

Simulation der chemischen Absorption im Strahlwäscher

Von der Fakultät Maschinenwesen der
Technischen Universität Dresden zur
Erlangung des akademischen Grades

Doktoringenieur (Dr.-Ing.)

angenommene Dissertation

Timo Loos

geb. am: 05.07.1974

in: Berlin

Tag der Einreichung: 18.08.2005

Tag der Verteidigung: 10.04.2006

Gutachter:

Prof.Dr.-Ing. N. Mollekopf

Prof.Dr.-Ing. J. Schmadl

Prof.Dr.sc.techn. H. Quack

Vorsitzender der Promotionskommission:

Prof.Dr.-Ing.habil. R. Lange

Danksagung

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Lehrstuhl für Thermische Verfahrenstechnik und Umwelttechnik der Technischen Universität Dresden.

Mein herzlicher Dank gilt Herrn Prof. Dr.-Ing. Norbert Mollekopf für die Förderung und Unterstützung dieser Arbeit sowie für die Übernahme des Hauptreferates.

Besonders möchte ich Herrn Prof. Dr.-Ing. Josef Schmadl danken, der mein Interesse für die Thermodynamik geweckt hat. Es hat mich gefreut, dass er das Korreferat übernommen hat.

Allen ehemaligen Kollegen am Lehrstuhl möchte ich für die gute Zusammenarbeit und die angenehme Arbeitsatmosphäre meinen herzlichen Dank aussprechen. Dies gilt insbesondere für meinen Freund und Kollegen Dipl.-Ing. Gauthier Averlant der in vielen fachlichen Diskussionen sehr zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen hat.

Herr Dipl.-Ing. René Thümmler war mir mit seinem Wissen auf dem Gebiet der CFD-Simulation und der C+ Programmierung ein unersetzlicher Ratgeber in fachlichen Fragen.

Bedanken möchte ich mich auch bei Herrn Prof. Dr.-Ing. Manfred Güsewell der mir die Durchführung der Phasen-Doppler-Anemometrie Messungen an der Versuchsanlage der BTU Cottbus ermöglicht hat, sowie bei Herrn Dipl.-Ing. Norbert Roth der durch sein Engagement einen wesentlichen Beitrag für diese Messungen geliefert hat.

Inhaltsverzeichnis

Formelverzeichnis.....	III
1 Einleitung.....	1
2 Chemische Absorption im Strahlwäscher.....	3
2.1 Grundlagen der Absorption von Sauer gasen.....	3
2.2 Prinzip des Strahlwäschers.....	5
3 Modellierung des Strahlwäschers.....	7
3.1 Tropfenbildungsprozess.....	8
3.2 Literaturübersicht empirischer Modelle.....	12
3.2.1 Beschreibung der Hydrodynamik.....	12
3.2.2 Beschreibung des Stoffaustausches.....	13
3.3 Eindimensionales Modell.....	14
3.3.1 Berechnung der dispersen Phase.....	15
3.3.2 Widerstandsbeiwert.....	17
3.3.3 Berechnung der Pressung nach dem Modellansatz des Autors.....	19
3.4 Rigoroses Modell.....	20
3.4.1 Berechnung der Gasphase nach Euler.....	20
3.4.2 Druckberechnung.....	22
3.4.3 Berechnung der dispersen Phase.....	23
3.4.4 Turbulenzmodellierung.....	24
3.5 Erweiterung des Rigorosen Modells.....	30
3.5.1 Tropfeninjektion.....	30
3.5.2 Berücksichtigung des Wandfilmes.....	31
3.5.3 Berechnung der chemischen Absorption.....	32
3.5.4 Beschreibung des Berechnungsablaufes.....	32
4 Modellierung des Stoffaustausches.....	34
4.1 Phasen und Reaktionsgleichgewichte in Elektrolytlösungen.....	34
4.1.1 Berechnung thermodynamischer Gleichgewichte.....	35
4.1.2 Aktivitätskoeffizienten.....	39
4.1.3 Henry-Koeffizient.....	40
4.1.4 Reaktionskinetik.....	42
4.2 Modellierung des Stoffaustausches mit chemischer Reaktion.....	43
4.2.1 Grundlagen des Stofftransportes.....	43
4.2.2 Kinetische Stofftransportmodelle.....	45
4.2.3 Stoffübergang mit chemischer Reaktion.....	47
4.2.4 Diffusionskoeffizienten.....	49
4.2.5 Berechnung der Stoffübergangskoeffizienten am Tropfen.....	50
4.3 Hydrodynamik des Flüssigkeitsfilmes.....	52
4.3.1 Glatte Flüssigkeitsfilme.....	53

4.3.2	Wellige Flüssigkeitsfilme.....	54
4.4	Interaktion zwischen Tropfen und Wandfilm	55
4.5	Berechnung der Stoffübergangskoeffizienten am Flüssigkeitsfilm	59
4.5.1	Glatte Flüssigkeitsfilme.....	59
4.5.2	Wellige Flüssigkeitsfilme.....	60
4.5.3	Stofftransport im Gasstrom	61
5	Experimentelle Arbeiten.....	62
5.1	Aufbau der Versuchsanlage	62
5.2	Gasbefeuchtung vor dem Strahlwäscher	63
5.3	Messtechnik.....	64
5.3.1	Temperatur und Luftfeuchtigkeit	64
5.3.2	Differenzdruck	64
5.3.3	Durchfluss der Waschflüssigkeit.....	64
5.3.4	Flüssigkeitszusammensetzung	65
5.3.5	Gasgeschwindigkeit	65
5.3.6	Gasanalyse.....	65
5.3.7	Partikelmesstechnik.....	66
6	Ergebnisse und Diskussion.....	71
6.1	Validierung der Gleichgewichtsberechnung und der Reaktionskinetik.....	71
6.2	Ergebnisse Literaturansatz	76
6.3	Ergebnisse Eindimensionales Modell	76
6.4	Tropfenspektrum	79
6.5	Ergebnisse der rigorosen Simulation des Sprühwäschers	84
6.5.1	Tropfeninjektionsmodell	84
6.5.2	Tropfengeschwindigkeit.....	86
6.5.3	Einfluss der Wandabscheidung	88
6.5.4	Einfluss der Tropfen-Wand-Interaktion	90
6.5.5	Hydrodynamik.....	92
6.5.6	Chemische Absorption	96
6.5.7	Verifizierung mittels chemischer Methode	100
6.5.8	Einfluss des Sprühwinkels	102
7	Zusammenfassung	104
8	Literaturverzeichnis	106
9	Anhang.....	111

Formelzeichenverzeichnis

Lateinische Buchstaben

a	-	Aktivität
a	m^2/m^3	spezifische Stoffaustauschfläche
A	m^2	Phasengrenzfläche
$A_{\phi\text{m}}$	-	Debye-Hückel-Parameter
b	-	Anstieg der Gleichgewichtslinie
c	kmol/m^3	molare Konzentration
c_p	$\text{J}/(\text{mol K})$	spezifische Wärmekapazität
c_w	-	Widerstandsbeiwert
C_η, C_ε	-	Modellkonstanten
d	m	Durchmesser
d_{10}	m	arithmetischer mittlerer Durchmesser
d_{32}	m	Sauterdurchmesser
D	m^2/s	Diffusionskoeffizient
E	-	Erhöhungsfaktor
f	-	Frequenzfaktor
f_D	1/s	Dopplerfrequenz
F	N	Kraft
Fr	-	Froude-Zahl
g	m/s^2	Erdbeschleunigung
g	J/mol	freie molare Enthalpie
Δg_R	J/mol	freie molare Reaktionsenthalpie
G	J	freie Energie
G_b, G_k	m^2/s^2	Teilterm des Reynolds-Spannungsmodells
h	J/mol	spezifische Enthalpie
H	bar	Henry-Koeffizient
H^\square	bar kg/mol	Henry-Koeffizient bezogen auf Molalitäten
Ha	-	Hatta-Zahl
I_x	-	Ionenstärke
J	$\text{kg}/(\text{m}^2\text{s})$	Massenstromdichte
k	m^2/s^2	kinetische Turbulenzenergie
k	m/s	Stoffdurchgangskoeffizient
k_n	$\text{s}^{-1}(\text{m}^3/\text{kmol})^{n-1}$	Reaktionsgeschwindigkeitskonstante n-ter Ordnung
K	-	Gleichgewichtskonstante
K_E	-	Einlauf-Kennzahl
L	m	gesamte Länge Strahlwäscher
La	-	Laplace-Zahl
Le	m	charakteristische Länge der Turbulenzelemente
m	kg	Masse
m	-	Konstante
\tilde{m}	mol/kg	Molalität
M	g/mol	Molarität
\dot{M}	kg/s	Massenstrom
n	-	Anzahl Tropfenklassen
n	mol	Stoffmenge
n	-	Zahl
n	-	Konstante
\dot{n}	$\text{kmol}/(\text{m}^2\text{s})$	molare Stoffstromdichte

\dot{N}	kmol/s	Molenstrom
Oh	-	Ohnesorge-Zahl
p	Pa	Druck
P	W	Leistung
Pr	-	Prandl-Zahl
r	m	Radius
r	kmol/(m ³ s)	Reaktionsrate
R	J/(mol K)	allgemeine Gaskonstante R=8,3145
Re	-	Reynolds-Zahl
Re _p	-	Partikelreynoldszahl
s	J/(mol K)	spezifische Entropie
t	s	Zeit
T	K	Temperatur
T _s	K	Siedetemperatur
Tu	-	Verhältnis Wirkung der Turbulenz
S	-	Quellterm
Sc	-	Schmidt-Zahl
Sh	-	Sherwood-Zahl
u	m/s	Geschwindigkeit in Richtung x
v	m/s	Geschwindigkeit in Richtung y
v	m ³ /mol	molares Volumen
\tilde{v}	-	Diffusionsvolumen
V	m ³	Volumen
\dot{V}	m ³ /s	Volumenstrom
w	m/s	Geschwindigkeit in Richtung z
We	-	Weber-Zahl
y	kmol/kmol	Molanteil im Gas
y	m	Längenkoordinate
y	-	Dichtefunktion
x	kmol/kmol	Molanteil in der Flüssigkeit
x	m	Längenkoordinate
x	μm	Durchmesser einer Tropfenklasse
z	m	Längenkoordinate
z	-	Ionenladung

Griechische Buchstaben

α	°	Winkel
β	m/s	Stoffübergangskoeffizient
γ	-	Aktivitätskoeffizient
Γ	kg/(m s)	Flüssigkeitsbelastung am Umfang des Rohres
δ	m	Diffusionsweg bzw. Dicke der viskosen Unterschicht
δ	-	Kroneckersymbol
δ_f	m	Filmdicke
ε	m ² /s ³	Dissipationsrate
ε	-	Absorptionsgrad
ζ	-	Widerstandsbeiwert Druckverlust
η	kg/(m s)	dynamische Viskosität
η	-	Wirkungsgrad

ϑ	$^{\circ}\text{C}$	Temperatur
θ	-	Flüssigkeitsanteil im Wäscher
κ	$1/\text{K}$	thermischer Ausdehnungskoeffizient
λ	m	Wellenlänge
λ	-	Rohrreibungszahl
μ	m^2/s	chemisches Potential
ν	-	stöchiometrischer Koeffizient
ν	m^2/s	kinematische Viskosität
ξ	$1/\text{m}^3$	lokale Tropfendichte
ρ	kg/m^3	Dichte
σ	kg/s^2	Oberflächenspannung
σ	-	Streuung
τ	N/m^2	Schubspannung
τ	s	Integrationszeit
υ	m/s	Geschwindigkeit
Φ	-	Fugazitätskoeffizient
φ	$1/\text{m}^3$	Tropfenanzahl pro Volumen
ψ	$^{\circ}$	Strahlschnittwinkel
Ω	-	Relaxationsfaktor
ω	$^{\circ}$	Reflektionswinkel

Indices

a) tiefgestellt

0	reine Komponente
∞	im Unendlichen, bulk
a	Aktivitätsbasis
aq	wässrig
A	Komponente Produkt
B	Komponente Produkt
c	Zelle
c	Daten am kritischen Punkt
C	Komponente Edukt
D	Komponente Edukt
D	Diffusion
Def	Deformation
Dü	Düse
eff	effektiv
g	Gasphase
f	formation (Bildung)
fi	Film
i	Index
in	Eintritt
imp	Aufprall
j	Index $\neq i$
k	kinetische Turbulenzenergie
l	Flüssigphase

lam	laminar
m	Ordnung
n	orthogonal
out	Austritt
p	Partikel
Ph	Phasengrenze
t	turbulent
tot	total (gesamt)
tr	Tropfen
r	Reaktion
r	radial
rel	relativ
stra	Stahlwäscher
x	auf x-Koordinate bezogen
y	auf y-Koordinate bezogen
z	auf z-Koordinate bezogen
z	zufälliger Wert
ε	Dissipationsrate

b) hochgestellt

0	Standardzustand ($T^0=298,15$ K, $p^0=0,1$ MPa)
∞	unendliche Verdünnung
\square g	Referenzzustand des idealen Gas
g	Gasphase
in	Eintritt
l	Flüssigphase
\square l	Referenzzustand der ideal verdünnten einmolalen Lösung
out	Austritt
p	Phase
P	Phasen
\wedge	zufälliger Wert
–	Mittelwert
”	Dampf
*	geschätzte Größe
`	korrigierte Größe

1 Einleitung

Das in den letzten Jahren in zunehmendem Maße geförderte, globale Umweltbewusstsein und der daraus resultierende Kosten- und Wettbewerbsdruck für die Unternehmen führt zu neuen Herausforderungen in der Verfahrenstechnik. Neben der Entwicklung nachhaltiger, innovativer Prozesse ist vor allem die ständige Optimierung bestehender Verfahren der Umwelttechnik gefragt.

Im Mittelpunkt der gesellschaftlichen Diskussion stehen dabei vor allem Rauchgase, die bei der Verbrennung fossiler Energieträger zur Energieerzeugung oder in Müllverbrennungsanlagen entstehen. Diese sind mit Verunreinigungen und Schadstoffen wie Schwefeldioxid, Stickoxide, Chlor- und Fluorwasserstoffen aber auch mit Flugasche, Staub und Schwermetallen belastet. Eine Sonderstellung nimmt die Abscheidung von Kohlendioxid aus Rauchgasen ein. Kohlendioxid ist nach Methan verantwortlich für den Treibhauseffekt und damit Verursacher der globalen Erwärmung. Durch die Vereinbarung von Kyoto /76/ soll eine Verringerung der Treibhausgasemissionen zum Schutz der Umwelt und zur Eindämmung der Klimaänderungen erreicht werden. Die Mitgliedstaaten der Europäischen Gemeinschaft müssen ihre gesamten Treibhausgasemissionen im Zeitraum 2008-2012 um 8 % gegenüber 1990 verringern. In erster Linie kann eine Reduzierung der Kohlendioxidemissionen durch eine effektivere Energieausnutzung erreicht werden. In letzter Zeit wird auch eine Abscheidung von Kohlendioxid aus Abgasen, insbesondere aus Rauchgasen fossil befeuerter Kraftwerke, diskutiert /1/. Der hohe energetische und technologische Aufwand sowie die ungeklärte anschließende Speicherung des Kohlendioxides erfordern jedoch eine eingehende ökonomische und ökologische Betrachtung dieses Vorhabens.

Für die Abtrennung der Schadstoffe aus Rauchgasen auf eine zulässige Restkonzentration sind mehrere Reinigungsschritte erforderlich. Die Entstaubung wird im Allgemeinen durch Elektro- und Gewebefilter durchgeführt. Die Stickoxide werden durch eine selektive katalytische Reduktion mit Ammoniak zu Stickstoff und Wasser umgesetzt. In der nassen Rauchgaswäsche werden vor allem Sauerstoffe abgetrennt. Das industriell am häufigsten angewandte Verfahren für die Sauerstoffabtrennung ist die chemische Absorption. Als Waschmittel von Sauerstoffen wie Schwefeldioxid, Schwefelwasserstoff, Chlorwasserstoff und Kohlendioxid werden basisch wirkende wässrige Lösungen eingesetzt.

Für eine hohe Effektivität des Absorbers ist ein intensiver Kontakt zwischen Gasgemisch und Waschmittel nötig. Neben den gebräuchlichen Sprühwäschern und Füllkörperkolonnen nimmt der Strahlwäscher als Gas/Flüssigkeits-Kontaktapparat eine Sonderstellung ein. Er hat wie der Sprühwäscher keine Einbauten zur Erzeugung der Stoffaustauschfläche und kann durch den hohen Energieeintrag des Flüssigkeitsstrahles das Gas ansaugen bzw. verdichten. Der Strahlwäscher eignet sich auch zur Staub- und Aerosolabscheidung von groben Partikeln. Gleichzeitig kann durch den Quencheffekt das Abgas gekühlt werden.

Für die Auslegung von Strahlwäschern wurde bisher auf Erfahrungswerte und einfache Modellansätze zurückgegriffen. Die wenigen Modellansätze in der Literatur zur Beschreibung

des Verhaltens von Strahlwäschern gehen größtenteils auf Untersuchungen in den 70er Jahren zurück /33/. Diese halbempirischen Gleichungen basieren zum Teil auf stark vereinfachten Modellvorstellungen, die den realen Prozess nur unzureichend wiedergeben und einen eingeschränkten Gültigkeitsbereich haben. Ein Ansatz von Schacht /66/, der die konsistente Beschreibung der dispersen Phase über das Kräftegleichgewicht am Tropfen berücksichtigt, betrachtet die Gasströmung jedoch als eindimensional. Der Ansatz beschreibt nur die Hydrodynamik des Strahlwäschers nicht die chemische Absorption.

Die Entwicklung einer geeigneten Simulationmethode erfordert eine genaue wissenschaftliche Untersuchung des Prozesses und stellt eine Grundvoraussetzung für die zuverlässige Auslegung eines Strahlwäschers dar. Bei der Modellierung der chemischen Absorption muss neben den sich an der Phasengrenze einstellenden Phasengleichgewichten und Stofftransport in der Gas- und Flüssigphase auch die Dissoziation der Elektrolyte in der wässrigen Lösung berücksichtigt werden. Die Stoffaustauschfläche im Strahlwäscher ergibt sich durch die Tropfen und den sich ausbildenden Wandfilm. Die Austauschfläche hängt von der Wechselwirkung mit der Gasströmung ab. Der Strahlwäscher ist daher durch seine Fluidodynamik gekennzeichnet. Eine Aufklärung der komplexen physikalischen Vorgänge der Zweiphasenströmung ist auf theoretischem Wege mit der Computational Fluid Dynamics (CFD)- Simulation möglich. Die numerische Simulation wurde bereits für die Modellierung von Sprühwäschern angewandt /46/, /37/.

Ziel dieser Arbeit war es, die Wirkungszusammenhänge der Strömungsvorgänge beider Phasen in einem Strahlwäscher zu beschreiben. Der Staudruck im Strahlwäscher sollte in Abhängigkeit vom Gasvolumenstrom berechnet werden. Zu diesem Zweck wurde die Zweiphasenströmung mit einem einfachen eindimensionalen Modell und einem rigorosem Modell, auf Basis einer dreidimensionalen numerischen Simulation, modelliert. Die theoretischen Berechnungen wurden an einer Versuchsanlage verifiziert. Neben der Strömungssimulation sollte die chemische Absorption in einem Strahlwäscher berücksichtigt werden. Zu diesem Zweck wurde eine eigens entwickelte Prozedur, die den Stoffaustausch berechnet, in das kommerzielle Strömungssimulationsprogramm Fluent implementiert. Der Stoffübergang durch die chemische Absorption wurde sowohl für die Tropfen als auch für den sich ausbildenden Wandfilm berechnet und als Senke an die Gasphase zurückgegeben. Umfassende Versuche zur Verifizierung der Simulation wurden an einem Kompaktstrahlwäscher durchgeführt.

2 Chemische Absorption im Strahlwäscher

2.1 Grundlagen der Absorption von Sauer gasen

Unter Absorption versteht man die vollständige oder teilweise Aufnahme einer Gaskomponente oder eines Dampfes durch Lösen in einer Waschflüssigkeit. Die wesentliche Zielsetzung der Absorption ist die Reduzierung der Konzentrationen unerwünschter Komponenten in der Gasphase. Der Wirkungsgrad der Absorption wird über den Absorptionsgrad beschrieben, s. Gl. (2.1).

$$\eta = 1 - \frac{y_i^{\text{out}}}{y_i^{\text{in}}} \quad (2.1)$$

Ist die Gaslöslichkeit durch physikalische Kräfte (van der Waalsche Kräfte) bedingt, spricht man von physikalischer Absorption. Übliche physikalische Lösungsmittel sind Wasser und organische Lösungsmittel wie Alkohole, Polyglykolether und Propylencarbonat. Die sauren Gase können auch bei der physikalischen Absorption im Waschwasser dissoziieren, sie gehen jedoch keine chemische Bindung mit der Waschflüssigkeit ein. Physikalische Wäschen sind bei hohem Partialdruck sowie bei niedrigen Temperaturen wirtschaftlich.

Durch die Zugabe von basisch wirkenden Bestandteilen zum Waschwasser wird eine ausreichende Dissoziation der gelösten sauren Gase erreicht. Geht das dissoziierte Gas eine chemische Bindung mit der Waschflüssigkeit ein, spricht man von chemischer Absorption (Chemisorption).

Das beladene Lösungsmittel wird in einem Umkehrvorgang zur Absorption, der Desorption, regeneriert. Die Löslichkeit der sauren Gase nimmt sowohl in physikalischen als auch in chemischen Lösungsmitteln mit steigender Temperatur ab. Dieses Verhalten wird zur Desorption, die meist durch Strippen erfolgt, genutzt. Bei einer chemischen Reaktion des Sauer gases mit dem Waschmittel ist die Regeneration in der Strippkolonnen, aufgrund des geringen chemischen Potentials des Reaktionsproduktes, erschwert. Hieraus resultiert ein höherer Energiebedarf für die Regeneration als bei der physikalischen Absorption. Chemische Wäschen mit starken Basen, wie z. B. Natronlauge, können wirtschaftlich nicht regeneriert werden. Die Abnahme des ohnehin hohen Dissoziationsgrades ist hier zu gering, um eine beträchtliche Desorption zu erreichen. Neben der Entsorgung kann nur eine elektrolytische Regeneration durchgeführt werden. In der industriellen Praxis existieren weit mehr chemische als physikalische Absorptionsanlagen /35/. Sie eignen sich besonders für geringe Partialdrücke, haben gegenüber den physikalischen Wäschen eine höhere Selektivität, ein größeres Aufnahmevermögen und eine höhere Absorptionsgeschwindigkeit.

Die Anforderungen an das Waschmittel umfassen folgende Gesichtspunkte:

- ausreichend hohe Löslichkeit der zu absorbierenden Komponente
- niedriger Dampfdruck zur Vermeidung von Waschmittelverlusten
- hohe Beladungsdifferenzen zwischen der Absorptions- und der Desorptionsstufe
- hohe Geschwindigkeit des Absorptions- und Desorptionsvorganges
- geringe Zähigkeit
- chemische und thermische Stabilität zur Vermeidung von Lösungsmittelersetzungen
- geringe Korrosivität
- geringe Neigung zum Schäumen
- gute Verfügbarkeit und geringer Preis

Als chemisches Absorptionsmittel werden wässrige Lösungen von Alkanolaminen (Aminwäsche), heiße Kaliumkarbonat-Lösungen (Pottaschewäsche) und wässrige Ammoniaklösungen (Ammoniakwäsche) eingesetzt. Die technischen Alkanolamine wie MEA, DEA, MDEA und TEA sind die am meisten verwendeten Waschmittel für die Sauergaswäsche. Sekundäre Amine (DEA) sind stärker basisch als primäre Amine (MEA) und primäre Amine stärker basisch als Ammoniak. Die tertiären Amine (TEA) besitzen eine geringere Basizität, weil dem positiv induktiven Effekt die sterische Behinderung entgegenwirkt /51/. Tertiären Amine lassen sich jedoch besser desorbieren und sind weniger korrosiv. Natronlaugenwäschen lassen sich wie erwähnt nicht thermisch regenerieren, sie werden jedoch zur Feinreinigung verwendet, da sie eine hohe Reaktivität haben und auch bei höheren Temperaturen effektiv arbeiten.

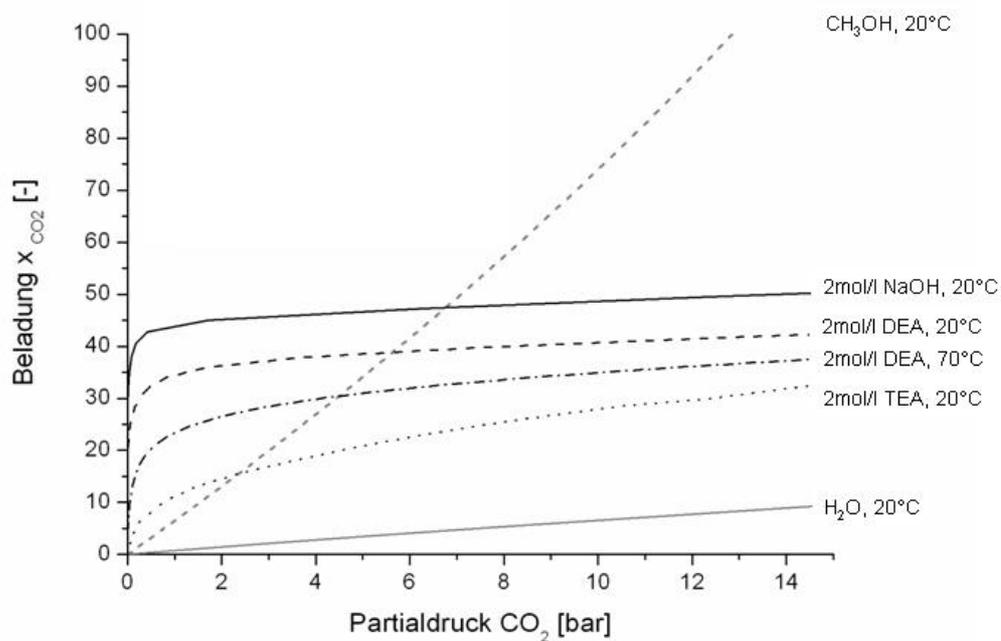


Bild 2.1 Gleichgewichtslinien für die physikalische und chemische Absorption /51/

Bei niedrigen CO_2 -Partialdrücken lässt sich das chemisch bindende Waschmittel im Vergleich zum physikalischen Waschmittel weitaus höher beladen, s. Bild 2.1. Im Gegensatz zu physikalischen Wäschen, in denen die Löslichkeit proportional dem Partialdruck ist, nimmt die Beladung bei chemischen Wäschen bis zur chemischen Sättigung schnell zu. Danach kommt es zu einem geringen linearen Anstieg entsprechend der physikalischen Löslichkeit im Wasser. Für die chemische Absorption ist daher ein stark gekrümmter Verlauf der Beladungskurve typisch, der umso ausgeprägter ist, je stärker das Waschmittel basisch ist. Steigende Temperaturen sorgen für eine abnehmende Dissoziation, s. Bild 2.1.

2.2 Prinzip des Strahlwäschers

Absorber, die ihre Austauschfläche nur durch Tropfen infolge der Flüssigkeitszerstäubung erzeugen, haben gegenüber Absorptionskolonnen eine geringere Stoffaustauschfläche. Zu diesen Wäschertypen gehören der Strahl-, der Sprüh- und der Venturiwäscher. Sie werden bevorzugt als chemische Absorber eingesetzt, wenn leicht lösliche Gase bei kurzer Verweilzeit von der Waschflüssigkeit aufgenommen werden sollen. Absorber mit einer Flüssigkeitszerstäubung sind in der Regel senkrecht angeordnet. Der Sprühwäscher wird in der Regel im Gegenstrom betrieben, während der Strahl- und der Venturiwäscher eine Gleichstromfahrweise erfordern. Strahl- und Venturiwäscher benötigen einen hohen Aufwand an Förderenergie, haben aber einen besonders intensiven Phasenkontakt, ein kleines Bauvolumen und ihr Absorptionsgrad ist weitgehend unabhängig von Schwankungen im Gasstrom. Man unterscheidet zwischen Strahl- und Venturiwäschern nicht aufgrund der Bauform, sondern nach dem Betriebszustand. Wird die Energie für die Strömung und die Dispergierung im Wesentlichen durch die Flüssigkeit in das System gebracht, so spricht man von einem Strahlwäscher. Wenn die Energie vom Gas aufgebracht wird, spricht man vom Venturiwäscher, auch wenn der Kontaktraum zylindrisch aufgebaut ist und nicht die Form einer Venturidüse aufweist /33/.

Beim Strahlwäscher wird die Flüssigkeit am Kopf versprüht und zerfällt in einen Tropfenschwarm, der als Treibstrahl genutzt wird, s. Bild 2.2. Infolge der Differenzgeschwindigkeit zwischen Flüssigkeit und Gas kann durch die Schleppwirkung das Gas angesaugt werden (Strahlpumpenwirkung). Strahlwäscher werden daher eingesetzt, wenn der Druckverlust auf der Gasseite gering zu halten ist bzw. das Gas angesaugt werden muss. Um eine gute Schleppleistung und Stoffaustauschfläche zu erzielen, soll die Flüssigkeitsdüse so dimensioniert werden, dass der Flüssigkeitsstrahl zu feinen Tröpfchen zerrissen wird. Die Flüssigkeitszerstäubung erfolgt meist über eine Drall-Druckdüse. Durch den Drallkörper in der Düse wird dem Flüssigkeitsstrahl eine Rotationsbewegung aufgeprägt und damit der Sprühwinkel erzeugt. Entsprechend dem Sprühwinkel bildet sich ein Wandfilm aus, der bei Gasgeschwindigkeiten von über 8-10m/s auf Grund von Turbulenzen wieder abgerissen wird /79/. Dieser Vorgang wird als Entrainment bezeichnet. Die mittlere Gasgeschwindigkeit im Strahlwäscher liegt meistens zwischen 5-15m/s, dadurch kann der Rohrdurchmesser vergleichsweise gering

gehalten werden. Das Volumenverhältnis von Gas zu Flüssigkeit beträgt im Allgemeinen 100-1000 /75/.

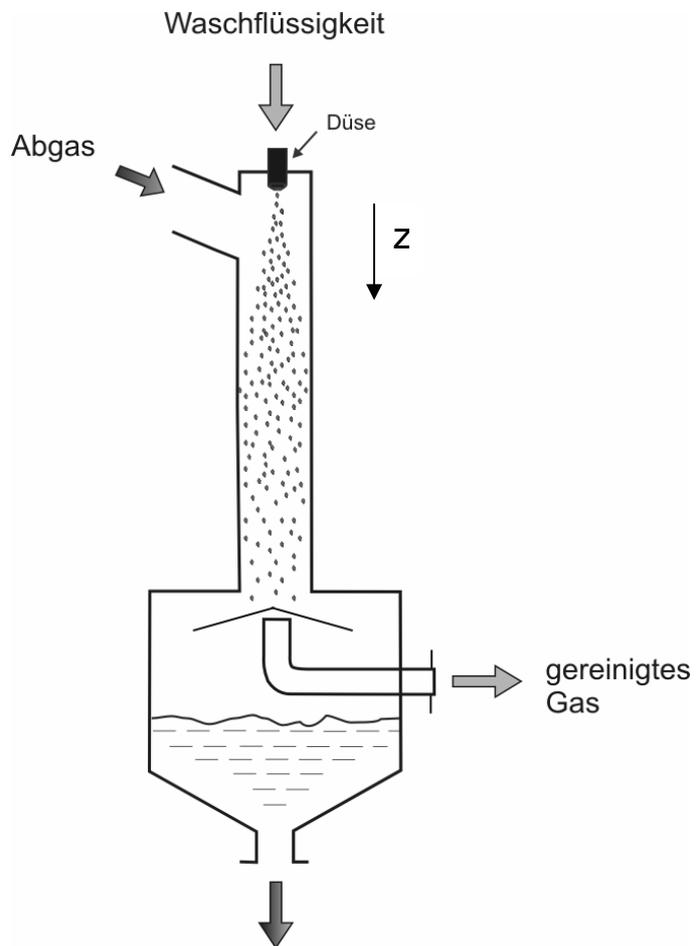


Bild 2.2 Prinzipbild Strahlwäscher

3 Modellierung des Strahlwäschers

Ziel der Modellierung ist die Beschreibung der Hydrodynamik und damit des erreichbaren Staudrucks und die Berechnung der chemischen Absorption im Strahlwäscher. Der Staudruck wird bei Strahlwäschern üblicherweise als Pressung bezeichnet. Die Pressung ist der Druckgewinn, der mit dem Strahlwäscher erzeugt werden kann, und damit eine entscheidende Größe.

Im Gegensatz zu den Füllkörper- und Bodenkolonnen ergibt sich die Stoffaustauschfläche im Strahlwäscher nicht über die einfach zu beschreibende Geometrie der Einbauten, sondern ausschließlich aus der Oberfläche der Tropfen und dem sich ausbildenden Wandfilm. Der Strahlwäscher unterscheidet sich vom Sprühwäscher aus strömungstechnischer Sicht neben der erforderlichen Gleichstromfahrweise durch seinen sehr viel höheren Energieeintrag der flüssigen Phase (s. Kap.2). Die konsistente Beschreibung der dispersen Phase in der Zweiphasenströmung ist daher erforderlich.

Eine Beschreibung des Tropfenbildungsprozesses erfolgt in Kap 3.1. In Kap. 3.2 werden empirische Ansätze aus der Literatur zur Beschreibung der Pressung und der chemischen Absorption im Strahlwäscher vorgestellt. In Kap. 3.3 wird ein eindimensionaler Ansatz des Autors zur Beschreibung der Pressung vorgestellt. In Kap. 3.4 und 3.5 wird das Rigorose Modell beschrieben, welches auf einer dreidimensionalen numerischen Strömungssimulation basiert und zur Berechnung des Stoffaustausches entsprechend erweitert wurde.

Die wesentlichen Einflussgrößen auf den Stoffaustauschprozess und die Hydrodynamik im Strahlwäscher sind

- die Volumenströme von Gas und Flüssigkeit
- die Tropfengrößenverteilung und die Tropfenanzahl
- die Wandverluste
- die Strahlwäscher- und Düsengeometrie
- die Wechselwirkung der Tropfen untereinander
- das Strömungsregime

Der Gasvolumenstrom bestimmt die Verweilzeit des Gases und steht im direkten Zusammenhang mit der Pressung im Strahlwäscher. Die Anzahl der Tropfen und die Tropfengröße sowie die Wandverluste bestimmen die Hydrodynamik und sind damit wesentlich für die Berechnung der Pressung. Diese grundlegenden Größen werden im einfachen eindimensionalen Modell berücksichtigt.

Eine exakte dreidimensionale Berechnung des Strömungsregimes ist nur mit der numerischen Simulation möglich. Durch die Kenntnis des Strömungsregimes können die Verweilzeiten, die lokale Relativgeschwindigkeit und damit der lokale Stoffaustausch berechnet werden. Deshalb erfolgt die Berechnung der chemischen Absorption nur mit diesem Modell. Die Wechselwirkung der Tropfen beruht auf komplexen Vorgängen. Die Koaleszenz von Tropfen wird in der Regel mit stochastischen Modellen betrachtet.

3.1 Tropfenbildungsprozess

Die Stoffaustauschfläche und das hydrodynamische Verhalten werden im Strahlwäscher durch den sich aus dem Strahl bildenden Tropfenschwarm bestimmt. Grundlage der Modellierungen ist daher zunächst die Beschreibung des Zerstäubungsvorganges.

Zerstäubungsprozesse werden in industriellen Anwendungen vielfältig eingesetzt. Meist soll die spezifische Oberfläche eines Fluides vergrößert werden, um den Stoff- oder den Wärmeaustausch zu verbessern. Anwendungen sind zum Beispiel die Sprühtrocknung, die Verbrennung von Kraftstoffen in Motoren oder die Gaswäsche. Für die Zerstäubung ergeben sich daher spezifische Anforderungen an die Desintegration (z.B. Partikelgrößenverteilung) und an das Spray (Strömungsführung der dispersen Phase) /31/. Entsprechend der Anwendungsbereiche sind daher spezielle Zerstäubertypen erforderlich.

Die Tropfenbildung hängt vom Düsenvordruck, der Geometrie und der Größe der Düse, sowie von der inneren Reibung und der Oberflächenspannung der Flüssigkeit ab. Der Durchsatz in einfachen Düsen fällt mit steigender Viskosität, da zähere Flüssigkeiten eine größere innere Reibung besitzen.

Bei der Drall-Druckzerstäubungsdüse, einer Einstoffdüse, wird die erforderliche Rotationsbewegung für die Strahlbildung durch den Drallkörper erzeugt. Der Drallkörper ist in der Regel ein feststehendes Flügelrad. Die für die Tropfenbildung erforderliche Energie wird aus der kinetischen Energie der Zerstäubungsflüssigkeit genommen. Je größer der Düsenaustritt, desto geringer ist der Einfluss der Reibung auf die Tropfengeschwindigkeit.

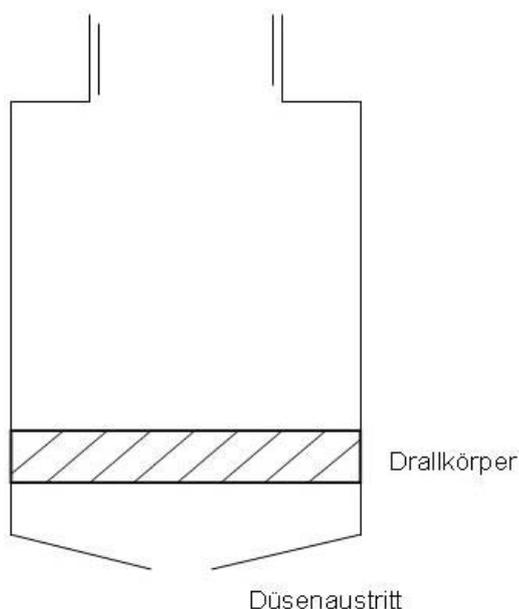


Bild 3.1 Skizze Drall-Druckzerstäubungsdüse

Die Aufteilung des Strahles in Tropfen erfolgt durch mehrere Faktoren wie die Strahl­turbulenz, den Zusammenprall mit sich bewegender oder ruhender Luft und das Aufreißen durch die Fliehkraft. Durch das Anströmen des Tropfens treten aerodynamische Kräfte auf, die ihn beschleunigen und deformieren. Der Zusammenhalt eines Tropfens wird durch seine Ober­flächen­spannung bestimmt. Dies wird durch die Weber-Zahl beschrieben. Sie ist das Verhält­nis von Staudruck und Oberflächen­spannungsdruck, s. Gl. (3.1). Die kritische Weber-Zahl, ab der es zu einem Zerreißen der Tropfen kommt, wird für Wasser mit 10 angegeben /83/.

$$We = \frac{\rho_g \cdot d_p \cdot v_{rel}^2}{\sigma} \quad (3.1)$$

Der Energieaufwand steigt mit der Verfeinerung der Tropfen, da die Oberflächenenergie überproportional zunimmt. In der Praxis werden Tropfen nur so weit verfeinert wie es erforderlich ist. Da die Relativgeschwindigkeit zwischen Tropfen und Luft lokal verschieden ist, ergeben sich unterschiedliche Tropfendurchmesser. Der maximale Tropfendurchmesser steigt mit der Zähigkeit und hängt fast ausschließlich von ihr ab. Der minimale sich bildende Tropfendurchmesser wird wesentlich durch die Oberflächen­spannung bestimmt /54/. Für den Zer­stäubungsprozess lässt sich allgemein formulieren, dass abnehmende Werte von Oberflächen­spannung, Viskosität und ein zunehmender Vordruck, bei sonst konstanten Parametern, zu kleineren Tropfendurchmessern führen /4/.

Der Tropfenbildungsprozess erstreckt sich nach Bauckhage /4/ über drei Bereiche s. Bild 3.2. Im Düsenaustrittsbereich liegt die hochturbulente Strömung im Wesentlichen noch als kontinuierliches Fluid vor. Im Dispergierungsbereich ist diese Strömung bereits aufgerissen, es bilden sich Flüssigkeitslamellen, -fäden oder -fetzen. Im anschließenden Sprühbereich wird eine vollständig abgeschlossene Tropfenbildung angenommen.

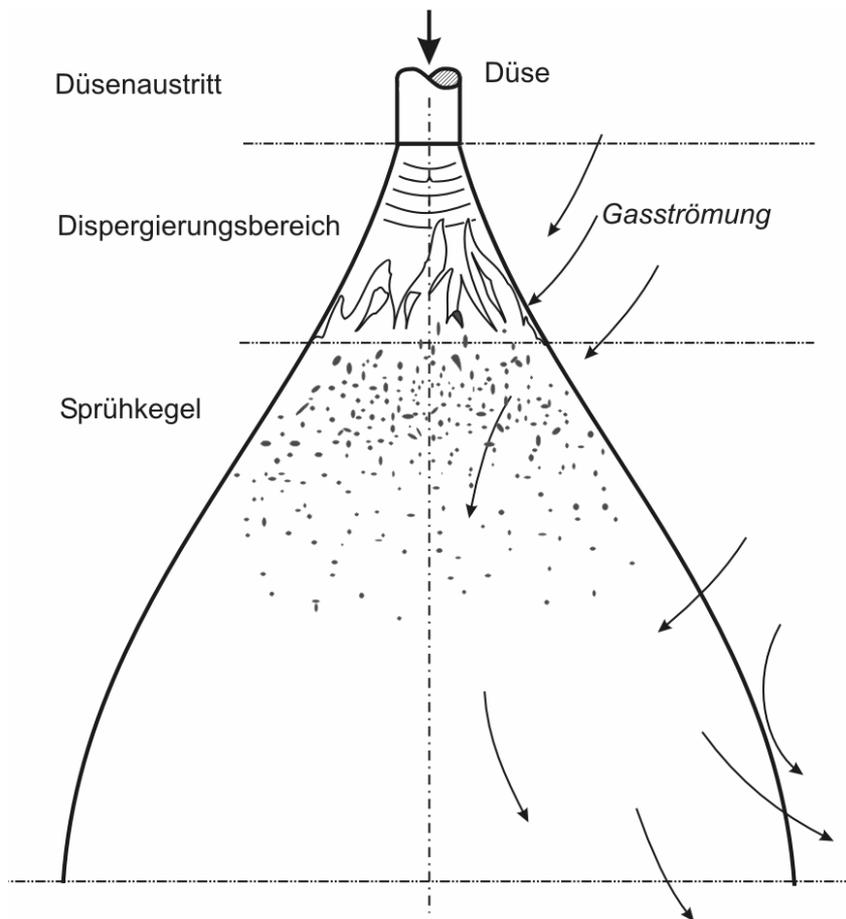


Bild 3.2 Tropfenbildungsprozess

Die wichtigste Prozessgröße der Zerstäubung ist die Tropfengrößenverteilung. In der Literatur finden sich wenige Untersuchungen zur Tropfengrößenverteilung von Drall-Druckdüsen. Dies liegt vor allem am schwer zu erfassenden Strömungszustand in der Drallmischkammer und damit am Düsenaustritt /29/.

Zur Beschreibung des Tropfenspektrums wird oftmals ein mittlerer Durchmesser herangezogen. Der mittlere Durchmesser gibt immer nur eine integrale Information über den Bilanzraum wieder. Stoff- und Wärmeaustauschvorgänge werden über die spezifische Oberfläche oder die Gesamtoberfläche der dispersen Phase beschrieben.

Daher wird neben dem mittleren arithmetischen Durchmesser Gl. (3.2) der Sauterdurchmesser verwendet, der das Verhältnis aus Gesamtvolumen zu Gesamtoberfläche aller Tropfen beschreibt, s. Gl. (3.3).

$$d_{10} = \frac{\sum x_i n_i}{n_{\text{tot}}} \quad (3.2)$$

$$d_{32} = \frac{\sum x_i^3 n_i}{\sum x_i^2 n_i} \quad (3.3)$$

mit n der Anzahl der Tropfengrößenklassen und x [μm] dem Durchmesser der Tropfengrößenklasse

Der Sauterdurchmesser wird vor allem durch große Tropfen bestimmt. Auf den arithmetischen Mitteldurchmesser wirkt sich eine Veränderung des Tropfenspektrums weniger signifikant aus.

Bauckhage /4/ gibt einen Überblick über die Beschreibung mittlerer Durchmesser unter Berücksichtigung der Zerteilungsphänomene mit dimensionslosen Kennzahlen. Für die vertikale Zerstäubung mit einer Einstoff-Vollkegeldüse haben Tanasawa und Toyoda /72/ eine Korrelation zur Beschreibung des Sauterdurchmessers aufgestellt, s. Gl. (3.4).

$$d_{32} = 47 (We_1 Fr)^{-1/4} \left(\frac{\rho_l}{\rho_g} \right)^{1/4} \left\{ 1 + 3,31 \left(\frac{We_1}{Re^2} \right)^{1/2} \right\} d_{Dü} \quad (3.4)$$

für die Berechnung der We-Zahl und der Fr-Zahl gilt die charakteristische Länge d_p

Der maximale Durchmesser eines starren Tropfens kann nach Gl. (3.5) berechnet werden /47/. Die Gleichung muss iterativ gelöst werden, da der Widerstandsbeiwert c_w vom Durchmesser abhängt.

$$d_{p,max} = \frac{8 \cdot \sigma}{c_w \cdot v_{rel}^2 \cdot \rho_g} \quad (3.5)$$

Die Umrechnung eines mittleren Durchmessers für verschiedene Betriebsbedingungen, wie dem Düsenvordruck und dem Düsenaustrittsdurchmesser oder unterschiedlichen physikalischen Eigenschaften des Waschmittels, kann nach dem Ansatz von Walzel /80/ erfolgen, s. Gl. (3.6).

$$d_p = m \cdot d_{Dü} \cdot \left(\frac{\Delta p \cdot d_{Dü}}{\sigma} \right)^n \quad (3.6)$$

Die Konstanten m und n müssen über einen definierten Zustand mit einem bekannten Sauterdurchmesser zunächst bestimmt werden.

