

Lehrstuhl für Fluidverfahrenstechnik
Technische Universität München

Stoffübergang im Tropfenschwarm unter dem Einfluss von Marangonikonvektionen

Martin Tourneau

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Maschinenwesen
der Technischen Universität München zur Erlangung des akademischen Grades eines
Doktor-Ingenieurs
genehmigten Dissertation.

Vorsitzender: Univ. Prof. Dr. K. Strohmeier
Prüfer der Dissertation: 1. Univ.-Prof. Dr.-Ing. Dr.-Ing. habil J. Stichlmair
2. Univ.-Prof. Dr.-Ing. Dr.-Ing. E. h. E. Blaß, emeritiert

Die Dissertation wurde am 15.01.2004 bei der Technischen Universität München
eingereicht und durch die Fakultät für Maschinenwesen am 24.03.2004 angenommen.

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Lehrstuhl für Fluidverfahrenstechnik der Technischen Universität München. Mein herzlichster Dank gebührt meinem Lehrer und Doktorvater Herrn Prof. Dr.-Ing. J. Stichlmair für seine engagierte Betreuung, das Schaffen idealer Arbeitsbedingungen, die Gewährung großer Freiräume und für das mir stets entgegengebrachte Vertrauen.

Herrn Prof. Dr.-Ing. E. Blaß danke ich für die Übernahme des Korreferates und für sein stetes Interesse sowie seine Diskussionsbereitschaft. Herrn Dr.-Ing. S. Wolf danke ich für die Einführung in das Arbeitsgebiet und die Messtechnik.

Herrn Prof. Dr. K. Strohmeier danke ich für die Übernahme des Vorsitzes der Prüfungskommission.

Frau D. Styrnik und Frau S. Dosch danke ich für die präzisen und umfangreichen analytischen Arbeiten im Labor, Frau R. Majewski und Frau M. Schmid für die Bearbeitung vielfältiger Verwaltungsaufgaben. Mein Dank gilt Herrn S. Buhlmann, Herrn P. Buchbauer, Herrn P. Hocke, Herrn L. Poller, Herrn L. Hinterneder, Herrn W. Papzien-Kahl und Herrn B. Faltenbacher für ihre Unterstützung und Durchführung von zahlreichen Planungs- und Konstruktionsarbeiten an meiner Versuchsanlage.

Herrn Dr. Prasser und Herrn A. Grahn vom Forschungszentrum Rossendorf danke ich für die Unterstützung bei der Durchführung der numerischen Simulationen.

Mein besonderer Dank gilt meinen Semestranden, Diplomanden und studentischen Hilfskräften, die wesentlich zum Gelingen meiner Arbeit beitrugen: Herrn L. Bauer, Frau R. Burda, Herrn D. Dueñas, Frau S. Fedrau, Herrn M. Kammermaier, Herrn U. Kneifel, Frau L. Krauch, Herrn A. Kusterer, Herrn D. Lill, Frau L. Marin, Herrn K. Müller, Herrn F. Peterat, Herrn S. Rennschmid, Herrn D. Rivera, Frau S. Stocker, Frau A. Thalhammer und Herrn A. Winkler.

Ganz besonders würdigen und danken möchte ich Herrn Dr.-Ing. M. Greiner, der meine Arbeit stets mit größtem Interesse begleitet hat und mir mit zahlreichen, äußerst konstruktiven Diskussionen zur Seite stand.

Bei meinen Kollegen möchte ich mich herzlich für das angenehme, kooperative Arbeitsklima am Lehrstuhl bedanken, das sehr zum Gelingen meiner Arbeit beitrug.

München, im April 2004

Meiner Familie gewidmet.

Inhalt

1	Einleitung	13
1.1	Zielsetzung	14
1.2	Lösungsansatz	15
2	Versuchsaufbau	17
2.1	Erzeugung eines räumlich fixierten Tropfenschwarms	17
2.2	Messzelle für Stoffübergangsuntersuchungen	22
2.3	Führung der kontinuierlichen Phase	28
3	Messtechnik	31
3.1	Holografische Interferometrie	31
3.2	Laser-Doppler-Anemometrie	35
3.3	Konzentrationsbestimmung	37
4	Experimentelle Untersuchungen	41
4.1	Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser	42
4.2	Bestimmung des Stoffdurchgangskoeffizienten	46
4.3	Stofftransport am Einzeltropfen	47
4.4	Einzelner Tropfen mit Stofftransport im Schwarm	50
4.5	Diskussion der Versuchsergebnisse am Einzeltropfen	55
4.6	Stofftransport im Schwarm	60
4.7	Geschwindigkeitsmessungen	75
4.8	Vergleich der Versuchsergebnisse mit theoretischen Modellen	80
5	Numerische Untersuchungen	85
5.1	Ableitung der Erhaltungsgleichungen	85
5.2	Numerische Behandlung der Transportgleichungen	91
5.3	Durchführung der Simulation	92

5.4	Darstellung der Ergebnisse	95
5.5	Stofftransport am Einzeltropfen	96
5.6	Einfluss der Konzentration	106
5.7	Stofftransport im Schwarm	114
6	Zusammenfassung	123
A	Stoffdaten	127
A.1	Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser	127
A.2	Stoffsystem Toluol/Aceton/Wasser	131
B	Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen	135
B.1	Bestimmung der Massenstromdichte	135
B.2	Stofftransport am Einzeltropfen	136
B.3	Einzelner Tropfen mit Stofftransport im Schwarm	137
B.4	Stofftransport im Schwarm	143
C	Ergebnisse der numerischen Untersuchungen	147
C.1	Stofftransport am Einzeltropfen	147
C.2	Stofftransport im Schwarm	150
D	Studienarbeiten	153
	Literaturverzeichnis	155

Formelzeichenverzeichnis

Symbol	Einheit	Bedeutung
<i>Basiszeichen und Abkürzungen</i>		
A	m^2	Fläche
B	m	Länge, durchstrahlte Weglänge der Messzelle
c	kg/m^3	Konzentration
d	m	Durchmesser
$D_{i,j}$	m^2/s	Diffusionskoeffizient der Komponente i in j
f	s^{-1}	Frequenz
F_{MK}	-	Faktor Marangonikonvektion, Gl. 4.16
$F_{Sch,15}$	-	Faktor Schwarmeinfluss nach 15 s, Gl. 4.8
g	m^2/s	Erdbeschleunigung, $g = 9,81 \text{ m}^2/\text{s}$
H	J	Enthalpie
J		Fluss
k	m/s	Stoffdurchgangskoeffizient, Gl. 4.5
l	m	Abstand, Länge
L	m	charakteristische Länge, Durchmesser
\dot{m}	$\text{kg}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$	Massenstromdichte, Gl. B.1
M	kg	Masse
\dot{M}	kg/s	Massenstrom
n_D	-	Brechzahl bei einer Wellenlänge von $\lambda = 589 \cdot 10^{-9} \text{ m}$
N	-	Verteilungskoeffizient, eine natürliche Zahl
P	-	Partikel
r	m	Radius
s	m	Wandstärke, Schichtdicke
S	-	Senke, Quelle
SNR	dB	Signal-Rausch-Verhältnis
t	s	Zeit
T	$^{\circ}\text{C}$	Temperatur
T	-	Turbulenzgrad, Gl. 3.6
u	m/s	Geschwindigkeit

Symbol	Einheit	Bedeutung
v	m/s	Geschwindigkeit
V	m ³	Volumen
w	m/s	Geschwindigkeit
x	kg/kg	Massenanteil (in der kontinuierlichen Phase)
y	kg/kg	Massenanteil (in der dispersen Phase)
z	-	Massenanteil (Gl. 5.23)
<i>Griechische Symbole</i>		
β	m/s	Stoffübergangskoeffizient, Gl. 5.20
η	kg/(m·s)	dynamische Viskosität
Γ_ψ		allgemeiner Diffusionskoeffizient, Gl. 5.6
λ	m	Wellenlänge
ν	m ² /s	kinematische Viskosität
ψ		physikalische Eigenschaft, Gl. 5.4
ρ	kg/m ³	Dichte
τ	s	Zeitintervall
φ	° oder rad	Winkel
σ	N/m	Grenzflächenspannung
ε_i	-	Holdup, Volumenanteil der Komponente i , $\varepsilon_i = V_i/V_{ges}$
<i>Kopf- und Fußzeiger</i>		
0		den Beginn eines Experiments/einer Rechnung betreffend
3ClT		3-Chlortoluol, die 3-Chlortoluolphase betreffend
Ac		Aceton
c		die kontinuierliche Phase betreffend
d		die disperse Phase betreffend
D		Diffusion
ET		Einzeltröpfchen
Exp		experimentell
ges		gesamt
GF		Glasfilterplatte

Symbol	Einheit	Bedeutung
<i>Gol</i>		das Modell von Golovin betreffend (Abschnitt 4.8.1)
<i>i, j</i>		Laufvariable
<i>K</i>		Kugel
<i>krit</i>		kritisch
<i>m</i>		mittel, einen Mittelwert kennzeichnend
<i>max</i>		maximal, einen Maximalwert kennzeichnend
<i>min</i>		minimal, einen Minimalwert kennzeichnend
<i>MK</i>		Marangonikonvektion
<i>MZ</i>		Messzelle
<i>n</i>		normal, senkrecht
<i>P</i>		Partikel, Pore
<i>PG</i>		Phasengrenze
<i>Sch</i>		Schwarm
<i>SG</i>		Strömungsgleichrichter
<i>t</i>		tangential
<i>T</i>		Toluol, die Toluolphase betreffend
<i>th</i>		theoretisch
<i>Tr</i>		Tropfen
<i>W</i>		Wasser, die Wasserphase betreffend
ω		das Ende eines Experiments/einer Rechnung betreffend
*		im Gleichgewicht stehend
∞		die Kernphase betreffend, unendlich
<i>Kennzahlen</i>		
<i>Ma</i>		Marangonizahl, $Ma = L/(D \cdot (\eta_1 + \eta_2)) \cdot \partial\sigma/\partial x \cdot \Delta x$
<i>Re</i>		Reynoldszahl, $Re = (w \cdot d_{Tr} \cdot \rho)/\eta$ (auf den Tropfendurchmesser bezogen, wenn nicht anders angegeben)
<i>Sc</i>		Schmidtzahl, $Sc = \nu/D$
<i>Sh</i>		Sherwoodzahl, $Sh = (\dot{m} \cdot L)/(D \cdot \Delta c) = (\beta \cdot L)/D$

Symbol	Einheit	Bedeutung
--------	---------	-----------

Mathematische Zeichen und Operatoren

$\hat{=}$		entspricht
\approx		ungefähr
r^2		Bestimmtheitsmaß, Güte einer Korrelation, $0 \leq r^2 \leq 1$
Δ		Differenz
π		Kreiszahl
σ^2		Varianz, Gl. 3.5

1 Einleitung

Technische Apparate, in denen Extraktionen ablaufen, müssen für jeden einzelnen Anwendungsfall neu ausgewählt und dimensioniert werden. Um geeignete Modellvorstellungen und Rechenverfahren dafür entwickeln zu können, ist die genaue Kenntnis der Gesetzmäßigkeiten der ablaufenden Vorgänge erforderlich.

Der maßgebliche Vorgang in Extraktionskolonnen ist der Stoffübergang zwischen der kontinuierlichen und der dispersen Phase, die in Form eines Tropfenschwarms vorliegt. Aufgrund der aus dem Stoffübergang resultierenden Konzentrationsdifferenzen können im Bereich der Phasengrenze Grenzflächenkonvektionen, so genannte Marangonikonvektionen, ausgelöst werden, die einen signifikanten Einfluss auf den Stoffübergang besitzen. Die auftretenden Marangonikonvektionen beeinflussen zum einen direkt den Stofftransport an den betreffenden Tropfen, reichen zum anderen aber auch teilweise bis weit in die kontinuierliche Phase hinein.

Die meisten theoretischen und experimentellen Forschungsarbeiten auf dem Gebiet der Marangonikonvektionen wurden an ruhenden, ebenen Phasengrenzen oder an Einzeltropfen durchgeführt. Detaillierte Untersuchungen an Tropfenschwärmen und insbesondere der damit verbundenen Wechselwirkungen fehlen. Dies ist begründet durch nicht vorhandene oder nicht ausreichend entwickelte Messtechniken und Versuchsanordnungen, vor allem aber durch die bisher fehlende Möglichkeit, Tropfenschwärme ortsfest zu halten.

In dieser Arbeit wird erstmals eine Methode zur Erzeugung eines räumlich fixierten Tropfenschwarms eingesetzt und mit laseroptischen Messmethoden kombiniert. Die Erfassung von Konzentrations- und Strömungsprofilen sowie der übergegangenen Stoffmengen ermöglicht eine detaillierte und umfassende Beobachtung der während des Stoffübergangs ablaufenden Vorgänge. Durch die Variation wesentlicher Parameter und die Untersuchung mehrerer simultan am Stofftransport beteiligter Tropfen können die Haupteinflussgrößen bestimmt und Wechselwirkungen zwischen benachbarten Tropfen erfasst werden. Parallel werden numerische Untersuchungen des Stofftransportes an einer identi-

schen Geometrie durchgeführt. Diese erweitern das Verständnis der experimentell ermittelten Erkenntnisse, indem sie es erlauben, einzelne Stofftransportmechanismen isoliert oder ihr Zusammenwirken und ihre wechselseitige Beeinflussung zu betrachten.

1.1 Zielsetzung

Ziel der vorliegenden Arbeit ist die Ermittlung der Gesetzmäßigkeiten des Stofftransportes in Tropfenschwärmen unter dem Einfluss von Marangonikonvektionen. Im Mittelpunkt der Arbeiten stehen die systematische Beobachtung und Analyse der durch Phasengrenzkonvektionen verursachten Wechselwirkungen zwischen benachbarten Tropfen. Es soll geklärt werden, ob und in welcher Weise mehrere gleichzeitig auftretende Phasengrenzkonvektionen an benachbarten Tropfen miteinander wechselwirken und welchen Einfluss diese auf den Stoffübergang an Tropfen ausüben, an denen zunächst keine Phasengrenzkonvektionen bestehen.

Bisher wurden Untersuchungen zum Einfluss von Marangonikonvektionen auf den Stoffübergang zwischen fluiden Phasen vorwiegend an ebenen Phasengrenzen und an Einzeltropfen durchgeführt. In den in der Praxis eingesetzten Stoffaustauschapparaten liegt jedoch in der Regel eine der beiden Phasen in Form eines Tropfenschwarms vor. Durch die systematische Untersuchung der Gesetzmäßigkeiten des Stoffübergangs an Tropfenschwärme unter dem Einfluss von Marangonikonvektionen bei variierenden Randbedingungen soll ein Beitrag zu einem erhöhten Verständnis der Vorgänge in Flüssig-flüssig-Extraktoren geleistet werden.

Die durchgeführten Arbeiten dienen der Beantwortung folgender Fragen:

- Welche Phänomene treten auf?
- Lässt sich ein Zusammenhang zwischen dem Stoffübergang, dem Strömungszustand der kontinuierlichen Phase sowie den auftretenden Phänomenen herstellen?
- Welchen Einfluss hat das Konzentrationsprofil in der kontinuierlichen Phase auf das Auftreten von Grenzflächenkonvektionen?
- Treten Wechselwirkungen innerhalb des Tropfenschwarms auf? Lassen sich diese klassifizieren?
- Welchen Einfluss haben geometrische Parameter (z. B. räumliche Anordnung der Tropfen) auf die auftretenden Phänomene?

- Wie verändern auftretende Konvektionen das Konzentrationsprofil und welche Auswirkungen hat dies auf den lokalen und globalen Stoffübergang?

1.2 Lösungsansatz

Um ein tieferes Verständnis der Vorgänge beim Stofftransport in Tropfenschwärmen unter dem Einfluss von Marangonikonvektionen zu erhalten, werden die experimentellen Untersuchungen an einem räumlich fixierten Tropfenschwarm durchgeführt. Dies ermöglicht es, wesentliche Parameter exakt vorzugeben und zu reproduzieren sowie Konzentrations- und Strömungsprofile sehr detailliert zu erfassen. Bei den experimentellen Arbeiten werden an einem räumlich fixierten Tropfenschwarm die lokalen Geschwindigkeiten der kontinuierlichen Phase mittels Laser-Doppler-Anemometrie und die Konzentrationsprofile im Bereich der Phasengrenze mittels holografischer Interferometrie bestimmt. Aus den zeitlichen Schwankungen der Geschwindigkeiten und Konzentrationen sowie der Analyse der übergegangenen Stoffmengen kann das Auftreten und die Intensität von Marangonikonvektionen sowie deren Einfluss auf den Stofftransport beurteilt werden.

Für den gesamten, experimentell bestimmbaren Stofftransport sind eine Reihe unterschiedlicher Stofftransportmechanismen verantwortlich, die in komplizierter Weise miteinander wechselwirken. Im Experiment lassen sich diese unterschiedlichen Mechanismen nicht oder nur mit sehr großem Aufwand getrennt voneinander untersuchen. Deshalb werden numerische Untersuchungen durchgeführt, um die einzelnen Einflüsse quantifizieren und die Art und Weise der Wechselwirkungen bestimmen zu können.

2 Versuchsaufbau

Der überwiegende Teil von Untersuchungen des durch Phasengrenzflächenkonvektionen beeinflussten Stofftransportes wurde an ebenen Phasengrenzen oder an Einzeltropfen durchgeführt. Eine ausführliche Übersicht von auf diesem Gebiet durchgeführten Arbeiten und der dazu eingesetzten Apparaturen findet sich in [87, 112]. Auch neuere Arbeiten konzentrieren sich auf diese einfachen Geometrien. Dabei werden entweder neuartige Messtechniken eingesetzt, die eine höhere räumliche Auflösung besitzen [11, 12, 52, 65, 97] oder es wird das Ziel verfolgt, die beobachteten Vorgänge beispielsweise mittels CFD (**C**omputational **F**luid **D**ynamics) zu modellieren [35, 36, 83, 105].

Ziel der vorliegenden Arbeit ist die Ermittlung von Gesetzmäßigkeiten beim Stofftransport in Tropfenschwärmen unter dem Einfluss von Marangonikonvektionen. Es soll geklärt werden, ob und in welcher Weise mehrere gleichzeitig auftretende Marangonikonvektionen miteinander wechselwirken. Zur Durchführung der experimentellen Untersuchungen wurde der im Folgenden beschriebene Versuchsaufbau konstruiert, der den Einsatz der Laser-Doppler-Anemometrie (Abschnitt 3.2) zur Erfassung von Geschwindigkeitsprofilen sowie den Einsatz der holografischen Interferometrie (Abschnitt 3.1) zur Visualisierung von Konzentrationsgradienten erlaubt. Um das Potential dieser Messtechniken voll ausschöpfen zu können und um verwertbare und vergleichbare Daten zu erhalten, ist eine räumliche Fixierung des Tropfenschwarms erforderlich. Parameter wie Tropfengröße, Tropfenabstand, Startkonzentrationen, Strömungsgeschwindigkeit und Kontaktzeit können mit dieser Anordnung in weiten Bereichen und unabhängig voneinander variiert werden und sind gut reproduzierbar. Damit gelingt es, den Einfluss einzelner Größen gezielt zu untersuchen und zu quantifizieren.

2.1 Erzeugung eines räumlich fixierten Tropfenschwarms

Die einzelnen Tropfen werden mit Hilfe von Kugeln erzeugt, die von der Dispersphase (3-Chlortoluol) gut und von der kontinuierlichen Phase (Wasser) schlecht benetzt werden. In Abb. 2.1 ist die Anordnung exemplarisch für die Erzeugung eines einzelnen

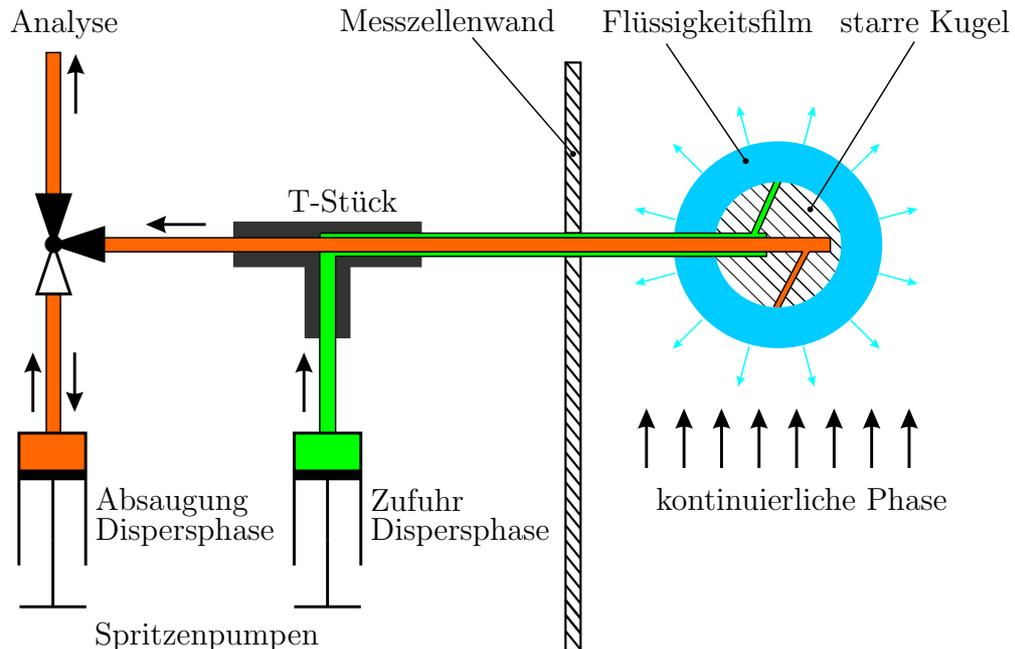


Abb. 2.1: Versuchsanordnung zur Tropfenerzeugung mittels starrer Kugeln; die Zufuhr der organischen Phase erfolgt durch die äußere, das Absaugen über die innere Kapillare

Tropfens gezeigt. Durch die Verwendung mehrerer dieser Anordnungen kann ein Tropfenschwarm näherungsweise realisiert werden.

Die aus PTFE (Polytetrafluorethylen) bestehende Kugel ($d_K = 10 \text{ mm}$) ist mit zwei konzentrischen Bohrungen ($d_1 = 1,6 \text{ mm}$, $d_2 = 0,8 \text{ mm}$) unterschiedlicher Tiefe versehen. Die größere Bohrung endet 2 mm vor, die kleinere Bohrung endet 2 mm hinter dem Zentrum der Kugel. Zusätzlich sind von den beiden Polen der Kugel ausgehend zwei Querbohrungen ($d_3 = 1 \text{ mm}$) angebracht, die jeweils auf ein Ende der konzentrischen Bohrungen treffen. Zwei Kapillaren werden so in die beiden konzentrischen Bohrungen geschoben, dass sie Verbindung zu jeweils einer der Querbohrungen besitzen. Durch die Wahl einer geeigneten Presspassung dichten die Mantelflächen der Kapillaren gegen das Kugelmaterial ab. Die beiden ineinander liegenden Kapillaren werden durch die Glascheibe der Messzelle geführt und in einem T-Stück mit unterschiedlichen Anschlussdurchmessern voneinander getrennt. Die innere Kapillare ist über ein 3-Wege-Ventil, die äußere direkt mit einer Spritzenpumpe verbunden.

Die Abb. 2.1 zeigt die beschriebene Anordnung für den Fall, dass die organische Dispersphase eine höhere Dichte besitzt als die umgebende Wasserphase. Ein vorgegebenes

Volumen der Dispersphase wird mittels einer Spritzenpumpe in die äußere Kapillare gefördert und gelangt über die obere Querbohrung an die Kugeloberfläche. Dort breitet es sich aufgrund der guten Benetzungseigenschaften und des Dichteunterschiedes zwischen den Phasen schnell auf der Kugeloberfläche aus. Die Dispersphase bildet eine dicke, äußerst bewegliche Schicht aus, die deutlichen Tropfencharakter besitzt. Die Kugeln dienen nur als Stützkonstruktion für die Bildung und die räumliche Fixierung der Tropfen, ohne den Stofftransport aus dem Film in die umgebende Phase signifikant zu beeinflussen. Das Volumen der jeweils dosierten organischen Phase ($V_{Tr} = 0,5$ ml) entspricht bei den durchgeführten Untersuchungen etwa dem Kugelvolumen. Daraus resultiert eine mittlere Dicke der Tropfenphase von $s_{Tr} = 1,3$ mm. Umfangreiche Vorversuche haben gezeigt, dass bei dieser Filmdicke Zirkulationsströmungen innerhalb des Flüssigkeitsfilms möglich sind, die Voraussetzung für das Auftreten ausgeprägter Marangonikonvektionen sind. Der Einfluss der starren, inneren Kugel auf die Beweglichkeit der Tropfenphase ist somit von untergeordneter Größenordnung. Dies bestätigen auch die in Kap. 5 beschriebenen Ergebnisse der mittels CFD-Software durchgeführten Berechnungen. Durch die Wahl eines Stoffsystems mit einer geringen Dichtedifferenz zwischen kontinuierlicher und disperser Phase können die Auftriebskräfte reduziert werden und somit über den Kugelumfang konstante Filmdicken, die mehrere Millimeter betragen können, erzielt werden (Abschnitt 4.1).

Zwischen der Tropfenphase (3-Chlortoluol) und der kontinuierlichen Wasserphase besteht eine ausgeprägte Mischungslücke (Abschnitt 4.1). Für die Untersuchungen des Stofftransportes wird der Tropfenphase eine Übergangskomponente (Aceton), die in beiden Hauptphasen löslich ist, zugegeben. Mit der Tropfenerzeugung beginnt der Stofftransport der Übergangskomponente in die kontinuierliche Phase.

In Abhängigkeit von der Dichtedifferenz zwischen den beteiligten Phasen ist der Film an der Unterseite der Kugel etwas dicker als an der Oberseite. Nach einer vorgegebenen Zeitdauer wird der Tropfen über die untere Querbohrung und durch die innere Kapillare abgesaugt. Auch dies wird durch den geringen Dichteunterschied unterstützt und es kann nahezu der gesamte Tropfen mit Hilfe der Spritzenpumpe abgesaugt werden. Nach Umschalten des 3-Wege-Ventils wird die Tropfenphase in ein Probengefäß gefördert und anschließend einer Analyse zugeführt. Die Zeit für die Tropfenbildung bzw. für das Absaugen beträgt etwa eine Sekunde und ist damit deutlich kleiner als die untersuchten Stoffübergangszeiten.

Durch Minimierung der Dichtedifferenz zwischen beiden Phasen kann eine nahezu

ideale Kugelform erzeugt werden. Außerdem ist es in diesem Fall möglich, sehr große Filmdicken (erreichbar sind Filmdicken bis $s_{Tr,max} \approx 8$ mm) mit einer nahezu frei beweglichen Grenzfläche zu erzeugen, wodurch auch Strömungen im Inneren des Films (Zirkulationsströmungen) möglich werden. Infolge des größeren Verhältnisses von Filmoberfläche zu Filmvolumen resultieren gegenüber einem realen Tropfen während eines Versuches entsprechend größere Konzentrationsänderungen. Dadurch lassen sich auch noch geringe übergegangene Stoffmengen quantifizieren.

Die beschriebene Konstruktion gewährleistet, dass die zudosierte Flüssigkeit nicht mit der Flüssigkeit in Kontakt kommt, die bereits am Stofftransport beteiligt gewesen ist.

Die Spritzenpumpen bestehen aus einer Vorrichtung zur Fixierung von jeweils bis zu acht Spritzen und einem mit den Spritzenkolben verbundenen Schlitten. Der Schlitten wird über eine Spindel von einem Schrittmotor angesteuert. Die Steuerung der bis zu vier parallel eingesetzten Pumpen erfolgt mit Hilfe eines Rechners. Mit einem in Microsoft Visual Basic geschriebenen Programm können alle für einen Versuchsdurchlauf erforderlichen Aktionen nach einem frei wählbaren Zeitablauf und für jede Pumpe individuell ausgeführt werden. Die weitgehende Automatisierung erlaubt eine hohe Reproduzierbarkeit der Versuchsergebnisse.

Die Anlagenteile, die mit Versuchsflüssigkeiten in Kontakt geraten, bestehen aus weitgehend inertem Materialien. Es wurden totvolumenfreie Fittings aus der HPLC-Analysentechnik sowie Sonderanfertigungen aus Edelstahl (z. B. 1.4301), PTFE (Polytetrafluorethylen), PEEK (Polyetheretherketon) und Glas (B 270) verwendet. Die Konstruktion ist auch bei den großen Differenzdrücken, die beim Fördern der Versuchsflüssigkeiten in den Kapillaren auftreten dicht. Die Durchmesser und die Längen der Kapillaren sind möglichst klein gewählt, um optimale Voraussetzungen für eine hohe Genauigkeit der Analysenergebnisse zu schaffen. Andererseits dürfen die entstehenden Druckverluste nicht zu groß werden, damit die geforderten Zeiten für den Filmauf- und den Filmabbau mit den verwendeten Pumpen eingehalten werden konnten.

Durch das in der inneren Kapillare befindliche Volumen resultiert ein Messfehler bei der Bestimmung der Dispersphasenzusammensetzung. Wird der Flüssigkeitsfilm abgesaugt, so gelangt zunächst das Volumen aus dem vorausgegangenem Versuch, das sich noch in der Kapillare befindet, in die Spritzenpumpe. Daneben verbleibt wiederum ein Teil der Tropfenphase aus dem aktuellen Versuch in der Kapillare. Um diesen Einfluss zu minimieren, wird jeder Versuch 10 Mal wiederholt und die gesamte abgesaugte Tropfenphase miteinander vermischt. Der maximale Fehler bei der Probenahme wird hierdurch

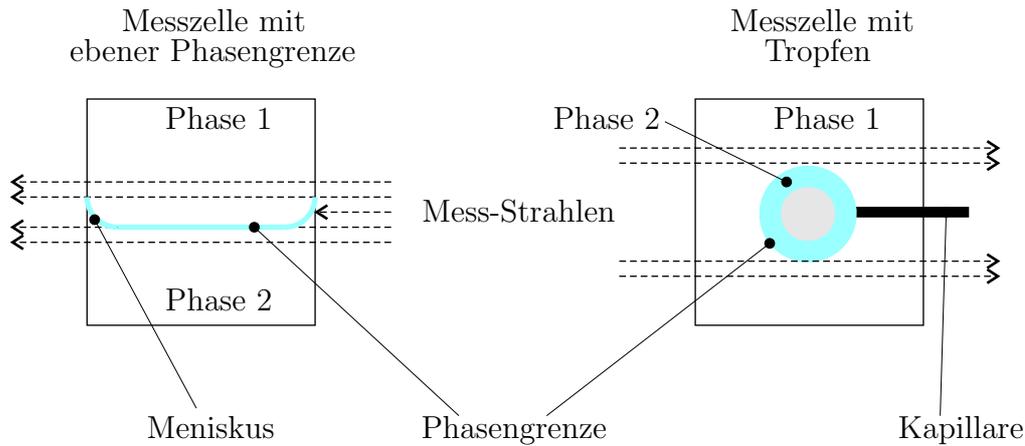


Abb. 2.2: Strahlengang im Bereich der Phasengrenze für ebene und sphärische Geometrie. Rechts ist eine Beobachtung bis unmittelbar an die Phasengrenze möglich, während dies links durch die Ausbildung eines Meniskus verhindert wird.

bereits auf maximal 2 %, bezogen auf die Konzentration der Übergangskomponente im Tropfen zu Versuchsbeginn, gesenkt. Zusätzlich wird vor jedem Versuchsdurchlauf ein Tropfen unter identischen Bedingungen aufgebaut und wieder abgesaugt, um diesen Einfluss weiter zu reduzieren.

Die beschriebene Anordnung ermöglicht die Erzeugung von sphärischen Flüssigkeitsfilmen, die nachweislich deutlichen Tropfencharakter aufweisen. Die räumliche Fixierung erlaubt die detaillierte Beobachtung von Stofftransportvorgängen mit den in Kap. 3 beschriebenen Messtechniken über beliebig große Zeiträume. Durch die Tropfengeometrie und die Anordnung mehrerer Tropfen zu einem Tropfenschwarm können die realen Verhältnisse, wie sie beispielsweise in Siebbodenextraktionskolonnen vorliegen, annähernd gut wiedergegeben werden. Ein weiterer Vorteil der Tropfengeometrie gegenüber einer ebenen Phasengrenze ergibt sich beim Einsatz der optischen Messtechniken. Bei den meisten von anderen Autoren verwendeten Versuchsaufbauten gelang es infolge der Ausbildung störender Menisken nicht, die zu untersuchenden Vorgänge mit optischen Messmethoden bis direkt an die Phasengrenze zu beobachten. Mit der beschriebenen Versuchsanordnung wird die Ausbildung eines den Strahlengang beeinflussenden Meniskus vermieden (Abb. 2.2). Dadurch wird es möglich, selbst direkt an der Phasengrenze Strömungs- und Konzentrationsfelder zu erfassen.

Durch die Größenverhältnisse zwischen Tropfen und Kapillare sowie durch die seitliche Zuführung der Kapillaren werden die Strömungsverhältnisse nur minimal beeinflusst.

Insbesondere im Bereich des Staupunkts und auf der Abströmseite sind keine störenden Einflüsse zu erwarten.

