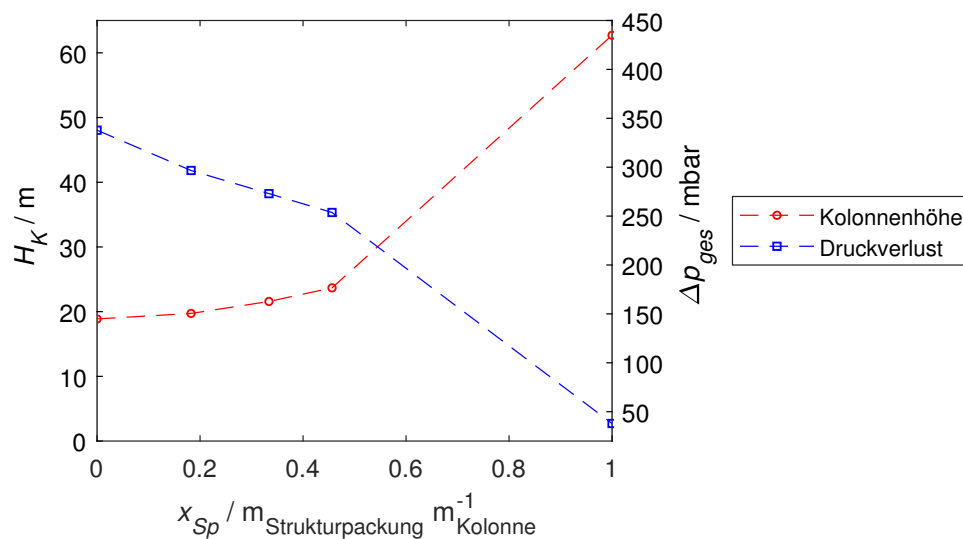
Eine weitere Maßnahme zur Druckverlustreduzierung konnte durch eine Analyse der in **Abbildung 6.3** dargestellten CO₂-Konzentrationsprofile ermittelt werden. Ausgehend von der Analyse wird deutlich, dass die Trennwirkung der Anstaupackung im unteren Kolonnenbereich besonders vorteilhaft ist. Im oberen Kolonnenbereich bietet sich durch das Ersetzen von Anstaupackungselementen gegen Strukturpackungen die Möglichkeit den Druckverlust zu reduzieren. Daher wurden Simulationen durchgeführt, bei denen Anstaupackungen partiell im unteren und mittleren Bereich der Kolonne eingesetzt werden und im oberen Kolonnenbereich die verwendete Strukturpackungshöhe variiert wurde. Die wesentlichen Parameter sind in **Tabelle 6.5** aufgelistet.

Die Ergebnisse dieser Variationsstudie sind im Vergleich zu den Simulationsergebnissen der Referenzkonfigurationen der Anstau- und Strukturpackung in **Abbildung 6.6** dargestellt. Die Minderung des absoluten Druckverlusts in Bezug auf die Referenzanstaupackungskombination

Tabelle 6.5: Verwendete und resultierende Parameter der Simulationsstudie zum partiellen Einsatz von Anstaupackungen.

Parameter	Symbol	Einheit	4.	5.	6.
Kolonnendesign					
Packungsgeometrie	-	-	B1-750T/ B1-250M	B1-750T/ B1-250M	B1-750T/ B1-250M
Höhe SP	H_{SP}	m	3.6	7.2	10.8
Höhe AP	H_{AP}	m	16.1	14.4	12.9
Kolonnenhöhe	H_K	m	19.7	21.6	23.7
Leistungsparameter					
Spez. Druckverlust	Δp_H	mbar m ⁻¹	15.04	12.65	10.72
Absoluter Druckverlust	Δp	mbar	296.6	273.0	253.7
Absorptionsgrad	γ_{CO_2}	%	90.1	90.1	90.1

ist für eine Strukturpackungshöhe von 3.6 m 12 %, für eine Strukturpackungshöhe von 7.2 m 19 % und für eine Strukturpackungshöhe von 10.8 m 25 %. Die erforderliche Kolonnenhöhe steigt in gleicher Reihenfolge nur 5 %, 14 % bzw. 25 %. Durch den kombinierten Einsatz von Anstau- und Strukturpackungen können gegenüber der Basiskonfiguration mit Anstaupackungen Einsparung des absoluten Druckverlusts erzielt werden, wobei die resultierende Kolonnenhöhe insbesondere für die Simulationen 4 und 5 nicht im gleichen Maße zunimmt.

**Abbildung 6.6:** Resultierende Kolonnenhöhe und absoluter Druckverlust in Abhängigkeit des Höhenanteils der Strukturpackungen beim partiellen Ansatz von teilweise gefluteten Packungen.

6.4 Zusammenfassung

Zum Vergleich der Leistungscharakteristik von Anstau- und Strukturpackungen wurden Prozesssimulationen zur reaktiven CO₂-Absorption in wässrige MEA-Lösungen durchgeführt. Die für die Beurteilung der Leistungscharakteristik betrachteten Kennwerte sind die für die Trennaufgabe erforderliche Kolonnenhöhe und der resultierende absolute Druckverlust. Für die Simulationen wurden die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Modelle zur Beschreibung der Fluidodynamik (siehe **Kapitel 4**) und das rate-based-Modell zur Beschreibung des Stofftransports (siehe **Kapitel 5**) verwendet. Bei den Simulationen wurden Prozessbedingungen entsprechend eines realen Kraftwerksabgases gewählt und eine Basiskonfiguration für Struktur- und Anstaupackungen definiert. Die Trennaufgabe wurde bei einem CO₂-Absorptionsgrad von 90 % erreicht.

Für die Prozesssimulationen mit konventionellen Einbauten wurde die Strukturpackung B1-250 gewählt. Hierbei wurde, um einen druckverlustarmen Konfiguration zu ermöglichen, die Trennaufgabe mit zwei DN15000 Kolonnen mit einer Kolonnenhöhe von jeweils 31.36 m erreicht. Der absolute Druckverlust des trennaktiven Bereichs der Kolonnen beträgt 38 mbar. Als Referenz für die Simulationen mit Anstaupackungen wurde die Packungskombination B1-750T/B1-250M ausgewählt. Die Wahl des Kolonnendurchmessers wurde aufgrund der technisch realisierbaren Größe ebenfalls auf 15 m festgesetzt, wobei der Rauchgasvolumenstrom nur in einer Kolonne gereinigt wurde, um einen Betrieb der Kolonne im Anstaubereich zu realisieren. Der Absorptionsgrad von 90 % wurde dabei mit einer Kolonnenhöhe von 17.88 m erreicht, wobei ein absoluter Druckverlust von 337 mbar resultierte. Die Prozessvariante mit Anstaupackungen benötigt zwar im Vergleich zum Design mit Strukturpackungen weniger als ein Drittel der Kolonnenhöhe, wodurch weniger Investitionskosten anfallen, jedoch werden aufgrund des deutlich höheren Druckverlusts die Betriebskosten deutlich erhöht.

Ausgehend von der Referenzpackungskombination wurden Simulationsstudien mit veränderten Geometrieparametern durchgeführt, um Maßnahmen zu identifizieren, die zu einem geringeren absoluten Druckverlust von Kolonnen mit Anstaupackungen führen. Hierzu wurde der Einfluss der geometrischen Oberflächen beider Packungslagen auf die für die Trennaufgabe erforderliche Kolonnenhöhe und den absoluten Druckverlust untersucht. Es zeigte sich, dass mit steigender Oberfläche der Anstaulage aufgrund höherer Sprudelregime die resultierende Kolonnenhöhe abnimmt und der absolute Druckverlust ansteigt. Im Gegensatz dazu nehmen im untersuchten Bereich mit steigender Oberfläche der Abscheidelage sowohl die erforderliche Kolonnenhöhe als auch der absolute Druckverlust ab. Außerdem wurde der partielle Einsatz von Anstaupackungen untersucht. Hierbei wurden in den oberen Kolonnensegmenten Anstaupackungen gegen Strukturpackungen ersetzt. Es zeigte sich im Vergleich zur Basiskonfiguration, dass durch den partiellen Einsatz von Anstaupackungen zwar die erforderliche Kolonnenhöhe etwas anwächst, jedoch bietet der partielle Einsatz das Potenzial den absoluten Druckverlust zu reduzieren.

Die Ergebnisse des durchgeführten Vergleichs von Struktur- und Anstaupackungen deuten darauf hin, dass Anstaupackungen trotz ihrer hohen Trenneffizienz bei der reaktiven CO₂-Absorption aufgrund des hohen Druckverlusts nicht eingesetzt werden sollten. Zukünftig sollten gezielt Anwendungen untersucht werden, bei denen Anstaupackungen ihr Potenzial bestmöglich ausschöpfen. Eine Auflistung dieser potenziellen Anwendungen wurde in **Abschnitt 2.2.1** gezeigt.

7 Zusammenfassung und Ausblick

Thermische Trennverfahren werden in industriellen Prozessen eingesetzt, um fluide Stoffgemische zu trennen. Mit der Anwendung dieser Verfahren geht ein hoher Energie- und Ressourcenbedarf einher. Ein wichtiges Instrument zur Reduzierung des hohen Energie- und Ressourcenbedarfs thermischer Trennverfahren ist die Prozessintensivierung. Ein Ansatz dazu ist die Integration verschiedener Strömungsformen in einem Trennapparat durch den Einsatz von Anstaupackungen, wodurch eine Erhöhung der Trennleistung im Vergleich zu konventionellen Strukturpackungen erzielt wird. Anstaupackungen bestehen aus zwei alternierend angeordneten Lagen von industriell verfügbaren Standardpackungen mit unterschiedlichen spezifischen Oberflächen. Die untere Anstaulage weist eine geringere Lastgrenze als die darüber angeordnete Abscheidelage auf, wodurch im Betrieb zwischen den Flutpunkten beider Lagen ein heterogenes Strömungsmuster entsteht. Dabei bildet sich in der gezielt gefluteten Anstaulage eine bis in die Abscheidelage hineinreichende Sprudelschicht, die durch eine intensive Phasenvermischung und große Phasengrenzflächen geprägt ist.

Zur Auslegung von Kolonnen mit Anstaupackungen ist eine verlässliche Beschreibung der Strömungs- und Transportprozesse wesentlich, wobei aufgrund der komplexen Strömungsmuster die Entwicklung von Design-Methoden eine große Herausforderung darstellt. Um dieser Herausforderung zu begegnen, wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit die Auswirkungen der einzelnen Strömungsregime auf die Fluidodynamik sowie den Stoffaustausch komplementär mit experimentellen und theoretischen Methoden untersucht. Das Ziel dieser Untersuchungen war die Entwicklung geeigneter Modellierungsansätze zur Beschreibung der Fluidodynamik und des Stofftransports in Anstaupackungen. Zur Beschreibung des Stofftransports wurde ein rate-based-Modell für die reaktive CO_2 -Absorption entwickelt, welches die Trennwirkungen der individuellen Strömungsregime berücksichtigt und zur Vorhersage der Leistungscharakteristik dient. Die Entwicklung des Modells zur Vorhersage fluidodynamischer Parameter in Packungskolonnen basiert erstmalig auf den Erkenntnissen und Ergebnissen aus tomographischen Untersuchungen.

Am Helmholtz-Zentrum Dresden-Rosendorf wurde mittels ultraschneller Röntgentomographie ein detaillierter Einblick in die Phasenverteilung der verschiedenen Strömungszustände von Anstaupackungen ermöglicht. In umfangreichen Experimentalserien mit systematischer Variation von Flüssigkeits- und Gasbelastung sowie geometrischer Parameter der Anstaupackung wurden erstmalig dynamische Strömungen in Anstaupackungen nicht-invasiv visualisiert und charakterisiert. Basierend auf den tomographischen Messungen konnten erstmalig mit für diesen

Zweck entwickelten Algorithmen fluiddynamische Parameter wie Phasenverteilung, Holdup und Phasengrenzfläche regimespezifisch bestimmt werden. Bei den Holdup-Ergebnissen wurden deutliche Unterschiede zwischen Sprudel- und Filmströmungsregime festgestellt, wobei erheblich höhere Holdup-Werte im Sprudelregime erreicht werden. Entgegen bisherigen Annahmen zeigen die Untersuchungen, dass die spezifische Phasengrenzfläche im Sprudelregime nahezu unabhängig von den Fluidbelastungen ist. Hingegen hat die spezifische Packungsoberfläche einen signifikanten Einfluss auf die spezifische Phasengrenzfläche. In diesem Zusammenhang wächst die spezifische Phasengrenzfläche mit steigender Packungsoberfläche an.

Neben der ultraschnellen Röntgentomographie wurden eigene Untersuchungen mit Anstaupackungen zur CO₂-Absorption aus Luft in wässrigen Monoethanolamin-Lösungen durchgeführt. Die für die Untersuchungen verwendete Technikumsanlage ermöglichte die Messung von Temperaturprofilen der Gasphase sowie von Konzentrationsprofilen beider Phasen. Mit den für die Experimente zur Verfügung stehenden Anstaupackungskombinationen konnte der Einfluss der geometrischen Oberfläche der Anstaulage, der Höhe der Anstaulage und des Neigungswinkels der Abscheidelage auf das Trennverhalten von Anstaupackungen untersucht werden. Zudem wurden die Auswirkungen wesentlicher Betriebsbedingungen auf das Absorptionsverhalten experimentell ermittelt. Unter anderem konnte quantifiziert werden, inwiefern der CO₂-Abscheidegrad mit steigender Berieselungsdichte, zunehmender geometrischer Oberfläche und sinkender CO₂-Eintrittskonzentration in der Gasphase ansteigt.