Bei hohen Flüssigkeitsdurchsätzen bestimmen Turbulenzkräfte die Zerstäubung. Wesentliche Kenntnisse über die verantwortlichen Turbulenzstrukturen sind noch nicht hinreichend bekannt /4/. Auch werden Vorgänge in der unmittelbaren Strahlumgebung wie z.B. der Mitreißeffekt der Gasströmung in der Kennzahlkorrelation Gl. (3.4) nicht berücksichtigt. Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass der Vorgang der Strahlzerstäubung sich nach bisherigem Kenntnisstand nicht sicher beschreiben lässt. Die Berechnung eines Tropfendurchmessers mit Kennzahlkorrelationen hat keine allgemeine Gültigkeit, sondern sie lässt sich vielmehr nur auf Sonderfälle anwenden. Die Eindüsung und die turbulente Partikelverteilung verlaufen so ungeordnet, dass bei der Modellierung von Sprühvorgängen oftmals statistische Verfahren

herangezogen werden /29/. Experimentell kann die Strahlenzerstäubung mit aufwendigen photographischen Verfahren erfasst werden. Das für den Prozess entscheidende Tropfenspektrum lässt sich durch laseroptische Verfahren mit großer Genauigkeit bestimmen (s. Kap 5.3.7).

3.2 Literaturübersicht empirischer Modelle

3.2.1 Beschreibung der Hydrodynamik

Umfassende Untersuchungen zur Modellierung von Strahlwäschern wurden bereits in den 70er Jahren durchgeführt /53/, /33/, /52/. Der Druckverlust kann allgemein beschrieben werden nach der bekannten Gl. (3.7) :

$$\Delta p = \zeta \cdot \frac{\rho_G}{2} \cdot \omega_0^2 \cdot \frac{L}{d_{\text{stra}}} \quad (3.7)$$

mit L/d_{stra} dem Geometrieverhältnis und ζ dem Widerstandsbeiwert nach Hoffmann et al. /33/

$$\zeta = C_1 Re^{-m} \theta^{-n} \quad (3.8)$$

mit θ dem Volumenanteil der Flüssigkeit im Strahlwäscher

Die Konstanten C_1 , m und n müssen über eine Regressionsanalyse bestimmt werden. Der Ansatz gilt nur für hohe Gasgeschwindigkeiten, also einem Strömungsregime, in dem die erzeugte Pressung vernachlässigbar gegenüber dem Druckverlust ist. Der Druckverlust steigt in erster Näherung mit dem Quadrat der Gasgeschwindigkeit.

Der Ansatz nach Flügel /25/ gilt für den allgemein relevanten Bereich, wenn mit dem Strahlwäscher ein Druckgewinn erzeugt wird. Flüssigkeitsmenge, Gasmenge und Differenzdruck stehen im Strahlwäscher in einem bestimmten Zusammenhang, s. Gl. (3.9).

$$\frac{\dot{M}_g}{\dot{M}_l} = \frac{0,5 \cdot v_{Dü}^2 \cdot \eta - \frac{p_L - p_0}{\delta_1}}{R \cdot T \cdot \ln \frac{p_L - p''}{p_0 - p''}} \quad (3.9)$$

mit $v_{Dü}$ der Geschwindigkeit des Treibstrahles am Düsenaustritt, p_L dem Druck am Ende des Strahlwäschers, p_0 dem Ansaugdruck, p'' dem Dampfdruck der Flüssigkeit und η dem Verdichtungswirkungsgrad

Der Verdichtungswirkungsgrad muss bekannt sein, er liegt für die meisten Strahlwäscher zwischen 0,2 und 0,25 /33/.

3.2.2 Beschreibung des Stoffaustausches

Im Strahlwäscher ist eine Abhängigkeit der spezifischen Austauschfläche von der dissipierten Energie zu erwarten. Darüber hinaus steigt die Austauschfläche mit dem Flüssigkeitsinhalt an. Hoffmann et al. /33/ hat für die Berechnung der spezifischen Austauschfläche in Strahlwäschern einen empirischen Ansatz entwickelt, s. Gl (3.10).

$$a_{\text{eff}} = C \cdot \left(\frac{\dot{V}_1}{\dot{V}_1 + \dot{V}_g} \right)^q \sqrt[5]{ \left(\frac{P}{V_{\text{str}}} \right)^2 \frac{\rho_1}{\sigma^3} } \quad (3.10)$$

mit P/V_{str} der eingetragenen Leistung pro Volumen und den empirischen Konstanten C und q

In dem Ansatz werden wichtige physikalische Randbedingungen wie die Strahlwäschergeometrie nicht berücksichtigt. Über die Konstanten gibt es bisher nur wenige Angaben /48/.

Einfacher und genauer ist die experimentelle Bestimmung der effektiven Stoffaustauschfläche über die chemische Methode. Meistens wird dabei eine Reaktion zweiter Ordnung verwendet. Die gasförmige Komponente A wird von der Flüssigkeit absorbiert und reagiert in der Flüssigkeit mit der Komponente B. Über die bekannten Konzentrationen, das Löslichkeitsverhalten und die Reaktionsgeschwindigkeit kann die effektive Stoffaustauschfläche bestimmt werden. Last /40/ gibt einen Überblick über gängige Reaktionen zur Bestimmung der Stoffaustauschfläche.

In dieser Arbeit soll die Stoffaustauschfläche mit der Reaktion von Luftsauerstoff und Natriumsulfit zu Natriumsulfat bestimmt werden.



Die Sufitoxidation kann als Reaktion pseudo-erster Ordnung betrachtet werden (s. Kap. 4.1.4). Die Berechnung der effektiven Stoffaustauschfläche erfolgt nach Gl. (3.11).

$$a_{\text{eff}} = \frac{\dot{N}_{\text{O}_2}}{c_{\text{O}_2}^{3/2} \sqrt{\frac{2}{3} \cdot k_1 \cdot D_{\text{O}_2}}} \quad (3.11)$$

mit \dot{N}_{O_2} der absorbierten Menge Sauerstoff, der Reaktionsgeschwindigkeit,

$k_1 = 1,7 \cdot 10^7 \text{ m}^3 / (\text{kmol s})^{(*)}$, dem Diffusionskoeffizienten $D_{\text{O}_2} = 1,6 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2 / \text{s}^{(*)}$ von Sauerstoff in der Natriumsulfitlösung und c_{O_2} der mittleren Sauerstoffkonzentration

^(*) nach Hoffmann et al. /33/

und dem Gültigkeitsbereich nach Hoffmann et al. /33/:

$$c_{\text{O}_2} \leq 3,6 \cdot 10^{-4} \text{ kmol/m}^3 \quad 0,5 \leq c_{\text{SO}_3} \leq 0,8 \text{ kmol/m}^3$$

$$8 \leq \text{pH} \leq 9,1 \quad 15 \leq T_1 \leq 33^\circ\text{C}$$

3.3 Eindimensionales Modell

Die Sauer gaswäsche mittels chemischer Absorption erfolgt für die meisten Anwendungen in einer Kolonne. Die Modellierung der thermodynamisch-mathematischen Zusammenhänge einer Kolonne erfolgt üblicherweise durch eine Kaskade von diskreten Segmenten. Die so genannten Zellen- und Differenzmodelle sind prinzipiell auch für Sprüh- und Strahlwäscher anwendbar.

Das Zellenmodell beschreibt die hydrodynamischen Vorgänge analog der Strömung durch eine Anzahl gleichgroßer, idealer Rührkessel. Zur Berechnung des Wärme- und Stoffaustausches wird jeweils die Energie- und Mengenbilanz beider Phasen für eine Zelle aufgestellt. Die Gleichungen werden zu einem algebraischen Gleichungssystem zusammengefasst, das unter Vorgabe geeigneter Startwerte zum Beispiel mit dem Newton Verfahren simultan gelöst werden kann. Dieses Modell ist in Prozesssimulationswerkzeugen wie ASPEN Plus implementiert.

Beim differentiellen Ansatz wird der Apparat in differentiellen Schritten nacheinander durchgerechnet. Die Bilanz und Transportgleichungen ergeben ein differentiell-algebraisches Gleichungssystem, das zum Beispiel mit dem Runge-Kutta-Verfahren numerisch gelöst werden kann. Der Vorteil dieses Modellansatzes ist, dass die Schrittweite der Berechnung an die Größe der Variablenänderung angepasst werden kann. Damit wird das Modell in Bereichen großer Temperatur- oder Konzentrationsänderungen genauer als das Zellenmodell /47/. Als wesentliche Vereinfachung wird angenommen, dass die Gas- und die Flüssigphase gleichmäßig über den Querschnitt verteilt sind. Das Gas weist in axialer Richtung eine Kolbenströmung auf und die Geschwindigkeitskomponenten in radialer und Umfangsrichtung werden vernachlässigt. Kommt es zu Rückströmungen, ist eine einfache Bilanzierung mit Apparatzellen nicht mehr möglich. Wegen seines einfachen und robusten Aufbaus werden jedoch Zellenmodelle zur Modellierung von Sprühwäschern verwendet /47/, /21/.

3.3.1 Berechnung der dispersen Phase

Zur Berechnung der Partikelreynoldszahl und der Pressung muss die Geschwindigkeit der Tropfen bekannt sein. Die Impulsänderung eines Tropfens erhält man über das Kräftegleichgewicht am Tropfen. Der Tropfen kann als starrer Partikel betrachtet werden (Index p).

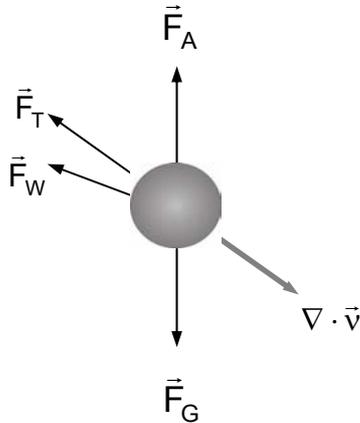


Bild 3.3 Kräftegleichgewicht eines Tropfens

Die Kräfte, die auf den Tropfen wirken, sind die Gewichtskraft \vec{F}_G , die Auftriebskraft \vec{F}_A , die Widerstandskraft \vec{F}_W und die Trägheitskraft \vec{F}_T .

$$\vec{F}_G = V_p \cdot \rho_l \cdot \vec{g} \quad (3.12)$$

$$\vec{F}_A = V_p \cdot \rho_g \cdot \vec{g} \quad (3.13)$$

$$\vec{F}_W = c_w \cdot \frac{\rho_g}{2} \cdot A_p (\vec{v}_p - \vec{v}_g) \cdot |\vec{v}_p - \vec{v}_g| \quad (3.14)$$

Die Richtung der Widerstandskraft wird durch die Richtung der Relativgeschwindigkeit bestimmt. Da die Tropfengeschwindigkeit höher als die Gasgeschwindigkeit ist, geht die Widerstandskraft negativ in die Kräftebilanz ein. Die Trägheitskraft ergibt sich aus der Impulsänderung eines Tropfens. Vernachlässigt man die Änderung der Masse, gilt für die Impulsänderung des Tropfens Gl. (3.15).

$$\vec{F}_T = m \frac{d\vec{v}}{dt} = \sum_i \vec{F}_i = \vec{F}_G - \vec{F}_A - \vec{F}_W \quad (3.15)$$

Für die Kräftebilanz werden die Vektoren in vertikale und horizontale Komponenten zerlegt. Die Z-Koordinate zeigt in dieser Arbeit immer in Richtung der Schwerkraft, s. Bild 2.2.

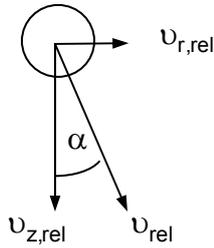


Bild 3.4 Aufteilung des Kraftvektors

Für die horizontale Kräftebilanz gilt:

$$\sum F_r = F_{T,r} + F_{W,r} = 0 \quad (3.16)$$

$$\frac{dv_{p,r}}{dt} = -\frac{3}{4} \cdot \frac{\rho_g}{\rho_l} \cdot \frac{1}{d_p} c_w \cdot [(v_p - v_g) \cdot |v_p - v_g|] \cdot \sin \alpha \quad (3.17)$$

Für die vertikale Kräftebilanz müssen zusätzlich die Auftriebs- und Gewichtskraft berücksichtigt werden.

$$\sum F_z = F_{G,z} - F_{T,z} - F_{A,z} - F_{W,z} = 0 \quad (3.18)$$

$$V_p \cdot \rho_l \cdot \left(\frac{dv_{p,z}}{dt} \right) = V_p \cdot g \cdot (\rho_l - \rho_g) - c_w \cdot \frac{\rho_g}{2} \cdot A_p \cdot [(v_p - v_g) \cdot |v_p - v_g|] \cdot \cos \alpha \quad (3.19)$$

Unter Annahme einer vertikalen Kolbenströmung des Gases folgt aus Gl. (3.19)

$$\frac{dv_{p,z}}{dt} = g \cdot \left(1 - \frac{\rho_g}{\rho_l} \right) - c_w \cdot \frac{3}{4} \cdot \frac{\rho_g}{\rho_l} \cdot \frac{1}{d_p} (v_{p,z} - v_{g,z}) \cdot |v_{p,z} - v_{g,z}| \quad (3.20)$$

Die Differenzialgleichung Gl.(3.20) läßt sich nur numerisch lösen. Der Widerstandbeiwert c_w wird iterativ berechnet. Als Startwert wird mit der Düsenaustrittsgeschwindigkeit gerechnet. Im Zellenmodell kann nur eine homogene Phase berücksichtigt werden. Das reale Tropfenspektrum wird näherungsweise durch den Sauterdurchmesser beschrieben. Die Volumenabnahme durch Verdunstung wird vernachlässigt. Diese Annahme ist unter den vorliegenden Versuchsbedingungen zulässig, s. Kap. 5.1.

3.3.2 Widerstandsbeiwert

Für die Wechselwirkung zwischen der Gasphase und der dispersen Phase ist neben der Differenzgeschwindigkeit der Widerstandsbeiwert die maßgebliche Einflussgröße. Dieser beschreibt das aerodynamische Widerstandsverhalten eines Tropfens mit der umgebenden Phase. Für die Berechnung von Widerstandsbeiwerten von Tropfen geht man meistens von einer starren Kugelform aus. Diese Annahme ist bei kleinen Durchmessern und geringen Relativgeschwindigkeiten zulässig /47/. Die Korrelationen der Widerstandsbeiwerte werden in Abhängigkeit von der Partikelreynoldszahl beschrieben, s. Gl. (3.21).

$$Re_p = \frac{v_{rel} \cdot d_p}{\nu} \quad (3.21)$$

Der Widerstandsbeiwert für eine laminare, schleichende Umströmung einer Kugel wird mit dem Stokes'schen Gesetz beschrieben.

$$c_{w,lam} = \frac{24}{Re_p} \quad (3.22)$$

Unter turbulenten Strömungsbedingungen hat das Stokes'sche Gesetz keine Gültigkeit mehr. In Bild 3.5 sind verschiedene Ansätze zur Beschreibung des Widerstandsbeiwertes dargestellt, sie gelten für definierte Reynoldszahlenbereiche. Der Ansatz nach Brauer /8/ gilt bis zur kritischen $Re_p = 4 \cdot 10^3$:

$$c_w = \frac{24}{Re_p} + \frac{3,73}{Re_p^{0,5}} - \frac{4,83 \cdot 10^{-3} \cdot Re_p^{0,5}}{1 + 3 \cdot 10^{-6} \cdot Re_p^{1,5}} + 0,49 \quad (3.23)$$

Der Ansatz nach Morsi und Alexander /49/ ist in diskrete Reynoldszahlenbereiche unterteilt, s. Tab. 3.1. Der gesamte Gültigkeitsbereich erstreckt sich von $Re_p = 0,1$ bis $5 \cdot 10^4$.

$$c_w = \frac{c_1}{Re_p} + \frac{c_2}{Re_p^2} + c_3 \quad (3.24)$$

Tab. 3.1 Koeffizienten c_1 , c_2 , c_3 nach Morsi und Alexander /49/

	c_1	c_2	c_3
0,0 < Re_p < 0,1	0	24,0	0
0,1 < Re_p < 1,0	3,69	22,73	0,0903
1,0 < Re_p < 10,0	1,222	29,1667	-3,8889
10,0 < Re_p < 100,0	0,6167	46,5	-116,67
100,0 < Re_p < 1000,0	0,3644	98,33	-2778
1000,0 < Re_p < 5000,0	0,357	148,62	$4,75 \cdot 10^4$
5000,0 < Re_p < 10000,0	0,46	-490,546	$57,87 \cdot 10^4$
10000,0 < Re_p < 50000,0	0,5191	-1662,5	$5,4167 \cdot 10^6$

Bei großen Tropfen und hohen Relativgeschwindigkeiten kann es zu einer Abweichung von der idealen Kugelform kommen. Der Einfluss der Tropfendeformation kann durch die Weber-Zahl beschrieben werden /83/.

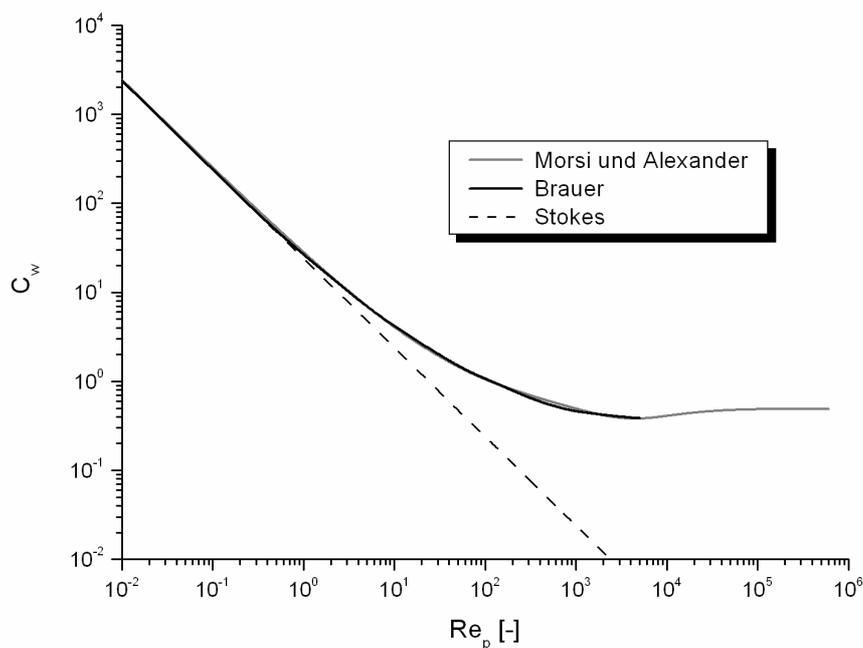


Bild 3.5 Widerstandsbeiwerte

Die Korrelationen basieren auf Messungen an Einzelkugeln und -tropfen. Wiegand /83/ hat die Umströmungsverhältnisse von Tropfenschwärmen im Vergleich zum Einzeltropfen untersucht. Ist der Tropfenabstand größer $2,4 \cdot d_p$ kommt es zu keiner Beeinflussung der Tropfen untereinander, so dass mit dem Widerstandsbeiwert für Einzeltropfen gerechnet werden kann. Zumindest im düsenahen Bereich kommt es zu einer Interaktion der Tropfen. Für diesen Effekt existiert noch keine gesicherte Korrelation, so dass für den Modellansatz die Interaktion im düsenahen Bereich vernachlässigt wird.

3.3.3 Berechnung der Pressung nach dem Modellansatz des Autors

Die Pressung im Strahlwäscher bzw. der Unterdruck im Ansaugrohr entsteht durch die beschleunigten Flüssigkeitstropfen. Für eine stationäre Gasströmung kann die Pressung nach Gl. (3.25) berechnet werden. Der erste Term der rechten Seite beschreibt den Druckverlust der Rohrströmung, der zweite die erzeugte Pressung durch die Tropfen.

$$\frac{\partial p}{\partial z} = -\frac{1}{2} \cdot \frac{\lambda}{D} \cdot \rho_g \cdot v_g^2 + \frac{1}{8} \pi \cdot d_p^2 \cdot c_w(v_{p,z}) \cdot \varphi(z) \cdot \rho_g \cdot (v_{p,z} - v_g) \cdot |v_{p,z} - v_g| \quad (3.25)$$

mit φ der Tropfenanzahl pro Volumen und der Rohrreibungszahl λ für hydraulisch glattes Verhalten

Die Berechnung der Pressung im Strahlwäscher über die Tropfengeschwindigkeit und die Schleppwirkung der Tropfen nach Gl. (3.25) wurde bereits von Schacht /66/ für eine konstante Tropfenanzahl beschrieben. Die Tropfenanzahl kann jedoch nur für eine begrenzte Höhe als konstant betrachtet werden.

Die Tropfenanzahl soll daher in Abhängigkeit von den beeinflussenden Parametern beschrieben werden. Durch Anpassung der beeinflussenden Parameter an die experimentellen Ergebnisse soll eine Korrelationsgleichung entwickelt werden. Die Tropfenanzahl pro Volumeneinheit soll als mittlerer Integralwert nach Gl. (3.26) definiert werden.

$$\varphi = \frac{\int_0^z \xi \cdot dz}{\int_0^z dz} \quad (3.26)$$

mit der lokalen Tropfendichte ξ

Mit den getroffenen Annahmen, dass der Tropfenzerfall und die Koaleszenz vernachlässigt werden, hängt die örtliche Tropfendichte ξ von den Wandeffekten und der Tropfenverzögerung aufgrund der Wechselwirkung mit der Gasströmung ab. Geht man von einer zeitlich konstanten Sprühcharakteristik der Düse aus, so lässt sich demnach die Tropfenanzahl pro Volumen als Funktion der Länge z und der Gasgeschwindigkeit v_g , die durch die Wechselwirkung die Tropfengeschwindigkeit beeinflusst, beschreiben.

In dieser Arbeit wurde der differentielle Ansatz (s. Kap. 3.3) zur Berechnung des eindimensionalen Modells verwendet. Für jede Zelle wird die mittlere Geschwindigkeit nach Gl. (3.20) und die entsprechende Pressung nach Gl.(3.25) berechnet. Das Differentialgleichungssystem wird mit dem Runge-Kutta Verfahren 4. Ordnung gelöst.

3.4 Rigoroses Modell

Zentrale Aufgabe der Simulation ist die möglichst exakte Beschreibung der Realität. Eine Aufklärung der komplexen physikalischen Vorgänge der Zweiphasenströmung im Strahlwäscher ist auf theoretischem Wege mit der Computational Fluid Dynamics (CFD)-Simulation möglich. Diese numerische Strömungssimulation berechnet das tatsächliche Verhalten der Phasen und gehört zu den exakten Modellen. Die Impuls-, Wärme- und Stofftransportvorgänge sowie die geometrischen und fluiddynamischen Randbedingungen werden berücksichtigt. Die numerische Simulation lässt sich in die Teilbereiche Modellbildung, Diskretisierung, Findung effizienter Algorithmen und der Visualisierung der Ergebnisse einteilen. Grundlage für die mathematische Behandlung von Strömungen sind die Navier-Stokes- und die Euler-Gleichungen, die die Abhängigkeit der Geschwindigkeit und des Druckes von Ort und Zeit beschreiben.

Heutzutage wird die numerische Simulation in vielen wissenschaftlichen und industriellen Bereichen angewendet. Der wichtigste Anwendungsbereich ist die Simulation von Strömungen. Hier hat die CFD-Simulation eine zentrale Stellung eingenommen. Auch für die Zweiphasensimulation eines Sprühwäschers hat sich die CFD-Simulation bereits als geeignet erwiesen [37], [46].

Die Strömungssimulation von rotationssymmetrischen Körpern kann durch eine zweidimensionale Simulation erfolgen. Gegenüber einer dreidimensionalen Simulation ist die Berechnung erheblich einfacher. Bisherige Strömungssimulationen von Strahlwäschern beschränken sich daher auf eine zweidimensionale Betrachtung [70], [30]. In den meisten Strahlwäschern erfolgt die Gaszufuhr jedoch seitlich. Durch eine zweidimensionale Betrachtung kann diese Strömungsführung nicht exakt berechnet werden. Des Weiteren sind Turbulenzwirbel grundsätzlich dreidimensional. In dieser Arbeit erfolgt daher die numerische Strömungssimulation des Strahlwäschers dreidimensional. Die Berechnung der Gasphase wird in Kap. 3.4.1 vorgestellt, die der dispersen Phase in Kap. 3.4.3 Die mathematischen Gleichungen sind so komplex, dass eine analytische Lösung nicht mehr bestimmt werden kann. In Kap. 3.4.4 werden verschiedene Möglichkeiten zur Beschreibung der turbulenten Strömung vorgestellt. Für das gewählte Turbulenzmodell erfolgt eine Darstellung der theoretischen Berechnung. Die Simulation erfolgt mit dem kommerziellen CFD-Programm Fluent 6.1.

3.4.1 Berechnung der Gasphase nach Euler

Entscheidend für die Berechnung von Strömungen sind die Wechselwirkungen zwischen den Fluidpartikeln untereinander und zwischen dem Fluid und einem ruhenden oder bewegten Körper.

Beim Euler-Modell wird die Individualität der Moleküle nicht berücksichtigt, das heißt, das Strömungsmedium wird als Kontinuum betrachtet. Die Annahme ist zulässig, wenn die mittleren Abstände der Moleküle vernachlässigbar klein sind im Vergleich zu den charakteristi-

schen Abmessungen im System. Der Vorteil der Euler-Darstellung ist, dass die makroskopischen Eigenschaften des Fluids mit wenigen Parametern wie der Dichte und der Viskosität abgebildet werden können /27/. Man spricht beim Euler-Modell von einer ortsfesten Beobachtung, da die Bilanzierung für ein ortsfestes Kontrollvolumen erfolgt.

Betrachtet man den dreidimensionalen Lösungsraum, so gilt im kartesischen Koordinatensystem für den Ort Gl. (3.27) und für die Geschwindigkeit Gl. (3.28).

$$\vec{x} = \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} \quad (3.27)$$

$$\vec{v} = \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} \quad (3.28)$$

Die Geschwindigkeit wird im Folgenden mit der allgemeinen Geschwindigkeitsvariablen v beschrieben.

Die Strömung wird durch die Navier-Stokes'schen-Gleichungen beschrieben. Diese lassen sich aus den Erhaltungsgleichungen für Masse und Impuls herleiten /28/. Die Gleichung für die Massenerhaltung setzt sich aus einem Term, der die zeitliche Änderung der Masse, und einem Term, der die Änderung der Masse durch Konvektion beschreibt, zusammen.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho v_i) = 0 \quad (3.29)$$

Die Impulsbilanz für ein beliebiges, einphasiges Fluid lässt sich an einem finiten Volumenelement für das kartesische Koordinatensystem nach Gl. (3.30) beschreiben.

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho v_i) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho v_i v_j) = \frac{\partial}{\partial x_j} \tau_{i,j} - \frac{\partial p}{\partial x_i} + \rho \cdot g_i + F_i \quad (3.30)$$

mit i und j den Richtungsindices

Die Terme der Gl. (3.30) beschreiben die zeitliche Änderung des Impulses, den Impulstransport durch Konvektion, die Änderungen der Schub – und Normalspannungen sowie den Quelltermen bestehend aus einem Druckterm, der Gravitationskraft und äußeren Kräften (F_i), die sich durch Impulsaustauschkräfte mit der dispersen Phase ergeben können. Die Schub – und Normalspannungen sind entsprechend Gl. (3.31) definiert.

$$\tau_{i,j} = \eta \left[\left(\frac{\partial v_j}{\partial x_i} + \frac{\partial v_i}{\partial x_j} \right) - \frac{2}{3} \nabla \cdot v \cdot \delta_{i,j} \right] \quad (3.31)$$

mit δ dem Kroneckersymbol

Darin repräsentiert der erste Term auf der rechten Seite den Spannungsteil, während der zweite den Dehnungsanteil wiedergibt.

Das orts- und zeitabhängige System der partiellen Differentialgleichungen lässt sich nur numerisch lösen. Das Berechnungsgebiet wird diskretisiert, das heißt, es werden nur endlich viele ausgewählte Volumina betrachtet. Das diskrete Modell muss das kontinuierliche Modell möglichst gut approximieren. Die Diskretisierung erfolgt nach der Methode der Finiten Volumina. Die Erhaltungsgleichungen für Masse, Impuls und Energie werden für jedes einzelne Volumen integriert und gelöst. Die Gleichungen können durch einen sequentiellen modularen oder einen gleichungsorientierten simultanen Ansatz gelöst werden. Zur Berechnung wurde der sequentielle modulare Ansatz gewählt. Dieser löst die einzelnen Gleichungen nacheinander und voneinander getrennt. Aufgrund dieses Lösungsansatzes sind mehrere Iterationen über alle Gleichungen nötig, um eine Lösung zu erhalten. Der Lösungsprozess lässt sich gut an den Residuen verfolgen. Konvergenzprobleme können besser lokalisiert werden. Die Berechnung mit einem sequentiellen modularen Ansatz kann zu Konvergenzproblemen bei Prozessen mit verschalteten Rückführungen führen /24/.

Der Versuchstrahlwäscher DN150 (s. Kap. 5) liefert die geometrische Vorlage für das Rigorose Modell. Die Randbedingungen, die sich aus der Funktionsweise der Versuchsanlage ergeben, wurden im Modell berücksichtigt. So wurde der Druckverlust, der sich in der Gaszuführung der Versuchsanlage ergibt, durch Druckrandbedingungen im Modell berücksichtigt. Der Gasvolumenstrom im Strömungssimulationsmodell wurde über einen einstellbaren Druckverlust am Strahlwäscheraustritt eingestellt.

3.4.2 Druckberechnung

Die Druckverteilung hat einen großen Einfluss auf die Strömung im Berechnungsgebiet. So werden Wirbelzonen in der Gasphase primär durch einen lokalen Unterdruck hervorgerufen. Daher, und auch zur Schließung des Gleichungssystems des Impulstransportes, muss eine Druckberechnung erfolgen. Der Druck und dadurch die Geschwindigkeitskomponente werden für iterativ korrigiert. Liegt für eine betrachtete Zelle im Berechnungsgebiet numerisch noch nicht der richtige Druck vor, kommt es zu einem Kontinuitätsdefekt. Ist diese Divergenz positiv, dann tritt in die betrachtete Zelle ein zu hoher Massenstrom ein und der Druck wird zu hoch geschätzt. Zur Berechnung des exakten Druckes in einer Zelle muss die Divergenz gegen Null gehen. Daraus lässt sich eine Bestimmungsgleichung für die Korrektur des Druckes in einer Zelle ableiten. Für die Massenstromdichte J über eine Zelle gilt Gl. (3.32).

$$J = J^* + J' \quad (3.32)$$

Mit J^* der aus dem geschätzten Druck berechneten Massenstromdichte und der Korrekturmassenstromdichte J' nach Gl. (3.33).

$$J' = \Omega \cdot \Delta p_c \quad (3.33)$$

mit Ω dem Relaxationsfaktor und der Druckkorrektur Δp_c in einer Zelle

Für die erste Iteration muss eine Druckschätzung vorliegen. Für jede weitere Iteration wird die Näherungslösung der vorherigen Iterationsstufe als Ausgangswert herangezogen.

3.4.3 Berechnung der dispersen Phase

Bei der Methode von Lagrange wird die Tropfengeschwindigkeit zeitabhängig entlang des Weges berechnet. Das heißt, die Bahnlinien eines Masseteils werden im System verfolgt. Man spricht daher im Gegensatz zum Euler-Modell von einem mitbewegten Beobachter. Voraussetzung für die Anwendung des Lagrange-Modells ist, dass die disperse Phase einen Volumenanteil von kleiner als 12% im Zweiphasensystem hat /24/.

Die Impulsänderung der dispersen Phase wurde entsprechend dem eindimensionalen Modell (Kap. 3.3.1) über das Kräftegleichgewicht am Tropfen berechnet. Der Widerstandsbeiwert wurde nach dem Ansatz von Morsi und Alexander /49/ nach Gl. (3.24) berechnet.

Die Berechnung der dispersen Phase ist prinzipiell auch mit dem Euler-Modell möglich. Beim Lagrange-Modell kann das Tropfenspektrum jedoch mit geringerem Aufwand berücksichtigt werden als beim Euler-Modell. Jede Tropfenklasse wird bei der Berechnung nach Euler als einzelne Phase betrachtet. Folglich müsste neben der Euler-Gleichung der Gasphase für jede betrachtete Tropfengröße eine weitere Euler-Gleichung gelöst werden.

Die Streuung einer Partikelschar aufgrund der turbulenten Geschwindigkeitsschwankungen kann durch stochastische Modelle, wie das von Baxter und Smith /5/ entwickelte „Particle Cloud“ Modell, berücksichtigt werden. Die Verteilung der Partikel wird durch eine Wolke beschrieben, die durch eine Wahrscheinlichkeits-Dichte Funktion (WDF) entlang einer mittleren Flugbahn berechnet wird. Die Wahrscheinlichkeits-Dichte Funktion entspricht einer dreidimensionalen Gaußverteilung. Die Wolke weitet sich auf ihrem Weg durch das Berechnungsgebiet wegen der turbulenten Dissipation auf. Das Modell senkt die Genauigkeit bei der Berechnung der transportierten Komponente, da es durch die Betrachtung der Partikel in einer Wolke zu einer Mittelung kommt. Eigene Voruntersuchungen zur Modellwahl haben gezeigt, dass die Berücksichtigung der turbulenten Geschwindigkeitsschwankungen auf die Partikel keinen Einfluss auf die Berechnung des Stoffaustausches hat. Es wurde daher auf die Modellierung der turbulenten Streuung verzichtet. Die Strahlaufweitung wurde durch das verwendete Injektionsmodell erreicht, s. Kap 3.5.1.

3.4.4 Turbulenzmodellierung

Die Reynolds-Zahl kennzeichnet den Einfluss der Reibungs- und Trägheitskräfte auf das Strömungsfeld. Bei kleinen Reynolds-Zahlen bewegen sich die Fluidteilchen nebeneinander und geordnet. Der Transport von Impuls und Wärme erfolgt konvektiv in Hauptströmungsrichtung, quer dazu lediglich in Form von Molekularbewegungen. Diese laminare Strömung liegt bis zur kritischen Reynolds-Zahl vor. In einer turbulenten Strömung bewegen sich die Fluidteilchen völlig ungeordnet um die dominierende Hauptströmung. Der Transport von Impuls und Wärme erfolgt nicht nur entlang der Hauptströmungsrichtung, sondern auch durch die turbulente Querströmung. Der Übergang von laminarer in turbulente Strömung ist stets mit einer Zunahme der inneren Reibung verbunden.

Turbulente Strömungen zeichnen sich im Gegensatz zu laminaren Strömungen durch folgende charakteristische Eigenschaften aus: Sie sind stochastisch, dreidimensional, instabil, mikroskopisch instationär und wirbelbehaftet.

Turbulente makroskopische Schwankungen bestehen aus Zusammenballungen kohärenter Fluidteilchen (engl. Eddys), das heißt aus Überlagerungen von Wirbeln. Die Größe und die Frequenz der Wirbel können über einen weiten Bereich schwanken. Die größten Wirbel haben die Dimensionen des Strömungsgebietes, sie beinhalten den Hauptteil der Energie der Strömung. Die großen Wirbel zerfallen in kleinere Wirbel. Die Größe der kleinsten Wirbel wird durch die Viskosität des Fluides bestimmt, sie liegt im Millimeterbereich und darunter. Die Überführung der kinetischen Energie der Wirbel in thermische Energie durch viskose Dissipation kann durch eine Energiekaskade beschrieben werden. Der Anfang der Energiekaskade ist durch die geometrischen Abmessungen des Strömungsbereiches bestimmt, der entsprechende turbulente Längenmassstab wird als Makrolängenmaß bezeichnet. Am Ende der Energiekaskade steht die Dissipation der kinetischen Energie in thermische Energie, man spricht hier vom Kolmogorov-Mikrolängenmaß [29].

Die Geschwindigkeits-, Temperatur- und Konzentrationsprofile sind bei turbulenten Strömungen ausgeglichener als bei laminaren. Bei vollturbulenten Strömungen sind die Wirkungen der turbulenten Schwankungen im Allgemeinen wesentlich größer als die der molekulare Bewegungen. Man unterscheidet zwischen freier Turbulenz (Scherung von Fluidteilchen) und wandinduzierter Turbulenz. In den Scherschichten bilden sich Wirbel aus, die einem Dissipationsprozess unterworfen sind.

Jede inkompressible Strömung kann mathematisch durch die Navier Stokes Gleichungen beschrieben werden, egal ob sie laminar oder turbulent ist. Voraussetzung ist, dass die Länge der Turbulenzbewegung um Größenordnungen über der mittleren freien Weglänge der Moleküle liegt.

Die Diskretisierung des Berechnungsgebietes muss mit einem ausreichend feinen Gitter erfolgen, um auch die kleinsten Wirbel noch auflösen zu können. Für die direkte numerische Simulation der Turbulenz müsste jedoch das Berechnungsgebiet unverhältnismäßig hoch aufgelöst werden. Dieser Ansatz ist nur für einfache Geometrien und bei relativ kleinen Reynolds-

Zahlen möglich. Die direkte Simulation wird genutzt, um Turbulenzmodelle zu entwickeln. Für praktische Anwendungen kommt dieser Ansatz noch nicht in Frage.

Statt durch die direkte Simulation werden turbulente Strömungen durch Turbulenzmodelle, die sich in Feinstrukturmodelle und statistische Turbulenzmodelle unterteilen lassen, beschrieben /28/. Zu den Feinstrukturmodellen gehört die Large Eddy Simulation. Durch eine Filtergleichung erfolgt eine Aufteilung des gesamten Turbulenzbereiches in zwei Teile, den auflösbaren Anteil (Grobstruktur) und den nicht auflösbaren Anteil (Feinstruktur). Die großen, energiereichen Wirbel werden über die direkte Simulation erfasst, während die kleinen, energiearmen über Turbulenzmodelle beschrieben werden. Die Einteilung erfolgt durch einen definierten Filter. Bei einer sehr kleinen Filterweite geht die Large Eddy Simulation in die direkte Simulation über. Die Berechnung erfolgt instationär und dreidimensional. Die Large Eddy Simulation kann aufgrund der hohen Rechenzeiten für viele industrielle Anwendungen noch nicht angewendet werden.

In der Praxis werden vor allem Turbulenzmodelle, die auf gemittelten Navier-Stokes-Gleichungen basieren, für die Beschreibung der Turbulenz verwendet. Die in den Navier-Stokes-Gleichungen vorkommenden Größen wie die Geschwindigkeit und der Druck werden in einen Hauptteil $\bar{\varphi}$ und in turbulente Schwankungen $\hat{\varphi}$ aufgeteilt. Für die beliebige Größe φ gilt:

$$\varphi = \bar{\varphi} + \hat{\varphi} \quad (3.34)$$

der zeitliche Mittelwert ist definiert über

$$\bar{\varphi} = \frac{1}{\tau} \int_t^{t+\tau} \varphi dt \quad (3.35)$$

Die Integrationszeit τ muss groß sein gegenüber den turbulenten Zeitmaßstäben und klein gegenüber makroskopischen Änderungen der Hauptbewegung, um die zeitliche Mittelung anzuwenden /27/. Als weitere Voraussetzung muss die Länge der charakteristischen Turbulenzbewegung um Größenordnungen über der mittleren freien Weglänge der Moleküle liegen.

Für die Größen der Navier-Stokes-Gleichung gilt nach Gl.(3.34):

$$\vec{v} = \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \bar{u} \\ \bar{v} \\ \bar{w} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \hat{u} \\ \hat{v} \\ \hat{w} \end{pmatrix} \quad (3.36)$$

$$p = \bar{p} + \hat{p} \quad (3.37)$$

Die Viskosität und die Dichte werden näherungsweise als konstante Stoffgrößen betrachtet /29/. Für die Berechnung der zeitlich gemittelten Impulsgleichung setzt man in die Gleichung für die Momentanwerte Gl. (3.30) die Gleichungen (3.36) und (3.37) ein.

$$\frac{\partial}{\partial t}(\bar{\rho}\bar{v}_i) + \frac{\partial}{\partial x_j}(\bar{\rho}\bar{v}_i\bar{v}_j) = -\frac{\partial \bar{p}}{\partial x_i} + \frac{\partial \tau_{ij}}{\partial x_j} + \bar{\rho}g_i + \frac{\partial}{\partial x_j}(-\bar{\rho}\hat{v}_i\hat{v}_j) + F_i \quad (3.38)$$

Gegenüber der Impulsgleichung für die Momentanwerte tritt als 4. Term auf der rechten Seite von Gl. (3.38) ein turbulenter Korrelationsterm auf (Reynolds'sche Spannungen), der einen Diffusionsfluss des Impulses bedingt durch turbulente Fluktuation beschreibt.

Die Massenerhaltung gilt auch für turbulente Strömungen. So erhält man bei Anwendung der Gl. (3.36) und (3.37) auf die Momentangleichung der Massenerhaltung (s. Gl. (3.29)) die gleiche Form, s. Gl. (3.39) .

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j}(\rho\bar{v}_j) = 0 \quad (3.39)$$

Durch die Berücksichtigung der turbulenten Schwankung in der Impulsgleichung treten turbulente Zusatzglieder für die Korrelationen der Geschwindigkeitsschwankungen auf. Die Reynolds'sche Spannungen werden durch den turbulenten Spannungstensor zusammengefasst. Mit dieser zusätzlichen Unbekannten bilden die Reynoldsgleichungen kein abgeschlossenes Gleichungssystem mehr. Das Schließungsproblem der Reynoldsgleichungen wird durch Turbulenzmodelle gelöst, die auf empirischen Informationen und experimentell gemessenen Daten beruhen.

Strömungsform, Genauigkeit, Konvergenzverhalten und Rechenzeit sind die Entscheidungskriterien für die Wahl des Turbulenzmodells. Turbulenzmodelle werden nach der Anzahl der zusätzlichen Transportgleichungen unterschieden. Reynoldsspannungsmodelle haben eine hohe Genauigkeit, da bei ihnen die Reynoldsspannungen direkt modelliert werden. Für jede Komponente des Spannungstensors wird eine eigene Transportgleichung aufgestellt. Bei einer dreidimensionalen Simulation müssen dadurch sechs Transportgleichungen gelöst werden. Der guten Allgemeingültigkeit und der exakten Berechnung stehen komplexe Modelle mit langen Berechnungszeiten gegenüber. Das Reynoldsspannungsmodell findet daher nur für die Simulation komplexer Strömungen Anwendung.

Für industrielle Anwendungen haben sich Zweigleichungsmodelle bewährt, zu denen das k-ε-Modell, das k-L-Modell und das k-ω-Modell zählen /28/. Alle drei Modelle lassen sich nahezu vollständig ineinander überführen.

3.4.4.1 k-ε-Modell

In dieser Arbeit erfolgt die Turbulenzmodellierung mit dem k-ε-Modell. Das k-ε-Modell ist ein semi-empirisches Modell, welches von Launder und Spalding /41/ entwickelt wurde. Es ist das industriell am häufigsten angewandte Modell. Es existieren daher zahlreiche Vergleichsrechnungen. Das k-ε-Modell liefert für die meisten Anwendungen gute Ergebnisse bei geringem Rechenaufwand und zeichnet sich durch seine robuste Formulierung aus. Das k-ε-Modell ist besonders für hochturbulente Strömungen anwendbar. Die Defizite sind weitestgehend bekannt: Das k-ε-Modell kann bei Strömungen mit hohen Druckgradienten, insbesondere in Staupunkten, eine zu hohe Turbulenz berechnen /24/.

Zur Modellierung der Reynoldsspannungen werden die zwei zusätzlichen Variablen k und ε eingeführt. Dabei bezeichnet k die turbulente kinetische Energie und ε die Dissipationsrate.

In turbulenten Strömungen wird permanent kinetische Turbulenzenergie der großen Wirbel dissipiert und in innere Energie umgewandelt. Die großen Wirbel haben anisotrope Eigenschaften. Turbulenzstrukturen, die die Energiekaskade durchlaufen haben, also die kleinen Wirbel, haben im statistischen Sinn isotrope Eigenschaften. Bei realen turbulenten Strömungen kann daher von einer isotropen Charakteristik ausgegangen werden. In turbulenten Strömungen vermischen sich die Fluidteilchen aufgrund der geringen Viskosität, was zu einer Erhöhung der effektiven Viskosität, der so genannten Wirbelviskosität führt.

$$\eta_{\text{eff}} = \eta_{\text{lam}} + \eta_t \quad (3.40)$$

Die turbulente Viskosität hängt nur von der turbulenten Struktur ab und ist keine stoffabhängige Größe. Sie berechnet sich im k-ε-Modell nach der Prandl-Kolmogorov-Beziehung, s. Gl. (3.41).

$$\eta_t = \rho C_\eta \frac{k^2}{\varepsilon} \quad (3.41)$$

Aus den exakten Gleichungen für die Reynoldsspannungen lässt sich eine Transportgleichung für die turbulente kinetische Energie k herleiten /24/. Unter der Voraussetzung dass Dichte-, Druck- und Körperkraftschwankungen vernachlässigt werden können, gilt Gl. (3.42).

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho k) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho v_i k) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left[\left(\eta + \frac{\eta_t}{\sigma_k} \right) \frac{\partial k}{\partial x_i} \right] + G_k + G_b - \rho \varepsilon \quad (3.42)$$

Der erste Term beschreibt die zeitliche Änderung der kinetischen Turbulenzenergie k. Der zweite Term repräsentiert den konvektiven Transport von k durch die mittlere Fluidbewegung (Hauptströmung). Der dritte Term bestimmt die Änderung der kinetischen Turbulenzenergie k

entlang der Koordinaten aufgrund des Formänderungswiderstandes (Viskosität) des jeweiligen Mediums.

