

Minireaktoren im Schlepptau aufsteigender Gasblasen

Rechnergestützte Intensivierung von Gas-Flüssig-Prozessen

RWTHTHEMEN 2/2007

Gas-Flüssig-Reaktionen bilden die Grundlage für bedeutende Prozesse der chemischen Industrie mit Umsätzen im Bereich mehrerer Millionen Jahrestonnen. Bei dieser Art chemischer Umwandlungen kommt einer der Reaktionspartner aus der Gasphase, wie zum Beispiel Luftsauerstoff als Oxidationsmittel. Dieser geht aus den Gasblasen in die Flüssigkeit über, wo er auf den zweiten Partner trifft und die chemischen Reaktionen stattfinden. Als konkreter industrierelevanter Prozess sei die Partialoxidation von aus Erdöl gewonnenem Cyclohexan zur Adipinsäure genannt. Die Adipinsäure ist wiederum ein wichtiger Rohstoff zur Herstellung von Kunststoffen – speziell Nylon – sowie Weichmachern. Damit ein solcher Prozess überhaupt starten kann, sind also Gas und Flüssigkeit in Kontakt zu bringen. Dies geschieht in so genannten Kontaktapparaten. Eine wichtige Klasse solcher Kontaktapparate bilden die Blasensäulen, bei denen am Fuß einer Säule Luft oder ein anderes Gas in eine umgebende Flüssigkeit gepumpt wird. Die Flüssigkeit strömt entweder in dieselbe Richtung oder im Gegenstrom. Durch Auftrieb steigen die Blasen in der Flüssigphase auf und vermischen diese dabei. Es kann deshalb auf verschleißanfällige mechanische Rührelemente verzichtet werden. Die durch Blasenbewegung erzeugte Vermischung erfolgt zudem unter geringer mechanischer Beanspruchung, so dass in biochemischen Prozessen vorhandene Enzyme oder Mikroorganismen nicht geschädigt werden. Deshalb kommt den reagierenden Zweiphasenströmungen in Blasensäulen eine hohe verfahrenstechnische Bedeutung zu.

Sowohl die Auslegung als auch der optimale Betrieb industrieller Blasensäulen sind extrem anspruchsvolle Aufgaben. Da umfangreiche experimentelle Untersuchungen nur im Labor und im Technikumsmaßstab sinnvoll sind, werden Methoden benötigt, mit denen eine Übertragung der Zusammen-



Bild 1: Experimentelle Aufnahmen des Sauerstoffgehaltes in Blasenschleppen bei unterschiedlicher Nachlauform. Die regellose Blase rechts ist verkleinert dargestellt. Quelle: Institut für Umweltverfahrenstechnik, Universität Bremen.

0.69	0.16	0	0	0	0
1	0.97	0.29	0	0	0
1	1	0.87	0.06	0	0
1	1	1	0.38	0	0
1	1	1	0.72	0	0

Bild 2: Beispiel einer möglichen Verteilung der Volumenanteilsfunktion in den Gitterzellen des Rechengebietes bei einer Volume of Fluid-Simulation.

hänge auf größere Maßstäbe möglich ist. Dieses so genannte Scaling Up ist notwendigerweise modellbasiert. Dabei spielen sich selbst einstellende Größen wie Gasgehalt und Strömungszustand sowie Form, Größe und Aufstiegsverhalten der Blasen eine wesentliche Rolle. Hinzu kommen lokale Phänomene auf Längenskala der Blasen und darunter wie Konzentrations- und Wirbelschleppen sowie starke Abhängigkeiten des übergehenden Stoffstromes von der Position auf der Blasenoberfläche. Tatsächlich stellt der Nachlauf einer einzelnen Blase eine Art Minireaktor dar: aus der Blase wird durch Stoffübergang einer der Reaktionspartner zur Verfügung gestellt,

der zweite Reaktand befindet sich in der Flüssigkeit und umströmt mit dieser die Blase. In der Nähe der Blasenoberfläche und in der Blasenschleppe kommen beide in Kontakt und reagieren miteinander. Die Blasenschleppe stellt dabei den Reaktionsraum dar. Abhängig von Größe und Aufstiegs geschwindigkeit der Blase stellen sich verschiedene Strömungsformen im Nachlauf der Blase ein, wie in Bild 1 gezeigt. Diese bewirken eine unterschiedliche Vermischung der Reaktanden. Die Güte der Vermischung und die Geschwindigkeit, mit der die Reaktionspartner vermischt werden, bestimmen die Ausbeute und die Qualität des Produktes.