Die gewonnenen Erkenntnisse sowohl der tomographischen Untersuchungen als auch der Experimente zur CO₂-Absorption wurden zur Entwicklung von Ansätzen zur Beschreibung der Fluiddynamik und der Trennleistung von Kolonnen mit Anstaupackungen genutzt. Darüber hinaus wurden die Messergebnisse aus beiden experimentellen Untersuchungen als Datenbasis zur Verifizierung der entwickelten Berechnungsmethoden verwendet.

Zur Modellierung der Transportvorgänge in Anstaupackungen wurde zunächst ein neuer Modellierungsansatz zur Beschreibung der Fluiddynamik entwickelt, der auf einer Unterscheidung zwischen filmartigen Strömungsmustern und Sprudelregimen basiert und auch auf Strukturpackungen angewendet werden kann. Die Unterscheidung beider Regime wurde genutzt, um den Flutvorgang zu modellieren, bei dem es zu einem Wechsel der vorherrschenden Strömungsformen kommt. Die Auswirkung der jeweiligen Regime ist abhängig von ihren geometrischen Volumenanteilen, für deren Berechnung Methoden aufgezeigt wurden. Um den über alle Belastungsbereiche entstehenden Gesamtdruckverlust und -Holdup zu berechnen, wurden Korrelationen für den Holdup von Rieselfilmen und Sprudelregimen, den trockenen und berieselten Druckverlust sowie der Gasgeschwindigkeiten an Stau- bzw. Flutpunkten erstellt. Die Korrelationserstellung basierte auf einer Kombination aus in der Literatur veröffentlichten integralen Druckverlust- und Holdup-Messungen, einphasigen CFD-Simulationen und tomographischen Messungen. Zur Verifizierung des Gesamtmodells zur Beschreibung der Fluiddynamik von Anstau- und Strukturpackungen wurden die Berechnungsergebnisse mit 1595 Messwerten zum Druckverlust und 510 Messwerten zum Holdup verglichen, wobei im gesamten Belastungsbereich der Druckverlust mit einer mittleren Abweichung von 18,1% ermittelt werden konnte und die Unsicherheit der Holdup-Berechnungen 19,1% betrug.

Aufbauend auf dem Modell zur Beschreibung der Fluiddynamik wurde ein rate-based-Modellierungsansatz zur Beschreibung des Stofftransports in Anstaupackungen entwickelt,

welcher in die kommerzielle Software Aspen Custom Moldeler® implementiert wurde. Bei dem entwickelten rate-based-Stufenmodell werden alle möglichen Strömungsregime, die auftreten können, in Abhängigkeit des betrachteten Betriebsbereichs durch individuelle Stufensegmente berücksichtigt. In den vier Fluidodynamikbereichen von Anstaupackungen wird in Abhängigkeit der auftretenden Regime eine alternierende Unterteilung in zwei, drei bzw. vier Stufensegmente vorgenommen. Für die Berechnung der Phasengrenzfläche in rieselfilmartigen Strömungsmustern und der flüssigkeitsseitigen Stoffübergangskoeffizienten in beiden Regimen wurden Korrelationen aus der Literatur ausgewählt und implementiert, die ursprünglich für Strukturpackungen und Bodenkolonnen entwickelt wurden. Basierend auf den tomographischen Messungen wurden Werte für die spezifische Phasengrenzfläche in Sprudelregimen ermittelt, die genutzt wurden, um eine entsprechende Korrelation zu entwickeln. Für diese Korrelation wurde ein Ansatz verwendet, der auf einer Vereinfachung des komplexen Sprudelregimes durch ein Blasenregime basiert. Die gaseitigen Stoffübergangskoeffizienten der beiden Regime wurden individuell mit einem dimensionslosen Ansatz für die Sherwood-Zahl korreliert.

Für die Verifizierung des Gesamtmodells wurden die Messergebnisse aus den Technikumsversuchen zur CO₂-Absorption verwendet. Die mittlere Diskrepanz zwischen gemessenen Werten und Simulationsergebnissen beträgt für die Absorptionsrate 11.5 %, für die CO₂-Austrittsbeladung der flüssigen Phase 5.0 %, für die Austrittstemperatur der Gasphase 2.9 % und für den spezifischen Druckverlust 16.8 %.

Mittels Prozesssimulationen wurden Anstaupackungen und konventionelle Einbauten im industriellen Maßstab hinsichtlich des Kolonnendesigns und des benötigten Druckverlusts gegenübergestellt. Für den Vergleich wurden Prozessbedingungen entsprechend einem realen Kraftwerksabgas gewählt und eine Basiskonfiguration für Struktur- und Anstaupackungen definiert. Die Prozessvariante mit Anstaupackungen führt zwar im Vergleich zum Design mit Strukturpackungen zu wesentlich kleineren Kolonnen, wodurch weniger Investitionskosten anfallen, jedoch werden aufgrund des deutlich höheren Druckverlusts der Anstaupackungskonfiguration die Betriebskosten erhöht.

Zusätzlich wurden Simulationsstudien zum Einfluss von Geometrieparametern durchgeführt, um Maßnahmen zu identifizieren, die zu einem geringeren absoluten Druckverlust von Kolonnen mit Anstaupackungen führen. Es stellte sich heraus, dass mit abnehmender geometrischer Oberfläche der Anstaulage die resultierende Kolonnenhöhe geringfügig zunimmt und der absolute Druckverlust sinkt. Hingegen nimmt mit steigender geometrischer Oberfläche der Abscheidelage sowohl die erforderliche Kolonnenhöhe als auch der absolute Druckverlust ab. Eine weitere untersuchte Maßnahme zur Druckverlustreduzierung stellt die partielle Ausrüstung von Kolonnen mit Anstaupackungen dar. Hierbei wurden in den oberen Kolonnensegmenten Anstaupackungselemente gegen Strukturpackungen ersetzt. Es zeigte sich, dass der partielle Einsatz ein enormes Einsparpotenzial in Bezug auf den absoluten Druckverlust bietet, wobei die erforderliche Kolonnenhöhe geringfügig anwächst.

Das Gesamtmodell, welches dazu dient, die für die Auslegung von Kolonnen mit Anstaupackungen notwendigen Parameter der Fluidodynamik und der Trennleistung zu bestimmen, ist in der Lage, den Einfluss wesentlicher Betriebs- und Geometrieparameter im untersuchten Bereich mit den angegebenen Genauigkeitsgrenzen zu erfassen. Um den Anwendungsbereich des Gesamtmodells zu erweitern, sind zusätzliche tomographische Messungen insbesondere in den

Sprudelregimen erforderlich, bei denen der Einfluss von Viskosität und Oberflächenspannung systematisch untersucht wird. Außerdem können Unsicherheiten bei der Auslegung verringert werden, indem, basierend auf einer phänomenologischen Beschreibung des Packungsflutens, Berechnungsvorschriften aufgestellt werden, die zu einer genaueren Vorhersage von Stau- und Flutpunkten führen. Mit den experimentellen Untersuchungen zur Absorption von CO_2 aus Luft in wässrige MEA-Lösungen konnte der Stoffübergangskoeffizient der Gasphase ermittelt werden. Jedoch ist bislang der Stoffübergangskoeffizient der flüssigen Phase in Sprudelregimen, die in Packungsstrukturen auftreten, gänzlich unbekannt. Durch entsprechende experimentelle Untersuchungen könnte diese Ungewissheit behoben werden.

Anhang

Tabelle A.1: Aus Druckverlustmessungen abgelesene Flutpunkte von Anstaupackungen.

a_T -	d_K m	u_L $\text{m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$	$F_{G,FP,AN}$ $\text{Pa}^{0.5}$	$F_{G,FP,AB}$ $\text{Pa}^{0.5}$	Konfig.	WA
B1-750/B1-250 $H_{AN}=5\text{ cm}$, $H_{AB}=19.6\text{ cm}$						
0	0.1	5	2.1	3.4	B	SZ
0	0.1	10	1.9	3.1	B	SZ
0	0.1	20	1.5	2.6	B	SZ
0	0.1	50	0.9	1.9	B	SZ
B1-750/B1-125 $H_{AN}=5\text{ cm}$, $H_{AB}=20.1\text{ cm}$						
0.102	0.5	1	2.1	6.0	B	SZ
0.102	0.5	5	1.9	5.0	B	SZ
0.102	0.5	10	1.5	4.7	B	SZ
0.102	0.5	20	1.3	4.1	B	SZ
0.102	0.5	50	0.8	3.9	B	SZ
B1-750/B1-150.60 $H_{AN}=5\text{ cm}$, $H_{AB}=20.2\text{cm}$						
0.102	0.5	1	2.6	7.1	B	SZ
0.102	0.5	5	1.7	4.8	B	SZ
0.102	0.5	10	1.5	4.5	B	SZ
0.102	0.5	20	1.3	3.7	B	SZ
0.102	0.5	50	1.0	2.7	B	SZ

Tabelle A.1 (Fortsetzung): Abgelesene Flutpunkte von Anstaupackungen.

a_T -	d_K m	u_L $\text{m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$	$F_{G,FP,AN}$ $\text{Pa}^{0.5}$	$F_{G,FP,AB}$ $\text{Pa}^{0.5}$	Konfig.	WA
B1-750/B1-250M $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=20.1$ cm						
0.102	0.5	1	2.4	6.6	B	SZ
0.102	0.5	5	2.0	4.7	B	SZ
0.102	0.5	10	1.8	3.7	B	SZ
0.102	0.5	20	1.6	3.0	B	SZ
0.102	0.5	50	0.9	2.0	B	SZ
B1-750/B1-250M $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=20$ cm						
0.102	1.45	2	2.4	6.6	B	SZ
0.102	1.45	5	2.1	5.5	B	SZ
0.102	1.45	10	1.8	4.3	B	SZ
0.102	1.45	20	1.6	3.5	B	SZ
0.102	1.45	50	1.1	2.2	B	SZ
B1-1000/B1-250 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=20$ cm						
0	0.9	2	2.1	5.4	B	SZ
0	0.9	5	1.9	4.4	B	SZ
0	0.9	10	1.8	3.9	B	SZ
0	0.9	20	1.4	3.6	B	SZ
0	0.9	50	0.9	2.6	B	SZ
B1-750/B1-125 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=20.5$ cm						
0.1	0.5	50	0.9	3.8	B	SZ
0.1	0.5	100	0.7	2.4	B	SZ
0.3	0.5	50	0.8	3.8	B	SZ
0.3	0.5	100	0.6	2.4	B	SZ
B1-1000/B1-250 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=20$ cm						
0	0.3	2	1.3	4.8	A	SZ
0	0.3	5	1.2	4.1	A	SZ
0	0.3	10	1.1	3.4	A	SZ
0	0.3	20	0.8	2.4	A	SZ
0	0.3	50	0.3	1.8	A	SZ

Tabelle A.1 (Fortsetzung): Abgelesene Flutpunkte von Anstaupackungen.

a_T -	d_K m	u_L $\text{m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$	$F_{G,FP,AN}$ $\text{Pa}^{0.5}$	$F_{G,FP,AB}$ $\text{Pa}^{0.5}$	Konfig.	WA
B1-750/B1-125 $H_{AN}=3$ cm, $H_{AB}=20$ cm						
0	0.3	2	1.7	5.8	A	SZ
0	0.3	5	1.5	5.5	A	SZ
0	0.3	10	1.3	4.8	A	SZ
0	0.3	25	1.0	3.9	A	SZ
B1-750/B1-250 $H_{AN}=3$ cm, $H_{AB}=20$ cm						
0	0.3	2	1.8	4.8	A	SZ
0	0.3	5	1.5	4.1	A	SZ
0	0.3	10	1.2	3.4	A	SZ
0	0.3	25	1.1	2.7	A	SZ
0	0.3	50	0.9	1.9	A	SZ
B1-500/B1-250 $H_{AN}=3$ cm, $H_{AB}=20$ cm						
0	0.3	2	2.8	4.9	A	SZ
0	0.3	5	2.4	4.4	A	SZ
0	0.3	10	2.0	3.8	A	SZ
0	0.3	25	1.6	3.1	A	SZ
0	0.3	50	1.3	2.4	A	SZ
B1-750/B1-125 $H_{AN}=3$ cm, $H_{AB}=20$ cm						
0	0.3	2	2.5	5.9	A	SZ
0	0.3	5	2.2	5.5	A	SZ
0	0.3	10	1.7	4.8	A	SZ
0	0.3	25	1.5	4.0	A	SZ
0	0.3	50	1.3	3.4	A	SZ
B1-1000/B1-125 $H_{AN}=3$ cm, $H_{AB}=20$ cm						
0	0.3	2	1.7	5.9	A	GR
0	0.3	5	1.6	5.5	A	GR
0	0.3	10	1.4	4.8	A	GR
0	0.3	25	1.1	4.0	A	GR
0	0.3	50	0.9	3.4	A	GR

Tabelle A.1 (Fortsetzung): Abgelesene Flutpunkte von Anstaupackungen.

a_T	d_K	u_L	$F_{G,FP,AN}$	$F_{G,FP,AB}$	Konfig.	WA
-	m	$\text{m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$	$\text{Pa}^{0,5}$	$\text{Pa}^{0,5}$		
B1-1000/B1-250 $H_{AN}=3$ cm, $H_{AB}=20$ cm						
0	0.3	2	1.7	4.0	A	GR
0	0.3	5	1.5	3.5	A	GR
0	0.3	10	1.3	3.1	A	GR
0	0.3	25	1.1	2.8	A	GR
0	0.3	50	0.8	2.1	A	GR

Tabelle A.2: Aus Druckverlustmessungen abgelesene Flutpunkte von Strukturpackungen.