G_k beschreibt die Turbulenzproduktion durch die Geschwindigkeitsgradienten.

$$G_k = -\rho \overline{v_i v_j} \frac{\partial v_j}{\partial x_i} \quad (3.43)$$

G_b beschreibt die Turbulenzproduktion aufgrund der Dichteänderung durch Gravitation- und Temperatureinflüsse auf die Strömung.

$$G_b = \kappa g_i \frac{\eta_t}{Pr_t} \frac{\partial T}{\partial x_i} \quad (3.44)$$

mit Pr_t der turbulenten Prandtl-Zahl und g_i dem Anteil des Gravitationsvektors in Richtung i . Der Koeffizient κ beschreibt die thermische Ausdehnung, s. Gl. (3.45).

$$\kappa = -\frac{1}{\rho} \left(\frac{\partial \rho}{\partial T} \right)_p \quad (3.45)$$

Die Transportgleichung für die Turbulenzdissipation wird durch empirische Ansätze mit Konstanten ausgedrückt, s. Gl. (3.46). Die Konstanten (s. Tab.3.2) wurden durch Computeroptimierung und dem Vergleich mit Messdaten angepasst [24].

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \varepsilon) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho \varepsilon \bar{v}_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\left(\eta + \frac{\eta_t}{\sigma_\varepsilon} \right) \frac{\partial \varepsilon}{\partial x_j} \right] + C_{1\varepsilon} \frac{\varepsilon}{k} (G_k + G_b) - C_{2\varepsilon} \rho \frac{\varepsilon^2}{k} \quad (3.46)$$

Tab. 3.2 Konstanten des Standard Modells

$C_{1\varepsilon}$	$C_{2\varepsilon}$	C_η	σ_k	σ_ε
1.44	1.92	0.09	1.0	1.3

3.4.4.2 Realizable k-ε-Modell

Das Realizable k-ε-Modell ist eine Weiterentwicklung des Standard k-ε-Modells. Mathematische Bedingungen der Reynoldsspannungen wurden konsistenter an die Physik der turbulenten Strömung angepasst. Die Transportgleichung für die Dissipationsrate ist gegenüber dem Standard k-ε-Modell verbessert worden. Sie basiert auf einer dynamischen Gleichung für den Transport der mittleren Wirbelbewegung. Die Konstante C_η der Wirbelviskosität wird beim

Realizable Modell durch eine Funktion der Geschwindigkeitsgradienten und der Turbulenz (k, ε) beschrieben /24/. Die modifizierte Transportgleichung für die Dissipationsrate berücksichtigt nicht mehr den Produktionsterm der kinetischen Energie in Turbulenzenergie /24/.

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\rho\varepsilon) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho\varepsilon\bar{v}_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\left(\eta + \frac{\eta_t}{\sigma_\varepsilon} \right) \frac{\partial \varepsilon}{\partial x_j} \right] + \rho C_1 S_\varepsilon - \rho C_2 \rho \frac{\varepsilon^2}{k + \sqrt{\nu\varepsilon}} \\ + C_{1\varepsilon} \frac{\varepsilon}{k} C_{3\varepsilon} G_b \end{aligned} \quad (3.47)$$

mit

$$C_1 = 0.43 \frac{S \frac{k}{\varepsilon}}{S \frac{k}{\varepsilon} + 5} \quad (3.48)$$

mit dem Quellterm S

Tab. 3.3 Konstanten des Realizable Modells

$C_{1\varepsilon}$	$C_{2\varepsilon}$	σ_k	σ_ε
1.44	1.9	1.0	1.2

Das Realizable Modell ist über einen großen Anwendungsbereich validiert worden. Insbesondere für komplizierte Strömungssimulationen, wie die Ausbreitung von achsensymmetrischen Strahlen, starken Rotationswirbeln und Strömungen mit einem Strömungsabriss, liefert das Realizable Model wesentlich bessere Ergebnisse als das Standard Modell /24/.

3.4.4.3 Einfluss der dispersen Phase

Die disperse Phase kann die Turbulenzstruktur der Gasphase signifikant verändern. Die Turbulenzintensität kann gedämpft, aber auch verstärkt werden. Kriterium ist das Verhältnis von Partikeldurchmesser zur charakteristischen Länge der Turbulenzelemente, beschrieben durch die dimensionslose Größe Tu , s. Gl. (3.49). Für Rohrströmungen liegt der kritische Wert bei 0,1 /29/.

$$Tu = \frac{d_p}{L_e} \approx 0,1 \quad (3.49)$$

Bei niedrigen Werten dämpfen die Partikel die Turbulenzintensität, bei höheren fachen sie diese an. Wenn die Partikel sehr viel kleiner sind als die charakteristische Länge der Turbu-

lenzelemente, wird die Turbulenzenergie der Gasphase auf die Partikel übertragen, es kommt zur Dissipation. Große Partikel erzeugen in ihrem Nachlauf eine eigene Turbulenz. Die Turbulenzenergie wird auf die Gasphase übertragen. Die Turbulenzintensität der Gasströmung wird somit angefacht. In dieser Arbeit ist aufgrund der Größe der Partikel (s. Kap. 6.4) mit einer Turbulenzdämpfung zu rechnen. Mit Hilfe der numerischen Simulation kann dieser Effekt berechnet werden. Es kommt zur Dissipation, wenn die kinetische Energie der Turbulenzbewegung k reduziert wird und deren Dissipationsrate ε ansteigt. Ein Tropfenschwarm kann darüber hinaus eine Eigendynamik entwickeln, die das Kontinuum beeinflusst.

3.5 Erweiterung des Rigorosen Modells

Zur Anpassung der numerischen Strömungssimulation an die Besonderheiten des Strahlwäschers und zur Einbindung der chemischen Absorption wurde das Rigorose Modell durch den Autor erweitert. Über die Programmschnittstelle von Fluent wurden entsprechende Unterprogramme implementiert.

3.5.1 Tropfeninjektion

Die Tropfeninjektion im Simulationsmodell hat einen wesentlichen Einfluss auf die Verteilung der dispersen Phase. Die injizierten „Tropfen“ repräsentieren eine definierte Anzahl von Einzeltropfen (Tropfenstrom). Die Injektion der Tropfenströme erfolgt an einer fiktiven Düsenaustrittsfläche im Berechnungsraum. Mit der Verteilung der Tropfenstrominjektionen über der Düsenaustrittsfläche und den radialen Geschwindigkeitskomponenten soll ein Vollkegelstrahl erzeugt werden, der hinsichtlich Verteilung der dispersen Phase und Sprühwinkel möglichst genau das Strömungsbild der realen Düse beschreibt. Zur Erzeugung eines Vollkegels müssen im Injektionsmodell in der Mitte des Düsenaustritts mehr Tropfenströme injiziert werden als im Randbereich. Es wurde daher eine Gaußverteilung für die Verteilung der Tropfenstrominjektionen über den Düsendurchmesser gewählt, s. Gl. (3.50).

$$y = y(0) + \frac{A}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-0,5\left(\frac{\hat{r}_{x,y} - r_{x,y}^0}{\sigma}\right)^2\right) \quad (3.50)$$

mit y der Tropfendichtefunktion, $y(0)$ der Verschiebung der Basislinie, A der Gesamtfläche unter der Basislinie, σ der Streuung, $r^0=0$ und $\hat{r}_{x,y}$ der zufällig gewählte normierte Radius (bezogen auf r_{\max}) für die x und y Koordinate s. Gl. (3.51)

$$\hat{r}_{x,y} = \hat{n} \quad (3.51)$$

mit der Zufallszahl $\hat{n}[0,1]$

Für die Modellierung wurden die Parameter A und σ der Gausverteilung variiert. Zur Ermittlung der Verteilung der Tropfenstrominjektionen über den Düsenaustritt wurde das Modellsprühbild mit experimentellen Werten und Erfahrungswerten verifiziert.

Die radialen Geschwindigkeitskomponenten u (in x -Richtung) und v (in y -Richtung) werden für die einzelnen Tropfenstrominjektionen ebenfalls stochastisch innerhalb des vorgegebenen Sprühwinkels α_{\max} variiert. Die stochastische Verteilung kann über Zufallszahl realisiert werden, s. Gl. (3.52).

$$\hat{\alpha} = \hat{n} \cdot \alpha_{\max} \quad (3.52)$$

mit der Zufallszahl $\hat{n} \in [0,1]$ und dem maximalen Sprühwinkel α_{\max}

Die Simulation erfolgt mit monodispersen und polydispersen Tropfen (Tropfenspektrum). Das Tropfenspektrum wurde in zehn Durchmesserklassen zusammengefasst. Für die Simulation mit monodispersen Tropfen wurden 600 Tropfenströme injiziert, bei Verwendung des Tropfenspektrums wurden insgesamt 3200 Tropfenströme injiziert. Die Tropfenströme der jeweiligen Durchmesserklasse wurden mit ihrer relativen Häufigkeit im Tropfenspektrum gewichtet. Eine hohe Anzahl von Tropfenströmen führt zu langen Rechenzeiten, erhöht jedoch die Genauigkeit der Simulation.

Aufgrund des hohen Impulses der Tropfen im Strahlwäscher werden die Tropfen kaum abgelenkt. Der Abstand der Tropfen nimmt daher durch die Strahlaufweitung mit der Entfernung von der Düse zu. Die Koaleszenz von Tropfen ist daher als gering einzuschätzen. Dies zeigen auch die Untersuchungen von Sirignano zu Sprühstrahlen /71/. Die Koaleszenz ist daher vernachlässigt worden.

3.5.2 Berücksichtigung des Wandfilmes

Zur Berechnung des Wandfilmes muss die Wechselwirkung durch Massen-, Impuls- und Energietransfer mit der Gasphase betrachtet werden. Die direkte Berechnung des Wandfilmes ist mit dem Euler-Euler-Modell möglich, der Wandfilm wird als zusätzliche kontinuierliche Phase betrachtet. Die Numerische Simulation von Wandfilmen konnte aufgrund der Komplexität der Berechnung nur für kleine Versuchsanlagen erfolgreich durchgeführt werden /32/. Um den Film zu berücksichtigen, müsste er über mehrere Zellschichten aufgelöst werden. Dies würde die Zellenzahl bei einer dreidimensionalen Simulation drastisch erhöhen. Eine direkte Berechnung des Wandfilmes ist daher nicht praktikabel. Da der Wandfilm die Hydrodynamik nur unwesentlich beeinflusst, wird er nur fiktiv zur Berechnung der Absorption berücksichtigt.

3.5.3 Berechnung der chemischen Absorption

Für die Einbindung der chemischen Absorption bietet Fluent kein Modell, das diese ausreichend beschreibt. Es wurde daher ein Modell zur Berechnung der chemischen Absorption entwickelt und mit der Strömungssimulation gekoppelt. Das Modell kann in drei Prozeduren unterteilt werden. In der ersten Prozedur wird der Stoffübergang berechnet. Trifft ein Tropfenstrom in eine neue Zelle, wird dessen repräsentierende Gesamtoberfläche und die Verweilzeit in der Zelle erfasst, s. Bild 2.1. Der übergangende Stoffstrom wird nach dem Zweifilmmodell berechnet, s. Kap. 4.2.2.

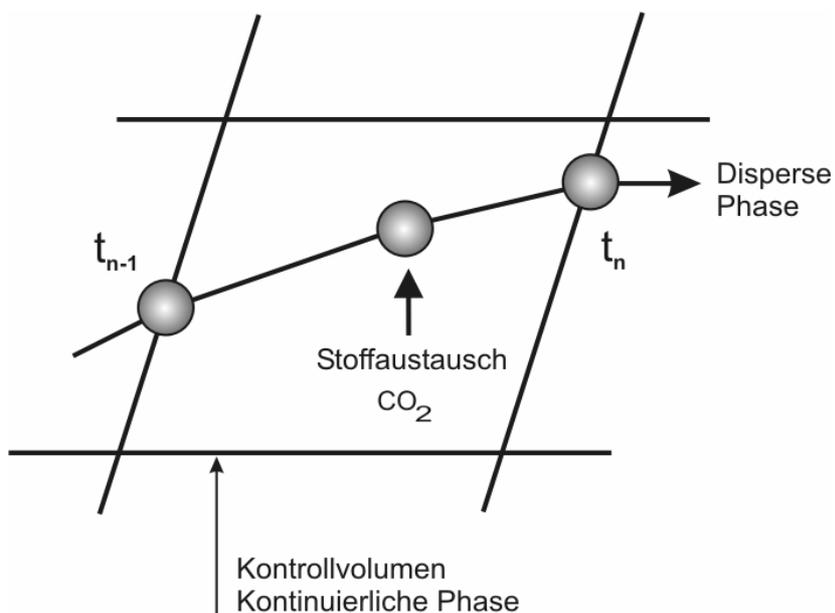


Bild 3.6 Prinzip Stoffaustausch in einem Kontrollvolumen

Tropfen, die auf die Wand treffen, werden in einer zweiten Prozedur aufsummiert, so dass die Reynolds-Zahl des Filmes berechnet werden kann. Für den Wandfilmbereich lässt sich so ebenfalls ein übergangender Stoffstrom berechnen. Über eine zusätzliche Tropfeninjektion können beim Auftreten von Destruktion sekundäre Tropfen injiziert werden. Das Herausreißen von Flüssigkeitsfragmenten aus dem Film durch die turbulente Gasströmung kann bei maximalen Gasgeschwindigkeiten von 10m/s als gering eingeschätzt werden /79/ und wird daher vernachlässigt. In der dritten Prozedur wird der übergangene Stoffstrom als Senke an die kontinuierliche Phase zurückgegeben.

3.5.4 Beschreibung des Berechnungsablaufes

Die einzelnen Elemente des in Kap. 3.4 und Kap. 3.5 beschriebenen Rigorosen Modells sollen in einem prinzipiellen Berechnungsablauf zusammengefasst dargestellt werden (s. Bild 3.7). Die Berechnung des Zweiphasensystems erfolgt nach dem Euler-Lagrange-Modell. In einem Iterationsschritt wird zuerst die kontinuierliche Phase nach dem Euler-Modell berechnet. Es

werden die Bilanzgleichungen für Masse und Impuls gelöst (s. Kap. 3.4.1). Die Turbulenzmodellierung der kontinuierlichen Phase erfolgt nach dem Realizable k- ϵ -Modell (s. Kap. 3.4.4). In die kontinuierliche Phase wird anschließend die disperse Phase nach einer Modellvorstellung, die die Düse beschreibt, injiziert. Die Berechnung der dispersen Phase erfolgt nach dem Lagrange-Modell (s. Kap. 3.4.3). Sie steht in Wechselwirkung mit der kontinuierlichen Phase. Mit den implementierten Prozeduren wird nach Kap. 3.5.3 die chemische Absorption durch die Tropfen und den Wandfilm berechnet und der absorbierte Stoffstrom der Spezies als Senke an die kontinuierliche Phase zurückgegeben. Die Iteration wird so lange fortgesetzt bis das vorgeschriebene Konvergenzkriterium erreicht wird.

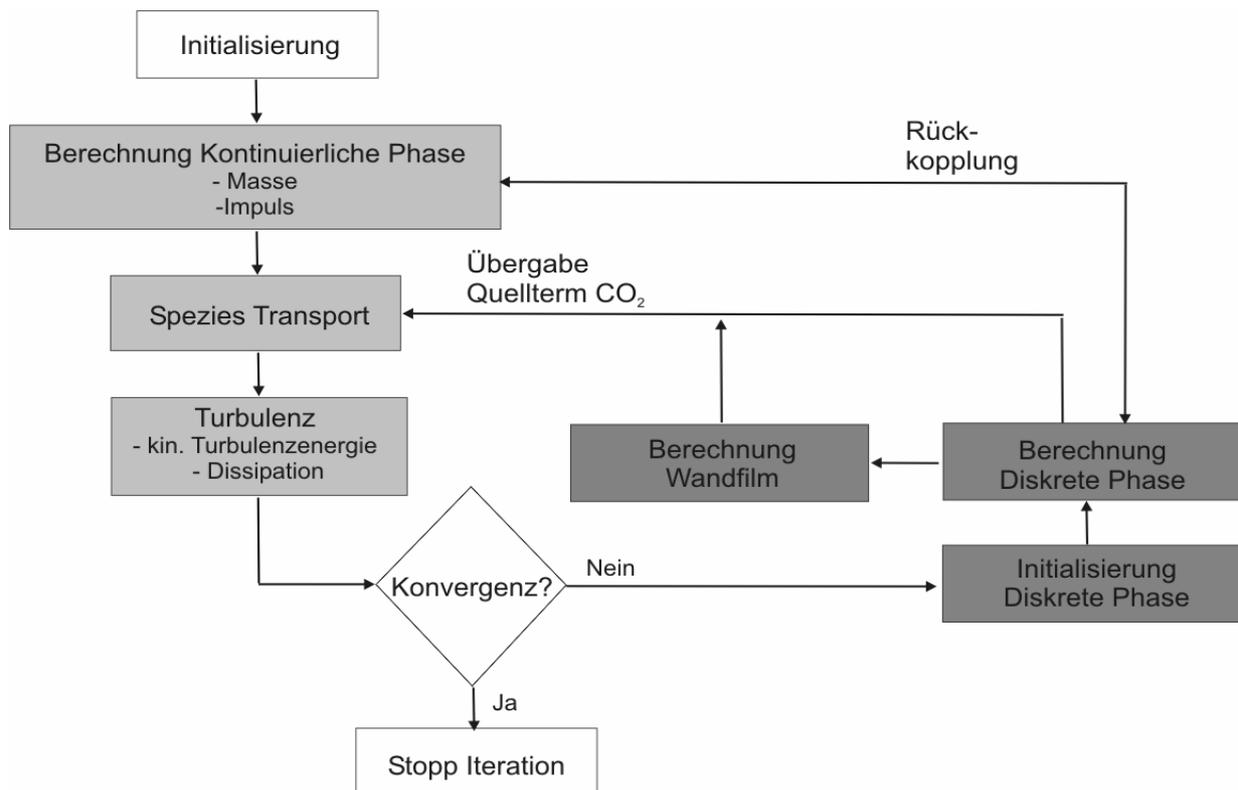


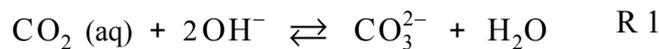
Bild 3.7 Berechnungsschema Rigoroses Modell

4 Modellierung des Stoffaustausches

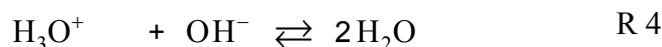
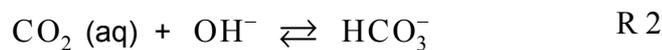
4.1 Phasen und Reaktionsgleichgewichte in Elektrolytlösungen

Die Absorption von Kohlendioxid in wässrigen Hydroxidlösungen ist ein in der Literatur häufig verwendeter Beispielprozess für Modellierungsansätze, der auch in dieser Arbeit untersucht wird. Es existieren umfassende Untersuchungen, die die Reaktionskinetik und die Thermodynamik dieses Reaktionssystems beschreiben /18/, /55/, /2/. Alle Veröffentlichungen basieren im Wesentlichen auf den experimentellen Untersuchungen von Pinsent et al. /57/.

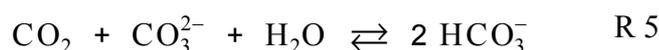
Bei der Absorption von Kohlendioxid in wässrigen Hydroxidlösungen findet keine Reaktion in der Gasphase statt, es handelt sich ausschließlich um Elektrolytreaktionen in der Flüssigphase. Die Bruttoreaktion lässt sich mit R 1 beschreiben. Das Kation nimmt an der Reaktion nicht teil und spielt daher in der Formulierung der Reaktionsgleichungen keine Rolle. Es liefert das Gegenion zum Carbonat und beeinflusst die Löslichkeit des Carbonates.



Die Bruttoreaktion R1 lässt sich in die Teilreaktionen R2, R3 und R4 unterteilen. Man unterscheidet zwischen spontanen reversiblen Reaktionen (Protonenübertragung) und kinetisch kontrollierten reversiblen Reaktionen.



Nur in sauren bis leicht basischen Systemen ist die Reaktion R 1 nicht mehr als irreversibel zu betrachten und es ereignet sich folgende Gesamtreaktion:



Die Berechnung der Reaktionsgleichgewichte erfolgt durch das Massenwirkungsgesetz mit Hilfe der Reaktions-Gleichgewichtskonstanten K , s. Gl.(4.1). Demnach ist das Produkt der Aktivitäten a_i aller an der Reaktion beteiligten Komponenten potenziert mit ihren stöchiometrischen Koeffizienten ν_i bei einem bestimmten Druck und Temperatur konstant.

$$K = \prod_i a_i^{\nu_i} = \prod_i (\gamma_i \cdot x_i)^{\nu_i} \quad (4.1)$$

Nichtelementare Reaktionen müssen nicht notwendig nach diesen formalen Reaktionsgesetzen beschreibbar sein. Die Reaktionsordnung nicht elementarer Reaktionen kann nicht direkt durch die stöchiometrischen Koeffizienten bestimmt werden.

Für elementare Reaktionen kann die Gleichgewichtskonstante (K) durch das Verhältnis der Geschwindigkeiten der Hin- und der Rückreaktion (k) ausgedrückt werden. Hierbei stehen die dynamischen Aspekte im Vordergrund.

$$K = \frac{k_{\text{hin}}}{k_{\text{rueck}}} \quad (4.2)$$

4.1.1 Berechnung thermodynamischer Gleichgewichte

Da in der Regel nicht von einer elementaren Reaktion ausgegangen werden kann, erfolgt die Berechnung der Gleichgewichtskonstanten über die thermodynamischen Gleichgewichte. Die Beschreibung der thermodynamischen Gleichgewichte basiert auf dem chemischen Potential. Das chemische Potential (μ_i) oder die partielle molare freie Enthalpie der Komponente i ist eine fundamentale Größe. Der Gradient des chemischen Potentials ist die Ursache für den Stofftransport. Der Stofftransport findet aufgrund des Bestrebens nach minimaler Energie in Richtung des abnehmenden Potentials statt. Das chemische Potential ist eine Funktion der Zustandsgrößen Druck, Temperatur und Zusammensetzung des Systems.

$$\mu_i = G_i = \left(\frac{\partial G}{\partial n_i} \right)_{p,T,n_{j \neq i}} \quad (4.3)$$

mit der Stoffmenge n der Komponente i die entzogen oder hinzugefügt wird bei konstanten Stoffmengen der anderen Komponenten j

Die Nernstsche Gleichung liefert eine quantitative Beziehung zwischen der freien Enthalpie unter Standardbedingungen (ΔG^0) (298,15K, 0,1MPa) und der bei bestimmten Konzentrationen real verfügbaren freien Enthalpie ΔG , s. Gl. (4.4).

$$\Delta G = \Delta G^0 + RT \ln \prod_i a_i^{\nu_i} \quad (4.4)$$

Im Gleichgewicht ist die Änderung der freien Energie Null und es gilt Gl (4.5).

$$\Delta G^0 = -RT \ln K \quad (4.5)$$

Aus dem 2. Hauptsatz folgt, dass ein heterogenes Mehrkomponentensystem sich dann im Gleichgewicht befindet, wenn die Temperaturen, die Drücke und die chemischen Potentiale aller Komponenten i in der flüssigen und gasförmigen Phase die gleichen Werte aufweisen.

$$T^g = T^l \quad (4.6)$$

$$p^g = p^l \quad (4.7)$$

$$\mu_i^g = \mu_i^l \quad (4.8)$$

für alle Komponenten i

Das Gleichgewicht in Multikomponenten- oder Multiphasen-Systemen kann nach der Gibbs-Minimierung und der K-Wert-Methode berechnet werden. Beide Methoden liefern das gleiche Ergebnis.

Bei der Gibbsminimierung bzw. der Minimierung der freien Enthalpie wird die Gl. (4.9) durch Extremwertbildung gelöst.

$$G(T, p, n_j) = \sum_p \sum_i n_i^{(p)} \cdot \mu_i^{(p)} = \text{Min} \quad (4.9)$$

Hier ist $n_i^{(p)}$ die Stoffmenge der Komponente i in der Phase p , die Summation erfolgt über alle Komponenten (i) in den verschiedenen Phasen (p).

Ein Vorteil dieser Formulierung besteht darin, dass zur vollständigen Beschreibung des thermodynamischen Gleichgewichtszustandes keine Reaktionsgleichungen benötigt werden. Zur Berechnung der Minimierung der freien Enthalpie wird üblicherweise das Rechenverfahren auf der Basis der Methode der Lagrangeschen Multiplikatoren angewendet.

Bei der K-Wert-Methode, einem stöchiometrischen Ansatz, wird ein Satz linear unabhängiger Reaktionsgleichungen formuliert, die alle Edukte und Produkte im Gleichgewicht enthält. Es werden nicht nur für die chemischen Gleichgewichte sondern auch für die Gleichgewichtsbeziehungen Reaktionsgleichungen angegeben. Die Gleichgewichtskonstanten des vorliegenden Stoffsystems werden mit der K-Wert-Methode berechnet.

Die Berechnung von Phasen- und Reaktionsgleichgewichten setzt die Kenntnis der chemischen Potentiale aller Komponenten in den verschiedenen Phasen voraus. Chemische Potentiale im Gemisch setzen sich aus der freien Enthalpie im Referenzzustand und einer Umrechnung von diesem Zustand in den realen Zustand zusammen. Für den Referenzzustand wird bei Ionen und gelösten Stoffen die hypothetisch ideal verdünnte einmolale wässrige Lösung (Index $^{\square l}$) bei $p^0 = 1 \text{ MPa}$ und der Temperatur T gewählt, s. Gl. (4.10).

Die Berechnung der Löslichkeit überkritischer Komponenten oder schwach löslicher Gase erfolgt unter Bezug auf den Referenzzustand reiner idealer Gase (Index $\square g$) bei $p^0=1$ bar und der Temperatur T . Üblicherweise erfolgt die Beschreibung mit Hilfe des Henry-Koeffizienten, s. Gl. (4.11). Als Konzentrationsmaß wird in Elektrolytlösungen neben dem Molenbruch x_i insbesondere bei niedrigen Konzentrationen die Molalität verwendet. Die Molalität \tilde{m}_i ist der Quotient der Stoffmenge der Komponente i und der Masse des Lösungsmittels.

$$\mu_i^l(T, p, \tilde{m}) = \mu_i^{\square l}(T, p^0) + RT \cdot \ln \left(\gamma_i^{\square l}(T, p, \tilde{m}) \frac{\tilde{m}_i}{\tilde{m}^{\square l}} \right) + \int_{p^0}^p v_i^{\square l} \cdot dp \quad (4.10)$$

$$\mu_i^l(T, p, \tilde{m}) = \mu_{0,i}^{\square g}(T, p^0) + RT \cdot \ln \left(\frac{\gamma_i^{\square l}(T, p, \tilde{m}) \cdot \tilde{m}_i \cdot H_i^{\square l}(T, p)}{p^0} \right) \quad (4.11)$$

mit \tilde{m}_i der Molalität der Komponente i [mol/kg], $\gamma_i^{\square l}$ dem Aktivitätskoeffizienten bezogen auf die hypothetisch einmolale Lösung, $v_i^{\square l}$ dem partiellen molaren Volumen der Komponente i in der Lösung, $H_i^{\square l}$ dem Henrykoeffizienten bezogen auf die Molalität und $\tilde{m}^{\square l}=1$ mol/kg

Die Poynting-Korrektur in der flüssigen Phase kann vernachlässigt werden, da das molare Volumen in der Flüssigkeit gering ist /45/.

Das chemische Potential $\mu_{0,i}^{\square g}$ der reinen Komponente des idealen Gases bei der Temperatur T und dem Standarddruck p^0 kann über die Standardwerte der Entropien $s_{0,i}^{\square g}(T^0, p^0)$ und der Enthalpien $h_{0,i}^{\square g}(p^0, T^0)$ des idealen Gases berechnet werden.

$$\mu_{0,i}^{\square g}(T, p^0) = g_{0,i}^{\square g}(T, p^0) = h_{0,i}^{\square g}(T, p^0) - T s_{0,i}^{\square g}(T, p^0) \quad (4.12)$$

Die Enthalpie und die Entropie des idealen Gases lassen sich aus der Standard-Bildungsenthalpie $\Delta h_{f,0,i}^{\square g}(T^0)$ und der Standard-Gibbs-Energie $\Delta g_{0,i}^{\square g}(T^0, p^0)$ berechnen. Mit Hilfe der molaren Wärmekapazität $c_{p,i}$ können die kalorischen Daten vom Standardzustand bei konstantem Druck auf die aktuelle Temperatur umgerechnet werden.

$$h_{0,i}^{\square g}(T) = \Delta h_{f,0,i}^{\square g}(T^0) + \int_{T^0}^T c_{p,0,i}^{\square g}(T) \cdot dT \quad (4.13)$$

$$s_{0,i}^{\square g}(T, p^0) = \Delta s_{f,0,i}^{\square g}(T^0, p^0) + \int_{T^0}^T c_{p,0,i}^{\square g}(T) \cdot \frac{dT}{T} \quad (4.14)$$

mit

$$\Delta s_{f,i}^{\square g}(T^0) = \frac{\Delta h_{f,i}^g(T^0) - \Delta g_{f,i}^g(T^0)}{T^0} \quad (4.15)$$

$$\mu_{0,i}^{\square g}(T) = \Delta h_{f,i}^g(T^0) - T \cdot \Delta s_{f,i}^g(T^0) + \int_{T^0}^T c_{p,0,i}^{\square g}(T) \cdot dT - T \int_{T^0}^T c_{p,0,i}^{\square g}(T) \cdot \frac{dT}{T} \quad (4.16)$$

Für viele wässrige Elektrolytsysteme sind häufig nur niedrige Temperaturbereiche von Interesse. Die Wärmekapazität kann daher als temperaturunabhängig betrachtet werden.

$$\mu_{0,i}^{\square g}(T) = \Delta h_{f,i}^g(T^0) - T \cdot \Delta s_{f,i}^g(T^0) + \bar{c}_{p,0,i}^{\square g}(T - T^0) - \bar{c}_{p,0,i}^{\square g} \cdot T \ln\left(\frac{T}{T^0}\right) \quad (4.17)$$

Für Ionen gilt analog zu den Gleichungen (4.12)-(4.15):

$$\mu_i^{\square l}(T) = \Delta h_{f,i}^{\square l}(T^0) - T \cdot \Delta s_{f,i}^{\square l}(T^0) + \int_{T^0}^T c_{p,i}^{\square l}(T) \cdot dT - T \int_{T^0}^T c_{p,i}^{\square l}(T) \cdot \frac{dT}{T} \quad (4.18)$$

Die Gleichgewichtskonstante lässt sich nach Gl. (4.5) mit der freien molaren Reaktionseenthalpie $\Delta g_R^{l,\square}(T, p_0)$ wie folgt beschreiben:

$$K_{a,\square}(T) = \prod \left(\gamma_i^{\square}(T, p, \tilde{m}) \frac{\tilde{m}_i}{\tilde{m}^{\square}} \right)^{\nu_i} = \exp\left(\frac{-\Delta g_R^{l,\square}(T, p_0)}{RT}\right) \quad (4.19)$$

Die freie molare Reaktionseenthalpie ist die Summe der chemischen Potentiale der Edukte und der Produkte der Reaktion multipliziert mit ihren stöchiometrischen Koeffizienten.

$$\Delta g_R^{l,\square}(T^0, p^0) = \sum_i \nu_i \cdot \Delta g_{f,i}^{l,\square}(T^0, p^0) \quad (4.20)$$

Die Werte für die chemischen Potentiale im Standardzustand ($p=1\text{MPa}$ und $T=298,15\text{K}$) sind den tabellarischen Zusammenstellungen für kalorische Standardwerte /13/ zu entnehmen (s. Anhang 8A). Die Berechnung für beliebige Temperaturen erfolgt mit der Standardbildungsenthalpie und mit der molaren Wärmekapazität nach den Gl. (4.12)-(4.17).

4.1.2 Aktivitätskoeffizienten

Das reale Zustandsverhalten der Komponenten kann durch Einführung dimensionsloser Hilfsgrößen, die aus experimentellen Daten ermittelt oder theoretisch bestimmt wurden, beschrieben werden. Die Abweichung vom Idealgasverhalten für Reinstoffe und Gemische wird durch den Fugazitätskoeffizienten berücksichtigt, die Fugazität kann damit als korrigierter Druck aufgefasst werden. Bei Systemen, die deutlich unterhalb der kritischen Temperatur und des kritischen Druckes liegen, tendiert der Fugazitätskoeffizient gegen eins und kann daher vernachlässigt werden.

Die Abweichung vom Verhalten idealer Lösungen wird durch den Aktivitätskoeffizienten erfasst. Die Aktivität einer Komponente kann als korrigierter Molenbruch aufgefasst werden. Die Aktivität wird daher als Produkt aus Molenbruch und Aktivitätskoeffizient beschrieben.

$$a_i(T, p, x) = x_i \gamma_i(T, p, x) \quad (4.21)$$

Der Aktivitätskoeffizient γ_i kennzeichnet die Abweichungen eines Gemisches vom Modell der hypothetisch einmolaren Lösung einer einzelnen Komponente in Wasser. Neben dem Konzentrationseinfluss für Mehrkomponenten-Stoffsysteme kommt es auch durch die Wechselwirkung zwischen den verschiedenen Ionen und Molekülen zu einer Abweichung vom Idealverhalten. Es existieren komplexe Berechnungsformeln, die die verschiedenen Wechselwirkungsparameter für Elektrolytgleichgewichte berücksichtigen. Ein solches molekulartheoretisch begründetes Modell wurde unter anderem von Chen und Evans /14/ vorgestellt. Die entsprechenden Wechselwirkungskoeffizienten wurden aus experimentellen Daten ermittelt und liegen nur unzureichend vor.

In wässrigen Elektrolytsystemen wird daher vielfach das halb-empirische Ion-Ion-Wechselwirkungsmodell von Pitzer /58/ angewendet, das u.a. im NRTL-Elektrolyt-Aktivitätskoeffizientenmodell Verwendung findet /45/. Diese erweiterte Debye-Hückel-Gleichung berücksichtigt die Ionenstärke des Gemisches.

$$\ln \gamma_i = -\frac{1}{\sqrt{M_{\text{H}_2\text{O}}}} \cdot A_{\phi m} \left[\frac{2z_i^2}{\rho} \ln(1 + \rho\sqrt{I_x}) + \frac{z_i^2 \sqrt{I_x} - 2I_x^{3/2}}{1 + \rho\sqrt{I_x}} \right] \quad (4.22)$$

mit M_i in kg/mol

und der Ionenstärke I_x

$$I_x = \frac{1}{2} \sum z_i^2 x_i \quad (4.23)$$

Der Debye-Hückel-Parameter A_{ϕ_m} für das Lösungsmittel Wasser wird nach Clarke und Glew /15/ durch eine Funktion der Temperatur berechnet.

$$A_{\phi_m} = -16,39023 + 261,3371 \cdot \frac{1}{T} + 3,3689663 \cdot \ln T - 1,437167 \frac{T}{100} + 0,111995 \cdot \left(\frac{T}{100} \right)^2 \quad (4.24)$$

mit einem Gültigkeitsbereich von 0-150°C und $I_x < 0,1 \text{ mol/kg}$

Die wesentlichen Einflussgrößen sind die Ladung des Ions z_i und die Ionenstärke des Gemisches I_x bezogen auf die Molanteile. Der Parameter ρ ist ein Maß für die mittlere Größe der Ionen. Durch Anpassung an experimentelle Daten wurde von Pitzer /58/ ein Wert von $\rho=14,9$ für alle Spezies festgelegt.

4.1.3 Henry-Koeffizient

Die Absorption erfolgt häufig bei Temperaturen, die über der kritischen Temperatur der Gaskomponente liegen. Das Gas kondensiert nicht, sondern löst sich physikalisch in der flüssigen Phase und wird durch die Van-der-Waalsschen Kräfte im Lösungsmittel gehalten. Die Beschreibung der Löslichkeit einer Gaskomponente in einer Flüssigkeit kann mit dem Henryschen Gesetz erfolgen. Geht der Stoffmengenanteil in einer ideal verdünnten Lösung gegen Null ($x_i \rightarrow 0$) kann das eingestellte Phasengleichgewicht nach Gl. (4.25) beschrieben werden.

$$p_i = H_i \cdot x_i \quad (4.25)$$

Der Partialdruck p_i der Gaskomponente i über einer ideal verdünnten Lösung ist ihrem Stoffmengenanteil x_i in der Lösung proportional. Der Henry-Koeffizient ist nicht nur eine Funktion der Temperatur und des Druckes, sondern er hängt auch von der Art des Lösungsmittels ab. Der Henry-Koeffizient kann ebenfalls über die thermodynamischen Standarddaten berechnet werden. Durch Gleichsetzen der chemischen Potentiale der Gleichungen (4.10) und (4.11) und unter Vernachlässigung der Pointing-Korrektur ergibt sich für den Henry-Koeffizienten Gl. (4.26).

$$H_i^{\square}(T, p_0) = \exp \left(\frac{\mu_i^{\square l}(T, p_0) - \mu_{0,i}^{\square g}(T, p_0)}{RT} \right) \cdot \frac{p_0}{\tilde{m}^{\square}} \quad (4.26)$$

Der Henry-Koeffizient ist somit keine neue, unabhängige Größe, sondern er kann durch die Kombination der chemischen Potentiale in verschiedenen Referenzzuständen dargestellt werden.

Die Temperaturumrechnung erfolgt wie für die Gleichgewichtskonstante nach den Gleichungen (4.12) - (4.18), der Henrykoeffizient nach Gl. (4.26) basiert auf der Konzentrationseinheit Molalität (mol/kg Lösungsmittel). Die Umrechnung des Henry-Koeffizienten bezogen auf den Molenbruch in wässrigen Systemen erfolgt nach Gl. (4.47).

$$H_i = \frac{1}{M_{\text{H}_2\text{O}}} H_i^\square \cdot 10^3 \quad (4.27)$$

Für die Modellierung der Absorption wurde der Henry-Koeffizient von Kohlendioxid in Wasser mit einer Korrelation nach Carrol et al. /11/ berechnet, s. Gl.(4.28). Der Ansatz stimmt mit den Berechnungen durch das chemische Potential gut überein, s. *Bild 4.1*.

$$\ln H_{\text{CO}_2} = -6,8346 + \frac{1,2817 \cdot 10^4}{T} - \frac{3,7668 \cdot 10^6}{T^2} + \frac{2,997 \cdot 10^8}{T^3} \quad (4.28)$$

mit dem Gültigkeitsbereich $T = 0\text{-}60^\circ\text{C}$ und $p < 1 \cdot 10^6 \text{Pa}$

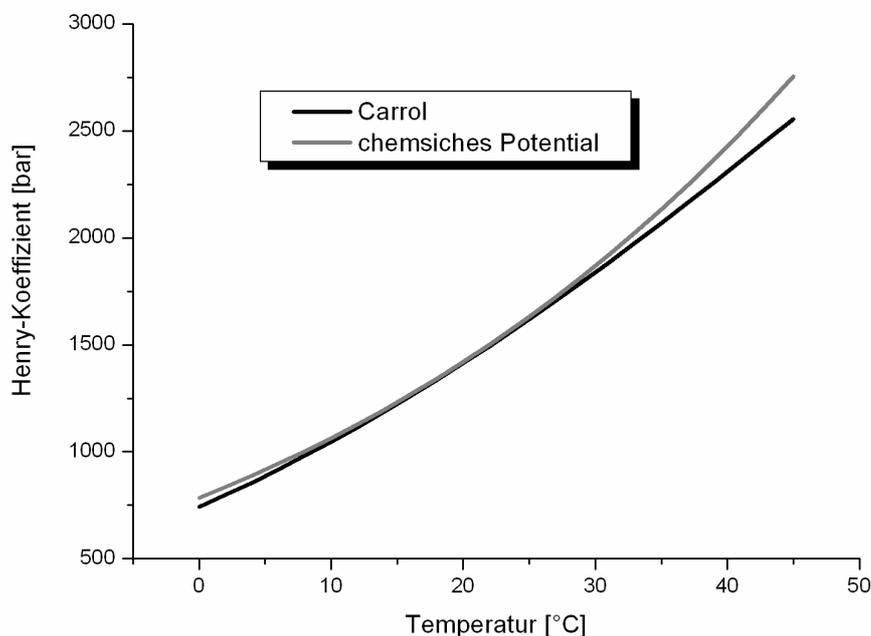


Bild 4.1 Henry-Koeffizient Kohlendioxid in Wasser

4.1.4 Reaktionskinetik

Grundlage für die quantitative Beschreibung des zeitlichen Ablaufs einer chemischen Reaktion ist deren Kinetik. Die Reaktionskinetik gibt den Zusammenhang zwischen der Reaktionsgeschwindigkeit und den beeinflussenden Größen wieder. Da in dem vorliegenden Zweiphasensystem die Reaktion ausschließlich in der flüssigen Phase stattfindet, müssen die Reaktionspartner zunächst in die flüssige Phase transportiert werden. Neben der Kinetik der Reaktion (Mikrokinetik) müssen daher auch die Transportvorgänge an der Phasengrenzfläche und in den Phasen (Makrokinetik) berücksichtigt werden.

Die Exponenten in Gl. (4.1) werden als Ordnung der Reaktion bezeichnet. Die Gesamtordnung errechnet sich aus der Summe der Einzelordnungen. Für die Modellierung der Reaktionskinetik muss eine eventuelle Rückreaktion berücksichtigt werden. Hin- und Rückreaktion verlaufen solange mit unterschiedlicher Geschwindigkeit, bis der in Kapitel 4.1.1 beschriebene chemische Gleichgewichtszustand erreicht wird.

Die Kinetik einer elementaren reversiblen Reaktion des Types



lässt sich nach Gl. (4.30) formulieren.

$$r = -\frac{1}{\nu_A} \cdot \frac{\partial c_A}{\partial t} = \frac{1}{\nu_C} \cdot \frac{\partial c_C}{\partial t} = k_{AB} \cdot c_A^{\nu_A} \cdot c_B^{\nu_B} - k_{CD} \cdot c_C^{\nu_C} \cdot c_D^{\nu_D} \quad (4.30)$$

Es handelt sich um eine elementare Gleichung, das heißt, die Ordnung ist gleich der Molekularität der Reaktion. Liegt das Gleichgewicht überwiegend auf der Produktseite, kann die Rückreaktion vernachlässigt werden, wodurch die Reaktion mit einer irreversiblen Reaktion vergleichbar wird.

Ist die Reaktionskinetik nur von der absorbierten Komponente A abhängig, dann gehen die kinetischen Ansätze für die Geschwindigkeit der chemischen Reaktion zweiter Ordnung in eine Reaktion pseudo-erster Ordnung über. Dies gilt auch dann, wenn diese Komponente mit anderen Komponenten reagiert, deren Konzentrationsänderungen jedoch vernachlässigbar sind. Für eine irreversible Reaktion pseudo-erster Ordnung gilt die Gl. (4.31).

$$k_A = k_{AB} \cdot c_B \quad (4.31)$$

mit

$$r_A = k_A \cdot c_A \quad (4.32)$$

4.2 Modellierung des Stoffaustausches mit chemischer Reaktion

4.2.1 Grundlagen des Stofftransportes

Ursachen für den Stofftransport sind Störungen des Gleichgewichtes zwischen den Phasen und innerhalb von Phasen. Die Geschwindigkeit, mit der die Störung des Phasengleichgewichtes ausgeglichen wird, hängt von der Geschwindigkeit des Stofftransportes ab. Deshalb ist nicht nur die Lage des Phasengleichgewichtes, sondern auch die Kenntnis der Geschwindigkeit der Gleichgewichtseinstellung durch Stofftransportvorgänge von Bedeutung /65/.

Man unterscheidet zwischen diffusivem und konvektivem Stofftransport. Diffusion tritt in Feststoffen, in ruhenden Medien und in Phasengrenzschichten auf. Die Diffusion kommt durch die thermische Eigenbewegung der Moleküle und einem Konzentrationsgradienten zustande. Kann die Materie als Kontinuum angesehen werden, das heißt, sind die Abstände der Moleküle klein gegenüber der Länge des Diffusionsweges, ist das erste Ficksche Gesetz der Diffusion anwendbar. Es beschreibt den Stofftransport der Komponente i durch stationäre äquimolare Diffusion in Richtung einer Koordinatenachse x , s. Gl. (4.33).

$$\dot{n}_i = -D_i \frac{\partial c_i}{\partial x} \quad (4.33)$$

Der Diffusionskoeffizient D_i hängt im Allgemeinen von der Temperatur, vom Druck und vom Stoffsystem ab.

Für ideale Gase mit dem Partialdruck als Konzentrationsmaß wird das erste Ficksche Gesetz nach Gl. (4.34) beschrieben.

$$\dot{n}_i = -D_i \frac{1}{RT} \frac{\partial p_i}{\partial x} \quad (4.34)$$

Das erste Ficksche Gesetz beschreibt die Diffusion, bei der alle Komponenten des Diffusionssystemes unabhängig voneinander diffundieren können. Eine einseitige Diffusion, wenn die Phasengrenzfläche nur selektiv für eine Komponente durchlässig ist, wird durch das Gesetz von Stefan beschrieben.

$$\dot{n}_i = -D_i \frac{c_{tot}}{c_{tot} - c_i} \frac{\partial c_i}{\partial x_i} \quad (4.35)$$

mit c_{tot} als Summe aller molaren Konzentrationen der Komponenten der betrachteten Phase

In der Regel hängt die Konzentration vom Ort und von der Zeit ab. Betrachtet man die Stoffbilanz an einem differentiellen Volumenelement, gilt:

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} dx = -D_i \frac{\partial c_i}{\partial x} - \left[-D_i \frac{\partial^2 c_i}{\partial x^2} \cdot dx - D_i \frac{\partial c_i}{\partial x} \right] \quad (4.36)$$

Rate Kon- Stoffstrom- Stoffstrom-
zentrations- dichte Ein dichte Aus
änderung

Daraus folgt das 2. Ficksche Gesetz der instationären Diffusion

$$D_i \frac{\partial^2 c_i}{\partial x^2} = \frac{\partial c_i}{\partial t} \quad (4.37)$$

Die zeitliche Konzentrationsänderung durch die Diffusion entspricht der zweiten Ableitung der Konzentration nach dem Ort.