2.2 Messzelle für Stoffübergangsuntersuchungen

Die Messzelle ist als vertikaler Strömungskanal ausgebildet (Abb. 2.3). Sie dient der Aufnahme des Tropfenschwarms, der Führung der kontinuierlichen Phase und ermöglicht den Zugang der optischen Messtechniken. Der ca. 100 mm · 100 mm große Mittelteil, der die Tropfenanordnung enthält, wird teilweise aus Glas gefertigt, um den Zugang für die optischen Messverfahren zu ermöglichen. Durch die Anordnung mehrerer Tropfen in der Messzelle, die mit der in Kap. 2.1 beschriebenen Methode erzeugt werden, gelingt die Realisierung eines ortsfesten Tropfenschwarms. Für die durchgeführten Untersuchungen wurde eine Anordnung von insgesamt 27 Kugeln, von denen bis zu 14 mit einem Flüssigkeitsfilm benetzt werden können, eingesetzt. Die Anordnung der Tropfen erfolgt in einer regelmäßigen Dreiecksteilung mit einem Abstand der Mittelpunkte von $l = 20$ mm (Abb. 2.4). Folgende Forderungen sind bei der Konstruktion berücksichtigt:

- möglichst realitätsnahe Nachbildung eines Tropfenschwarms
- räumliche Fixierung der Tropfen
- reproduzierbares Strömungsprofil
- Zugangsmöglichkeit für optische Messverfahren
- Möglichkeit der Variation geometrischer Parameter (Größe, Abstände, und Anordnung der Tropfen)
- Variation des Massenstroms der kontinuierlichen Phase
- einfache Konstruktion mit wenigen Dichtflächen
- Vermeiden von Schweißverbindungen
- ausschließlich Verwendung inerter Materialien für Medien berührende Teile

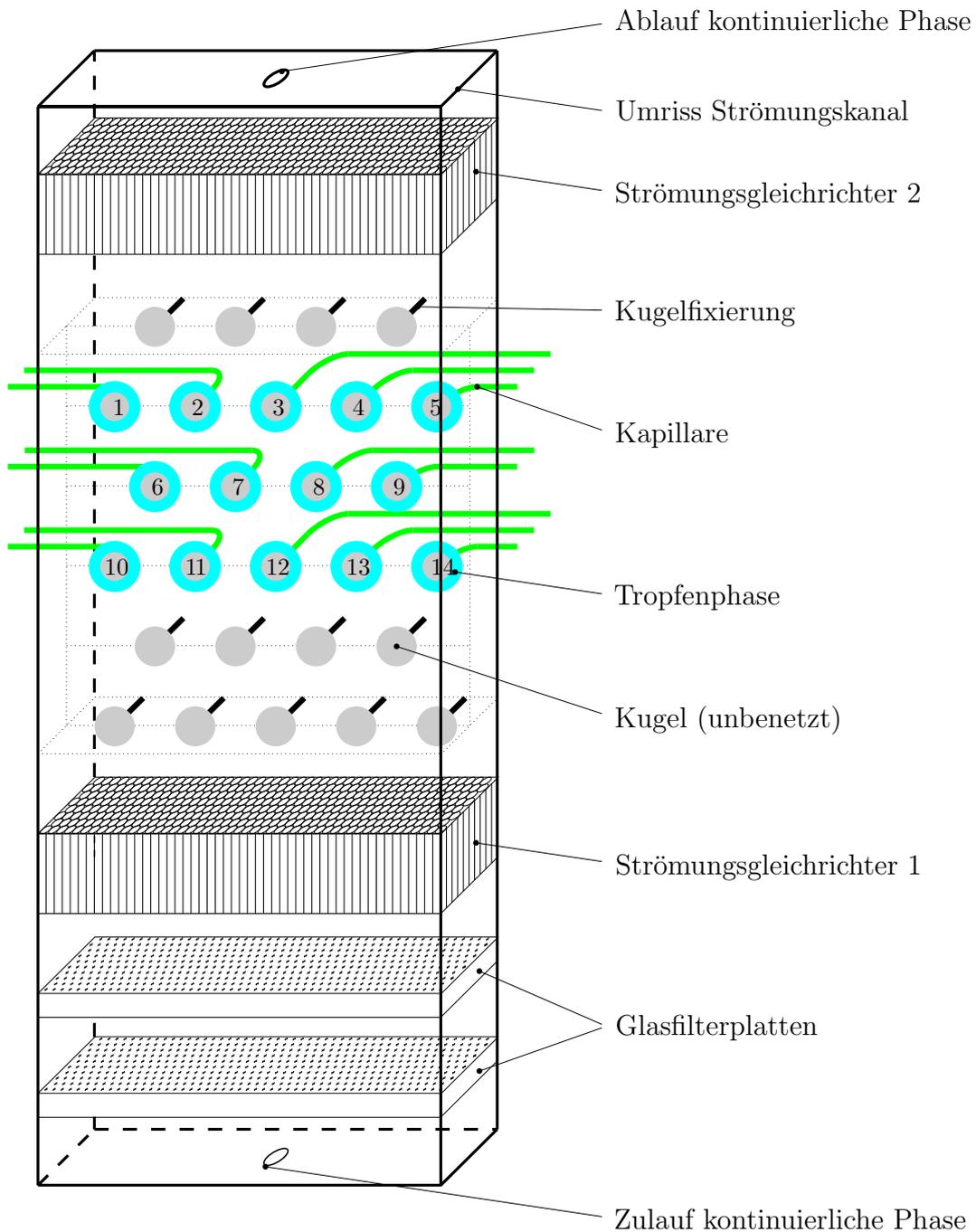


Abb. 2.3: Schematische Darstellung der Messzelle für die Stofftransportuntersuchungen. Die kontinuierliche Phase tritt am unteren Zulauf ein, durchläuft zwei Glasfilterplatten und den unteren Strömungsgleichrichter bevor sie auf den Tropfenschwarm trifft. Sie verlässt die Messzelle durch den Strömungsgleichrichter 2 und den oberen Ablauf.

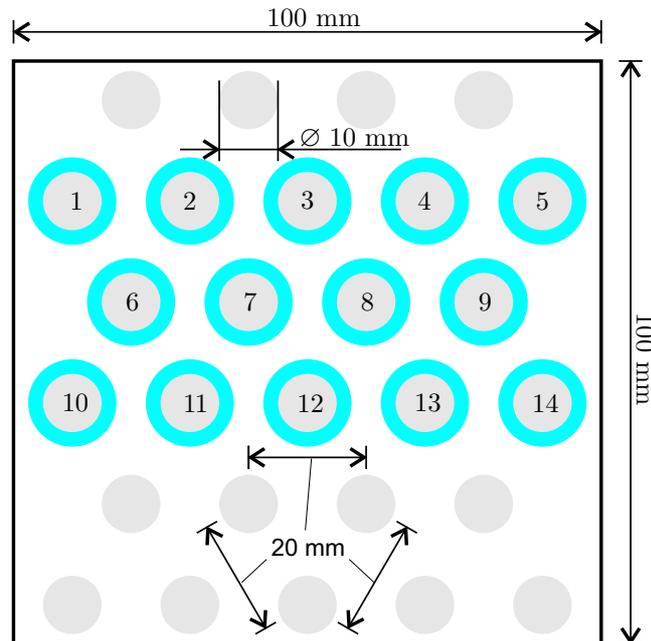


Abb. 2.4: Anordnung der Kugeln zur Tropfenerzeugung in der Messzelle mit den wichtigsten Abmessungen. Die nummerierten Tropfen können mit organischer Phase benetzt werden und nehmen am Stofftransport teil. Die anderen Kugeln dienen der Beeinflussung der Strömung.

Zur Sicherstellung exakt reproduzierbarer Strömungsverhältnisse der kontinuierlichen Phase im Bereich des Tropfenschwarms ist die Messzelle mit einem mehrstufigen Strömungsgleichrichter versehen. Die kontinuierliche Phase strömt über eine Zuleitung von unten in die Messzelle ein und anschließend durch zwei im Abstand von $\Delta s_{GF} = 2 \text{ cm}$ angeordnete Glasfilterplatten (Porenweite $d_{P,GF} = 40 \dots 100 \mu\text{m}$ bzw. $16 \dots 40 \mu\text{m}$, Dicke $s_{GF} = 7 \text{ mm}$). Diese bewirken eine über den Querschnitt weitgehend homogene Geschwindigkeitsverteilung. Die verbleibenden Geschwindigkeitsanteile quer zur Hauptströmungsrichtung werden in einem sich anschließenden Strömungsgleichrichter weitgehend eliminiert. Dieser besteht aus einer Anordnung von 1224 paralleler Kapillaren aus Edelstahl (Außendurchmesser $d_{SG} = 2 \text{ mm}$, Wandstärke $s_{SG} = 0,1 \text{ mm}$, Länge $l_{SG} = 20 \text{ mm}$), die mit Goldlot hart verlötet sind. Diese Maßnahmen führen zu einer nahezu idealen Kolbenströmung direkt oberhalb des Strömungsgleichrichters. Insbesondere bei den während der Untersuchungen auftretenden niedrigen Strömungsgeschwindigkeiten ($Re_{MZ} \leq 600$) bildet sich von den Wandflächen der Messzelle ausgehend sehr



Abb. 2.5: Messzelle mit Tropfenschwarm und Peripherie

schnell eine Grenzschicht aus. Die Dicke der Grenzschicht $\delta(x)$ in Abhängigkeit von der Lauflänge x und der mit der Lauflänge gebildeten Reynoldszahl Re_x kann mit der von Blasius [16] für eine ebene Platte hergeleiteten Gleichung abgeschätzt werden.

$$\delta(x) = \frac{5,0}{\sqrt{Re_x}} \cdot x \quad (2.1)$$

In dem vorliegenden Rechteckkanal wird die Dicke der Grenzschicht aufgrund der fluid-dynamischen Gegebenheiten deutlich langsamer anwachsen als an einer ebenen Platte. Um den Einfluss der Grenzschicht auf das Strömungsprofil in der Messzelle zu reduzieren, wurde diese breiter konstruiert als erforderlich. Der seitliche Abstand der äußeren Tropfen zur Wandfläche beträgt 20 mm. Die Tiefe der Messzelle musste wegen der Anforderungen an die Messgenauigkeit der holografischen Interferometrie möglichst klein gewählt werden. Der innere Abstand der 6 mm dicken Glasplatten beträgt 25 mm, der Abstand der Tropfen zur Glaswand dementsprechend 7,5 mm.

Im oberen Teil der Messzelle ist ein weiterer Strömungsgleichrichter eingesetzt. Dieser kanalisiert die abströmende Phase und reduziert störende Einflüsse aus dem Ablaufbereich der Messzelle auf die Strömung im Bereich des Tropfenschwarms. Die Abb. 2.5

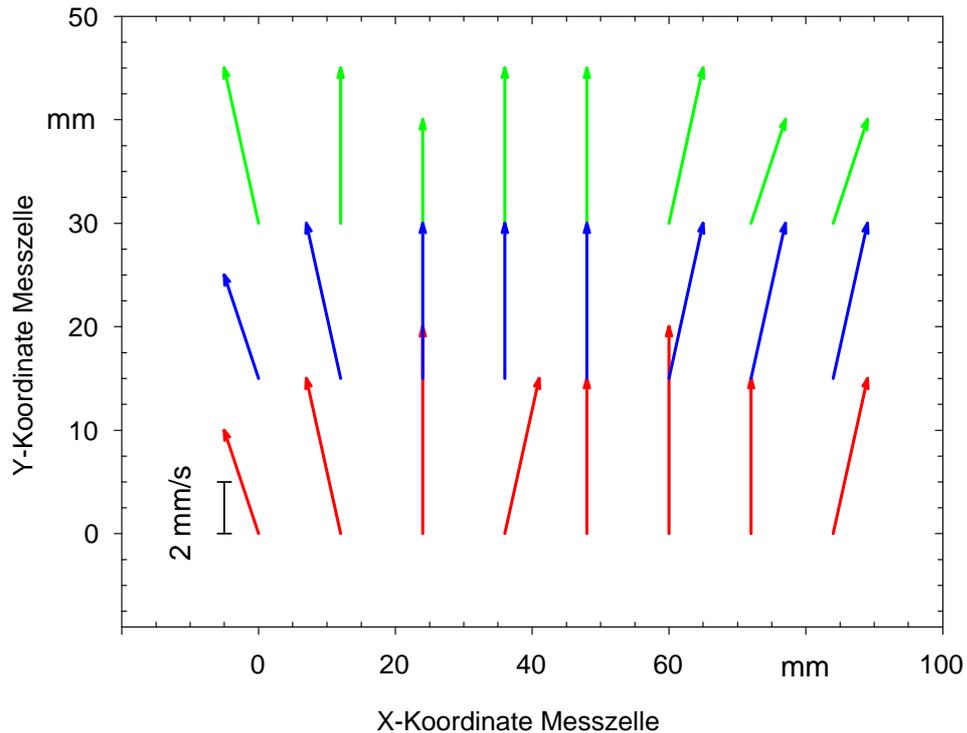


Abb. 2.6: Mit dem Laser-Doppler-Anemometer gemessenes Geschwindigkeitsprofil im Einlaufbereich der Messzelle bei einer Reynoldszahl von $Re = 55$

zeigt ein Foto der Messzelle mit dem darin befindlichen Tropfenschwarm, die Kapillaren und T-Stücke für die Zufuhr und Absaugung der Tropfenphase und im Hintergrund eine Kollimatorlinse des holografischen Interferometers.

Die Abb. 2.6 veranschaulicht das Geschwindigkeitsprofil im Einlaufbereich der Messzelle. Zum Zeitpunkt dieser Messungen befanden sich keine Kugeln in der Messzelle. Die Messungen wurden mit dem in Abschnitt 3.2 beschriebenen Laser-Doppler-Anemometer durchgeführt. Die lokalen Geschwindigkeiten sind als Pfeile dargestellt. Der Anfangspunkt eines Pfeiles bestimmt den Messort, Pfeillänge und -richtung entsprechen dem Betrag und der Richtung der gemessenen Geschwindigkeit. Mit Hilfe des eingezeichneten Skaliervektors kann der Betrag der Geschwindigkeiten ermittelt werden.

Die in Abb. 2.6 dargestellten Messergebnisse zeigen über den Einlaufbereich weitgehend konstante Geschwindigkeiten. Die zu beobachtenden geringen Geschwindigkeitskomponenten senkrecht zur Hauptströmungsrichtung werden mit zunehmendem Massenstrom geringer. Direkt oberhalb des Strömungsgleichrichters wird nahezu ideale Kol-

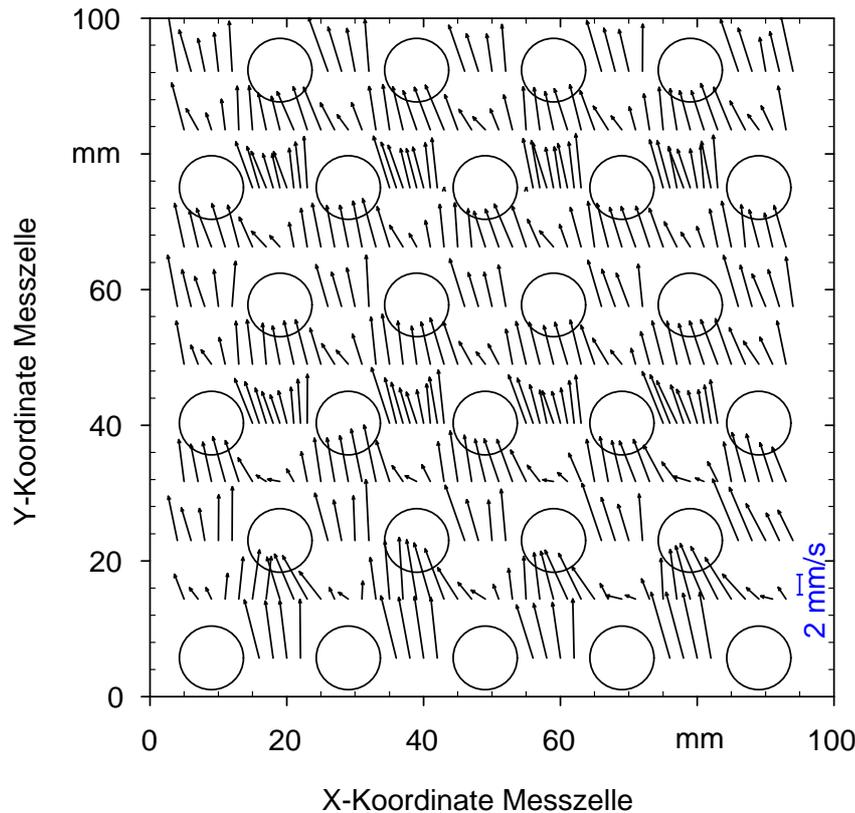


Abb. 2.7: Mit dem Laser-Doppler-Anemometer gemessenes Geschwindigkeitsprofil in der Messzelle bei einer Reynoldszahl von $Re = 33$, unbenetzte Kugeln ohne Stofftransport

benströmung erreicht. Durch wiederholte Messungen an identischen Orten und für unterschiedliche Massenströme wurde die Reproduzierbarkeit und die zeitliche Konstanz des Strömungsprofils überprüft und bestätigt. Für die spätere Versuchsauswertung werden die ungestörten Strömungsgeschwindigkeiten mit denen bei simultan stattfindendem Stofftransport miteinander verglichen. Aus diesem Grund wurde bei der Konstruktion vor allem auf eine gute Reproduzierbarkeit der Strömungsverhältnisse geachtet. Eine über den Querschnitt konstante Strömungsgeschwindigkeit sorgt zusätzlich für weitgehend identische Strömungsverhältnisse an allen Tropfen.

Die Abb. 2.7 veranschaulicht das gemessene Geschwindigkeitsprofil in der Messzelle nach Einbau der Kugeln. Die Messorte liegen auf einer durch die Mittelpunkte der Kugeln aufgespannten Ebene. Gut zu erkennen ist die Beeinflussung der lokalen Strömung durch die einzelnen Kugeln. Daraus resultieren in den Bereichen unterhalb der jeweiligen

Staupunkte die maximalen Anströmgeschwindigkeiten. Auf der Abströmseite der Kugeln bildet sich ab einer Reynoldszahl von etwa $Re = 20$ ein Ablösegebiet aus und es entstehen vereinzelt Wirbel, die in der darüber liegenden Messebene zu deutlichen Geschwindigkeitsanteilen quer zur Hauptströmungsrichtung führen. Diese als *Wakes* bezeichneten Nachlaufgebiete besitzen besondere hydrodynamische Eigenschaften und beeinflussen damit auch den Wärme- und Stofftransport in Tropfenschwärmen. Eine genaue Untersuchung dieser Phänomene ist nicht Gegenstand dieser Arbeit; in [106, 107] ist eine ausführliche Übersicht zu diesem Thema gegeben.

2.3 Führung der kontinuierlichen Phase

Die kontinuierliche Phase besteht bei allen durchgeführten Untersuchungen aus entionisiertem Wasser. Vor Versuchsbeginn wird eine ausreichend große Menge Wasser in einem doppelwandigen Glasbehälter mit Hilfe eines Thermostaten auf eine Versuchstemperatur von $T = 20$ °C gebracht. Die Temperatur wird sowohl im Vorratsbehälter als auch am Eintritt und am Auslauf der Messzelle gemessen und protokolliert. Eine drehzahl-geregelte Zahnradpumpe fördert das Wasser zunächst durch einen Filter, der aus einer Glasfilterplatte mit einem Porenweitenbereich von $d_{P,GF} = 16 \dots 40 \mu\text{m}$ besteht, und anschließend in die Messzelle. Nach dem Durchlaufen des dreistufigen Strömungsgleichrichters (Glasfilterplatten + Anordnung paralleler Kapillaren) tritt das Wasser von unten in die eigentliche Messstrecke ein, nimmt am Stofftransport teil und verläßt die Messzelle über den im oberen Bereich angebrachten Strömungsgleichrichter (Anordnung paralleler Kapillaren). Das verbrauchte Wasser wird separat gesammelt und anschließend verworfen, um eine Anreicherung der kontinuierlichen Phase mit Aceton oder den Eintrag von störenden, grenzflächenaktiven Verschmutzungen zu verhindern.

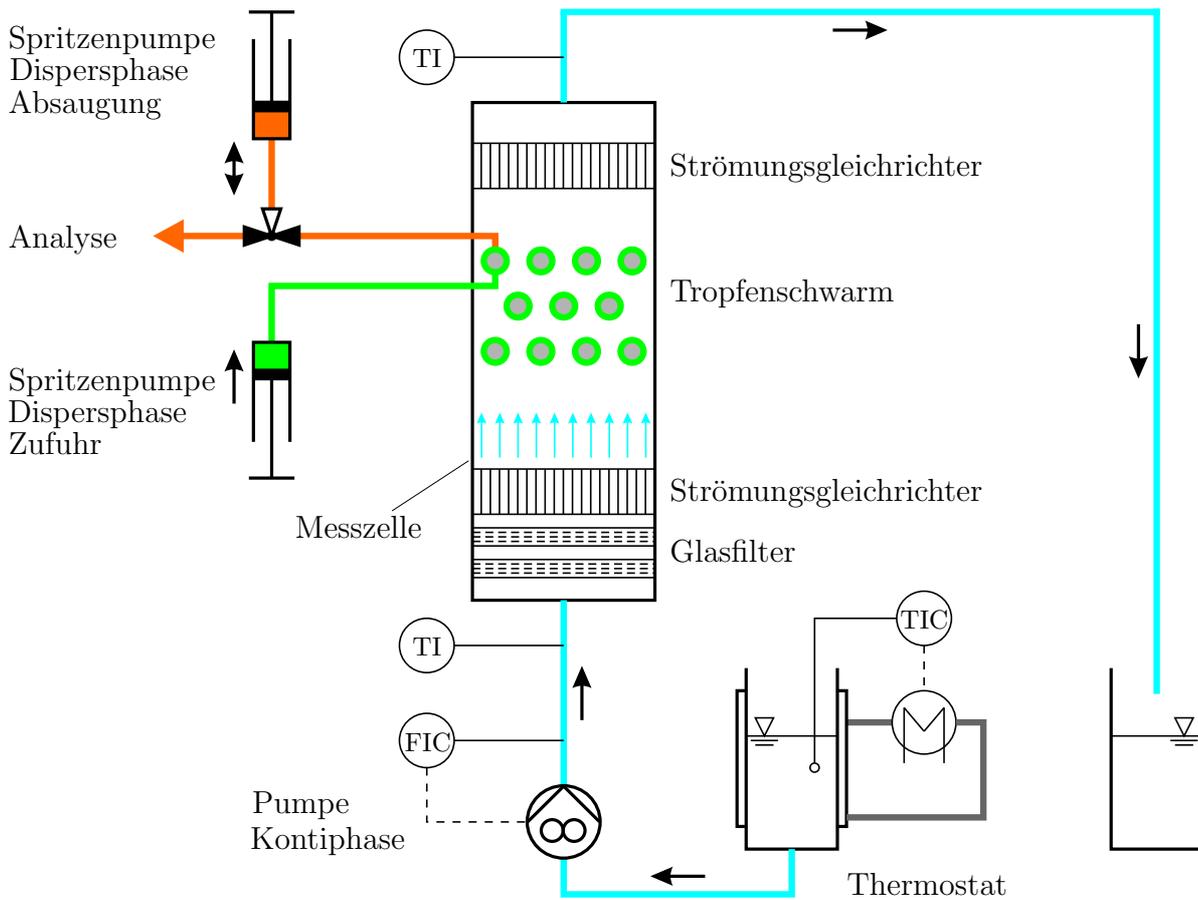


Abb. 2.8: Fließbild der Versuchsanlage

3 Messtechnik

Zur Durchführung der experimentellen Untersuchungen sind einige Messtechniken erforderlich, um erforderliche Stoffdaten und Zusammensetzungen zu bestimmen oder um die Vorgänge beim Stofftransport zu verfolgen. Insbesondere für die Beobachtung des Stofftransportes in der Messzelle werden nicht invasive, optische Messtechniken ausgewählt. Für die Analyse von Zusammensetzungen und die Bestimmung physikalischer Stoffdaten werden Messgeräte eingesetzt, die eine hohe Genauigkeit und Reproduzierbarkeit der Ergebnisse garantieren sowie eine einfache und schnelle Durchführbarkeit der Messungen ermöglichen.

3.1 Holografische Interferometrie

Die holografische Interferometrie wird eingesetzt, um Konzentrationsgradienten im Bereich des Tropfenschwarms zu visualisieren. Die lokale optische Dichte in einem Flüssigkeitsgemisch ist eine Funktion der an diesem Ort vorliegenden Zusammensetzung. Eine inhomogene Mischung bewirkt demnach eine entsprechende räumliche Verteilung der Brechzahl. Mit der holografischen Interferometrie lassen sich in lichtdurchlässigen Medien die lokalen Gradienten der Brechzahl bestimmen. Ist der Zusammenhang zwischen Brechzahl und Zusammensetzung im verwendeten Stoffsystem eindeutig, so kann eine Umrechnung in Konzentrationsgradienten erfolgen. Ist zusätzlich an einem beliebigen Ort im Messbereich die absolute Konzentration bekannt, dann lassen sich hieraus die Konzentrationen an anderen Orten berechnen. Die ursprünglich von Gabor [30] 1948 entwickelte Holografie besitzt gegenüber anderen optischen Messmethoden entscheidende Vorteile:

- Es können z. B. im Vergleich zum Schlierenverfahren selbst sehr kleine Dichtegradienten aufgelöst werden [25].
- Der Versuchsaufbau ist wesentlich weniger aufwändig als z. B. beim Mach-Zehnder-Interferometer.

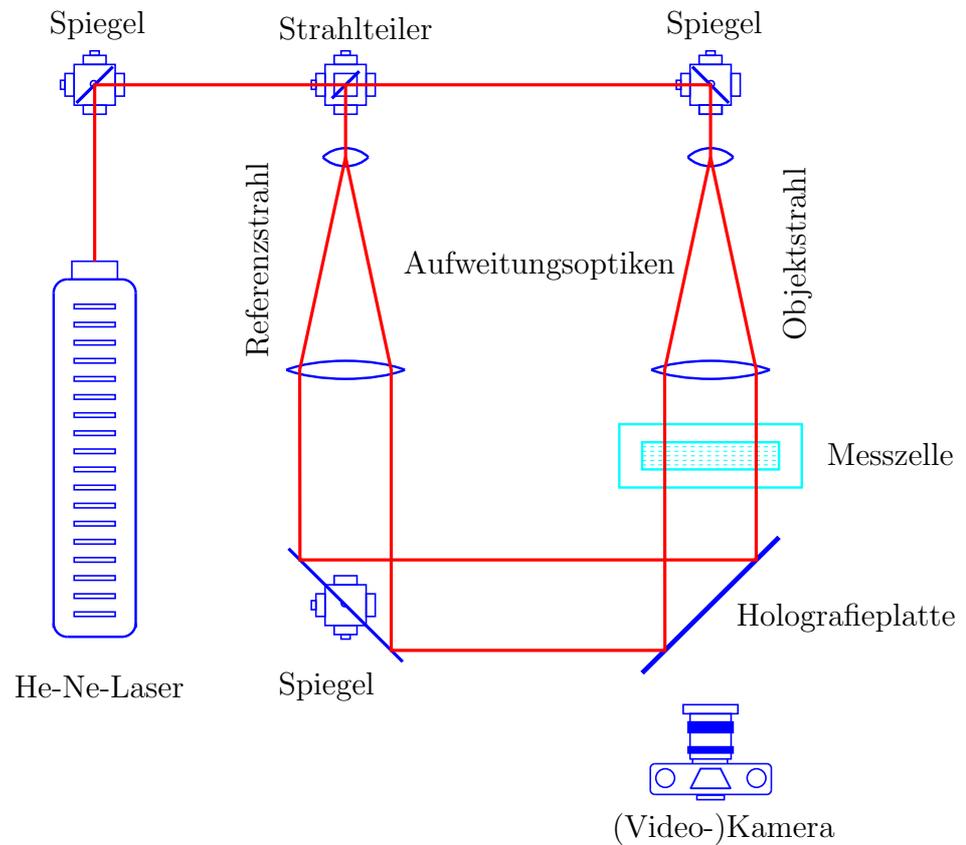


Abb. 3.1: Geräteanordnung und Strahlengang der eingesetzten holografischen Durchlichtinterferometrie

- Die Anforderungen an die optische Güte der eingesetzten optischen Komponenten und der Messzelle sind sehr niedrig.
- Es erfolgt keine Fokussierung auf eine feste Messebene, d. h. die vorherige Kenntnis des Ortes mit den am meisten interessierenden Phänomenen ist nicht erforderlich.

Die eingesetzte holografische Durchlichtinterferometrie ist ein Zweistufenverfahren. In Abb. 3.1 ist die Geräteanordnung und der Strahlengang der verwendeten Anordnung dargestellt. Der von einem Helium-Neon-Laser (Wellenlänge $\lambda = 635 \cdot 10^{-9}$ m) erzeugte monochromatische, kohärente Lichtstrahl wird von einem Strahlteiler in einen Objekt- und in einen Referenzstrahl gleicher Intensität aufgeteilt. Beide Strahlen werden in Teleskopen zu parallelen Lichtbündeln aufgeweitet. Der Objektstrahl durchläuft die Messzelle, während der Referenzstrahl um diese herum geführt wird. Nach dem Durchlaufen möglichst gleich langer Wegstrecken interferieren die beiden Teilstrahlen.

Im ersten Schritt des Verfahrens ist die Messzelle mit reinem Wasser bei Versuchstemperatur gefüllt und es findet kein Stoffübergang statt, d. h. die optische Dichte in der Messzelle ist keine Funktion des Ortes. Das zu diesem Zustand gehörende stationäre Interferenzbild wird auf einer Holografieplatte fotografisch aufgezeichnet. Dieses als Hologramm bezeichnete Foto konserviert das von der Messzelle ausgehende Wellenfeld und enthält alle optischen Informationen der ungestörten Messzelle. Die Phasenverteilung der Objektwelle ist in der Interferenzstruktur, d. h. in der Variation der Linienabstände, eindeutig festgehalten, während die Amplitudenverteilung einen örtlich unterschiedlichen Schwärzungsgrad bewirkt.

Im zweiten Schritt wird das aufgezeichnete Hologramm durch Beleuchten mit dem Referenzstrahl rekonstruiert. Das Foto dient in diesem Fall als Huygenssches Beugungsgitter. Das freigesetzte virtuelle Bild der Objektwelle wird Vergleichswelle genannt und läßt sich selbst bei großer Tiefe der räumlichen Ausdehnung an jeder Stelle scharf betrachten. Die Fokussierung durch das Auge oder eine Kamera erfolgt erst bei der Rekonstruktion. Es ist deshalb möglich beliebige Schärfenebenen auszuwählen und exakt auf die interessierende Ebene zu fokussieren. Wird jetzt aufgrund von Stofftransportvorgängen in der Messzelle die optische Dichte lokal verändert, so resultiert eine Phasenverschiebung zwischen Objekt- und Vergleichswelle. Das dabei entstehende, zeitlich veränderliche Interferenzmuster kann mit Hilfe einer Mattscheibe mit dem Auge direkt beobachtet oder mit einer Kamera aufgenommen werden [42, 80, 95].

Um mit dieser Messmethode erfolgreich arbeiten zu können, müssen einige Voraussetzungen erfüllt sein.

- Die Abhängigkeit der optischen Dichte muss sich eindeutig auf eine einzige Ursache zurückführen lassen. Bei Untersuchungen des Stofftransportes darf die Änderung der optischen Dichte nur durch die Konzentrationsänderung aufgrund der Bewegung einer einzelnen Komponente verursacht sein. Aus diesem Grund ist ein Stoffsystem zu wählen, das eine ausgeprägte Mischungslücke besitzt. Im untersuchten Konzentrationsbereich sollte keine Randlöslichkeit der Hauptkomponenten existieren, d. h. die beobachteten Phasen bestehen jeweils nur aus zwei Komponenten (vgl. Abschnitt 4.1).
- Die Abhängigkeit der optischen Dichte von der Zusammensetzung muss ausreichend groß sein. Der durch den Messraum laufende Objektstrahl erfährt im Vergleich zum Referenzstrahl eine Phasenverschiebung, die vom Verlauf der optischen

Dichte entlang seines Weges bestimmt wird. Aus der Gleichung für die ideale holografische Interferometrie

$$\Delta n_{1S} = \frac{\lambda}{B} \quad (3.1)$$

läßt sich aus der Wellenlänge des verwendeten Lichtes λ und der durchstrahlten Wegstrecke B im Messraum die Brechzahldifferenz Δn_{1S} und damit die minimale Konzentrationsdifferenz errechnen, die zur Ausbildung eines Interferenzstreifens erforderlich ist. Die daraus resultierenden mit der holografischen Interferometrie minimal auflösbaren Konzentrationsdifferenzen für das verwendete Stoffsystem in den verschiedenen Bulkphasen und für den verwendeten Versuchsaufbau sind in Tab. 3.1 aufgeführt.

- Die durchstrahlte Weglänge B , d. h. die Ausdehnung des Messvolumens in Strahlrichtung, sollte möglichst klein sein und der die Brechzahländerung verursachende Vorgang sollte einen möglichst großen Anteil des Messvolumens ausfüllen, um eine hohe Messgenauigkeit zu gewährleisten. Die Auswertung der zweidimensionalen holografischen Aufnahmen liefert eine Information über die mittlere Brechzahl entlang des durchstrahlten Weges. Beeinflusst der zu untersuchende Vorgang nur auf einer Teilstrecke die Brechzahl, dann kann die mittlere Brechzahl stark von der lokalen abweichen. Ein weiterer Fehler resultiert aus der Ablenkung des Lichtes beim Durchlaufen der Messstrecke. Unter der Voraussetzung, dass der Brechzahlgradient konstant über der Messstrecke ist, durchläuft das Licht eine parabelförmige Bahn. Dieser Fehler kann vernachlässigt werden, wenn die von Panknin [82] theoretisch hergeleitete Gleichung für Grenzschichten

$$\frac{\partial^2 n}{\partial y^2} \cdot B^2 \leq 5 \quad (3.2)$$

durch den Versuchsaufbau erfüllt wird.

- Es dürfen nur Stoffsysteme herangezogen werden, bei denen der Stoffdurchgang mit einer vernachlässigbaren Wärmetönung verbunden ist. Sollen dennoch simultan Stoff- und Wärmeübergang beobachtet werden, so ist die in [82] beschriebene Zweiwellenlängen-Holografie erforderlich, die eine Auftrennung der beiden Einflussgrößen erlaubt.

- Die beiden aufgeweiteten Teilstrahlen (Objekt- und Referenzstrahl) müssen über den gesamten Strahlquerschnitt über eine möglichst homogene und vor allem identische Lichtintensität verfügen. Bei gleicher Amplitude der interferierenden Strahlen wird der maximal mögliche Kontrast erzielt.

Weitere ausführliche Informationen zur holografischen Interferometrie sind in [42, 82, 112, 113] zu finden.

Tab. 3.1: Mit der verwendeten holografischen Interferometrie und dem verwendeten Versuchsaufbau minimal auflösbare Konzentrationsdifferenzen bei $T = 20\text{ °C}$

Hauptkomponente	Übergangskomponente	min. Konzentrationsdifferenz
Wasser	Aceton	$3,54 \cdot 10^{-4}$ kg/kg
Toluol	Aceton	$1,93 \cdot 10^{-4}$ kg/kg
2-Chlor-Toluol	Aceton	$1,27 \cdot 10^{-4}$ kg/kg
3-Chlor-Toluol	Aceton	$1,31 \cdot 10^{-4}$ kg/kg
4-Chlor-Toluol	Aceton	$1,33 \cdot 10^{-4}$ kg/kg

3.2 Laser-Doppler-Anemometrie

Die Laser-Doppler-Anemometrie wird eingesetzt, um die lokalen Geschwindigkeiten im Bereich des Tropfenschwarms zu erfassen. Es handelt sich hierbei um ein optisches, nicht invasives Messverfahren im Gegensatz zu anderen Verfahren wie z. B. Heizdrahtanemometern oder dem Prandtl'schen Staurohr. Die Messtechnik eignet sich sowohl für laminare als auch für turbulente Strömungen in optisch transparenten Medien. Der Messbereich reicht von etwa $w = 10^{-6}$ bis 10^3 m/s [10, 112].