An dieser Stelle setzen moderne numerische Simulationstechniken an, mit denen die Phasengrenzfläche in ihrer Form und Lage dreidimensional und unter Berücksichtigung ihrer Dynamik und Physikalität erfasst wird. Dies gelingt mit der „Volume of Fluid“-Methode, kurz VOF-Methode. Grundidee ist hier die implizite Erfassung der Grenzfläche zwischen flüssiger und gasförmiger Phase durch Bilanzierung des Volumenanteils der Flüssigkeit. Diese zusätzliche Volumenanteilsfunktion hat also den Wert 0 in Zellen, die ganz mit Flüssigkeit gefüllt sind und den Wert 1 in solchen, die vollständig in der Gasphase liegen. Dadurch können die unterschiedlichen Dichten

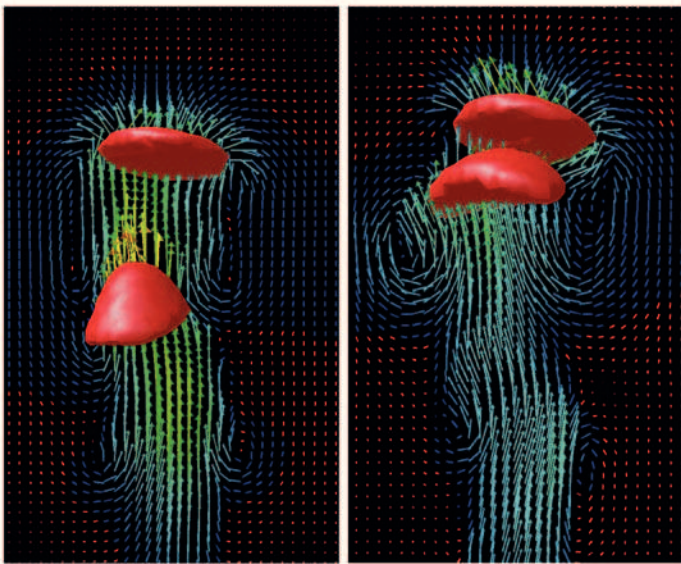


Bild 3: Direkte Numerische Simulation des gemeinsamen Aufstiegs zweier wackelnder Luftblasen mit Wirbelabstreifung. Die Farbkodierung gibt den Betrag der Geschwindigkeit wieder.

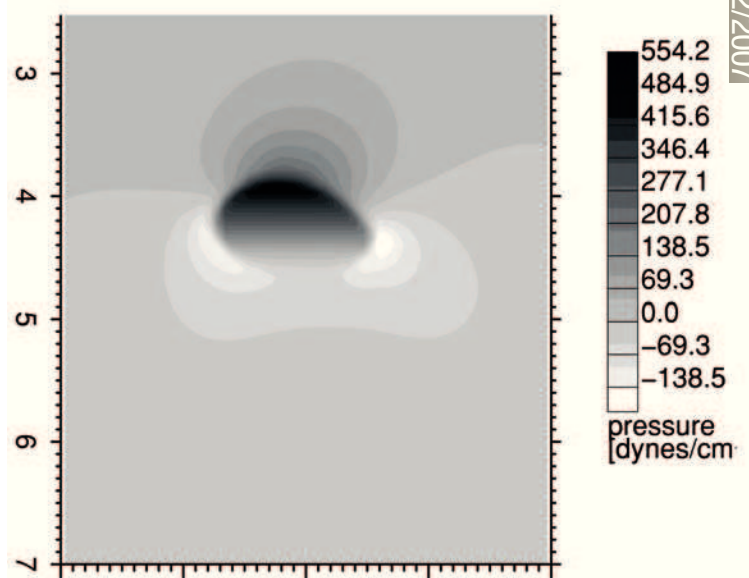


Bild 4: Berechnete Druckfelder um eine asymmetrisch verformte Blase bei Aufstieg in einem Schergeschwindigkeitsfeld.