Bei turbulent strömenden Medien überlagert sich der molekularen Diffusion die konvektive Diffusion. Diese Bewegung von Turbulenzballen kann die Diffusionseffekte erheblich verstärken. Man kann annehmen, dass die Konzentration der betrachteten Komponente im Kern der Flüssigkeit aufgrund der turbulenten Bewegung konstant ist. Der Konzentrationsabfall tritt in einer viskosen Unterschicht der Dicke δ an der Phasengrenzfläche auf. In dieser Grenzschicht kann angenommen werden, dass laminare Strömung vorliegt. Das heißt, der Transport der Komponente kann durch die molekulare Diffusion beschrieben werden, wenn die kinematische Viskosität ν größer als der Diffusionskoeffizient D ist. Dieses Verhältnis wird durch die Schmidt-Zahl beschrieben.

$$Sc = \frac{\nu}{D} \quad (4.38)$$

Für Flüssigkeiten ist die Sc -Zahl immer und für Gase meistens größer eins. Im binären Fall und bei Annahme eines stationären Diffusionsflusses folgt aus dem Fickschen Gesetz ein lineares Konzentrationsprofil und damit eine direkte Proportionalität von Stoffübergangs- und Diffusionskoeffizient.

$$\left(\beta = \frac{D_i}{\delta} \right)_{g,l} \quad (4.39)$$

Der Stoffübergangskoeffizient ist ein Maß für den je Fläche übertragenen Stoffstrom. Der Stoffübergangskoeffizient ist im Allgemeinen von der Art der Strömung (laminar oder turbu-

lent), von den Stoffeigenschaften, von der geometrischen Form des Systems, von der Temperatur und bei nicht äquimolaren Stoffübergängen auch vom Konzentrationsunterschied selbst abhängig.

Die bei der Konvektion übertragene Stoffstromdichte ist proportional dem Stoffübergangskoeffizienten und der Konzentrationsdifferenz (Triebkraft) zwischen dem Fluid und der Phasengrenzfläche.

$$\dot{n}_1 = \beta \cdot (c_{i,\infty} - c_{i,\text{Ph}}) \quad (4.40)$$

Der quantitative Einfluss des Stoffübergangs kann durch kinetische Stofftransportmodelle beschrieben werden.

4.2.2 Kinetische Stofftransportmodelle

Die meisten kinetischen Ansätze für reaktive Trennprozesse werden durch das von Lewis und Whitman /42/ aufgestellte Zwei-Film-Modell beschrieben. Das Modell basiert auf dem Fickschen Gesetz. Auf beiden Seiten der Phasengrenzfläche existiert ein stagnierender Fluidfilm, in dem der gesamte durch Konzentrationsgradienten gekennzeichnete Transportwiderstand liegt.

Stofftransportvorgänge in der Grenzschicht erfolgen senkrecht zu der Phasengrenzfläche und einzig durch molekulare Diffusion. Die Phasengrenzfläche ist real, jedoch die beiden Grenzschichten imaginär, so dass die Filmstärke unbekannt ist. Die an den Filmen angrenzenden Kernphasen werden als ideal durchmischt betrachtet. An der Phasengrenzfläche wird vollständiges thermodynamisches Gleichgewicht vorausgesetzt.

Für geringe Gaskonzentrationen kann man von linearen Konzentrationsprofilen in den Grenzschichten ausgehen, s. *Bild 4.2*. Der übergehende Stoffstrom kann dann in Abhängigkeit vom Diffusionskoeffizienten der jeweiligen Phasen nach Gl. (4.41) beschrieben werden.

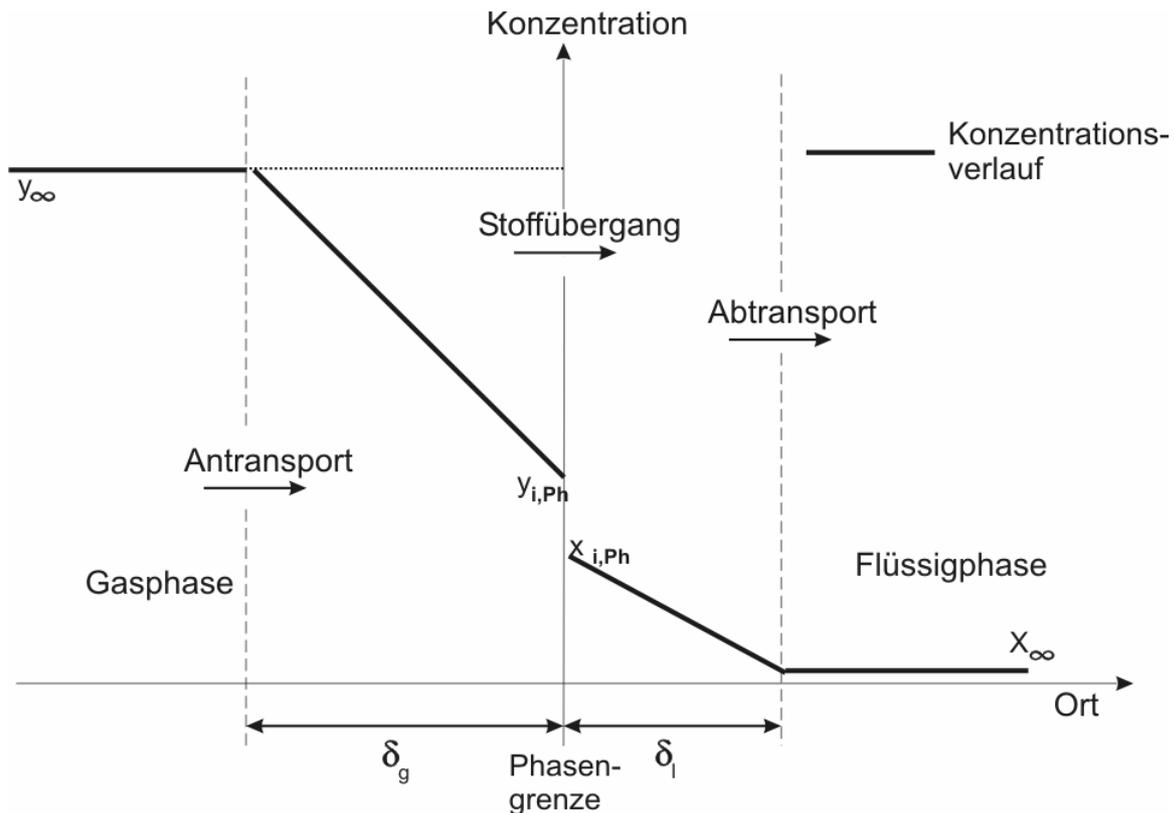


Bild 4.2 Zweifilmtheorie

$$\dot{n}_i = \frac{D_{i,g}}{\delta_g} \cdot c_{\text{tot},g} \cdot (y_{i,\infty} - y_{i,Ph}) = \frac{D_{i,l}}{\delta_l} \cdot c_{\text{tot},l} \cdot (x_{i,Ph} - x_{i,\infty}) \quad (4.41)$$

Die Konzentrationen werden hier als Molanteil in der Gasphase und in der flüssigen Phase beschrieben. Der Stoffstrom für beide Komponenten durch die Phasengrenzfläche A_{Ph} kann mit Hilfe des flüssigkeitsseitigen Stoffübergangskoeffizienten β_f oder dem gaseitigen Stoffübergangskoeffizienten β_g beschrieben werden.

$$\dot{N}_i = \beta_g \cdot A_{Ph} \cdot c_{\text{tot},g} \cdot (y_{i,\infty} - y_{i,Ph}) = \beta_l \cdot A_{Ph} \cdot c_{\text{tot},l} \cdot (x_{i,Ph} - x_{i,\infty}) \quad (4.42)$$

Die hydrodynamischen Verhältnisse des Systems werden im Zweifilmmodell nur über die Filmdicke beschrieben. Die realen hydrodynamischen Verhältnisse werden darauf vereinfacht. Den für den Stofftransport entscheidenden Schritt, das Lösen des Gases in der Flüssigkeit und das Diffundieren in den Kern kann mit der Zweifilmtheorie jedoch gut beschrieben werden. Über die Konzentrationsabhängigkeit der Diffusions- und Stoffübergangskoeffizienten wird die Änderung der Filmdicke durch die Reaktion indirekt berücksichtigt.

Das Ficksche Gesetz ist streng genommen nur für binäre Gemische zutreffend. In Mehrkomponentensystemen beeinflussen sich die Stoffströme aller Komponenten gegenseitig. Durch diese intermolekularen Wechselwirkungen kommt es zu Diffusionswiderständen. Darüber hinaus ist ein Stofftransport entgegen dem eigenen Konzentrationsgefälle möglich. Diffusi-

onsfluss und Konzentrationsgefälle stehen damit nicht mehr in einem linearen Zusammenhang.

Eine Beschreibung der molekularen Diffusion unter Beachtung der intermolekularen Reibung kann mit dem Maxwell-Stefan-Ansatz erfolgen. Dieser basiert auf der kinetischen Gastheorie und der Berücksichtigung von stoffspezifischen Wechselwirkungsparametern. Die Maxwell-Stefan-Gleichungen verknüpfen diffusive Stoffflüsse der Komponenten mit den Gradienten ihrer chemischen Potentiale /73/.

Aufgrund der geringen experimentellen Basis für die Bestimmung der binären Diffusionskomponenten in Mehrkomponentensystemen und Elektrolytlösungen findet der Stefan-Maxwell-Ansatz selten Anwendung. In der Literatur sind nur wenige Untersuchungen zu finden, reaktive Trennprozesse mit dem Maxwell-Stefan-Ansatz zu simulieren. Repräsentativ seien die umfassenden Arbeiten von Schneider /68/ und Kenig und Wiesner /38/ genannt.

Schneider /68/ hat die Reaktivabsorption am Beispiel einer Sauer gaswäsche zur Reinigung von Kokereigasen simuliert. Seine Ergebnisse zeigen, dass bei verdünnten wässrigen Systemen Kreuzeffekte vernachlässigt werden können. Auch die Linearisierung der Filmkonzentrationsprofile stellen eine zulässige Vereinfachung dar. Schneider /68/ kommt zu dem Schluss, dass durch die Verwendung des Maxwell-Stefan-Ansatzes die Modellkomplexität unnötig erhöht wird und der Ansatz aufgrund fehlender Parameter auch häufig nicht anwendbar ist. Dagegen sollte die chemische Reaktion so genau wie möglich beschrieben werden.

Die Berechnung des übertragenen Stoffstromes nach Gl. (4.42) setzt die Kenntnis mindestens einer der Konzentrationen an der Phasengrenzfläche, $x_{i,ph}$ oder $y_{i,ph}$ voraus. Diese können nicht experimentell bestimmt werden, so dass der Stoffdurchgangskoeffizient k_g eingeführt wird. Dieser Gesamtwiderstand setzt sich aus den Einzelwiderständen, den Stoffübergangskoeffizienten β_g und β_f der Unterschichten, zusammen und wird meist auf die Gasphase bezogen.

$$\frac{1}{k_g} = \frac{1}{\beta_g} + \frac{b}{\beta_f} \quad (4.43)$$

mit b dem Anstieg der Gleichgewichtslinie

4.2.3 Stoffübergang mit chemischer Reaktion

Der Stofftransport der zu absorbierenden Komponente erfolgt aus der Gasphase in die Flüssigphase. Unter Berücksichtigung der chemischen Absorption kann er vereinfacht beschrieben werden:

- Diffusion der absorbierbaren Komponente durch die Gasphase zur Phasengrenzfläche
- Übergang der Komponente in die Flüssigkeit
- Diffusion der Komponente und deren Reaktionspartner in der Flüssigkeitsphase zur Reaktionszone
- Ablauf der chemischen Reaktion
- Transport der Reaktionsprodukte in den Kern der Flüssigkeit

Ein Stofftransport mit gleichzeitiger chemischer Reaktion der übergehenden Komponente erhöht die Aufnahmekapazität und den flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten im Falle einer schnellen Reaktion in der flüssigen Phase. Für die Modellierung des Stofftransportes einer Absorption mit chemischer Reaktion muss die Kinetik der Reaktion zusätzlich zum physikalischen Modell berücksichtigt werden.

Im Allgemeinen laufen bei der Reaktivabsorption Stofftransport und Reaktion simultan ab und beeinflussen sich daher. Eine weit verbreitete Möglichkeit zur Beschreibung des Einflusses einer chemischen Reaktion auf den Stofftransport ist das Konzept der Enhancementfaktoren. Der Enhancementfaktor beschreibt die Erhöhung des Stoffübergangskoeffizienten infolge der chemischen Reaktion gegenüber der reinen physikalischen Absorption.

$$E = \frac{\beta_{1,r}}{\beta_1} \quad (4.44)$$

Der Enhancementfaktor hängt von der Zusammensetzung der beiden Phasen und der Reaktionsgeschwindigkeit ab. Eine charakteristische Kennzahl zur Beschreibung der Geschwindigkeit einer Reaktion ist die Hatta-Zahl (Ha). Das Quadrat der Hatta-Zahl ist gleich dem Verhältnis der Relaxationszeiten von Diffusion und Reaktion, s. Gl. (4.45).

$$Ha^2 = \frac{t_D}{t_r} \quad (4.45)$$

Für die Reaktion zwischen zwei Komponenten i und j mit der Ordnung m_i und m_j berechnet sich die Hatta-Zahl nach Gl. (4.46) /17/.

$$Ha = \frac{\sqrt{D_i \frac{2}{m_i + 1} \cdot k_{i,j} \cdot c_{i,ph}^{m_i-1} \cdot c_{j,\infty}^{m_j}}}{\beta_1} \quad (4.46)$$

mit k_i und k_j als Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten und m als Reaktionsordnung

Über die Hatta-Zahl ist eine Einteilung in verschiedene Reaktionsregime möglich /3/.

sehr langsam	$Ha < 0,02$
langsam	$0,02 \leq Ha \leq 0,3$
mittel	$0,3 \leq Ha \leq 3$
schnell	$Ha > 3$
spontan	$Ha \gg 3$

Bei sehr langsamen Reaktionen wird der Transportprozeß ganz durch die chemische Reaktion bestimmt. Bei langsamen Reaktionen reagiert ein kleiner Teil der Übergangskomponente i in der Phasengrenzschicht. Der Einfluss der Reaktion ist so gering, dass es sich praktisch um eine physikalische Absorption handelt mit anschließender Reaktion. Bei schnellen Reaktionen findet die Umsetzung innerhalb der Flüssigkeitsgrenzschicht statt, so dass im Flüssigkeitskern nahezu nur Reaktionsprodukte vorliegen.

Für eine Reaktion pseudo-erster Ordnung (s. Kap 4.1.4) ergibt sich unter Berücksichtigung des zweiten Fickschen Gesetzes Gl. (4.37) und der Reaktion Gl. (4.32) für die Komponente i in einem infinitesimalen Volumenelement:

$$D_i \frac{\partial^2 c_i}{\partial x^2} - k_i \cdot c_i + r(x, t) = \frac{\partial c_i}{\partial t} \quad (4.47)$$

Für eine Reaktion pseudo-erster Ordnung ergibt sich für Hatta-Zahl aus Gl. (4.46).

$$Ha = \frac{\sqrt{D_{i,l} \cdot k_i}}{\beta_l} \quad (4.48)$$

Der übergehende Stoffstrom der Komponente i kann für eine schnelle Reaktion pseudo-erster Ordnung nach Gl. (4.49) berechnet werden.

$$\dot{n}_i = \beta_{li} \cdot Ha \cdot c_{i,ph} \quad (4.49)$$

4.2.4 Diffusionskoeffizienten

Der Diffusionskoeffizient ist eine wichtige Transportgröße der Stoffübertragung in Zweiphasensystemen. Über das Ficksche Gesetz Gl. (4.33) kann bei bekanntem Diffusionskoeffizienten der übergehende Stoffstrom berechnet werden. Der Diffusionskoeffizient eines binären Gasgemisches lässt sich nach der halbempirischen Beziehung von Fuller et al. /26/ unabhängig von seiner Zusammensetzung berechnen, s. Gl. (4.50). Der Ansatz gilt für geringe Drücke ($p \leq 1 \text{ bar}$) und Temperaturen bis 300 K.

$$D_{g,ij} = \frac{1,013 \cdot 10^{-7} \cdot T^{1,75} \cdot (1/M_i + 1/M_j)^{0,5}}{p \cdot \left[(\sum \tilde{v}_i)^{1/3} + (\sum \tilde{v}_j)^{1/3} \right]^2} \quad (4.50)$$

mit D_{ij} [m²/s] dem Diffusionskoeffizienten, $M_{i,j}$ [kg/kmol] der Molmasse und $\sum \tilde{v}$ den atomaren Diffusionsvolumen

Der Diffusionskoeffizient einer Komponente in einem Flüssigkeitsgemisch hängt im Gegensatz zu dem in Gasgemischen stark von der Konzentration ab. Die Beziehung von Wilke und Chang /84/ (s. Gl.(4.51)) gilt streng genommen für unendliche Verdünnungen, wenn jedes Molekül i von reinem Lösungsmittel j umgeben ist. In Näherung gilt der Ansatz bis zu einer Konzentration von $x_i < 5 \text{ Mol\%}$ /69/.

$$D_{l,ij} = \frac{7,4 \cdot 10^{-12} \cdot (\Phi \cdot M_j)^{0,5} \cdot T}{\eta_j \cdot v_i^{0,6}} \quad (4.51)$$

mit ϕ [-] einem empirischen Assoziationsparameter des Lösungsmittels der für Wasser den Wert 2,26 annimmt und v [cm^3/mol] dem molaren Volumen

4.2.5 Berechnung der Stoffübergangskoeffizienten am Tropfen

Der Stofftransport zwischen einem Tropfen und der umgebenden Phase muss zunächst als instationär angenommen werden. Die Änderung des Durchmessers durch den Stofftransport kann vernachlässigt werden. Der Tropfen wird im Folgenden als Partikel betrachtet.

Der gaseitige Stoffübergangskoeffizient beschreibt den Stoffübergang zwischen der Gasseite und der Gas/Flüssig-Phasengrenze. Er lässt sich als Funktion der Sherwood-Zahl beschreiben.

$$\beta_g = Sh \frac{D_g}{d_p} \quad (4.52)$$

Die Bestimmung des gaseitigen Stoffübergangskoeffizienten erfolgt meist aus empirisch ermittelten Kennzahl-Korrelationen Gl.(4.53), basierend auf der Formulierung des Zusammenhangs zwischen der Sherwood-Zahl (Sh), der Reynolds-Zahl (Re) und der Schmitt-Zahl (Sc).

$$Sh_g = C \cdot Re_g^a \cdot Sc_g^b \quad (4.53)$$

mit den dimensionslosen Kennzahlen für den Stoffübergang:

$$Sh = \frac{\text{Stoffübergangskoeffizient} \cdot \text{Körperabmessung}}{\text{Diffusionskoeffizient}} = \frac{\beta \cdot d_h}{D} \quad (4.54)$$

$$Re = \frac{\text{Strömungsgeschwindigkeit} \cdot \text{Körperabmessung}}{\text{Viskosität}} = \frac{v \cdot d_h}{\nu} \quad (4.55)$$

$$Sc = \frac{\text{Viskosität}}{\text{Diffusionskoeffizient}} = \frac{\nu}{D} \quad (4.56)$$

Für den gaseitigen Stoffübergangskoeffizienten existieren zahlreiche empirische Korrelationen. Clift et al. /16/ hat die Messergebnisse verschiedener Autoren und numerisch bestimmte Werte für Kugeln durch Regressionskurven zusammengefasst.

$$Sh = 1 + \left(1 + \frac{1}{Re_p \cdot Sc} \right)^{1/3} Re_p^{0,41} Sc^{1/3} \quad (4.57)$$

für $1 < Re_p < 100$; $Sc > 0,25$

$$Sh = 1 + \left(1 + \frac{1}{Re_p \cdot Sc} \right)^{1/3} 0,752 \cdot Re_p^{0,472} Sc^{1/3} \quad (4.58)$$

für $100 < Re_p < 2000$

$$Sh = 1 + \left(1 + \frac{1}{Re_p \cdot Sc} \right)^{1/3} (0,44 \cdot Re_p^{1/2} + 0,034 \cdot Re_p^{0,71}) \cdot Sc^{1/3} \quad (4.59)$$

für $2000 < Re_p < 10^5$

Die Partikelreynoldszahl berechnet sich nach Gl. (3.21).

Ein einfacher Ansatz stammt von Ranz und Marshall /61/. Dieser empfiehlt sich für Stoffaustauschvorgänge in Sprühströmungen /21/. Er wurde entwickelt aus Messungen der Verdampfung einzelner Wassertropfen. In den experimentellen Untersuchungen wurden die Tropfendurchmesser im Bereich von 0,060mm bis 1,1 mm und die Gastemperatur bis 220°C variiert.

$$Sh = 2,0 + 0,6 \cdot Re_p^{1/2} \cdot Sc^{1/3} \quad (4.60)$$

für $0,1 \leq Re_p \leq 1000$ und $0,6 \leq Sc \leq 2,7$

Malzkorn /47/ hat die Korrelation verschiedener Autoren verglichen. Es hat sich gezeigt, dass die Ergebnisse bei mittleren Reynoldszahlenbereich ($1 \leq Re_p \leq 4000$) gut miteinander übereinstimmen.

Der flüssigkeitsseitige Stoffübergang zwischen Kern der Flüssigkeit und der Gas/Flüssig-Phasengrenze beruht auf der Diffusion und der Konvektion in einem Tropfen. Im Tropfen tritt eine Zirkulationsströmung auf, die durch die Relativbewegung zur kontinuierlichen Phase hervorgerufen wird. Für den flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten wurde ein semiempirischer Ansatz gewählt. Hsu und Shih /34/ haben experimentelle Daten der Absorption von CO₂ in Wasser verschiedener Autoren mit einem theoretischen Ansatz, der die Oszillation des Tropfens berücksichtigt, verknüpft, s. Gl. (4.61).

$$\beta_1 = 0,88 \cdot \sqrt{f \cdot D_1} \quad (4.61)$$

für $0,06\text{mm} \leq d_p \leq 6\text{mm}$

mit der Oszillationsfrequenz

$$f = \sqrt{\frac{8 \cdot \sigma}{3 \cdot \pi \cdot m_p}} \quad (4.62)$$

Die Berechnung von Stoffübergängen in Tropfenschwärmen ist immer fehlerbehaftet. Alle Korrelationen für Stoffübergangskoeffizienten an Tropfen haben gemeinsam, dass sie streng genommen nur für Einzeltropfen gelten. Stoffübergangskoeffizienten können für Tropfenschwärme nicht vorhergesagt werden. Die Vielzahl der unterschiedlichen Modelle und empirischen Korrelationen, erschwert die Auswahl eines geeigneten Modells /82/.

Die Phasengrenze kann in einem Strahlwäscher nicht als konstant betrachtet werden. Die Geschwindigkeitsdifferenz zwischen dem Partikel und der kontinuierlichen Phase ist keine unabhängige Variable. Sie hängt vom Partikeldurchmesser und den physikalischen Eigenschaften des Systems ab. Im hier entwickelten Simulationsmodell erfolgt die Berechnung daher immer mit der örtlichen Reynolds-Zahl für die Kontrollvolumina.

4.3 Hydrodynamik des Flüssigkeitsfilmes

Die Tropfen treffen entsprechend ihrem Sprühwinkel und der Interaktion mit der Gasphase auf die Wand und bilden dort einen Flüssigkeitsfilm. Für die Beschreibung des Stofftransportes durch die Grenzfläche eines Flüssigkeitsfilmes ist dessen Strömungsverhalten von Bedeutung. Die folgenden Beziehungen gelten für den Fall, dass sich der Flüssigkeitsfilm an einer ebenen Platte bewegt. Sie lassen sich mit guter Näherung für Filmströmungen an Rohrwänden anwenden, wenn die Filmdicke δ sehr klein gegenüber dem Rohradius R ist /7/. Dies ist für die meisten technischen Anwendungen der Fall. Der Stoffübergang am Rieselfilm in einem Rohr kann daher auf ein ebenes Problem reduziert werden. Man unterscheidet bei Filmströmungen zwischen glatten, wellenfreien und welligen Filmoberflächen.

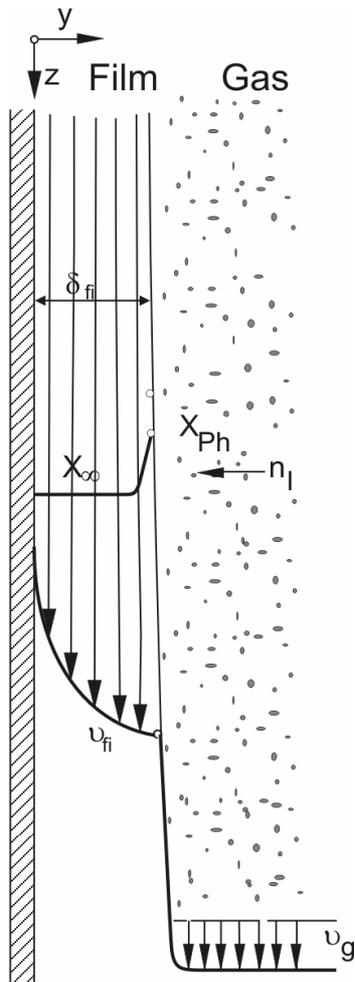


Bild 4.3 Schematische Darstellung der Konzentrations- und Geschwindigkeitsverläufe

4.3.1 Glatte Flüssigkeitsfilme

Die Filmströmung von Flüssigkeitsfilmen mit glatter Oberfläche lässt sich unter der Annahme, dass die Schubspannung an der Phasengrenze gleich Null ist, theoretisch berechnen. Dies ist der Fall, wenn sich Gas und Flüssigkeit im Gleichstrom bewegen und das Gas die an der Filmoberfläche auftretende Geschwindigkeit besitzt.

Die Geschwindigkeitsverteilung in einem Flüssigkeitsfilm folgt aus dem Gleichgewicht von Schwer- und Reibungskraft.

$$v_{fi} = \frac{g \cdot \delta_f^2}{2\nu} \left[1 - \left(\frac{y}{\delta} \right)^2 \right] \quad (4.63)$$

mit der örtlichen Filmgeschwindigkeit v_f , der Filmdicke δ_f und der senkrecht zur Filmoberfläche gerichteten Ortskoordinate y

Für die mittlere Filmgeschwindigkeit gilt Gl.(4.64).

$$\bar{v}_{fi} = \frac{1}{\delta_f} \cdot \int_0^{\delta_f} v \, dy = \frac{g \cdot \rho \cdot \delta_f^2}{3 \cdot \eta} \quad (4.64)$$

Die Reynolds-Zahl in Flüssigkeitsfilmen berechnet sich aus der mittleren Filmgeschwindigkeit, der Filmdicke und der kinematischen Viskosität oder sie wird durch den Massenstrom der Flüssigkeit und dem benetzten Rohrumfang ausgedrückt.

$$Re_{fi} = \frac{\bar{v}_f \cdot \delta_f}{\nu} = \frac{\Gamma}{\eta} \quad (4.65)$$

mit der mittleren Filmgeschwindigkeit \bar{v}_f z Richtung , der Filmdicke δ_{fi} oder der Flüssigkeitsbelastung am Umfang des Rohres Γ

Für die Strömung in Rieselfilmen an senkrechten Platten und Rohren liegt die kritische Reynolds-Zahl bei $Re_{f,krit} = 400$. Die Filmdicke in laminaren glatten Filmströmungen lässt sich nach der Theorie von Nusselt /77/ berechnen.

$$\delta_{fi,lam} = \left(\frac{3\nu^2}{g} \right)^{1/3} \cdot Re_f^{1/3} \quad (4.66)$$

4.3.2 Wellige Flüssigkeitsfilme

Flüssigkeitsfilme, die an Oberflächen herabrieseln, bilden nach einem gewissen Anlauf eine Wellenformation aus. Unter üblichen technischen Bedingungen liegt fast immer eine wellige Oberfläche vor. Nur bei sehr geringer Lauflänge und geringen Flüssigkeitsbelastungen, wie beispielsweise an Füllkörpern, treten Flüssigkeitsfilme mit glatter Oberfläche auf.

Die Filmdicke in laminaren welligen Filmen lässt sich mit hinreichender Genauigkeit nach dem Ansatz von Nusselt Gl. (4.66) berechnen /6/.

In der Regel liegt bei welligen Flüssigkeitsfilmen eine turbulente Filmströmung vor. Für die Berechnung des Strömungsfeldes als auch für den turbulenten Austauschkoefizienten ist die Modellierung der turbulenten Viskosität erforderlich. Es gilt die Verknüpfung von Strömungs- und Konzentrationsfeld mit der Schmidt-Zahl.

$$\frac{D_t}{D} = \frac{\nu_t}{\nu} \cdot \frac{Sc}{Sc_t} \quad (4.67)$$

Die turbulente Schmidt-Zahl wird nach einem Ansatz von Jischa /36/ berechnet.

$$Sc_t = 0,9 + \frac{182,4}{Sc \cdot Re^{0,888}} \quad (4.68)$$

Der turbulente Diffusionskoeffizient berücksichtigt die Mischvorgänge, die durch turbulente Geschwindigkeitsschwankungen und Wirbelbildung hervorgerufen werden. Der effektive Diffusionskoeffizient ergibt sich aus der Addition des molekularen und des turbulenten Diffusionskoeffizienten.

$$D_{\text{eff}} = D + D_t \quad (4.69)$$

Die Dicke turbulenter Filme kann für den Gültigkeitsbereich $400 \leq Re_f \leq 2400$ durch die halbempirische Beziehung von Feind /23/ berechnet werden.

$$\delta_{f,t} = 0,368 \left(\frac{3\nu^2}{g} \right)^{1/3} \cdot Re_f^{1/2} \quad (4.70)$$

Die in der Phasengrenzfläche auftretende Schubspannung kann nahezu vernachlässigt werden, da die Vorgänge im Flüssigkeitsfilm weitgehend durch die Wellen bestimmt werden.

Durch die starke Durchmischung im Flüssigkeitsfilm vergrößert sich der Stoffübergangskoeffizient beim Auftreten von Wellen um das Zwei bis Dreifache /6/.

Oberflächenwellen haben eine turbulenzähnliche Wirkung auf den Flüssigkeitsfilm. Es handelt sich jedoch bei dieser so genannten „Deformationsturbulenz“ entgegen der Reynolds'schen Turbulenz lediglich um einen Mischeffekt. Die Wirkung der Deformationsturbulenz ist an der Filmoberfläche am größten und wird mit zunehmendem Abstand zur Oberfläche geringer /6/.

4.4 Interaktion zwischen Tropfen und Wandfilm

Die Tropfen-Wand-Interaktion und die Filmbildung haben einen Einfluss auf die Hydrodynamik und den Stoffaustausch im Strahlwäscher. Die Wirkung der auf die Wand auftreffenden Tropfen hängt von den Eigenschaften der Flüssigkeit, der Oberflächenbeschaffenheit und den kinetischen Parametern ab.

Im düsen nahen Bereich des Strahlwäschers treffen aufgrund der sehr hohen Tropfendichte auch Sprühstrahlen auf die Wand. Sprühstrahlen haben eine Rückwirkung auf das Strömungsverhalten und die Wellenstruktur des Wandfilmes. Der Wandfilm kann in diesem Fall nicht als ungestört, ruhend betrachtet werden. Durch die hohe Tropfenrate kommt es zu einer

Verdrängung des Wandfilmes und zu einer Überlagerung von Effekten mit benachbarten und nachfolgenden Tropfen.

Neben der Tropfendichte hat auch der Sprühwinkel einen Einfluss auf die Ausbildung des Wandfilmes. Im Strahlwäscher treffen die Tropfen mit einem flachen Winkel $<10^\circ$ auf die Wand. Im stromaufwärtsliegenden Bereich bildet sich eine kleine Lamelle aus, deren kinetische Energie gering ist. Die Hauptmasse des aufprallenden Originaltropfens wird in Strömungsrichtung umgelenkt und verdrängt den Wandfilm. Dadurch bildet sich auf dieser Seite verspätet eine deformierte Lamelle aus, aus der ein großer Massenanteil als sekundäre Tropfen wieder zerspritzen kann. Inwieweit sich die Produktion von Sekundärtropfen durch den Aufprall von Sprühstrahlen und Einzeltropfen unterscheidet, ist bisher nur ansatzweise untersucht worden /64/.

Für eine Betrachtung der Tropfen-Wand-Interaktion müssen die Wandeigenschaften und die Aufprallparameter der Tropfen betrachtet werden. Man unterscheidet zwischen der trockenen und einer mit einem Flüssigkeitsfilm behafteten Wand. Die trockene Wand kann weiter unterteilt werden in Wandtemperaturregime. Bei heißen Wänden kommt es überwiegend zu einer Verdampfung der Tropfen an der Oberfläche. Bei sehr heißen Wänden werden die Tropfen nahezu reflektiert /64/.

Trifft ein Tropfen auf eine Wand, deren Temperatur unterhalb der Siedetemperatur des Tropfens liegt, kann es entweder zur Koaleszenz oder Destruktion des Tropfens kommen. In beiden Fällen bildet sich eine Lamelle. Bei einem hohen Restimpuls nach dem Aufprall kommt es zur Destruktion der Lamelle, das heißt, kleinere sekundäre Tropfen gehen wieder in die Gasphase /67/.

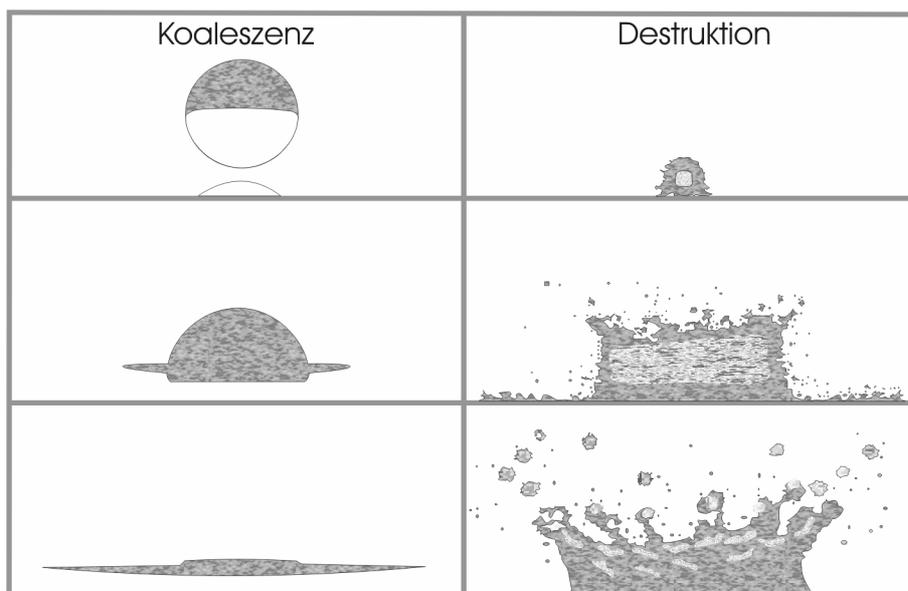


Bild 4.4 Visualisierung der Tropfen-Wand-Interaktion

Mit der Laplace-Zahl und der Aufprall-Reynoldszahl kann eine Einteilung zwischen Koaleszenz und Destruktion der Tropfen vorgenommen werden.

$$La = \frac{\sigma_p \cdot \rho_p \cdot d_p}{\eta_p^2} \quad (4.71)$$

$$Re_{imp} = \frac{v_{p,n} \cdot d_p}{\nu_p} \quad (4.72)$$

Der Einfluss des Aufprallwinkels ist von Samenfink /64/ untersucht worden. Er hat eine Korrelation für die Normalgeschwindigkeit aufgestellt

$$v_{p,n} = v_p \cdot (\sin \alpha)^{0,63} \quad (4.73)$$

Samenfink /64/ hat auf experimentellem Wege eine Grenzfunktion für den Koaleszenz- und Destruktionsbereich ermittelt. Dabei wurde die Interaktion von Einzeltropfen und Tropfenstrahlen mit einem bewegten Flüssigkeitsfilm betrachtet.

$$Re_{imp} = 24 \cdot La^{0,4189} \quad (4.74)$$

Die Flüssigkeitsfilme führen zu einer Verlagerung der Grenzlinie in Richtung kleinerer Aufprallimpulse. Dagegen hat die mittlere Filmdicke keinen signifikanten Einfluss auf die Grenze zwischen Koaleszenz und Destruktion. Im Destruktionsbereich kommt es jedoch zu einer Dämpfung durch den Film /64/, /50/. Der Einfluss des Aufprallwinkels wird durch die Verwendung der Winkelkorrelation Gl. (4.73) berücksichtigt. Die Winkelkorrelation ist für den Bereich $25^\circ \leq \alpha \leq 90^\circ$ bestimmt worden. Daher können Aussagen über den Einfluss von flacheren Aufprallwinkeln nur bedingt getroffen werden.

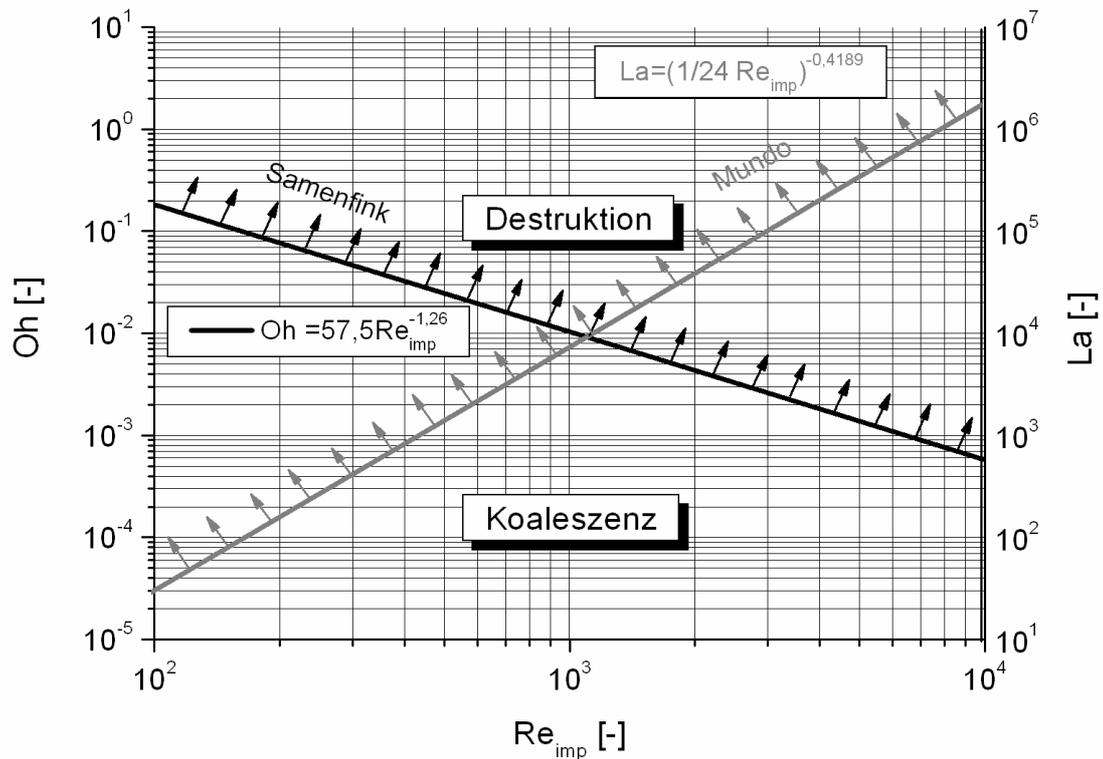


Bild 4.5 Einteilung Destruction / Koaleszenz nach Samenfink /64/ und Mundo et al. /50/

Mundo et al. /50/ hat die Tropfen-Wand-Interaktion mit einem Phasen-Doppler-Anemometer untersucht. Der Aufprallwinkel wurde zwischen 4° und 65° variiert. Mundo et al. /50/ geht davon aus, dass die Grenze zwischen Destruction und Koaleszenz lediglich durch die Normalkomponente der Auftreffgeschwindigkeit beeinflusst wird. Die Einteilung in Koaleszenz- und Destruktionsbereich erfolgt mit der Ohnesorge-Zahl statt mit der Laplace-Zahl.

$$Oh = \frac{\eta_p}{\sqrt{\rho_p \sigma_p d_p}} = La^{-1/2} \quad (4.75)$$

Die ermittelte Korrelation Gl. (4.76) gilt für die Normalkomponente der Geschwindigkeit /50/.

$$Oh = 57,7 \cdot Re_{imp}^{-1,25} \quad (4.76)$$

Beim Auftreten von Destruction kann der mittlere Durchmesser der sekundären Tropfen in erster Näherung mit 10% des primären Durchmessers angenommen werden. Hohe Oberflächenspannungen produzieren größere sekundäre Tropfen /50/. Eine exakte Beschreibung der Bildung von sekundären Tropfen kann über die Energiebilanz vor und nach der Destruction erfolgen.

Aufgrund der Komplexität des Vorgangs erfolgt die Beschreibung der Tropfengröße, der Geschwindigkeit, der Verteilungsbreite und des Abflugwinkels der Sekundärtropfen durch experimentell gewonnene Korrelationen. Es sei auf die umfassenden Untersuchungen von Samenfink /64/ verwiesen.

4.5 Berechnung der Stoffübergangskoeffizienten am Flüssigkeitsfilm

Die Stoffübergangskoeffizienten der Gas- und Flüssigphase berechnen sich in Filmströmungen nach Gl. (4.77).

$$\beta_i = Sh_i D_i \left(\frac{v^2}{g} \right)^{-1/3} \quad (4.77)$$

Streng genommen erfordert die Beschreibung des Stofftransportes örtliche Koeffizienten. Für übliche Betriebsverhältnisse sind fast nur mittlere Stoffübergangskoeffizienten verfügbar, für die praktische Anwendung ist dies jedoch hinreichend genau /6/.

Der Stofftransport in Flüssigkeitsfilmen mit einer glatten, wellenfreien Oberfläche kann theoretisch berechnet werden, wohingegen der Stofftransport in welligen Filmen durch empirische Gleichungen beschrieben werden muss.

4.5.1 Glatte Flüssigkeitsfilme

Die Differentialgleichung für das Konzentrationsfeld unter Berücksichtigung eines parabolischen Geschwindigkeitsprofils ist von Emmert und Pigford /22/ durch eine Reihenentwicklung gelöst worden. Ihre Ergebnisse wurden von Thiele /74/ zusammengefasst, Gl. (4.78).

$$Sh_{fi} = 3,4145 + \frac{0,276 \cdot K_E^{-1,2}}{1 + 0,20 \cdot K_E^{-0,7}} \quad (4.78)$$

für $Re_{fi} \leq 400$

mit der Einlaufkennzahl

$$K_E = Re_{fi}^{-1} \cdot Sc^{-1} \cdot \frac{y}{\delta_{fi}} \quad (4.79)$$

4.5.2 Wellige Flüssigkeitsfilme

Der Stofftransport in welligen Flüssigkeitsfilmen wurde in der Literatur zahlreich untersucht. Für die Modellvalidierung wird in der Regel die Absorption von Kohlendioxid in Wasser bei 20°C gewählt, da für dieses System umfangreiche Messergebnisse in der Literatur vorliegen /6/. Carrubba /12/ hat Messwerte verschiedener Autoren ausgewertet und daraus eine empirische Ausgleichskurve für verschiedene Reynoldszahlenbereiche aufgestellt. Die Gültigkeitsgrenzen hinsichtlich der Reynolds-Zahlen beziehen sich auf die Stoffeigenschaften des Wassers.

$$Sh_{fi} = 2,24 \cdot 10^{-2} Re_{fi}^{0,5} Sc_{fi}^{0,5} \quad 12 \leq Re_{fi} \leq 70 \quad (4.80)$$

$$Sh_{fi} = 8,0 \cdot 10^{-2} Re_{fi}^{0,8} Sc_{fi}^{0,5} \quad 70 \leq Re_{fi} \leq 400 \quad (4.81)$$

$$Sh_{fi} = 8,9 \cdot 10^{-4} Re_{fi}^{1,25} Sc_{fi}^{0,5} \quad Re_{fi} > 400 \quad (4.82)$$

Grabbert /6/ hat die Ergebnisse von Carrubba und weitere Quellen zusammengefasst und eine Regressionskurve über den gesamten Reynoldszahlenbereich aufgestellt, Gl.(4.83).

$$\overline{Sh}_{fi} = 20,6 + 0,33 \cdot Re_{fi} + 6,0 \cdot (\ln Re_{fi})^2 - 16,3 \cdot \sqrt{Re_{fi}} \quad (4.83)$$

Gültigkeitsbereich: $10 \leq Re_{fi} \leq 5000, Sc_{fi} = 593$

Mit der Reynolds-Zahl in Flüssigkeitsfilmen aus Gl. (4.65).