Die Abb. 3.2 zeigt schematisch den Aufbau des eingesetzten Laser-Doppler-Anemometers. Das Messprinzip basiert auf dem Doppler-Effekt (Abb. 3.3). Ein von einem Laser ausgehender kohärenter Lichtstrahl mit der Frequenz f_0 bzw. der Wellenlänge λ_0 wird in einem Strahlteiler in zwei Teilstrahlen S_1 und S_2 aufgetrennt, die durch eine nachgeschaltete Linse im Messvolumen fokussiert werden und sich dort gegenseitig durchdringen. Die beiden Strahlachsen der Teilstrahlen schließen bei der verwendeten Anordnung einen Winkel von $\varphi = 6,83\text{ °}$ ein. Ein das Messvolumen durchlaufendes Partikel P mit der Geschwindigkeit w_{\perp} senkrecht zur Winkelhalbierenden der Teilstrahlen streut das auf ihn fallende Licht. Aufgrund des Winkels zwischen den beiden Teilstrahlen besitzen

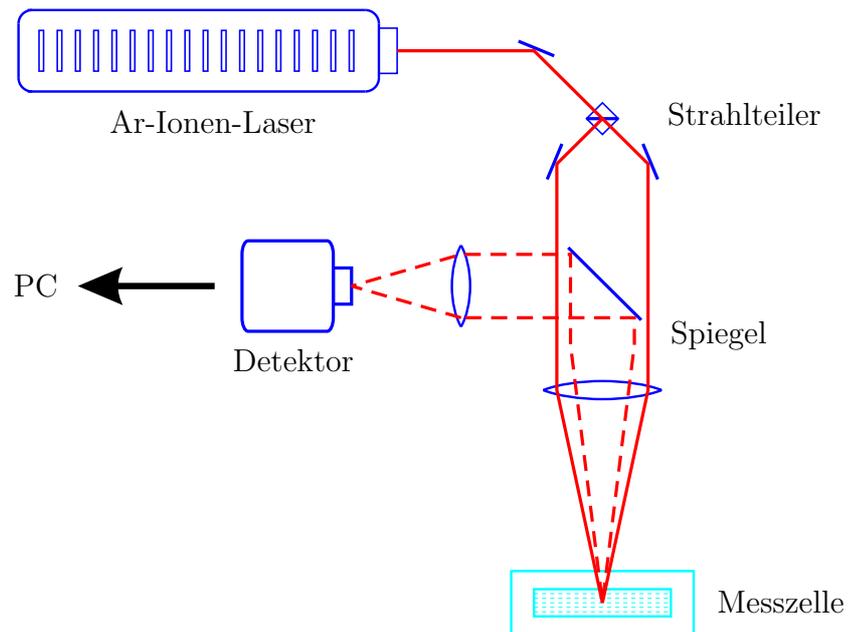


Abb. 3.2: Geräteanordnung und Strahlengang des eingesetzten Laser-Doppler-Anemometers

die gestreuten Wellen unterschiedliche Frequenzen f_{D1} und f_{D2} . Das Streulicht wird von einer zweiten Linse auf den Detektor D fokussiert. Aus der Überlagerung der beiden gestreuten Wellen resultiert eine vom Detektor erfasste niederfrequente Schwebung mit der Frequenz Δf , die sich berechnet zu

$$\Delta f = f_{D1} - f_{D2} = w_{\perp} \cdot \frac{2 \cdot \sin \varphi}{\lambda_0} \quad (3.3)$$

und damit proportional der Partikelgeschwindigkeit ist. Als weiterer Vorteil folgt daraus, dass keine Kalibrierung des Messgerätes erforderlich ist.

Das Messverfahren setzt voraus, dass sich in der Strömung kleine Streupartikel befinden, deren Geschwindigkeit gleich der Strömungsgeschwindigkeit ist. Die verwendeten Partikel aus Titandioxid besitzen einen Durchmesser von $d_P \approx 1 \cdot 10^{-6}$ m und gewährleisten aufgrund ihrer hohen Brechzahl von $n_D = 2,6$ eine ausreichende Streuleistung im Rückstreubetrieb.

Bei den Messungen werden mindestens $N = 100$ gültige Einzelmessungen an jedem Messort bei einem Signal-Rausch-Verhältnis von $SNR = +3$ dB vorgenommen, um zuverlässige Aussagen treffen zu können. Bei den Experimenten ohne Stoffübergang kann

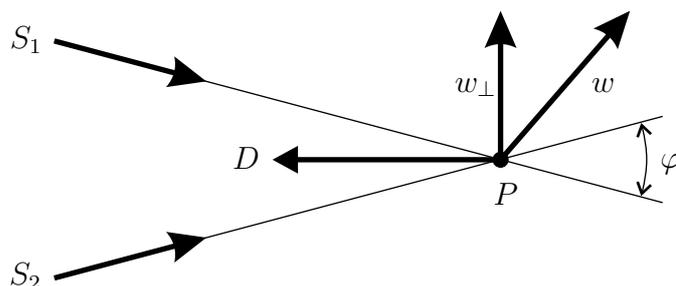


Abb. 3.3: Strahlengang zur Verdeutlichung des Messprinzips beim Laser-Doppler-Anemometer

von zeitlich reproduzierbaren Geschwindigkeiten ausgegangen werden, d. h. die Werte der Einzelmessungen weichen nur unwesentlich voneinander ab und können deshalb zeitlich gemittelt werden. Bei den Experimenten mit Stoffübergang sind die Einzelmessungen aufgrund der auftretenden Marangonikonvektionen deutlichen zeitlichen Schwankungen unterworfen. In diesen Fällen können die Ergebnisse der N Einzelmessungen statistisch ausgewertet werden, um die mittlere Geschwindigkeit w_m oder den Turbulenzgrad T der Strömung zu bestimmen.

$$w_m = \frac{\sum_{i=1}^N w_i}{N} \quad (3.4)$$

$$\sigma^2 = \frac{\sum_{i=1}^N (w_i - w_m)^2}{N} \quad (3.5)$$

$$T = \frac{\sigma}{w_m} \quad (3.6)$$

Der Turbulenzgrad T dient zugleich als zusätzliches Maß, um die Intensität der Marangonikonvektionen zu beurteilen.

3.3 Konzentrationsbestimmung

Zur Erfassung der übergegangenen Stoffmengen wird die Tropfenphase am Ende der Versuchszeit von den Kugeln abgesaugt und in gasdichte Probenfläschchen abgefüllt. Die anschließende Analyse erfolgt mit einem digitalen Refraktometer oder mittels Gaschro-

matografie. Proben, die nur aus zwei Komponenten bestehen, können mit dem Refraktometer analysiert werden, da in diesem Fall die Zusammensetzung eindeutig aus der Brechzahl ermittelt werden kann. Proben, die aus drei Komponenten bestehen, müssen mit dem Gaschromatografen untersucht werden. Die Entscheidung, welches Messverfahren eingesetzt wird, kann mit Kenntnis der bereits vermessenen Phasengleichgewichte (Abschnitt 4.1) im Voraus getroffen werden.

3.3.1 Refraktometrie

Das eingesetzte digitale Refraktometer (Modell RE 40 der Fa. Mettler Toledo) verfügt bei Verwendung eines speziell angefertigten Deckels über eine geschlossene Probenkammer, in der die Probe mit einem Peltier-Element auf $\Delta T = \pm 0,1$ °C genau temperiert wird. Die Dichtheit der Konstruktion wurde durch mehrere Versuche bestätigt und trägt maßgeblich zur hohen Messgenauigkeit bei. Der Messbereich reicht von $n_D = 1,32$ bis $n_D = 1,7$. Die Wellenlänge der verwendeten Lichtquelle beträgt $\lambda = 635 \cdot 10^{-9}$ m, das erforderliche Probenvolumen $V_{Probe,min} = 0,25$ ml. Die mit einem maximalen Fehler von $\Delta n_D = \pm 1 \cdot 10^{-4}$ gemessene Brechzahl wird anschließend in eine Konzentration (Genauigkeit von $\Delta y = \pm 0,0005$ kg/kg) umgerechnet (siehe Abb. A.1). Diese Methode hat den Vorteil, dass nur sehr geringe Probemengen benötigt werden und die Messwerte sehr schnell vorliegen.

Zur Kalibrierung des Refraktometers wird im Rahmen einer integrierten Kalibrieroutine vor dem eigentlichen Messvorgang die Brechzahl von Luft und von entionisiertem Wasser bestimmt. Außerdem stehen mehrere Kalibrierproben des Herstellers zur Verfügung, die den gesamten Messbereich umfassen [60].

3.3.2 Gaschromatografie

Die Gaschromatografie hat den Vorteil, dass mit ihr auch Proben analysiert werden können, die aus mehr als zwei Komponenten bestehen. Nachteilig ist der hohe Zeitaufwand von ca. 8 Minuten je Probe und die aufwändige Kalibrierung.

Die Proben werden mit einem Gaschromatografen vom Typ 6890 der Fa. Hewlett-Packard analysiert. Als Trennsäule wird eine Pora-Plot-Säule vom gleichen Hersteller mit einer Länge von 25 m und einem Durchmesser von 0,32 mm verwendet. Die mobile Phase (Trägergas) besteht aus Helium, die Erfassung der einzelnen Komponenten erfolgt mit einem Wärmeleitfähigkeitsdetektor (WLD).

Zur Kalibrierung des Gaschromatografen werden 10 Kalibrierproben abgewogen, deren Acetonanteil im zu erwartenden Konzentrationsbereich liegt, und analysiert. Die Güte der daraus resultierende Kalibrierkurve wird mit 3 Kontrollproben bekannter Zusammensetzung überprüft. Erst danach erfolgt die Bestimmung der Zusammensetzung der aus den experimentellen Untersuchungen erhaltenen Proben [13, 43, 56].

4 Experimentelle Untersuchungen

Die durchgeführten experimentellen Untersuchungen dienen der Ermittlung der Gesetzmäßigkeiten des Stoffübergangs in Tropfenschwärmen unter dem Einfluss von Marangonikonvektionen. An einem räumlich fixierten Einzeltropfen und am Tropfenschwarm werden die Konzentrationsprofile im Bereich der Phasengrenze (holografische Interferometrie), die lokalen Geschwindigkeiten der kontinuierlichen Phase (Laser-Doppler-Anemometrie) und die übergegangenen Stoffmengen (Gaschromatografie, Refraktometrie) bestimmt. Die zeitlichen Schwankungen der lokalen Geschwindigkeiten und Konzentrationen kennzeichnen das Auftreten und die Intensität der Marangonikonvektionen. Aus den gemessenen Konzentrationsänderungen können Rückschlüsse auf die Auswirkungen der Marangonikonvektionen gezogen werden.

Im Mittelpunkt der Arbeiten steht die systematische Beobachtung und Analyse des Stofftransportes bei unterschiedlichen Randbedingungen sowie der durch Phasengrenzkonvektionen verursachten Wechselwirkungen zwischen benachbarten Tropfen. Es soll geklärt werden, welchen Einfluss die Parameter Strömungsgeschwindigkeit und Konzentrationsdifferenz besitzen, bzw. ob und in welcher Weise mehrere gleichzeitig auftretende Phasengrenzkonvektionen miteinander wechselwirken und welchen Einfluss diese auf den Stoffübergang an Tropfen ausüben, an denen zunächst keine Phasengrenzkonvektionen bestehen.

Die experimentellen Untersuchungen sind in 3 Abschnitte gegliedert:

1. Untersuchungen am Einzeltropfen (Abschnitt 4.3)
2. Untersuchungen an einem einzelnen am Stofftransport beteiligten Tropfen innerhalb eines Tropfenschwarms (Abschnitt 4.4)
3. Untersuchungen an mehreren simultan am Stofftransport beteiligten Tropfen im Tropfenschwarm (Abschnitt 4.6)

4.1 Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser

Bei der Auswahl geeigneter ternärer Stoffsysteme für die experimentellen Untersuchungen mussten hinsichtlich Versuchsaufbau, Versuchsdurchführung und Messtechnik folgende Bedingungen erfüllt werden:

- Der Versuchsaufbau bzw. die Methode zur Erzeugung eines fixierten Tropfenschwarms erfordert Stoffsysteme mit einer geringen Dichtedifferenz zwischen kontinuierlicher und disperser Phase. Dadurch kann die durch Auftriebskräfte verursachte Abweichungen der Tropfenform von einer Kugel reduziert und die Stabilität der Tropfenphase auch bei hohen Strömungsgeschwindigkeiten gewährleistet werden.
- Der Einsatz der holografischen Interferometrie (Abschnitt 3.1) erfordert ein Stoffsystem mit einer sehr geringen Randlöslichkeit zwischen den Hauptkomponenten im gesamten untersuchten Konzentrationsbereich der Übergangskomponente. Die gleiche Forderung ergibt sich aus dem Einsatz der Refraktometrie zur Konzentrationsbestimmung (Abschnitt 3.3.1). Eine geringe Randlöslichkeit erleichtert außerdem die Auswertung der Untersuchungen. Die beobachteten Phänomene können in diesem Fall eindeutig dem Übergang einer einzelnen Komponente zugeordnet werden.
- Bei dem für die Untersuchungen eingesetzten Stoffsystem sollen ausgeprägte Grenzflächenkonvektionen auftreten.
- Die experimentellen Untersuchungen sollen mit möglichst geringen Stoffmengen durchgeführt werden können, um die aus dem Umgang mit Chemikalien resultierenden Gefahren zu reduzieren. Aus diesem Grund sollte die kontinuierliche Phase aus Wasser bestehen.

Nach umfangreichen Voruntersuchungen werden die ternären Stoffsysteme mit Isomeren des 3-Chlortoluols als organischer Hauptkomponente, Aceton als Übergangskomponente und Wasser als zweiter Hauptkomponente ausgewählt. In Tab. 4.1 sind die wichtigsten physikalischen Stoffdaten der Isomere aufgeführt [69, 79]. Hinsichtlich des Auftretens von Grenzflächenkonvektionen können bei den Voruntersuchungen keine Unterschiede festgestellt werden. Aus Kostengründen werden die weiteren Untersuchungen mit dem Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser durchgeführt.

Tab. 4.1: Physikalische Daten der Chlortoluol-Isomere bei $T = 20\text{ °C}$, $p = 1\text{ bar}$

Eigenschaft	Einheit	2-CIT	3-CIT	4-CIT
Summenformel		C_7H_7Cl	C_7H_7Cl	C_7H_7Cl
Molmasse \tilde{M}	g/mol	126,58	126,58	126,58
Löslichkeit in H_2O	g/l	unlöslich	unlöslich	unlöslich
Dichte ρ	kg/m ³	1083	1072	1070
Brechzahl n (589 nm)	–	1,5257	1,5221	1,5210
Siedetemperatur T_s	°C	158,0	161,7	162,4
kinem. Viskosität ν	10 ⁻⁶ m ² /s	0,929	0,806	0,833
Oberflächenspannung σ	10 ⁻³ N/m	33,2	30	32,5

Tab. 4.2: Binäre Diffusionskoeffizienten von Aceton in den Hauptphasen Wasser und 3-Chlortoluol bei $T = 20\text{ °C}$

Massenanteil Aceton in kg/kg	Diffusionskoeffizient $D_{Ac,i}$ in 10 ⁻⁹ m ² /s	
	in Wasser ($D_{Ac,W}$)	in 3-Chlortoluol ($D_{Ac,3CIT}$)
0,01	1,154	1,765
0,05	1,153	1,753
0,10	1,151	1,693

Mit der in [86] beschriebenen Diffusionsmesszelle wurde der Diffusionskoeffizient $D_{Ac,3CIT}$ von Aceton in 3-Chlortoluol für verschiedene Konzentrationen bestimmt. Der Diffusionskoeffizient $D_{Ac,W}$ von Aceton in Wasser ist der Literatur [72] entnommen. Die Daten sind in Tab. 4.2 zusammengestellt. In [90] wird für die Diffusion von Aceton in Wasser ein Diffusionskoeffizient von $D_{Ac,W} = 1,06\text{ m}^2/\text{s}$ unabhängig von der Zusammensetzung angegeben.

Zusätzlich zu den o. g. physikalischen Daten ist für die Auswertung der experimentellen Untersuchungen die Kenntnis des Phasengleichgewichtes erforderlich. Da für das Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser in der Literatur keine Gleichgewichtsdaten vorliegen und eine Vorausberechnung nach dem auf der Gruppenbeitragsmethode basierenden UNIFAC-Modell keine zuverlässigen Werte erwarten ließ, wurde das Phasengleichgewicht im lehrstuhleigenen Labor vermessen. Zu diesem Zweck werden systematisch Proben innerhalb der Mischungslücke in 100 ml Erlenmeyer-Kolben angesetzt und in einem thermostatisierten Wasserbad 48 Stunden mittels Magnetrührer bei einer Temperatur von

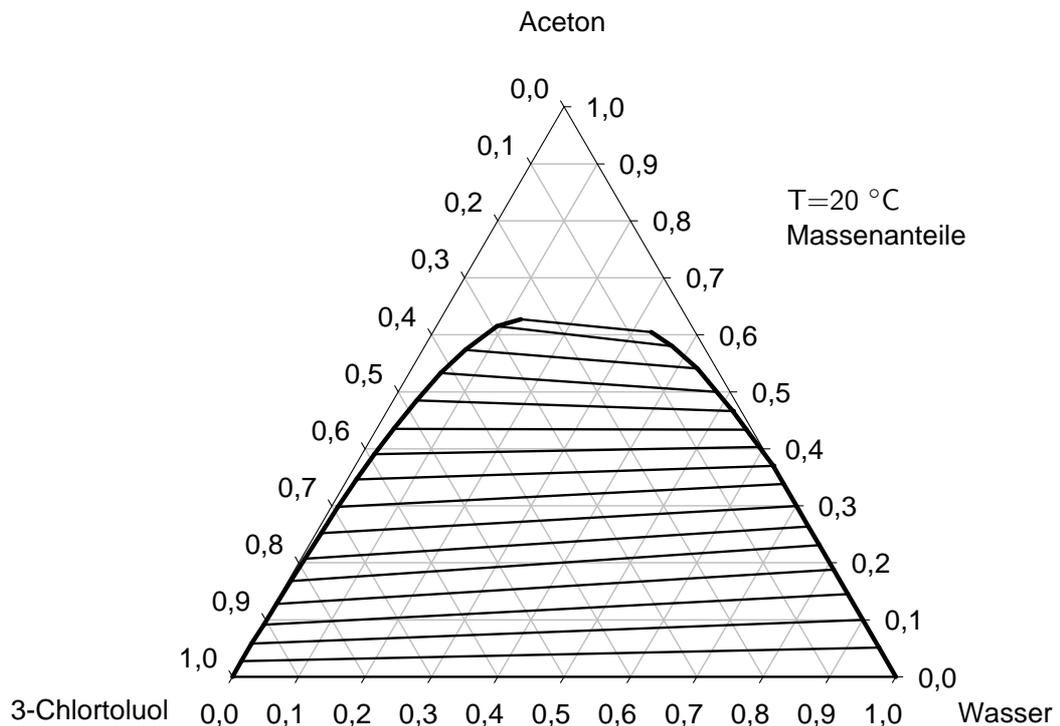


Abb. 4.1: Phasengleichgewicht für das Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser

$T = 20 \text{ °C}$ gerührt, um diese ins stoffliche Gleichgewicht zu bringen. Anschließend werden die Proben weitere 12 Stunden ungerührt im Wasserbad stehen gelassen, damit sich die Phasen voneinander trennen. Die erhaltenen Proben werden in einem Gaschromatografen analysiert (Abschnitt 3.3.2). Die genauen Messdaten sind im Anhang aufgeführt.

In Abb. 4.1 sind die vermessene Binodale und die Konoden für das Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser bei einer Temperatur von $T = 20 \text{ °C}$ und Umgebungsdruck in einem Dreieckdiagramm dargestellt. Das System weist eine ausgeprägte Mischungslücke auf, die sich bis über 60 Massenprozent Aceton ausdehnt. Deutlich zu erkennen ist die geringe Randlöslichkeit zwischen den Hauptphasen. In der Wasser-Phase kann bis zu einer Acetonkonzentration von 40 Massenprozent kein 3-Chlortoluol und in der 3-Chlortoluol-Phase bis zu einer Acetonkonzentration von 9 Massenprozent kein Wasser nachgewiesen werden. Die Gleichgewichtsdaten zeigen, dass der Massenanteil von Aceton in der Wasser-Phase bei Acetonkonzentrationen bis etwa 40 Massenprozent stets höher ist als in der 3-Chlortoluol-Phase. Dies wird weiter verdeutlicht, wenn die Gleichgewichtszusammensetzungen in den beiden Phasen gegeneinander aufgetragen werden

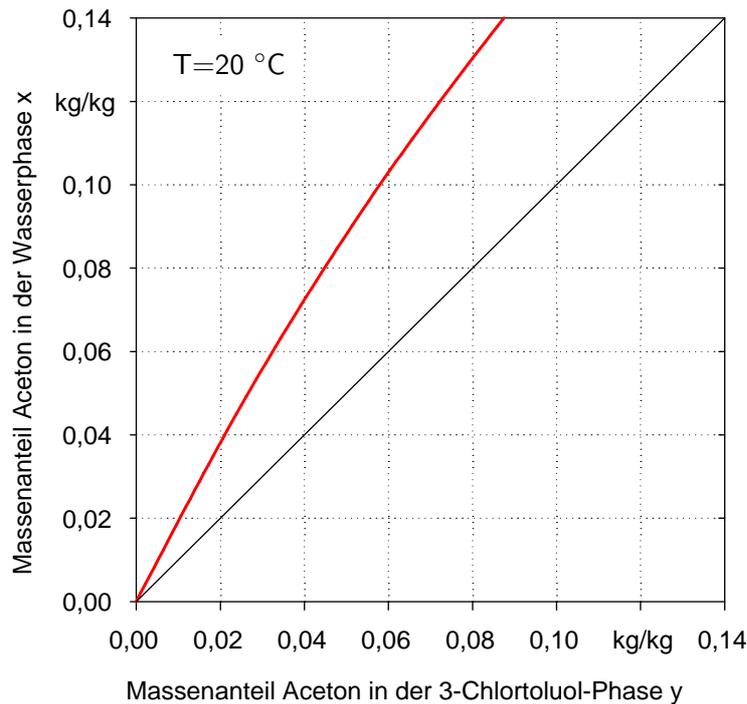


Abb. 4.2: Gleichgewichtsdiagramm für das Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser

(Abb. 4.2).

Die bisher aufgeführten Daten zeigen, dass das ausgewählte Stoffsystem in seinen physikalischen Eigenschaften eine große Ähnlichkeit zu dem Standardteststoffsystem Toluol/Aceton/Wasser aufweist [72]. Gleiches gilt für die im Rahmen dieser Arbeit zusätzlich vermessenen Stoffsysteme mit 2-Chlortoluol und 4-Chlortoluol sowie mit den Isomeren des Fluortoluols als organischer Phase.

Die Abb. A.1 bis Abb. A.3 zeigen die zusätzlich gemessenen Stoffdaten Brechzahl, Viskosität und Dichte in Abhängigkeit von der Acetonkonzentration für dieses Stoffsystem. Die Abhängigkeit der Brechzahl der dispersen Phase von der Konzentration wird bei der Analyse der abgesaugten Flüssigkeitsfilme mittels Refraktometer benötigt, um die Konzentrationen ermitteln zu können (siehe Abschnitt 3.3.1). Die Abhängigkeit der Brechzahl der Wasserphase von der Konzentration wird bei der Auswertung der Aufnahmen mit dem holografischen Interferometer benötigt, um Konzentrationsgradienten bzw. absolute Konzentrationen im Bereich der Phasengrenze zu bestimmen. Je größer die Abhängigkeit der Brechzahl von der Zusammensetzung ist, desto größer sind die

erzielbaren Genauigkeiten bei der Konzentrationsbestimmung.

Die Abb. A.1 zeigt die Abhängigkeit der Brechzahl von der Zusammensetzung und der Temperatur in der 3-Chlortoluol-Phase. Es besteht über den gesamten vermessenen Konzentrationsbereich annähernd ein quadratischer Zusammenhang zwischen der Konzentration und dem Massenanteil des Acetons. Mit steigender Temperatur verschiebt sich die Kurve zu höheren Brechzahlen. Für die Umrechnung der mit dem Refraktometer gemessenen Brechzahl n_D in den Massenanteil Aceton x wurde folgende Gleichung mit einem Bestimmtheitsmaß von $r^2 = 1,0$ an die Messergebnisse angepasst:

$$y = \frac{0,2151 - \sqrt{0,04627 - 0,2292 \cdot (1,5221 - n_D)}}{0,1146} \quad (4.1)$$

Ein Vergleich mit den in [112] angegebenen Werten für das bei vielen Untersuchungen eingesetzte Stoffsystem Toluol/Aceton zeigt, dass bei dem in der vorliegenden Arbeit eingesetzten Stoffsystem die Abhängigkeit der Brechzahl von der Zusammensetzung mit $\Delta n_D / \Delta y = 0,21$ um den Faktor 1,4 größer ausfällt. Es ist deshalb für den Einsatz der holografischen Interferometrie und für die Konzentrationsbestimmung mit Hilfe der Refraktometrie sehr gut geeignet.

4.2 Bestimmung des Stoffdurchgangskoeffizienten

Die Bestimmung des Stoffdurchgangskoeffizienten bei unterschiedlichen Rand- und Startbedingungen erlaubt es, deren Einfluss auf die untersuchten Stofftransportvorgänge zu quantifizieren. Zu diesem Zweck wird nach jedem Einzelversuch der Flüssigkeitsfilm abgesaugt und seine Endkonzentration y_ω bestimmt. Mit dem Ansatz

$$\dot{M}(t) = -k \cdot A_{Tr}(t) \cdot \rho_d \cdot [y(t) - x_\infty] \quad (4.2)$$

und den Annahmen zeitlich konstanter Tropfenmasse M_{Tr} und Austauschfläche A_{Tr}

$$\frac{dM_{Tr}}{dt} = 0, \quad \frac{dA_{Tr}}{dt} = 0 \quad (4.3)$$

sowie unter der Berücksichtigung, dass die kontinuierliche Phase bei allen durchgeführten Versuchsreihen stets aus reinem Wasser besteht

$$x_\infty = 0 \quad (4.4)$$

folgt nach Umformung die Auswertgleichung zur Bestimmung des mittleren Stoffdurchgangskoeffizienten k_m für ein Zeitintervall τ zu

$$k_m(\tau) = \ln\left(\frac{y_0}{y_\omega}\right) \cdot \frac{d_{Tr}}{6 \cdot \tau} \quad (4.5)$$

y_0 : Konzentration im Tropfen zu Beginn des Zeitintervalls

y_ω : Konzentration im Tropfen am Ende des Zeitintervalls

τ : Zeitintervall für den Stofftransport

Werden mehrere Versuche durchgeführt, die sich nur durch die jeweilige Zeitdauer für den Stofftransport t_1, t_2, t_3, \dots unterscheiden, so kann mit Gl. 4.5 auch der mittlere Stoffdurchgangskoeffizient für dazwischen liegende Zeitintervalle (z. B. $\tau = t_3 - t_2$) bestimmt werden.

4.3 Stofftransport am Einzeltropfen

Im ersten Teil der experimentellen Untersuchungen wird zunächst der Stoffübergang an einem einzelnen Tropfen betrachtet, um diesen anschließend mit dem Stofftransport innerhalb eines Tropfenschwarms vergleichen zu können. Zu diesem Zweck ist in der in Abschnitt 2.2 beschriebenen Messzelle nur ein einziger Tropfen in deren Zentrum fixiert. Die experimentellen Arbeiten werden mit dem in Abschnitt 4.1 vorgestellten Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser durchgeführt. Die Tropfenphase besteht stets aus 3-Chlortoluol, die kontinuierliche Phase stets aus reinem Wasser ohne Übergangskomponente. Das Aceton geht aus der Tropfenphase in die kontinuierliche Phase über. Mit Hilfe der in Kap. 3 beschriebenen Messtechnik werden Strömungs- und Konzentrationsfelder im Bereich der Phasengrenze sowie die Konzentrationsänderung im Tropfen bestimmt. Bei den experimentellen Untersuchungen werden die in Tab. 4.3 aufgeführten Versuchsparameter variiert.

Die Reynoldszahl Re wird aus der Leerrohrgeschwindigkeit der kontinuierlichen Phase im Einlaufbereich der Messzelle w_c , dem Durchmesser des Tropfens d_{Tr} , der Dichte von Wasser $\rho_W(T = 20 \text{ °C})$ und der dynamischen Viskosität von Wasser $\eta_W(T = 20 \text{ °C})$ berechnet.

$$Re = \frac{w_c \cdot d_{Tr} \cdot \rho_W}{\eta_W} \quad (4.6)$$

Tab. 4.3: Versuchsparameter und deren Wertebereich für die experimentellen Untersuchungen am Einzeltropfen

Parameter	Wertebereich
Massenanteil Aceton	$y_0 = 0,02; 0,04; 0,06; 0,08$ kg/kg
Stoffübergangsrichtung	disperse \rightarrow kontinuierliche Phase
Strömungsgeschwindigkeit	$Re = 12; 18; 24$
Zeitdauer Stoffübergang	$t = 30; 60; 120; 240$ s

Dadurch ergeben sich bei identischer Leerrohrgeschwindigkeit unterschiedliche Reynoldszahlen für die Untersuchungen am Einzeltropfen und am Tropfenschwarm, da der Holdup verschieden ist. Der Holdup im Bereich des Tropfenschwarms beträgt bei der verwendeten Anordnung $\varepsilon_d = 0,054$. Daraus resultiert jedoch nur eine um den Faktor $1/(1 - \varepsilon_d) = 1,057$ höhere Effektivgeschwindigkeit bzw. effektive Reynoldszahl im Schwarm, sodass diese Abweichung vernachlässigt werden kann.

In Abb. 4.3 sind die mit Gl. 4.5 ermittelten Werte für den Stoffdurchgangskoeffizienten k_m über der Versuchsdauer t aufgetragen. Parameter sind die Reynoldszahl Re und die Tropfenstartkonzentration y_0 (Massenanteil Aceton im Tropfen zu Beginn eines Versuchs). Mit zunehmender Zeit t nimmt der mittlere Stoffdurchgangskoeffizient k_m bei allen Versuchsreihen erwartungsgemäß ab. Für größere Tropfenstartkonzentration werden größere Werte für den Stoffdurchgangskoeffizienten ermittelt. Auffällig ist der Sprung zwischen den Werten des Stoffdurchgangskoeffizienten bei einer Steigerung von $y_0 = 0,04$ kg/kg auf $y_0 = 0,06$ kg/kg, insbesondere bei einer Versuchsdauer von $t = 30$ s.

Bei den Versuchsreihen mit einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,06$ kg/kg und $y_0 = 0,08$ kg/kg können unabhängig von der Strömungsgeschwindigkeit stets Marangoni-konvektionen beobachtet werden. Eine Steigerung der Strömungsgeschwindigkeit führt bei einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,06$ kg/kg zu einem niedrigeren Stoffdurchgangskoeffizienten und bei einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,08$ kg/kg wird der maximale Stoffdurchgangskoeffizient bei der mittleren Reynoldszahl von $Re = 23$ ermittelt.

Bei den Versuchsreihen mit einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,02$ kg/kg können unabhängig von der Strömungsgeschwindigkeit keine Marangonikonvektionen beobachtet werden. Die Strömungsgeschwindigkeit besitzt im untersuchten Wertebereich keinen signifikanten Einfluss auf den Stoffdurchgangskoeffizienten.

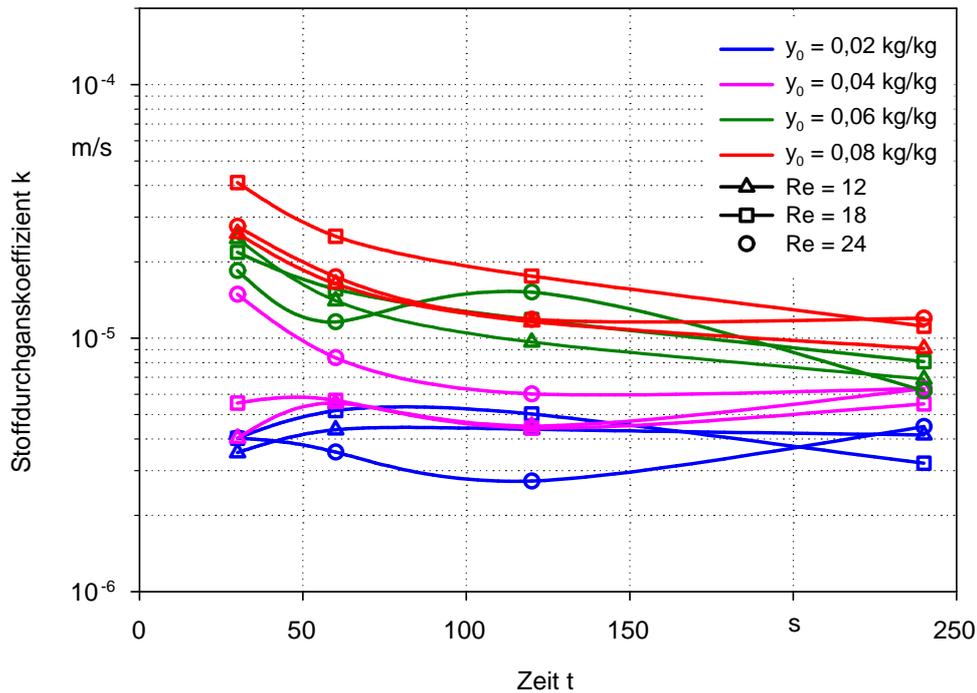


Abb. 4.3: Zeitlicher Verlauf des Stoffdurchgangskoeffizienten k_m bei verschiedenen Reynoldszahlen Re und Tropfenstartkonzentrationen y_0 für Messungen am Einzeltropfen im Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser

Bei den Versuchsreihen mit einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,04$ kg/kg und Strömungsgeschwindigkeiten entsprechend $Re = 12$ bzw. $Re = 18$ werden keine Marangonikonvektionen beobachtet. Wird die Strömungsgeschwindigkeit jedoch weiter gesteigert ($Re = 24$), so wird bei einer Versuchsdauer von $t = 30$ s eine deutliche Erhöhung des Stoffdurchgangskoeffizienten von $k_m = 5,6 \cdot 10^{-6}$ m/s auf $1,5 \cdot 10^{-5}$ m/s, d. h. um den Faktor 2,7 festgestellt. Berechnet man den Anstieg des Stoffdurchgangskoeffizienten aufgrund höherer Strömungsgeschwindigkeiten mit gängigen Gleichungen aus der Literatur, wie z. B. [71]

$$Sh = \frac{\beta \cdot d}{D} = (4,0 + 1,21 \cdot (Re \cdot Sc)^{2/3})^{1/2} \quad (4.7)$$

so ergäbe eine Steigerung der Reynoldszahl von $Re = 18$ auf $Re = 24$ lediglich eine Erhöhung des Stoffdurchgangskoeffizienten um den Faktor 1,1. Die Ursache des erhöhten Stofftransportes kann demnach nur zu einem geringen Teil dem direkten Einfluss der höheren Strömungsgeschwindigkeit zugeschrieben werden. Die Auswertung der parallel

durchgeführten Beobachtungen mit Hilfe der holografischen Interferometrie zeigt vielmehr, dass auftretende Marangonikonvektionen, also ein veränderter Stofftransportmechanismus, dafür verantwortlich sind.

In vielen Arbeiten wird davon ausgegangen, dass für das Auftreten von Marangonikonvektionen eine so genannte *kritische Konzentrationsdifferenz* überschritten werden muss [38, 73, 112]. Aus den im Rahmen dieser Arbeit gemachten Beobachtungen kann geschlossen werden, dass das Auftreten von Marangonikonvektionen sowohl von der Konzentrationsdifferenz als auch von der Geschwindigkeit der kontinuierlichen Phase abhängt. Dieser zusätzliche Einfluss der Strömungsgeschwindigkeit wurde u. a. bereits von Wolf [112] beobachtet. Wolf untersuchte unter Variation von Stoffübergangsrichtung und Strömungsgeschwindigkeit 15 ternäre Stoffsysteme. Eine Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit führte dabei in 9 Fällen zu einer niedrigeren und in zwei Fällen zu einer höheren kritischen Konzentrationsdifferenz. In den anderen untersuchten Fällen konnte von ihm kein derartiger Einfluss beobachtet werden, d. h. der ermittelte Wert der kritischen Konzentrationsdifferenz blieb unverändert.