ten und Viskositäten beider Fluide in der Strömungsberechnung berücksichtigt werden. In allen Zellen, die Phasengrenzfläche enthalten, besitzt die Volumenanteilsfunktion einen Wert zwischen 0 und 1. Bild 2 zeigt eine typische Verteilung der Werte. Aus der gesamten Verteilung der Volumenanteile können sowohl Lage und Orientierung der Phasengrenze als auch die Krümmung der Grenzfläche näherungsweise berechnet werden. Letzteres ist für eine physikalisch korrekte Simulation extrem wichtig, da die aus der Grenzflächenspannung resultierenden Kräfte proportional zur Krümmung sind. Diese Kräfte bewirken – ähnlich wie bei Seifenblasen – eine Mini-

mierung und dadurch Glättung der Grenzfläche. Kleine Blasen nehmen deshalb annähernd Kugelform an, werden mit wachsendem Durchmesser zunehmend ellipsoid bis die Blasen schließlich eine regellose, zeitlich variable Form annehmen. In Kombination mit effizienten Rechentechniken und unter Einsatz paralleler Algorithmen gelingt durch Verwendung der VOF-Methode eine numerische Beschreibung der physikalisch-chemischen Vorgänge, die ohne vereinfachende Annahmen auskommt und alle auftretenden Strukturen erfasst. Man spricht dann von einer Direkten Numerischen Simulation. Solche Berechnungen bestätigen zu-

nächst die experimentelle Beobachtung, dass bereits einzelne Blasen hinsichtlich Form und Bewegungsbahnen alles andere als langweilig sind: sie können geradlinig vertikal aber auch schräg aufsteigen, zick-zackförmige Bahnen nehmen oder auf einer helikalen Kurve – wie bei einem DNA-Strang – aufsteigen. Gelegentlich bleiben Blasen sogar kurz stehen, bevor sie weiter aufsteigen – etwas, das nur im Zusammenspiel mit der Flüssigkeitsströmung zu erklären ist. Bei ihrem Aufstieg streifen größere Blasen an ihrer Unterseite regelmäßig Wirbel ab, die eine Zeit lang in der Flüssigkeit weiter bestehen und zur Vermischung beitragen, bis sie schließlich durch die innere

Reibung aufgezehrt werden; siehe Bild 3. All dies ist mathematisch noch nicht rigoros oder nur in Ansätzen verstanden, kann aber mittels numerischer Simulationen eingehend untersucht werden. Dabei werden lokale Informationen über Druck und Geschwindigkeiten im Umfeld und aus dem Inneren der Blase gewonnen, die experimentell überhaupt nicht zugänglich sind. Als Beispiel sei der Vorzeichenwechsel der Auftriebskraft genannt: Wenig verformte Blasen, die in einer Scherströmung aufsteigen, wandern in die Richtung der größeren Geschwindigkeit. Dies kehrt sich bei stärker verformten Blasen unerwartet um, wofür es keine einfache Er-