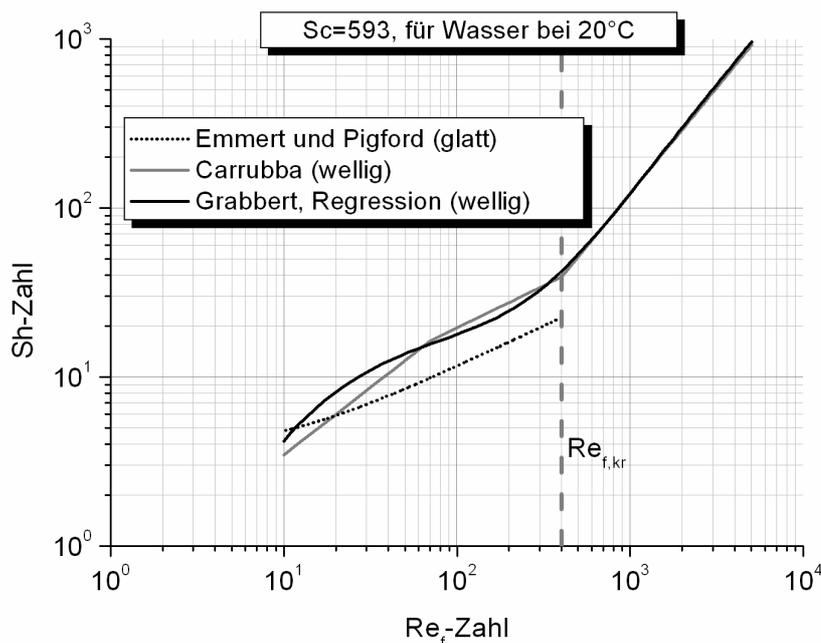


Bild 4.6 Stoffübergang an der Oberfläche welliger und glatter Rieselfilme in Abhängigkeit von der Reynolds-Zahl

Der Stoffübergangskoeffizient ist bei welligen Filmen erheblich größer als bei glatten, s. *Bild 4.6*. Die Welligkeit führt zu einer starken Verbesserung des Stoffübergangs ab einer $Re_{fi} > 20$. Die Sherwood-Zahl in Flüssigkeitsfilmen wird durch verschiedene Faktoren beeinflusst. Durch oberflächenaktive Stoffe wird die Oberflächenspannung herabgesetzt, dadurch kommt es zu einer Dämpfung der Wellenbewegung und einer Abnahme des Stoffübergangs. Bei Gleichstrom wird die Sherwood-Zahl durch die Einwirkung des Gasstromes auf den Flüssigkeitsfilm erhöht /7/. Die Änderung der Sherwood-Zahl durch diese Effekte kann nicht quantitativ vorausgesagt werden. Die untere Grenze für die Sherwood-Zahl ergibt sich aus der Annahme einer wellenfreien Oberfläche, die obere Grenze liegt vor, wenn die wellige Filmströmung voll ausgebildet ist. Für die Simulation wird von einer voll ausgebildeten, welligen Filmströmung ausgegangen.

4.5.3 Stofftransport im Gasstrom

Der Stofftransport im Gasstrom lässt sich nur durch empirische Gleichungen beschreiben. Umfangreiche Untersuchungen stammen von Braun und Hiby /9/. Für einen abwärtsgerichteten Gleichstrom über die Lauflänge z_0 - z_L kann die örtliche Sherwood-Zahl nach Gl. (4.84) berechnet werden.

$$Sh_{g,z} = 0,18 Re_g^{0,4} Re_{fi}^{0,16} Sc_g^{0,44} \left[1 + 1,6 \left(\frac{z}{d_{stra}} \right)^{-0,75} \right] \quad (4.84)$$

Für die mittlere Sherwood-Zahl gilt /7/:

$$\overline{Sh}_g = 0,18 Re_g^{0,4} Re_{fi}^{0,16} Sc_g^{0,44} \left[1 + 6,4 \left(\frac{L}{d_{stra}} \right)^{-0,75} \right] \quad (4.85)$$

mit

$$Sc_g = \frac{\nu_g}{D_g} \quad (4.86)$$

$$Re_g = \frac{\nu_g \cdot d_{stra}}{\nu_g} \quad (4.87)$$

5 Experimentelle Arbeiten

Für die experimentelle Validierung des Modells wurden Versuche in einem Kompaktstrahlwäscher durchgeführt. Die Versuche wurden in hydrodynamische und in stoffliche Untersuchungen unterteilt. Aus hydrodynamischer Sicht soll vor allem die erreichbare Pressung in Abhängigkeit vom Betriebszustand bestimmt werden, während bei den chemischen Untersuchungen der Absorptionsgrad und die effektive Phasenaustauschfläche des Strahlwäschers ermittelt werden soll.

5.1 Aufbau der Versuchsanlage

Die experimentellen Untersuchungen wurden in einer Strahlgaswaschanlage DN150 der Firma Körting AG durchgeführt. Der prinzipielle Aufbau und die Messstellen der Versuchsanlage sind in Bild 2.1 dargestellt. Der Strahlwäscher besteht im Wesentlichen aus der Treibdüse (1), dem Mischrohr (2) und dem Abscheidebehälter (3). Der Abscheidebehälter hat ein Fassungsvermögen von 500l Flüssigkeit. Das Wäscherrohr, der Abscheidebehälter, die Leitungen und die Teile der Pumpe, die mit Waschmittel in Kontakt kommen, sind aus Polypropylen (PP). Die Länge des Strahlrohres beträgt vom Düsenaustritt bis zum Abscheidebehälter 2m.

Es wurden zwei Düsen mit einem Austrittsdurchmesser von 6,8 und 10mm untersucht. Die Kreiselpumpe (Firma ASV Stübbe) kann einen Volumenstrom von 8m³/h bei 4 bar fördern. Der Düsenvordruck wurde über ein manuelles Ventil eingestellt. Die Waschflüssigkeit wurde im Kreislauf gefahren. Die Flüssigkeitsanalysen wurden über ein Probenahmeventil am Düsenzulauf und im Abscheidebehälter entnommen. Die Waschflüssigkeit wurde bei Unterschreiten einer minimalen Hydroxidkonzentration und bei einem erhöhten Feststoffausfall durch Natriumcarbonat erneuert. Die hydrodynamischen Untersuchungen wurden mit Wasser durchgeführt.

Die angesaugte Luft wurde in einer Füllkörperkolonne (4) zunächst befeuchtet. Anschließend wurde das Sauer gas aus Druckgasflaschen zudosiert. Aufgrund der Länge des Ansaugrohres ($L/d=33$) und den drei Rohrbögen bis zum Strahlwäschereintritt kann von einer homogenen Durchmischung ausgegangen werden. Die Sauer gaskonzentration wurde am Strahlwäschereintritt und im Abscheidebehälter bestimmt. Das gereinigte Gas verlässt den Abscheider über einen Demister zur Tropfenabscheidung. Der Gasvolumenstrom wurde über eine Drosselklappe am Strahlwäscheraustritt eingestellt.

Die Versuche wurden bei Raumtemperatur durchgeführt. Zur Realisierung von hohen Gasgeschwindigkeiten für die Absorptionsversuche wurde die Luft vor dem Luftbefeuchter mit einem Niederdruckventilator, der sich stufenlos regeln lässt, verdichtet. Für die Messung von axialen Druckprofilen wurden sieben Probenahmestutzen entsprechend Bild 2.1 entlang des Strahlwäschers angebracht. Um radiale Unterschiede zu erfassen, wurden für drei Höhen (Messpunkte b in Bild 2.1) zusätzliche um 90° versetzte Stutzen angebracht.

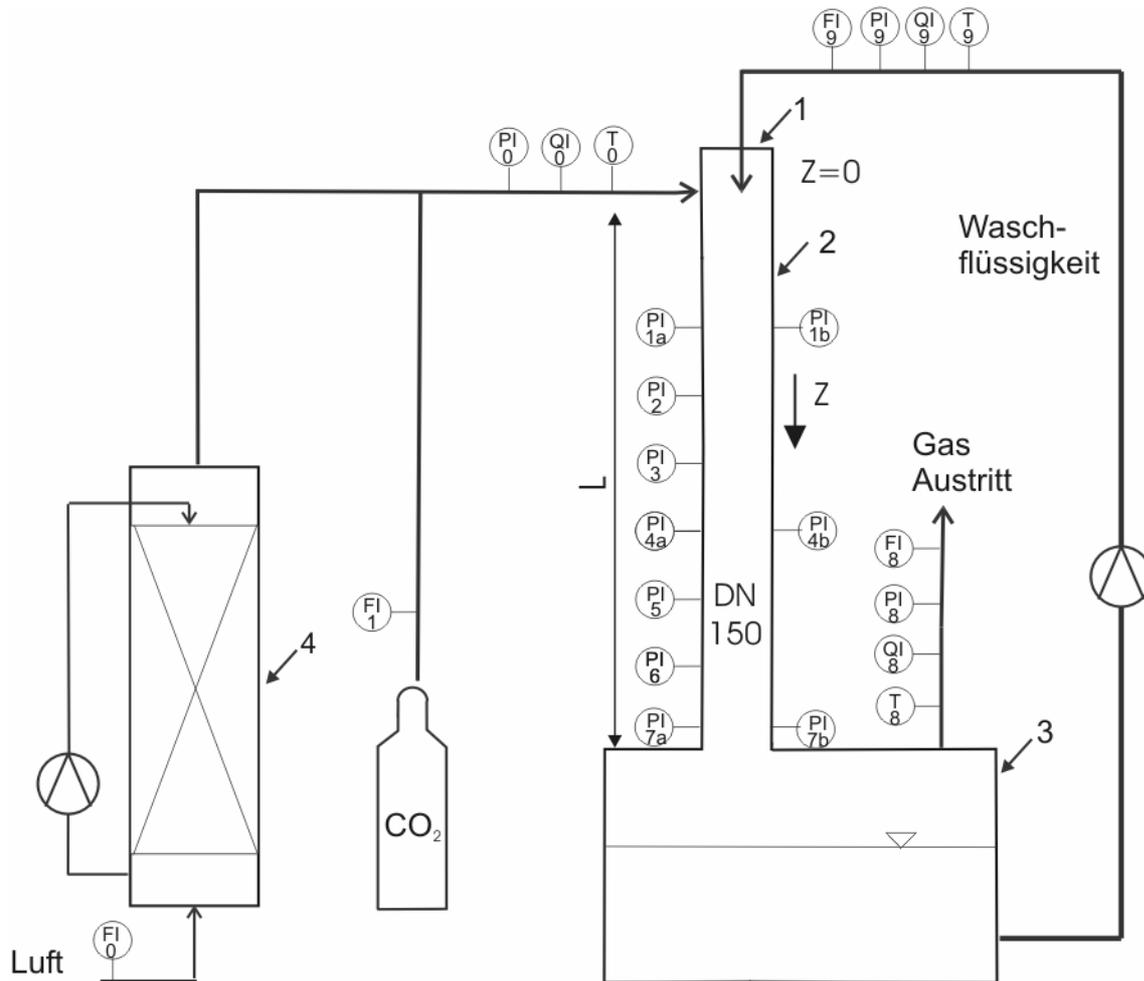


Bild 5.1 Skizze der Versuchsanlage Strahlwäscher DN150

5.2 Gasbefeuchtung vor dem Strahlwäscher

Im Strahlwäscher wird die angesaugte Luft bis zur Sättigung befeuchtet und kühlt sich folglich bis zur Kühlgrenztemperatur ab. Die Temperatur des Wassers nähert sich ebenfalls der Kühlgrenztemperatur. Ohne Befeuchtungskolonie kommt es zu einem deutlichen Temperaturunterschied zwischen Gasein- und -austritt des Absorbers. Die Messgenauigkeit im Absorber kann bei vollständig gesättigter Luft deutlich verbessert werden [81]. Um unter konstanten Bedingungen zu arbeiten, wurde die angesaugte Umgebungsluft zunächst in einer Gegenstrom-Füllkörperkolonne mit Wasser vollständig gesättigt. Aus dem h-x-Diagramm ergibt sich bei einer Eintrittstemperatur von 20°C und einer Luftfeuchte von 0,6 eine Kühlgrenztemperatur von 15°C.

Für die hydrodynamischen Untersuchungen am Strahlwäscher wurde auf die Luftbefeuchtung verzichtet, da der Druckverlust der Füllkörperkolonne die erreichbare Pressung des Strahlwäschers reduziert.

5.3 Messtechnik

Zur Bestimmung des Absorptionsgrades und der Beschreibung des Druckgewinns im Strahlwäscher werden folgende Messgrößen benötigt: die Sauerstoffkonzentration am Ein- und Austritt des Strahlwäschers, der Massenstrom von Gas und Flüssigkeit und deren Temperaturen, Druck entlang des Strahlwäschers und die relative Luftfeuchte des Gasstromes. Alle Messgrößen wurden mit dem Messwerterfassungssystem IMC μ -MusyCS erfasst und gespeichert.

5.3.1 Temperatur und Luftfeuchtigkeit

Zur Temperaturmessung wurden NiCrNi-Thermoelemente mit einer Messgenauigkeit von 0,1 K verwendet. Es wurden die Temperaturen der Gasphase in der Zu- und Abluft des Strahlwäschers, die Temperatur des Waschmittels am Düsenzulauf und die Umgebungstemperatur gemessen. Die relative Luftfeuchte der Zuluft wurde mit einem kapazitiven Sensor bestimmt.

5.3.2 Differenzdruck

Die Differenzdruckmessungen wurden mit Präzisionsdruckmessumformer der Firma Setra durchgeführt. Das Messprinzip beruht auf dem kapazitiven Verfahren. Der Sensor besteht aus einer Scheibe mit einer Metallbeschichtung, die den Messkondensator bildet. Durch Druckeinwirkung verändert sich aufgrund der elastischen Durchbiegung der Membran die Kapazität. Der Messbereich einer Druckmessdose beträgt $\pm 1,9$ kPa mit einer Messgenauigkeit von 0,064% FS (Full Scale). Es wurden 5 Druckmessdosen verwendet, um simultane Messungen zu ermöglichen. Zwischen der Messleitung und den Probenahmestutzen wurden mit Silicagel gefüllte Übergangsstücke eingesetzt, um die Drucksensoren vor Feuchtigkeit zu schützen.

5.3.3 Durchfluss der Waschflüssigkeit

Der Flüssigkeitsvolumenstrom wurde mit einem magnetisch-induktiven Durchflussmesser bestimmt. Das Messprinzip beruht auf der Induktion einer Spannung in einem Leiter (Medium), wenn dieser sich in einem Magnetfeld bewegt. Die gemessene Spannung ist proportional zur Stärke des Magnetfeldes und der Strömungsgeschwindigkeit. Die Flüssigkeit muss eine Mindestleitfähigkeit haben, ansonsten ist dieses Messprinzips weitestgehend unabhängig von den Flüssigkeitseigenschaften. Es stand ein Gerät der Firma ABB DN32 zur Verfügung. Zähler dieser Bauart zeichnen sich durch eine sehr große Messdynamik von 1:300 und einer Messgenauigkeit von $<0,25\%$ aus. Der Düsenvordruck wurde über ein Monometer erfasst. Es wurden zwei Düsen unterschiedlicher Größe der Firma Körting AG untersucht. Die charakteristischen Parameter sowie die untersuchten Flüssigkeitsvolumenströme sind Tabelle 5.1 zu entnehmen.

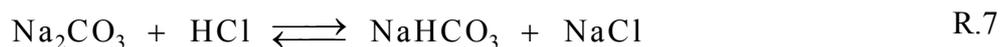
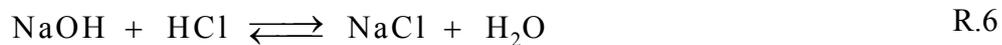
Tab. 5.1 Parameter der verwendeten Düsen

	6,8mm Düse	10mm Düse
Düsenaustrittsdurchmesser	6,8mm	10mm
Maximaler Volumenstrom	3,4m ³ /h	7,2m ³ /h
Austrittsgeschwindigkeit	26m/s	25,5m/s
Untersuchte Volumenströme	3,5 / 3,0 / 2,5 / 2,0 m ³ /h	7,2 / 5,0 m ³ /h

5.3.4 Flüssigkeitszusammensetzung

Zur Ermittlung der Hydroxid- und der Carbonatkonzentration wurden 100ml Lösung dem Waschmittel entnommen. Die Probenahme erfolgte unter Gasausschluss, um eine Reaktion mit dem Kohlendioxid der Luft nach der Probenahme zu vermeiden. Die Konzentrationen wurden mittels Titration bestimmt. Zur Verdünnung wurde ausgekochtes destilliertes Wasser verwendet, da dieses kein Kohlendioxid mehr enthält.

Die Carbonatkonzentration neben einer Lauge wird nach der Methode von Warder bestimmt /63/. Zunächst wird die Lösung gegen Phenolphthalein mit einer Säure titriert. Am Umschlagspunkt hat man die freie Natronlauge und die Hälfte des Carbonats erfasst. Zur Titration des Hydrogencarbonates wird als Indikator Methylorange zugesetzt und erneut mit der Säure bis zum Umschlagspunkt titriert.



5.3.5 Gasgeschwindigkeit

Die Gasgeschwindigkeit wurde im Ansaugrohr der Gaszuführung mit einem Flügelradanemometer der Firma AMR Typ S120 mit einem Messbereich von 0-20m/s (+/-1%) gemessen. Das Frequenzsignal wurde mit einem Frequenz-Spannungs-Wandler umgewandelt. Um ein gleichmäßiges Strömungsprofil an der Messstelle zu gewährleisten, wurde vor dem Messpunkt eine gerade Beruhigungsstrecke von 15 x Rohrdurchmesser und nach der Messstelle von 5 x Rohrdurchmesser eingehalten. Die Einstellung einer konstanten Gasgeschwindigkeit ist aufgrund der Schwankungen im Gasstrom nur mit einer Genauigkeit von +/-5% möglich.

5.3.6 Gasanalyse

Für die Bestimmung der Konzentration von Kohlendioxid wurde ein Infrarot Gasanalysator der Firma Infralyt Typ 40e verwendet. Die Messung erfolgt im Gasein- und Austritt des Strahlwäschers. Über die vorhandenen Probenahmestutzen sollte mit Sonden die Gaskonzent-

ration im Strahlwäscherrohr bestimmt werden, um so ein axiales Konzentrationsprofil aufzunehmen.

Die Detektoren des Gasanalysators nutzen die Eigenschaft mehratomiger, nicht-elementarer Gase die Strahlung im infraroten Spektralbereich zu absorbieren. Durch vorgeschaltete Interferenzfilter werden die Sensoren selektiv empfindlich für bestimmte Wellenlängen. Der exponentielle Zusammenhang zwischen absorbierter Strahlung und der Konzentration wird durch das Lambert-Beersche Gesetz beschrieben. Durch eine interne Linearisierung kann die Konzentration direkt erfasst werden. Die Infrarotdetektoren werden von einem Mikrorechner gesteuert. Der Analysator besteht aus 3 Infrarot-Messkanälen, die für unterschiedliche Gase kalibriert sind, und einem Referenzkanal. Daher muss die Sauerstoffkonzentration in Zu- und Abluft nacheinander gemessen werden. Die Messunsicherheit des Gerätes liegt bei einem Messbereich von 0-2 vol% CO₂ bei weniger als 2% der Messspanne.

5.3.7 Partikelmesstechnik

Ziel der Partikelmesstechnik ist die Erfassung von Daten für die Modellierung des Strahlwäschers. Wichtige Parameter sind die Tropfengeschwindigkeit und das Tropfenspektrum. Für eine berührungsfreie Messung bieten sich die Laser-Doppler-Anemometrie (LDA) und die Phasen-Doppler-Anemometrie (PDA) an. Die Laser-Doppler-Anemometrie ist eine in der Strömungsmesstechnik seit langer Zeit etablierte optische Messmethode, mit der rückwirkungsfrei Geschwindigkeiten ermittelt werden können. Zur Charakterisierung einer Zweiphasenströmung ist neben den Geschwindigkeiten von dispergierter und kontinuierlicher Phase auch die Größe der Partikel entscheidend. Mit Hilfe der Phasen-Doppler-Anemometrie (PDA), einer Erweiterung des LDA-Prinzips /20/, kann neben der Tropfengeschwindigkeit auch die Tropfengröße als zusätzliche Größe ermittelt werden. Diese Technik findet deshalb für die simultane Messung in Zweiphasenströmungen breite Anwendung /60/, /10/, /62/. Voraussetzung ist, dass die Brechungsindices der kontinuierlichen und der dispersen Phase nahezu identisch sein müssen. Wie bei allen auf der Partikelgröße basierenden Verfahren, muss ein ausreichend großer Abstand zwischen den einzelnen Partikeln gewährleistet sein /62/. Da die zu messenden Partikel kugelförmig sein müssen, ist eine Messung nur im Spraybereich möglich. Der Tropfenbildungsprozess (s. Kap. 3.1) kann experimentell nicht erfasst werden.

Das Messprinzip der laseroptischen Verfahren beruht auf der Lichtstreuung durch die Partikel und der Frequenzverschiebung des gestreuten Lichtes gegenüber dem einfallenden Licht durch den Dopplereffekt. Ein kohärenter monochromatischer Laserstrahl der Wellenlänge λ wird durch einen Strahlteiler in zwei Teilstrahlen gleicher Intensität aufgeteilt. Die Teilstrahlen werden mittels einer Konvex- oder Bikonvexlinse unter dem Winkel 2ψ zum Schnitt gebracht, s. *Bild 5.2*. Im Überlagerungsbereich bildet sich ein äquidistantes Interferenzstreifenmuster aus. Dieses bildet die Messebene, s. *Bild 5.3* /70/.

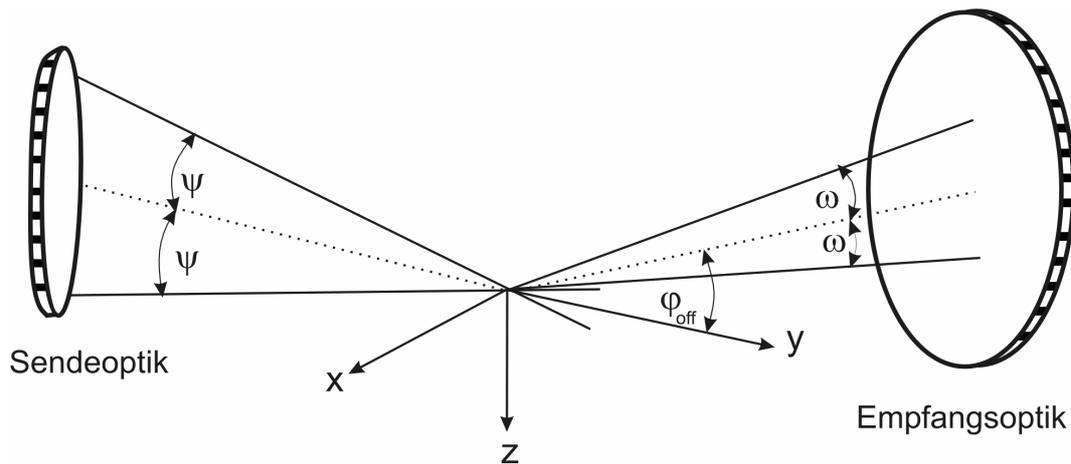


Bild 5.2 Messprinzip Phasen-Doppler-Anemometer

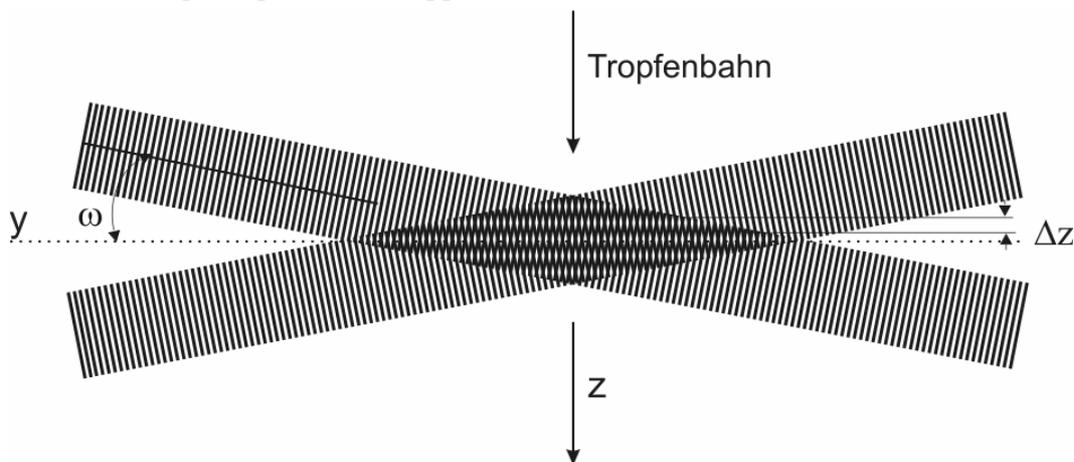


Bild 5.3 Messebene Phasen-Doppler-Anemometrie

Der Abstand zwischen den Interferenzebenen Δz berechnet sich nach Gl.(5.1).

$$\Delta z = \frac{\lambda}{2 \cdot \sin(\psi)} \quad (5.1)$$

mit der Wellenlänge λ und dem halben Strahlschnittwinkel ψ

Bewegt sich ein kugelförmiges Teilchen durch das Messvolumen, so wird das Licht durch das Partikel mit periodischen Intensitätsschwankungen gebrochen. Diese Intensitätsänderung wird von der Empfangsoptik erfasst und in ein analoges Signal umgewandelt. Die Empfangsoptik besteht aus zwei Photodetektoren, die unter dem Winkel 2ω das Messvolumen beobachten. Die Frequenz des Signals ist die Dopplerfrequenz f_D . Diese ist proportional zu den pro Zeiteinheit durchquerten Interferenzebenen, das heißt, es wird die Geschwindigkeitskomponente v_z der Partikel aufgezeichnet, die senkrecht durch die Interferenzstreifenebene läuft, Gl. (3.5).

$$v_z = f_D \cdot \Delta z = \frac{f_D \cdot \lambda}{2 \cdot \sin(\psi)} \quad (5.2)$$

Um interne Reflexionen zu vermeiden, muss überwiegend ein Streulicht erster Ordnung erzeugt werden. Deshalb wird die Empfangsoptik um den so genannten Off-Axis-Winkel φ_{off} versetzt, dieser liegt für das System Wasser/Luft bei 30° / 70° .

Durch die Beobachtung des Signals mit zwei Detektoren lässt sich aus der Phasendifferenz, der zeitlichen Verschiebung des Signals, die Größe der Partikel bestimmen.

Die Messungen am Phasen-Doppler-Anemometer wurden an einem Technikumsquencher DN300 an der BTU Cottbus durchgeführt. Die Anlage dient zur Untersuchung des Quenchprozesses von Rauchgasen. Der Quencher ist vom prinzipiellen Aufbau mit dem Strahlwäscher identisch. Es können alle für den Strahlwäscher relevanten Prozessgrößen geregelt und ausgewertet werden, s. Tab. 5.2.

Tab. 5.2 Parameter Technikumsquencher BTU-Cottbus, Roth /30/

	Messstelle	Erfassung
Gastemperaturen	Quenchein/-austritt	online, 10s-Takt
Gasvolumenstrom	Quencheintritt	online, 10s-Takt
Flüssigkeitstemperatur	Düse, Vorratstank	online, 10s-Takt
Flüssigkeitsvolumenstrom	Hauptdüse	online, 10s-Takt
Umgebungszustand	Raumtemperatur Rel. Feuchte Umgebungsdruck	online, 10s-Takt
Drücke	Druckverlust gasseitig Düsenvordruck	online, 10s-Takt

Im Quenchröhr wurde mit einem Phasen-Doppler-Anemometer der Firma Polytec /Aerometrics (s. Tab. 5.3) das Tropfenspektrum untersucht.

Tab. 5.3 Kenndaten Phasen-Doppler-Anemometer

	1D-Gerät Fa. Polytec/Aerometrics
Partikelgrößenbereich	0,5 μm – 1133 μm
Partikelgeschwindigkeit	+/-630m/s
Wellenlänge	514,4nm
Leistung	120mW
Dynamikbereich	1:50

Mit der PDA-Technik sind nur punktuelle Messungen möglich. Für die Aufnahme von Profilen muss das Messvolumen verfahren werden. Mit Hilfe eines Travasiergestells können die vertikalen und horizontalen Positionen (Y und Z) angefahren werden. Über einen Drehkranz kann die radiale Position (X) eingestellt werden. Sende- und Empfangsoptik sind an der gleichen Aufhängung befestigt, so dass sie gemeinsam verfahren werden, s. Bild 5.4. Das Travasiergestell ist vom eigentlichen Strahlwäscher getrennt, so dass Schwingungen nicht übertra-

gen werden können. Das Rohr des Technikumsquenches hat einen Durchmesser von 300mm und ist aus PP gefertigt. Ziel der PDA Messungen ist die Messung der Tropfengrößenverteilung in Abhängigkeit vom Düsentyp und dem Düsenvordruck. Es wurde daher mit den Düsen, wie sie auch in der Strahlgaswaschanlage DN150 zum Einsatz kamen, gearbeitet. Die Wandeinflüsse sollten nicht untersucht werden. Da unter sonst gleichen Versuchsbedingungen gearbeitet wurde, sind die Ergebnisse auf die Strahlgaswaschanlage DN150 übertragbar.

Eine Messung durch die Rohrwand würde die Laserstrahlen brechen und zu einer Verfälschung oder Abschwächung des Signals führen. Die Messung erfolgt daher durch Stutzen, die mit planen Acrylglasscheiben verschlossen sind. Dies gilt sowohl für die Laserstrahlen der Sendeeinheit als auch für die Empfangsoptik. Ein Wandfilm kann aufgrund der konstruktiven Anordnung der Messstutzen an den planen Acrylglasscheiben nicht entstehen. Einzelne Wassertropfen verfälschen die Messung nicht, aber sie schwächen das Signal und führen daher zu einer geringen Signalrate. Daher wurden die Scheiben vor den einzelnen Messungen trocken gewischt.

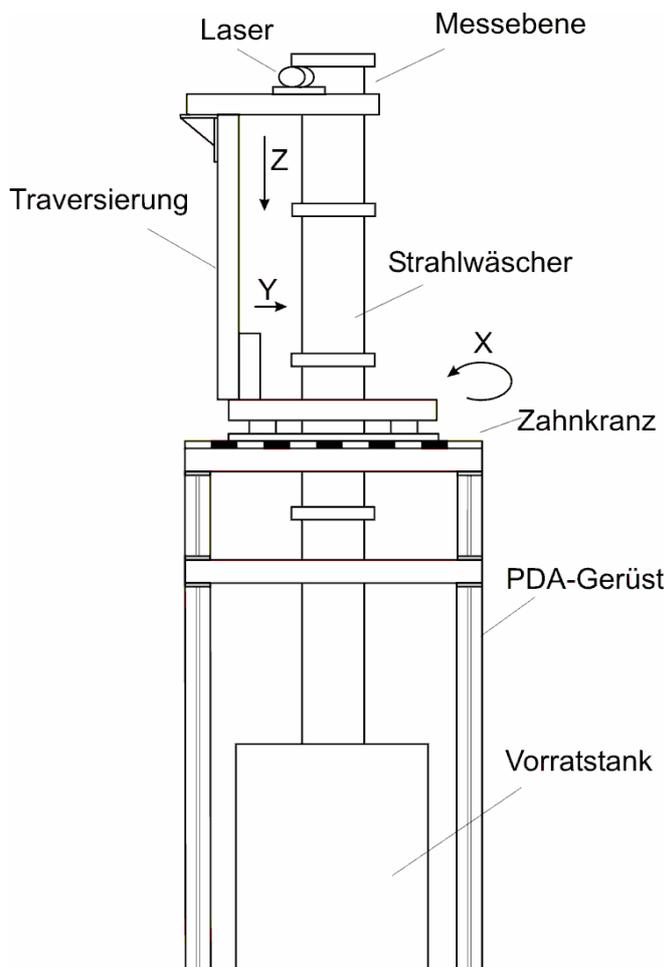


Bild 5.4 Skizze Versuchsaufbau des Technikumsquenches, /30/

In einer Ebene wurden die Tropfenverteilungen an neun verschiedenen Positionen gemessen, s. Bild 5.5. In einem Messzyklus wurden jeweils nur 3 Messpunkte angefahren und anschließend die Messeinheit um 90° gedreht. Mit der Sende- und Empfangsoptik muss auch der Messschuss um 90° gedreht werden, damit die Messung immer durch die planen Scheiben erfolgt. Bei einer Messung über die gesamte Achse würde bei Messungen über den Strahlmittelpunkt hinaus das Signal zu stark abgeschwächt werden. Alle Messpunkte wurden doppelt bestimmt, der Mittelpunkt damit achtfach.

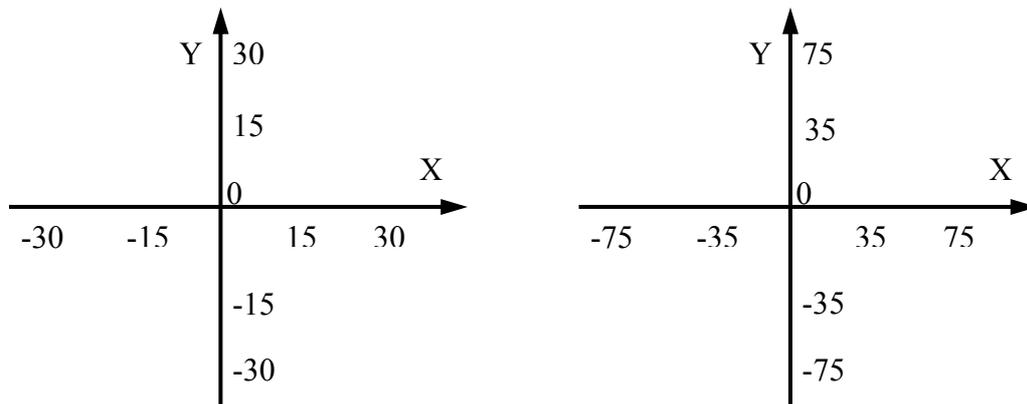


Bild 5.5 a) Messpunkte in der Ebene $z = 0,19\text{m}$ b) Messpunkte in den Ebenen $z = 0,21\text{m}$ -
 $0,59\text{m}$

Im düsenahen Bereich $z = 0,19\text{m}$ wurde das radiale Profil in den Messpunkten nach Bild 5.5a bestimmt. Um den Tropfenzerfall oder die Koaleszenz in Abhängigkeit vom Düsenabstand experimentell zu erfassen, wurden radiale Profile in den Höhen $z = 0,21\text{m}$; $0,29\text{m}$; $0,35\text{m}$; $0,43\text{m}$; $0,51\text{m}$ und $0,59\text{m}$ von der Düse gemessen. Für die jeweiligen Höhen wurde ein radiales Profil entsprechend Bild 5.5b gemessen, da mit zunehmendem Abstand von den Düsen (z) eine Aufweitung des Strahles zu erwarten ist und damit die Tropfengröße über die gesamte Strahlwäscherbreite bestimmt werden kann.

Neben der Tropfengrößenverteilung und der Tropfengeschwindigkeit ist die Verteilung der flüssigen Phase ein interessanter Parameter für die Verifizierung des Modells. Für komplexe mehrphasige Strömungen kann die räumliche Verteilung der einzelnen Phasen mit der Röntgentomographie bestimmt werden. Sie basiert auf der Durchstrahlung des Objektes mit einer kurzwelligen elektromagnetischen Strahlung. Durch Rotation um das Messobjekt ergibt sich ein tomographisches Bild. Die Strömung muss über die Messzeit konstant sein. Das Verfahren wurde aufgrund des zusätzlichen hohen experimentellen Aufwandes für die Verifizierung nicht herangezogen.

6 Ergebnisse und Diskussion

6.1 Validierung der Gleichgewichtsberechnung und der Reaktionskinetik

Durch die Validierung der Gleichgewichtsberechnung und der Reaktionskinetik sollen die in Kap. 4.1.4 und 4.2.3 getroffenen Annahmen zur Vereinfachung der Berechnung des Stoffübergangs überprüft werden.

Die Gleichgewichte der Reaktionen R3 und R4 (s. Kap. 4.1) stellen sich in wässrigen Lösungen instantat ein und können daher ausschließlich durch ihre Gleichgewichtskonstante beschrieben werden. Die Gleichgewichtskonzentration der Reaktion R2 und damit auch die Bruttoreaktion R1 stellt sich nicht sofort ein, sie muss daher durch eine Kinetik für die Hin- und Rückreaktion modelliert werden. Die Reaktion R1 kann als elementare Reaktion betrachtet werden.



Aus den thermodynamischen Standarddaten (s.4.1.1) ergibt sich die Gleichgewichtskonstante für die Reaktion R1 (s. *Bild 6.1*).

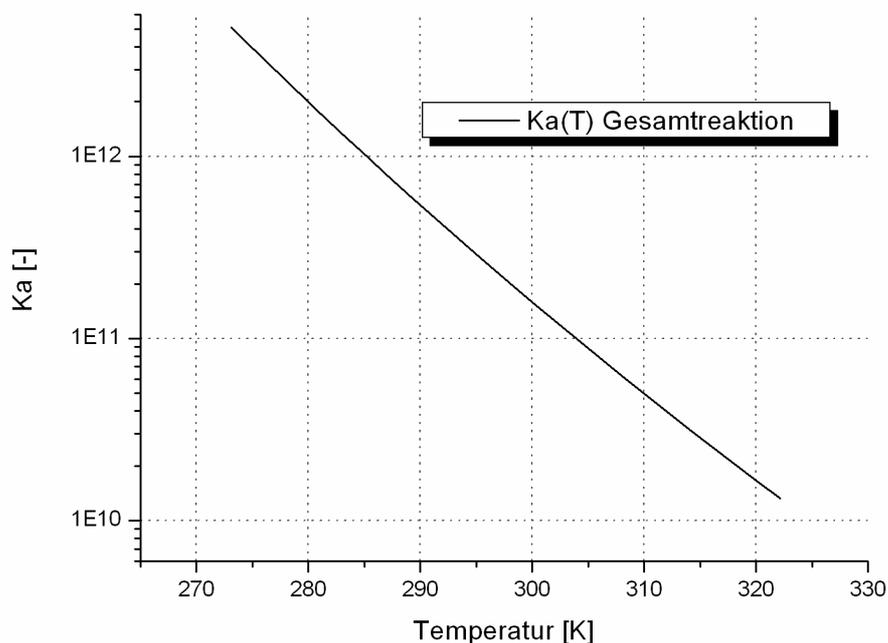


Bild 6.1 Gleichgewichtskonstante der Bruttoreaktion R1

Das Gleichgewicht liegt deutlich auf der Produktseite, das heißt, gelöstes CO_2 ist praktisch nicht vorhanden. Da außerdem die Stärke der Wechselwirkungen zwischen neutralen Spezies

und Ionen geringer ist als zwischen Ionen, wird der Aktivitätskoeffizienten der Spezies CO_2 (aq) zu eins gesetzt.

Der Aktivitätskoeffizient der Spezies CO_3^{2-} ist bei unendlicher Verdünnung eins und sinkt mit zunehmender Ionenstärke (s. *Bild 6.2*). Die Ionenstärke hat einen wesentlichen Einfluss auf den Aktivitätskoeffizienten.

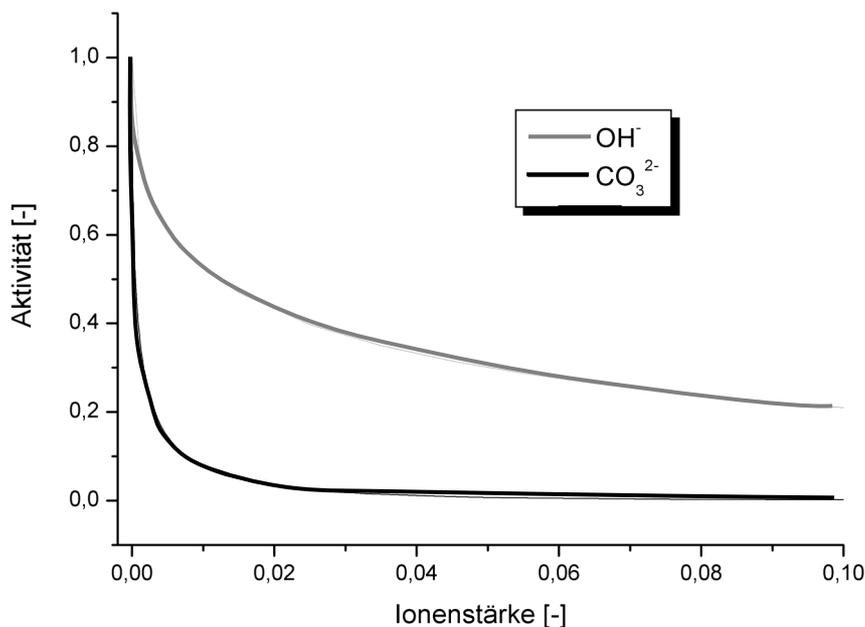


Bild 6.2 Aktivitätskoeffizienten der Spezies CO_3^{2-} und OH^- bei 20°C in Abhängigkeit von der Ionenstärke

Das einwertige Hydroxyd-Ion hat einen deutlich höheren Aktivitätskoeffizienten als das zweiwertige Carbonat-Ion. Bei sehr niedriger Konzentration sind die Molekülabstände hoch, in diesem Bereich dominieren die langreichenden Coulombschen Anziehungskräfte zwischen Kationen und Anionen, die zu einer Verbesserung der Löslichkeit und somit zu einer Abnahme der Aktivitätskoeffizienten führen. Bei einer Gesamtmolalität von $m_{\text{tot}} > 5$ [mol/kg] bei 298K steigen die Aktivitätskoeffizienten auf Werte, die deutlich über eins liegen /45/. Dieser Effekt kann unter den vorliegenden Versuchsbedingungen nicht eintreten.

Das Gleichgewicht des Reaktionssystems hängt vom pH-Wert der Lösung ab, s. *Bild 6.3*. Nur im sauren Milieu ($\text{pH} < 7$) liegt physikalisch gelöstes Kohlendioxid vor. Bei steigenden pH-Wert ($> \text{pH} 9$) sinkt die Hydrogencarbonatkonzentration und die Carbonatkonzentration steigt an. Bei einem pH-Wert von 10,3 liegen beide Ionen in gleicher Menge vor. Ab einem pH-Wert von 13 (Hydroxidkonzentration $> 0,1 \text{ mol/l}$) liegt praktisch nur Carbonat vor. Das Hydrogencarbonat ist instabil in diesem Bereich und reagiert sofort zu Carbonat /19/, /57/.

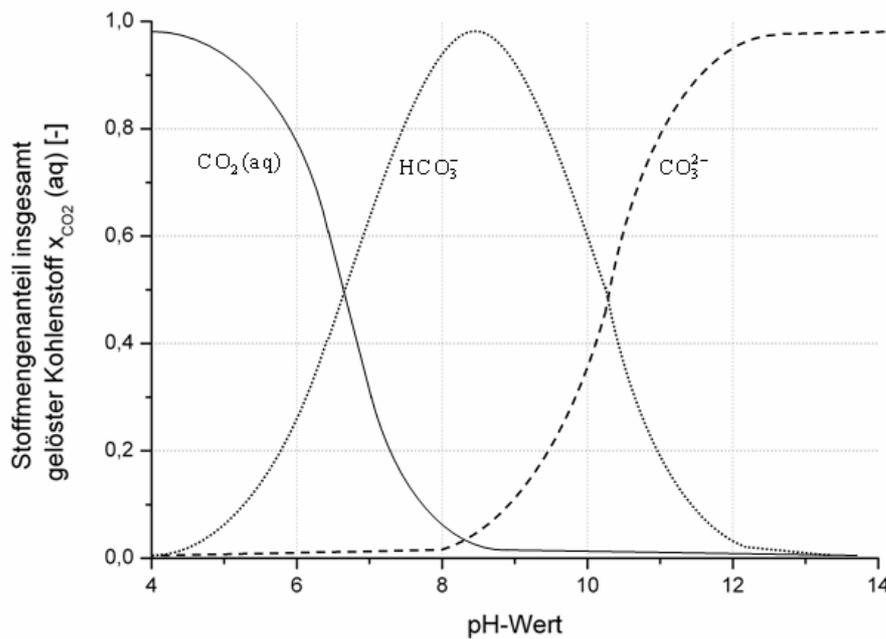


Bild 6.3 Abhängigkeit des Gleichgewichts vom pH-Wert nach Lucas und Krissmann /45/

Die Kinetik der Hinreaktion der Reaktion R1 ist zweiter Ordnung. Da im vorliegenden Stoffsystem das Hydroxidion im Überschuss vorhanden ist, kann die Konzentration während der Reaktion als konstant angenommen werden. Geht man des Weiteren von einer konstanten Temperatur in der Flüssigkeitsgrenzschicht aus, geht der kinetische Ansatz für die Geschwindigkeit der chemischen Reaktion zweiter Ordnung in eine Reaktion pseudo-erster Ordnung über und die Reaktionsgeschwindigkeit in der Grenzschicht ist allein eine Funktion der CO_2 -Konzentration, s. Gl. (6.1).

$$\dot{r} = k \cdot c_{\text{CO}_2} \quad (6.1)$$

Weimer /81/ hat in seinen Untersuchungen die Zulässigkeit dieser Annahmen für das vorliegende Reaktionssystem bestätigt.

Die Kinetik der Hinreaktion kann durch einen Ansatz von Pinsent et al. /57/, der von Astarita /2/ bestätigt wurde, beschrieben werden, s. Gl. (6.2).

$$\lg(k) = 13,635 - \frac{2895}{T} + 0,08I_x \quad (6.2)$$

$$I_x = \frac{1}{2} \sum z_i^2 x_i \quad (6.3)$$

Die Reaktionskinetik gilt für den Temperaturbereich von 0-110°C und $I_x < 0,05$. Die Ionenstärke I_x hat erst bei höher konzentrierten Lösungen einen signifikanten Einfluss.