Der Einfluss der Strömungsgeschwindigkeit auf den Stofftransport lässt sich mit den bisher aufgeführten Ergebnissen nicht eindeutig erklären. Erst die Erweiterung der Datenbasis durch die im Folgenden beschriebenen experimentellen Untersuchungen und insbesondere die Ergebnisse der numerischen Simulationen (Kap. 5) gestatten eine Interpretation und führen zu einem besseren Verständnis der beobachteten Vorgänge (siehe Abschnitt 4.5).

4.4 Einzelner Tropfen mit Stofftransport im Schwarm

Aufbauend auf die Untersuchungen am Einzeltropfen wird der Einfluss eines durch benachbarte Tropfen geänderten Strömungsprofils auf den Stoffübergang untersucht. Zu diesem Zweck wird die in Abschnitt 2.2 beschriebene Messzelle wie in Abb. 2.3 eingesetzt. Stofftransport findet bei diesen Untersuchungen entweder am Tropfen Nr. 3 oder am Tropfen Nr. 12 statt. Die anderen Kugeln bleiben von organischer Phase unbenetzt und dienen der Beeinflussung des Strömungsprofils.

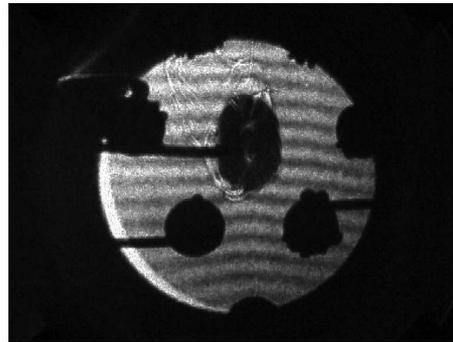
Die experimentellen Arbeiten werden mit dem in Abschnitt 4.1 vorgestellten Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser durchgeführt. Die Tropfenphase besteht stets aus 3-Chlortoluol, die kontinuierliche Phase stets aus reinem Wasser ohne Übergangskomponente. Das Aceton geht aus der Tropfenphase in die kontinuierliche Phase über. Mit

Tab. 4.4: Versuchsparameter und deren Wertebereich für die experimentellen Untersuchungen am einzelnen Tropfen mit Stofftransport im Schwarm

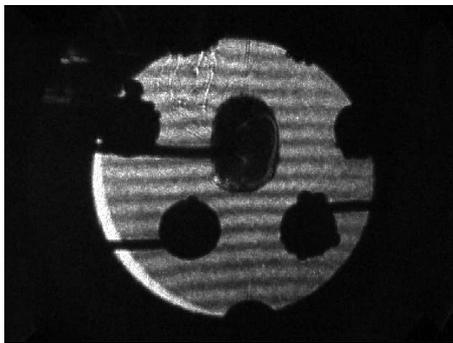
Parameter	Wertebereich
Massenanteil Aceton	$y_0 = 0,02; 0,04; 0,06; 0,08$ kg/kg
Stoffübergangsrichtung	disperse \rightarrow kontinuierliche Phase
Strömungsgeschwindigkeit	$Re = 0; 11; 16; 21; 33; 62; 82$
Zeitdauer Stoffübergang	$t = 15; 30; 60; 120; 240$ s



$Re = 0$



$Re = 11$



$Re = 33$



$Re = 73$

Abb. 4.4: Holografische Aufnahmen des Stofftransportes an einem einzelnen Tropfen im Schwarm bei verschiedenen Strömungsgeschwindigkeiten. Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser, Tropfenstartkonzentration $y_0 = 0,02$ kg/kg

Hilfe der in Kap. 3 beschriebenen Messtechnik werden Strömungs- und Konzentrationsfelder im Bereich der Phasengrenze sowie die Konzentrationsänderung im Tropfen bestimmt. Bei den experimentellen Untersuchungen werden die in Tab. 4.4 aufgeführten Versuchsparameter variiert.

Die mit Hilfe der holografischen Interferometrie erhaltenen Aufnahmen für eine Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,02$ kg/kg zeigen deutlich, dass bei den vergleichsweise niedrigen Konzentrationen keine Marangonikonvektionen auftreten (Abb. 4.4). Das aus der Tropfenphase austretende Aceton ist als Schlieren in der kontinuierlichen Phase erkennbar. Während der Tropfenbildung und der damit verbundenen Bewegung der organischen Phase nach unten können sich diese Schlieren kurzzeitig entgegen der Schwerkraft bewegen (Abb. 4.4, links oben). Durch eine zunehmend höhere Anströmgeschwindigkeit werden die mit Aceton beladenen Bereiche immer stärker von der kontinuierlichen Phase mitgerissen, so dass sie sich schließlich in Form eines Strahls vom Tropfen ablösen. Die übergelassenen Stoffmengen bzw. die Massenstromdichte sind so gering, dass dadurch nur geringe Änderungen der Brechzahl in der kontinuierlichen Phase hervorgerufen werden. Die dadurch verursachten schwachen Interferenzen lassen sich auf den mit Hilfe der holografischen Interferometrie erstellten Einzelbildern nur schwer erkennen. Erst die Betrachtung der zugehörigen Videoaufnahmen zeigt, dass das Aceton kontinuierlich in der wässrigen Phase übergeht und sich in Form eines dünnen Strahls vom Tropfen löst.

Ähnliche Beobachtungen werden bei einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,04$ kg/kg gemacht (Abb. 4.5). Aufgrund des erhöhten Stofftransportes ist die Schlierenbildung etwas ausgeprägter. Insbesondere bei niedrigen Reynoldszahlen ist die Bewegung der mit Aceton beladenen Bereiche entgegen der Schwerkraft gut zu erkennen. Vereinzelt kann es während der Tropfenbildung zur Ausbildung von kleinen, eruptionsartigen Marangonikonvektionen kommen. Diese sind jedoch nur für Bruchteile von Sekunden sichtbar und wirken nur wenige Millimeter in die kontinuierliche Phase hinein. Ein signifikanter Einfluss auf den mittleren Stoffdurchgangskoeffizienten k_m kann nicht festgestellt werden.

In Abb. 4.6 (oben) sind die mit Hilfe von Gl. 4.5 ermittelten Werte für den Stoffdurchgangskoeffizienten k_m über der Versuchsdauer t bei einer Reynoldszahl von $Re = 0$ aufgetragen. Dargestellt sind die Ergebnisse aus Untersuchungen am Tropfen Nr. 3 (vgl. Abb. 2.3). Parameter ist die Tropfenstartkonzentration y_0 . Mit zunehmender Zeit t nimmt der mittlere Stoffdurchgangskoeffizient k_m bei allen Versuchsreihen erwartungsgemäß ab. Für größere Konzentrationsdifferenzen werden größere Werte für den Stoffdurchgangskoeffizienten ermittelt. Im Vergleich zu den Ergebnissen am Einzeltropfen ergeben sich durchgehend höhere Werte für den Stoffdurchgangskoeffizienten k_m .

In Abb. 4.6 (unten) sind die mit Hilfe von Gl. 4.5 ermittelten Werte für den Stoffdurchgangskoeffizienten k_m über der Versuchsdauer t bei einer Reynoldszahl von $Re = 11$

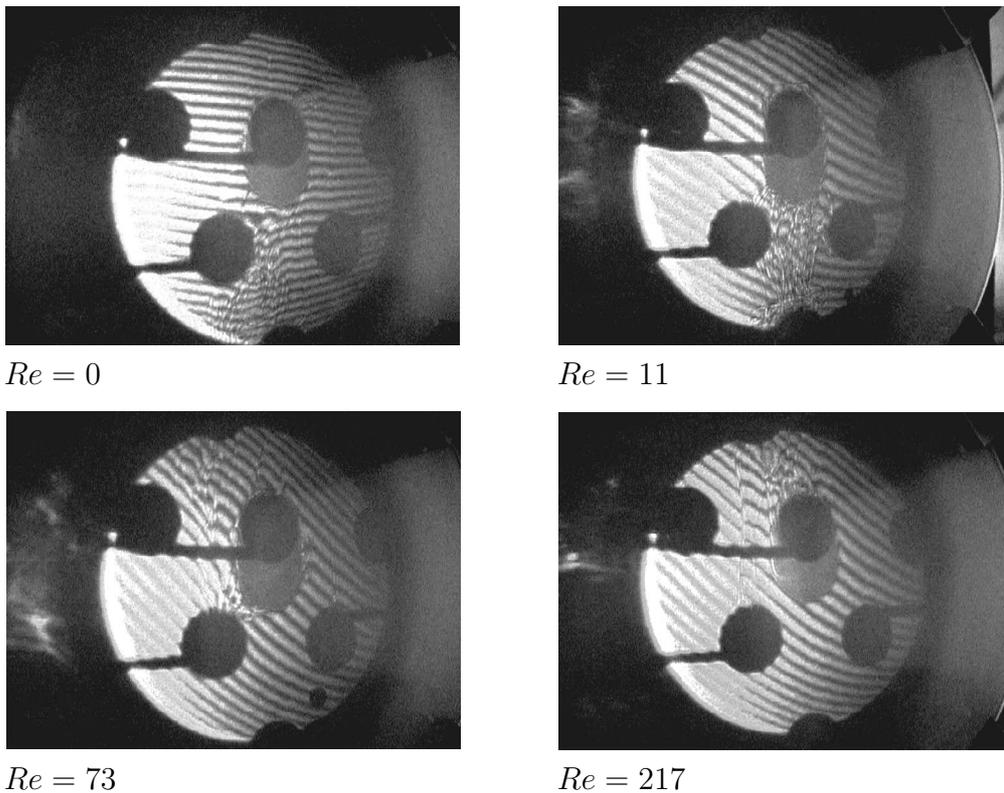


Abb. 4.5: Holografische Aufnahmen des Stofftransportes an einem einzelnen Tropfen im Schwarm bei verschiedenen Strömungsgeschwindigkeiten. Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser, Tropfenstartkonzentration $y_0 = 0,04$ kg/kg

aufgetragen. Dargestellt sind die Ergebnisse aus Untersuchungen an zwei entsprechend Abb. 2.3 unterschiedlich positionierten Tropfen (Tropfen Nr. 3 und Nr. 12). Dabei ist immer nur einer der Tropfen am Stofftransport beteiligt. Parameter ist die Tropfenstartkonzentration y_0 . Mit zunehmender Zeit t nimmt auch hier der mittlere Stoffdurchgangskoeffizient k_m bei allen Versuchsreihen ab. Für größere Konzentrationsdifferenzen werden tendenziell größere Werte für den Stoffdurchgangskoeffizienten ermittelt. Im Vergleich zu den Ergebnissen am Einzeltropfen (Abb. 4.3) ergeben sich durchgehend höhere Werte für den Stoffdurchgangskoeffizienten k_m , im Vergleich zu den Ergebnissen am einzelnen Tropfen im Schwarm ohne erzwungene Konvektion (Abb. 4.6, oben) werden jedoch niedrige Werte ermittelt. Betrachtet man die mit Hilfe der holografischen Interferometrie erstellten Aufnahmen des Stofftransportes ohne erzwungene Konvektion ($Re = 0$) mit denen bei einer Reynoldszahl von $Re = 11$ (Abb. 4.7), so fällt auf, dass Marangonikon-

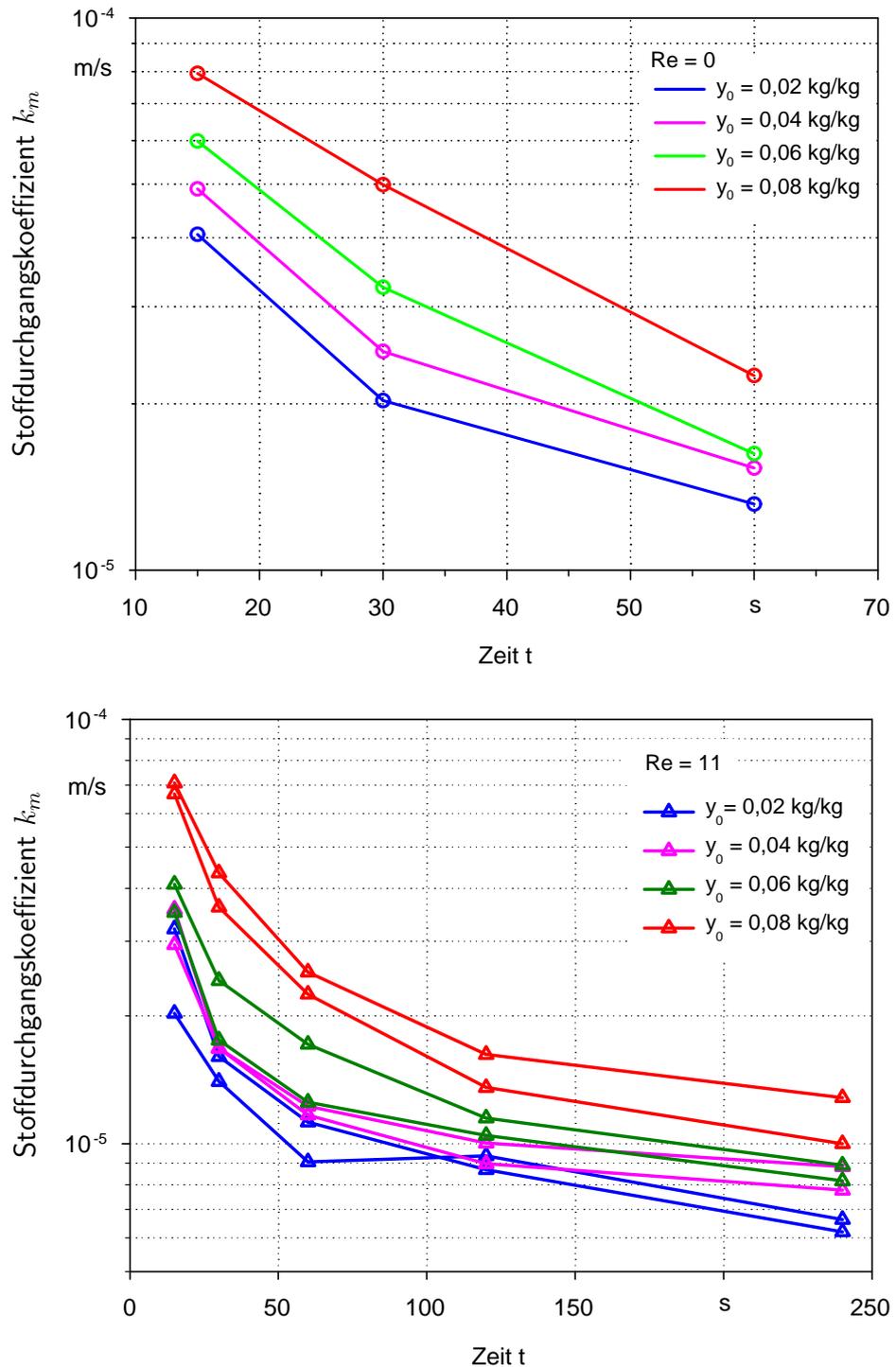


Abb. 4.6: Zeitlicher Verlauf des Stoffdurchgangskoeffizienten k_m bei verschiedenen Tropfenstartkonzentrationen y_0 für Messungen an einem einzelnen Tropfen mit Stofftransport innerhalb eines Schwarms im Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser. Oben: $Re = 0$; Unten: $Re = 11$

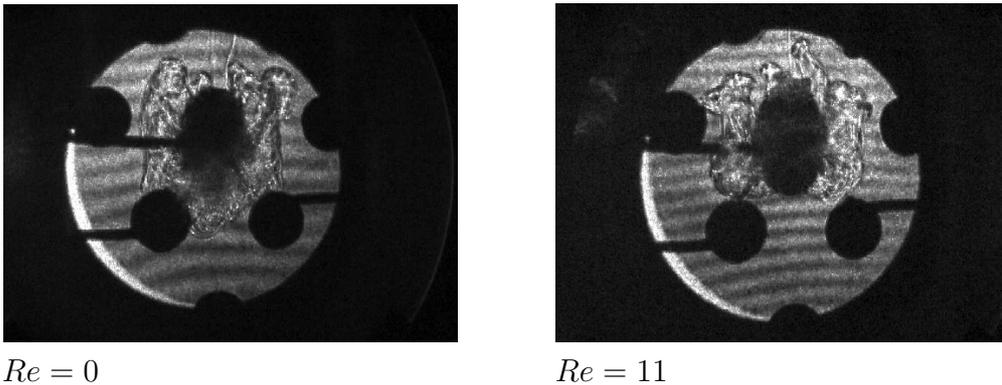


Abb. 4.7: Holografische Aufnahmen des Stofftransportes an einem einzelnen Tropfen im Schwarm bei unterschiedlichen Strömungsgeschwindigkeiten. Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser, Tropfenstartkonzentration $y_0 = 0,08$ kg/kg

vektionen bereits durch diese geringe Anströmung mitgenommen werden und nicht mehr die gesamte Tropfenoberfläche umfassen. Dadurch wird der Stofftransport im Bereich des Staupunktes nicht mehr direkt durch Marangonikonvektion beeinflusst und es resultiert die experimentell nachgewiesene Verminderung des Stoffdurchgangskoeffizienten k_m .

Bei der hier vorliegenden vergleichsweise niedrigen Strömungsgeschwindigkeit der kontinuierlichen Phase ($Re = 11$) sowie bei den Untersuchungen mit einer Reynoldszahl von $Re = 16$ ist eine Erhöhung der Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,06$ kg/kg auf $y_0 = 0,08$ kg/kg mit einem deutlichen, sprunghaften Anstieg des Stoffdurchgangskoeffizienten bis um den Faktor 1,75 verbunden (Abb. 4.6, unten u. Abb. B.1). Eine weitere Steigerung der Strömungsgeschwindigkeit führt dazu, dass die gleiche Erhöhung der Tropfenstartkonzentration mit einem zunehmend kleineren Anstieg des Stoffdurchgangskoeffizienten verbunden ist. Teilweise liegt der Stoffdurchgangskoeffizient für eine Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,06$ kg/kg sogar über dem von $y_0 = 0,08$ kg/kg (vgl. Abb. 4.8, Abb. B.1 u. B.2). Nicht nur die Ausbildung von Marangonikonvektionen sondern insbesondere deren Einfluss auf den Stofftransport sind demnach deutlich von der Strömungsgeschwindigkeit der kontinuierlichen Phase abhängig.

4.5 Diskussion der Versuchsergebnisse am Einzeltropfen

Der Stofftransport in Flüssig-flüssig-Systemen beruht auf mehreren Transportmechanismen. Neben der reinen Diffusion sind vor allem die freie und die erzwungene Konvek-

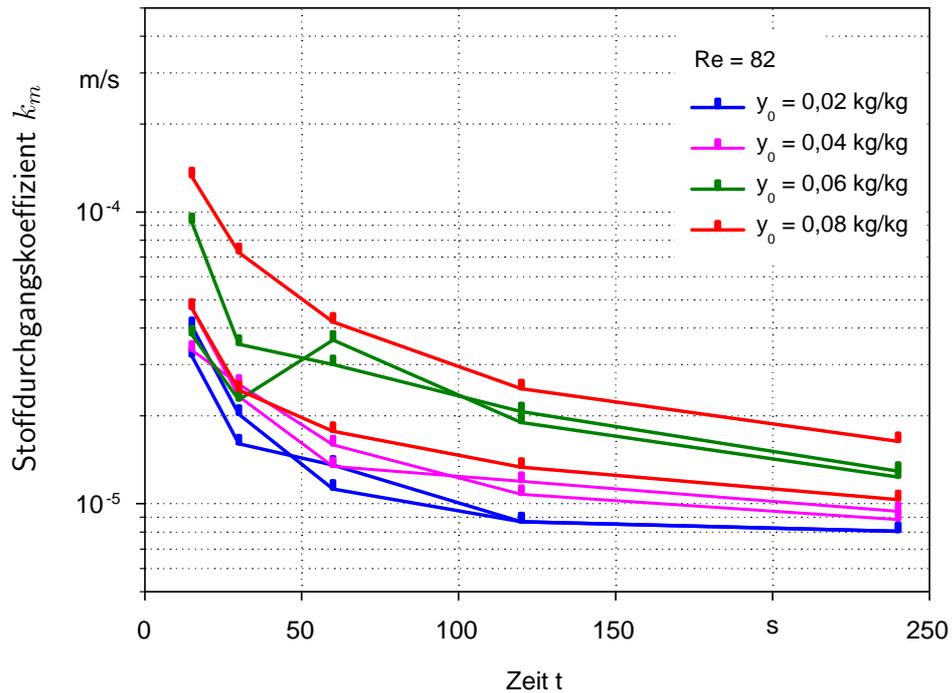


Abb. 4.8: Zeitlicher Verlauf des Stoffdurchgangskoeffizienten k_m bei einer Reynoldszahl von $Re = 82$ und verschiedenen Tropfenstartkonzentrationen y_0 für Messungen an einzelnen Tropfen (Nr. 3, Nr. 12) mit Stofftransport innerhalb eines Schwarms im Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser

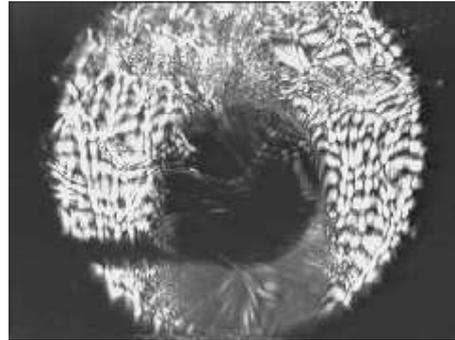
tion sowie die Marangonikonvektion zu nennen. Die jeweilige Intensität und der damit verbundene Beitrag zum gesamten Stofftransport hängt von mehreren Einflussfaktoren ab. Hinzu kommt, dass die einzelnen Teilbeiträge nicht einfach addiert werden können, sondern starke Wechselwirkungen beobachtet werden, die den Stofftransport insgesamt verbessern oder auch verschlechtern können.

Im Folgenden soll mit Hilfe der Abb. 4.9 und Abb. 4.10 ein *Erklärungsversuch* für die experimentell erhaltenen Ergebnisse gegeben werden. Aufgrund der Komplexität und der vielfältigen Wechselwirkungen entziehen sich die beobachteten Vorgänge einer exakten Erklärung. Die Abb. 4.10 ist demnach nur als stark vereinfachte schematische Darstellung zu verstehen.

Bei der Betrachtung des Stofftransportes an der untersuchten Geometrie mit Stofftransport aus der Tropfenphase in die kontinuierliche Phase kann der Einfluss der erzwungenen Konvektion auf die Ausbildung der anderen Transportmechanismen und da-

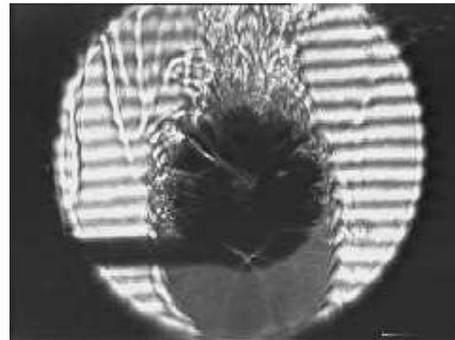
$Re = 0$:

Ausbildung intensiver, sehr weit reichender Marangonikonvektionen entlang der gesamten Phasengrenzfläche.



$Re = 11$:

Die Ausbildung der Marangonikonvektionen wird infolge der erzwungenen Konvektion überwiegend an die Tropfenoberseite verlagert.



$Re = 82$:

Bei starker Zwangskonvektion erfolgt die Ausbildung von Marangonikonvektionen wieder über einen größeren Bereich der Phasengrenzfläche. Durch die starke Anströmung werden diese nach oben mitgerissen.

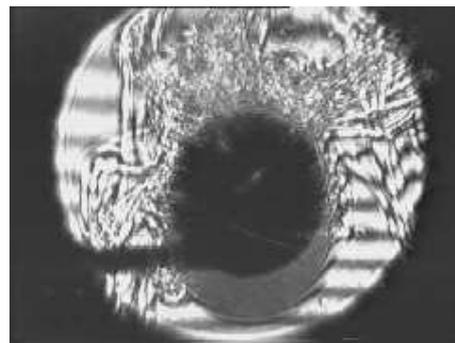


Abb. 4.9: Einfluss der erzwungenen Konvektion auf die Ausbildung und Intensität von Marangonikonvektionen. Die Aufnahmen wurden mit Hilfe der holografischen Interferometrie am Tropfen Nr. 12 erstellt.

mit auf den gesamten Stofftransport ermittelt werden.

Bei den Versuchen *ohne erzwungene Konvektion* ($Re = 0$) erfolgt der Stofftransport aufgrund von Diffusion, freier Konvektion und Marangonikonvektion. Inhomogenitäten beim Stofftransport führen zu Gradienten der Grenzflächenspannung, die über die gesamte Oberfläche verteilt sind (Abb. 4.10, links). Wegen der anfangs nur geringen Dichtedifferenzen ist der Einfluss der freien Konvektion zunächst vernachlässigbar und die Ausbildung von Marangonikonvektionen erfolgt nahezu ungestört. Die stark turbulenten

Bereiche sind entlang des gesamten Tropfenumfangs zu beobachten und reichen sehr weit in die kontinuierliche Phase hinein (Abb. 4.9, oben). Es resultieren relativ hohe Werte für den Stoffdurchgangskoeffizienten. Erst nach einigen Sekunden wird der Einfluss der freien Konvektion durch eine beginnende Aufwärtsbewegung der turbulenten Bereiche ersichtlich.

Bei sehr *niedrigen Strömungsgeschwindigkeiten* ($Re \approx 11$) trifft die kontinuierliche Phase am Staupunkt auf den Tropfen, bewegt sich von hier entlang der Phasengrenze und verläßt den Tropfen schließlich am Ablösepunkt. Durch Impulsübertragung wird in der Tropfenphase eine sehr großräumige innere Zirkulation induziert, die im Bereich der Phasengrenze entsprechend der Strömung der kontinuierlichen Phase gerichtet ist (Abb. 4.10, Mitte). Aufgrund der vorliegenden Strömungsverhältnisse ist am Staupunkt die größte Konzentrationsdifferenz zu erwarten. Die kontinuierliche Phase besitzt hier die niedrigste und die aus dem Kern des Tropfens kommende Phase eine hohe Konzentration. Im weiteren Verlauf der Strömung vom Staupunkt zum Ablösepunkt nimmt infolge des Stofftransportes die Konzentration in der Tropfenphase ab und in der kontinuierlichen Phase zu. Die Abnahme der Konzentration in der Tropfenphase wird aufgrund des geringen Volumens stärker sein als die Zunahme in der kontinuierlichen Phase. Dies bewirkt in Strömungsrichtung verlaufend eine Zunahme der Grenzflächenspannung (vgl. Abb. A.6) und induziert dadurch eine der Strömung der kontinuierlichen Phase gleichgerichtete Bewegung der Phasengrenze und somit eine Beschleunigung der angrenzenden kontinuierlichen Phase (Abb. 4.10, Mitte). Im Bereich des Ablösepunktes treffen diese Strömungen aufeinander, lösen sich vom Tropfen ab und bewegen sich in Hauptströmungsrichtung weg. Die Beobachtung mit Hilfe der holografischen Interferometrie scheint diese Erklärung zu bestätigen und zeigt deutlich, dass die Marangonikonvektionen in diesem Fall mit einer wesentlich reduzierten Turbulenz verbunden sind (Abb. 4.9, Mitte).

Bei *höheren Strömungsgeschwindigkeiten* scheint in beiden Phasen aufgrund von Turbulenz eine zunehmende Quervermischung zu erfolgen. Die Ursache für die turbulente Strömung könnte in Störungen der kontinuierlichen Phase beim Durchströmen des Tropfenschwarms liegen oder eine Folge des Strömungsgeschwindigkeitsgradienten in der Tropfenphase sein¹. Eine weitere Ursache liegt in den unterschiedlichen Dichten der Rein-

¹Die in Abb. 4.10, Mitte dargestellte Zirkulation wird bei höheren Relativgeschwindigkeiten und den damit verbundenen starken Gradienten sowie der Strömungsrichtungsumkehr ihren geordneten Charakter verlieren und turbulent werden.

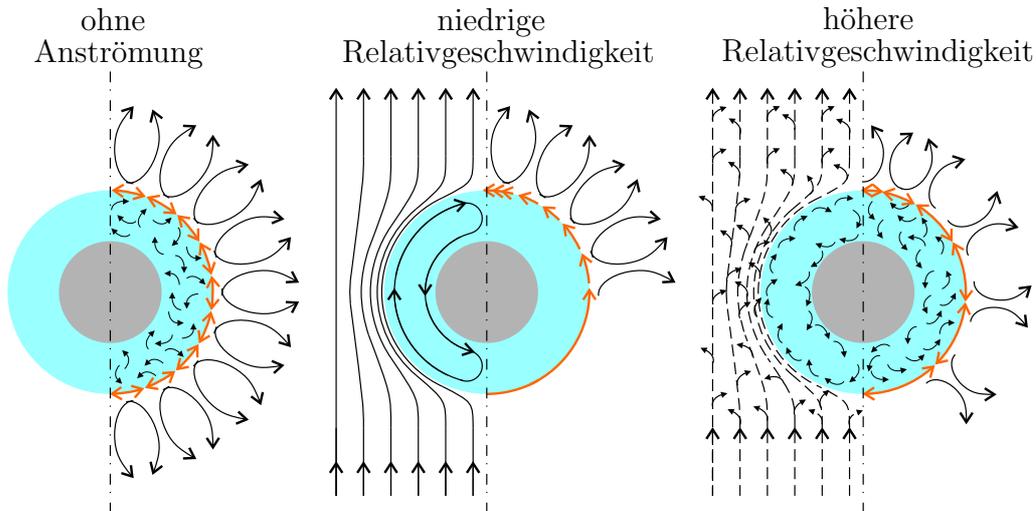


Abb. 4.10: Einfluss der erzwungenen Konvektion (jeweils linke Bildhälfte) und der Grenzflächenspannung (jeweils rechte Bildhälfte, orange dargestellt) auf die Strömung innerhalb eines Tropfens.

stoffe im verwendeten Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser. Die Übergangskomponente Aceton besitzt die niedrigste Dichte. Demnach erfahren in beiden Hauptphasen Bereiche mit niedriger Konzentration der Übergangskomponente eine Abtriebskraft. Die resultierende *freie Konvektion* ist in der kontinuierlichen Phase der Hauptströmungsrichtung gleichgerichtet. Innerhalb des Tropfens wirkt sie jedoch entgegen der oben beschriebenen geordneten Zirkulationsströmung und führt als zusätzlicher Effekt zu Turbulenzen innerhalb des Tropfens. Die letzte Aussage wird insbesondere durch die Ergebnisse der numerischen Simulation in Abschnitt 5.5.2 gestützt.

Vor allem die aus der Turbulenz resultierende bessere Vermischung der Tropfenphase führt in einem großen Bereich der Phasengrenzfläche zu größeren lokalen Konzentrationsdifferenzen. Die Häufigkeit und Intensität der fast an der gesamten Tropfenoberfläche entstehenden Marangonikonvektionen nimmt bei den untersuchten Strömungsgeschwindigkeiten in Hauptströmungsrichtung zu. Marangonikonvektionen, die im Bereich des Staupunktes entstehen, werden von der Strömung schnell mitgerissen und wirken deshalb erst im oberen Bereich weiter in die kontinuierliche Phase hinein (Abb. 4.9, unten). Damit verbunden ist eine insgesamt reduzierte, jedoch auf einen größeren Bereich ausgedehnte Ausbildung von Marangonikonvektionen.

Diese Erklärungen scheinen sowohl durch die Analyse der übergegangenen Stoffmen-

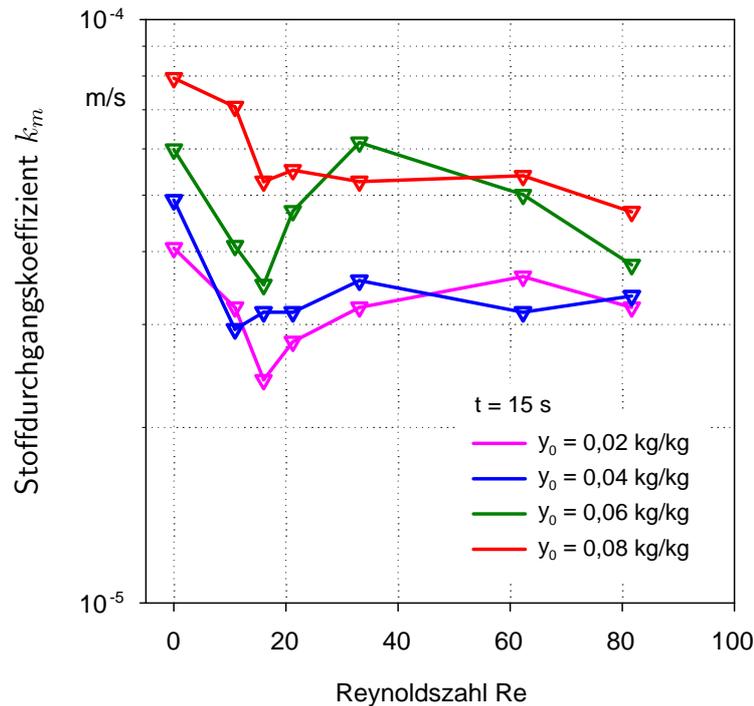


Abb. 4.11: Stoffdurchgangskoeffizient k_m in Abhängigkeit der Reynoldszahl Re nach einer Stofftransportzeit von $t = 15$ s für Messungen am Tropfen Nr. 3 im Schwarm im Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser

gen und der holografischen Aufnahmen als auch durch die Ergebnisse der Modellierung (Kap. 5) bestätigt zu werden. Die ermittelten Stoffdurchgangskoeffizienten liegen bei den Versuchen ohne Anströmung durch die kontinuierliche Phase meist etwas höher als bei den mittleren Strömungsgeschwindigkeiten. Erst bei intensiver erzwungener Konvektion werden wieder höhere Werte erreicht (Abb. 4.11).

4.6 Stofftransport im Schwarm

Aufbauend auf die in den voraus gehenden Abschnitten beschriebenen Ergebnisse werden experimentelle Untersuchungen an mehreren simultan am Stofftransport beteiligten Tropfen durchgeführt. Ziel hierbei ist die Ermittlung des Schwarmeinflusses und der damit verbundenen Wechselwirkungen auf den Stofftransport. Zu diesem Zweck wird die in Abschnitt 2.2 beschriebene Messzelle eingesetzt (Abb. 2.3). Die im Folgenden angegebenen quantitativen Daten beziehen sich stets auf die Untersuchungen des Stoff-

Tab. 4.5: Versuchsparameter und deren Wertebereich für die experimentellen Untersuchungen der Wechselwirkungen im Schwarm

Parameter	Wertebereich
Massenanteil Aceton im Tropfen Nr. 3	$y_0 = 0,01 \dots 0,08$ kg/kg
Massenanteil Aceton in den Tropfen Nr. 7, 8, 12 gleichzeitig am Stofftransport beteiligte Tropfen (siehe Abb. 2.3)	$y_0 = 0,08$ kg/kg Nr. 3 und Nr. 12 oder Nr. 3 und Nr. 7, 8, 12
Stoffübergangsrichtung	disperse \rightarrow kontinuierliche Phase
Strömungsgeschwindigkeit	$Re = 0; 11; 33; 72; 217$
Zeitdauer Stoffübergang	$t = 15; 30; 60$ s

transportes am Tropfen Nr. 3. Dieser wird dabei entweder durch den Stofftransport am Tropfen Nr. 12 allein oder an den Tropfen Nr. 7, 8 und 12 zusammen beeinflusst. Die restlichen Kugeln bleiben von organischer Phase unbenetzt und dienen der Beeinflussung des Strömungsprofils. Es werden Versuchsreihen durchgeführt, bei denen alle Tropfen gleichzeitig und bei denen die Tropfen zeitlich versetzt gebildet werden.