	H_P	d_K	u_L	$F_{G,FP}$	WA
	mm	m	$\text{m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$	$\text{Pa}^{0.5}$	-
B1-250M	200	0.6	5	7.9	SZ
B1-250M	200	0.6	10	6.9	SZ
B1-250M	200	0.6	20	6.0	SZ
B1-250M	200	0.6	50	4.3	SZ
B1-250	200	0.6	5	5.0	SZ
B1-250	200	0.6	10	4.6	SZ
B1-250	200	0.6	20	3.9	SZ
B1-250	200	0.6	50	3.4	SZ
B1-500	200	0.6	2	3.5	SZ
B1-500	200	0.6	5	3.1	SZ
B1-500	200	0.6	10	2.7	SZ
B1-500	200	0.6	20	2.3	SZ
B1-500	200	0.6	50	1.5	SZ
B1-750	200	0.6	2	3.2	SZ
B1-750	200	0.6	5	2.8	SZ
B1-750	200	0.6	10	2.2	SZ
B1-750	200	0.6	20	1.2	SZ
B1-750	200	0.6	50	0.9	SZ

Tabelle A.3: Holdup im Sprudelregime aus tomographischen Untersuchungen.

a_{geo} m^2m^{-3}	H_P mm	u_L $\text{m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$	F_G $\text{Pa}^{0.5}$	Δp_H mbar m^{-1}	$h_{L,exp}$ m^3m^{-3}
1000	50	10.1	2.1	13.2	0.357
1000	50	10.1	2.2	21.6	0.345
1000	50	10.1	2.4	27.3	0.351
1000	50	10.1	1.9	10.5	0.370
1000	50	10.1	2.1	20.2	0.365
1000	50	10.1	2.2	26.8	0.365
1000	50	10.1	2.4	31.3	0.331
1000	50	20.0	1.8	18.4	0.370
1000	50	20.0	1.5	7.7	0.422
1000	50	20.0	1.7	20.7	0.410
1000	50	20.0	1.8	30.0	0.418
1000	50	50.0	1.1	16.3	0.470
1000	50	50.0	1.3	38.5	0.508
1000	50	50.0	1.1	10.4	0.438
1000	50	50.0	1.3	29.4	0.453
750	50	5.4	2.4	23.2	0.287
750	50	5.3	2.6	23.9	0.276
750	50	5.0	2.7	-	0.275
750	50	4.9	2.8	-	0.308
750	50	5.5	1.8	10.6	0.226
750	50	5.3	1.9	15.9	0.344
750	50	5.2	2.1	19.7	0.341
750	50	5.1	2.3	20.9	0.322
750	50	4.9	2.4	23.4	0.311
750	50	4.9	2.5	24.8	0.300
750	50	5.1	2.7	-	0.288
750	30	10.1	1.7	13.7	0.099
750	30	10.1	2.1	20.5	0.343
750	30	10.1	2.2	23.4	0.340
750	30	10.1	2.4	33.3	0.368
750	30	10.1	2.6	29.3	0.333
750	30	10.1	1.5	8.1	0.381
750	30	10.1	1.9	16.0	0.368
750	30	10.1	2.1	20.5	0.370
750	30	10.1	1.7	12.8	0.378
750	30	10.1	2.2	22.9	0.355
750	30	10.1	2.4	32.4	0.391
750	30	10.1	2.5	40.8	0.361
750	50	10.5	2.2	25.5	0.332
750	50	10.3	2.4	27.0	0.327
750	50	11.0	2.5	-	0.329
750	50	10.2	1.6	14.3	0.319
750	50	10.4	1.8	20.5	0.342

Tabelle A.3 (Fortsetzung): Holdup im Sprudelregime.

a_{geo} m^2m^{-3}	H_P mm	u_L $m^3m^{-2}h^{-1}$	F_G $Pa^{0.5}$	Δp_H mbar m^{-1}	$h_{L,exp}$ m^3m^{-3}
750	50	10.5	1.9	21.2	0.325
750	50	10.4	2.1	23.6	0.320
750	50	10.3	2.2	26.0	0.302
750	50	10.4	2.4	28.4	0.294
750	50	10.2	2.5	-	0.286
750	50	22.0	1.7	26.6	0.340
750	50	21.2	1.9	29.2	0.362
750	50	21.1	2.1	31.7	0.375
750	30	20.0	1.3	10.7	0.423
750	30	20.0	1.5	13.8	0.402
750	30	20.0	1.7	17.5	0.391
750	30	20.0	1.9	23.1	0.415
750	30	20.0	2.0	30.3	0.429
750	30	20.0	1.7	17.6	0.204
750	30	20.0	1.8	22.9	0.364
750	30	20.0	2.0	27.5	0.373
750	50	20.2	1.2	13.6	0.349
750	50	20.7	1.4	17.4	0.362
750	50	21.0	1.6	21.9	0.354
750	50	20.8	1.7	25.9	0.349
750	50	20.6	1.9	29.4	0.330
750	50	20.7	2.1	32.3	0.331
750	30	50.1	1.3	30.4	0.441
750	50	49.6	1.2	26.2	0.454
750	50	50.9	0.5	2.7	0.201
750	50	50.1	0.7	7.4	0.296
750	50	49.8	0.9	14.3	0.404
750	50	49.9	1.0	18.9	0.447
750	50	49.6	1.2	24.5	0.453
500	50	10.1	2.6	23.7	0.315
500	50	10.1	2.6	27.9	0.212
250	196	5.5	1.8	10.6	0.273
250	196	5.3	1.9	15.9	0.292
250	196	5.2	2.1	19.7	0.283
250	196	5.1	2.3	20.9	0.269
250	196	4.9	2.4	23.4	0.258
250	196	4.9	2.5	24.8	0.256
250	196	5.1	2.7	-	0.247
250	196	5.2	2.3	21.3	0.220
250	196	5.4	2.4	23.2	0.330
250	196	5.3	2.6	23.9	0.319
250	196	5.0	2.7	-	0.311
250	196	4.9	2.8	-	0.330

Tabelle A.3 (Fortsetzung): Holdup im Sprudelregime.

a_{geo} m^2m^{-3}	H_P mm	u_L $\text{m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$	F_G $\text{Pa}^{0.5}$	Δp_H mbar m^{-1}	$h_{L,exp}$ m^3m^{-3}
250	196	10.1	2.1	20.5	0.388
250	196	10.1	2.2	23.4	0.330
250	196	10.1	2.4	33.3	0.350
250	196	10.1	2.6	29.3	0.319
250	196	10.1	1.9	16.0	0.452
250	196	10.1	2.1	20.5	0.436
250	196	10.1	1.7	12.8	0.468
250	196	10.1	2.2	22.9	0.425
250	196	10.1	2.4	32.4	0.426
250	196	10.1	2.5	40.8	0.419
250	196	10.1	2.1	13.2	0.353
250	196	10.1	2.2	21.6	0.344
250	196	10.1	2.4	27.3	0.343
250	196	10.1	1.9	10.5	0.371
250	196	10.1	2.1	20.2	0.388
250	196	10.1	2.2	26.8	0.345
250	196	10.1	2.4	31.3	0.323
250	196	10.1	2.6	23.7	0.324
250	196	10.1	2.6	27.9	0.232
250	196	10.6	2.1	22.2	0.236
250	196	10.5	2.2	25.5	0.366
250	196	10.3	2.4	27.0	0.362
250	196	11.0	2.5	-	0.357
250	196	10.7	1.4	8.9	0.314
250	196	10.2	1.6	14.3	0.310
250	196	10.4	1.8	20.5	0.314
250	196	10.5	1.9	21.2	0.296
250	196	10.4	2.1	23.6	0.292
250	196	10.3	2.2	26.0	0.288
250	196	10.4	2.4	28.4	0.267
250	196	10.2	2.5	-	0.263
250	196	21.6	1.6	21.2	0.180
250	196	22.0	1.7	26.6	0.392
250	196	21.2	1.9	29.2	0.402
250	196	21.1	2.1	31.7	0.413
250	196	20.0	1.5	7.7	0.420
250	196	20.0	1.7	20.7	0.419
250	196	20.0	1.8	30.0	0.443
250	196	20.0	1.1	5.5	0.268
250	196	20.0	1.3	10.7	0.522
250	196	20.0	1.5	13.8	0.525
250	196	20.0	1.7	17.5	0.490
250	196	20.0	1.9	23.1	0.516

Tabelle A.3 (Fortsetzung): Holdup im Sprudelregime.

a_{geo} m^2m^{-3}	H_P mm	u_L $\text{m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$	F_G $\text{Pa}^{0.5}$	Δp_H mbar m^{-1}	$h_{L,exp}$ m^3m^{-3}
250	196	20.0	2.0	30.3	0.477
250	196	20.0	1.8	18.4	0.369
250	196	20.0	1.5	14.1	0.138
250	196	20.0	1.7	17.6	0.291
250	196	20.0	1.8	22.9	0.362
250	196	20.0	2.0	27.5	0.362
250	196	20.2	1.2	13.6	0.363
250	196	20.7	1.4	17.4	0.351
250	196	21.0	1.6	21.9	0.342
250	196	20.8	1.7	25.9	0.345
250	196	20.6	1.9	29.4	0.324
250	196	20.7	2.1	32.3	0.319
250	196	50.0	0.9	12.6	0.215
250	196	50.0	1.1	18.7	0.417
250	196	50.1	1.3	30.4	0.444
250	196	49.6	1.2	26.2	0.497
250	196	50.0	1.1	10.4	0.442
250	196	50.0	1.3	29.4	0.450
250	196	50.0	0.9	12.4	0.605
250	196	50.0	1.1	19.6	0.604
250	196	50.0	1.3	29.9	0.596
250	196	50.1	0.7	7.4	0.341
250	196	49.8	0.9	14.3	0.419
250	196	49.9	1.0	18.9	0.429
250	196	49.6	1.2	24.5	0.431

Tabelle A.4: Phasengrenzfläche im Sprudelregime aus tomographischen Untersuchungen.

a_{geo} m^2m^{-3}	H_P mm	u_L $\text{m}^3\text{m}^{-2}\text{h}^{-1}$	F_G $\text{Pa}^{0.5}$	Δp_H mbar m^{-1}	$a_{int,exp}$ m^2m^{-3}
250	196	10.1	1.9	16.9	206.3
250	196	10.1	1.7	13.7	206.6
250	196	10.1	2.1	20.5	209.0
250	196	10.1	2.2	23.4	207.3
250	196	10.1	2.4	33.3	205.9
250	196	10.1	2.6	29.3	207.5
250	196	20.0	1.5	14.1	206.9
250	196	20.0	1.7	17.6	206.1
250	196	20.0	1.8	22.9	208.3
250	196	20.0	2.0	27.5	206.7
250	196	50.0	0.9	12.6	208.1
250	196	50.0	1.1	18.7	204.4
250	196	50.1	1.3	30.4	204.0
250	196	20.0	1.7	10.8	206.9
250	196	20.0	1.8	18.4	205.2
250	196	10.1	2.1	13.2	204.0
250	196	10.1	2.2	21.6	201.5
250	196	10.1	2.4	27.3	201.5
250	196	50.0	1.1	10.4	201.7
250	196	50.0	1.3	29.4	202.5
250	196	50.0	1.5	11.3	214.6
250	196	10.1	2.6	23.7	213.3
250	196	21.6	1.6	21.2	210.9
250	196	22.0	1.7	26.6	214.7
250	196	21.2	1.9	29.2	212.2
250	196	21.1	2.1	31.7	205.3
500	50	20.0	2.0	18.2	358.4
500	50	50.0	1.3	6.1	355.9
500	50	10.1	2.4	11.5	345.2
500	50	10.1	2.6	27.9	345.6
750	50	10.1	1.3	3.5	441.3
750	50	20.2	1.2	13.6	415.2
750	50	20.7	1.4	17.4	413.1
750	50	21.0	1.6	21.9	410.7
750	50	20.8	1.7	25.9	415.0
750	50	20.6	1.9	29.4	422.6
750	50	20.7	2.1	32.3	416.7
750	50	49.6	1.2	24.5	397.7

Tabelle A.5: Eintrittsbedingungen der experimentellen Untersuchungen zur CO₂-Absorption mit Anstaupackungen.