Alternativ findet man in der Literatur den Ansatz von Pohorecki et al. /59/. Dieser berücksichtigt ebenfalls die Ionenstärke I_x und gilt für $T = 18^\circ\text{C} - 41^\circ\text{C}$ und $I_x < 0,5$.

$$\lg(k, OH^-) = 11,895 - \frac{2382}{T} + 0,221I_x - 0,016I_x^2 \quad (6.4)$$

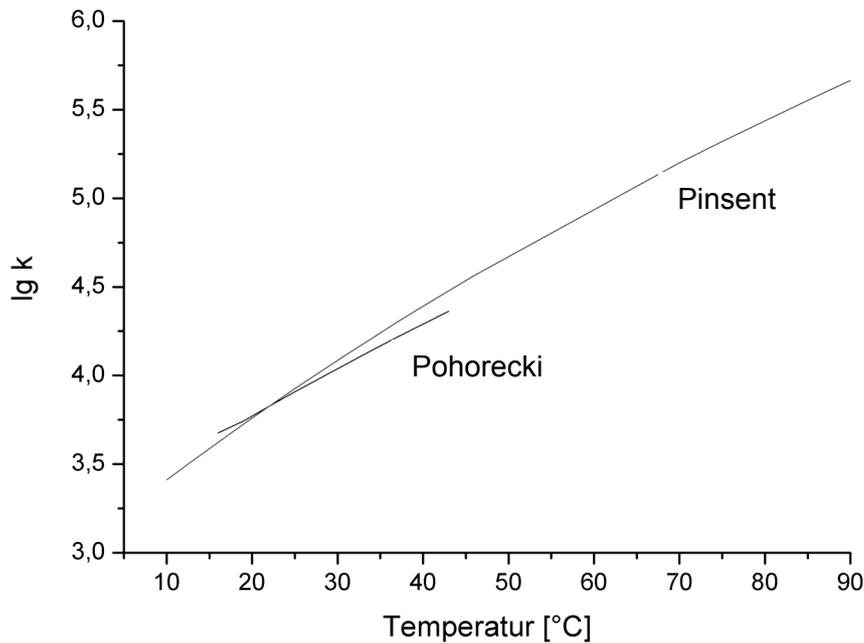


Bild 6.4 Reaktionskinetik

Die Berechnung der chemischen Absorption erfolgte nach dem Ansatz von Pohorecki /59/, da dieser für eine höhere Ionenstärke anwendbar ist.

Auf Grund der Lage des Gleichgewichtes (s. Bild 6.1) und der Reaktionskonstanten für die Hinreaktion (s. Bild 6.4) folgt, dass die Rückreaktion der elementaren Reaktion R1 vernachlässigt werden kann, wodurch sie mit einer irreversiblen Reaktion vergleichbar wird. Das vorliegende Stoffsystem lässt sich daher mit den zulässigen Vereinfachungen durch eine irreversible Reaktion pseudo-erster Ordnung beschreiben, so dass die Annahmen aus Kap. 4.1.4 gelten. Als nichtflüchtige Komponenten müssen daher nur das Hydroxidion OH^- und das Carbonation CO_3^{2-} betrachtet werden. Zur Berechnung des Gleichgewichtspartialdrucks muss das Gesamtphasengleichgewicht berücksichtigt werden. Mit dem Henry-Gesetz und dem chemischen Phasengleichgewicht ergibt sich für den Gleichgewichtspartialdruck des Kohlendioxides Gl. (6.5).

$$p_{CO_2} = \frac{H}{K_a} \cdot \frac{a_{CO_3} \cdot a_{H_2O}}{(a_{OH^-})^2} \quad (6.5)$$

Die Aktivität der Komponente Wasser wird eins gesetzt. Die Molalitat der Lösung in Reaktionsgleichung R1 berechnet sich nach Gl. (6.6).

$$c_{\text{tot}} = c_{\text{OH}^-} + 2c_{\text{CO}_3^{2-}} \quad (6.6)$$

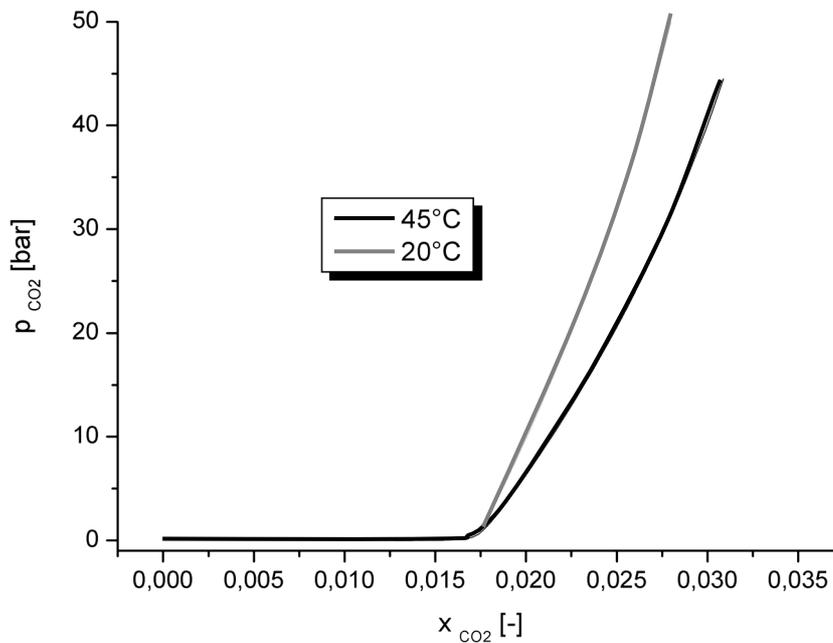


Bild 6.5 Partialdruck CO_2 über einer 1molaren NaOH -Lösung ($\text{pH } 14$)

Das absorbierte CO_2 (x_{CO_2}) in Bild 6.5 liegt für den betrachteten pH -Bereich ausschließlich als CO_3^{2-} vor. Die Konzentration des absorbierten Kohlendioxids ist nahezu unabhängig von seinem Partialdruck. Erst nach Erreichen der chemischen Absorptionskapazität wird das Waschmittel entsprechend der physikalischen Absorption beladen.

6.2 Ergebnisse Literaturansatz

Für die Berechnung der Pressung im Strahlwäscher nach dem Ansatz von Flügel /25/ muss der Wirkungsgrad (s. Gl. (6.8)) geschätzt werden, s. Kap. 3.2.1. Für die 6,8mm Düse mit einem Flüssigkeitsvolumenstrom von 3,5m³/h wurde die Pressung für einen Gasgeschwindigkeitsbereich von 1m/s-13m/s für die Wirkungsgrade $\eta=15\%$, 20% und 25% berechnet. In Bild 6.6 sind die berechneten Werte und die experimentellen Ergebnissen in einer normierten Darstellung (p/p_{\max}) gegenübergestellt.

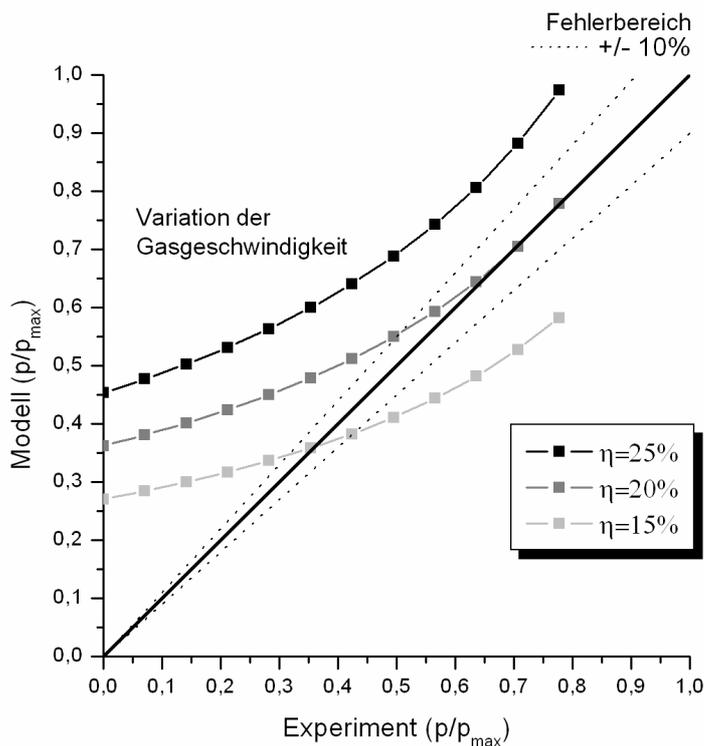


Bild 6.6 Vergleich Ansatz nach Flügel /25// experimentelle Ergebnisse

Die Ergebnisse zeigen, dass der Wirkungsgrad von der Gasgeschwindigkeit abhängt. Eine Beschreibung der Pressung nach dem Ansatz von Flügel /25/ mit einem geschätzten mittleren Wirkungsgrad liefert keine zufrieden stellenden Ergebnisse. Die Berechnung der Pressung nach Gl. (3.9) ist nur für eine definierte Höhe unter Kenntnis des entsprechenden Wirkungsgrades möglich.

6.3 Ergebnisse Eindimensionales Modell

Das Eindimensionale Modell ist ein eindimensionaler differentieller Ansatz zur Abschätzung der Pressung im Strahlwäscher. Grundlage ist der Ansatz von Schacht /66/, der die Pressung in Abhängigkeit vom Gasvolumenstrom für eine definierte Höhe beschreibt.

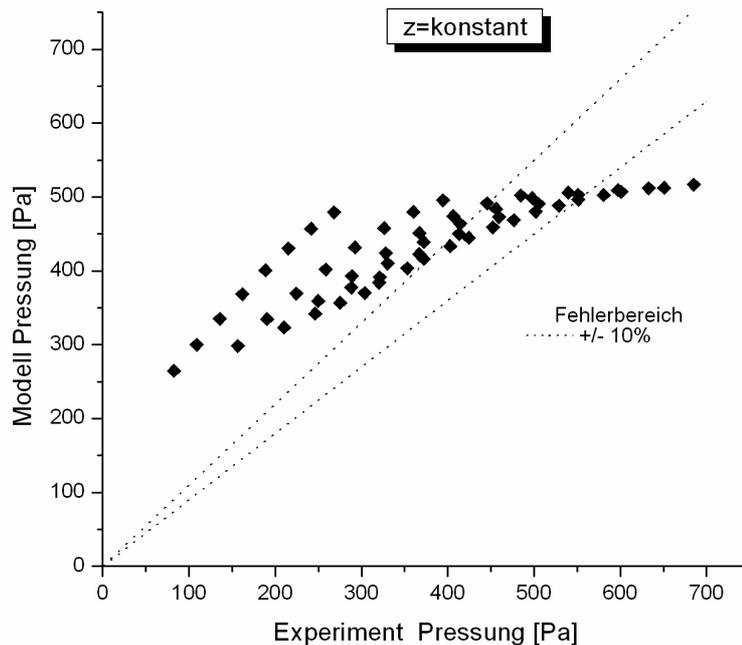


Bild 6.7 Vergleich Experiment / Modell mit konstanter Tropfendichte

Das Modell von Schacht /66/ mit der Annahme einer konstanten Tropfendichte ist für die Betrachtung der Pressung über der Höhe im Strahlwäscher nicht mehr zulässig. Über die gesamte Höhe des Strahlwäschers ($z = 0,46\text{m} - 2,00\text{m}$) liefert dieser Modellansatz unzureichende Ergebnisse, s. Bild 6.7.

Die Tropfendichte kann über die Höhe nicht als konstant angenommen werden. Entsprechend dem Sprühwinkel bildet sich ein Wandfilm aus. Das heißt, die Tropfendichte nimmt in axialer Richtung ab. Bei Gasgeschwindigkeiten von über 8-10 m/s kann auf Grund von Turbulenzen dieser wieder abgerissen werden. Durch die Wechselwirkung mit der Gasphase werden die Tropfen abgebremst, dies führt zu einer Erhöhung der Tropfendichte in axialer Richtung.

Für den eindimensionalen differentiellen Ansatz wurde die Tropfenanzahl durch Anpassung an die experimentellen Daten bestimmt. Mittels Regressionsanalyse wurde ein nichtlinearer Ansatz zur Beschreibung der Tropfenanzahl pro Volumen (φ) ermittelt, s. Gl.(6.7). Das Bestimmtheitsmaß der Regression beträgt 0,986.

$$\varphi = a_1 + a_2 \cdot \ln(z) + a_3 \cdot z \cdot v_g + a_4 \cdot v_g \quad (6.7)$$

für $z > 0$

mit den Konstanten:

$$a_1 = + 9,1709 \cdot 10^7$$

$$a_2 = + 9,0015 \cdot 10^7$$

$$a_3 = - 4,0917 \cdot 10^6$$

$$a_4 = + 5,3833 \cdot 10^6$$

Die Fehler für die Höhe $z=0,46\text{m}$, die einem Druck $p<100\text{Pa}$ entspricht, liegen deutlich über 10%, s. *Bild 6.8*. Im oberen Bereich des Strahlwäschers ($z<0,5\text{m}$) führt die Modellierung mit dem eindimensionalen Ansatz zu Fehlern, da der Strahl sich hier noch aufweitet und nicht gleichmäßig über den Querschnitt verteilt ist. Die Annahme eines konstanten Tropfendurchmesser führt in diesem Bereich ebenso zu Ungenauigkeiten, da das Tropfenspektrum für $z<0,4\text{m}$ nicht konstant ist, wie in Kap. 6.4 gezeigt.

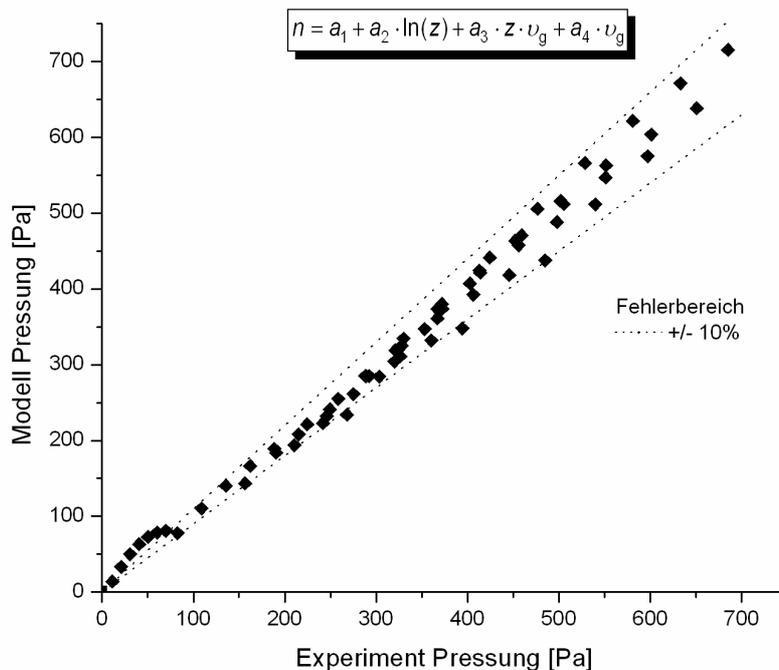


Bild 6.8 Vergleich Experiment/Modell mit angepasster Tropfenzahl

Bild 6.9 zeigt die experimentellen Ergebnisse der Pressung und die Ergebnisse der Modellierung mit dem eindimensionalen differentiellen Ansatz. Es ist die Pressung über der Gasgeschwindigkeit für acht verschiedene Höhen z dargestellt. Durch die Anpassung der Tropfenzahl konnte mit der verwendeten Korrelation (s. Gl. (6.7)) eine gute Übereinstimmung zwischen Modell und experimentellen Werten erreicht werden [44]. Die Pressung in Abhängigkeit vom Gasvolumenstrom verhält sich nahezu linear. Mit zunehmender Strahlwäscherlänge sinkt die Zunahme des Druckgewinns. Dies folgt aus der Abnahme der Geschwindigkeitsdifferenz zwischen Tropfen und Gas mit der Höhe und damit dem treibenden Gefälle zwischen den beiden Phasen. Des Weiteren nimmt die Anzahl der Tropfen durch die Ausbildung des Wandfilmes ab.

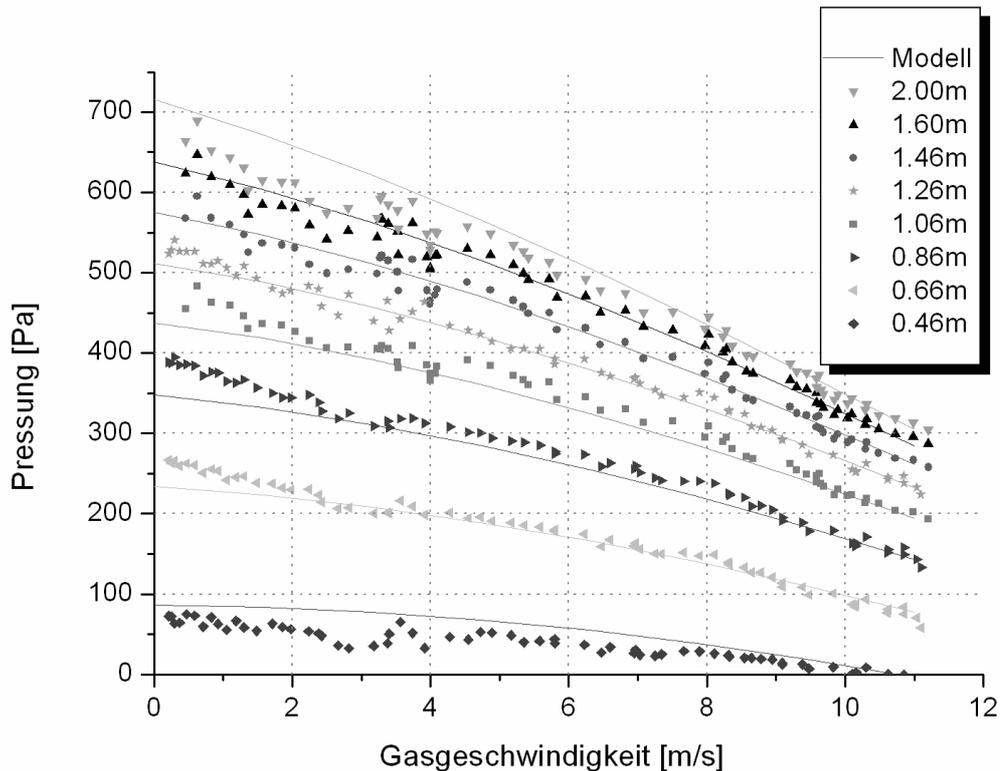


Bild 6.9 *Pressung in Abhängigkeit von der Gasgeschwindigkeit und der Länge (z) bezogen auf den Ansaugdruck*

Das eindimensionale differentielle Modell ermöglicht, wie schon in /66/ gezeigt, eine einfache Abschätzung des hydrodynamischen Verhaltens von Strahlwäschern. Die Einführung der Tropfenzahl als abhängige Variable von der Höhe und der Gasgeschwindigkeit bildet eine sinnvolle Erweiterung. Die Pressung lässt sich so auch in Abhängigkeit von der Höhe beschreiben. Die Parameter des Korrelationsansatzes müssen allerdings experimentell bestimmt werden. Da sich erst stabile Verhältnisse im Strahlwäscher einstellen müssen, kann das Modell nicht für den düsen nahen Bereich angewendet werden und gilt deshalb im untersuchten Strahlwäscher ab einer Höhe z von $0,5\text{m}$ ($\leq L/4$).

6.4 Tropfenspektrum

Die Anzahl der Tropfen und ihre Größe bestimmen die im Strahlwäscher zur Verfügung stehende Stoffaustauschfläche und die Schleppwirkung auf das Gas. Die Tropfengröße ist somit ein wesentlicher Parameter für die chemische Absorption als auch für die Hydrodynamik im Strahlwäscher.

Die Untersuchungen der Düsen am Technikumsquench haben gezeigt, dass die am Strahlwäscher eingesetzten Düsen Tropfen mit einem Durchmesser von bis zu $1000\mu\text{m}$ versprühen. Der Bereich wurde in 40 äquidistante Tropfenklassen von $25\mu\text{m}$ - $1000\mu\text{m}$ diskretisiert.

Bild 6.10 zeigt die Tropfengrößenverteilung der 6,8mm Düse über den Querschnitt entsprechend der Versuchsbedingungen Kap.5.3.7. Dralldruckdüsen können durch Ihre Geometrie und den Strömungsverhältnisse im Gas eine spezifische Verteilung bestimmter Tropfengrößen über den Querschnitt erzeugen /56/. So können große Tropfen durch ihren hohen Impuls und der Drallerzeugung in der Düse verstärkt in den äußeren Bereich eines Sprühstrahls getragen werden. In dem untersuchten radialen Profil sind das die Bereiche -30 und 30 auf der x und y Achse. Ein solcher Effekt kann bei der hier eingesetzten Düse nicht festgestellt werden. Es ist keine spezifische Verteilung bestimmter Tropfengrößen über den Querschnitt zu erkennen. Die Bereiche -30 und 30 auf der x und y Achse befinden sich bei einer Höhe von $z=0,19\text{m}$ am Rand des Strahles. Da der Strahl nicht absolut mittig ist, wurde an der Position $y=30$ bereits außerhalb des Strahles gemessen. Dieser Bereich in unmittelbarer Nähe des Strahles ist durch einen höheren Anteil kleiner Tropfen und eine sehr geringen Tropfenrate gekennzeichnet (Nebelgebiet).

Die einheitliche Tropfengrößenverteilung über den Querschnitt konnte auch für geringere Flüssigkeitsvolumenströme und für die 10mm Düse festgestellt werden.

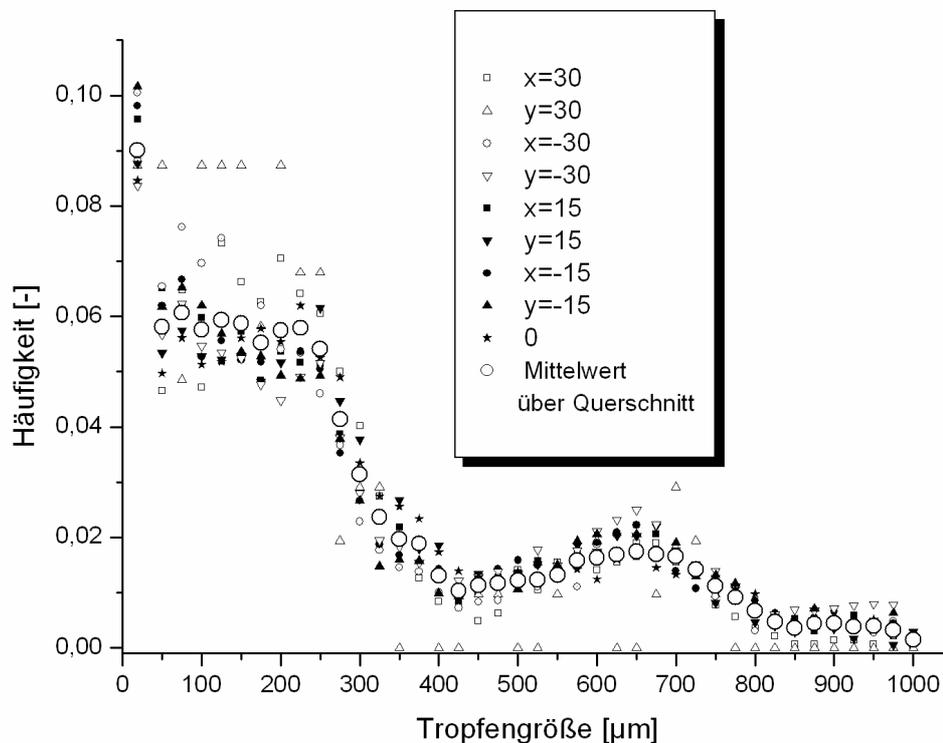


Bild 6.10 Tropfenverteilung über den Querschnitt der 6,8mm Düse bei $z=0,19\text{m}$

In Bild 6.11 und

Bild 6.12 sind die axialen Profile der Tropfenverteilung der 6,8mm und der 10mm Düse mit ihren maximalen Flüssigkeitsvolumenströmen ($3,5\text{m}^3/\text{h}$ und $7,2\text{m}^3/\text{h}$) dargestellt. Die Tropfenspektren für die Höhen z stellen jeweils die Mittelwerte über den Querschnitt auf dieser Höhe dar. Die verwendeten Düsen haben die gleiche Düsengeometrie. Sie unterscheiden sich nur durch die Größe der Düsenaustrittsöffnung und erzeugen daher eine ähnliche Tropfenverteilung.

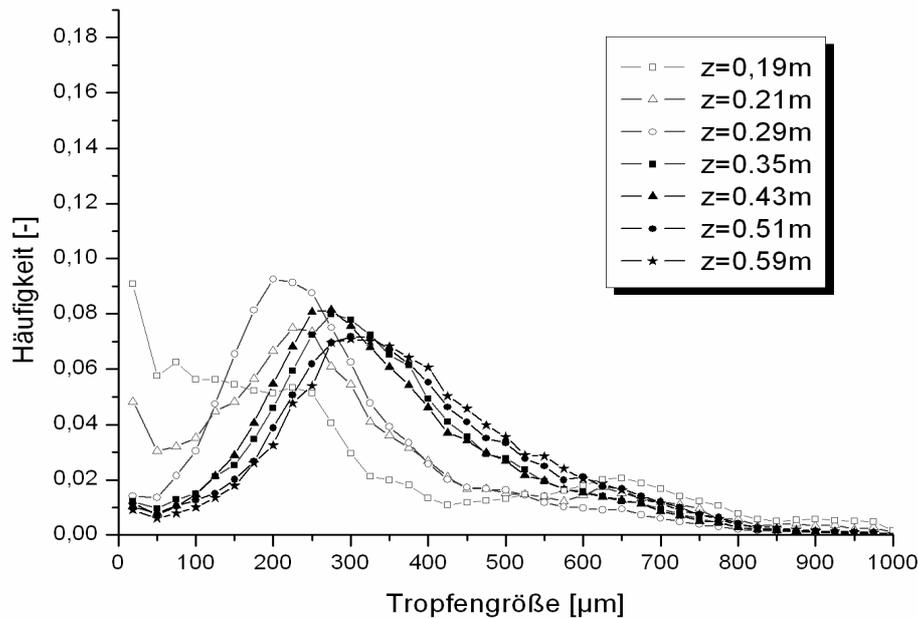


Bild 6.11 Axiales Profil Tropfenverteilung 6,8mm Düse bei $\dot{V}_l = 3,5\text{m}^3/\text{h}$

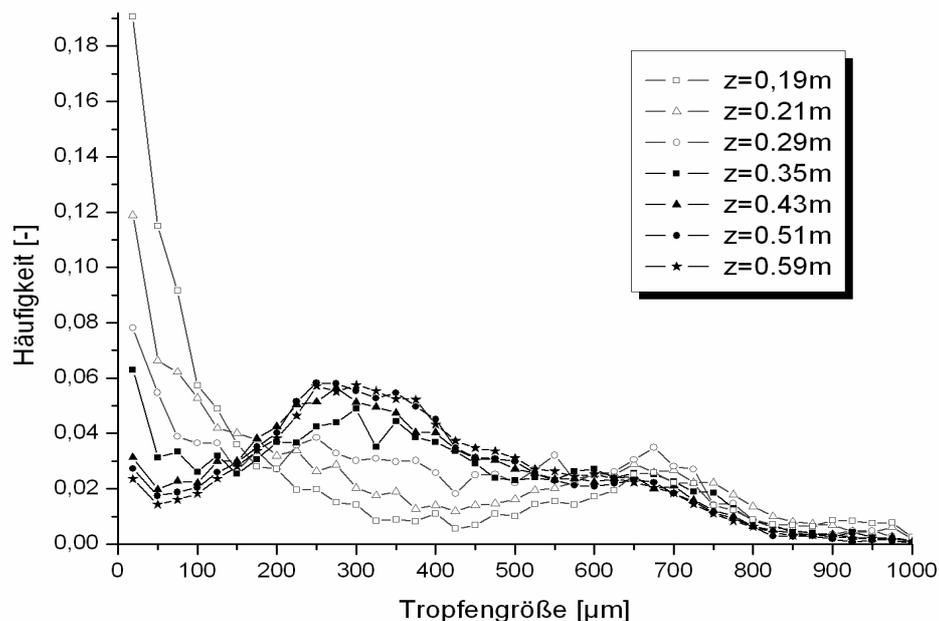


Bild 6.12 Axiales Profil Tropfenverteilung 10mm Düse bei $\dot{V}_l = 7,1\text{m}^3/\text{h}$

Die axialen Profile der Tropfenverteilung der 6,8mm Düse (s. *Bild 6.11*) und der 10mm Düse (s.

Bild 6.12) zeigen eine Abnahme der kleinen Tropfengrößen ($<100\mu\text{m}$) mit der Höhe z . Im düsennahen Bereich ist die Tropfendichte sehr hoch. Außerdem sind hier turbulente Gasströmungen zu erwarten, da im düsennahen Bereich die höchste Differenzgeschwindigkeit zwischen Tropfen und Gas herrscht. Hier kommt es zur Koaleszenz der kleinen Tropfen. Mit zunehmender Höhe z weitet sich der Strahl auf, so dass die Tropfendichte abnimmt. Die Gasströmung stabilisiert sich. Ab einer Höhe von $z=0,43$ (z verändert sich das Tropfenspektrum nicht mehr signifikant. Für die folgenden Simulationen wurde das Tropfenspektrum bei $z=0,59$ verwendet. Es kann davon ausgegangen werden, dass es nur noch vereinzelt zur Koaleszenz von Tropfen kommt. Daher kann in guter Näherung die Koaleszenz bei der Modellierung des Strahlwäschers mit der numerischen Simulation vernachlässigt werden. Beide Düsen haben bei $z=0,59$ den höchsten Tropfenanteil um Bereich $250\mu\text{m}$ - $400\mu\text{m}$. Das Maximum ist bei der 10mm Düse schwächer ausgeprägt. Die 10 mm Düse hat dafür einen höheren Anteil bei der Tropfengröße $<50\mu\text{m}$ und zwischen $550\mu\text{m}$ und $700\mu\text{m}$.

Sollen alle 40 Tropfenklassen im rigorosen Modell berücksichtigt werden, müssen die Gleichungssysteme für alle Tropfenklassen gelöst werden. Dies führt zu sehr langen Rechenzeiten und Konvergenzproblemen. Um den Rechenaufwand in Grenzen zu halten und trotzdem noch eine Tropfengrößenverteilung im Modell zu berücksichtigen, wurden die Tropfenklassen für die Modellierung in zehn äquidistante Tropfenklassen zusammengefasst.

Um den Einfluss von Parametern, wie zum Beispiel dem Sprühwinkel, zu untersuchen, wurde der Sauterdurchmesser für die Berechnung verwendet. Für die Hauptuntersuchungsgrößen, die Pressung und die chemische Absorption, wurden Simulationen sowohl mit monodispersen Tropfen, dem Sauterdurchmesser, als auch mit polydispersen Tropfen, dem Tropfenspektrum, durchgeführt.

In *Bild 6.13* sind der Sauterdurchmesser und der mittlere arithmetische Durchmesser der axialen Tropfengrößenverteilungsprofile für die 6,8mm Düse (*Bild 6.11*) und die 10mm Düse (*Bild 6.12*) dargestellt. Der Sauterdurchmesser wird vor allem durch große Tropfen geprägt, s. Gl. (3.3). Die Tropfen mit einem Durchmesser zwischen $550\mu\text{m}$ und $700\mu\text{m}$ nehmen bei der 10mm Düse mit zunehmender Höhe z leicht ab. Hier kann es aufgrund der hohen Tropfengeschwindigkeiten zum Zerreißen von Tropfen kommen. Dies erklärt die leichte Abnahme des Sauterdurchmessers bei der 10mm Düse, s. *Bild 6.13*. Die kritische We-Zahl von 10 wird nur unter diesen Bedingungen erreicht, so dass das Zerreißen von Tropfen im rigorosen Modell vernachlässigt werden kann.

Bei der 6,8mm Düse tritt im Wesentlichen nur die erwähnte Koaleszenz der kleinen Tropfen auf. Es kommt daher zu einer Abnahme der Tropfen $<100\mu\text{m}$ und einer Zunahme der Tropfen mit einem Durchmesser zwischen $250\mu\text{m}$ und $400\mu\text{m}$ mit der Höhe z . Dies beeinflusst den Sauterdurchmesser nicht wesentlich. Der mittlere arithmetische Durchmesser wird von großen Tropfen nicht überproportional beeinflusst, er ist daher nahezu konstant.

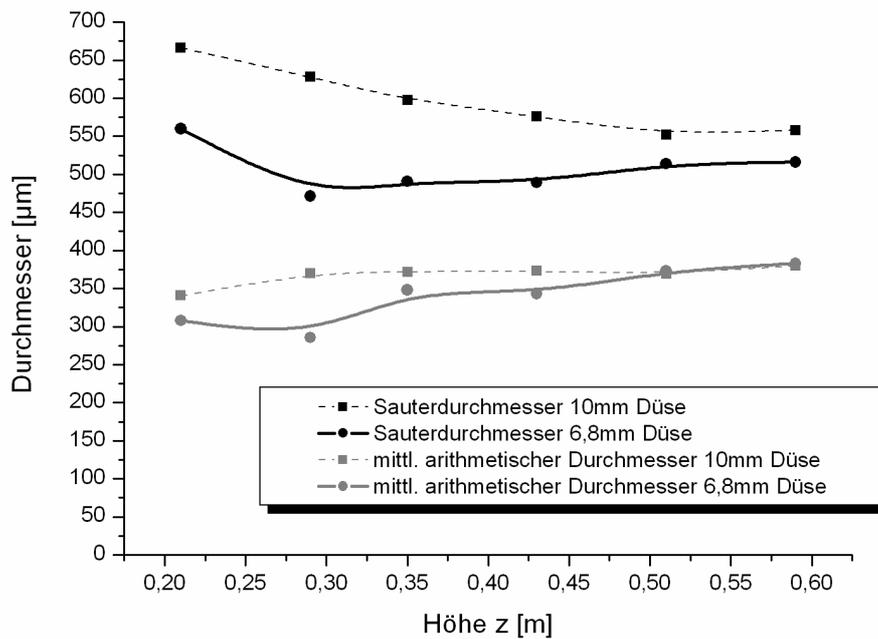


Bild 6.13 Mittlere Durchmesser in Abhängigkeit von der Höhe z für $V_1=3,5\text{m}^3/\text{h}$ (6,8mmDüse) und $V_1=7,2\text{m}^3/\text{h}$ (10mmDüse)

In Bild 6.14 ist die mittlere Tropfenverteilung über den Querschnitt für verschiedene Flüssigkeitsvolumenströme der 6,8mm Düse dargestellt. Der prinzipielle Verlauf des Tropfenspektrums (s. Bild 6.10) findet sich auch bei geringen Flüssigkeitsvolumenströmen. Jedoch verschiebt sich das Tropfenspektrum in Richtung größerer Tropfen mit abnehmendem Flüssigkeitsvolumenstrom. Das Plateau im Bereich $50\mu\text{m}$ - $300\mu\text{m}$ nimmt zugunsten einer Zunahme des Tropfenanteils im Bereich $650\mu\text{m}$ ab. Durch einen hohen Flüssigkeitsvolumenstrom wird die nötige Energie für die Erzeugung kleiner Tropfen zur Verfügung gestellt, s. Kap. 3.1. Der Abweichung im Bereich der sehr kleinen Tropfen $<50\mu\text{m}$ ist keine Bedeutung beizumessen, da die Messung bei $z=0,19\text{m}$ durchgeführt wurde und es im weiteren Verlauf des Strahlwäschers zur Koaleszenz der Tropfen $<50\mu\text{m}$ kommt.

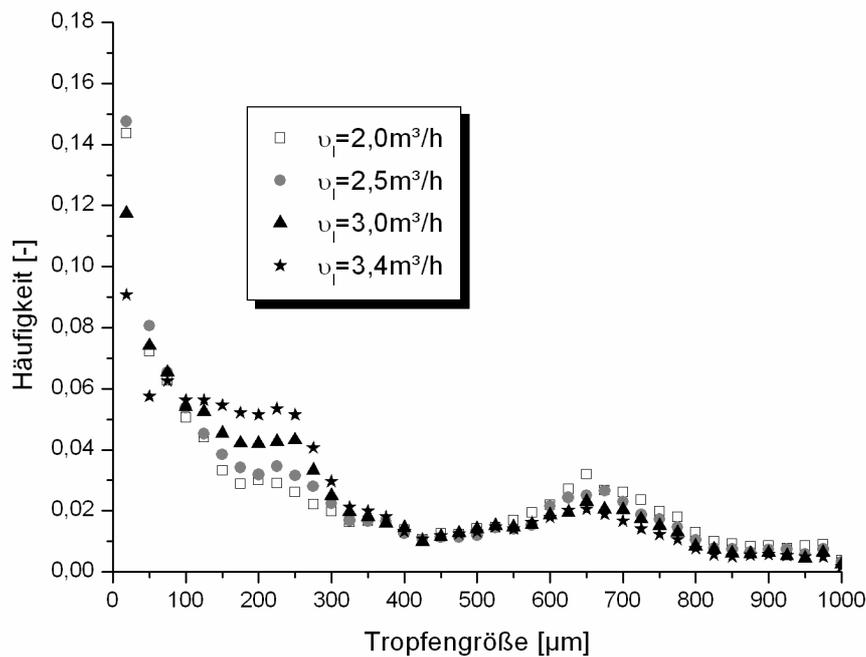


Bild 6.14 Tropfenspektrum in Abhängigkeit vom Flüssigkeitsvolumenstrom bei $z=0,19\text{m}$

Untersuchungen von Güsewell /30/ mit einer ähnlichen Düse an der gleichen Versuchsanlage lassen keine signifikante Abhängigkeit des Tropfendurchmessers vom Gasvolumenstrom erkennen.

6.5 Ergebnisse der rigorosen Simulation des Sprühwäschers

Mit der rigorosen Simulation sollen die Strömungsverhältnisse dreidimensional erfasst und die chemische Absorption im Strahlwäscher berechnet werden. Die Abhängigkeit von den Einflussgrößen soll durch Sensitivitätsrechnungen untersucht werden. Gasgeschwindigkeit, der Flüssigkeitsvolumenstrom und der Sprühwinkel sind beeinflussbare Parameter. Die Tropfengeschwindigkeit, die Wandabscheidung der Tropfen, der Absorptionsgrad und die Presung sind abhängige Parameter.

6.5.1 Tropfeninjektionsmodell

Das Tropfeninjektionsmodell soll die Verteilung der Tropfenstrominjektionen über die Düsenaustrittsfläche im Simulationsmodell beschreiben. Die Verteilung kann durch eine Gaußverteilung beschrieben werden, s. Kap. 3.5.1. Einen Anhaltswert für die Wahl der Parameter der Gaußgleichung (Gl. (3.50)) liefert das Standard-Vollkegelmodell von Fluent /24/. Die Verteilung des Fluent Modells kann mit den Parametern $\sigma=0,6$ und $A=0,4$ beschrieben werden. Für die Bestimmung der Injektionsverteilung der verwendeten Düse wurden die Parame-

ter σ und A der Gaußverteilung entsprechend *Bild 6.15* variiert und mit experimentellen Werten validiert. Die jeweilige Tropfenstromverteilung über den Querschnitt wurde mit dem rigorosem Modell für die Höhe $z=0,59\text{m}$ berechnet. Mit der Phasen-Doppler-Anemometrie konnte die Häufigkeitsverteilung für die gleiche Höhe experimentell bestimmt werden, s. Kap. 5.3.7.

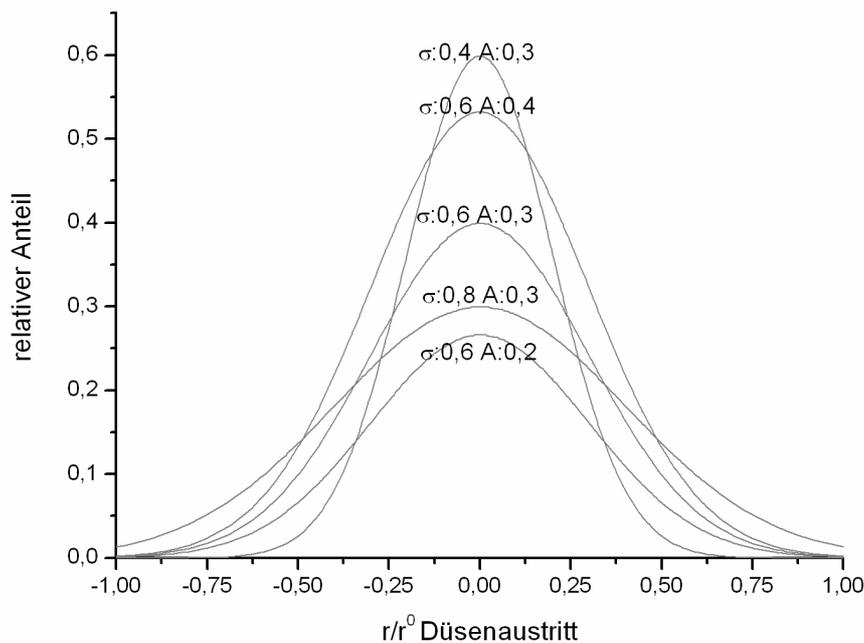


Bild 6.15 Parameterstudie der Gaußverteilung für die Tropfenstrominjektion

Es hat sich gezeigt, dass eine Injektionsverteilung mit den Gaußparametern $\sigma=0,6$ und $A=0,3$ die experimentellen Werte am besten beschreibt. Die Verteilung der Tropfeninjektionen über den normierten Querschnitt der Düsenaustrittsfläche ist in *Bild 6.16* dargestellt.

Die Anpassung mit den experimentellen Werten stellt eine Näherung dar, da diese nur an neun Stellen über den Querschnitt bestimmt worden sind, s. *Bild 5.5*. Beide Düsen erzeugen eine ähnliche Verteilung, so dass das gleiche Injektionsmodell verwendet worden ist.

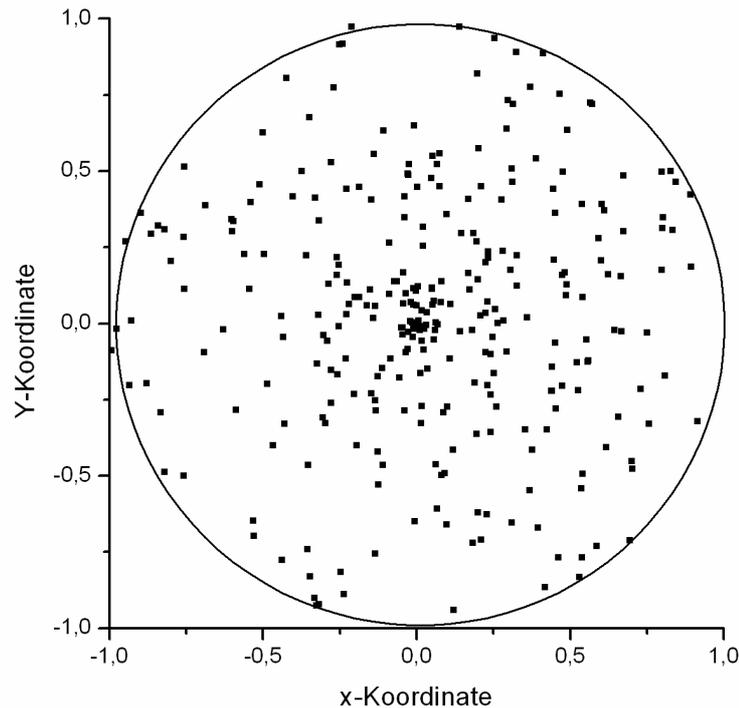


Bild 6.16 Verteilung der Tropfeninjektionen über die Düsenaustrittsfläche $\sigma=0,6$ $A=0,3$

6.5.2 Tropfengeschwindigkeit

Die Pressung im Strahlwäscher hängt direkt von der Tropfengeschwindigkeit ab. Die Geschwindigkeit ergibt sich aus dem Impuls der Tropfen und der Wechselwirkung mit der Gasphase. Es wurde daher die Tropfengeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Tropfengröße für verschiedene Höhen z und zwei Gasgeschwindigkeiten untersucht. In der hier untersuchten 6,8mm Düse mit einem maximalen Flüssigkeitsvolumenstrom von $3,5\text{m}^3/\text{h}$ beträgt die maximale Austrittsgeschwindigkeit aus der Düse 26m/s . Die Tropfen werden durch die Wechselwirkung mit der Gasphase abgebremst. Die Tropfengeschwindigkeit nimmt daher mit der Höhe z ab. Kleine Tropfen werden auf Grund ihres geringen Impulses stärker abgebremst. Bei einer Gasgeschwindigkeit von 11m/s (s. Bild 6.17) wird die kleinste Tropfenklasse ($<50\mu\text{m}$) schon auf dem ersten Meter auf 16m/s abgebremst. Die größte Tropfenklasse wird am Strahlwäscheraustritt $z=2,0\text{m}$ nur auf eine Tropfengeschwindigkeit von $23,5\text{m/s}$ abgebremst.

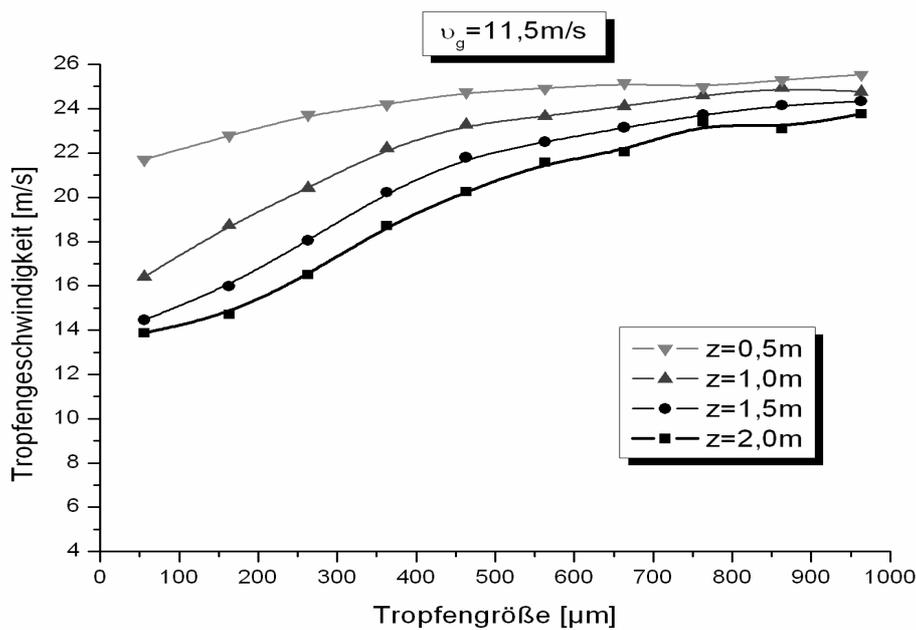


Bild 6.17 Tropfengeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Tropfengröße bei einer Gasgeschwindigkeit von 11 m/s ($6,8 \text{ mm}$ Düse)

Bei einer Gasgeschwindigkeit von $3,5 \text{ m/s}$ ist dieser Effekt noch ausgeprägter, s. Bild 6.18. Die größte Tropfenklasse hat am Strahlwäscheraustritt eine Geschwindigkeit von 20 m/s , die kleinste Tropfenklasse nur noch von 6 m/s . Im oberen Drittel des Strahlwäschers ist die Abbremsung auf Grund des hohen Geschwindigkeitsgradienten am größten.