Die experimentellen Arbeiten werden ebenfalls mit dem in Abschnitt 4.1 vorgestellten Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser durchgeführt. Die Tropfenphase besteht stets aus 3-Chlortoluol, die kontinuierliche Phase stets aus reinem Wasser ohne Übergangskomponente. Das Aceton geht aus der Tropfenphase in die kontinuierliche Phase über. Mit Hilfe der in Kap. 3 beschriebenen holografischen Interferometrie werden die Konzentrationsfelder im Bereich der Phasengrenze und mittels Refraktometrie bzw. Gaschromatografie die Konzentrationsänderung im Tropfen Nr. 3 bestimmt. In Tab. 4.5 sind die Versuchsparameter mit Wertebereich aufgeführt.

4.6.1 Simultane Tropfenbildung

Bei den in diesem Abschnitt beschriebenen Untersuchungen der Wechselwirkungen werden alle am Stofftransport beteiligten Tropfen simultan erzeugt. Der Tropfen Nr. 3 besitzt eine Tropfenstartkonzentration zwischen $y_0 = 0,01$ kg/kg und $y_0 = 0,08$ kg/kg. Die benachbarten Tropfen besitzen stets eine Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,08$ kg/kg, um einen intensiven Stofftransport, verbunden mit starken Marangonikonvektionen und großen Konzentrationsänderungen in der kontinuierlichen Phase, zu bewirken.

Bei den Untersuchungen wird jeweils die Konzentrationsänderung des Tropfens Nr. 3

Tab. 4.6: Erhöhungsfaktoren $F_{Sch,15}$ als Maß für den Schwarmeinfluss auf den Stofftransport an Tropfen Nr. 3 bei simultaner Tropfenerzeugung (Gl. 4.8).

Erhöhungsfaktor $F_{Sch,15}$	Reynoldszahl Re	Tropfenstartkonzentration y_0			
		0,02 kg/kg	0,04 kg/kg	0,06 kg/kg	0,08 kg/kg
	0	1,17	1,15	1,06	1,09
	11	2,05	1,24	1,53	1,24
	73	1,74	1,36	1,12	1,14
	217	1,31	1,20	0,99	1,17

ohne und mit Beeinflussung durch den Stofftransport an den benachbarten Tropfen gemessen und daraus der entsprechende Stoffdurchgangskoeffizient $k_{m,ET}$ bzw. $k_{m,Sch}$ bestimmt. Der sich als Quotient aus diesen beiden Werten für eine Versuchsdauer von $t = 15$ s ergebende Faktor $F_{Sch,15}$ dient als Maß für den Schwarmeinfluss.

$$F_{Sch,15} = \frac{k_{m,Sch}(15 \text{ s})}{k_{m,ET}(15 \text{ s})} \quad (4.8)$$

Die Abb. 4.12 und 4.14 zeigen die auf diesem Wege erhaltenen Werte des Stoffdurchgangskoeffizienten für jeweils eine bestimmte Reynoldszahl Re und verschiedene Tropfenstartkonzentrationen y_0 . In Tab. 4.6 sind die daraus resultierenden Werte für den Faktor $F_{Sch,15}$ aufgetragen.

Die Ergebnisse dieser Versuchsreihe zeigen, dass starke Marangonikonvektionen in unmittelbarer Nachbarschaft bei den gewählten Versuchsbedingungen zu einer Verbesserung des Stofftransportes am Tropfen Nr. 3 führen. Der Grund dafür liegt in einer erhöhten Strömungsgeschwindigkeit und Turbulenz der kontinuierlichen Phase im Bereich des betrachteten Tropfens infolge der starken Marangonikonvektionen an den benachbarten Tropfen. Dies führt zu einem verstärkten Abtransport der Übergangskomponente und vermutlich zusätzlich zu einer verbesserten Vermischung der Tropfenphase². Ein negativer Einfluss als Folge einer verminderten treibenden Konzentrationsdifferenz kann hier nicht festgestellt werden bzw. scheint unter den gewählten Bedingungen von untergeordneter Bedeutung zu sein (vgl. Abschnitt 4.6.2).

²Der verwendete Versuchsaufbau mit Tropfen als Untersuchungsgegenstand und die eingesetzten Messtechnik gestatten es nicht, mit den optischen Messmethoden zuverlässige Informationen bzgl. der Konzentration und der Geschwindigkeiten im Inneren der Tropfenphase zu erhalten. Die Ergebnisse der numerischen Simulationen lassen jedoch darauf schließen, dass sich die Turbulenz der kontinuierlichen Phase auf den Tropfen überträgt.

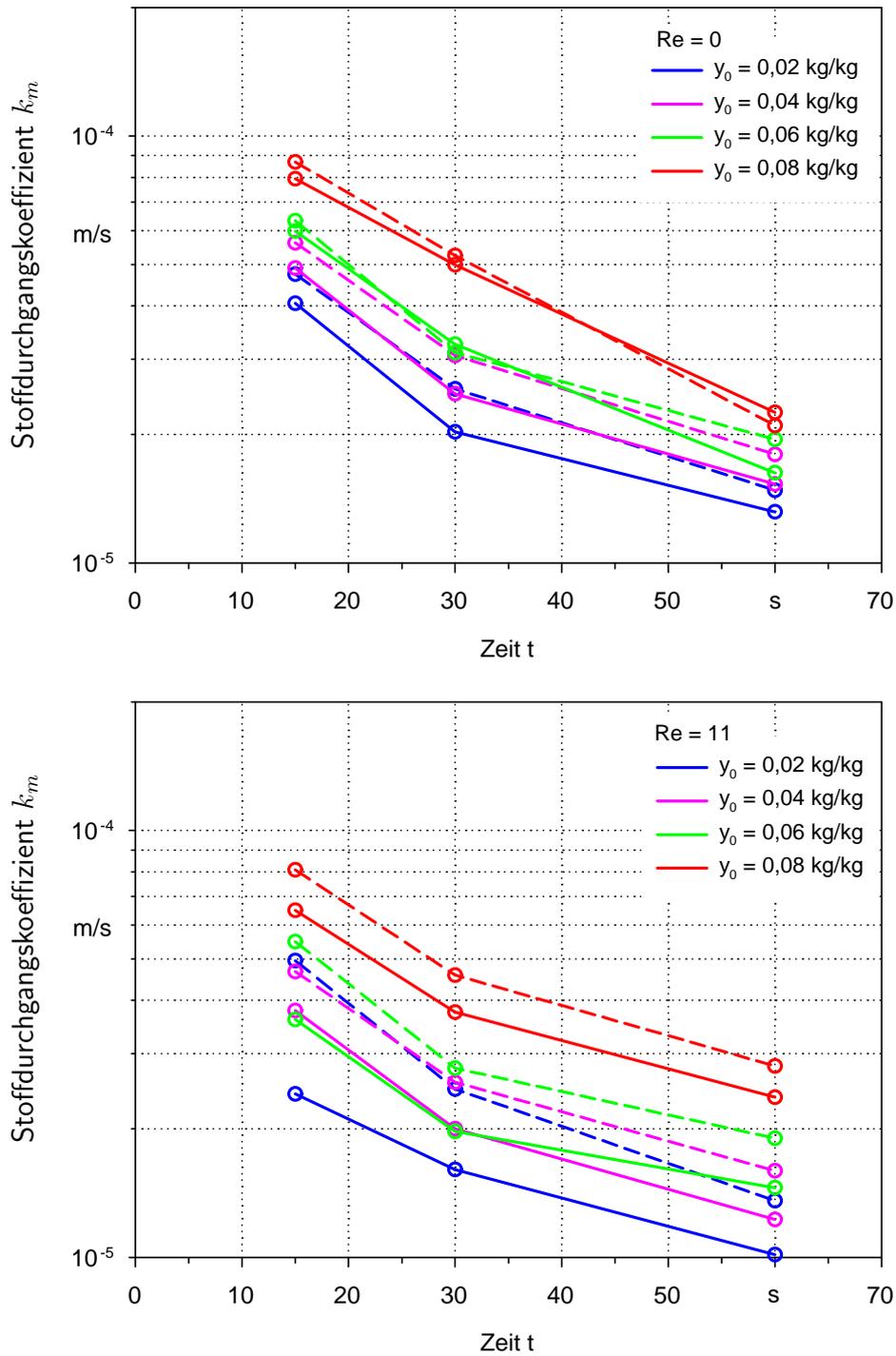


Abb. 4.12: Zeitlicher Verlauf des Stoffdurchgangskoeffizient k_m für Tropfen Nr. 3 allein (durchgezogene Linien) und unter dem Einfluss der Tropfen Nr. 7, 8, 12 (gestrichelte Linien). Oben: $Re = 0$, Unten: $Re = 11$

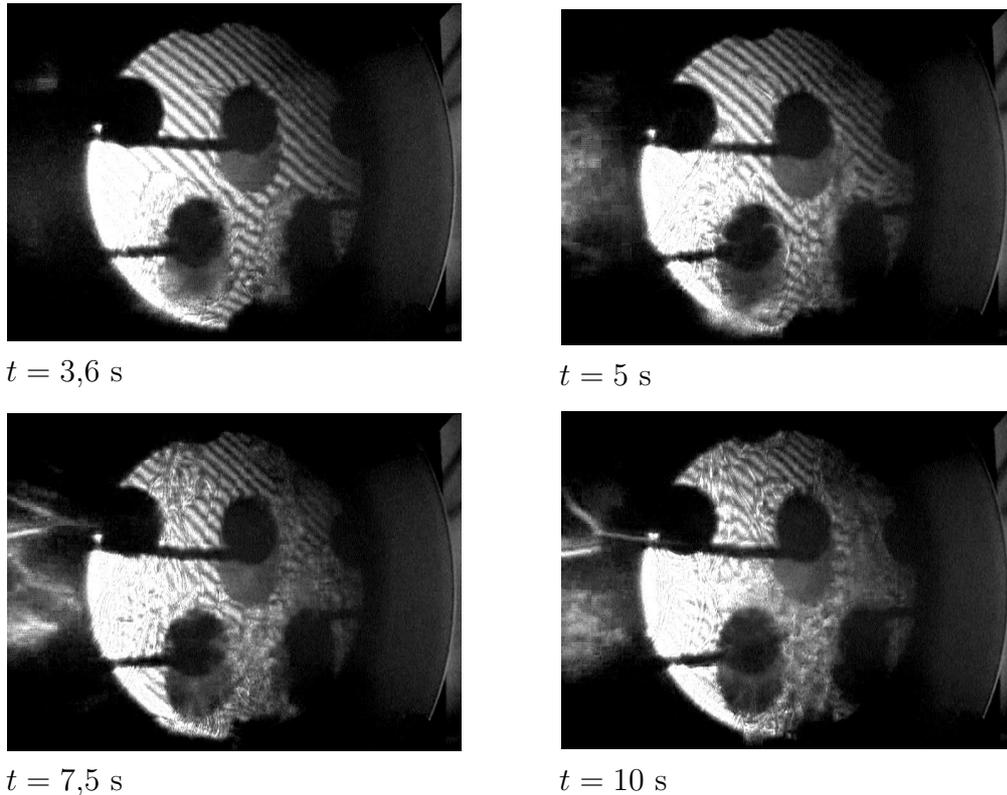


Abb. 4.13: Holografische Aufnahmen des Stofftransportes am Tropfen Nr. 3 unter dem Einfluss benachbarter Tropfen zu verschiedenen Zeitpunkten. Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser, Tropfenstartkonzentration $y_0 = 0,02 \text{ kg/kg}$, $Re = 0$

Bei den Versuchsreihen ohne erzwungene Konvektion (Abb. 4.12, oben) erreicht der Faktor $F_{Sch,15}$ nur Werte von 1,06 bis 1,17. Die Messpunkte der Untersuchungen mit (gestrichelte Linien) und ohne Schwarmeinfluss (durchgezogene Linien) liegen bei allen untersuchten Tropfenstartkonzentrationen y_0 nahe bei einander. Der Schwarmeinfluss ist demnach vergleichsweise gering. Die Ursache liegt in der erforderlichen Zeitspanne, bis die an den benachbarten Tropfen entstehenden Marangonikonvektion den Tropfen Nr. 3 erreichen können.

Die Abb. 4.13 zeigt die mit Hilfe der holografischen Interferometrie ersichtliche zeitliche Entwicklung der Vorgänge im Tropfenschwarm für eine Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,02 \text{ kg/kg}$ und ohne erzwungene Konvektion. Die stark turbulenten Bereiche an den benachbarten Tropfen breiten sich zunächst in alle Raumrichtungen gleichmäßig aus und nehmen dabei ein sehr großes Volumen ein. Erst nach etwa $t = 7$ Sekunden beginnen

diese Turbulenzen infolge ihrer geringeren Dichte nach oben zu steigen, wo sie schließlich den Tropfen Nr. 3 erreichen, diesen teilweise umschließen und dessen Stofftransport beeinflussen. Die dabei erzielte Verbesserung ist bei den niedrigen Tropfenstartkonzentrationen von $y_0 = 0,02$ kg/kg und $y_0 = 0,04$ kg/kg größer als bei den höheren. Erfolgt der Stofftransport zunächst nur aufgrund von Diffusion und freier Konvektion, dann ist durch zusätzliche Bewegung der kontinuierlichen Phase eine deutliche Steigerung erzielbar. Ist der Stofftransport wegen der ohnehin auftretenden Marangonikonvektion schon sehr gut und die kontinuierliche Phase bereits turbulent, dann ist nur noch eine geringere Verbesserung durch die Marangonikonvektionen der benachbarten Tropfen möglich.

Für die Versuchsreihen mit geringer erzwungener Konvektion ($Re = 11$, Abb. 4.12, unten) erreicht der Faktor $F_{Sch,15}$ Werte von 1,24 bis 2,05. In diesem Fall treffen die an den benachbarten Tropfen entstehenden Marangonikonvektionen bereits nach einer kürzeren Zeitspanne auf den Tropfen Nr. 3. Zusätzlich kann beobachtet werden, dass sich die turbulenten Bereiche weniger weit in die kontinuierliche Phase ausbreiten sondern durch die Anströmung gebündelt werden. Setzt man voraus, dass die an den benachbarten Tropfen entstehenden Marangonikonvektionen die gleiche Intensität besitzen wie im zuvor beschriebenen Fall ($Re = 0$) und dass Impulserhaltung gilt, dann wird deutlich, dass der Stofftransport am Tropfen Nr. 3 nach kürzerer Zeit und von intensiveren Turbulenzen beeinflusst wird.

Der gleiche Einfluss ist bei einer weiter erhöhten Anströmung ($Re = 72$) zu beobachten (Abb. 4.14, oben). Der Faktor $F_{Sch,15}$ erreicht in diesem Fall Werte von 1,12 bis 1,74. Auch hier gilt, dass bei den niedrigen Tropfenstartkonzentrationen y_0 größere Werte für den Faktor $F_{Sch,15}$ erzielt werden.

Mit einer weiteren Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit der kontinuierlichen Phase auf $Re = 217$ ist keine weitere Steigerung des positiven Einflusses verbunden, sondern die Werte für den Faktor $F_{Sch,15}$ sinken etwa auf das Niveau der Versuchsreihen ohne erzwungene Konvektion (Abb. 4.14, unten).

Eine Steigerung der Strömungsgeschwindigkeit von $Re = 11$ auf $Re = 73$ führt bei einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,08$ kg/kg zu einer Erhöhung des Stoffdurchgangskoeffizienten und bei den niedrigeren Tropfenstartkonzentrationen zu einer Reduzierung.

Eine weiter gehende Steigerung der Strömungsgeschwindigkeit von $Re = 73$ auf $Re = 217$ führt dagegen bei einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,08$ kg/kg zu einer Reduzierung des Stoffdurchgangskoeffizienten und bei den niedrigeren Tropfen-

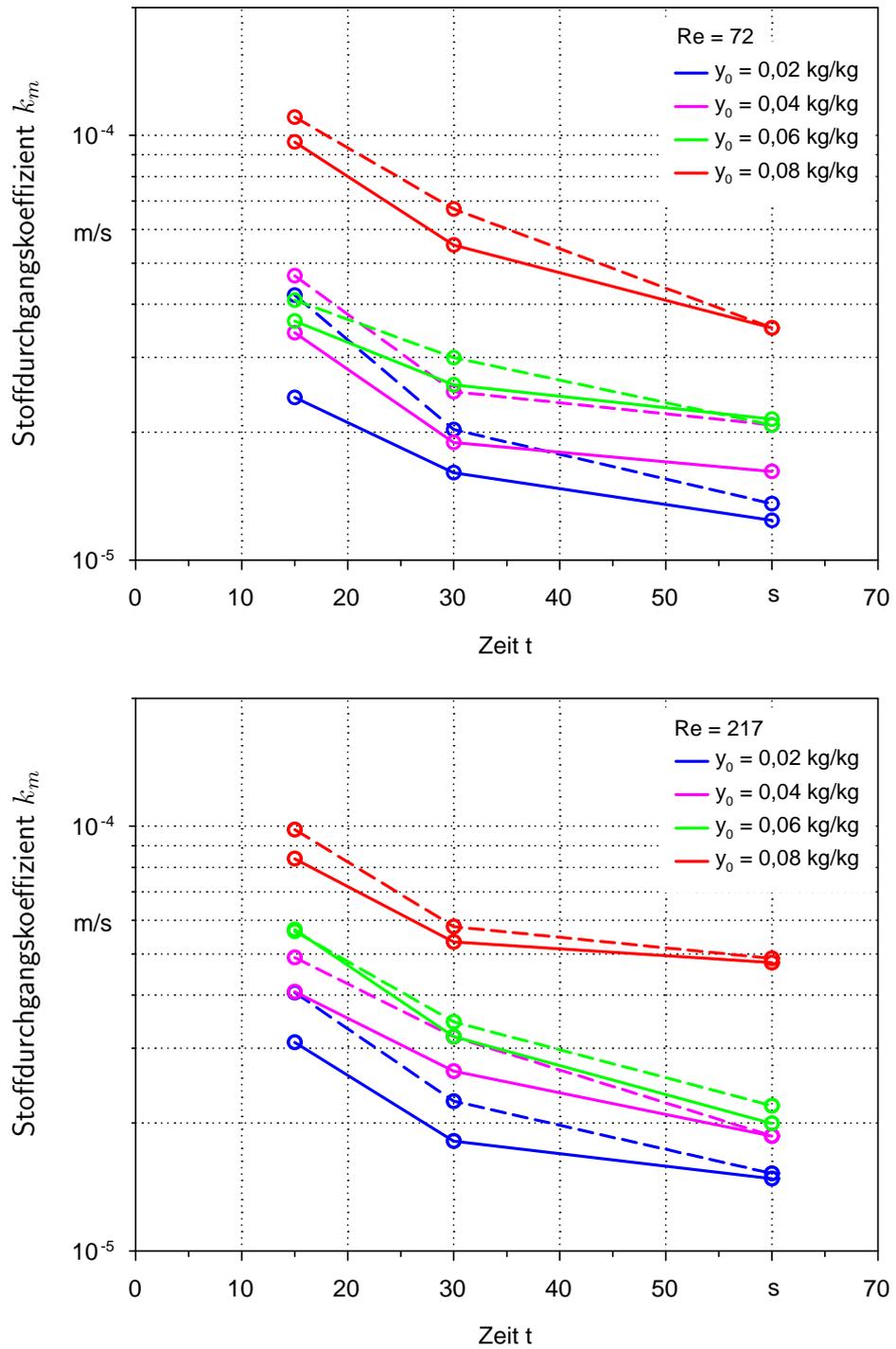


Abb. 4.14: Zeitlicher Verlauf des Stoffdurchgangskoeffizient k_m für Tropfen Nr. 3 allein (durchgezogene Linien) und unter dem Einfluss der Tropfen Nr. 7, 8, 12 (gestrichelte Linien). Oben: $Re = 72$, Unten: $Re = 217$

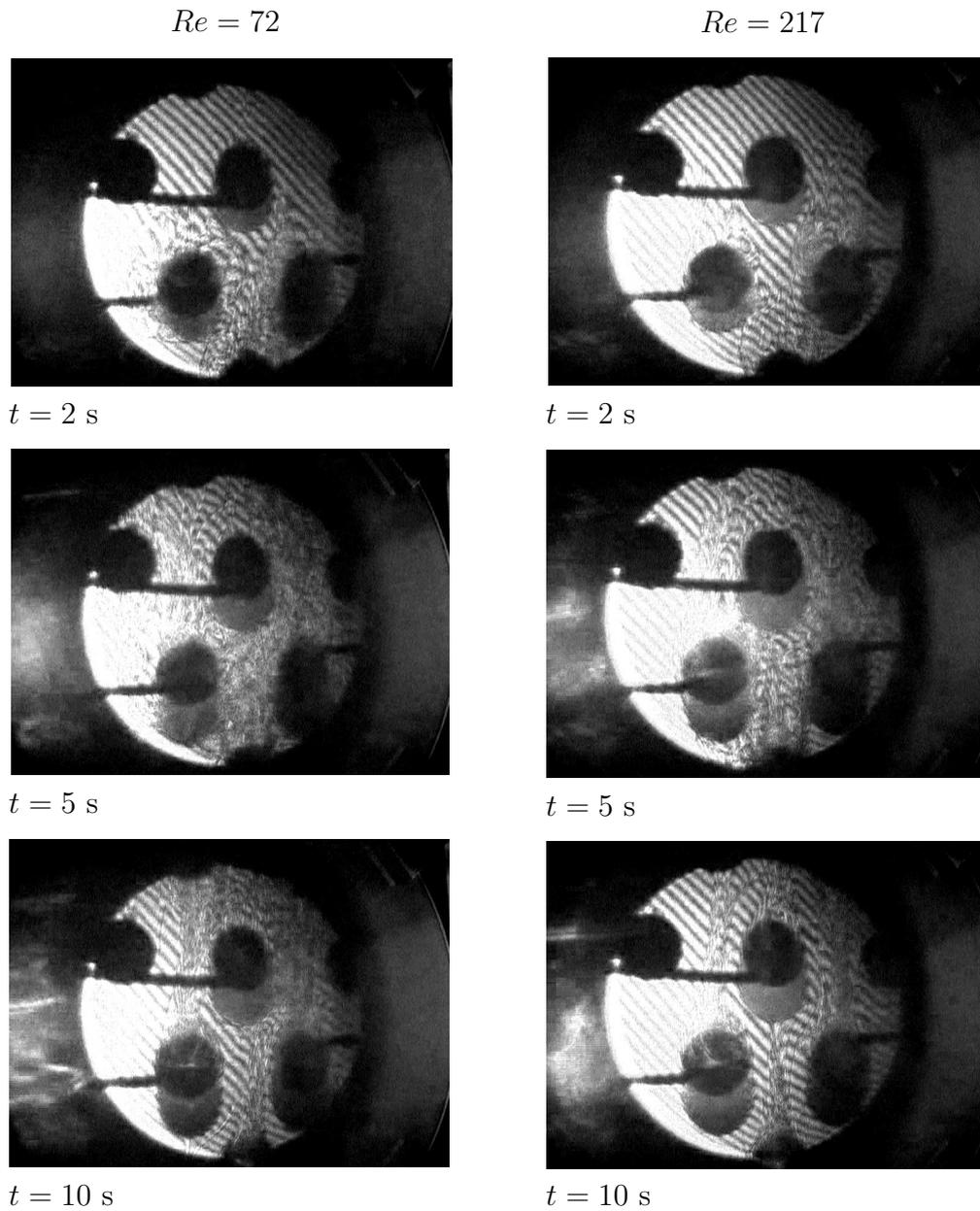


Abb. 4.15: Holografische Aufnahmen des Stofftransportes am Tropfen Nr. 3 unter dem Einfluss benachbarter Tropfen zu verschiedenen Zeitpunkten bei zwei verschiedenen Strömungsgeschwindigkeiten. Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser, Tropfenstartkonzentration $y_0 = 0,02$ kg/kg

startkonzentrationen zu einer Erhöhung.

Dieses Verhalten ist die Folge des Zusammenspiels von erzwungener Konvektion und Marangonikonvektion. Durch die erzwungene Konvektion werden die turbulenten Bereiche in ihrer räumlichen Ausdehnung begrenzt. Dies führt dazu, dass die Marangonikonvektionen der Tropfen Nr. 7 und Nr. 8 den zwischen und oberhalb von ihnen befindlichen Tropfen Nr. 3 nur noch kurzzeitig oder gar nicht erreichen (Abb. 4.15 untere Reihe). Eine Beeinflussung ist nur noch durch den direkt unterhalb befindlichen Tropfen Nr. 12 gegeben, der jedoch einen größeren Abstand zum betrachteten Tropfen Nr. 3 besitzt.

4.6.2 Zeitlich versetzte Tropfenbildung

Bei den in diesem Abschnitt beschriebenen Untersuchungen der Wechselwirkungen werden im Gegensatz zu Abschnitt 4.6.1 die am Stofftransport beteiligten Tropfen zeitlich versetzt erzeugt. Dies hat zur Folge, dass der Tropfen Nr. 3 bereits zu Beginn seiner Bildung von kontinuierlicher, mit Aceton beladener Phase beeinflusst wird.

Der Tropfen Nr. 3 besitzt eine Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,02$ kg/kg oder $y_0 = 0,08$ kg/kg. Die benachbarten Tropfen besitzen stets eine Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,08$ kg/kg, um einen intensiven Stofftransport verbunden mit starken Marangonikonvektionen und großen Konzentrationsänderungen in der kontinuierlichen Phase zu bewirken.

Bei den Untersuchungen wird jeweils die Konzentrationsänderung des Tropfens Nr. 3 ohne Beeinflussung, bei Beeinflussung durch den Stofftransport an Tropfen Nr. 12 oder bei Beeinflussung durch den Stofftransport an den Tropfen Nr. 7, 8 und 12 gemessen und mit Hilfe von Gl. B.1 daraus die entsprechende Massenstromdichte ($\dot{m}_{m,ET}$, $\dot{m}_{m,12}$ bzw. $\dot{m}_{m,7,8,12}$) bestimmt. Auch in diesem Fall wird ein Faktor $F_{Sch,15}$ gebildet, der als Maß für den Schwarmeinfluss dient.

$$\begin{aligned} F_{Sch,15} &= \frac{\dot{m}_{m,12}(15 \text{ s})}{\dot{m}_{m,ET}(15 \text{ s})} \quad \text{bzw.} \\ &= \frac{\dot{m}_{m,7,8,12}(15 \text{ s})}{\dot{m}_{m,ET}(15 \text{ s})} \end{aligned} \tag{4.9}$$

Die durchgeführten Untersuchungen werden mit Hilfe der holografischen Interferometrie beobachtet (siehe Abb. 4.16). Dabei zeigt sich, dass die Marangonikonvektionen abhängig von der Strömungsgeschwindigkeit zunächst unterschiedlich weit in die kontinuierliche Phase hinein wirken. Mit zunehmender Zeit schwächen sich die dadurch

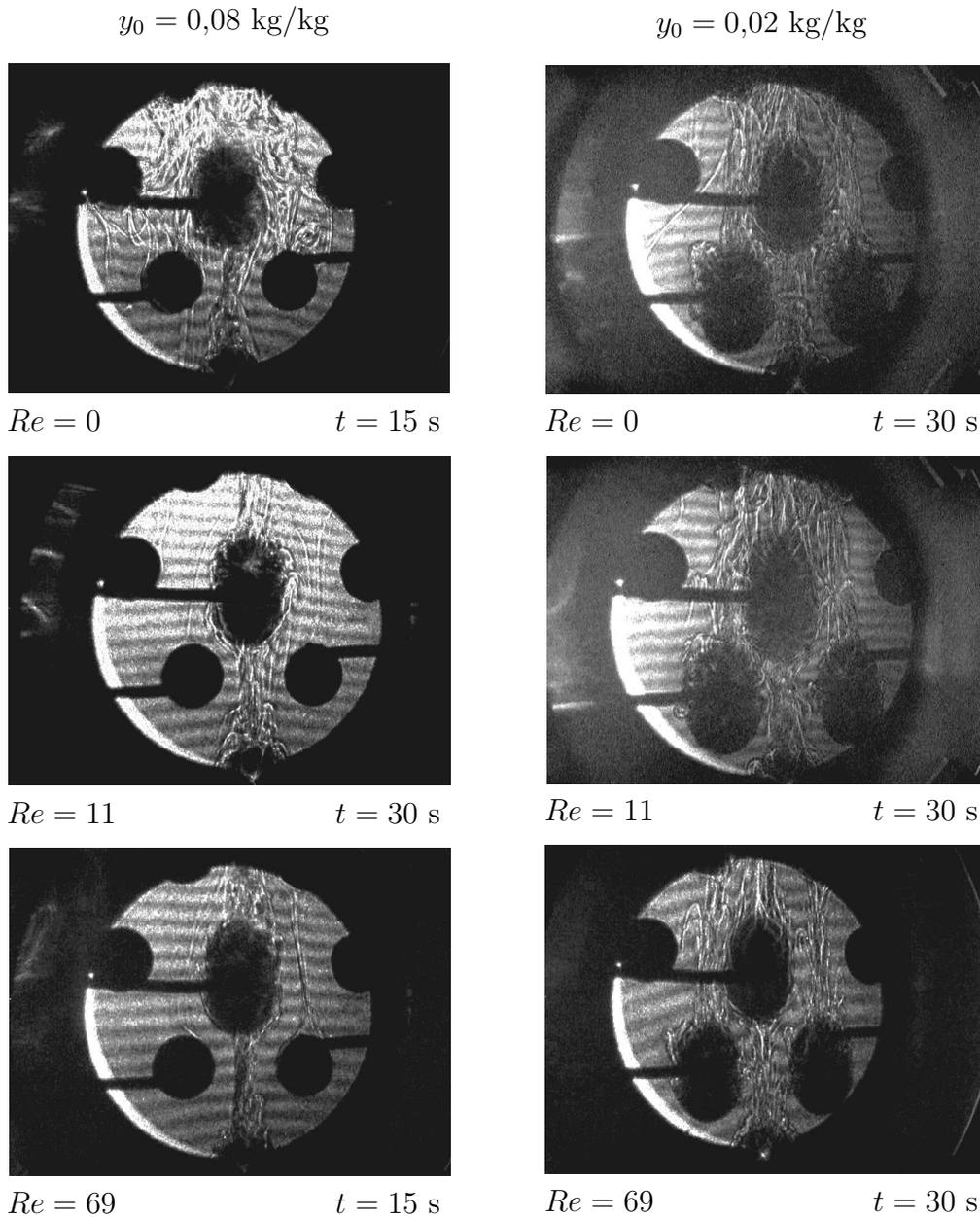


Abb. 4.16: Holografische Aufnahmen des Stofftransportes am Tropfen Nr. 3 unter dem Einfluss benachbarter Tropfen bei verschiedenen Strömungsgeschwindigkeiten und zwei verschiedenen Tropfenstartkonzentrationen y_0 im Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser

hervorgerufenen Turbulenzen stetig ab und dringen weniger weit in die kontinuierliche Phase hinein. Schließlich findet der Stofftransport nur noch in einer dünnen Schicht um die Tropfen statt. Die mit Aceton beladene kontinuierliche Phase besteht jetzt aus einem dünnen Film und löst sich in Form eines Strahls vom Tropfen ab, dessen Durchmesser teilweise deutlich unter dem Tropfendurchmesser liegen kann. Insbesondere der sich von Tropfen Nr. 12 ablösende Strahl trifft zentral auf den untersuchten Tropfen Nr. 3. In diesem speziellen Fall wird Tropfen Nr. 3 von relativ hoch konzentrierter Phase umgeben, was zu einer Reduzierung der treibenden Konzentrationsdifferenz und damit zu einer Reduzierung der Massenstromdichte führt. Die Auswirkungen sind insbesondere bei der niedrigen Tropfenstartkonzentration des Tropfens Nr. 3 von $y_0 = 0,02$ kg/kg zu beobachten. Da bei dieser Konzentration am Tropfen Nr. 3 keine Marangonikonvektionen auftreten, wird der von Tropfen Nr. 12 aufsteigende Strahl kaum in seiner Bewegung beeinflusst und kann über einen langen Zeitraum den Stofftransport beeinflussen. Zusätzlich üben die seitlich angeordneten Tropfen Nr. 7 und 8 einen Einfluss auf den Stofftransport an Tropfen Nr. 3 aus. Je nach Strömungsgeschwindigkeit berühren die von ihnen aufsteigenden Strahlen den Tropfen Nr. 3 zusätzlich an dessen Flanken und erhöhen auch in diesen Bereichen die maßgebliche Konzentration in der kontinuierlichen Phase. Die quantitative Auswertung der experimentellen Untersuchungen zeigt, dass die gewählten Bedingungen zu einer Reduzierung und teilweise sogar zu einer Umkehrung des Stofftransportes führen können.

Die Abb. 4.17 und 4.18 zeigen die mit Gl. B.1 erhaltenen Werte der Massenstromdichte \dot{m}_m für jeweils eine bestimmte Reynoldszahl Re und verschiedene Tropfenstartkonzentrationen y_0 . In Tab. 4.7 sind die daraus resultierenden Werte für den Faktor $F_{Sch,15}$ aufgetragen.

Bei einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,02$ kg/kg und drei benachbarten Tropfen werden für Reynoldszahlen von $Re = 0$; 11 und 33 negative Massenstromdichten \dot{m}_m und Faktoren $F_{Sch,15}$ ermittelt. Bei einer Steigerung der Strömungsgeschwindigkeit entsprechend $Re = 72$ beträgt der Faktor $F_{Sch,15} = 0,22$, d. h. der Stofftransport ist unter dem Einfluss benachbarter Tropfen signifikant schlechter als am einzelnen Tropfen.