Nr.	Gas am Eintritt					Flüssigkeit am Eintritt					
	$T_{G,ein}$ °C	$p_{G,ein}$ bar	$y_{CO_2,ein}$ mol mol ⁻¹	$y_{H_2O,ein}$ mol mol ⁻¹	$y_{Luft,ein}$ mol mol ⁻¹	G_{ein} mol s ⁻¹	$T_{L,ein}$ °C	$x_{MEA,ein}$ mol mol ⁻¹	$x_{H_2O,ein}$ mol mol ⁻¹	$x_{CO_2,ein}$ mol mol ⁻¹	L_{ein} mol s ⁻¹
B1-750/B1-250 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm											
C40.3	28.43	1.039	0.0573	0.0444	0.8983	0.4678	43.42	0.0617	0.9237	0.0146	1.084
C40.1	33.15	1.017	0.0520	0.0631	0.8849	0.2286	43.09	0.0648	0.9204	0.0147	1.071
C41	31.08	1.014	0.0548	0.0897	0.8555	0.4115	39.82	0.0629	0.9224	0.0148	2.613
C41.1	32.84	1.035	0.0516	0.0883	0.8601	0.4338	39.52	0.0597	0.9249	0.0154	2.646
C42.1	31.00	1.031	0.0554	0.0800	0.8646	0.4114	38.59	0.0632	0.9202	0.0167	4.395
C42.2	30.70	0.997	0.0530	0.0734	0.8735	0.2386	38.55	0.0614	0.9218	0.0168	4.412
C43.1	34.43	1.026	0.0523	0.0838	0.8640	0.3070	39.27	0.0616	0.9218	0.0165	4.385
C43.2	27.55	1.034	0.0481	0.0764	0.8755	0.3359	38.87	0.0613	0.9243	0.0144	4.403
C43.3	21.91	1.037	0.0483	0.0715	0.8802	0.3430	38.69	0.0610	0.9244	0.0146	4.400
C44.1	33.07	1.039	0.0538	0.0359	0.9103	0.3226	20.18	0.0605	0.9248	0.0146	4.410
C44.2	33.17	1.039	0.0541	0.0564	0.8895	0.3140	30.29	0.0607	0.9256	0.0137	4.410
C44.3	33.63	1.042	0.0524	0.0840	0.8635	0.3157	39.61	0.0598	0.9251	0.0151	4.420
C45.1	30.59	1.052	0.1299	0.0973	0.7728	0.4185	39.49	0.0601	0.9243	0.0156	2.766
C45.2	31.12	1.046	0.0890	0.0966	0.8144	0.4127	39.42	0.0600	0.9239	0.0161	2.773
C45.3	32.18	1.025	0.0556	0.0871	0.8573	0.4006	39.42	0.0606	0.9242	0.0151	2.767
C46.1	31.09	1.043	0.1234	0.1284	0.7482	0.4077	39.48	0.1157	0.8589	0.0254	2.496
C46.2	31.53	1.045	0.0877	0.1131	0.7992	0.4076	39.45	0.1123	0.8614	0.0263	2.542
C46.3	30.78	1.046	0.0517	0.0868	0.8614	0.4169	38.46	0.1093	0.8597	0.0311	2.560
C47.1	30.98	1.044	0.0893	0.0943	0.8164	0.3949	38.61	0.1108	0.8599	0.0293	4.057
C47.2	21.44	1.057	0.0792	0.0826	0.8382	0.4434	38.85	0.1094	0.8602	0.0304	4.083

Tabelle A.5 (Fortsetzung): Eintrittsbedingungen der experimentellen Untersuchungen zur CO₂-Absorption mit Anstaupackungen.

Gas am Eintritt				Flüssigkeit am Eintritt							
Nr.	$T_{G,ein}$ °C	$p_{G,ein}$ bar	$y_{CO_2,ein}$ mol mol ⁻¹	$y_{H_2O,ein}$ mol mol ⁻¹	$y_{Luft,ein}$ mol mol ⁻¹	G_{ein} mol s ⁻¹	$T_{L,ein}$ °C	$x_{MEA,ein}$ mol mol ⁻¹	$x_{H_2O,ein}$ mol mol ⁻¹	$x_{CO_2,ein}$ mol mol ⁻¹	L_{ein} mol s ⁻¹
C48.1	30.77	1.050	0.0868	0.0951	0.8201	0.4038	39.93	0.1093	0.8589	0.0318	4.086
C48.2	31.36	1.048	0.0944	0.0422	0.8634	0.4016	20.44	0.1108	0.8571	0.0321	4.080
C49.1	30.22	1.012	0.0503	0.0689	0.8808	0.2422	41.73	0.1128	0.8590	0.0282	0.997
C49.2	29.57	1.033	0.0568	0.0545	0.8887	0.4574	40.04	0.1137	0.8551	0.0312	0.996
C49.3	28.28	1.076	0.0577	0.0413	0.9010	0.7773	40.04	0.1125	0.8554	0.0321	1.001
C50.1	31.82	1.013	0.1018	0.0604	0.8377	0.3873	40.16	0.1169	0.8522	0.0310	0.987
B1-750/B1-250 H_{AN} =3 cm, H_{AB} =19.6 cm											
C51.1	29.71	1.049	0.1237	0.1147	0.7615	0.3968	39.79	0.1142	0.8539	0.0319	2.531
C51.2	30.68	1.024	0.0879	0.0957	0.8164	0.4056	40.12	0.1133	0.8536	0.0331	2.547
C51.3	29.83	1.023	0.0542	0.0812	0.8646	0.4112	40.33	0.1111	0.8562	0.0327	2.560
C53.1	31.41	1.014	0.0920	0.0412	0.8668	0.4079	39.05	0.1247	0.8431	0.0322	0.961
C53.2	30.68	1.024	0.0879	0.0957	0.8164	0.4056	40.12	0.1133	0.8536	0.0331	2.547
C53.3	32.18	1.033	0.0867	0.0960	0.8173	0.4071	38.60	0.0891	0.8833	0.0275	4.224
C52.1	30.70	1.035	0.0872	0.0901	0.8227	0.4107	39.26	0.1101	0.8551	0.0349	4.089
C52.2	29.71	1.031	0.0940	0.0341	0.8719	0.4086	19.11	0.1115	0.8559	0.0327	4.083
C53.4	33.35	1.038	0.0859	0.0925	0.8216	0.4094	39.68	0.1070	0.8635	0.0294	4.095
C54.1	31.45	0.986	0.0483	0.0720	0.8797	0.2295	39.80	0.1094	0.8644	0.0262	2.557
C54.2	30.01	1.017	0.0502	0.0767	0.8731	0.4746	39.13	0.1085	0.8631	0.0284	2.559

Tabelle A.5 (Fortsetzung): Eintrittsbedingungen der experimentellen Untersuchungen zur CO₂-Absorption mit Anstaupackungen.

Gas am Eintritt					Flüssigkeit am Eintritt						
Nr.	$T_{G,ein}$ °C	$p_{G,ein}$ bar	$y_{CO_2,ein}$ mol mol ⁻¹	$y_{H_2O,ein}$ mol mol ⁻¹	$y_{Luft,ein}$ mol mol ⁻¹	G_{ein} mol s ⁻¹	$T_{L,ein}$ °C	$x_{MEA,ein}$ mol mol ⁻¹	$x_{H_2O,ein}$ mol mol ⁻¹	$x_{CO_2,ein}$ mol mol ⁻¹	L_{ein} mol s ⁻¹
B1-750/B1-250 H_{AN} =7 cm, H_{AB} =19.6 cm											
C55.1	30.85	1.021	0.0886	0.0544	0.8570	0.4297	40.78	0.1086	0.8635	0.0279	1.007
C55.2	32.26	1.057	0.0833	0.0919	0.8248	0.4276	39.38	0.1053	0.8618	0.0328	4.122
C56.1	32.49	0.999	0.0565	0.0821	0.8614	0.2850	40.29	0.1055	0.8707	0.0239	2.584
C54.2	30.01	1.017	0.0502	0.0767	0.8731	0.4746	39.13	0.1085	0.8631	0.0284	2.559
C57.1	33.39	1.022	0.0482	0.1054	0.8464	0.4122	41.67	0.1007	0.8907	0.0087	2.527
C57.2	31.32	1.014	0.0523	0.1013	0.8464	0.4060	40.77	0.0975	0.8898	0.0127	2.561
C57.3	30.64	1.024	0.0498	0.0950	0.8552	0.4125	39.40	0.0968	0.8865	0.0166	2.580
C57.4	30.30	1.022	0.0516	0.0971	0.8513	0.4121	40.15	0.0951	0.8845	0.0204	2.598
B1-1000/B1-250 H_{AN} =5 cm, H_{AB} =19.6 cm											
C60.1	28.62	1.052	0.1335	0.1018	0.7647	0.4179	39.11	0.0653	0.9213	0.0134	2.729
C60.2	28.82	1.052	0.0882	0.0994	0.8124	0.4222	40.68	0.0628	0.9237	0.0135	2.751
C60.3	28.85	1.052	0.0898	0.1017	0.8085	0.4200	40.91	0.0667	0.9186	0.0147	2.727
C60.4	30.03	1.047	0.0542	0.0926	0.8532	0.4104	40.11	0.0612	0.9249	0.0139	2.757
C61.1	27.67	1.058	0.0594	0.0441	0.8966	0.4750	43.81	0.0706	0.9139	0.0155	1.063
C61.2	29.50	1.079	0.0516	0.0712	0.8772	0.4376	40.22	0.0630	0.9232	0.0138	4.366
C62.1	31.96	1.015	0.0541	0.0684	0.8774	0.2195	40.37	0.0656	0.9208	0.0136	1.070

Tabelle A.5 (Fortsetzung): Eintrittsbedingungen der experimentellen Untersuchungen zur CO₂-Absorption mit Anstaupackungen.

Gas am Eintritt						Flüssigkeit am Eintritt					
Nr.	$T_{G,ein}$ °C	$p_{G,ein}$ bar	$y_{CO_2,ein}$ mol mol ⁻¹	$y_{H_2O,ein}$ mol mol ⁻¹	$y_{Luft,ein}$ mol mol ⁻¹	G_{ein} mol s ⁻¹	$T_{L,ein}$ °C	$x_{MEA,ein}$ mol mol ⁻¹	$x_{H_2O,ein}$ mol mol ⁻¹	$x_{CO_2,ein}$ mol mol ⁻¹	L_{ein} mol s ⁻¹
B1-500/B1-250 H_{AN} =5 cm, H_{AB} =19.6 cm											
C63.1	28.32	1.041	0.1385	0.0627	0.7988	0.4181	39.56	0.0609	0.9257	0.0134	2.763
C63.2	28.01	1.034	0.0909	0.0616	0.8476	0.4222	40.60	0.0598	0.9252	0.0150	2.773
C63.3	30.86	1.018	0.0579	0.0656	0.8765	0.4072	39.82	0.0624	0.9237	0.0139	2.752
C64.1	29.01	1.004	0.0627	0.0454	0.8918	0.4579	42.19	0.0671	0.9159	0.0170	1.072
C64.2	30.59	1.043	0.0553	0.0596	0.8850	0.4226	38.45	0.0621	0.9222	0.0156	4.389
C64.3	30.57	1.043	0.0554	0.0589	0.8857	0.4219	38.10	0.0613	0.9223	0.0164	4.404
C65.1	31.02	1.018	0.0562	0.0624	0.8815	0.3793	39.49	0.0613	0.9218	0.0169	4.404
C66.1	32.41	1.007	0.0545	0.0657	0.8798	0.2255	39.61	0.0626	0.9221	0.0153	4.382
C66.2	27.72	1.066	0.0548	0.0533	0.8920	0.4914	39.68	0.0603	0.9239	0.0158	4.416
B1-750/B1-250.60 H_{AN} =5 cm, H_{AB} =19.6 cm											
C70.1	27.40	1.037	0.1411	0.0538	0.8050	0.4201	39.28	0.0632	0.9227	0.0141	2.744
C71.1	26.98	1.014	0.0614	0.0388	0.8998	0.4496	38.58	0.0601	0.9273	0.0126	1.081
C72.2	29.33	1.032	0.0529	0.0616	0.8855	0.3610	40.86	0.0578	0.9288	0.0134	4.417
C72.3	28.36	1.035	0.0582	0.0562	0.8856	0.4136	40.26	0.0601	0.9270	0.0130	4.391
C70.3	27.35	1.033	0.0558	0.0521	0.8921	0.4234	40.11	0.0582	0.9288	0.0130	2.773

Tabelle A.6: Experimentelle Ergebnisse zur CO₂-Absorption.

Nr	Δp_H mbar m ⁻¹	γ_{Abs} -	$\Delta N_{G,Abs,CO_2}$ mol s ⁻¹	$\Delta N_{L,Abs,CO_2}$ mol s ⁻¹	N_{ein,CO_2} mol s ⁻¹	N_{aus,CO_2} mol s ⁻¹
B1-750/B1-250 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm						
C40.3	7.81	0.43	0.0115	0.0089	0.0426	0.0401
C40.1	1.41	0.81	0.0096	0.0079	0.0276	0.0259
C41	11.30	0.81	0.0183	0.0183	0.0611	0.0610
C41.1	12.53	0.77	0.0172	0.0155	0.0630	0.0613
C42.1	15.40	0.81	0.0184	0.0169	0.0959	0.0944
C42.2	5.50	0.92	0.0116	0.0100	0.0868	0.0852
C43.1	9.02	0.92	0.0148	0.0108	0.0885	0.0845
C43.2	11.74	0.90	0.0145	0.0148	0.0793	0.0796
C43.3	12.47	0.91	0.0150	0.0135	0.0808	0.0793
C44.1	8.70	0.83	0.0143	0.0132	0.0818	0.0806
C44.2	8.51	0.88	0.0149	0.0142	0.0772	0.0765
C44.3	10.01	0.90	0.0149	0.0147	0.0832	0.0831
C45.1	14.61	0.47	0.0257	0.0231	0.0976	0.0950
C45.2	13.25	0.59	0.0218	0.0202	0.0813	0.0797
C45.3	10.82	0.78	0.0174	0.0158	0.0641	0.0626
C46.1	14.44	0.82	0.0410	0.0353	0.1136	0.1079
C46.2	10.51	0.82	0.0293	0.0277	0.1026	0.1011
C46.3	10.71	0.77	0.0167	0.0151	0.1010	0.0994
C47.1	13.04	0.87	0.0308	0.0288	0.1542	0.1521
C47.2	16.86	0.79	0.0278	0.0250	0.1592	0.1564
C48.1	13.96	0.81	0.0284	0.0278	0.1649	0.1643
C48.2	13.23	0.69	0.0261	0.0240	0.1688	0.1667
C49.1	1.65	0.79	0.0096	0.0086	0.0403	0.0393
C49.2	7.25	0.58	0.0151	0.0099	0.0570	0.0518
C49.3	18.81	0.33	0.0150	0.0117	0.0770	0.0738
C50.1	5.10	0.46	0.0183	0.0133	0.0700	0.0651
B1-750/B1-250 $H_{AN}=3$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm						
C51.1	9.71	0.58	0.0283	0.0277	0.1297	0.1291
C51.2	8.22	0.63	0.0226	0.0207	0.1198	0.1180
C51.3	7.92	0.69	0.0155	0.0162	0.1059	0.1066
C53.1	4.48	0.50	0.0189	0.0181	0.0684	0.0676
C53.2	8.22	0.63	0.0226	0.0207	0.1198	0.1180
C53.3	11.63	0.81	0.0285	0.0267	0.1515	0.1498
C52.1	10.65	0.70	0.0251	0.0261	0.1783	0.1793
C52.2	9.57	0.76	0.0293	0.0304	0.1716	0.1727
C53.4	11.33	0.79	0.0279	0.0244	0.1557	0.1522
C54.1	2.29	0.90	0.0100	0.0143	0.0779	0.0822
C54.2	11.22	0.73	0.0173	0.0169	0.0965	0.0961

Tabelle A.6 (Fortsetzung): Experimentelle Ergebnisse zur CO₂-Absorption.