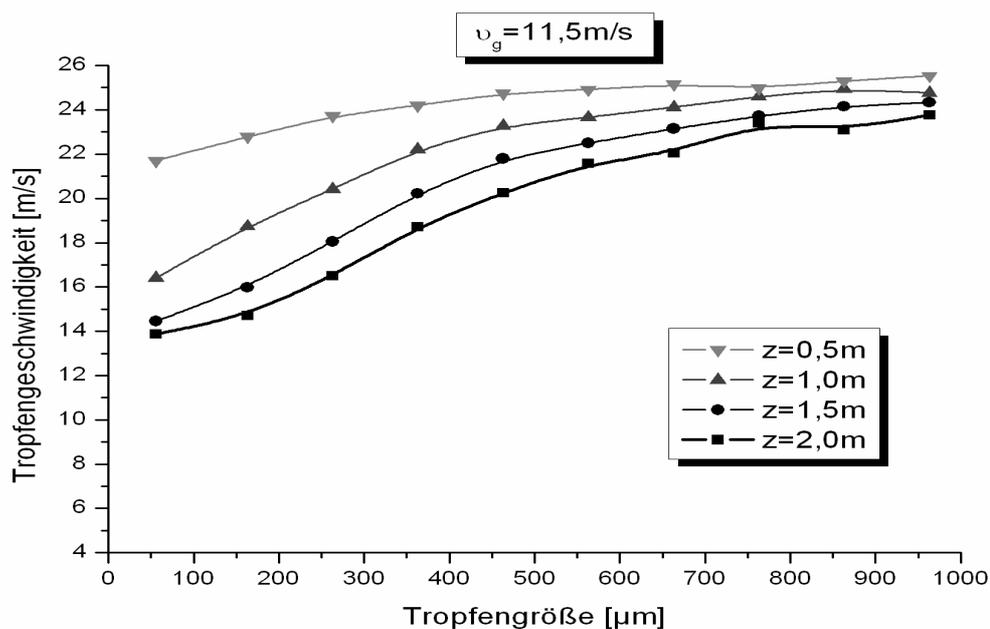


Bild 6.18 Tropfengeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Tropfengröße bei einer Gasgeschwindigkeit von $3,5 \text{ m/s}$ ($6,8 \text{ mm}$ Düse)

Im rigorosen Modell wird die Gasgeschwindigkeit über einen Drucksprung im Gasaustritt eingestellt. Dadurch kann es zu Verwirbelungen der kleinsten Tropfenklassen ($50\mu\text{m}$) am Strahlwäscheraustritt kommen. Dies erklärt die höhere Tropfengeschwindigkeit der $50\mu\text{m}$ Tropfen gegenüber $100\mu\text{m}$ Tropfen.

6.5.3 Einfluss der Wandabscheidung

Die Wandabscheidung wird durch den Sprühwinkel, die Geschwindigkeit aller Tropfen und deren Wechselwirkung mit der Gasphase bestimmt. Die Berechnung der Wandabscheidung mit dem rigorosen Modell erfolgt mit polydispersen Tropfen, da eine Abhängigkeit vom Impuls der Tropfen zu erwarten ist.

Die Wandabscheidung der einzelnen Tropfenklassen in Abhängigkeit von der Höhe ist exemplarisch für die $6,8\text{mm}$ Düse mit $\dot{V}_l=3,5\text{m}^3/\text{h}$ und $v_g=11,2\text{ m/s}$ in *Bild 6.19* dargestellt. Die relative Wandabscheidung ergibt sich aus dem Massenstrom der abgeschiedenen Tropfen einer Klasse dividiert durch den Gesamtmassenstrom dieser Tropfenklasse. Tropfen mit einem Durchmesser größer als $463\mu\text{m}$ werden aufgrund ihrer Masse weniger von der Gasströmung beeinflusst und treffen daher entsprechend ihres Sprühwinkels, der sich aus der Düsengeometrie ergibt, auf die Wand. Bei den Tropfen $>463\mu\text{m}$ ist keine Abhängigkeit der Wandabscheidung von der Tropfengröße zu erkennen. Diese Klassen können daher zusammengefasst werden. Die kleinen Tropfen haben einen geringen Impuls und werden von der Gasströmung beeinflusst (s. *Bild 6.20 a-d*)

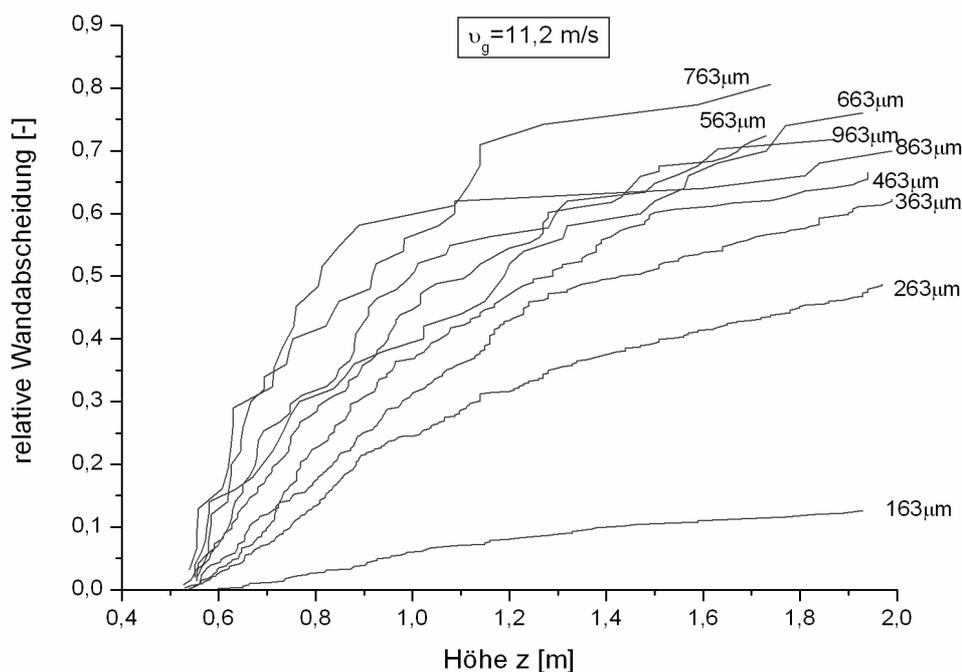


Bild 6.19 Relative Wandabscheidung aller Tropfenklassen in Abhängigkeit von der Höhe ($6,8\text{mm}$ Düse)

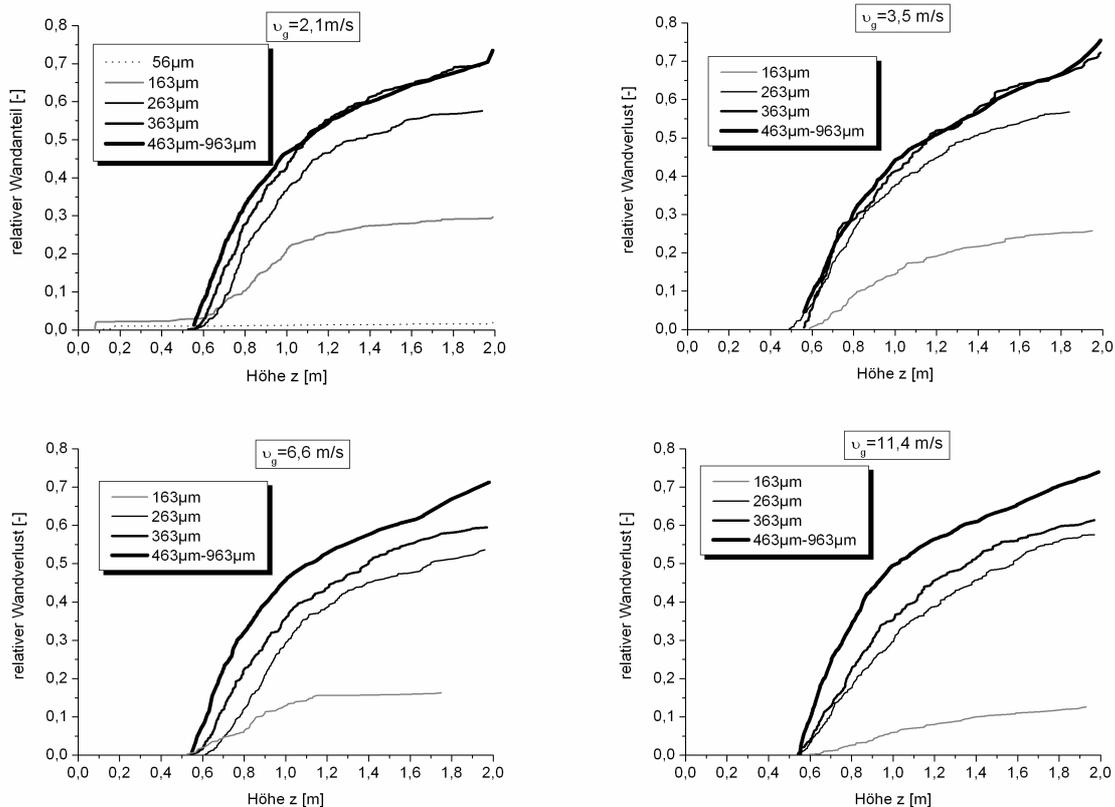


Bild 6.20a-d Relative Wandabscheidung der Tropfenklassen $<463\mu\text{m}$ in Abhängigkeit von der Höhe und der Gasgeschwindigkeit (6,8mm Düse und $\dot{V}_l = 3,5 \text{ m}^3/\text{h}$)

Der erste Wandkontakt der Tropfen erfolgt unabhängig von der Gasgeschwindigkeit und der Tropfengröße bei einer Höhe von $z = 0,55 \text{ m}$. Diese ergibt sich aus dem Sprühwinkel von 16° . Für den weiteren Strahlwäscherlauf ist eine Abhängigkeit der relativen Wandabscheidung von der Tropfengröße und der Gasgeschwindigkeit zu erkennen. Bei hohen Gasgeschwindigkeiten werden die Tropfenklassen $<463\mu\text{m}$ von der Gasströmung mitgerissen. Die relative Wandabscheidung nimmt daher mit zunehmender Gasgeschwindigkeit ab. Dieser Effekt ist bei der kleinen Tropfenklasse (163 μm) am ausgeprägtesten. Werden bei einer Gasgeschwindigkeit von 2,1 m/s (Bild 6.20a) noch 30% dieser Tropfenklasse an der Wand abgeschieden, so treffen bei 11,4 m/s nur 10% auf die Wand. Diese Abhängigkeit der Wandabscheidung von der Gasgeschwindigkeit gilt auch für die Tropfenklassen 263 μm und 363 μm , jedoch werden hier deutlich mehr Tropfen abgeschieden. Die kleinste Tropfenklasse (56 μm) wird aufgrund ihres sehr geringen Impulses auf die Gasgeschwindigkeit abgebremst und dann mit dem Gas transportiert. Die Tropfen treffen daher gar nicht auf die Wand. Bei sehr geringen Gasgeschwindigkeiten (2,1 m/s Bild 6.20a) kommt es zu einer Verwirbelung dieser Tropfenklasse am Düsenaustritt. Durch die Verwirbelung treffen die kleinen Tropfen (56 μm) vor dem durch die

Düse aufgeprägten Sprühwinkel auf die Wand. Nach der Vergleichmäßigung der Gasströmung werden die $56\mu\text{m}$ Tropfen mit der Gasphase entlang der Hauptströmung transportiert und nicht mehr an der Wand abgeschieden, s. *Bild 6.20a*.

Für die Wandabscheidung von Tropfen in einem Sprühwäscher geht man oftmals von einer linearen Abscheidung über der Höhe aus [21]. Insbesondere im Strahlwäscher ist diese Annahme nicht zulässig, wie die Ergebnisse der numerischen Simulation zeigen.

6.5.4 Einfluss der Tropfen-Wand-Interaktion

Tropfen, die auf die Wand treffen, können bei einem entsprechend hohem Impuls in sekundäre Tropfen zerfallen, s. Kap. 4.4. Mit Hilfe des rigorosen Modells soll untersucht werden, ob es unter den vorliegenden Bedingungen zur Destruktion von Tropfen an der Strahlwäscherwand kommt. Die Simulation wurde mit polydispersen Tropfen durchgeführt. Die Auswertung erfolgt mit den dimensionslosen Kennzahlen (Oh-Zahl und Re_{imp} -Zahl) und der Klassifizierungsfunktion, s. Kap 4.4. In *Bild 6.21* ist die Tropfen-Wand-Interaktion für verschiedene Flüssigkeitsvolumenströme der 6,8mm Düse dargestellt. Am Gasaustritt wurde im Modell kein Druckverlust vorgegeben, das heißt, es liegt der maximale Gasvolumenstrom beim jeweiligen Flüssigkeitsvolumenstrom vor. Beim maximalen Flüssigkeitsvolumenstrom ($3,5\text{m}^3/\text{h}$) ist der Impuls der Tropfen so hoch, dass es vereinzelt zur Destruktion der Tropfen kommt. Der Anteil dieser Tropfenströme ist jedoch mit 0,5% der Gasamttröpfenströme sehr gering.

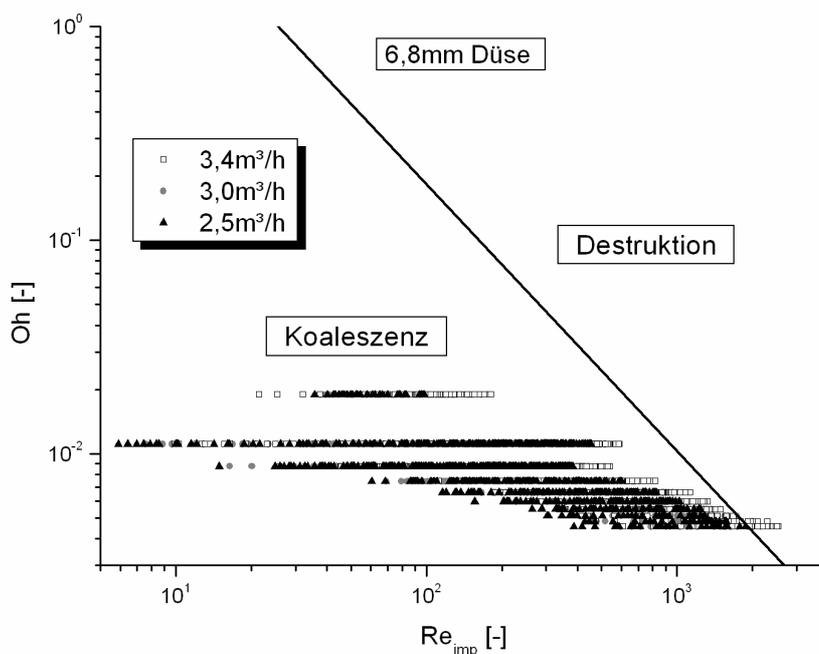


Bild 6.21 Abgrenzung zwischen Koaleszenz und Destruktion für verschiedene Flüssigkeitsvolumenströme (6,8mm Düse)

In *Bild 6.22* ist die Abhängigkeit der Tropfen-Wand-Interaktion vom Gasvolumenstrom für den maximalen Flüssigkeitsvolumenstrom der 10mm Düse dargestellt. Bei großen Tropfendurchmessern (kleine Oh-Zahl) ist der Impuls der Tropfen so hoch, dass die Tropfen von der Gasphase kaum abgebremst werden und folglich die Gasgeschwindigkeit nur einen geringen Einfluss hat. Vereinzelt tritt daher für jede der drei Gasgeschwindigkeiten auf. Bei kleinen Tropfen (große Oh-Zahl) ist der Einfluss der Gasphase größer, so dass es bei der hohen Gasgeschwindigkeit zu deutlich höheren Impulsreynoldszahlen (s. Gl. (4.72) S. 57) jedoch nicht zur Destruktion kommt.

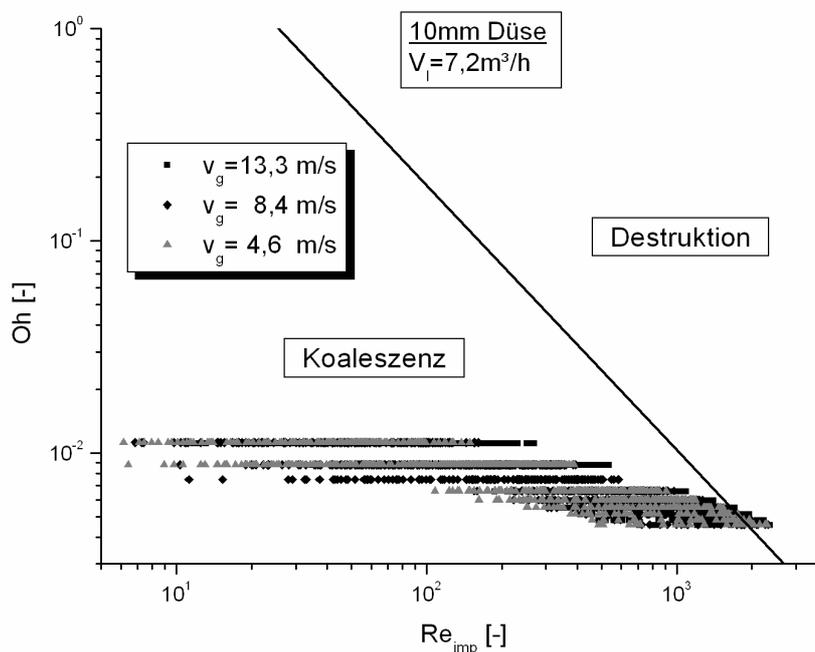


Bild 6.22 Abgrenzung zwischen Koaleszenz und Destruktion für verschiedene Gasgeschwindigkeiten (10mm Düse)

Die Stoffeigenschaften der Flüssigkeit haben einen Einfluss auf Oh-Zahl und Re_{imp}-Zahl, die die Tropfen-Wand-Interaktion beschreiben. In *Bild 6.23* ist der Vergleich zwischen reinem Wasser und einer einmolaren Natronlauge bei 20°C dargestellt. Entsprechend Gl. (4.75) erhöht sich die Oh-Zahl mit der Viskosität. Die Re_{imp}-Zahl sinkt dagegen mit steigender Viskosität, s. Gl. (4.72). Der relative Anteil der Tropfenströme, bei denen Destruktion auftritt, ist für reines Wasser und die einmolare Natronlauge nahezu gleich.

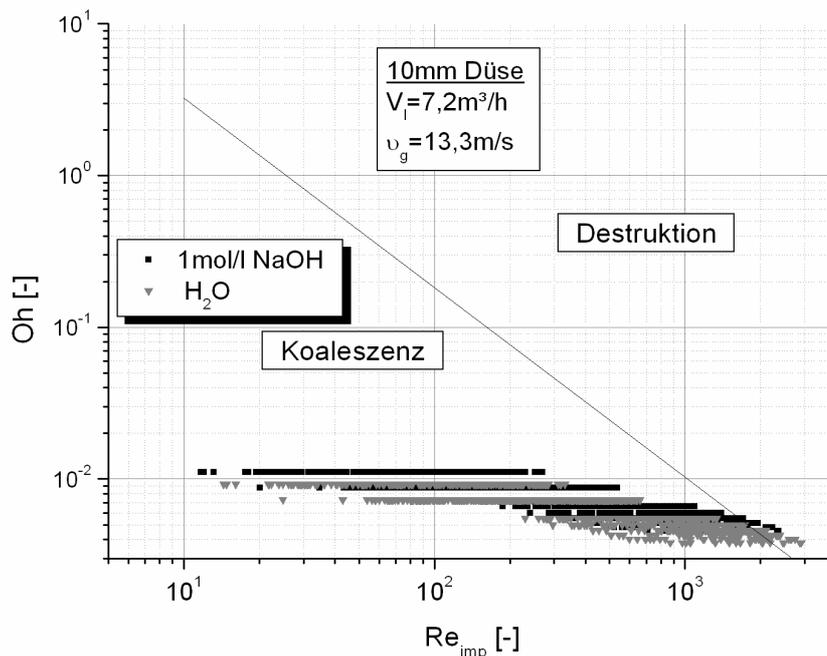


Bild 6.23 Abgrenzung zwischen Koaleszenz und Destruktion für Wasser und eine 1molare Natronlauge (10mm Düse)

Es ist zu erwarten, dass durch die aerodynamischen Kräfte der Gasströmung der Zerfall der Lamelle beim Auftreffen von Tropfen auf den Wandfilm und damit die Ausbildung von Sekundärtropfen zusätzlich unterstützt wird. Dieser Effekt ist jedoch noch nicht untersucht worden /64/.

Da es auch unter ungünstigen Betriebsbedingungen nur in geringem Maße zur Destruktion kommt, kann diese vernachlässigt werden. Die Injektion von sekundären Tropfen würde die Komplexität der Rechnung aufgrund der zusätzlichen Tropfenströme deutlich erhöhen.

6.5.5 Hydrodynamik

Die Pressung ist die charakteristische Größe zur Beschreibung der Hydrodynamik im Strahlwäscher. Mit dem rigorosen Modell wurde die Pressung in Abhängigkeit vom Gasvolumenstrom für verschiedene Höhen z und Flüssigkeitsvolumenströme für beide Düsentypen berechnet. Um den tatsächlichen Druckgewinn zu bestimmen, wird der Druck entlang der Höhe z auf den Ansaugdruck am Strahlwäschereintritt und nicht auf dem Umgebungsdruck bezogen.

In Bild 6.24 sind die Simulationsergebnisse mit monodispersen und polydispersen Tropfen für die Höhen $z=0,46\text{m}$ und 2m dargestellt. Die Simulation mit monodispersen Tropfen zeigt den gleichen linearen Verlauf wie die experimentellen Werte. Jedoch liegt am Strahlwäscheraustritt ($z=2,0\text{m}$) die berechnete Pressung 20% unter den experimentellen Ergebnissen. Für Gasgeschwindigkeiten ab 5m/s kann die Pressung durch die Simulation mit dem Tropfenspektrum (polydispers) sehr genau beschrieben werden. Die Abweichung zwischen Simulation und Ex-

periment liegt hier innerhalb der Messgenauigkeit. Mit abnehmender Gasgeschwindigkeit steigt die Pressung bei der Simulation mit polydispersen Tropfen überproportional an. Bei einer Gasgeschwindigkeit von 3m/s liegt der Fehler bei 15%. Dieser Effekt tritt bereits im oberen Teil des Strahlwäschers auf. Bei einer Höhe von $z=0,46\text{m}$ liegt die Abweichung bei 3m/s bei über 50%.

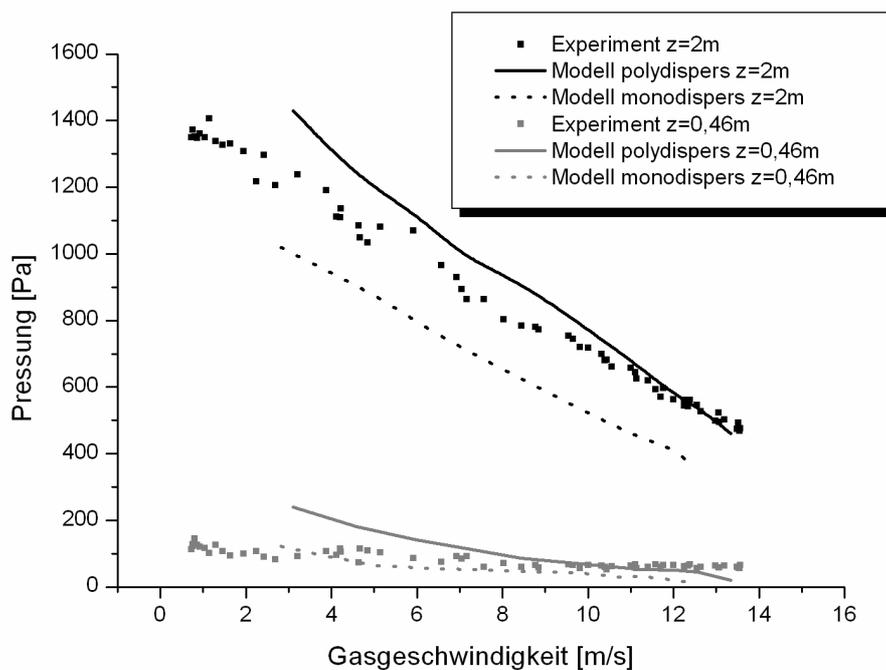


Bild 6.24 Pressung in Abhängigkeit von der Gasgeschwindigkeit (10mm Düse)
Simulation mit monodispersen und polydispersen Tropfen

In Bild 6.25 ist die Berechnung der Pressung für die 6,8mm Düse dargestellt. Auch hier lässt sich ein überproportionaler Anstieg der Pressung bei geringen Gasgeschwindigkeiten für die Simulation mit polydispersen Tropfen erkennen. Für Gasgeschwindigkeiten $>5\text{m/s}$ ist die Simulation für die betrachteten Höhen mit einem Fehler von $<10\%$ genau. Bei der Simulation mit monodispersen Tropfen ergibt sich kein überproportionaler Anstieg der Pressung bei geringen Gasgeschwindigkeiten. Es zeigen sich über den gesamten Gasgeschwindigkeitsbereich genaue Ergebnisse.

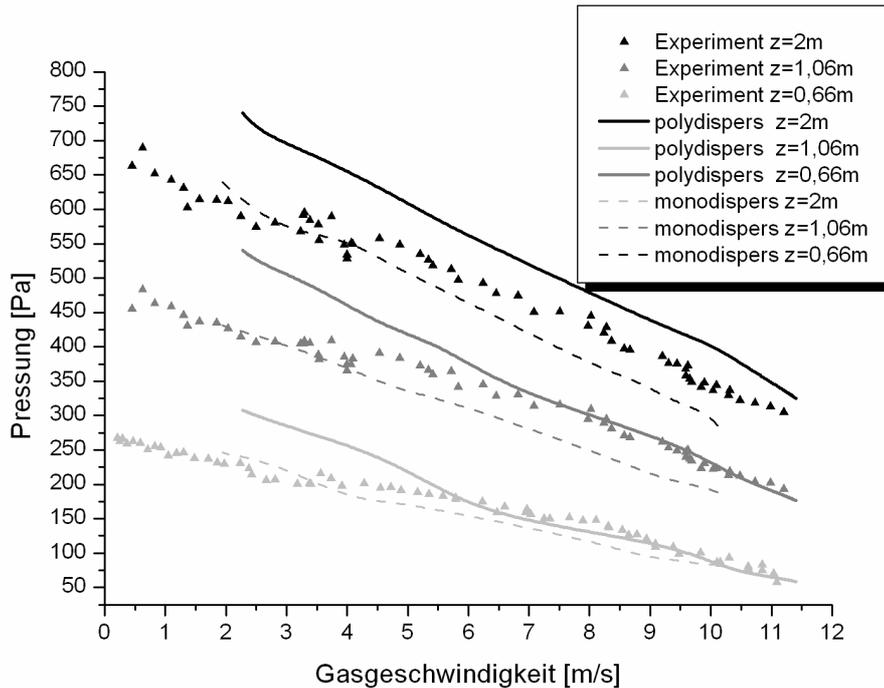


Bild 6.25 *Pressung in Abhängigkeit von der Gasgeschwindigkeit (6,8mm Düse)*
Simulation mit monodispersen und polydispersen Tropfen

Bei niedrigen Gasgeschwindigkeiten kann es durch die hohen Relativgeschwindigkeiten am Düsenaustritt zu Verwirbelungen kommen. Die verwirbelten Tropfen würden aufgrund der hohen Tropfendichte zum Teil koaleszieren. Die Verwirbelung tritt nur bei den kleinen Tropfen auf. Die großen Tropfen des Sauterterdurchmessers ($516\mu\text{m}$) folgen aufgrund ihres hohen Impulses der direkten Flugbahn.

Da der Tropfenbildungsprozess im Modell nicht mitsimuliert werden kann, wird bereits am Düsenaustritt mit vollständig ausgebildeten Tropfen gerechnet. Die Tropfen erzeugen durch ihre Schleppwirkung eine höhere Pressung als das real der Fall ist. Die kleinen Tropfen haben im düsennahen Bereich noch eine hohe Geschwindigkeit und erzeugen hier eine hohe Schleppwirkung. Dies erklärt den überproportionalen Druckanstieg am Düsenaustritt bei der Simulation mit polydispersen Tropfen. Zur Beschreibung der Pressung bei geringen Gasgeschwindigkeiten ist die Simulation mit polydispersen Tropfen nicht geeignet. Hier liefert die Simulation mit monodispersen Tropfen genauere Ergebnisse (siehe auch Anhang B).

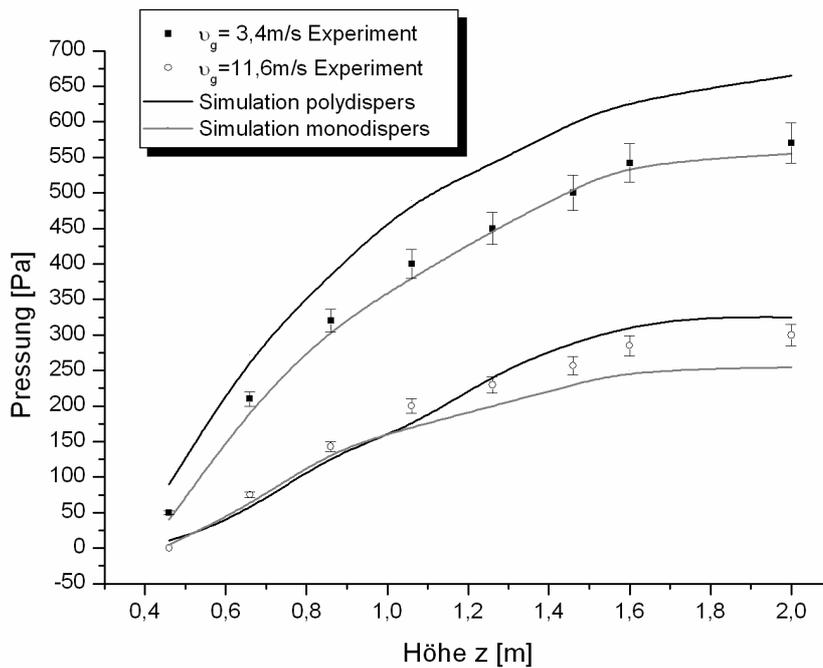


Bild 6.26 *Pressung in Abhängigkeit von der Höhe (6,8mm Düse)*

In Bild 6.26 ist die Pressung in Abhängigkeit von der Höhe dargestellt. Für die experimentellen Werte ergibt sich aufgrund der Messungenauigkeit ein Fehlerbereich von 5%. Die Simulation mit monodispersen Tropfen liefert auch über die Höhe z Ergebnisse, die größtenteils innerhalb des Fehlerbereiches liegen. Die Pressung nimmt mit der Höhe nicht linear zu. Durch die Wandabscheidung und der Annäherung an die stationäre Sinkgeschwindigkeit der Tropfen mit der Höhe z erreicht die Pressung am Strahlwäscheraustritt nahezu ihr Maximum. Der Strahlwäscher ist daher bezüglich des Druckgewinns optimal gestaltet, eine Verlängerung des Rohres würde nahezu keine Steigerung der Pressung bringen.

Der Wirkungsgrad eines Strahlwäschers ist als das Verhältnis zwischen gewonnenem Saugstrahlimpuls zu aufgewandtem Treibstrahlimpuls definiert.

$$\eta = \frac{\dot{V}_g \cdot \Delta p_g}{\dot{V}_1 \cdot \Delta p_{Dü}} \quad (6.8)$$

mit $\Delta p_{Dü}$ dem Düsenvordruck und Δp_g dem Druckgewinn im Gasstrom

Der maximale Wirkungsgrad wird bei hohen Gasgeschwindigkeiten und entsprechend geringem Druckgewinn erreicht, s. Bild 6.27. Des Weiteren nimmt er mit dem Flüssigkeitsvolumenstrom zu. Bei $\dot{V}_1 = 3,0\text{m}^3/\text{h}$ hat er sein Maximum erreicht. Mit steigendem Flüssigkeitsvolumenstrom steigen die Reibungsverluste in der Düse.

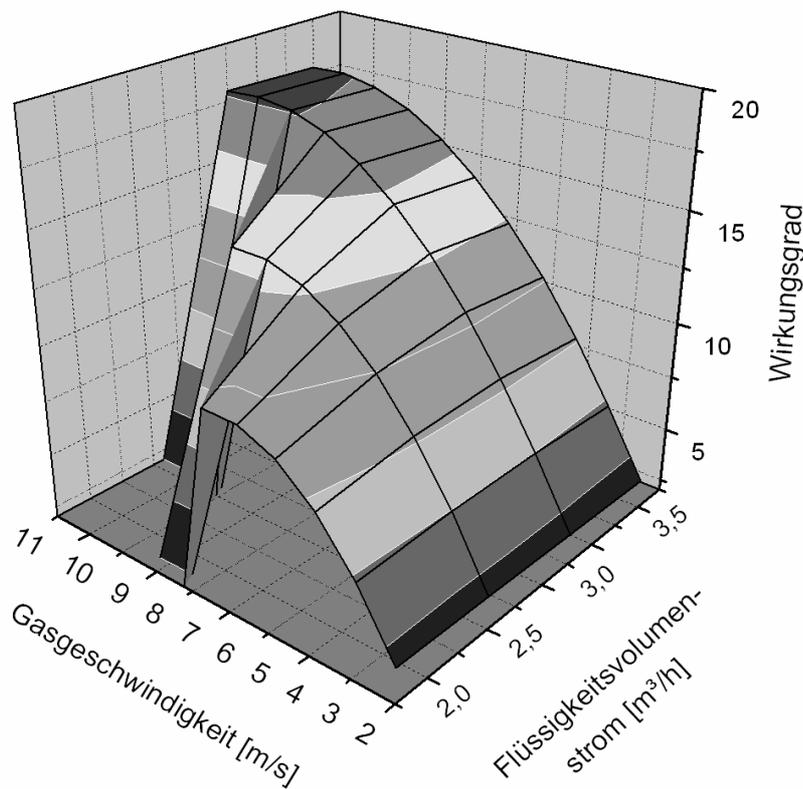


Bild 6.27 Wirkungsgrad der 6,8mm Düse am Strahlwäscheraustritt ($z=2\text{m}$) in Abhängigkeit von der Gasgeschwindigkeit und dem Flüssigkeitsvolumenstrom

Bei dem untersuchten Strahlwäscher handelt es sich um einen Strahlwäscher im Technikumsmaßstab mit einem vergleichsweise geringen Rohrdurchmesser. Die daraus resultierende hohe Wandabscheidung führt zu einem vergleichsweise geringen Wirkungsgrad von maximal 17%.

6.5.6 Chemische Absorption

Die Chemische Absorption wird durch den Absorptionsgrad beschrieben, s. Gl. (2.1) S. 3. In Bild 6.28 ist der Absorptionsgrad in Abhängigkeit von der Gasgeschwindigkeit und der Höhe z dargestellt. Die Simulation erfolgte mit polydispersen Tropfen. Es wurde der Stoffübergang durch die Tropfen und den Wandfilm berücksichtigt.

Der Absorptionsgrad nimmt mit der Höhe z linear zu. Mit abnehmender Gasgeschwindigkeit steigt er exponentiell an. Entlang der Höhe kommt es zu einer Überlagerung von zwei Effekten, die auch bei den Untersuchungen zur Hydrodynamik herausgestellt werden konnten, s. Kap. 6.3. und 6.5.5. Durch die hohe Wandabscheidung (s. Kap. 6.5.3) nimmt die Tropfenzahl und damit die Austauschfläche mit der Höhe ab. Durch die Wechselwirkung mit der Gasphase werden die Tropfen abgebremst, dadurch erhöht sich die relative Verweilzeit der Tropfen mit der Höhe z . Niedrige Gasgeschwindigkeiten bremsen die Tropfen stärker ab, dadurch kommt

es hier schon zu einer Erhöhung der Verweilzeit im oberen Bereich des Strahlwäschers. Dies gilt insbesondere für die kleinen Tropfen, die eine hohe spezifische Stoffaustauschfläche haben und daher entscheidend für den Stoffaustausch sind. So erklärt sich der exponentielle Anstieg des Absorptionsgrades mit sinkender Gasgeschwindigkeit (s. Bild 6.28), auch wenn es bei niedrigen Gasgeschwindigkeiten zu einem leichten Anstieg der Wandabscheidung gegenüber hohen Gasgeschwindigkeiten kommt, s. Kap 6.5.3.

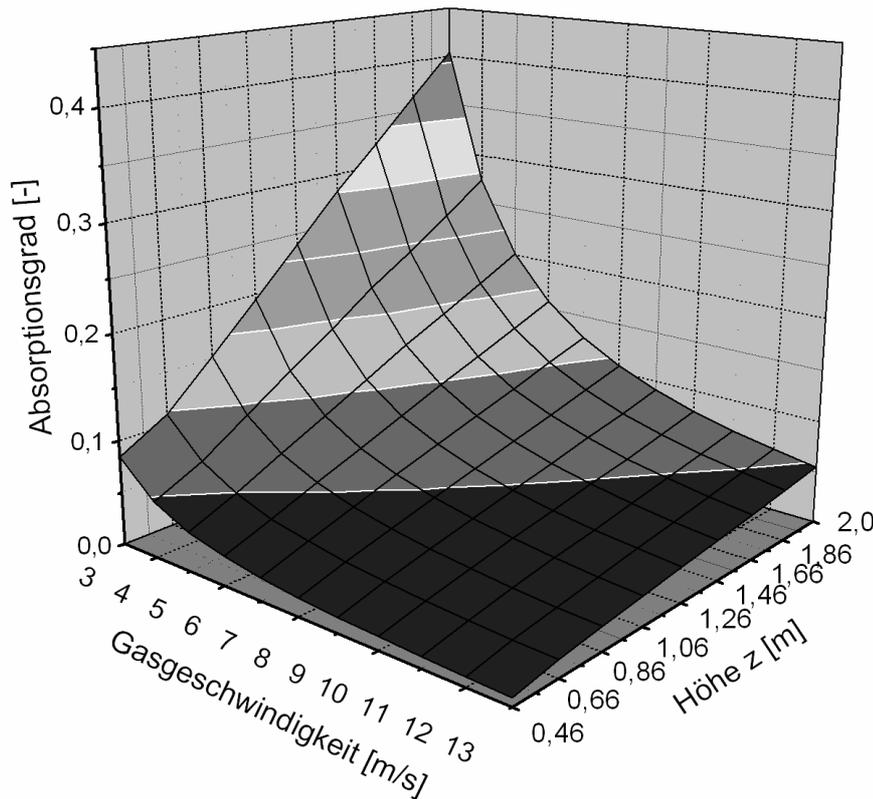


Bild 6.28 Absorptionsgrad in Abhängigkeit von der Höhe und der Gasgeschwindigkeit (10mm Düse und $\dot{V}_1 = 7,2 \text{ m}^3/\text{h}$)

Der Anteil der Stoffaustauschfläche von Tropfen und Wandfilm ist in Bild 6.29 dargestellt. Der Wandfilm hat einen geringen Anteil an der Stoffaustauschfläche. Mit abnehmender Gasgeschwindigkeit steigt der Absorptionsgrad durch den Wandfilm aufgrund der längeren Kontaktzeit am Film leicht an. Dieser Effekt ist bei der Absorption durch die Tropfen wesentlich stärker, da die Tropfen abgebremst werden und sich die Kontaktzeit deutlich erhöht. Die Simulation mit den polydispersen Tropfen liefert zur Beschreibung des Absorptionsgrades genaue Ergebnisse. Für Gasgeschwindigkeiten über 7m/s liegen die simulierten Werte unter den experimentellen Werten. Bei sehr geringen Gasgeschwindigkeiten (<4m/s) steigt der Absorptionsgrad bei der Simulation stärker an als das real der Fall ist. Dies kann an der Vernachläss-

sigung der Koaleszenz liegen, die wie in Kap. 6.5.5 erwähnt bei geringen Gasgeschwindigkeiten im düsenahen Bereich durch Verwirbelungen zu erwarten ist. Eine stärkere Abbremsung der Tropfen durch die Wechselwirkung kann ebenfalls zu einem höheren Absorptionsgrad bei der Simulation im Vergleich zum Experiment führen. Dieser Effekt kann durch eine zu hohe Widerstandskraft begründet werden, die sich aus der Annahme einer Kugelform statt der tatsächlichen Tropfenform ergibt.

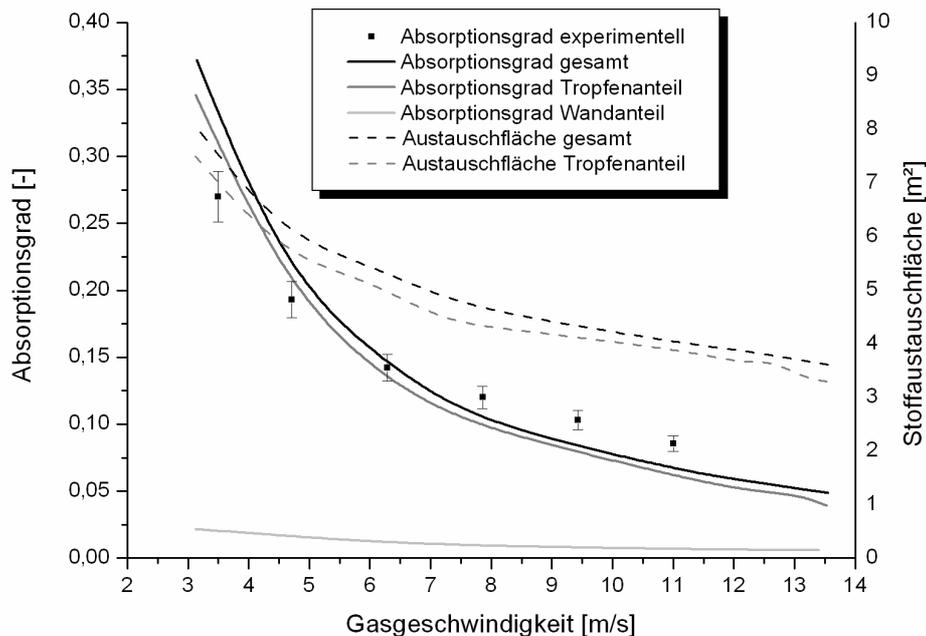


Bild 6.29 Anteil Tropfen und Wandfilm am Absorptionsgrad und der Stoffaustauschfläche (10mm Düse und $\dot{V}_l = 7,2 \text{ m}^3/\text{h}$)

Der Absorptionsgrad der 6,8mm Düse für verschiedene Flüssigkeitsvolumenströme ist in Bild 6.30 dargestellt. Aufgrund des niedrigeren maximalen Flüssigkeitsvolumenstroms der 6,8mm Düse ($\dot{V}_{\text{max},l} = 3,5 \text{ m}^3/\text{h}$) verglichen mit der 10mm Düse ($\dot{V}_{\text{max},l} = 7,2 \text{ m}^3/\text{h}$) ist der Absorptionsgrad geringer, da die Düsenaustrittsgeschwindigkeit und damit die Verweilzeit bei beiden Düsen gleich ist. Der berechnete Absorptionsgrad der 6,8mm Düse liegt unter den experimentellen Werten. Es zeigt sich jedoch der gleiche qualitative Verlauf über der Gasgeschwindigkeit. Der Absorptionsgrad ist nur schwach abhängig vom Flüssigkeitsvolumenstrom, da bei gleicher Düsenaustrittsöffnung mit hohen Flüssigkeitsvolumenströmen auch die Tropfengeschwindigkeit steigt und somit die Verweilzeit sinkt. Bei den berechneten Ergebnissen heben sich diese Effekte nahezu auf. Experimentell konnte ein leichter Anstieg des Absorptionsgrades mit dem Flüssigkeitsvolumenstrom festgestellt werden.

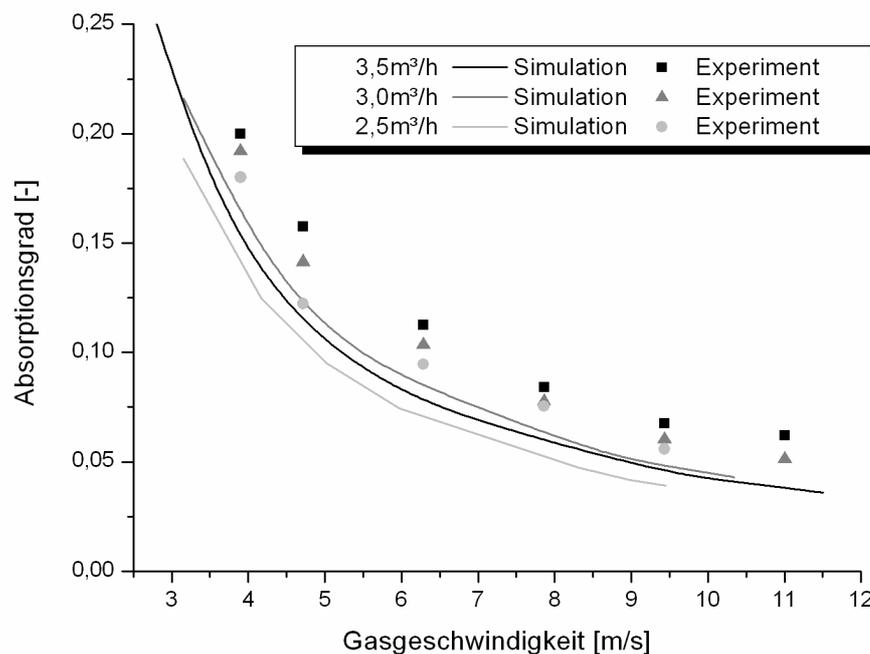


Bild 6.30 Absorptionsgrad in Abhängigkeit vom der Gasgeschwindigkeit für verschiedene Flüssigkeitsvolumenströme (6,8mm Düse)

Der Absorptionsgrad kann durch die Simulation mit monodispersen Tropfen nicht berechnet werden. Die Ergebnisse liegen weit unter den experimentellen Werten, s. Bild 6.31. Der Sauterdurchmesser gibt zwar das Verhältnis aus Gesamtvolumen zu Gesamtoberfläche aller Tropfen wieder, er wird jedoch von der Gasströmung anders beeinflusst als das reale Tropfenspektrum. Die kleinen Tropfen werden von der Gasströmung stärker abgebremst als der mittlere Durchmesser und haben durch die höhere Verweilzeit einen wesentlichen Beitrag am Stoffaustausch. Verwirbelungen kleiner Tropfen können bei der Simulation mit dem Sauterdurchmesser (516 μm) ebenfalls nicht berücksichtigt werden. Der hohe Einfluss der kleinen Tropfen am Absorptionsgrad zeigt sich durch den starken exponentiellen Anstieg des Absorptionsgrades bei geringen Gasgeschwindigkeiten. Insbesondere die kleinen Tropfen werden durch die Wechselwirkung mit der Gasphase abgebremst, s. Kap. 6.5.2. Der Anstieg des Absorptionsgrades bei geringen Gasgeschwindigkeiten fällt bei der Simulation mit monodispersen Tropfen wesentlich geringer aus.