Bei einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,08$ kg/kg und drei benachbarten Tropfen wird für Reynoldszahlen von $Re = 0$ und 72 ein negativer Einfluss durch die benachbarten Tropfen festgestellt. Die Werte der Massenstromdichte \dot{m}_m und des Faktors $F_{Sch,15}$ sind jedoch nicht mehr negativ. Bei Strömungsgeschwindigkeiten entsprechend $Re = 11$ bzw. 33 wird eine Erhöhung des Stofftransportes um 5 % bzw. um 24 % ge-

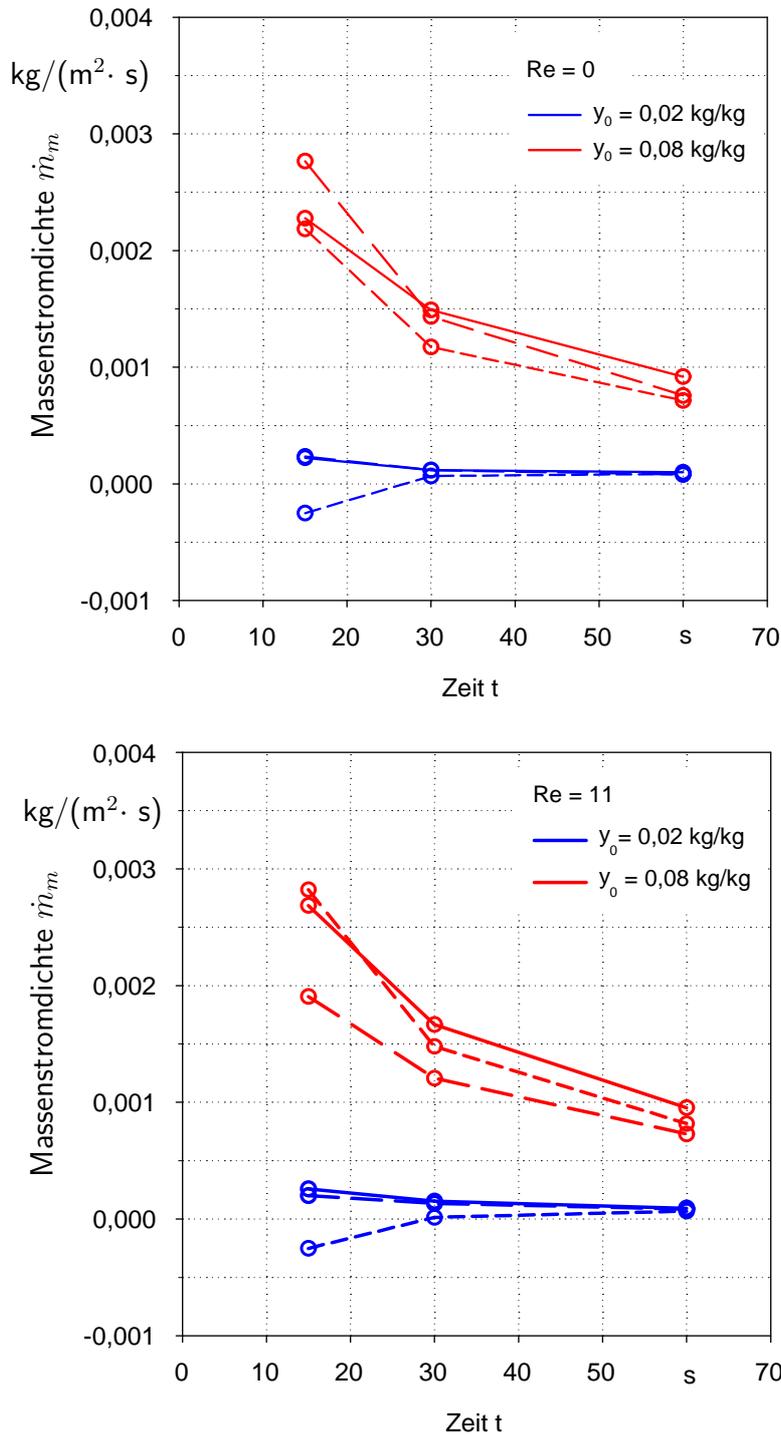


Abb. 4.17: Zeitlicher Verlauf der Massenstromdichte \dot{m}_m für Messungen am Tropfen Nr. 3 im Schwarm unter dem Einfluss benachbarter Tropfen: Tropfen Nr. 3 allein (durchgezogene Linien), Tropfen Nr. 3 und 12 (grob gestrichelt), Tropfen Nr. 3 und 7, 8, 12 (fein gestrichelt). Oben: $Re = 0$, Unten: $Re = 11$

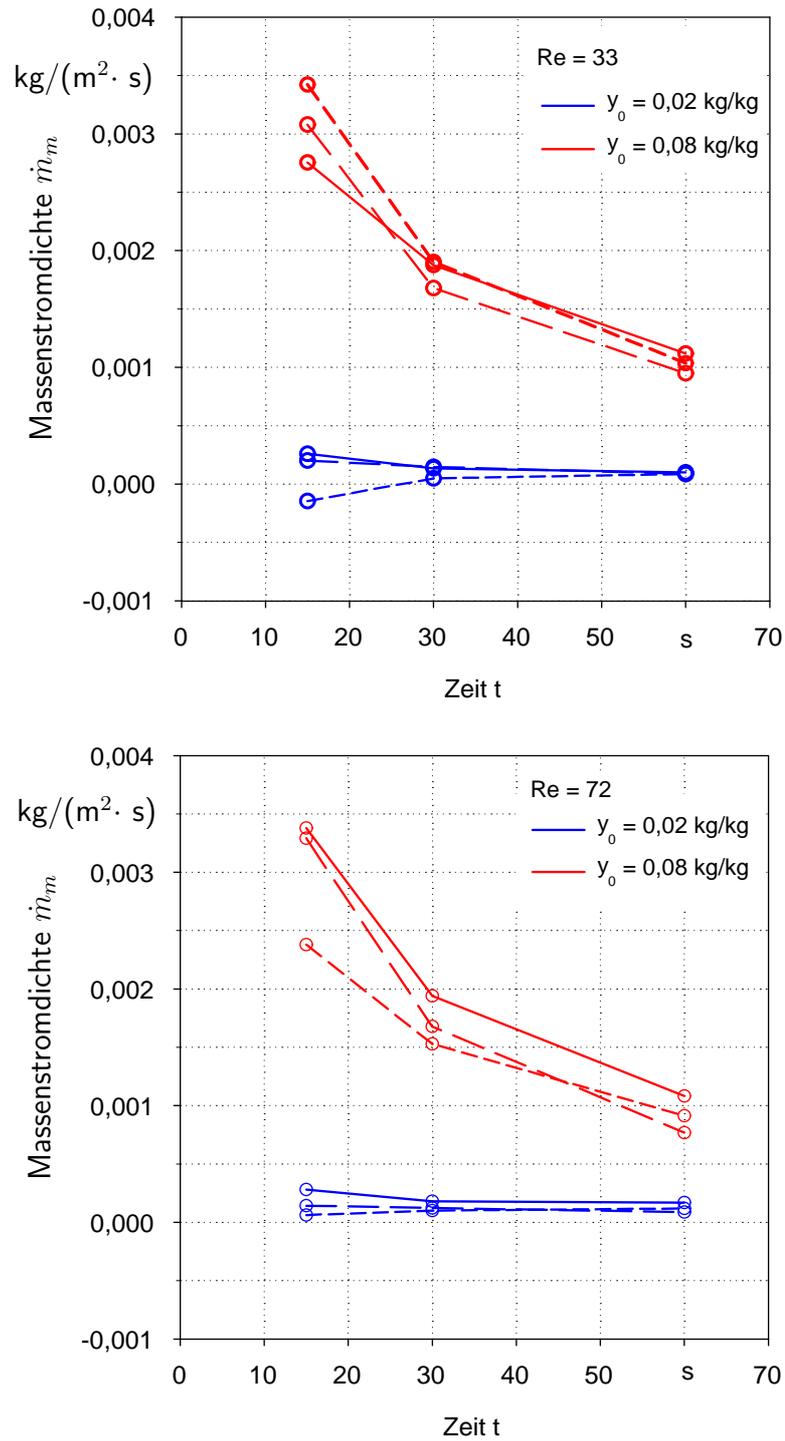


Abb. 4.18: Zeitlicher Verlauf der Massenstromdichte \dot{m}_m für Messungen am Tropfen Nr. 3 im Schwarm unter dem Einfluss benachbarter Tropfen: Tropfen Nr. 3 allein (durchgezogene Linien), Tropfen Nr. 3 und 12 (grob gestrichelt), Tropfen Nr. 3 und 7, 8, 12 (fein gestrichelt). Oben: $Re = 33$, Unten: $Re = 72$

Tab. 4.7: Erhöhungsfaktoren $F_{Sch,15}$ als Maß für den Schwarmeinfluss auf den Stofftransport an Tropfen Nr. 3 bei zeitlich versetzter Tropfenerzeugung (Gl. 4.9). Einfluss von Tropfen Nr. 12 allein oder Einfluss der Tropfen Nr. 7, 8, 12 zusammen.

Erhöhungsfaktor $F_{Sch,15}$		Tropfenstartkonzentration y_0			
		0,02 kg/kg Tropfen Nr. 3 und 7, 8, 12	0,08 kg/kg	0,02 kg/kg Tropfen Nr. 3 und 12	0,08 kg/kg
Reynoldszahl Re	0	-1,13	0,96	1,05	1,21
	11	-0,98	1,05	0,78	0,71
	33	-0,57	1,24	0,78	1,12
	72	0,22	0,70	0,51	0,97

genüber dem Stofftransport am einzelnen Tropfen festgestellt.

Wird der Stofftransport am Tropfen Nr. 3 nur von Tropfen Nr. 12 beeinflusst, dann wird je nach Strömungsgeschwindigkeit eine Reduzierung um bis zu 49 % bzw. eine maximale Steigerung des Stofftransportes um 21 % festgestellt.

In allen Fällen liegen bei den gewählten Versuchsbedingungen die Werte für den Faktor $F_{Sch,15}$ deutlich unter denen, die im Abschnitt 4.6.1 angegeben werden. Die in Tab. 4.7 aufgeführten Werte und die Analyse der Videoaufnahmen lassen jedoch vermuten, dass bei einer weiteren Steigerung der Strömungsgeschwindigkeit über den untersuchten Bereich hinaus eine Verminderung dieses negativen Einflusses erfolgt.

Eine zu diesem Zweck durchgeführte Abschätzung der in den aufsteigenden Strahlen vorliegenden Konzentrationen bestätigt die geschilderten Beobachtungen und unterstützt die Vermutung, dass eine Steigerung der Strömungsgeschwindigkeit zu einer Reduzierung dieses negativen Einflusses führt.

Für die Abschätzung wird davon ausgegangen, dass sich das aus den benachbarten Tropfen austretende Aceton in einem dünnen Film um den Tropfen löst und sich nur innerhalb des aufsteigenden Strahls mit der Strömung nach oben bewegt. Aus den Messungen am einzelnen Tropfen ist der zeitliche Verlauf der austretenden Masse an Aceton $\dot{M}_{Ac}(t)$ bekannt (Abb. 4.6 und Abb. 4.8). Der Durchmesser des aufsteigenden Strahls wird mit $d_{Strahl} \approx 4$ mm abgeschätzt. Die Aufstiegsgeschwindigkeit des Strahls wird gleich der Strömungsgeschwindigkeit der kontinuierlichen Phase w_c gesetzt. Der Massenstrom der kontinuierlichen Wasserphase \dot{M}_c berechnet sich näherungsweise zu

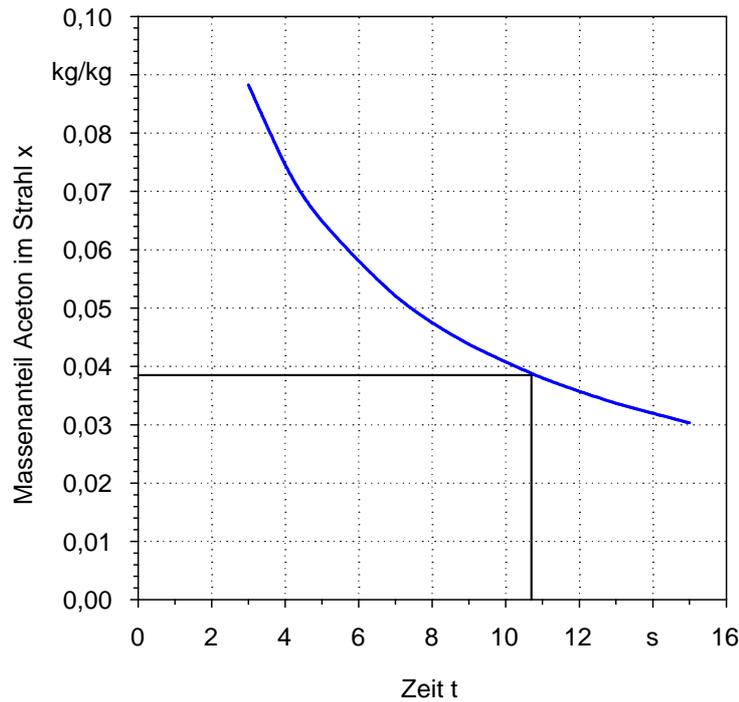


Abb. 4.19: Zeitlicher Verlauf der Acetonkonzentration x in einem Strahl der sich von einem Tropfen mit einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,08$ kg/kg bei einer Reynoldszahl von $Re = 11$ ablöst. Die zu einer Tropfenkonzentration von $y = 0,02$ kg/kg gehörende Gleichgewichtskonzentration von $x^* = 0,038$ kg/kg wird bis $t \approx 10,5$ s überschritten.

$$\dot{M}_c \approx \rho_c \cdot w_c \cdot \frac{d_{Strahl}^2 \cdot \pi}{4} \quad (4.10)$$

Daraus folgt die Gleichung zur Abschätzung der mittleren Acetonkonzentration im Strahl als Funktion der Zeit $x_{Strahl}(\tau)$.

$$x_{Strahl}(\tau) \approx \frac{\int_0^{\tau} \dot{M}_{Ac} dt}{\int_0^{\tau} \dot{M}_{Ac} dt + \dot{M}_c \cdot \tau} \quad (4.11)$$

In Abb. 4.19 ist der zeitliche Verlauf der mittleren Acetonkonzentration im Strahl für den Stofftransport aus einem Tropfen mit einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,08$ kg/kg und einer Reynoldszahl von $Re = 11$ dargestellt. Aus den Gleichgewichtsdaten im Anhang A.1 kann die zu einer Konzentration von $y = 0,02$ kg/kg gehören-

de Gleichgewichtskonzentration zu $x^* = 0,038$ kg/kg bestimmt werden. Die Abschätzung bestätigt, dass bis zu einer Zeitdauer von $t \approx 10,5$ s die mindestens erforderliche Gleichgewichtskonzentration im Strahl überschritten wird und folglich ein Stofftransport aus der kontinuierlichen in die Tropfenphase möglich ist. Dabei wurde eine Verstärkung dieses Einflusses durch zusätzlich am Stofftransport beteiligte benachbarte Tropfen noch nicht berücksichtigt.

4.7 Geschwindigkeitsmessungen

Die lokalen Geschwindigkeiten im Bereich der Phasengrenze besitzen einen wesentlichen Einfluss auf die Höhe des erzielbaren Stofftransportes. Um den Zusammenhang zwischen visuell beobachteten Phänomenen, berechneten Stoffdurchgangskoeffizienten und Strömungsgeschwindigkeiten ermitteln zu können, werden mit Hilfe der Laser-Doppler-Anemometrie Geschwindigkeitsprofile vermessen. Es werden Messreihen an einem Einzeltropfen und an einem Tropfen innerhalb eines Schwarms jeweils ohne Stofftransport und beim Auftreten intensiver Marangonikonvektionen durchgeführt. Für die Untersuchungen ohne Stofftransport werden die Kugeln mit reinem 3-Chlortoluol benetzt. Für die Untersuchungen mit Marangonikonvektionen wird 3-Chlortoluol mit einem Acetonanteil von $y_0 = 0,08$ kg/kg verwendet.

In den folgenden Abbildungen sind Ergebnisse der Geschwindigkeitsmessungen um den Tropfen Nr. 12 (vgl. Abb. 2.3) dargestellt. Die Messungen werden mit dem in Abschnitt 3.2 beschriebenen Laser-Doppler-Anemometer durchgeführt. Die lokalen Geschwindigkeiten sind als Pfeile dargestellt. Der Anfangspunkt eines Pfeiles bestimmt den Messort; Pfeillänge und -richtung entsprechen dem Betrag und der Richtung der gemessenen Geschwindigkeit. Mit Hilfe des eingezeichneten Skaliervektors kann der Betrag der Geschwindigkeiten ermittelt werden. Die Größe der unbenetzten Kugel ($d_K = 10$ mm) entspricht der grauen Kreisfläche. Die insgesamt $3 \cdot 24 = 72$ Messorte befinden sich auf den drei Kreisen, die konzentrisch um den betreffenden Tropfen angeordnet sind (Durchmesser $d_{M1} = 15$ mm, $d_{M2} = 20$ mm, $d_{M3} = 25$ mm). Sämtliche Messorte liegen auf einer Ebene, die die Mittelpunkte aller Tropfen schneidet.

Jeder dargestellte Vektor repräsentiert den Mittelwert der lokalen Geschwindigkeit u_m bzw. v_m aus $N = 1000$ Einzelmessungen gemäß Gl. 3.4. In der Tab. 4.8 sind die Maximalwerte der an allen Messorten ermittelten mittleren Geschwindigkeiten $u_{m,max}$ bzw. $v_{m,max}$, die maximalen Turbulenzgrade $T_{i,max}$ (Gl. 3.6) sowie der Mittelwert der

Tab. 4.8: Ergebnisse der Geschwindigkeitsmessungen an Tropfen Nr. 12 bei verschiedenen Reynoldszahlen jeweils mit und ohne Stofftransport.

	$Re = 33$		$Re = 63$	
	ohne	mit Stofftransport	ohne	mit Stofftransport
u_{max}	$1,09 \cdot 10^{-3}$ m/s	$2,03 \cdot 10^{-3}$ m/s	$2,04 \cdot 10^{-3}$ m/s	$2,05 \cdot 10^{-3}$ m/s
v_{max}	$3,43 \cdot 10^{-3}$ m/s	$6,12 \cdot 10^{-3}$ m/s	$4,81 \cdot 10^{-3}$ m/s	$5,30 \cdot 10^{-3}$ m/s
$T_{u,m}$	37 %	60 %	21 %	28 %
$T_{v,m}$	31 %	53 %	22 %	28 %
$T_{u,max}$	131 %	432 %	88 %	197 %
$T_{v,max}$	167 %	505 %	87 %	188 %

Turbulenzgrade $T_{i,m}$ für die in den Abb. 4.20 und Abb. 4.21 dargestellten Messergebnisse aufgeführt. Es sind jeweils die Werte in Richtung der X-Koordinate (Index u) und der Y-Koordinate (Index v) angegeben.

$$T_{i,m} = \frac{1}{72} \cdot \sum_{j=1}^{72} T_j \quad (4.12)$$

$$T_{i,max} = \max\{T_{i,1}, T_{i,2}, \dots, T_{i,72}\} \quad (4.13)$$

Die Beobachtungen zeigen, dass Marangonikonvektionen insbesondere bei niedrigen Strömungsgeschwindigkeiten ($Re = 33$, die erzwungene Konvektion durch die Anströmung der kontinuierlichen Phase betreffend) das Strömungsprofil in der Umgebung eines Tropfens dominieren (Abb. 4.20). Nur bei niedrigen Strömungsgeschwindigkeiten kann ein signifikanter Unterschied zwischen den Messergebnissen mit Marangonikonvektionen und ohne Stofftransport festgestellt werden. Die Beeinflussung des Strömungsprofils erfolgt bis weit in die kontinuierliche Phase hinein. Selbst in einer Entfernung von 12,5 mm werden deutliche Unterschiede vom ungestörten Profil gemessen. Die auftretenden Marangonikonvektionen verursachen deutliche Bewegungen quer zur Hauptströmungsrichtung und führen zu signifikant höheren lokalen Geschwindigkeiten (bis Faktor 2) und Turbulenzgraden (bis Faktor 3).

Die Untersuchungen bei höheren Strömungsgeschwindigkeiten ($Re = 63$) der kontinuierlichen Phase weisen nur noch auf einen untergeordneten Einfluss der Marangonikonvektionen auf das Strömungsprofil in der Umgebung des Tropfens hin (Abb. 4.20).

Die Werte für die maximalen Geschwindigkeiten und für die mittleren Turbulenzgrade bleiben nahezu unverändert. Nur im Bereich des Staupunktes werden abweichende Geschwindigkeiten gemessen. In den anderen Bereichen sind die Strömungsprofile nahezu identisch. Die auftretenden Marangonikonvektionen verursachen kaum Bewegungen quer zur Hauptströmungsrichtung und führen zu einer Erhöhung der maximalen Turbulenzgraden nur um den Faktor 2.

Diese Ergebnisse ergänzen und belegen die Erkenntnisse aus den Untersuchungen des Stofftransportes, wonach Marangonikonvektionen bereits durch vergleichsweise niedrige erzwungene Konvektion in ihrer Ausbildung und Wirkung beeinträchtigt werden.

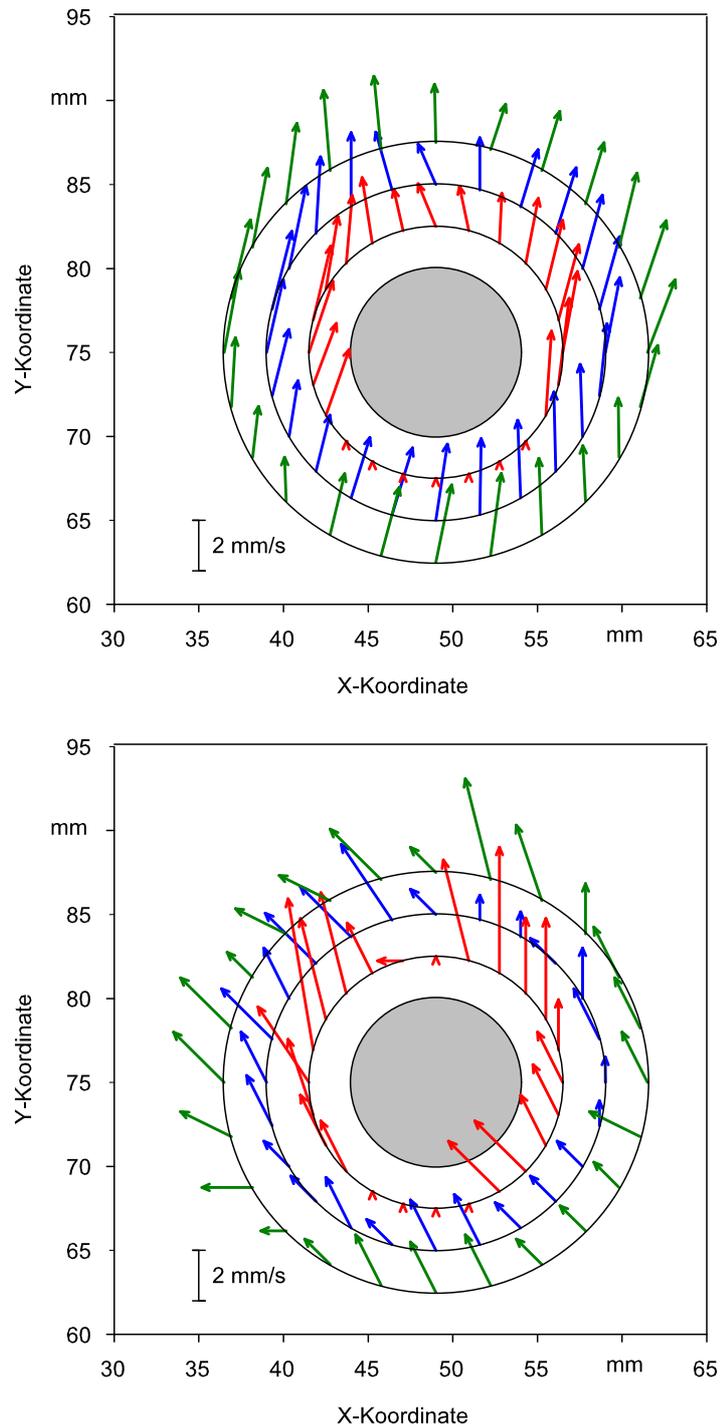


Abb. 4.20: Mit dem Laser-Doppler-Anemometer gemessene Strömungsgeschwindigkeiten um Tropfen Nr. 12 bei einer Reynoldszahl von $Re = 33$. Die graue Kreisfläche entspricht der unbenetzten Kugel, die konzentrischen Kreise verbinden die Messorte. Oben: ohne Stofftransport, Unten: mit Stofftransport und Marangonikonvektionen

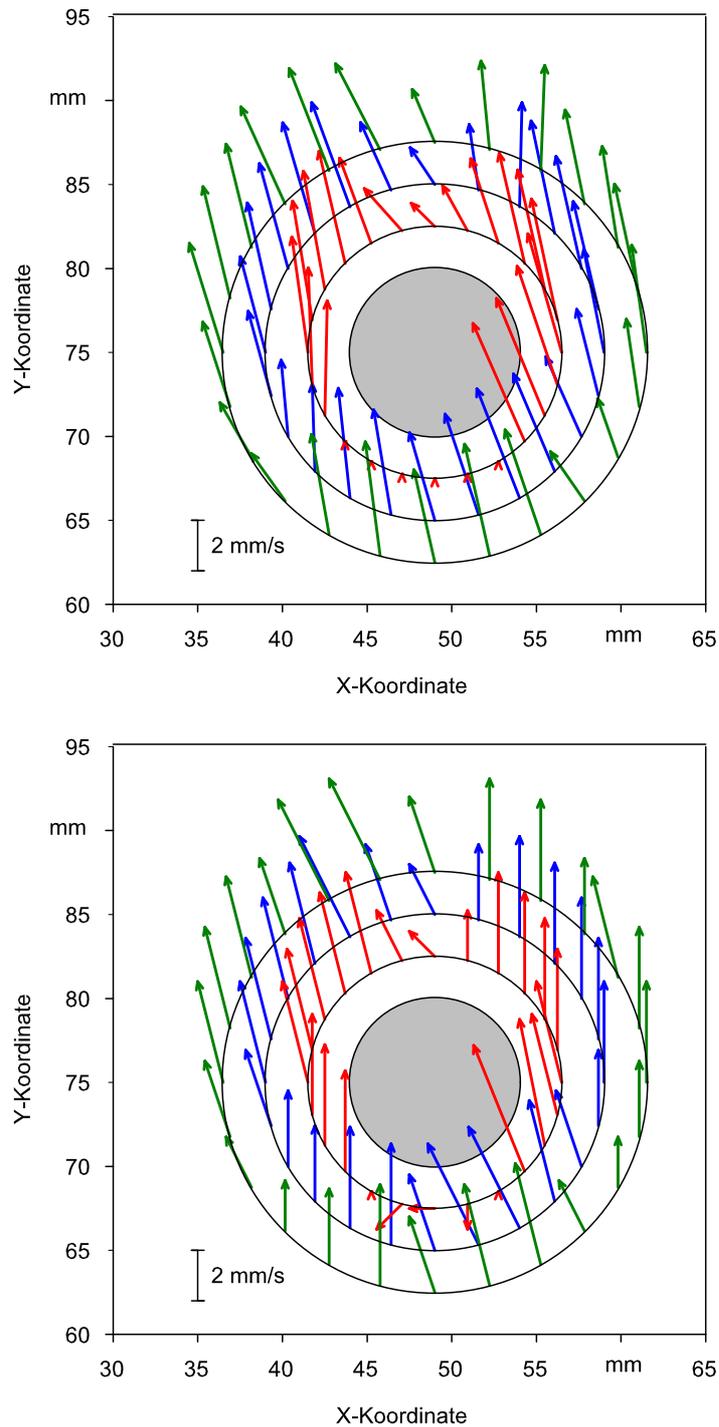


Abb. 4.21: Mit dem Laser-Doppler-Anemometer gemessene Strömungsgeschwindigkeiten um Tropfen Nr. 12 bei einer Reynoldszahl von $Re = 63$. Die graue Kreisfläche entspricht der unbenetzten Kugel, die konzentrischen Kreise verbinden die Messorte. Oben: ohne Stofftransport, Unten: mit Stofftransport und Marangonikonvektionen

4.8 Vergleich der Versuchsergebnisse mit theoretischen Modellen

Für die Beschreibung des Stoffübergangs unter dem Einfluss von Marangonikonvektionen existiert in der Literatur eine Vielzahl von Modellen. Umfangreiche Übersichten sind in [34, 43, 86] und in [112] zu finden. Die verschiedenen Ansätze lassen sich in vier Gruppen unterscheiden:

- *Empirische Korrelationen* zwischen dem Stoffdurchgangskoeffizienten k und überwiegend physikalischen, chemischen sowie fluiddynamischen Parametern sind nur sehr eingeschränkt auf andere Stoffsysteme und Geometrien übertragbar [66, 94].
- *Analytisch/numerische Berechnungen und Stabilitätsanalysen* beschreiben den Stoffübergang unter Einbeziehung des Strömungsverhaltens der beteiligten Phasen in Form von Differentialgleichungen, die bei nicht linearen Ansätzen meist nur numerisch gelöst werden können. Nur für vereinfachte Randbedingungen und geordnete Strukturen lassen sich analytische Lösungen finden. Zum Teil wurden Stabilitätskriterien entwickelt, die zumindest eine qualitative Voraussage für das Auftreten von Marangonikonvektionen ermöglichen sollen [44, 100]. Diese Entscheidungskriterien haben sich jedoch als wenig zuverlässig erwiesen.
- Bei den *numerischen Simulationen* werden für diskrete Zeiten und eine endliche Anzahl örtlich diskreter Punkte die Bilanzgleichungen für Masse, Energie und Impuls mit Hilfe eines numerischen Verfahrens gelöst (vgl. Kap. 5 und [35, 37, 75]). Durch die stark steigenden Rechnerleistungen und die Weiterentwicklung der numerischen Lösungsverfahren werden diese Methoden zunehmend leistungsfähig. Ein weiterer Vorteil ist die z. T. recht gute Bedienungsfreundlichkeit der kommerziell erhältlichen Programmpakete.
- *Semi-empirische Modelle* beschreiben Vorgänge mit Hilfe der Grundgleichungen für z. B. die Wärme-, Stoff- und Impulsübertragung unter Einbeziehung empirischer Parameter. Sie sind damit eine Mischung aus rein empirischen und analytisch/numerischen Modellansätzen. Der zugrunde liegende physikalische Sachverstand erlaubt die Beschränkung auf wenige anzupassende Parameter [8, 63, 93].

4.8.1 Das Modell von Golovin

Zur Berechnung des durch Marangonikonvektionen beeinflussten Stoffübergangs existiert ein von Golovin entwickeltes semi-empirisches Modell [33], dem folgende Annahmen zugrunde liegen.

- Marangonikonvektionen treten in Form von chaotischen Konvektionszellen auf.
- Für das Auftreten von Marangonikonvektionen ist das Überschreiten einer kritischen Konzentrationsdifferenz Δx_{krit} erforderlich.

Ausgehend von einer Kräftebilanz an der Phasengrenze folgen zunächst zwei Gleichungen zur Berechnung der Massenstromdichte \dot{m} , deren Verwendung von der treibenden Konzentrationsdifferenz Δx abhängt.

$$\begin{aligned} \dot{m} &= k_D \cdot \Delta x && \text{für } \Delta x < \Delta x_{krit} \\ \dot{m} &= k_D \cdot \Delta x + k_{MK} \cdot \Delta x \cdot (\Delta x - \Delta x_{krit}) && \text{für } \Delta x \geq \Delta x_{krit} \end{aligned} \quad (4.14)$$

Treten Marangonikonvektionen auf und erfassen diese die gesamte Phasengrenzfläche, dann ist der Stoffdurchgangskoeffizient k proportional der Triebkraft Δx . Er setzt sich zusammen aus einem diffusiven Anteil k_D und einem durch Marangonikonvektionen bestimmten Anteil k_{MK} .

$$k = k_D + k_{MK} \cdot (\Delta x - \Delta x_{krit}) \quad (4.15)$$

Nach Entdimensionierung und Einführung der Sherwood-, Schmidt- und Marangonizahl folgt schließlich

$$\begin{aligned} Sh &= Sh_D && \text{für } Ma < Ma_{krit} \\ Sh &= Sh_D + F_{MK} \cdot Sc^{-1/2} \cdot (Ma - Ma_{krit}) && \text{für } Ma \geq Ma_{krit} \end{aligned} \quad (4.16)$$

Der Faktor F_{MK} ist bei diesem Modell die einzige anzupassende Konstante.

Die dimensionslosen Kennzahlen sind hier wie folgt definiert:

$$Sh = \frac{\dot{m} \cdot L}{D \cdot \Delta x} \quad (4.17)$$

$$Sc = \frac{\nu}{D} \quad (4.18)$$

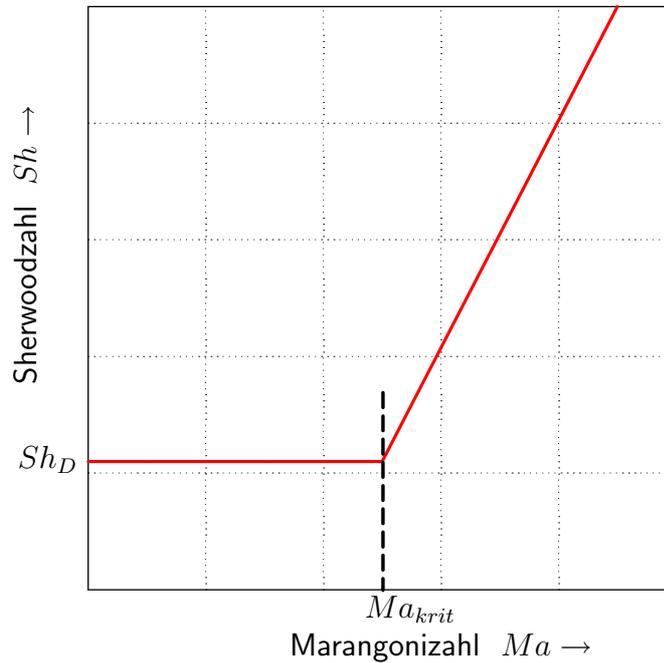


Abb. 4.22: Qualitative Abhängigkeit der Sherwoodzahl von der Marangonizahl nach dem Modell von Golovin

$$Ma = \frac{L}{D \cdot (\eta_c + \eta_d)} \cdot \frac{\partial \sigma}{\partial x} \cdot \Delta x \quad (4.19)$$

Die charakteristische Länge L entspricht hier dem Durchmesser des Tropfens, die Massenstromdichte \dot{m} wird nach Gl. B.1 berechnet.

Die Abb. 4.22 zeigt den qualitativen Verlauf der Sherwoodzahl in Abhängigkeit der Marangonizahl, der aus dieser Modellvorstellung resultiert. Bis zur kritischen Marangonizahl Ma_{krit} ($\hat{=} \Delta x_{krit}$) bleibt die Sherwoodzahl auf dem konstanten Wert Sh_D , der dem rein diffusiven Transport entspricht. Ab der kritischen Marangonizahl Ma_{krit} steigt die Sherwoodzahl nach Gl. 4.16 linear mit der Marangonizahl an. Dies entspricht in etwa dem experimentellen Befund, nach dem die Intensität der Marangonikonvektionen und die damit verbundene Effektivität des Stofftransportes mit der treibenden Konzentrationsdifferenz ansteigen, während bei niedrigen Konzentrationsdifferenzen der Einfluss der Konzentrationsdifferenz wesentlich geringer ist.