Nr	Δp_H mbar m ⁻¹	γ_{Abs} -	$\Delta N_{G,Abs,CO_2}$ mol s ⁻¹	$\Delta N_{L,Abs,CO_2}$ mol s ⁻¹	N_{ein,CO_2} mol s ⁻¹	N_{aus,CO_2} mol s ⁻¹
B1-750/B1-250 $H_{AN}=7$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm						
C55.1	4.27	0.38	0.0144	0.0125	0.0662	0.0643
C55.2	17.13	0.74	0.0262	0.0262	0.1709	0.1709
C56.1	3.61	0.89	0.0143	0.0205	0.0777	0.0839
C57.1	6.83	0.97	0.0194	0.0180	0.0418	0.0404
C57.2	6.69	0.96	0.0204	0.0194	0.0536	0.0527
C57.3	6.75	0.92	0.0189	0.0184	0.0634	0.0629
C57.4	5.24	0.89	0.0190	0.0173	0.0744	0.0726
B1-1000/B1-250 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm						
C60.1	22.46	0.60	0.0334	0.0274	0.0923	0.0863
C60.2	21.69	0.77	0.0287	0.0251	0.0743	0.0707
C60.3	21.59	0.71	0.0267	0.0235	0.0778	0.0746
C60.4	19.92	0.85	0.0189	0.0169	0.0604	0.0584
C61.1	18.14	0.56	0.0157	0.0118	0.0446	0.0407
C61.2	25.03	0.87	0.0196	0.0194	0.0826	0.0823
C62.1	5.58	0.84	0.0099	0.0091	0.0264	0.0256
B1-500/B1-250 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm						
C63.1	12.11	0.49	0.0285	0.0274	0.0949	0.0939
C63.2	9.58	0.58	0.0224	0.0204	0.0800	0.0780
C63.3	3.20	0.71	0.0168	0.0149	0.0618	0.0599
C64.1	2.71	0.39	0.0112	0.0088	0.0469	0.0445
C64.2	13.88	0.76	0.0178	0.0174	0.0920	0.0916
C64.3	13.84	0.76	0.0178	0.0176	0.0957	0.0955
C65.1	5.91	0.75	0.0159	0.0156	0.0957	0.0953
B1-750/B1-250.60 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm						
C70.1	11.15	0.56	0.0332	0.0258	0.0980	0.0907
C71.1	5.27	0.52	0.0143	0.0103	0.0412	0.0371
C72.2	9.89	0.89	0.0170	0.0151	0.0783	0.0764
C72.3	12.19	0.87	0.0208	0.0179	0.0810	0.0780
C70.3	9.50	0.82	0.0193	0.0174	0.0596	0.0578

Tabelle A.7: Kolonnenprofile der Gasphasentemperatur in °C.

TIR- H_K / m	04	K1-6	K1-5	K1-4	K1-3	K1-2	K1-1	03
	4,08	2,35	1,82	1,59	1,06	0,53	0,00	-0,05
B1-750/B1-250 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm								
C40.3	50.03	49.31	45.97	43.89	41.25	37.09	30.85	28.14
C40.1	50.50	55.05	55.50	55.35	52.15	45.89	37.15	31.51
C41	38.80	40.37	44.46	46.28	49.87	51.60	43.77	31.08
C41.1	38.87	40.62	44.96	46.58	49.78	50.73	43.47	32.84
C42.1	38.02	38.71	40.35	40.85	42.16	43.65	41.58	31.00
C42.2	37.82	38.30	39.51	39.31	40.19	41.54	39.96	30.70
C43.1	39.12	39.49	40.85	41.04	42.00	43.68	42.45	34.43
C43.2	38.87	39.29	40.60	40.87	41.74	43.48	40.70	27.55
C43.3	38.72	39.14	40.43	40.72	41.69	43.33	39.46	21.91
C44.1	21.17	21.62	21.27	22.06	22.58	23.77	27.17	33.07
C44.2	30.26	30.77	31.66	32.03	32.86	34.25	35.09	33.17
C44.3	39.59	39.93	41.35	41.55	42.52	44.20	42.52	33.63
C45.1	44.93	62.11	65.80	63.85	61.33	56.54	45.35	30.59
C45.2	41.66	48.16	56.83	58.11	58.27	55.32	45.21	31.12
C45.3	38.38	39.94	43.36	44.40	47.26	48.92	43.19	32.18
C46.1	53.15	74.37	77.25	75.40	72.11	66.09	50.86	31.09
C46.2	38.17	40.95	47.22	51.05	58.35	59.19	48.32	31.53
C46.3	38.08	39.72	42.70	43.77	46.99	48.93	43.14	30.78
C47.1	37.86	38.77	41.23	41.92	44.59	47.70	44.74	30.98
C47.2	38.15	39.58	41.99	43.17	45.40	47.46	42.18	21.44
C48.1	38.98	40.28	42.99	43.80	46.15	48.57	44.89	30.77
C48.2	21.62	22.58	22.94	24.26	25.68	27.28	29.95	31.36
C49.1	47.54	50.68	56.42	55.32	53.94	48.65	38.78	30.22
C49.2	49.06	51.40	51.18	48.14	46.28	41.97	34.47	29.57
C49.3	45.16	41.17	39.85	37.79	35.60	32.75	29.58	28.28
C50.1	52.92	55.23	53.34	51.43	47.61	41.94	36.36	31.82
B1-750/B1-250 $H_{AN}=3$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm								
C51.1	40.99	53.95	69.74	68.16	66.41	60.56	48.59	29.71
C51.2	38.62	41.15	49.56	50.16	53.86	54.18	45.02	30.68
C51.3	38.69	40.02	44.34	44.54	46.99	48.46	41.85	29.83
C53.1	55.11	55.75	53.80	50.98	41.64	39.75	29.55	31.41
C53.2	38.62	41.15	49.56	50.16	53.86	54.18	45.02	30.68
C53.3	38.36	38.87	43.03	43.50	44.91	48.45	41.08	32.18
C52.1	38.34	39.59	42.99	43.20	44.39	46.92	43.86	30.70
C52.2	20.15	20.47	21.66	22.30	23.06	24.52	26.31	29.71
C53.4	39.94	40.56	44.73	45.06	46.44	49.93	44.36	33.35
C54.1	38.02	38.49	41.09	40.85	42.42	44.66	39.59	31.45
C54.2	40.13	41.79	48.17	48.80	50.83	51.03	40.79	30.01

Tabelle A.7 (Fortsetzung): Kolonnenprofile der Gasphasentemperatur in °C.

TIR- H_K / m	04	K1-6	K1-5	K1-4	K1-3	K1-2	K1-1	03
	4,08	2,35	1,82	1,59	1,06	0,53	0,00	-0,05
B1-750/B1-250 $H_{AN}=7$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm								
C55.1	52.60	52.19	49.40	47.28	44.33	39.23	34.44	30.85
C55.2	39.38	40.92	43.37	43.98	46.22	48.67	44.23	32.26
C56.1	40.88	41.69	44.51	44.32	47.04	49.52	42.07	32.49
C57.1	40.30	40.36	42.85	43.41	46.70	53.10	46.91	33.39
C57.2	40.85	41.02	44.17	44.87	48.76	54.17	46.13	31.32
C57.3	39.08	39.53	42.89	43.53	47.04	51.90	44.87	30.64
C57.4	40.72	41.36	45.34	46.18	49.84	53.81	45.30	30.30
B1-1000/B1-250 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm								
C60.1	46.04	63.29	68.62	66.35	63.17	59.43	46.22	28.62
C60.2	42.90	48.89	61.82	62.18	61.58	58.93	45.77	28.82
C60.3	43.19	48.18	61.33	61.64	60.96	58.38	46.22	28.85
C60.3	40.55	40.68	46.14	46.75	49.90	51.52	44.39	30.03
C61.1	48.93	48.22	48.51	45.69	42.96	39.00	30.71	27.67
C61.2	39.95	39.90	42.28	42.42	44.04	45.67	39.39	29.50
C62.1	43.16	51.24	62.55	61.41	59.63	54.45	38.65	31.96
B1-500/B1-250 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm								
C63.1	44.22	63.29	67.70	65.21	62.68	56.49	37.01	28.32
C63.2	42.72	48.72	61.76	61.75	61.02	55.89	36.70	28.01
C63.3	39.51	39.44	45.55	45.65	48.99	49.86	37.86	30.86
C64.1	46.45	48.11	46.54	45.81	41.68	37.94	31.25	29.01
C64.2	38.53	38.31	41.15	41.22	42.44	44.52	36.11	30.59
C64.3	38.38	38.50	41.02	41.10	42.21	44.13	35.88	30.57
C65.1	39.46	39.21	42.05	41.97	42.80	44.60	36.93	31.02
C66.1	38.57	38.01	40.64	40.53	40.99	42.77	37.88	32.41
C66.2	39.68	39.56	42.33	42.44	44.05	45.52	34.07	27.72
B1-750/B1-250.60 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm								
C70.1	43.85	60.73	65.46	64.61	60.09	55.21	34.26	27.40
C71.1	46.38	48.79	48.55	45.64	41.29	37.35	28.52	26.98
C72.2	41.10	40.83	43.19	43.26	44.57	46.30	36.70	29.33
C72.3	40.00	40.05	42.38	42.67	44.68	46.06	35.04	28.36
C70.3	40.80	42.43	46.79	47.64	50.83	50.64	33.67	27.35

Tabelle A.8: CO₂-Konzentrationsprofile der Gasphase in mol mol⁻¹.

H_K / m	K1-1	K1-2	K1-3	K1-5	K1-6	K1-7	K1-8
	0	0,53	1,06	1,82	2,35	2,88	4,08
B1-750/B1-250 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm							
C40.3	0.0573	-	-	-	-	-	0.0308
C40.1	0.0520	-	-	-	-	-	0.0098
C41	0.0548	-	-	-	-	-	0.0112
C41.1	0.0516	-	0.0387	0.0329	-	-	0.0128
C42.1	0.0554	-	-	-	-	-	0.0113
C42.2	0.0530	-	-	-	-	-	0.0047
C43.1	0.0523	-	0.0261	0.0137	0.0088	-	0.0043
C43.2	0.0481	-	0.0256	0.0148	0.0094	-	0.0052
C43.3	0.0483	-	0.0246	0.0099	0.0094	-	0.0048
C44.1	0.0538	-	0.0351	0.0235	0.0175	-	0.0099
C44.2	0.0541	-	0.0305	0.0183	0.0167	-	0.0070
C44.3	0.0524	-	0.0290	0.0171	0.0118	-	0.0056
C45.1	0.1299	-	-	-	0.0901	-	0.0738
C45.2	0.0890	-	-	-	-	-	0.0390
C45.3	0.0556	-	-	-	-	-	0.0131
C46.1	0.1234	-	-	-	-	-	0.0253
C46.2	0.0877	-	-	-	-	-	0.0182
C46.3	0.0517	-	-	-	-	-	0.0125
C47.1	0.0893	-	-	-	-	-	0.0127
C47.2	0.0792	-	-	-	-	-	0.0180
C48.1	0.0868	-	-	-	-	-	0.0183
C48.2	0.0944	-	-	-	-	-	0.0319
C49.1	0.0503	-	-	-	-	-	0.0108
C49.2	0.0568	-	-	-	-	-	0.0230
C49.3	0.0577	-	-	-	-	-	0.0370
C50.1	0.1018	-	-	-	-	-	0.0525
B1-750/B1-250 $H_{AN}=3$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm							
C51.1	0.1237	-	-	-	-	-	0.0594
C51.2	0.0879	-	-	-	-	-	0.0354
C51.3	0.0542	-	-	-	-	-	0.0175
C53.1	0.0920	-	-	-	-	-	0.0421
C53.2	0.0879	-	-	-	-	-	0.0354
C53.3	0.0867	-	-	-	-	-	0.0186
C52.1	0.0872	-	-	-	-	-	0.0286
C52.2	0.0940	-	-	-	-	-	0.0244
C53.4	0.0859	-	-	-	-	-	0.0197
C54.1	0.0483	-	-	-	-	-	0.0049
C54.2	0.0502	-	-	-	-	-	0.0144

Tabelle A.8 (Fortsetzung): CO₂-Konzentrationsprofile der Gasphase in mol mol⁻¹.