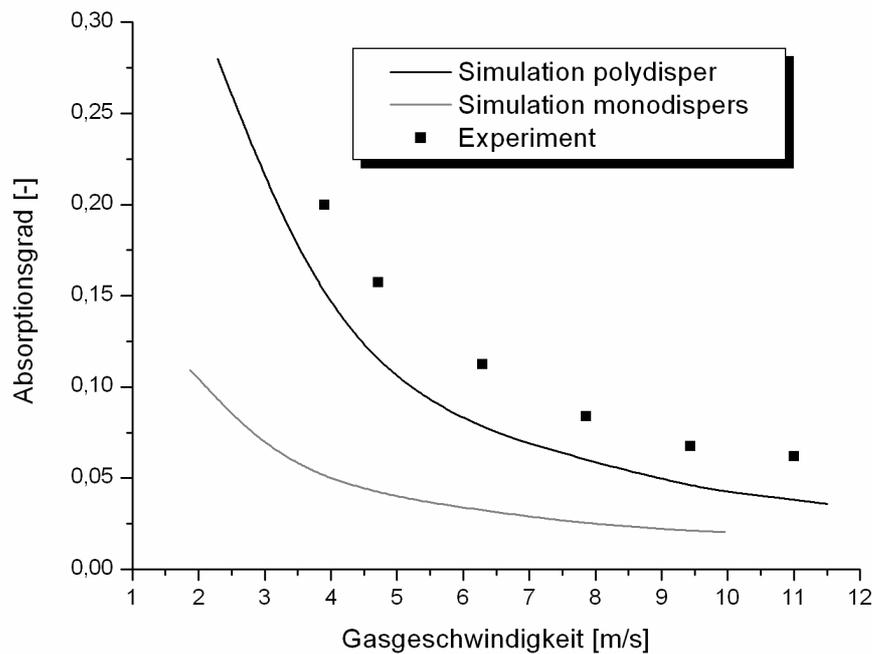


Bild 6.31 Simulation mit polydispersen und monodispersen Tropfen (6,8mm Düse $\dot{V}_l = 3,5 \text{ m}^3/\text{h}$)

6.5.7 Verifizierung mittels chemischer Methode

Das Stoffaustauschmodell der rigorosen Simulation soll neben der Berechnung der chemischen Absorption auch durch die chemische Methode nach Kap. 3.2.2 verifiziert werden. Die Bestimmung der Austauschfläche über die Sulfitoxidation kann nach Gl. (3.11) erfolgen, da folgende Bedingungen erfüllt sind:

- die Sulfitkonzentration ist mit $>0,5 \text{ kmol/m}^3$ wesentlich größer als die Sauerstoffkonzentration
- es handelt sich um eine schnelle Reaktion in der flüssigen Phase
- Stoffübergang kann als stationär betrachtet werden

Es hat sich gezeigt, dass der Sauerstoffverbrauch nicht direkt bestimmt werden kann, da der Stoffübergang zu gering ist. Die Sulfitlösung wurde daher über eine Zeit von 0,5h im Kreis gefahren und dann die Sulfatkonzentration in der Waschlösung bestimmt.

Die Stoffaustauschfläche wurde nach Gl. (6.9) berechnet.

$$a_{\text{eff}} = \frac{V_F \cdot \Delta c_{\text{SO}_3^{2-}}}{2\Delta t \cdot c_{\text{O}_2}^{3/2} \sqrt{\frac{2}{3} k \cdot D_{\text{O}_2}}} \quad (6.9)$$

mit V_F dem Gesamtvolumen der Sulfitlösung in der Anlage und Δt der Versuchszeit

Die Stoffaustauschfläche wurde mit der chemischen Methode für 4 Gasgeschwindigkeiten bestimmt. Die Fehlerbalken geben die Messfehler wieder. Die berechnete Stoffaustauschfläche mit polydispersen Tropfen und unter Berücksichtigung des Wandfilmes liegt für Gasgeschwindigkeiten $>7\text{m/s}$ leicht unter den experimentellen Werten, s. Bild 6.32. Die Berechnung der Stoffaustauschfläche über die vereinfachten Annahmen in Gl. (6.9) können zu systematischen Fehlern führen. Aufgrund der Ergebnisse zur Berechnung der chemischen Absorption (Kap. 6.5.6) kann angenommen werden, dass die Stoffaustauschfläche über den chemischen Nachweis insgesamt zu niedrig berechnet wird. Mit dem rigorosen Modell würde dann die Stoffaustauschfläche bei geringen Gasgeschwindigkeiten leicht zu hoch berechnet werden, was die Ergebnisse aus Kap. 6.5.6 unterstützt.

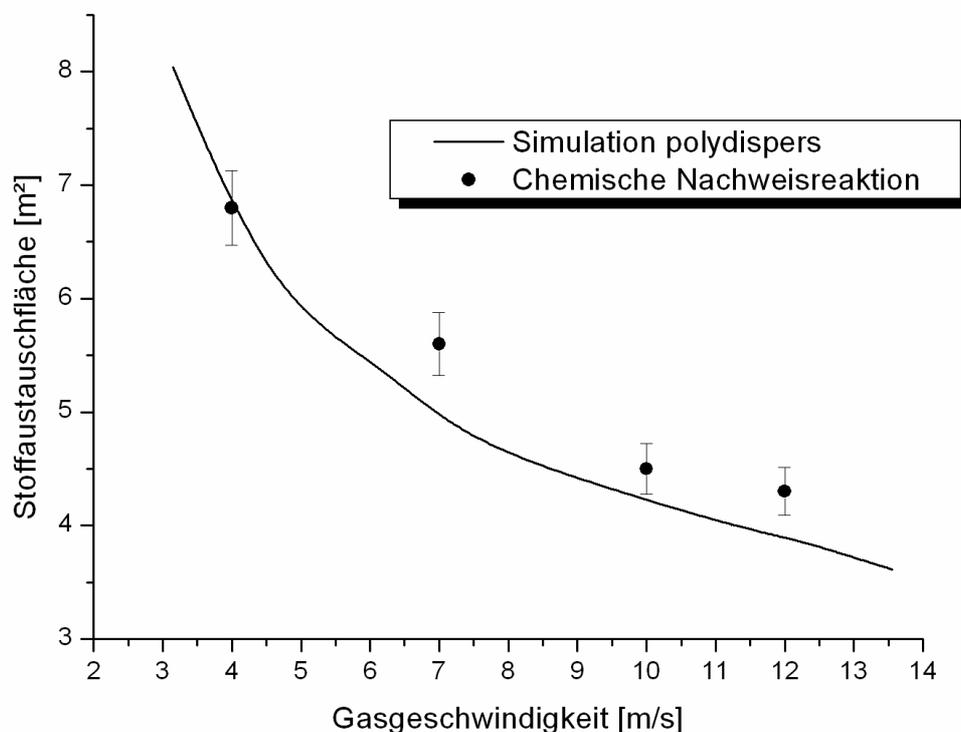


Bild 6.32 Stoffaustauschfläche über die rigorose Simulation und über die chemische Nachweisreaktion (10mm Düse und $\dot{V}_1 = 7,2\text{m}^3/\text{h}$)

Es konnte gezeigt werden, dass die Stoffaustauschfläche durch die rigorose Simulation mit einer für eine numerische Simulation hohen Genauigkeit berechnet werden kann. Das Modell kann daher durch die Implementierung der entsprechenden stoffspezifischen Parameter für beliebige chemische Absorptionsrechnung angewendet werden.

6.5.8 Einfluss des Sprühwinkels

Der Sprühwinkel ergibt sich aus der Geometrie der Düse. Experimentell konnte für die untersuchten Düsen ein ungefährender Sprühwinkel von 16° bestimmt werden. Der Sprühwinkel kann durch den Düsenvordruck und durch die Gasgeschwindigkeit beeinflusst werden. Bei Druckanstieg sinkt der Zerstäuberwinkel. Dies ist bei großen Düsenaustritten, wie den hier verwendeten Typen, nicht so stark ausgeprägt wie bei kleinen. Mit dem rigorosen Modell kann der Einfluss des Sprühwinkels untersucht werden. Es wurde die 6,8mm Düse mit einen Flüssigkeitsvolumenstrom von $3,5\text{m}^3/\text{h}$ und monodispersen Tropfen (Sauterdurchmesser= $516\mu\text{m}$) simuliert. Der Sprühwinkel bestimmt die Wandabscheidung im Strahlwäscher. Die ersten Tropfen treffen entsprechend ihrem maximalen Sprühwinkel auf die Wand, s. *Bild 6.33*. Bei einem Sprühwinkel von 28° sind bereits bei einer Höhe von $z=1\text{m}$ 70% der Tropfen abgeschieden. Im anschließenden Verlauf kommt es zu keiner weiteren Abscheidung. Bei dem kleinsten untersuchten Sprühwinkel von 12° nähert sich die relative Wandabscheidung über der Höhe z einem linearen Verlauf. Am Strahlwäscheraustritt ($z=2,0\text{m}$) sind erst 60% der Tropfen abgeschieden.

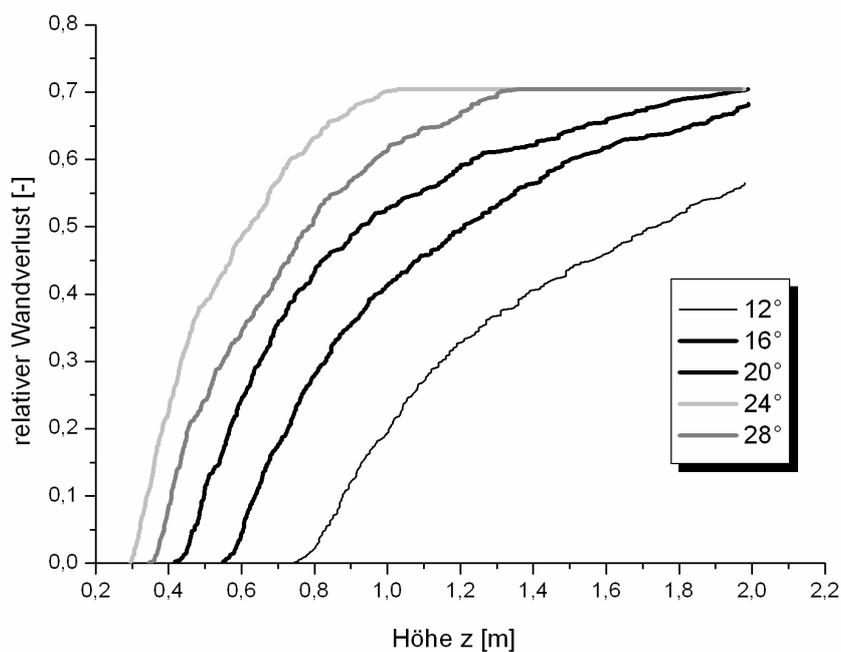


Bild 6.33 Abhängigkeit des relativen Wandverlustes vom Sprühwinkel (6,8mm Düse und $\dot{V}_l=3,5\text{m}^3/\text{h}$)

Aufgrund der zunehmenden Wandabscheidung mit steigendem Sprühwinkel ergibt sich eine Abnahme der erreichbaren Pressung am Strahlwäscheraustritt, s. *Bild 6.34*. Durch die Abnahme der Tropfen im Gasraum stehen weniger Tropfen zur Verfügung, die eine Schleppwirkung auf das Gas ausüben können. Dies lässt sich auch an der Gasgeschwindigkeit erkennen,

die mit zunehmendem Sprühwinkel abnimmt. Da bei einem Sprühwinkel von 12° die meisten Tropfen auf das Gas im Strahlwäscher wirken können, ergibt sich hier die höchste Gasgeschwindigkeit unter sonst gleichen Randbedingungen.

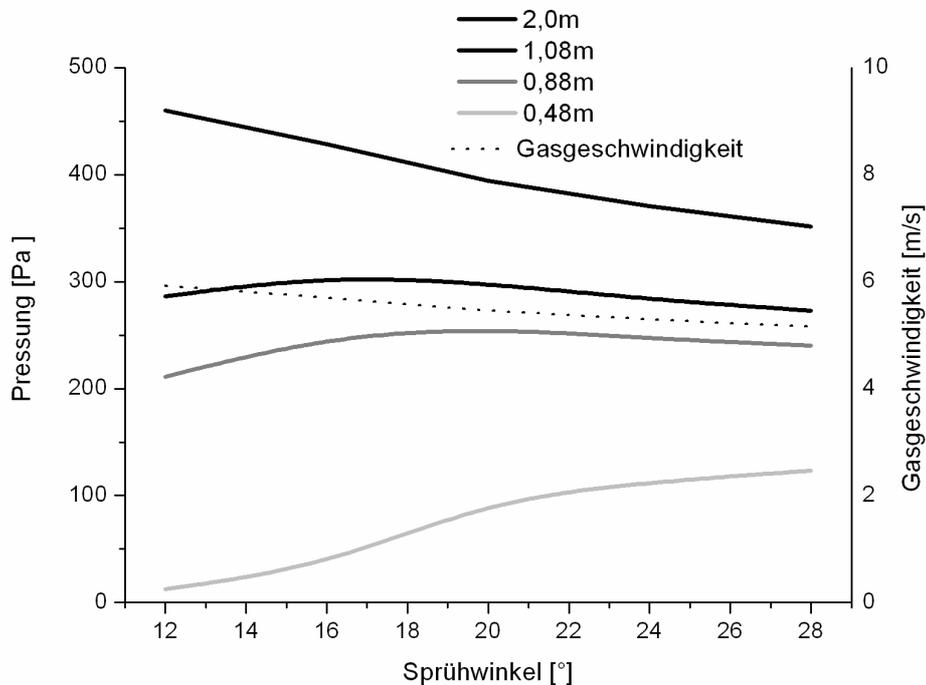


Bild 6.34 Abhängigkeit der Pressung vom Sprühwinkel (6,8mm Düse und $\dot{V}_1 = 3,5 \text{ m}^3/\text{h}$)

Die Ergebnisse machen den starken Einfluss des Sprühwinkels auf die Strömungsverhältnisse im Strahlwäscher deutlich. Dies gilt insbesondere für Strahlwäscher mit vergleichsweise kleinem Rohrdurchmesser. Die Düse sollte einen möglichst kleinen Sprühwinkel erzeugen, um die Wandabscheidung gering zu halten. Eine hohe Wandabscheidung senkt den Wirkungsgrad der Pressung und reduziert die Stoffaustauschfläche.

7 Zusammenfassung

Der Strahlwäscher kann als einziger Gas/Flüssigkeits-Kontaktapparat neben der Absorption und Kühlung von Abgasen diese auch selbständig Ansaugen bzw. Verdichten. Die Stoffaustauschfläche im Strahlwäscher ergibt sich nur durch die Tropfen und den sich ausbildenden Wandfilm. Der Strahlwäscher ist daher durch seine Fluidodynamik gekennzeichnet und nicht über leichter zu charakterisierende Einbauten, was eine detaillierte Simulation erschwert.

Ziel dieser Arbeit ist es, durch eine geeignete Simulation die für die Auslegung von Strahlwäschern relevanten Größen, die erreichbare Pressung und die Stoffaustauschfläche, für beliebige Betriebspunkte zu berechnen.

Die Auslegung von Strahlwäschern erfolgt bisher auf Basis von Erfahrungswerten und empirischen Modellansätzen. Es konnte gezeigt werden, dass diese Ansätze aufgrund Ihrer Vereinfachungen den Prozess nur ungenau beschreiben und daher nur für eingeschränkte Bedingungen gelten. Die Modellparameter müssen durch experimentelle Daten angepasst werden. Eine allgemeingültige Berechnung und Auslegung eines Strahlwäschers erfordert eine detaillierte Modellierung auf Basis einer Strömungssimulation.

Mit einem eindimensionalen Modell kann unter Berechnung des Kräftegleichgewichtes an der dispersen Phase die Tropfengeschwindigkeit und damit die Pressung im Strahlwäscher bestimmt werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde das eindimensionale Modell mit einer angepassten Tropfendichte erweitert. Mit dieser Erweiterung des eindimensionalen Modells ist eine einfache Abschätzung der Druckverhältnisse im Strahlwäscher möglich. Das eindimensionale Modell gilt nicht für den oberen Bereich des Strahlwäschers ($\leq L/4$), da aufgrund der Strahlaufweitung die Tropfen ungleichmäßig über den Querschnitt verteilt sind.

Mit einer dreidimensionalen Strömungssimulation können die tatsächlichen Strömungsbedingungen im Strahlwäscher ohne direkte Anpassung der Ergebnisse berechnet werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Strömung mit einer dreidimensionalen CFD Simulation berechnet. Das Zweiphasensystem wurde mit der Euler-Lagrange Methode berechnet. Eine Simulation der Strömung in der Düse und des Tropfenbildungsprozesses ist nach bisherigem Kenntnisstand nicht möglich. Im Modell wurden daher Tropfenströme an einer fiktiven Düsenaustrittsfläche injiziert. Zur Erzeugung eines Vollkegelsprühbildes wurden die injizierten Tropfenströme stochastisch innerhalb einer Gaußfunktion über die Düsenaustrittsfläche verteilt.

Vom Autor wurden entsprechende Unterprogramme implementiert, um den Stoffübergang im Strahlwäscher zu berechnen. Die chemische Absorption wurde sowohl für die Tropfen als auch für den sich ausbildenden Wandfilm berechnet und als Senke an die Gasphase zurückgegeben. Die Phasen- und Reaktionsgleichgewichte wurden aus den thermodynamischen Standarddaten und gängigen Korrelationsgleichungen berechnet. Das Programm kann daher für beliebige Stoffsysteme erweitert werden. Die größte Unsicherheit des Modells ist die nicht bekannte Sprühcharakteristik der Düse. Die Tropfengröße und der Sprühwinkel haben einen

essentiellen Einfluss auf die Strömungsverhältnisse im Strahlwäscher. Aufgrund der Strahlaufweitung tritt die Koaleszenz von Tropfen nur im düsen nahen Bereich des Wäschers auf. Für die direkte Simulation des düsen nahen Bereiches unter Berücksichtigung der Koaleszenz existieren noch keine gesicherten Ansätze. Die Änderung des Tropfenspektrums wurde daher experimentell durch die Phasen-Doppler-Anemometrie untersucht. Es konnte ein Abstand von der Düse ermittelt werden, ab dem sich das Tropfenspektrum nicht mehr signifikant ändert. Mit guter Näherung kann daher die Injektion der Tropfen im Modell mit diesem stabilen Tropfenspektrum erfolgen, da dies für den größten Bereich des Strahlwäschers gültig ist. Die Koaleszenz kann dann vernachlässigt werden. In früheren Arbeiten zur Simulation von Sprüh- und Strahlwäschern wurde nur mit einem mittleren Durchmesser gerechnet. In dieser Arbeit wurde das Tropfenspektrum berücksichtigt. Mit der heutigen Rechentechnik ist dies mit einem vertretbaren zeitlichen Aufwand möglich.

Für die Berechnung der Pressung ist die Simulation mit dem Sauterdurchmesser genau. Hier zeigte die Berechnung mit polydispersen Tropfen Defizite. Die bei geringen Gasgeschwindigkeiten zu hoch berechnete Pressung lässt sich durch die getroffenen Vereinfachungen, der Vernachlässigung der Koaleszenz und der Annahme von bereits vollständig ausgebildeten Tropfen am Düsenaustritt, erklären. Der Effekt tritt jedoch nur bei Gasgeschwindigkeiten auf, die im praktischen Betrieb nicht relevant sind.

Es konnte gezeigt werden, dass der Absorptionsgrad nahezu unabhängig vom Flüssigkeitsvolumenstrom ist. Durch die geringe Geschwindigkeit der Tropfen bei niedrigen Flüssigkeitsvolumenströmen steigt die Verweilzeit der Tropfen und damit die Stoffaustauschfläche. Der Absorptionsgrad hängt von der Länge des Strahlwäschers und vor allem von der Gasgeschwindigkeit ab. Kleine Tropfen werden aufgrund ihres geringen Impulses stärker von der Gasströmung abgebremst. Durch ihre längere Verweilzeit im Strahlwäscher und ihre größere spezifische Oberfläche haben sie einen wesentlichen Beitrag am Stoffaustausch. Eine Berechnung der chemischen Absorption ist daher nur unter Berücksichtigung des Tropfenspektrums möglich. Der Wandfilm hat am Stoffaustausch im Vergleich zu den Tropfen eine untergeordnete Bedeutung.

Da Strahlwäscher nur durch ihre Fluidodynamik gekennzeichnet sind, kann eine detaillierte Simulation der chemischen Absorption und der Pressung nur mit einer dreidimensionalen numerischen Strömungssimulation erfolgen. Mit der Kenntnis des von der Düse erzeugten Tropfenspektrums liefert die Strömungssimulation eine ausreichende Genauigkeit. Dies macht die Bedeutung der Tropfengrößenverteilung der versprühten Tropfen und der damit ausgewählten Düse für den Strahlwäscher deutlich.

8 Literaturverzeichnis

- /1/ Arlt, W.; Verfahrenstechnische Möglichkeiten zur Verringerung des Anstieges von Kohlendioxid in der Luft; Chem. Ing. Tech. 74 (2003) 4, 340-347.
- /2/ Astarita, G.; Mass Transfer with Chemical Reaction; Elsevier; New York; (1967).
- /3/ Baerns, M., Hofmann, H., Renken, A.; Chemische Reaktionstechnik; Thieme; Stuttgart New York; (1999).
- /4/ Bauckhage, K.; Das Zerstäuben als Grundverfahren; Chem. Ing. Tech. 62 (1990) 8, 613-625.
- /5/ Baxter, L. L., Smith, P. J.; Turbulent Dispersion of Particles: The SPT Model; Energy&Fuels (1993) 7, 852-859.
- /6/ Bonitz, R., Grabbert, G.; Verweilzeituntersuchungen als Mittel zur Modellierung des Impuls-, Stoff- und Wärmetransportes in welligen Rieselfilmen; Freiburger Forschungshefte (1999).
- /7/ Brauer, H.; Stoffaustausch einschließlich chemischer Reaktionen; Sauerländer, Aarau (1971).
- /8/ Brauer, H.; Impuls-, Stoff- und Wärmetransport durch die Grenzfläche kugelförmiger Partikel; Chem. Ing. Tech. 45 (1973) 18, 1099-1103.
- /9/ Braun, D., Hiby, J. W.; Der gaseitige Stoffübergangskoeffizient im Rieselfilm; Chem. Ing. Tech. 42 (1970) 6, 345-349.
- /10/ Bröder, D., Sommerfeld, M., Tisler, S.; Analysis of the Hydrodynamics in a Bubble Column by Phase Doppler Anemometry; Conf. on Multiphase Flow, ICMF Lyon (1998).
- /11/ Carrol, J. J., Slubsky, J. D., Mather, A. E.; The Solubility of Carbon Dioxide in Water at Low Pressure; J. Phys. Chem. Ref. Data 20 (1991), 1201-1209.
- /12/ Carrubba, G.; Stoff- und Wärmetransport in welligen Rieselfilmen; Dissertation TU Berlin (1976).
- /13/ Chase, M.; JANAF Thermochemical Tables; J. of Phys. and Chem. Ref. data Am. Inst. of Phys. (1986).
- /14/ Chen, Y. A., Evans, L. B.; A Local Composition Model for Excess Gibbs Energy of Aqueous Electrolyt Systems; A.I.Ch.E.J. 32 (1986) 3, 444-454.
- /15/ Clarke, E. C. W., Glew, D. N.; Evaluation of Debye and Hueckel Limiting Slopes for Water Between 0-150°C; J. of Chem. Soc. Far. Trans 76 (1980), 1911-1916.
- /16/ Clift, R., Grace, J. R., Weber, M. E.; Bubbles, Drops and Particles; Academic Press, San Diego (1978).
- /17/ Danckwerts, P. V.; Gas-Liquid Reactions; McGraw-Hill, New York (1970).
- /18/ Danckwerts, P. V., Kennedy, A. M.; The Kinetics of Absorption of Carbon Dioxide into Neutral and Alkaline Solution; Chem. Eng. Sci 8 (1958), 201-214.

-
- /19/ Dimiccoli, A.; Mass Transfer and Kinetics in Spray Tower Loop Absorbers and Reactors; *Ind. Eng. Chem. Res.* 39 (2000) 11, 4082-4093.
- /20/ Durst, F.; Laser Doppler Measurements in Two Phase Flows; *Proceeding of the LDA Symp.* (1975) Copenhagen.
- /21/ Eden, D.; Simulation von Rauchgassprühwäschern; *Fortschr.-Ber. VDI, Reihe 3, Nr. 536* (1997).
- /22/ Emmert, R. E., Pigford, R. L.; A Study of Gas Absorption in Falling Liquid Film; *Chem. Eng. Prog.* 50 (1954) 2, 87-93.
- /23/ Feind, K.; Strömungsuntersuchungen bei Gegenstrom von Rieselfilmen und Gas in lotrechten Röhren; *VDI-Forschungsheft 48*, (1960).
- /24/ Fluent TM 6.0 Manual.
- /25/ Flügel, G.; *Fortschritte der Betriebstechnik: Zur Theorie der Strahlapparate*; Dechema Monograph. Bd. 41 (1962).
- /26/ Fuller, E. N., Schettler, P. D., Giddings, J. C.; A new Method for Prediction of Binary Gas-phase Diffusion Coefficients; *Ind. Eng. Chem.*, 58 (1966) 5, 18.
- /27/ Görner, K.; *Technische Verbrennungssysteme*; Springer, Berlin/Heidelberg (1991).
- /28/ Griebel, M., Dornseifer, T., Neunhoffer, T.; *Numerische Simulation in der Strömungsmechanik*; Vieweg, Braunschweig/Wiesbaden (1995).
- /29/ Gruss, J.; *Numerische Simulation der Zweiphasenströmung Gas-Flüssigkeitstropfen im Sprühraum*; Dissertation, RWTH Aachen (1993).
- /30/ Güsewell, M.; *Wärme und Stofftransport in Quenchapparaten*; Aktuelle Reihe 9, BTU-Cottbus (2001).
- /31/ Heck, U.; *Zur Zerstäubung in Freifalldüsen*; *Fortschr.-Ber. VDI, Reihe 7, Nr. 348* (1998).
- /32/ Himmelsbach, J., Noll, B., Wittig, S.; Experimental and Numerical Studies of Evaporating Wavy Fuel Films in Turbulent Air Flow; *Int. J. of Heat and Mass Transfer* 37 (1994), 1217-1226.
- /33/ Hoffmann, R., Kürten, H., Nagel, O.; Stoffaustauschfläche und Hydrodynamik in Strahl- bzw. Venturi-Wäschern; *Chem. Ing. Tech.* 45 (1973) 13; 881-887.
- /34/ Hsu, C.-T., Shih, S. M.; Semiempirical Equation for Liquid-Phase Mass Transfer Coefficients for Drops; *A.I.Ch.E.J.* 39 (1993) 6, 1090-1092.
- /35/ Jansen, G., Drift-Y-B-van-der; A Comparison of Different Scrubbing Processes for the Removal of Carbon Dioxide; *Gas und Wasserfach* 135 (1994) 11, 645.
- /36/ Jischa, M.; Turbulenter Wärme - und Stoffaustausch; *Chem. Ing. Tech.* 55 (1983) 3; 202-211.
- /37/ Kaesemann, R., Fahlenkamp, H.; The Meaning of Droplet-Droplet Interaction for the Wet Flue-gas Cleaning Process; *Chem. Eng. Tech.* 25 (2002) 7.

-
- /38/ Kenig, E. Y., Wiesner, U., Gorak, A.; Modelling of Reactive Absorption using the Maxwell-Stefan; *Ind. Eng. Chem. Res.* 36 (1997) 10, 4325-4334.
- /39/ Kestin, J., Sengers, J. V.; Thermodynamic Properties of Fluid H₂O; *J. Phys. Chem. Ref. Data* 13 (1984), 175.
- /40/ Last, W.; Absorption mit überlagerter chemischer Reaktion in Packungskolonnen bei Drücken bis 50bar; *Fortschr.-Ber. VDI, Reihe 3, Nr. 618* (1999).
- /41/ Launder, B. E., Spalding, D. B.; *Lectures in Mathematical Models of Turbulence*; Academic Press, London (1972).
- /42/ Lewis, W. K., Whitman, W. G.; *Principles of Gas Absorption*; *Ind. Eng. Chem.* 19 (1924), 1215-1220.
- /43/ Lobo, V. M. M.; *Handbook of Electrolyte Solutions*; Elsevier Verlag, Amsterdam-Oxford-New York (1989).
- /44/ Loos, T., Mollekopf, N.; Simulation der Hydrodynamik im Strahlwäscher; *Chem. Ing. Tech.* 76 (2004) 8, 1111-1116.
- /45/ Lukas, M., Krissmann, J.; *Thermodynamik der Elektrolytlösungen*; Springer, Heidelberg/Berlin (2001).
- /46/ Maier, H., Marr, R.; Simulation der SO₂-Abscheidung in Sprühwäschern unter Einsatz von CFD; *Chem. Ing. Tech.* 72 (2000), 1060.
- /47/ Malzkorn, R.; Simulation eines Rauchgassprühwäschers mit aufwärts gerichteten Düsen; *Fortschr.-Ber. VDI, Reihe 3, Nr. 643* (2000).
- /48/ Mersmann, A., Hofer, H., Stichlmair, J.; Absorption und Absorber; *Chem. Ing. Tech.* 51 (1979) 3; 157-166.
- /49/ Morsi, S. A., Alexander, A. J.; An Investigation of Particle Trajectories in Two-phase Flow Systems; *J. of Fluid Mechanics* 55 (1972) 2, 193-208.
- /50/ Mundo, C., Sommerfeld, M., Tropea, C.; Droplet-Wall Collisions: Experimental Studies of the Deformation and Breakup Process; *Int. J. of Multiphase Flow* 21 (1995) 2; 151-173.
- /51/ Müller, H. D.; *Gasabsorption*; Vortrag TU Dresden (2002).
- /52/ Nagel, O., Kuerten, H., Sinn, R.; Stoffaustauschfläche und Energiedissipationsdichte als Auswahlkriterien für Gas/Flüssigkeits-Reaktoren Teil II; *Chem. Ing. Tech.* 44 (1972) 14; 899-903.
- /53/ Nagel, O., Kürten, H., Hegner, B.; Die Stoffaustauschfläche in Gas/Flüssigkeits-Kontaktapparaten Auswahlkriterien und Unterlagen zur Vergrößerung; *Chem. Ing. Tech.* 45 (1973) 14; 913-920.
- /54/ Niepenberg, H.; *Grundlagen der Düsen-Druckzerstäubung*; Kopf, Stuttgart (1959).
- /55/ Nijssing, R. A. T. O., Hendriks, R. H.; Absorption of CO₂ in Jets and Falling Films of Electrolyte Solutions with and without Chemical Reaction; *Chem. Eng. Sci.* (1959) 10, 88-104.

- /56/ Oschatz, W.; Düsen und Strahluntersuchungen; Dissertation TU Dresden (1940).
- /57/ Pinsent, B. R. W., Pearson, L., Roughton, F. J. W.; The Kinetics of Combination of Carbon Dioxide with Hydroxide with Hydroxide Ions; *Trans. Faraday Soc.* 52 (1956), 1512-1520.
- /58/ Pitzer, K. S.; Electrolytes: From Dilute Solutions to Fused Salts; *J. of Am. Chem. Soc.* 102 (1980), 2902-2906.
- /59/ Pohorecki, R. P., Moniuk, W.; Kinetics of Reaction between Carbon Dioxide and Hydroxyl Ions in Aqueous Electrolyte Solutions; *Chem. Eng. Sci.* 43 (1988) 7, 1677-1684.
- /60/ Qiu, H. H., Sommerfeld, M., Durst, F.; High-resolution Data Processing for Phase-Doppler Measurements in a Complex Two-phase Flow; *Meas. Sci. Tech.* 2 (1991), 455-463.
- /61/ Ranz, W. E., Marshall, J. R.; Evaporation from Drops Part I; *Chem. Eng. Prog.* 48 (1952) 3, 141-146.
- /62/ Rottenkolber, G.; Ottomotoren im Kaltstart: Laseroptische Messverfahren zur Charakterisierung des Kraftstofftransports; Dissertation, Karlsruhe (2001).
- /63/ Rödicker; Analytische Chemie; Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig (1963).
- /64/ Samenfink, W.; Grundlegende Untersuchungen zur Tropfeninteraktion mit schubspannungsgetriebenen Wandfilmen; Dissertation Universität Karlsruhe (1997).
- /65/ Sattler, K.; Thermische Trennverfahren; VCH, Weinheim (1995).
- /66/ Schacht, W.; Verfahren für die Berechnung von Kennlinien von Flüssigstrahl-Ventilatoren und Strahlwäscher-Anlagen; *Chem. Ing. Tech.* 64 (1992) 4; 382-383.
- /67/ Schmehl, R., Rosskamp, H., Willmann, M., Wittig, S.; CFD Analysis of Spray Propagation and Evaporation Including Wall Film Formation and Spray/Film Interactions; *Int. J. of Heat and Fluid Flow*, 20 (1999) 5, 520-529.
- /68/ Schneider, R.; Modelloptimierung für die dynamische Simulation der reaktiven Absorption und Rektifikation; *Fortschr.-Ber. VDI, Reihe 3, Nr. 689* (2001).
- /69/ Schultes, M.; Einfluss der Phasengrenzfläche auf die Stoffübertragung in Füllkörperkolonnen; *Fortschr.-Ber. VDI, Reihe 3, Nr. 230* (1990).
- /70/ Siepman, S.; Zum Wärme- und Stofftransport in Quenchapparaturen; Dissertation, BTU Cottbus (2001).
- /71/ Sirignano, W. A.; Fluid dynamics and transport of droplets and sprays; University Press Cambridge, 2000.
- /72/ Tanasawa, Y., Toyoda, S.; *Techn. Report of Tohoku Univ. Japan*, 19-2, (1955), 155.
- /73/ Taylor, R., Krishna, R.; Multicomponent Mass Transfer; Wiley, New York (1993).
- /74/ Thiele, H.; Absorption im laminaren Film mit einer ebenen Oberfläche; Diplomarbeit, Institut für Verfahrenstechnik TU Berlin (1966).

-
- /75/ Ullmann; Gasreinigung und Gastrennung durch Absorption; Band 2 (1973), 575-599.
- /76/ Unites Nations; Protokoll von Kyoto zum Rahmenübereinkommen der Vereinenten Nationen über Klimaänderungen; Kyoto (1997).
- /77/ VDI-Wärmeatlas; Kap. Md 2, 8 Auflage (2004).
- /78/ VDI-Wärmeatlas; Kap. Db , 8 Auflage (2004).
- /79/ Wallis, G. H.; One-dimensional Two-phase Flow; McGraw-Hill, New York (1969).
- /80/ Walzel, P.; Liquid Atomization; Int. Chem. Eng. 33 (1993) 1, 46.
- /81/ Weimer, T.; Modellbildung und technische Anwendungen für die CO₂ Absorption aus Gasgemischen mit geringer CO₂-Konzentration; Fortschr.-Ber. VDI, Reihe 3, Nr. 493 (1997).
- /82/ Wesselingh, J. A., Krishna, R.; Mass Transfer in Multicomponent Mixtures; Delft Univ. Press, Amsterdam (2000).
- /83/ Wiegand, H.; Die Einwirkung eines ebenen Strömungsfeldes auf frei bewegliche Tropfen und ihren Widerstandsbeiwert; Fortschr.-Ber. VDI, Reihe 7, Nr. 120 (1987).
- /84/ Wilke, C. R., Chang, P.; Correlation of Diffusion Coefficients in Dilute Solutions; A.I.Ch.E.J. (1955) 1, 264.

9 Anhang

A Zusammenstellung der benötigten Stoffdaten

A1 Polynomkoeffizienten für die Stoffwerte von Wasser

		a	b	c	d	e
ρ	$\left[\frac{\text{kg}}{\text{m}^3}\right]$	2,41298E+02	6,69385E+00	-1,85686E-02	1,54909E-05	0,00000E+00
η	$\left[\frac{\text{kg}}{\text{ms}}\right]$	4,57408E-01	-5,29107E-03	2,30624E-05	-4,48026E-08	3,26932E-11
ν	$\left[\frac{\text{m}^2}{\text{s}}\right]$	4,65154E-04	-5,38719E-06	2,35069E-08	-4,57111E-11	3,33866E-14
cp	$\left[\frac{\text{kJ}}{\text{kgK}}\right]$	4,57319E+01	-4,94557E-01	2,20679E-03	-4,37930E-06	3,26454E-09

Gültigkeitsbereich $273,15 \leq T \leq 373,15\text{K}$

A2 Polynomkoeffizienten für die Stoffwerte von Luft

ρ	$\left[\frac{\text{kg}}{\text{m}^3}\right]$	3,07131E+00	-1,00448E-02	1,52525E-05	-1,08345E-08	2,90532E-12
η	$\left[\frac{\text{kg}}{\text{ms}}\right]$	2,40545E-06	6,19583E-08	-2,90933E-11	8,12564E-15	-
ν	$\left[\frac{\text{m}^2}{\text{s}}\right]$	-4,30344E-06	3,69806E-08	1,06496E-10	-1,43295E-14	-
Sc		8,22853E-01	-6,78850E-04	1,34004E-06	-1,05404E-09	3,00958E-13

η_D^*	$\left[\frac{\text{kg}}{\text{ms}}\right]$	9,186109E-06	2,597258E-08	6,312254E-11	-1,421265E-13	-
------------	--	--------------	--------------	--------------	---------------	---

Gültigkeitsbereich $273,15 \leq T \leq 1273,15\text{K}$

$$\text{Parameter} = a + bT + cT^2 + dT^3 + eT^4$$

Quelle: VDI Wärmeatlas /78/ mit Korrelationen nach Eden /21/

A3 Oberflächenspannung

Die Oberflächenspannung für Wasser wird nach Kestin /39/ berechnet.

$$\sigma = \bar{\sigma} \cdot \sigma^*$$

mit der Referenzoberflächenspannung $\sigma^* = 0,2358\text{N/m}$ und der dimensionslosen Oberflächenspannung:

$$\bar{\sigma} = \left(\frac{\bar{T}c - \bar{T}}{\bar{T}c} \right)^\kappa \cdot \left[1 + B \left(\frac{\bar{T}c - \bar{T}}{\bar{T}c} \right) \right]$$

mit $\bar{T} = 0,999686$ $\kappa=1,256$ und $B=-0,625$

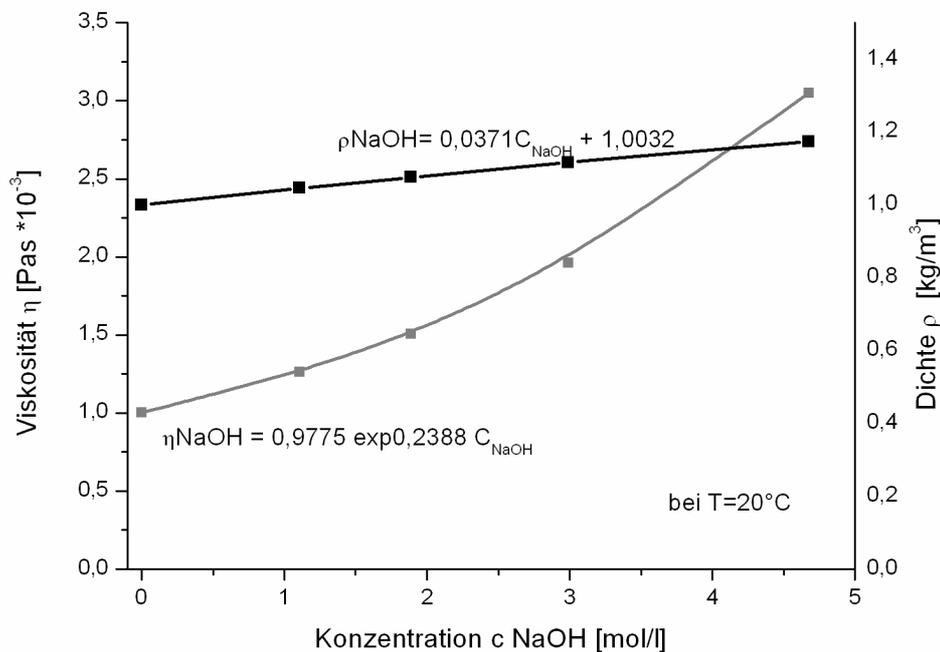
die dimensionslose Temperatur berechnet sich nach:

$$\bar{T} = T / T^*$$

mit

$T^* = 647,27K$ und $T [K]$ der aktuellen Temperatur

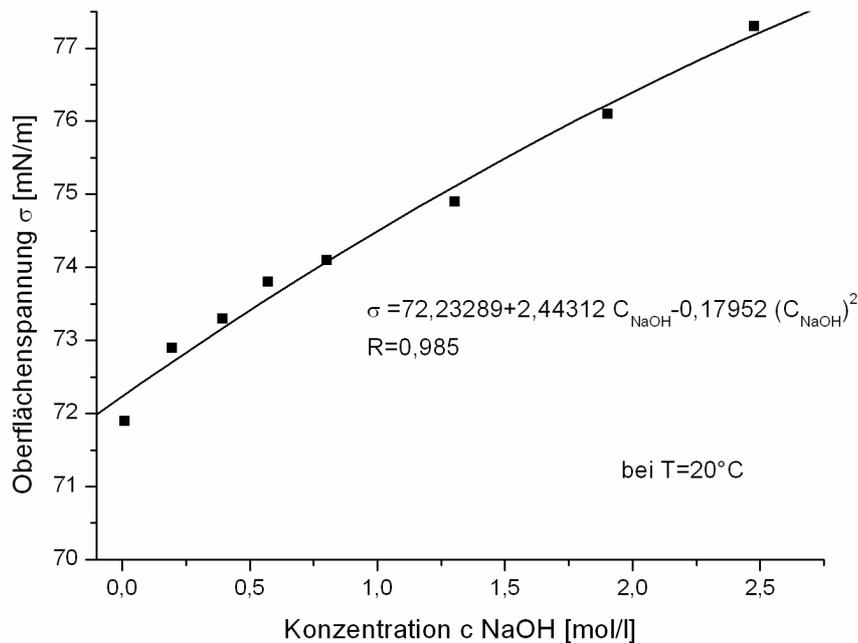
A3 Stoffdaten von NaOH-Lösungen



Die tabellarischen Stoffwerte von Lobo /43/ wurden als Funktion der NaOH Konzentration korreliert.

mit dem Gültigkeitsbereich von $c_{\text{NaOH}} = 0 - 4,7 \text{ mol/l}$ und $T=20^\circ\text{C}$

Die Oberflächenspannung wurde mit einem Oberflächenspannung-Tensiometer (Fa. Sita Messtechnik GmbH) experimentell bestimmt. Die Werte wurden als Funktion der NaOH Konzentration korreliert.



mit dem Gültigkeitsbereich von $c_{\text{NaOH}} = 0 - 2,5$ mol/l bei $T=20^\circ\text{C}$

A4 Kalorische Daten für gasförmige und flüssige Komponenten

	$\Delta g_{f,0,i}^{\square g}$	$\Delta h_{f,i}^{\square g}$	$\Delta c_{p,0,i}^{\square g}$	$\Delta g_{f,i}^{\square l}$	$\Delta h_{f,i}^{\square l}$	$\Delta c_p^{\square l}$
	[kJ/mol]	[kJ/mol]	[J/mol K]	[kJ/mol]	[kJ/mol]	[J/mol K]
CO ₂	-394,359	-393,509	37,110	-385,980	-413,800	
H ₂ O ¹	-228,572	-241,818	33,577	-237,141	-285,830	75,300
OH ⁻				-157,244	-229,994	-238,648
CO ₃ ²⁻				-527,810	-677,140	-632,207
HCO ₃ ⁻				-586,770	-691,660	-200,966

□l hypotetisch einmolalen Lösung einer einzigen Komponente in Wasser

□g Referenzzustand des idealen Gas

0 Standardzustand ($T^0=298,15$ K, $p^0=0,1$ MPa)

¹ bei den Werten von Wasser im flüssigen Zustand handelt es sich um Referenzwerte der reinen Flüssigkeit

Quelle: JANAF /13/

B Experimentelle Ergebnisse zur Pressung

Vollständige Darstellung der erreichbaren Pressung bezogen auf den Ansaugdruck in Abhängigkeit von der Gasgeschwindigkeit und der Höhe für verschiedene Flüssigkeitsvolumenströme.