Zur Überprüfung des Modells von Golovin werden für den überwiegenden Teil der experimentellen Untersuchungen am Einzeltropfen und am einzelnen Tropfen im Schwarm die Sherwoodzahlen Sh_{Exp} nach Gl. 4.17 berechnet und mit den nach Gl. 4.16 berech-

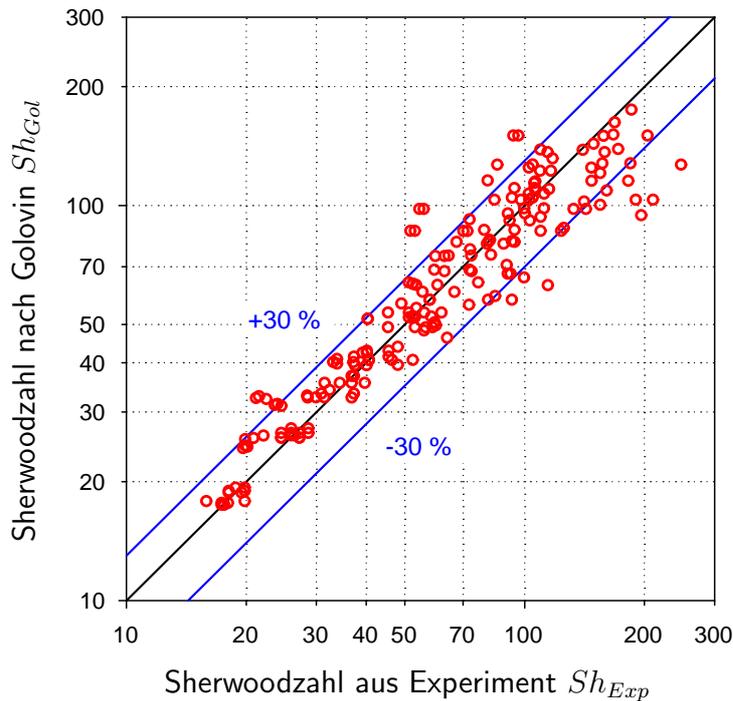


Abb. 4.23: Vergleich der aus den experimentellen Untersuchungen ermittelten Werte der Sherwoodzahl Sh_{Exp} mit den nach dem Modell von Golovin berechneten Werten für die Sherwoodzahl Sh_{Gol}

neten Sherwoodzahlen Sh_{Gol} verglichen. In Abb. 4.23 sind die experimentell erhaltenen und die vorausberechneten Werte gegeneinander aufgetragen sowie Linien für eine Abweichung von $\Delta Sh = \pm 30\%$ eingezeichnet.

$$\Delta Sh = \frac{Sh_{Gol}}{Sh_{Exp}} - 100\% \quad (4.20)$$

Insbesondere kleine Sherwoodzahlen bis $Sh_{Exp} = 80$ werden mit einer Abweichung von $\Delta Sh \approx \pm 30\%$ zufriedenstellend wiedergegeben. Bei größeren Werten werden Abweichungen bis zu $\Delta Sh = \pm 50\%$ festgestellt. Die vorausberechneten Werte liegen hier meist zu niedrig.

Der Versuch, die Genauigkeit dieses Modells zu erhöhen, indem der Term $(Ma - Ma_{krit})$ in Gl. 4.16 mit einem zu optimierenden Exponenten n versehen wird $((Ma - Ma_{krit})^n)$, führt zu keiner signifikanten Verbesserung.

Insgesamt ist die Leistungsfähigkeit dieses Modells als gut zu bewerten, wenn berücksichtigt wird, dass nur ein einziger Parameter F_{MK} angepasst werden muss und der Einfluss unterschiedlicher Strömungsgeschwindigkeiten bei der Entwicklung des Modells nicht mit einbezogen wurde.

5 Numerische Untersuchungen

Die in Kap. 2 beschriebene Versuchsgeometrie gestattet die Beobachtung und Analyse realer Strömungs- und Stofftransportvorgänge am Einzeltropfen und im Tropfenschwarm. Mit Hilfe numerischer Simulationen soll ein detaillierteres Verständnis für die experimentell erhaltenen Ergebnisse (Kap. 4) geschaffen werden. Wenn durch Simulation die experimentellen Untersuchungen hinreichend genau wiedergegeben werden können, dann ist dieses Werkzeug geeignet auch darüber hinaus gehende Rechnungen durchzuführen. Dies beinhaltet auch die Möglichkeit einzelne Einflüsse getrennt zu untersuchen, indem andere Einflussfaktoren gezielt „ausgeschaltet“ werden. Wird z. B. die Gravitationskraft ein- und ausgeschaltet, so kann dadurch der Einfluss der freien Konvektion auf den Stofftransport ermittelt werden.

Die in diesem Kapitel vorgestellten numerischen Untersuchungen wurden mit Unterstützung durch das Institut für Sicherheitsforschung des Forschungszentrums Rossendorf e. V. in Dresden durchgeführt. Neben der umfassenden Hilfe bei der Einarbeitung in die verwendete Software wurden umfangreiche Rechenzeiten auf dem Rechnercluster gewährt.

5.1 Ableitung der Erhaltungsgleichungen

Grundlage aller Austauschvorgänge sind die Bilanzgleichungen für Masse, Energie und Impuls. Die numerische Simulation von laminaren oder turbulenten Strömungsvorgängen, von Wärme- und Stofftransport sowie von chemischen Reaktionen oder daraus gekoppelten Vorgängen basieren auf der Lösung dieser Gleichungen. Sie drücken jeweils ein Erhaltungsprinzip aus und besitzen die gleiche mathematische Struktur, weshalb eine allgemeine Herleitung durchgeführt wird. Die zu betrachtende Eigenschaft wird im Folgenden ψ genannt und kann stellvertretend für folgende Größen stehen:

- Geschwindigkeitskomponente u, v, w
- Massenanteil einer Komponente x, y

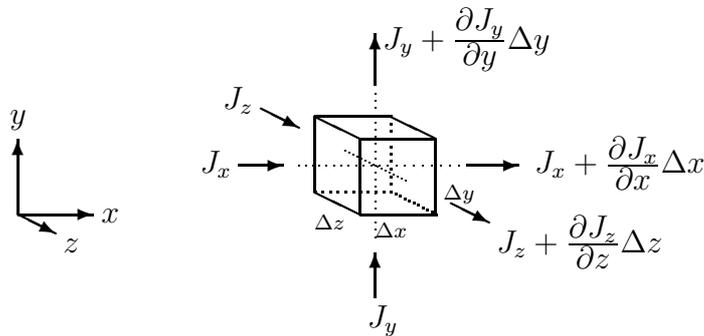


Abb. 5.1: Bilanz an einem Volumenelement

- spezifische Enthalpie H oder Temperatur T
- eine Turbulenzgröße (z.B. turbulente kinetische Energie pro Masse)

Zur Herleitung der allgemeinen Form werden die Flüsse J_i einer beliebigen Erhaltungsgröße an den Grenzen eines Volumenelementes betrachtet (Abb. 5.1).

Für den Fluss in x-Richtung gilt:

$$\text{Netto-Fluss}_x = \left(J_x + \frac{\partial J_x}{\partial x} \Delta x - J_x \right) \cdot \Delta y \cdot \Delta z \quad (5.1)$$

$$= \frac{\partial J_x}{\partial x} \Delta x \Delta y \Delta z \quad (5.2)$$

Bei der Betrachtung aller drei Raumrichtungen x, y, z folgt

$$\text{Netto-Fluss pro Volumeneinheit} = \frac{\partial J_x}{\partial x} + \frac{\partial J_y}{\partial y} + \frac{\partial J_z}{\partial z} \quad (5.3)$$

In der Bilanz der Eigenschaft ψ werden außerdem die zeitliche Änderung der Eigenschaft $\frac{\partial}{\partial t} (\rho \cdot \psi)$ sowie Quell- und Senkenterme S_ψ berücksichtigt. Daraus ergibt sich schließlich die allgemeine Bilanzgleichung in differentieller Form zu

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho \cdot \psi) + \frac{\partial J_x}{\partial x} + \frac{\partial J_y}{\partial y} + \frac{\partial J_z}{\partial z} = S_\psi \quad (5.4)$$

Der Transport einer Eigenschaft ψ kann mittels Konvektion oder Konduktion/ Diffusion erfolgen. Der Stoffstrom aufgrund von Konvektion kann durch einen Ansatz der Form

$$J_{i, \text{Konvektion}} = \rho \cdot u_i \cdot \psi \quad (5.5)$$

und der konduktive/ diffusive Stoffstrom durch einen Ansatz der folgenden Form erfolgen (vgl. 1. Ficksches Gesetz, [70, 71]):

$$J_{i, \text{Diffusion}} = -\Gamma_\psi \cdot \frac{\partial \psi}{\partial x_i} \quad (5.6)$$

Darin ist Γ_ψ ein allgemeiner Diffusionskoeffizient. Für die Flüsse J_i folgt:

$$J_i = \underbrace{(\rho \cdot u_i \cdot \psi)}_{\text{Konvektion}} - \underbrace{\Gamma_\psi \cdot \frac{\partial \psi}{\partial x_i}}_{\text{Diffusion}} \quad (5.7)$$

Durch Umformen ergibt sich die allgemeine differentielle Form der Transportgleichung:

$$\underbrace{\frac{\partial}{\partial t} (\rho \cdot \psi)}_{\text{Instationär}} + \underbrace{\frac{\partial}{\partial x_i} (\rho \cdot u_i \cdot \psi)}_{\text{Konvektion}} = \underbrace{\frac{\partial}{\partial x_i} \left(\Gamma_{psi} \cdot \frac{\partial \psi}{\partial x_i} \right)}_{\text{Diffusion}} + \underbrace{S_\psi}_{\text{Quelle}} \quad (5.8)$$

Zur Anpassung einer beliebigen Transportgleichung an die allgemeine Form werden alle Terme, die nicht zur Konvektion oder Diffusion gehören, im Quellterm versammelt. Die abhängige Variable ψ ist im Allgemeinen eine Funktion des Ortes und der Zeit, d. h. $\psi = \psi(x, y, z, t)$. In Gl. 5.7 sind x, y, z und t die unabhängigen Variablen.

Die Tatsache, dass alle für ein Strömungsproblem relevanten Gleichungen in der Form der allgemeinen Gleichung geschrieben werden können, ermöglicht es, die zur Lösung angewandten numerischen Methoden allgemein zu formulieren. Die auszuwählende Lösungsmethode muss somit geeignet sein, partielle Differentialgleichung zweiter Ordnung zu lösen [78, 85].

5.1.1 Kontinuitätsgleichung

Die Kontinuitätsgleichung beschreibt die Massenerhaltung. Masse kann weder entstehen noch verloren gehen:

$$\frac{dM}{dt} = 0 \quad (5.9)$$

Setzt man in der obigen Erhaltungsgleichung (Gl. 5.7) für die Eigenschaft ψ den Wert Eins ein und den Quell- und Senkenterm aufgrund der Massenerhaltung zu Null, so ergibt sich die differentielle Form der Kontinuitätsgleichung für das zweidimensionale kartesische Koordinatensystem zu

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial (\rho \cdot u)}{\partial x} + \frac{\partial (\rho \cdot v)}{\partial y} = 0 \quad (5.10)$$

Für ein inkompressibles Fluid mit $\rho = \textit{konstant}$ vereinfacht sich die Kontinuitätsgleichung zu:

$$\frac{\partial u_i}{\partial x_i} = 0 \quad (5.11)$$

5.1.2 Impulsgleichung

Die Berechnung des Geschwindigkeitsfeldes einer Strömung erfolgt aus der Lösung der Impulsbilanz. Diese kann aus dem Newtonschen Grundgesetz “Impulsänderung des Fluids im Kontrollvolumen V =Summe aller von außen angreifenden Kräfte” abgeleitet werden oder folgt aus dem obigen allgemeinen Ansatz (Gl. 5.7), wenn für ψ je nach Richtung u , v oder w und für Γ_ψ die Viskosität η eingesetzt werden. Der Quellterm S_ψ wird aus dem Druckterm $-\partial p/\partial x$ und dem Trägheitsterm $\rho \cdot g$ gebildet. Nach Einsetzen ergibt sich für die linke Seite von Gl. 5.1 im zweidimensionalen Fall:

$$\frac{\partial (\rho \cdot u)}{\partial t} + \frac{\partial (\rho \cdot u^2)}{\partial x} + \frac{\partial (\rho \cdot v \cdot u)}{\partial y} = r. S. \quad (5.12)$$

Unter Verwendung der Produktregel folgt:

$$\rho \cdot \left(\frac{\partial u}{\partial t} + u \cdot \frac{\partial u}{\partial x} + v \cdot \frac{\partial u}{\partial y} \right) + \underbrace{u \cdot \left(\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial (\rho \cdot u)}{\partial x} + \frac{\partial (\rho \cdot v)}{\partial y} \right)}_{=0} = r. S. \quad (5.13)$$

Der letzte Klammerausdruck verschwindet aufgrund der Kontinuitätsgleichung (Gl. 5.10). Für ein dichteveränderliches Fluid lauten die Navier-Stokes-Gleichungen in

differentieller Schreibweise für den zweidimensionalen Fall in kartesischen Koordinaten:

$$\rho \cdot \left(\frac{\partial u}{\partial t} + u \cdot \frac{\partial u}{\partial x} + v \cdot \frac{\partial u}{\partial y} \right) = \eta \cdot \left(\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} \right) - \frac{\partial p}{\partial x} + \rho \cdot g_x \quad (5.14)$$

$$\rho \cdot \left(\frac{\partial v}{\partial t} + u \cdot \frac{\partial v}{\partial x} + v \cdot \frac{\partial v}{\partial y} \right) = \eta \cdot \left(\frac{\partial^2 v}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} \right) - \frac{\partial p}{\partial y} + \rho \cdot g_y \quad (5.15)$$

5.1.3 Komponentengleichung

Neben der Erhaltung der Gesamtmasse muss auch die Erhaltung der einzelnen Komponenten gewährleistet sein. In diesem Fall wird als transportierte Größe der Massenanteil $x_i = M_i/M_{ges}$ betrachtet. Setzt man anstelle von ψ den Massenanteil x in die obige Erhaltungsgleichung und als Größe Γ_ψ den Diffusionskoeffizienten D ein, wendet anschließend die Produktregel an und streicht die Terme der Kontinuitätsgleichung, so ergibt sich die Erhaltungsgleichung für eine Komponente. Für den zweidimensionalen kartesischen Fall lautet sie:

$$\rho \cdot \left(\frac{\partial x_i}{\partial t} + u \cdot \frac{\partial x_i}{\partial x} + v \cdot \frac{\partial x_i}{\partial y} \right) = D \cdot \left(\frac{\partial^2 x_i}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 x_i}{\partial y^2} \right) + S \quad (5.16)$$

Der Term S berücksichtigt Stoffquellen oder -senken im Falle von chemischen Reaktionen.

5.1.4 Spannungsgleichgewicht an der Phasengrenze

Die Grenzflächenspannung an der Phasengrenze hängt u. a. von der Konzentration der Übergangskomponente ab. Liegen entlang der Grenzfläche Änderungen in der stofflichen Zusammensetzung vor, so bilden sich lokale Grenzflächenspannungsgradienten $\partial\sigma/\partial x$ heraus. Dieser instabile Zustand strebt einem Gleichgewicht zu, indem Bereiche geringerer Grenzflächenspannung spreiten und Bereiche höherer Grenzflächenspannung kontrahieren. Daraus resultiert eine Bewegung der Grenzfläche. Aufgrund der Viskosität wird der in der Phasengrenze erzeugte Impuls in die angrenzenden Phasen transportiert. Die Abb. 5.2 veranschaulicht die an einem differentiellen Grenzflächenelement der Breite δx und Tiefe δz angreifenden Kräfte.

Für die Schubspannungen τ_d und τ_c gilt gemäß dem newtonschen Scherspannungsan-

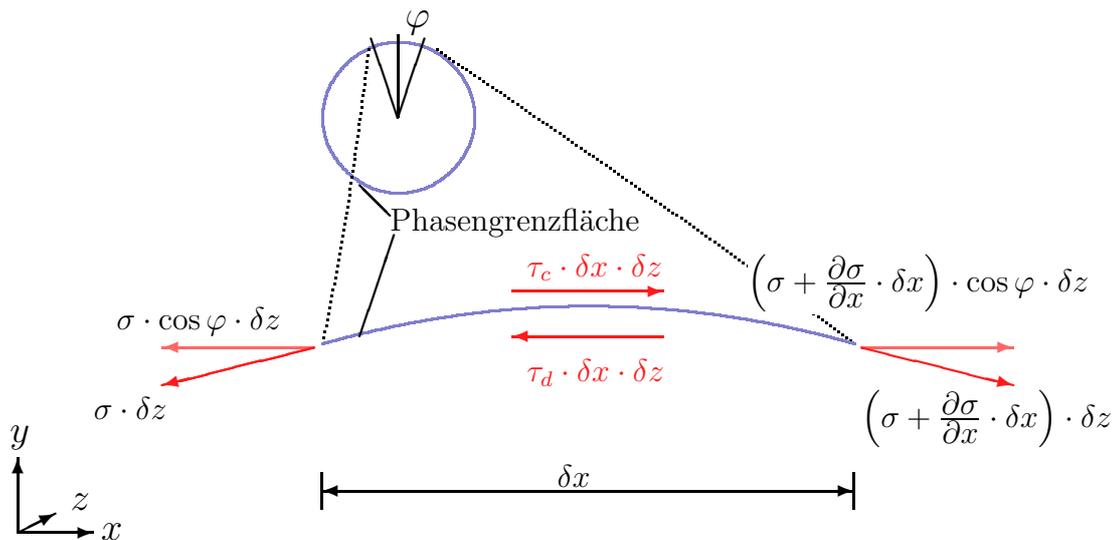


Abb. 5.2: Kräftebilanz an einer gekrümmten Phasengrenzfläche

satz:

$$\tau_d = \eta_d \cdot \left(\frac{\partial u}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial x} \right)_d \quad (5.17)$$

$$\tau_c = \eta_c \cdot \left(\frac{\partial u}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial x} \right)_c \quad (5.18)$$

Darin sind u und v die Geschwindigkeitskomponenten parallel und normal zur Phasengrenzfläche. Entlang der Phasengrenzfläche ist die normale Geschwindigkeitskomponente v und ihre Ableitung in X-Richtung gleich Null. Deshalb vereinfachen sich die obigen Gleichungen und für das Spannungsgleichgewicht ergibt sich schließlich

$$\eta_c \left(\frac{\partial u}{\partial y} \right)_c - \eta_d \left(\frac{\partial u}{\partial y} \right)_d = 2 \cdot \frac{\sigma}{r} - \frac{\partial \sigma}{\partial x} \quad (5.19)$$

5.1.5 Boussinesq-Approximation

Die Stoffwerte einer Mischung sind in der Regel von ihrer Zusammensetzung abhängig. Demzufolge muss jeweils der von der lokalen Zusammensetzung abhängige Stoffwert verwendet werden. Für kleine Konzentrationsänderungen einer Komponente, wie bei der vorliegenden Problemstellung, können jedoch die meisten Stoffwerte wie Viskosität, Diffusionskoeffizient, etc. als konstant, d. h. unabhängig von der lokalen Konzentration

betrachtet werden. Nur im Auftriebsterm $\rho \cdot g_i$ der Impulsbilanzgleichung wird die lokale Dichte berücksichtigt, um den Einfluss der dichtegetriebenen freien Konvektion berechnen zu können. Diese Annahmen werden unter dem Begriff *Boussinesq-Approximation* zusammengefasst und erlauben eine erhebliche Reduzierung des erforderlichen Rechenaufwands bei der Lösung gekoppelter nicht linearer Differenzialgleichungen [70, 85].

5.2 Numerische Behandlung der Transportgleichungen

Die Lösung der in Kap. 5.1 entwickelten Differenzialgleichungen durch ein numerisches Verfahren liefert die Werte der gesuchten Transportgrößen für diskrete Zeiten und eine endliche Zahl örtlich diskreter Punkte, die über das Rechengebiet verteilt sind. Zu diesem Zweck wird über das Rechengebiet ein Gitter gelegt, dessen Knotenpunkte die Stützstellen zur Berechnung der Transportgrößen bilden. Für jeden der Gitterknoten wird aus der Transportgleichung eine Diskretisierungsgleichung abgeleitet, die den Wert der Transportgröße als ein gewichtetes Mittel der Werte an den nächsten räumlichen und zeitlichen Nachbarknotenpunkten ausdrückt. Die aufgestellten Diskretisierungsgleichungen für die Größen Strömungsgeschwindigkeit u , v und w , Konzentration x , y und Temperatur T bilden zusammen mit den Anfangs- und Randbedingungen ein Gleichungssystem, das mit Hilfe der Finite-Elemente-Methode (FEM) in einem iterativen Verfahren gelöst wird. Bei der Finite-Elemente-Methode wird anstelle der Differentialgleichungen eine geeignete Ersatzfunktion definiert und anschließend eine Minimierung des numerischen Fehlers durchgeführt. Der Vorteil dieser Methode besteht in ihrem breiten Anwendungsbereich sowohl auf strukturierte als auch auf unstrukturierte Gitter.

Der Ablauf einer numerischen Analyse beginnt mit der Definition der Art des Problems und der zu berücksichtigenden Gleichungen. Anschließend wird die Größe des Rechengebietes abgegrenzt und ein geeignetes Gitter erstellt. Mit der Angabe der Anfangs- und Randbedingungen ist das Preprocessing abgeschlossen und die Rechnung kann gestartet werden. Abschließend erfolgt die Auswertung und Analyse der Ergebnisse [78, 85].

Zur Durchführung der Modellierungen wurde das Simulationsprogramm FIDAP in der Version 8.7.0 der Firma Fluent genutzt [29]. Das Programm ermöglicht die Modellierung einer Vielzahl von Strömungs-, bzw. Wärme- und Stofftransportproblemen, wie z. B.:

- viskos kompressible oder inkompressible Strömungen
- stationär oder instationäre Vorgänge

- laminare und turbulente Strömung
- Einbindung von Oberflächen- und Volumenkräften

5.3 Durchführung der Simulation

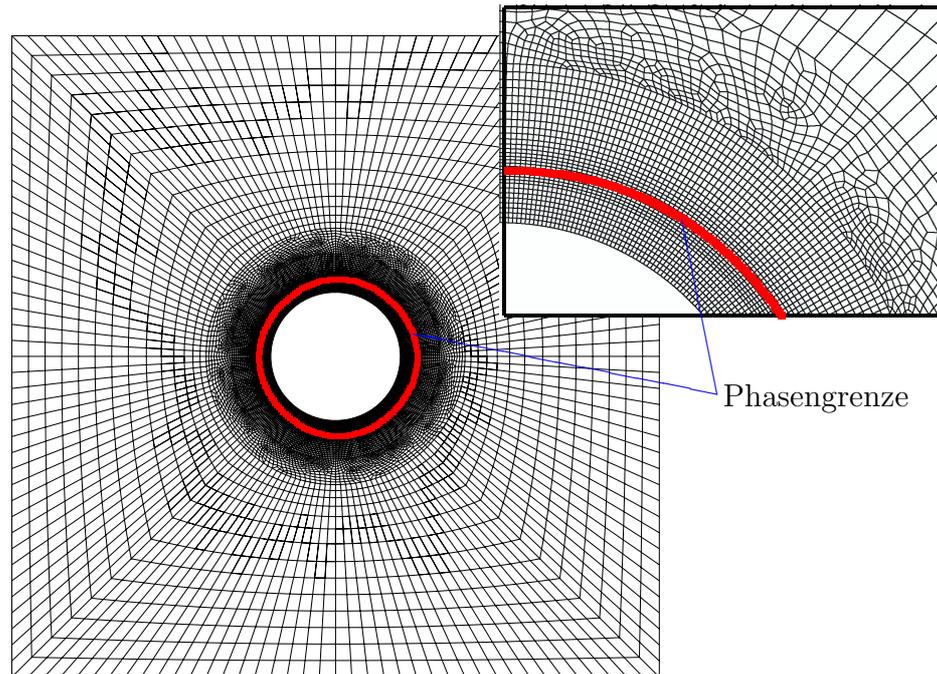


Abb. 5.3: Rechengitter für die Modellierung des Stoffübergangs am Einzeltropfen

Im ersten Schritt wird das Gitter für die Rechnung erstellt, indem Punkte definiert werden, die die zugrunde liegende Geometrie beschreiben. Diese Punkte können anschließend mit geraden oder gekrümmten Linien verbunden werden, so dass sich der Umriss des Rechengebietes ergibt. Auf jeder geometrischen Linie werden eine frei wählbare Anzahl an Knoten mit gewünschtem Abstand definiert. Zusammen gehörende Linien werden zu einem geschlossenen Linienzug verbunden, wodurch Teilgebiete abgegrenzt werden. Anschließend werden die Gebiete mit einem regelmäßigen oder einem freien Gitter vermascht. Die Vermaschung mit einem regulären Gitter erfordert ein Gebiet, das logisch in ein Rechteck mit jeweils gleich vielen Knoten auf gegenüberliegenden Seiten aufgeteilt werden kann. Das freie Gitter ermöglicht eine nahezu beliebige Vermaschung, ist aber bei

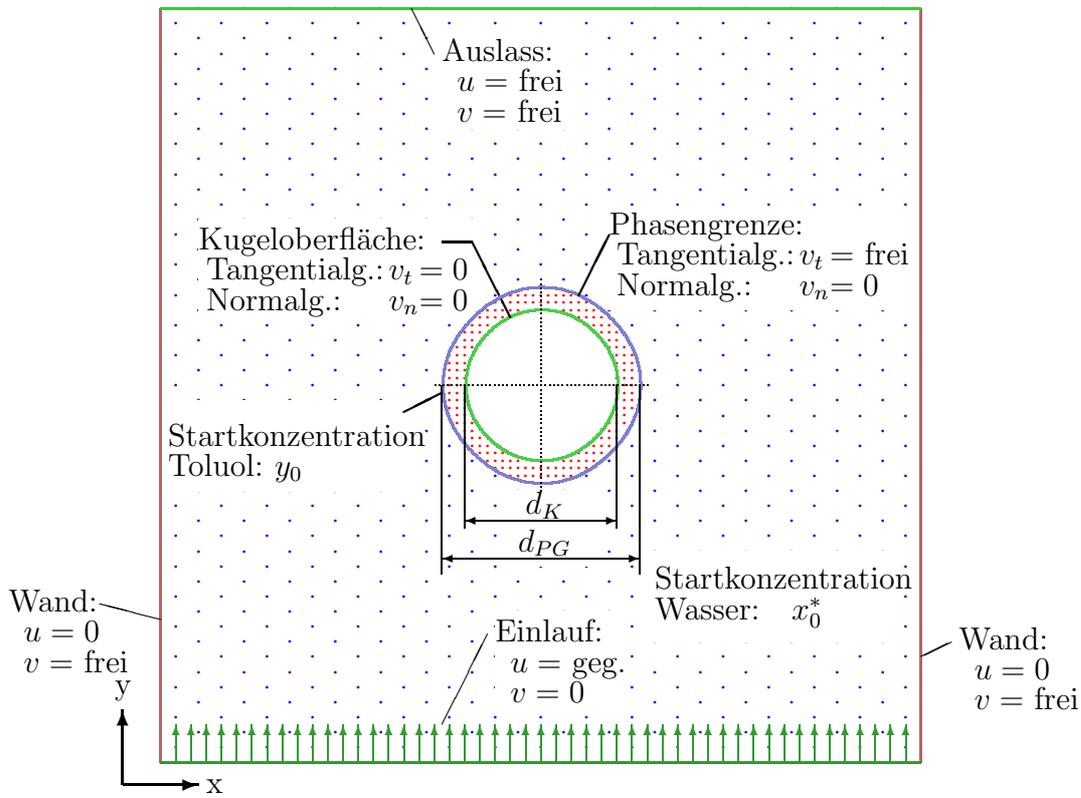


Abb. 5.4: Definition der Anfangs- und Randbedingungen für die numerischen Untersuchungen

der Gittererstellung wesentlich rechenintensiver. Ziel der Gittererstellung ist es, Elemente möglichst rechteckig und mit identischen Seitenlängen zu gestalten. Die Abb. 5.3 zeigt das für die Rechnungen am Einzeltropfen verwendete Gitter mit insgesamt 17.966 Knoten. Da an der Phasengrenze die größten Gradienten in der Konzentration der Übergangskomponente vorliegen, wurde hier eine besonders feine Auflösung mit 400 Knoten entlang des Tropfenumfangs gewählt.

Im nächsten Schritt wird das Problem spezifiziert. Dabei werden folgende Rahmenparameter für die Simulation definiert:

- stationäre oder instationäre Rechnung
- Gleichungen: lineare oder nichtlineare Terme
- Problemzeit, Zeitschrittweite

- Lösungsverfahren: geschlossen oder entkoppelt, sonstige Optimierungsparameter
- Art der Geometrie: 2D oder 3D, Symmetrien

Den einzelnen Teilgebieten werden Stoffwerte (Dichte, Viskosität, Diffusionskoeffizient, Konzentration) zugewiesen, ihr Phasenzustand (fest, flüssig oder gasförmig) definiert und festgelegt, ob eine Verformung des Gebietes und somit des zugrunde liegenden Gitters möglich sein soll. Für die Rechnungen werden die Stoffdaten des Systems Toluol/Aceton/Wasser verwendet, die entweder der Literatur entnommen [72] oder selbst bestimmt werden (siehe Anhang A.2). Weiterhin erfolgt die Definition der Anfangs- und Randbedingungen. Dabei können Geschwindigkeiten oder Geschwindigkeitsgradienten sowie Konzentrationen oder Konzentrationsgradienten für bestimmte Gebiete oder Linien allgemein, zu Beginn der Rechnung oder für eine bestimmte Zeitspanne definiert werden. Die für das vorliegende Problem relevanten Daten zeigt Abb. 5.4.

Nachdem das Preprocessing abgeschlossen ist, kann die eigentliche Rechnung gestartet werden. Bei der Simulation werden die Größen Geschwindigkeit, Druck und Konzentration für jeden Gitterpunkt und jeden Zeitschritt berechnet und abgespeichert. Im anschließenden Postprocessing können diese zur Erstellung von Diagrammen und Filmsequenzen sowie zur Berechnung abgeleiteter Größen genutzt werden.

Um den Einfluss des Gitters auf die Ergebnisse der Rechnungen zu ermitteln, wird der Stofftransport am Einzeltropfen mit zwei unterschiedlichen Gitterstrukturen untersucht. Die erste Struktur entspricht dem in Abb. 5.3 gezeigten Gitter, für die zweite Struktur wurde dieses Gitter um 20° verdreht. Für die Rechnungen werden Bedingungen gewählt, die zur Ausbildung von Rollzellen und zu einem sehr charakteristischen Verlauf des Stoffdurchgangskoeffizienten führen, wie in Abb. 5.9 und Abb. 5.10(oben) dargestellt. Die Auswertung der Rechnung mit dem gedrehten Gitter zeigen nur geringe Unterschiede. Es kommt weiterhin zur Ausbildung einer identischen Zahl von Rollzellen und der Verlauf des Stoffdurchgangskoeffizienten ist nahezu identisch. Die Anordnung der Rollzellen am Tropfenumfang ist bei der Vergleichsrechnung verdreht, jedoch um einen deutlich kleineren Winkel als 20° . Ein direkter Einfluss des Gitters auf die Rechnungen, der zu deutlichen abweichenden Ergebnissen führt, ist demnach nicht feststellbar.

5.4 Darstellung der Ergebnisse

Für die Analyse und Auswertung der Simulationsergebnisse werden aus dem Datenmaterial jeder Rechnung mehrere Diagramme erstellt.

- Der Stoffübergangskoeffizient β_i für eine Phase i wird aus den durch die Rechnung bekannten Konzentrationen an der Phasengrenzfläche x_{PG} bzw. y_{PG} und in den Kernphasen x_∞ bzw. y_∞ und dem Massenstrom über die Phasengrenzfläche \dot{M} berechnet. Für die Tropfenphase gilt:

$$\beta_d = \frac{\dot{M}}{\rho_d \cdot (y_\infty - y_{PG})} \quad (5.20)$$

- Der Stoffdurchgangskoeffizient k beinhaltet im Gegensatz zum Stoffübergangskoeffizienten β_i das wirksame Konzentrationsgefälle aus beiden Phasen. Er wird wie folgt berechnet:

$$k = \frac{\dot{M}}{\rho_d \cdot (y_\infty - N \cdot x_\infty)} \quad (5.21)$$

- Bei der Durchführung der experimentellen Untersuchungen kann der Anteil der Übergangskomponente im Tropfen jeweils am Anfang und nach Abschluss eines Experimentes gemessen werden. Entsprechend Gl. 4.5 ist daraus nur ein zeitlich gemittelter Konzentrationsverlauf bzw. mittlerer Stoffdurchgangskoeffizient ermittelbar. Um die Ergebnisse der Simulation mit experimentellen Ergebnissen zu vergleichen, wird in der Auswertung ebenfalls der mittlere Stoffdurchgangskoeffizient k_m berechnet.

$$k_m = \ln \left(\frac{y_0}{y_\omega} \right) \cdot \frac{d_{PG}^3 - d_K^3}{24 \cdot \tau \cdot d_{PG}^2} \quad (5.22)$$

Darin ist τ die Zeitdauer, y_0 die Aceton-Konzentration am Anfang und y_ω die Aceton-Konzentration am Ende der Simulation.

- Der direkte Vergleich der zeitlichen Verläufe des Stoffdurchgangskoeffizienten für verschiedene Simulationen wird durch die teilweise sehr starken Schwankungen erschwert. Aus diesem Grund wird eine weitere Größe berechnet, die den zeitlichen

Verlauf des Stofftransportes charakterisiert, dabei aber zeitlichen Schwankungen deutlich geringer unterworfen ist. Als geeignetes Maß wird die zu einem bestimmten Zeitpunkt t insgesamt aus dem Tropfen in die kontinuierliche Phase übergegangene Masse Aceton $M_{Ac,0} - M_{Ac}(t)$ verwendet. Für eine dimensionslose Darstellung wird diese Masse auf die zu Beginn der Rechnung im Tropfen enthaltene Gesamtmasse Aceton $M_{Ac,0}$ bezogen.

$$z(t) = \frac{M_{Ac,0} - M_{Ac}(t)}{M_{Ac,0}} \quad (5.23)$$

5.5 Stofftransport am Einzeltropfen

Im Rahmen der numerischen Arbeiten wird zunächst der Stofftransport an einem Einzeltropfen untersucht. Dazu wird mit den Stoffdaten des Stoffsystems Wasser/Aceton/Toluol gerechnet. Die zugrunde liegenden Stoffdaten und ihre Abhängigkeiten von der Zusammensetzung sind der Literatur [72] entnommen oder werden mit den in Kap. 3 aufgeführten Messmethoden selbst ermittelt (siehe Anhang A.2). Nachfolgend werden die einzelnen Rechnungen erläutert und die Ergebnisse diskutiert. Mit Hilfe der Rechnungen soll der Einfluss der Transportmechanismen Diffusion, freie und erzwungene Konvektion und Marangonikonvektion sowie der Tropfenstartkonzentration auf den Stofftransport ermittelt werden. Neben der absoluten Höhe des Stoffdurchgangskoeffizienten k interessieren auch die Wechselwirkungen zwischen den einzelnen Transportmechanismen sowie die Ausbildung charakteristischer Geschwindigkeit- und Konzentrationsprofile. Zu diesem Zweck werden folgende Kombinationen dieser Mechanismen untersucht.

- Diffusion, erzwungene Konvektion
- Diffusion, freie und erzwungene Konvektion
- Diffusion, Marangonikonvektion, erzwungene Konvektion
- Diffusion, Marangonikonvektion, freie und erzwungene Konvektion

Der Einfluss der freien Konvektion wird rechnerisch unterbunden, indem die Erdbeschleunigung zu Null gesetzt wird, der Einfluss der Marangonikonvektion bleibt unberücksichtigt, wenn die Abhängigkeit der Grenzflächenspannung von der Zusammensetzung vernachlässigt, d. h. wenn in Gl. 5.19 der letzte Term zu Null gesetzt wird. Die

Berücksichtigung aller vier Effekte stellt eine weitgehend realitätsnahe Variante dar, gestattet jedoch keine direkte Zuordnung der auftretenden Phänomene zu ihrem Ursprung.

Die Diffusion ist in allen Rechnungen berücksichtigt. Sie ist für den Stofftransport direkt an der Phasengrenze verantwortlich, da die Normalgeschwindigkeit an der Phasengrenze Null ist und deshalb ein konvektiver Stofftransport nicht möglich ist.