H_K / m	K1-1	K1-2	K1-3	K1-5	K1-6	K1-7	K1-8
	0	0,53	1,06	1,82	2,35	2,88	4,08
B1-750/B1-250 $H_{AN}=7$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm							
C55.1	0.0886	-	-	-	-	-	0.0519
C55.2	0.0833	-	-	-	-	-	0.0242
C56.1	0.0565	0.0408	0.0309	-	0.0135	-	0.0066
C57.1	0.0482	-	0.0171	-	-	-	0.0014
C57.2	0.0523	-	0.0210	-	-	-	0.0023
C57.3	0.0498	-	0.0253	-	-	-	0.0042
C57.4	0.0516	-	0.0295	-	-	-	0.0059
B1-1000/B1-250 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm							
C60.1	0.1335	-	-	-	-	-	0.0589
C60.2	0.0882	-	-	-	-	-	0.0221
C60.3	0.0898	-	-	-	-	-	0.0287
C60.4	0.0542	-	-	-	-	-	0.0087
C61.1	0.0594	-	-	-	-	-	0.0252
C61.2	0.0516	-	-	-	-	-	0.0071
C62.1	0.0541	-	-	-	-	-	0.0092
B1-500/B1-250 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm							
C63.1	0.1385	-	-	-	-	-	0.0735
C63.2	0.0909	-	-	-	-	-	0.0390
C63.3	0.0579	-	-	-	-	-	0.0174
C64.1	0.0627	-	-	-	-	-	0.0369
C64.2	0.0553	-	-	-	-	-	0.0138
C64.3	0.0554	-	-	-	-	-	0.0138
C65.1	0.0562	-	-	-	-	-	0.0148
C66.1	0.0545	-	-	-	-	-	0.0054
C66.2	0.0548	-	-	-	-	-	0.0133
B1-750/B1-250.60 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm							
C70.1	0.1411	-	-	-	-	-	0.0652
C71.1	0.0614	-	-	-	-	-	0.0285
C72.2	0.0529	-	-	-	-	-	0.0062
C72.3	0.0582	-	-	-	-	-	0.0081
C70.3	0.0558	-	-	-	-	-	0.0104

Tabelle A.9: CO₂-Beladungsprofile der flüssigen Phase in mol_{CO2} mol_{MEA}⁻¹.

H_K / m	K1	K1-1	K1-2	K1-3	K1-5	K1-6	K1-7	K1-8
	-0,66	0,00	0,53	1,06	1,82	2,35	2,88	3,54

B1-750/B1-250 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm								
C40.3	-	-	0.3789	0.3786	0.3598	-	-	0.2372
C40.1	-	-	0.3264	0.3011	0.2697	-	-	-
C41	0.3417	0.3314	0.3121	0.3013	0.2676	0.2495	0.2365	0.2346
C41.1	0.3448	0.3393	0.3100	0.2924	0.2734	0.2730	0.2535	0.2571
C42.1	0.3198	0.3282	0.3098	0.2948	0.2757	0.2717	0.2697	0.2637
C42.2	0.3090	0.3065	0.2903	0.2879	0.2697	0.2731	0.2712	0.2737
C43.1	0.2983	0.2992	0.2767	0.2917	0.2844	0.2705	0.2758	0.2683
C43.2	0.2847	0.2811	0.2681	0.2513	0.2403	0.2400	0.2317	0.2341
C43.3	0.2807	0.2798	0.2700	0.2513	0.2429	0.2321	0.2348	0.2395
C44.1	0.2854	0.2820	0.2611	0.2637	0.2553	0.2473	0.2458	0.2415
C44.2	0.2725	0.2744	0.2503	0.2500	0.2431	0.2331	0.2355	0.2251
C44.3	0.3018	0.3022	0.2809	0.2764	0.2641	0.2569	0.2563	0.2524
C45.1	0.3984	0.3899	0.3804	0.3738	0.3546	0.3329	-	0.2604
C45.2	0.3918	0.3888	0.3701	0.3550	0.3299	0.3092	0.2702	0.2681
C45.3	0.3365	0.3523	0.3203	0.3080	0.2750	0.2630	0.2568	0.2496
C46.1	0.3398	0.3437	0.3228	0.2924	0.2482	0.2317	0.2179	0.2193
C46.2	0.3135	0.3180	0.3044	0.2916	0.2608	0.2733	0.2516	0.2347
C46.3	0.3336	0.3338	0.3250	0.3113	0.2918	0.2873	0.2826	0.2843
C47.1	0.3213	0.3139	0.3025	0.2933	0.2774	0.2771	0.2603	0.2647
C47.2	0.3294	0.3209	0.3123	0.2951	0.2919	0.2853	0.2782	0.2781
C48.1	0.3426	0.3439	0.3278	0.3191	0.3064	0.2980	0.2902	0.2908
C48.2	0.3376	0.3375	0.3263	0.3139	0.3049	0.3014	0.2939	0.2900
C49.1	0.3255	0.3319	0.3112	0.3066	0.2814	-	-	0.2499
C49.2	0.3936	0.3717	-	0.3547	0.3205	-	-	0.2743
C49.3	0.3977	0.3992	0.3830	-	0.3584	0.3680	0.3333	0.2856
C50.1	0.3966	0.3970	0.3845	0.3731	0.3435	-	-	0.2652

B1-750/B1-250 $H_{AN}=3$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm								
C51.1	0.3735	0.3674	0.3507	0.3300	0.2984	0.2931	0.2735	0.2788
C51.2	0.3614	0.3641	0.3526	0.3431	0.3217	0.2847	0.3092	0.2919
C51.3	0.3493	0.3500	0.3336	0.3230	0.2963	0.3078	0.2937	0.2942
C53.1	0.4376	0.3916	0.3741	0.3596	0.3364	-	-	0.2579
C53.2	0.3614	0.3641	0.3526	0.3431	0.2077	0.2847	0.3092	0.2919
C53.3	0.3116	0.2958	0.2911	0.2743	0.2606	0.2564	0.2495	0.2495
C52.1	0.3620	0.3435	0.3136	0.3344	0.3220	0.3165	0.3162	0.3168
C52.2	0.3498	0.3285	0.3222	0.3235	0.3132	0.3097	-	0.2929
C53.4	0.3144	0.3062	0.3031	0.2978	0.2773	0.2777	0.2737	0.2751
C54.1	0.2856	0.2789	0.2645	0.2629	0.2578	0.2520	0.2556	0.2390
C54.2	0.3198	0.3116	0.2990	0.2930	0.2761	0.2691	0.2495	0.2621

Tabelle A.9 (Fortsetzung): CO₂-Beladungsprofile der flüssigen Phase in mol_{CO2} mol_{MEA}⁻¹.

H_K / m	K1	K1-1	K1-2	K1-3	K1-5	K1-6	K1-7	K1-8
	-0,66	0,00	0,53	1,06	1,82	2,35	2,88	3,54
B1-750/B1-250 $H_{AN}=7$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm								
C55.1	0.3755	0.3783	-	-	-	-	0.2645	0.2572
C55.2	0.3401	0.3295	0.3337	0.3017	0.2962	0.3195	0.3034	0.3118
C56.1	0.2950	0.2792	0.2734	0.2302	-	-	0.2322	0.2264
C57.1	0.1505	0.1303	-	-	0.0796	-	0.0770	0.0844
C57.2	0.2021	0.1851	-	-	0.1312	-	0.1253	0.1299
C57.3	0.2451	0.2328	-	-	0.1868	-	0.1694	0.1715
C57.4	0.2803	0.2725	-	-	0.2284	-	0.2077	0.2150
B1-1000/B1-250 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm								
C60.1	0.3668	0.3918	0.3834	0.3458	-	0.2571	0.2345	0.2046
C60.2	0.3602	0.3593	0.3375	0.3093	-	0.2281	0.2143	0.2145
C60.3	0.3755	0.3711	0.3595	0.3253	-	0.2745	0.2492	0.2209
C60.4	0.3177	0.3031	0.2785	0.2799	-	0.2289	0.2250	0.2264
C61.1	0.3897	0.3936	-	0.3657	-	0.2824	0.2576	0.2195
C61.2	0.2842	0.2865	0.2626	0.2468	0.2331	0.2227	0.2189	0.2182
C62.1	0.3502	0.3461	0.3085	0.2892	-	0.2230	0.2135	0.2076
B1-500/B1-250 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm								
C63.1	0.3828	0.3807	0.3582	-	-	0.2864	0.2785	0.2202
C63.2	0.3770	0.3671	0.3445	0.3476	-	0.2920	-	0.2515
C63.3	0.3069	0.3141	0.2866	-	-	0.2342	-	0.2226
C64.1	0.3822	0.3803	0.3725	-	-	0.3502	0.2578	0.2535
C64.2	0.3129	0.3096	0.2911	0.2730	-	0.2564	0.2535	0.2519
C64.3	0.3306	0.3302	0.3088	0.3039	-	0.2838	0.2738	0.2681
C65.1	0.3309	0.3229	0.3162	0.2997	-	0.2793	0.2807	0.2759
C66.1	0.2765	0.2775	0.2645	0.2530	-	0.2472	0.2410	0.2452
C66.2	0.3243	0.3242	0.3032	0.2878	-	0.2655	0.2539	0.2619
B1-750/B1-250.60 $H_{AN}=5$ cm, $H_{AB}=19.6$ cm								
C70.1	0.3787	0.3830	0.3760	0.3470	0.3254	0.2841	0.2405	0.2237
C71.1	0.3873	0.3755	-	-	0.3200	0.2942	0.2604	0.2097
C72.2	0.2853	0.2720	0.2622	0.2468	0.2345	0.2297	0.2213	0.2319
C72.3	0.2799	0.2908	0.2615	0.2513	0.2341	0.2203	0.2156	0.2159
C70.3	0.3281	0.3192	0.2942	0.2787	0.2472	0.2352	0.2160	0.2233

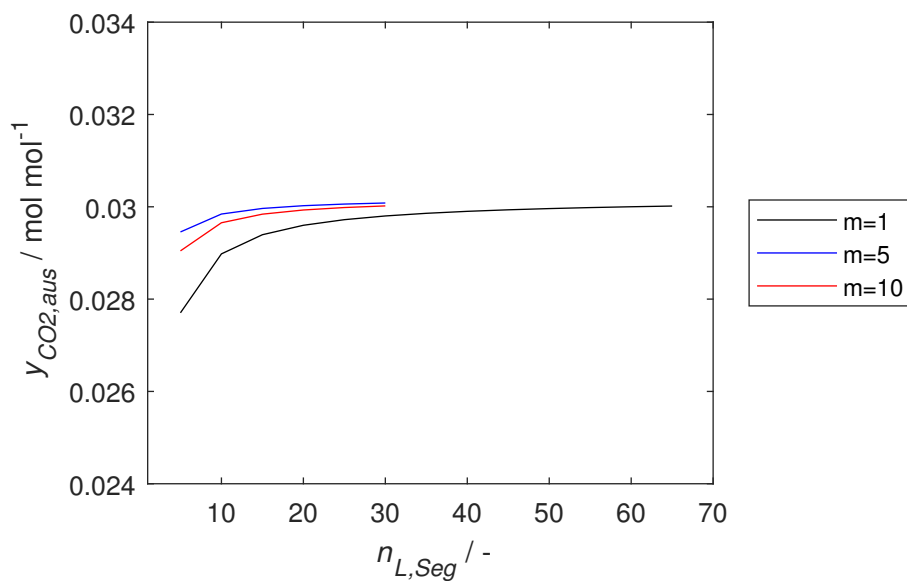


Abbildung A.1: CO_2 -Kolonnenaustrittskonzentration der Gasphase in Abhängigkeit der Anzahl der Filmsegmente im Film der flüssigen Phase für verschiedene Stauungsparameter m (vgl. Studie 2, **Table 5.2**).

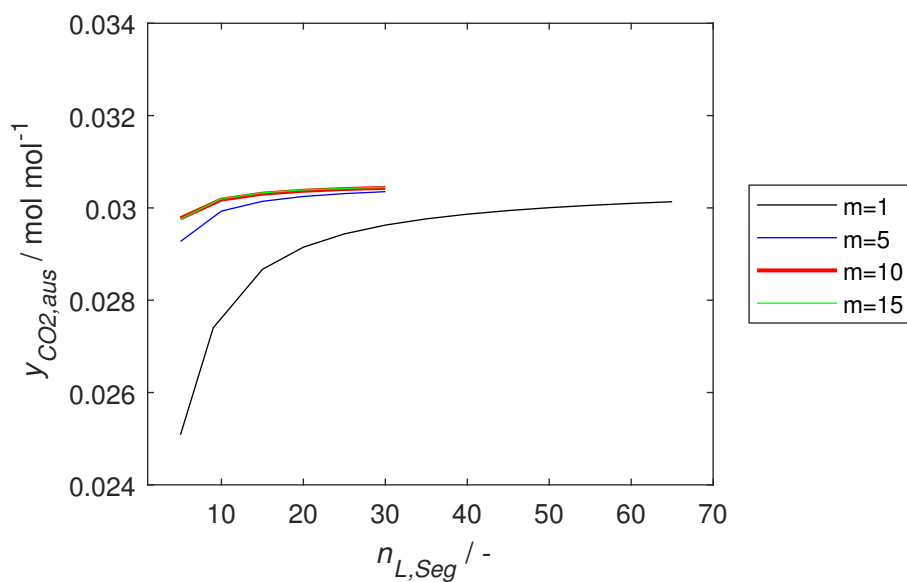


Abbildung A.2: CO_2 -Kolonnenaustrittskonzentration der Gasphase in Abhängigkeit der Anzahl der Filmsegmente im Film der flüssigen Phase für verschiedene Stauungsparameter m (vgl. Studie 3, **Table 5.2**).