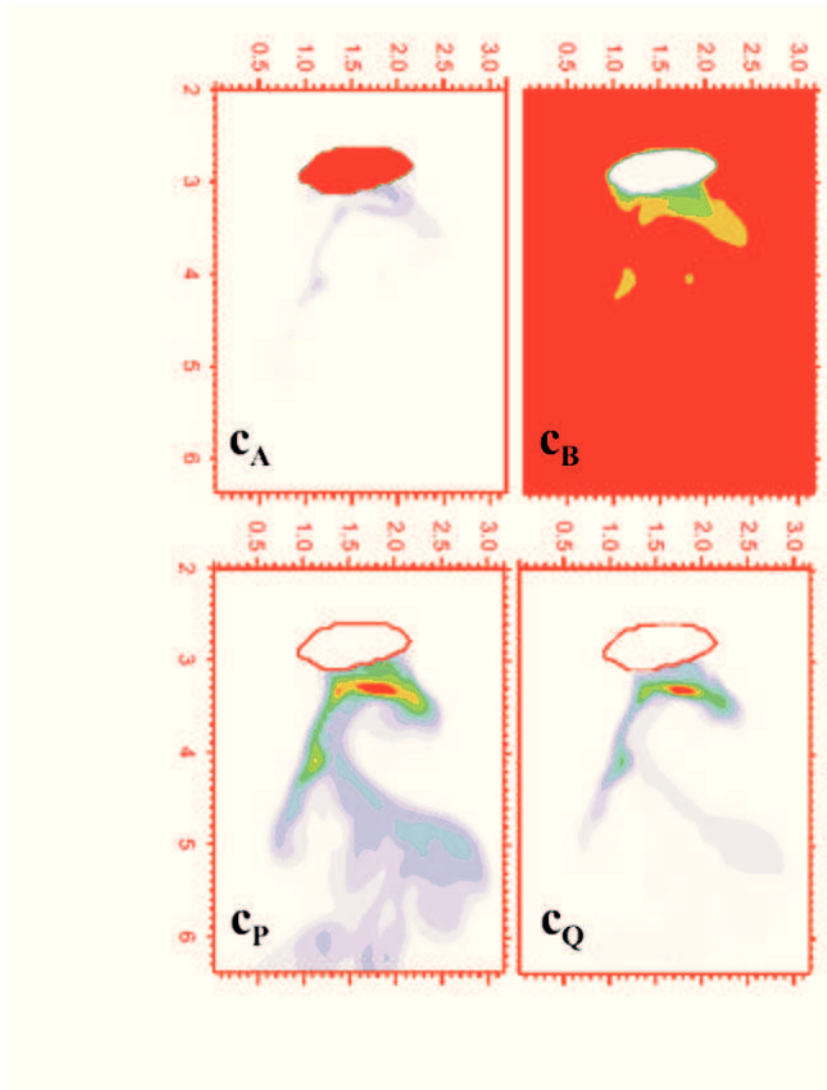


Bild 5: Simulierte Konzentrationsfelder im Umfeld einer formdynamischen Luftblase mit komplexer chemischer Reaktion. Die Übergangskomponente A reagiert mit B zum Produkt P, das wiederum mit A zum Nebenprodukt Q weiterreagiert.

klärung gibt. Tatsächlich zeigen numerische Berechnungen, dass nicht nur Druckkräfte ausschlaggebend sind, sondern auch ein komplexes Zusammenspiel zwischen asymmetrischer Verformung und Scherkräften; siehe Bild 4.

Durch Erweiterung der VOF-Methode um Transportgleichungen für die Konzentration chemischer Spezies ist auch die Simulation des Stoffübergangs in Gas-Flüssig-Strömungen mit anschließender chemischer Reaktion möglich. Insbesondere erlaubt dies erstmals die numerische Berechnung so genannter Stoffübergangskoeffizienten. Letztere geben die Rate an, mit der eine chemische Komponente über die

Grenzfläche ausgetauscht wird und bilden damit eine wesentliche Kenngröße zur Beurteilung der Effizienz des Kontaktapparates bei den zugrunde liegenden Stoffdaten und Betriebsbedingungen. Die Rechnungen bestätigen die experimentell gestützte Vermutung, dass offene Blasenschleppen mit Ablösung von Wirbeln zu einer Verbesserung des Stoffübergangs führen. Die in realen Systemen auftretenden chemischen Prozesse sind in der Regel sehr komplex mit einer Vielzahl beteiligter Spezies und ablaufender Reaktionen. Dabei sind die gewünschten Produkte oft Zwischenprodukte in einer ganzen Kette chemischer Umwandlungen, das heißt gleichzeitig auf-

tretende Folgereaktionen lassen die gewünschten Substanzen zu unerwünschten Nebenprodukten weiter reagieren; siehe Bild 5. Daher ist das Maß für die Güte solcher technisch-chemischen Prozesse neben dem Umsatz vor allem die Selektivität bezüglich des gewünschten Produktes. Das längerfristige Ziel dieser Forschungsarbeiten ist daher die direkte numerische Berechnung von Selektivitäten lokal im Umfeld einzelner Gasblasen, um daraus Hinweise für eine optimierte Prozess- und Reaktionsführung abzuleiten.

Diese Forschungsarbeiten finden im Rahmen eines Paketprojektes in enger Kooperation mit dem Institut für Thermody-

namik der Luft- und Raumfahrt der Universität Stuttgart sowie mit experimentell arbeitenden Gruppen statt. Zur numerischen Simulation wird der in Stuttgart entwickelte VOF-code FS3D (Free Surface 3D) eingesetzt, gemeinsam erweitert und weiterentwickelt.

www.mathcces.rwth-aachen.de/doku.php

Autor:
Univ.-Prof. Dr.rer.nat. Dieter Bothe ist Inhaber des Lehrstuhls für Mathematik und Stellvertreter Geschäftsführer des „Center for Computational Engineering Science“, kurz CCES.