Literaturverzeichnis

- 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 (14), 3413–3422.
- Agar, D. W., 1999. Multifunctional reactors: Old preconceptions and new dimensions. *Chemical Engineering Science* 54 (10), 1299–1305.
- Austgen, D. M., Rochelle, G., Peng, X., Chen, C.-C., 1989. Model of vapor-liquid equilibria for aqueous acid gas-alkanolamine systems using the electrolyte-NRTL Equation. *Industrial and Engineering Chemistry Research* 28, 1060–1073.
- Bals, A., 2002. Grundlagen der Blasenbildung an Einzelporen und Lochplatten. *Chemie Ingenieur Technik* 74 (3), 337–344.
- Becht, S., Franke, R., Geißelmann, A., Hahn, H., 2009. An industrial view of process intensification. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 48 (1), 329–332.
- Behr, P., Maun, A., Deutgen, K., Tunnat, A., Oeljeklaus, G., Görner, K., 2011. Kinetic study on promoted potassium carbonate solutions for CO₂ capture from flue gas. *Energy Procedia* 4, 85–92.
- Behrens, M., Olujić, Ž., Jansens, P. J., 2006. Combining reaction with distillation: hydrodynamic and mass transfer performance of modular catalytic structured packings. *Chemical Engineering Research and Design* 84 (5), 381–389.
- Bender, P., Moll, A., 2003. Modifications to structured packings to increase their capacity. *Chemical Engineering Research and Design* 81 (1), 58–67.
- Bennett, D. L., Agrawal, R., Cook, P. J., 1983. New pressure drop correlation for sieve tray distillation columns. *AIChE Journal* 29 (3), 434–442.
- Billet, R., Schultes, M., 1999. Prediction of mass transfer columns with dumped and arranged packings. *Chemical Engineering Research and Design* 77 (6), 498–504.
- Bird, R. B., Stewart, W. E., Lightfoot, E. N., 2007. *Transport phenomena*, revised 2. ed Edition. John Wiley & Sons Inc, New York.

- Blaß, E., 1988. Bildung und Koaleszenz von Blasen und Tropfen. *Chemie Ingenieur Technik* 60 (12), 935–947.
- Bottoms, R. R., 1931. Organic bases for gas purification. *Industrial and Engineering Chemistry* 23 (5), 501–504.
- Bremer, G. G., Kalis, G., 1987. A new method to predict hold-up and pressure drop in packed columns. *Transactions of the Institution of Chemical Engineers* 56, 200–204.
- Brinkmann, U., 2014. Modellierung reaktiver Trennprozesse in Apparaten mit strukturierten Einbauten: Dissertation Universität Paderborn. Verl. Dr. Hut, München.
- Brinkmann, U., Hoffmann, A., Kaibel, B., Jödecke, M., Kenig, E. Y., 2009. Ein rate-based Ansatz zur Berechnung der Trennleistung von Anstaupackungen. *Chemie Ingenieur Technik* 81 (8), 1085.
- Brinkmann, U., Kaibel, B., Jödecke, M., Maćkowiak, J., Kenig, E. Y., 2012. Beschreibung der Fluidodynamik von Anstaupackungen. *Chemie Ingenieur Technik* 84 (1-2), 36–45.
- Buchanan, J. E., 1969. Pressure gradient and liquid holdup in irrigated packed towers. *Industrial and Engineering Chemistry Fundamentals* 8 (3), 502–511.
- Chilton, T. H., Colburn, A. P., 1935. Distillation and absorption in packed columns: A convenient design and correlation method. *Industrial and Engineering Chemistry* 27 (3), 255–260.
- Cussler, E. L., 2011. *Diffusion: Mass transfer in fluid systems*, 3rd Edition. Cambridge University Press, Cambridge.
- Danckwerts, P. V., 1951. The significance of liquid-film coefficients in gas absorption. *Industrial and Engineering Chemistry* 43 (6), 1460–1467.
- Danckwerts, P. V., 1979. The reaction of CO₂ with ethanolamines. *Chemical Engineering Science* 34 (4), 443–446.
- Dey, A., Aroonwilas, A., 2009. CO₂ absorption into MEA-AMP blend: Mass transfer and absorber height index. *Energy Procedia* 1 (1), 211–215.
- Dugas, R., Rochelle, G., 2009. Absorption and desorption rates of carbon dioxide with monoethanolamine and piperazine. *Energy Procedia* 1 (1), 1163–1169.
- Duss, M., Meierhofer, H., Nutter, D. E., 2001. Effective interfacial area and liquid holdup of nutter rings at high liquid loads. *Chemical Engineering and Technology* 24 (7), 716–723.
- Engel, V., 1999. *Fluidodynamik in Packungskolonnen für Gas-Flüssig-Systeme*. Fortschritt-Berichte / VDI Reihe 3, Verfahrenstechnik 605. VDI-Verl., Düsseldorf.
- Fischer, F., Hampel, U., 2010. Ultra fast electron beam X-ray computed tomography for two-phase flow measurement. *Nuclear Engineering and Design* 240 (9), 2254–2259.

- Fischer, F., Hoppe, D., Schleicher, E., Mattausch, M., Flaske, H., Bartel, R., Hampel, U., 2008. An ultra fast electron beam x-ray tomography scanner. *Measurement Science and Technology* 19 (9), 094002.
- Flehsig, S., Borgolte, T., Utchenko, Y., Sohr, J., Schubert, M., Hampel, U., Kenig, E. Y., 2019. Rate-based-Modellierung von CO₂-Absorptionskolonnen mit Anstaupackungen. *Chemie Ingenieur Technik* 91 (1-2), 125–138.
- Flehsig, S., Yildirim, Ö., Kenig, E. Y., 2016. Sandwich packings: State of the art. *ChemBioEng Reviews* 3 (4), 174–185.
- Frank, M., Kuipers, J., Krishna, R., van Swaaij, W., 1995. Modelling of simultaneous mass and heat transfer with chemical reaction using the Maxwell-Stefan theory: II. Non-isothermal study. *Chemical Engineering Science* 50 (10), 1661–1671.
- Górak, A., Stankiewicz, A., 2011. Intensified reaction and separation systems. *Annual review of chemical and biomolecular engineering* 2, 431–451.
- 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.
- Gualito, J. J., Cerino, F. J., Cardenas, J. C., Rocha, J. A., 1997. Design method for distillation columns filled with metallic, ceramic, or plastic structured packings. *Industrial and Engineering Chemistry Research* 36 (5), 1747–1757.
- Hammami, E., 2017. Einfluss der Designparameter von Anstaupackungen auf die CO₂-Absorption. Bachelorarbeit, Betreuer: Flehsig, S., Universität Paderborn, Lehrstuhl für Fluidverfahrenstechnik.
- Hechler, H., Mersmann, A., 1986. Phasengrenzfläche und Stoffaustausch im Sprudelregime auf Kolonnenböden. *Chemie Ingenieur Technik* 58 (10), 822–823.
- Hegely, L., Roesler, J., Alix, P., Rouzineau, D., Meyer, M., 2017. Absorption methods for the determination of mass transfer parameters of packing internals: A literature review. *AIChE Journal* 63 (8), 3246–3275.
- Higbie, R., 1935. The rate of absorption of a pure gas into a still liquid during short periods of exposure. *Transactions of the American Institute of chemical Engineers* 31, 365–389.
- Hikita, H., Asai, S., Ishikawa, H., Honda, M., 1977. The kinetics of reactions of carbon dioxide with monoethanolamine, diethanolamine and triethanolamine by a rapid mixing method. *The Chemical Engineering Journal* 13 (1), 7–12.
- Hochgesand, G., 1968. Anwendung von Absorptionsverfahren für die CO₂-Entfernung aus Natur- und Synthesegasen. *Chemie Ingenieur Technik* 40 (9-10), 432–440.
- Hoffmann, A., Maćkowiak, J. F., Górak, A., Haas, M., Löning, J.-M., Runowski, T., Hallenberger, K., 2007. Standardization of Mass Transfer Measurements. *Chemical Engineering Research and Design* 85 (1), 40–49.

- Hoffmann, U., Sundmacher, K., 1997. Multifunktionale Reaktoren. *Chemie Ingenieur Technik* 69 (5), 613–622.
- Holma, H., Sohlo, J., 1979. A mathematical model of an absorption tower of nitrogen oxides in nitric acid production. *Computers and Chemical Engineering* 3 (1-4), 135–141.
- Hüpen, B., 2008. Rigorose Modellierung und Simulation von Chemisorptionsprozessen: Dissertation Technische Universität Dortmund, 1st Edition. *Verfahrenstechnik*. Verl. Dr. Hut, München.
- Hüpen, B., Kenig, E. Y., 2005. Rigorose Modellierung und Simulation von Chemisorptionsprozessen. *Chemie Ingenieur Technik* 77 (11), 1792–1799.
- Hüser, N., 2017. Untersuchung der Abscheidung von Kohlenstoffdioxid mit Alkanolaminen: Dissertation Universität Paderborn. Verl. Dr. Hut, München.
- Jödecke, M., Friese, T., Schuch, G., Kaibel, B., Jansen, H., 2006. The sandwich packing: A new type of structured packing to increase capacity and mass transfer of distillation columns. *Institution of Chemical Engineers Symposium Series* 152.
- Kaibel, B., 2008. Druckverlustmessungen herkömmlicher Packungen: Montz GmbH Hilden. E-Mail an Brinkmann, U. 17.06.2008.
- Kaibel, B., Kaibel, G., Stammer, A., Stroezel, M., 2000. Leistungssteigerung von Kolonnenpackungen durch Kombination von konventionellen Packungselementen. *Chemie Ingenieur Technik* 9 (72), 962–963.
- Kashani, N., 2002. Untersuchungen zum fluiddynamischen Verhalten der Anstaupackung. Diplomarbeit, Fachhochschule Regensburg, Regensburg.
- Kashani, N., Siegert, M., Sirch, T., 2004. Ein Sandwich zum Destillieren: Die Anstaupackung. *Chemie Ingenieur Technik* 76 (7), 929–933.
- Kenig, E., 2000. Modeling of multicomponent mass transfer in separation of fluid mixtures. Vol. 633 *Fortschritt-Berichte / VDI Reihe 3, Verfahrenstechnik*. VDI-Verl., Düsseldorf.
- Kenig, E. Y., Górak, A., 2005. Reactive Absorption. In: Sundmacher, K., Kienle, A., Seidel-Morgenstern, A. (Eds.), *Integrated Chemical Processes*. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, FRG, pp. 265–311.
- Kenig, E. Y., Klöcker, M., Górak, A., 2005. Ein innovativer Ansatz zur Optimierung reaktiver Trennverfahren. *Chemie Ingenieur Technik* 77 (1-2), 46–53.
- Kenig, E. Y., Schneider, R., Górak, A., 2001. Reactive absorption: Optimal process design via optimal modelling. *Chemical Engineering Science* 56 (2), 343–350.
- Kister, H. Z., 1992. *Distillation design*. McGraw Hill, New York.
- Klöcker, M., Kenig, E. Y., Hoffmann, A., Kreis, P., Górak, A., 2005. Rate-based modelling and simulation of reactive separations in gas/vapour–liquid systems. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 44 (6), 617–629.

- Krishna, R., Wesselingh, J. A., 1997. The Maxwell-Stefan approach to mass transfer. *Chemical Engineering Science* 52 (6), 861–911.
- Kucka, L., 2003. Modellierung und Simulation der reaktiven Absorption von Sauer gasen mit Alkanolaminlösungen: Dissertation Technische Universität Dortmund. Berichte aus der Verfahrenstechnik. Shaker, Aachen.
- Kucka, L., Müller, I., Kenig, E. Y., Górak, A., 2003. On the modelling and simulation of sour gas absorption by aqueous amine solutions. *Chemical Engineering Science* 58 (16), 3571–3578.
- Kunze, A.-K., Lutze, P., Kopatschek, M., Maćkowiak, J. F., Maćkowiak, J., Grünwald, M., Górak, A., 2015. Mass transfer measurements in absorption and desorption: Determination of mass transfer parameters. *Chemical Engineering Research and Design* 104, 440–452.
- Kunze, A.-K., Lutze, P., Schoenmakers, H., Müller, S., Kopatschek, M., Maćkowiak, J., Maćkowiak, J., Górak, A., Grünwald, M., 2012. Die Notwendigkeit einer Standardisierung von Stofftransportmessungen in der Ab- und Desorption. *Chemie Ingenieur Technik* 84 (11), 1931–1938.
- Kvamsdal, H. M., Rochelle, G. T., 2008. Effects of the temperature bulge in CO₂ absorption from flue gas by aqueous monoethanolamine. *Industrial and Engineering Chemistry Research* 47 (3), 867–875.
- Last, W., Stichlmair, J., 2002. Determination of mass transfer parameters by means of chemical absorption. *Chemical Engineering and Technology* 25 (4), 385–391.
- Lautenschleger, A., Olenberg, A., Kenig, E. Y., 2015. A systematic CFD-based method to investigate and optimise novel structured packings. *Chemical Engineering Science* 122, 452–464.
- Lewis, W. K., Whitman, W. G., 1924. Principles of gas absorption. *Industrial and Engineering Chemistry* 16 (12), 1215–1220.
- Lockett, M. J., 2009. Distillation tray fundamentals. Cambridge Univ. Press, Cambridge.
- Lockett, M. J., Victor, R., Billingham, J. F., 2006. Structured packing flooding: Its measurement and prediction. *Industrial Chemical Engineering Symposium Series* 152, 400–408.
- Lohrengel, B., 2010. Einführung in die thermischen Trennverfahren: Trennung von Gas-, Dampf- und Flüssigkeitsgemischen. Oldenbourg, München.
- Maćkowiak, J., 2003. Fluidodynamik von Füllkörpern und Packungen: Grundlagen der Kolonnenauslegung, 2nd Edition. VDI-Buch. Springer, Berlin, Heidelberg.
- McNulty, K. J., Hsieh, C. L., 1982. Hydraulic performance and efficiency of Koch Flexipac structured packings. AIChE Annual Meeting Los Angeles (November).
- Mersmann, A., 1965. Zur Berechnung des Flutpunktes in Füllkörperschüttungen. *Chemie Ingenieur Technik* 37 (3), 218–226.

- Metzen, B., Shilkin, A., Großmann, C., 2010. Die Anstaupackung: Untersuchungsergebnisse im organischen Stoffsystem bei hohen Flüssigkeitsbelastungen. Processnet Jahrestagung Fluidverfahrenstechnik Fulda, März.
- Nicolaiewsky, E. M. A., Fair, J. R., 1999. Liquid flow over textured surfaces: 1. Contact angles. *Industrial and Engineering Chemistry Research* 38 (1), 284–291.
- Notz, R. J., Tönnies, I., McCann, N., Scheffknecht, G., Hasse, H., 2011. CO₂ Capture for fossil fuel-fired power plants. *Chemical Engineering and Technology* 34 (2), 163–172.
- Ohlbrock, S., 2018. Der Einfluss der spezifischen Oberfläche der Anstaulage auf die Absorptionscharakteristik von Anstaupackungen. Bachelorarbeit, Betreuer: Flechsig, S., Universität Paderborn, Lehrstuhl für Fluidverfahrenstechnik.
- Olajire, A. A., 2010. CO₂ capture and separation technologies for end-of-pipe applications – A review. *Energy* 35 (6), 2610–2628.
- Olenberg, A., Kenig, E. Y., 2020. Numerical investigation of liquid flow morphology in structured packings. *Chemical Engineering Science* 219, 115559.
- Olenberg, A., Reschetnik, W., Kullmer, G., Kenig, E. Y., 2018. Optimization of structured packings using twisted tape inserts. *Chemical Engineering Research and Design* 132, 1–8.
- Olujć, Ž., 1999. Effect of column diameter on pressure drop of a corrugated sheet structured packing. *Chemical Engineering Research and Design* 77 (6), 505–510.
- Olujć, Ž., Behrens, M., Colli, L., Paglianti, A., 2004. Predicting the efficiency of corrugated sheet structured packings with large specific surface area. *Chemical Biochemical Engineering Quarterly* 18 (2), 89–96.
- Olujć, Ž., Behrens, M., Spiegel, L., 2007. Experimental characterization and modeling of the performance of a large-specific-area high-capacity structured packing. *Industrial and Engineering Chemistry Research* 46 (3), 883–893.
- Olujć, Ž., Kaibel, B., Jansen, H., Rietfort, T., Zich, E., Frey, G., 2003. Distillation column internals: Configurations for process intensification. *Chemical Biochemical Engineering Quarterly* 17 (4), 301–309.
- Olujć, Ž., Kamerbeek, A. B., de Graauw, J., 1999. A corrugation geometry based model for efficiency of structured distillation packing. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 38 (4-6), 683–695.
- Onda, K., Takeuchi, H., Okumozo, Y., 1968. Mass transfer coefficients between gas and liquid phases in packed columns. *Journal of Chemical Engineering of Japan* 1 (1), 56–62.
- Patwardhan, J. A., P. Pradhan, M., B. Joshi, J., 2002. Simulation of NO_x gas absorption under adiabatic condition and comparison with plant data. *Chemical Engineering Science* 57 (22-23), 4831–4844.

- Pilling, M., Holden, B., 2009. Choosing trays and packings for distillation. *Chemical Engineering Progress* 105 (9), 44–50.
- Pinset, B. R. W., Pearson, L., Roughton, F. J. W., 1956. The kinetics of combination of carbon dioxide with hydroxide ions. *Transactions of the Faraday Society* 52, 1512–1520.
- Poling, B. E., Prausnitz, J. M., O'Connell, J. P., 2020. *Properties of gases and liquids*, fifth edition Edition. McGraw-Hill's AccessEngineering. McGraw-Hill Education, New York.
- Putta, K. R., Tobiesen, F. A., Svendsen, H. F., Knuutila, H. K., 2017. Applicability of enhancement factor models for CO₂ absorption into aqueous MEA solutions. *Applied Energy* 206, 765–783.
- Razi, N., Bolland, O., Svendsen, H., 2012. Review of design correlations for CO₂ absorption into MEA using structured packings. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 9, 193–219.
- Rejl, J. F., Linek, V., Moucha, T., Valenz, L., 2009. Methods standardization in the measurement of mass-transfer characteristics in packed absorption columns. *Chemical Engineering Research and Design* 87 (5), 695–704.
- 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 (4), 641–651.
- Rolker, J., Arlt, W., 2006. Abtrennung von Kohlendioxid aus Rauchgasen mittels Absorption. *Chemie Ingenieur Technik* 78 (4), 416–424.
- Sakwattanapong, R., Aroonwilas, A., Veawab, A., 2009. Reaction rate of CO₂ in aqueous MEA-AMP solution: Experiment and modeling. *Energy Procedia* 1 (1), 217–224.
- Schneider, R., 2001. *Modelloptimierung für die dynamische Simulation der reaktiven Absorption und Rektifikation*: Dissertation Technische Universität Dortmund. Vol. 689 Fortschritt-Berichte / VDI Reihe 3, Verfahrenstechnik. VDI-Verl., Düsseldorf.
- Schpigel, L., Meier, W., 1994. Performance characteristics of various types of Mellapak packings (productivity, pressure differential, and deficiency). *Chemical and Petroleum Engineering* 30 (3), 118–125.
- 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 (7), 979–991.
- Schug, S., Arlt, W., 2016. Imaging of fluid dynamics in a structured packing using X-ray computed tomography. *Chemical Engineering and Technology* 39 (8), 1561–1569.
- Schultes, M., 1998. Absorption of sulphur dioxide with sodium hydroxide solution in packed columns. *Chemical Engineering and Technology* 21 (2), 201–209.
- Schwartz, C. E., Smith, J. M., 1953. Flow distribution in packed beds. *Industrial and Engineering Chemistry* 45 (6), 1209–1218.

- Seader, J. D., Henley, E. J., 2006. Separation process principles, 2nd Edition. Wiley, Hoboken.
- Sema, T., Naami, A., Usubharatana, P., Wang, X., Gao, R., Liang, Z., Idem, R., Tontiwachwuthikul, P., 2013. Mass transfer of CO₂ absorption in hybrid MEA-methanol solvents in packed column. *Energy Procedia* 37, 883–889.
- Sherwood, T. K., Shipley, G. H., Holloway, F. A. L., 1938. Flooding velocities in packed columns. *Industrial and Engineering Chemistry* 30 (7), 765–769.
- Sohr, J., Bieberle, M., George, G. R., Flechsig, S., Kenig, E. Y., Schubert, M., Hampel, U., 2019a. Comparative assessment of different image processing methods to determine the gas–liquid interfacial area in froth regimes of sandwich packings from ultrafast X-ray tomography image data. *Chemical Engineering Research and Design* 147, 676–688.
- Sohr, J., Schubert, M., Flechsig, S., Kenig, E. Y., Hampel, U., 2018. Experimental investigation of fluid dynamics in sandwich packings with ultrafast X-ray tomography. *Chemical Engineering Transactions* 69, 727–732.
- Sohr, J., Schubert, M., Flechsig, S., Kenig, E. Y., Hampel, U., 2019b. Experimental investigation of the froth height in columns with sandwich packings. *Chemie Ingenieur Technik* 91 (1-2), 139–144.
- Srivastava, R. K., Jozewicz, W., 2001. Flue gas desulfurization: The state of the art. *Journal of the Air and Waste Management Association* 51 (12), 1676–1688.
- Stichlmair, J., 1978. Grundlagen der Dimensionierung des Gas/Flüssigkeit-Kontaktapparates Bodenkolonne: Habilitations-Schrift Technische Universität München, 1st Edition. Reprotext. Verl. Chemie, Weinheim.
- Stichlmair, J., Bravo, J. L., Fair, J. R., 1989. General model for prediction of pressure drop and capacity of countercurrent gas/liquid packed columns. *Gas Separation and Purification* 3 (1), 19–28.
- Stichlmair, J., Fair, J. R., 1998. Distillation: principles and practice. Wiley-VCH, New York.
- Subramanian, K., Wozny, G., 2012. Analysis of hydrodynamics of fluid flow on corrugated sheets of packing. *International Journal of Chemical Engineering* 2012, 1–13.
- Suess, P., Spiegel, L., 1992. Hold-up of Mellapak structured packings. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 31 (2), 119–124.
- Taylor, R., Krishna, R., 1993. Multicomponent mass transfer. Wiley series in chemical engineering. Wiley, New York.
- Taylor, R., Krishna, R., Kooijman, H. A., 2003. Reactions and separations: Real-world modeling of distillation. *Chemical Engineering Progress* 99 (7), 28–38.
- Thiele, R., Spuhl, O., 2008. Aktuelle Herausforderungen in der industriellen Absorption. *Chemie Ingenieur Technik* 80 (9), 1296.

- Tsai, R. E., Seibert, A. F., Eldridge, R. B., Rochelle, G. T., 2011. A dimensionless model for predicting the mass-transfer area of structured packing. *AIChE Journal* 57 (5), 1173–1184.
- Utchenko, Y., 2017. CO₂-Absorption in Anstaupackungen. Studienarbeit, Betreuer: Flechsig, S., Universität Paderborn, Lehrstuhl für Fluidverfahrenstechnik.
- Vaidya, P. D., Kenig, E. Y., 2007. CO₂-alkanolamine reaction kinetics: A review of recent studies. *Chemical Engineering and Technology* 30 (11), 1467–1474.
- Verschoof, H.-J., Olujic, Z., Fair, J. R., 1999. A general correlation for predicting the loading point of corrugated sheet structured packings. *Industrial and Engineering Chemistry Research* 38 (10), 3663–3669.
- von Harbou, I., Imle, M., Hasse, H., 2014. Modeling and simulation of reactive absorption of CO₂ with MEA: Results for four different packings on two different scales. *Chemical Engineering Science* 105, 179–190.
- Wallis, G. B., 1969. One-dimensional two-phase flow. McGraw-Hill, New York.
- Wang, G. Q., Yuan, X. G., Yu, K. T., 2005. Review of mass-transfer correlations for packed columns. *Industrial and Engineering Chemistry Research* 44 (23), 8715–8729.
- Wesselingh, J. A., 1997. Non-equilibrium modelling of distillation. *Chemical Engineering Research and Design* 75 (6), 529–538.
- Wijn, E. F., 1999. Weir flow and liquid height on sieve and valve trays. *Chemical Engineering Journal* 73 (3), 191–204.
- Wolf, V., Lehner, M., Hoffmann, K., 2015. Influences of the experimental setup configuration on mass transfer measurements in absorption systems. *Chemical Engineering Research and Design* 99, 228–235.
- Wolf-Zöllner, V., Seibert, F., Lehner, M., 2019. Performance comparison of different pressure drop, hold-up and flooding point correlations for packed columns. *Chemical Engineering Research and Design* 141, 388–401.
- Yildirim, Ö., 2016. Theoretische und experimentelle Untersuchung der Strömungs- und Transportvorgänge von Anstaupackungen. Dissertation universität paderborn, Verlag Dr. Hut, München.
- Yildirim, Ö., Flechsig, S., Brinkmann, U., Kenig, E. Y., 2015. Bestimmung der Lastgrenzen konventioneller Strukturpackungen und Anstaupackungen mithilfe des Wallis-Plots. *Chemie Ingenieur Technik* 87 (10), 1348–1356.
- Yildirim, Ö., Kenig, E. Y., 2015. Rate-based modelling and simulation of distillation columns with sandwich packings. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 98, 147–154.
- Yildirim, Ö., Kiss, A. A., Hüser, N., Leßmann, K., Kenig, E. Y., 2012. Reactive absorption in chemical process industry: A review on current activities. *Chemical Engineering Journal* 213, 371–391.

Yildirim, Ö., Kiss, A. A., Kenig, E. Y., 2011. Dividing wall columns in chemical process industry: A review on current activities. *Separation and Purification Technology* 80 (3), 403–417.

Zelfel, E., 1967. Der Druckverlust beim Durchströmen der Flüssigkeitsschicht auf einem Siebboden. *Chemie Ingenieur Technik* 39 (5-6), 284–290.

Zeng, Q., Guo, Y., Niu, Z., Lin, W., 2013. The absorption rate of CO₂ by aqueous ammonia in a packed column. *Fuel Processing Technology* 108, 76–81.

Zogg, M., 1973. Stoffaustausch in der Sulzer-Gewebepackung. *Chemie Ingenieur Technik* 45 (2), 67–74.

Zuiderweg, F. J., 1982. Sieve trays: A view on the state of the art. *Chemical Engineering Science* 37 (10), 1441–1464.

Erklärung zur Zitation aus studentischen Arbeiten

In Ergänzung zu meinem Antrag auf Zulassung zur Promotion in der Fakultät für Maschinenbau der Universität Paderborn erkläre ich gemäß §11 der Promotionsordnung und unter Beachtung der Regelung zur Zitation studentischer Arbeiten:

Die von mir vorgelegte Dissertation habe ich selbstständig verfasst, und ich habe keine anderen als die dort angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt. Es sind **Inhalte** studentischen Ursprungs (studentische Arbeiten) in dieser Dissertation enthalten.

Ich habe die verwendeten Arbeiten entsprechend der Regelung „Zitation aus studentischen Arbeiten in Dissertationen“ zitiert.

Paderborn, 28.08.2023

Steve Flechsig