Der Einfluss der erzwungenen Konvektion wird durch Variation der Reynoldszahl Re und der Einfluss der Konzentrationsdifferenz durch Variation der Tropfenstartkonzentration y_0 ermittelt.

$$Re = \frac{d_{PG} \cdot v \cdot \rho_c}{\eta_c} = 0; 11; 73; 185 \quad (5.24)$$

$$y_0 = \frac{M_{Ac,0}}{M_{Ac,0} + M_{T,0}} = \frac{M_{Ac,0}}{M_{ges,0}} = 0,01; 0,02; 0,04; 0,06; 0,08 \text{ kg/kg} \quad (5.25)$$

Die kontinuierliche Phase besteht stets aus reinem Wasser ($x_0 = 0,0 \text{ kg/kg}$). In den Tabellen C.1 und C.2 im Anhang sind die Ergebnisse der Rechnungen zusammengefasst.

Um eine bessere Übersichtlichkeit zu erhalten, werden in den folgenden Abschnitten (5.5.1 bis 5.5.4) nur die Ergebnisse der Simulationen mit einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,04 \text{ kg/kg}$ miteinander verglichen.

5.5.1 Stofftransport aufgrund von Diffusion und erzwungener Konvektion

Der Stofftransport aufgrund von Diffusion führt bei Vorliegen eines Konzentrationsgradienten zu einem gerichteten Stoffstrom aus dem Tropfen in die kontinuierliche Phase. Dieser Vorgang läuft sehr langsam ab und die übertragenen Stoffmengen sind vergleichsweise gering. Die Abb. 5.5 zeigt die berechneten zeitlichen Verläufe des Stoffdurchgangskoeffizienten k für verschiedene Reynoldszahlen bei einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,04 \text{ kg/kg}$. Der Stoffdurchgangskoeffizient fällt bei allen Strömungsgeschwindigkeiten zunächst stark ab und bleibt im anschließend betrachteten Zeitraum annähernd konstant. Durch eine Anströmung des Tropfens wird der momentane Stoffdurchgangskoeffizient $k(t)$ bzw. der Stoffdurchgangskoeffizient für große Zeiten $k_{t \rightarrow \infty}$ verändert. Eine niedrige Strömungsgeschwindigkeit ($Re = 11$) führt zu einer vernachlässigbaren Erhöhung des Stofftransportes. Deutliche Verbesserungen ergeben sich bei höheren Anströmgeschwindigkeiten. Hier bleibt der Stoffdurchgangskoeffizient nach einem anfänglichen Absinken im betrachteten Zeitraum nahezu konstant bei $k(Re = 73) \approx 0,7 \cdot 10^{-5} \text{ m/s}$ und

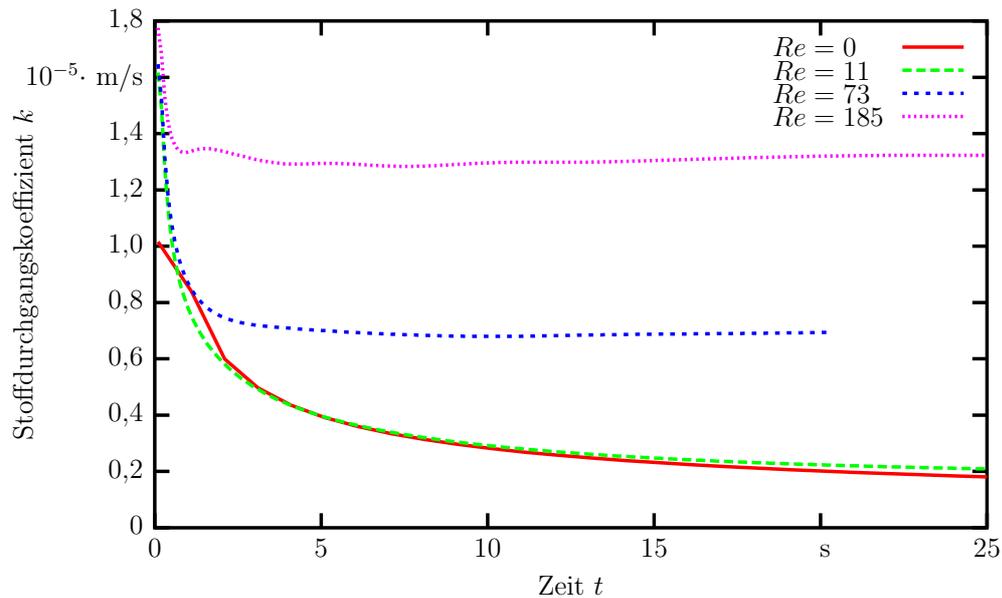


Abb. 5.5: Zeitlicher Verlauf des Stoffdurchgangskoeffizienten k für eine Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,04$ kg/kg unter Berücksichtigung von Diffusion und erzwungener Konvektion

$k(Re = 185) \approx 1,3 \cdot 10^{-5}$ m/s.

Der Einfluss unterschiedlicher Strömungsgeschwindigkeiten (Re_1, Re_2) wird durch einen Faktor F_{ZK} ausgedrückt.

$$F_{ZK} = \left(\frac{k(Re_1)}{k(Re_2)} \right)_{t \rightarrow \infty} \quad (5.26)$$

In Tab. 5.1 werden die aus den Simulationen berechneten Faktoren $F_{ZK,sim}$ und die mit Hilfe von Gl. 4.7 (S. 49) berechneten Faktoren $F_{ZK,th}$ miteinander verglichen. Die teilweise sehr großen Abweichungen lassen sich durch die von der Tropfenform abweichende verwendete Geometrie erklären.

5.5.2 Stofftransport aufgrund von Diffusion, freier und erzwungener Konvektion

Die Bewegung eines Fluids bei freier Konvektion resultiert aus der nicht homogenen Zusammensetzung der beiden Hauptphasen. Da die Dichte der Hauptkomponenten von der Dichte der Übergangskomponente abweicht, ist die lokale Dichte eine Funktion der lokalen Zusammensetzung. Diese Konzentrationsabhängigkeit ist damit grundsätzlich in

Tab. 5.1: Einfluss unterschiedlicher Strömungsgeschwindigkeiten auf den Stofftransport unter Berücksichtigung von Diffusion und erzwungener Konvektion. Vergleich der aus den Simulationen ermittelten Erhöhungsfaktoren $F_{ZK,sim}$ mit den berechneten Werten $F_{ZK,th}$

	Re_1	11	73	185	73	185	185
	Re_2	0	0	0	11	11	73
Simulation	$F_{ZK,sim}$	1,1	3,7	6,8	3,4	6,3	1,9
Theorie	$F_{ZK,th}$	11,7	22,0	29,9	1,9	2,6	1,4

allen Termen der Differenzialgleichungen zu berücksichtigen (vgl. Abschnitt 5.1.5).

Der Stoffübergang aus der Tropfenphase in die kontinuierliche Phase führt somit zum Aufsteigen leichterer acetonreicher Bereiche in der wässrigen Phase sowie zum Absinken schwererer acetonarmer Bereiche in der organischen Tropfenphase.

Die Abb. 5.6 zeigt die berechnete Geschwindigkeitsverteilung im Bereich des Tropfens mit Hilfe von Vektoren. Die Farbe und Länge der Vektoren repräsentieren den Betrag der Geschwindigkeit, die Orientierung der Vektoren die Richtung der lokalen Geschwindigkeit.

Die Ausbildung der freien Konvektion und der damit verbundene Einfluss auf den Stofftransport erfolgen deutlich zeitverzögert. Erst nach einer Zeit von $t \approx 5$ s nach Beginn der Simulation ist die Ausbildung eines Geschwindigkeitsprofils am Umfang des Tropfens zu erkennen (Abb. 5.6, oben). Erst nach einer Zeit von $t \approx 14$ s ist das Geschwindigkeitsprofil nahezu voll ausgebildet (Abb. 5.6, unten).

Beim Vergleich der Abb. 5.5 und Abb. 5.7 wird deutlich, dass nur bei geringer erzwungener Konvektion ($Re = 0; 11$) eine signifikante Verbesserung des Stofftransportes aufgrund der freien Konvektion erkennbar ist. Dieser Einfluss ist jedoch an die Ausbildung der konvektiven Strömung gekoppelt und deshalb erst nach einer Zeit von $t \approx 5$ s bemerkbar. Im betrachteten Zeitbereich ($t = 0 \dots 25$ s) ist bei diesen Strömungsgeschwindigkeiten im Gegensatz zu den Untersuchungen ohne frei Konvektion kein allmähliches Absinken des Stoffdurchgangskoeffizienten zu beobachten. Jedoch führt die im Zeitintervall $t = 5 \dots 14$ s stetig zunehmende Strömungsgeschwindigkeit auch zu keiner weiteren Intensivierung des Stofftransportes.

Der Vergleich der Abb. 5.5 mit Abb. 5.7 zeigt außerdem, dass bei stärkerer erzwungener Konvektion ($Re = 73; 185$) kein signifikanter Einfluss der freien Konvektion er-

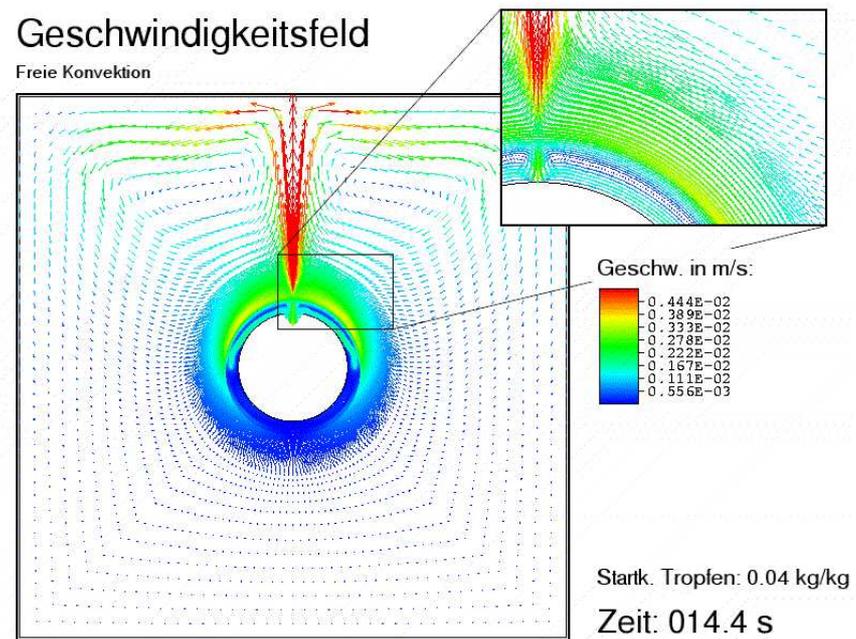
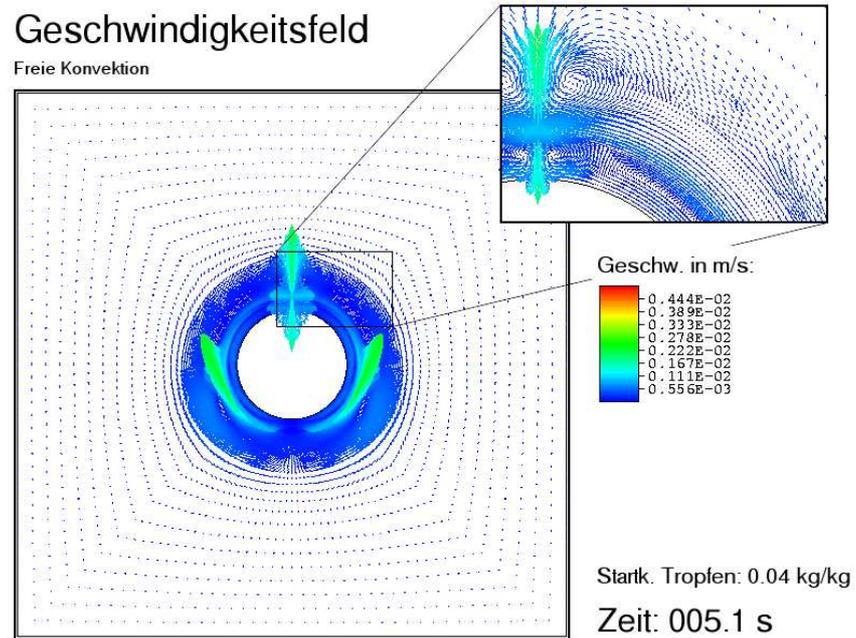


Abb. 5.6: Geschwindigkeitsfeld für eine Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,04$ kg/kg und einer Reynoldszahl von $Re = 0$ unter Berücksichtigung von Diffusion und freier Konvektion. Oben: $t = 5$ s (beginnende Ausbildung), Unten: $t = 14$ s (nahezu voll ausgebildet)

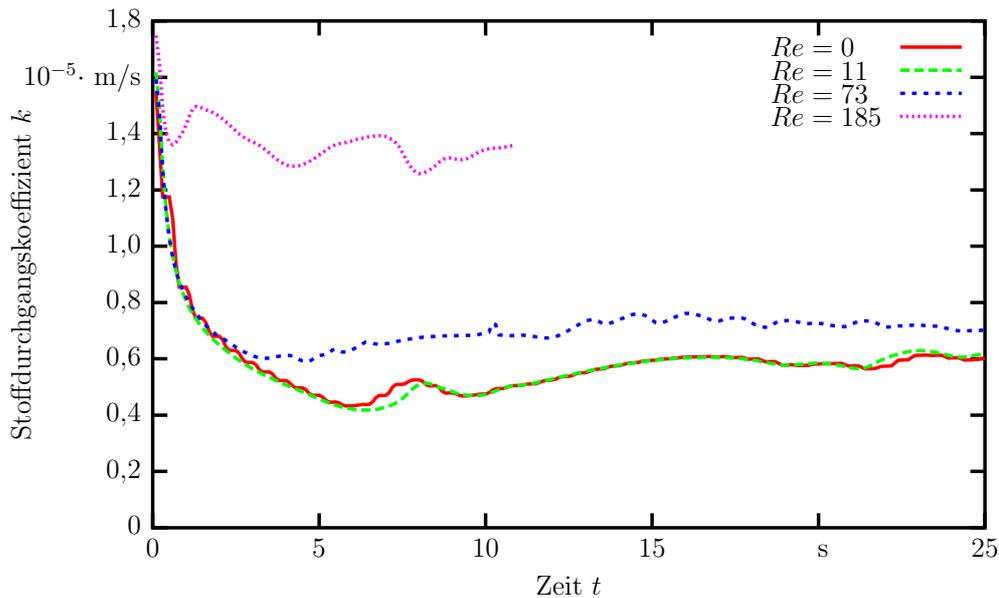


Abb. 5.7: Zeitlicher Verlauf des Stoffdurchgangskoeffizienten k für eine Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,04$ kg/kg unter Berücksichtigung von Diffusion, freier und erzwungener Konvektion

kennbar ist. Hier dominiert die erzwungene Konvektion und die freie Konvektion kann keinen zusätzlich spürbaren Beitrag liefern.

5.5.3 Stofftransport aufgrund von Diffusion, Marangonikonvektion und erzwungener Konvektion

Marangonikonvektionen resultieren aus der Abhängigkeit der Grenzflächenspannung von der lokalen Acetonkonzentration verbunden mit einem Konzentrationsgradienten entlang der Phasengrenze. Bereiche mit niedriger Grenzflächenspannung dehnen sich aus, Bereiche mit hoher Grenzflächenspannung ziehen sich zusammen. Die daraus resultierenden Bewegungen werden durch Impulstransport auf benachbarte Fluidelemente übertragen und können schließlich zu makroskopischen Strömungen führen.

Marangonikonvektion treten vornehmlich in Form von Rollzellen oder als Phasengrenzflächenturbulenzen und Eruptionen auf. Die unterschiedliche Ausprägung ist u. a. abhängig von der Tropfenstartkonzentration y_0 bzw. von der treibenden Konzentrationsdifferenz und von der Strömungsgeschwindigkeit.

Rollzellen sind geordnete, oft quasistationäre Strukturen mit konvektivem Charakter,

bei denen Fluidelemente senkrecht zur Phasengrenze aus den Kernphasen an die Phasengrenze oder von ihr weg transportiert werden. Während des Kontakts mit der anderen Phase findet der Stofftransport statt. Durch diesen Mechanismus ergeben sich sehr gute Bedingungen für den Stofftransport, da sich stets frische Fluidelemente mit hoher bzw. niedriger Konzentration gegenüberstehen [40, 115].

Phasengrenzflächenturbulenzen sind stark turbulente Störungen, die sowohl an der gesamten Phasengrenzfläche oder auch nur lokal in Form von Eruptionen auftreten können. Eine *Eruption* ist ein spontanes, lokales Auswerfen der Übergangskomponente verbunden mit der Ausbildung von Wirbeln, die meist eine größere räumliche Ausdehnung besitzen und weiter in die Kernphasen hinein reichen. Eruptionen bilden sich spontan aus und wandern meist sehr schnell entlang der Phasengrenze. Beim Aufeinandertreffen zweier Eruptionen verschmelzen diese zu einer. Sie entstehen vornehmlich bei sehr großen Triebkräften und wirken zum Teil bis weit in die Kernphasen (ca. 10 mm) hinein. Die Beobachtung der aus den Simulationsergebnissen erstellten Filme läßt vermuten, dass sich vorhandene Eruptionen aufeinander zu bewegen. Im Gegensatz zu den Rollzellen sind Eruptionen eine sehr stabile Form der Marangonikonvektion, die auch bei hohen Strömungsgeschwindigkeiten entsteht. Ihre Bewegung entlang der Phasengrenze und die Tiefenwirkung werden dann jedoch durch die Anströmung maßgeblich beeinflusst.

Die Struktur der Rollzellen ist durch Stromlinien anschaulich darstellbar (vgl. Abb. 5.8). Geschlossene, konzentrische kreisförmige Linienverläufe repräsentieren jeweils eine Rollzelle. Die Drehrichtung benachbarter Zellen ist entgegengesetzt und es tritt stets eine gerade Anzahl von Rollzellen auf. Bei den durchgeführten Rechnungen werden stets 16 Rollzellen am Umfang des Tropfens beobachtet. Der durch Rollzellen bewirkte sehr effektive Stofftransport ist durch den starken Anstieg des Stoffdurchgangskoeffizienten in Abb. 5.9 für $Re = 0$ im Zeitraum von $t = 1 \dots 5$ s erkennbar. Es werden Werte bis $k = 0,8 \cdot 10^{-4}$ m/s erreicht. Mit dem Ende des Rollzellenregimes sinkt der Stoffdurchgangskoeffizient schnell auf $k = 0,2 \cdot 10^{-4}$ m/s ab.

Die Ausbildung von Rollzellen wird nur innerhalb eines Konzentrationsbereichs von $y_0 = 0,01$ bis $0,04$ kg/kg beobachtet und erfolgt jeweils erst nach einer kurzen Anlaufphase von $t \approx 0,5$ s. Dabei nimmt die Intensität der Rollzellen und ihre Wirkung auf den Stofftransport mit steigender Konzentrationsdifferenz zu. Da in der Rechnung die disperse Phase als vergleichsweise dünne Schicht auf der festen Kugel vorliegt und somit nur eine kleine Menge an disperser Phase vorhanden ist, verarmt die organische Phase aufgrund des effektiven Stofftransportes sehr schnell an Übergangskomponente (vgl.

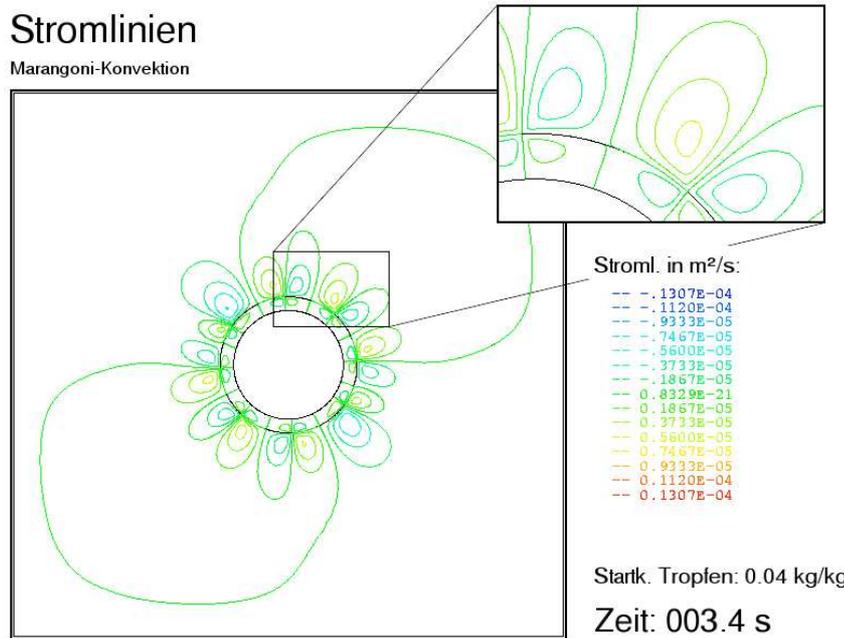


Abb. 5.8: Stromlinienfeld für eine Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,04 \text{ kg/kg}$ und einer Reynoldszahl von $Re = 0$ unter Berücksichtigung von Diffusion, Marangoni-Konvektion und erzwungener Konvektion

Abb. 5.10, oben). Die Folge ist eine relativ kurze Lebensdauer von wenigen Sekunden. Nach dem Verschmelzen der Rollzellen untereinander bilden sich vereinzelt Eruptionen aus.

Bei den Rechnungen mit einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,06$ und $0,08 \text{ kg/kg}$ erfolgt keine Ausbildung von Rollzellen, sondern es entstehen sofort Eruptionen. Die Beobachtung der aus den Rechenergebnissen erstellten Filme läßt vermuten, dass sich vorhandene Eruptionen aufeinander zu bewegen. Die Anzahl der am Tropfen gleichzeitig vorhandenen Eruptionen liegt zwischen 1 und 3. Ähnlich wie Rollzellen sind Eruptionen durch einen lokal sehr guten Stofftransport gekennzeichnet. Aufgrund der geringeren Anzahl an gleichzeitig wirkenden Eruptionen liegt der den Stofftransport am gesamten Tropfen beschreibende Stoffdurchgangskoeffizient jedoch nur in einen Bereich zwischen $k = 0,1$ und $0,5 \cdot 10^{-4} \text{ m/s}$.

Die Ausbildung von Rollzellen wird bereits durch kleine Störungen unterbunden. Schon eine äußerst geringe Anströmung entsprechend einer Reynoldszahl von $Re = 11$

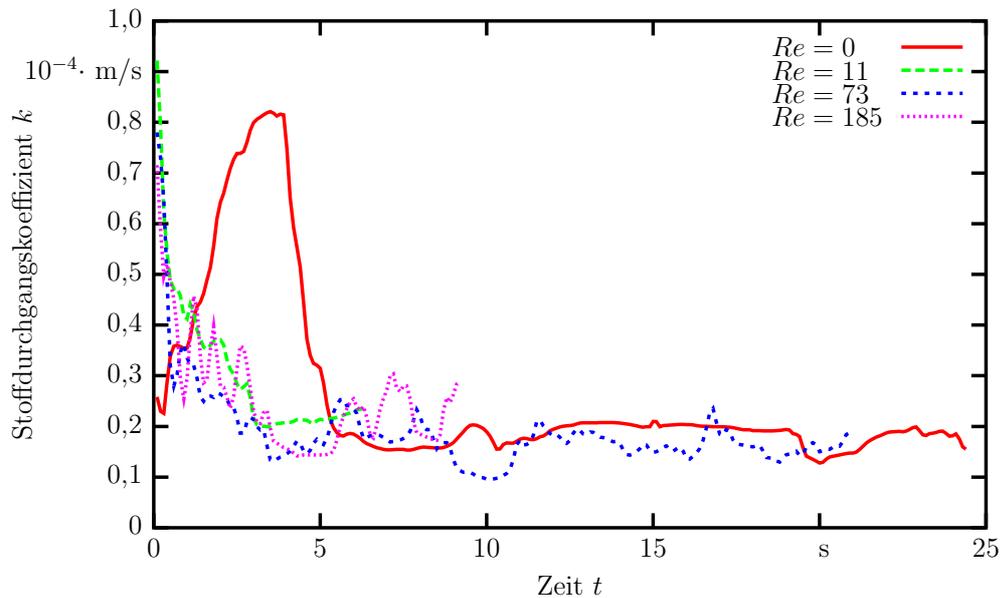


Abb. 5.9: Zeitlicher Verlauf des Stoffdurchgangskoeffizienten k für eine Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,04$ kg/kg unter Berücksichtigung von Diffusion, Marangoni-konvektion und erzwungener Konvektion

verhindert durch die damit verbundene Bewegung der Phasengrenze ihre Entstehung. Zur Verdeutlichung sind in Abb. 5.10 die Konzentrationsfelder zum jeweils gleichen Zeitpunkt dargestellt. Bei erzwungener Konvektion bilden sich keine Rollzellen aus sondern es entstehen einzelne Eruptionen. Entsprechend resultiert für $Re = 11$ keine Erhöhung des Stoffdurchgangskoeffizienten, wie bei $Re = 0$ (Abb. 5.9). Bei Reynoldszahlen von $Re = 73$ und $Re = 185$ erfolgt ebenfalls keine Ausbildung der Rollzellen. Trotz der höheren Anströmung wird aufgrund der Behinderung keine Verbesserung sondern eine Reduzierung des Stofftransportes bewirkt.

Im Gegensatz zu den vorhergehenden Simulationen bewirkt bei Berücksichtigung von Marangonikonvektionen eine Erhöhung der Anströmung keine Verbesserung des Stofftransportes, wie Abb. 5.9 zeigt. Die Kurvenverläufe für verschiedene Reynoldszahlen liegen nahe beieinander, nur für $Re = 0$ unterscheidet sich der Verlauf aufgrund der Ausbildung der Rollzellen im Zeitraum von $t = 1 \dots 5$ s. Trotz der höheren, erzwungenen Anströmung bleibt die übertragene Stoffmenge nahezu unverändert. Der Grund dafür liegt in der Behinderung der Ausbildung von Marangonikonvektion in Form von Rollzellen durch die Anströmung. Der daraus resultierende niedrigere Stofftransport durch

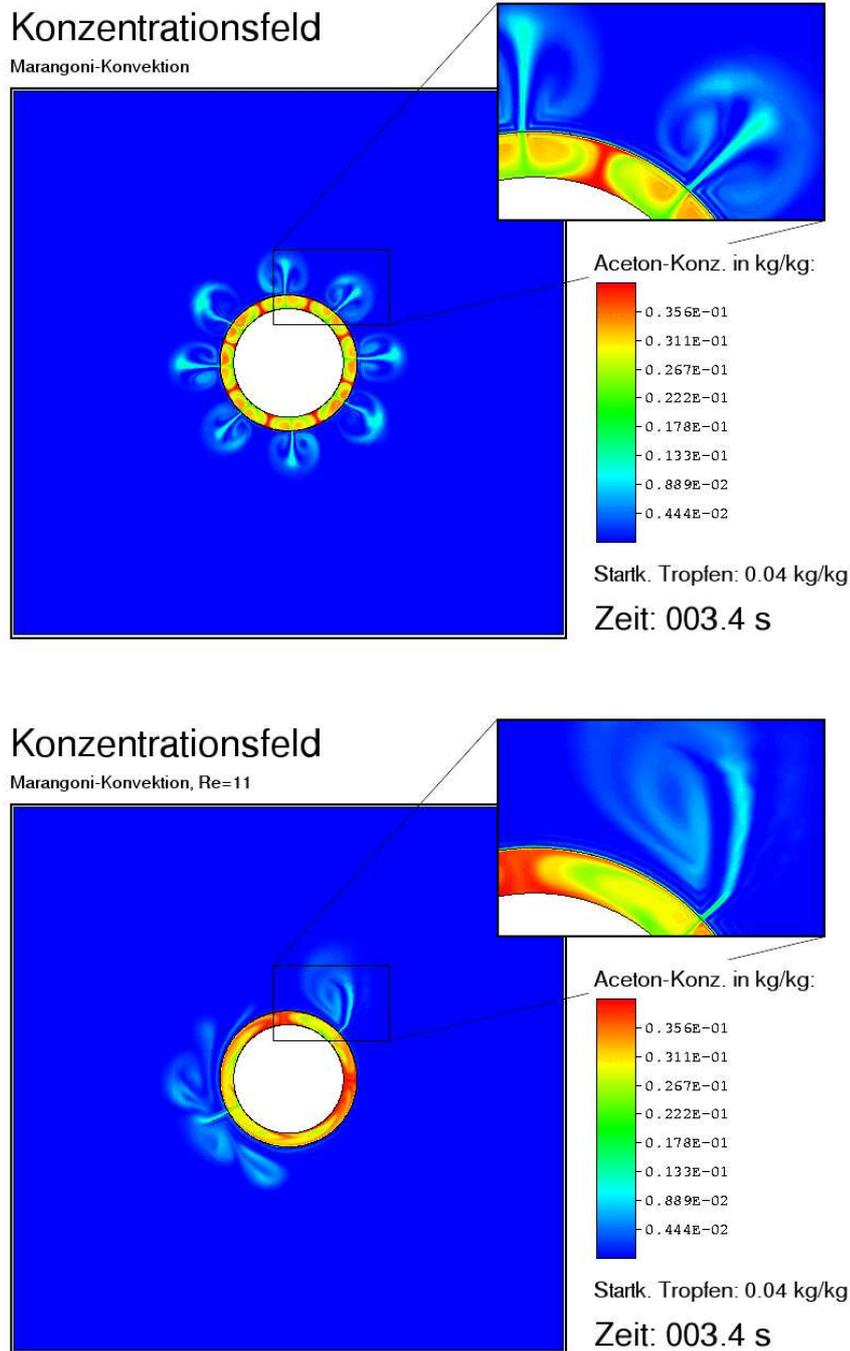


Abb. 5.10: Konzentrationsfeld für eine Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,04$ kg/kg. Oben: unter Berücksichtigung von Diffusion und Marangonikonvektion, $Re = 0$, Unten: unter Berücksichtigung von Diffusion, Marangonikonvektion und erzwungener Konvektion, $Re = 11$

Marangonikonvektion wird durch eine Verbesserung des Stofftransportes durch die erzwungene Konvektion kompensiert. Die beiden Mechanismen erzwungene Konvektion und Marangonikonvektion bewirken jeder für sich eine Verbesserung. Die Überlagerung beider Mechanismen führt jedoch zu Stoffdurchgangskoeffizienten, die unter denen der einzelnen Mechanismen liegen.

5.5.4 Stofftransport aufgrund von Diffusion, Marangonikonvektion, freier und erzwungener Konvektion

Die gemeinsame Berücksichtigung von Diffusion, Marangonikonvektion, freier und erzwungener Konvektion stellt die Modellierung dar, die, im Rahmen der Möglichkeiten, die realen Vorgänge am besten wiedergibt. Der Verlauf des Stoffdurchgangskoeffizienten in Abb. 5.11 gleicht dem in Abb. 5.9 (Diffusion, Marangonikonvektion und erzwungene Konvektion). Allerdings fehlt hier der temporäre starke Anstieg des Stoffdurchgangskoeffizienten, der sich aufgrund des Rollzellenregimes ergibt. Dies ist ein direkte Folge der Berücksichtigung der freien Konvektion. Die durch Dichtedifferenzen ausgelöste Bewegung führt zu einer Zerstörung der Rollzellenstruktur bzw. unterbindet deren Ausbildung. Abb. 5.12 zeigt genau den Zeitpunkt zu dem die sich anfänglich ausbildenden Rollzellen wieder zerstört werden. Statt dessen treten Marangonikonvektionen in Form von Eruptionen auf.

5.6 Einfluss der Konzentration

In den voran gegangenen Abschnitten wird der Einfluss der unterschiedlichen Transportmechanismen auf den Stofftransport bei einer konstanten Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,04$ kg/kg beschrieben. Im Folgenden wird insbesondere der Einfluss unterschiedlicher Tropfenstartkonzentrationen untersucht.

Mit steigender Tropfenstartkonzentration y_0 ergeben sich erwartungsgemäß höhere Stoffströme der Übergangskomponente aufgrund der größeren Triebkraft. Der Massenanteil an Aceton $z(t)$, der zu einem bestimmten Zeitpunkt t aus dem Tropfen ausgetreten ist (Gl. 5.23, S.96), bleibt jedoch bei reiner Diffusion nahezu unverändert. Dies verdeutlicht Abb. 5.13, die den zeitlichen Verlauf des übergegangenen Massenanteils Aceton $z(t)$ aufgrund von Diffusion und erzwungener Konvektion ($Re = 0, 73, 185$) zeigt. Die Linien für eine bestimmte Reynoldszahl und verschiedene Tropfenstartkonzentrationen

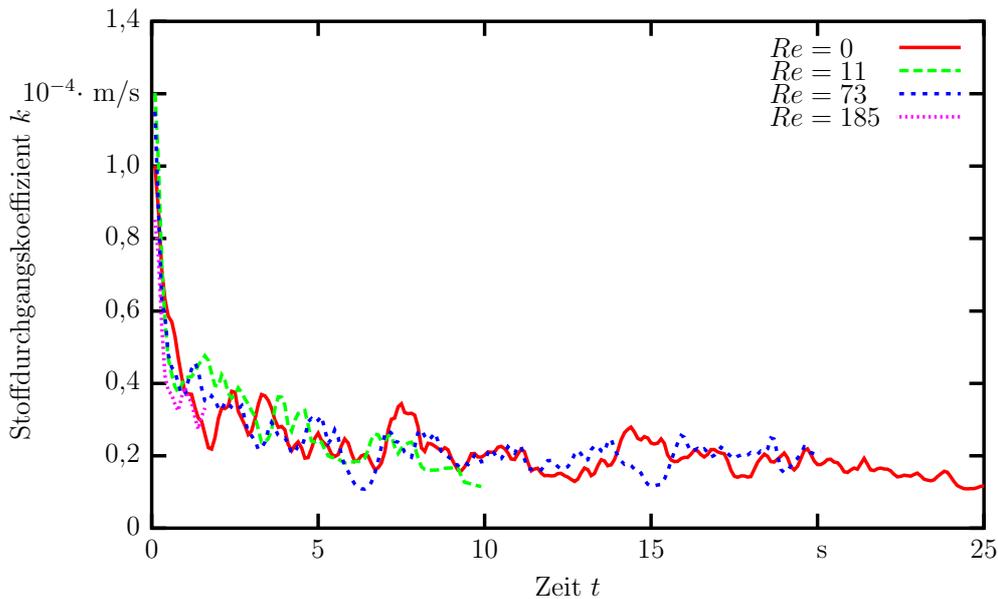


Abb. 5.11: Zeitlicher Verlauf des Stoffdurchgangskoeffizienten k für eine Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,04$ kg/kg unter Berücksichtigung von Diffusion, Marangoni-konvektion, freier und erzwungener Konvektion

liegen nahezu deckungsgleich aufeinander.

Wird bei den Rechnungen neben Diffusion und erzwungener Konvektion zusätzlich die freie Konvektion mit einbezogen, so ergeben sich abhängig vom Bereich der Reynoldszahl unterschiedliche Zusammenhänge. Bei höheren Reynoldszahlen ($Re = 73$ und $Re = 185$) ist der übergegangene Massenanteil Aceton $z(t)$ nahezu unabhängig von der Tropfenstartkonzentration y_0 (Abb. 5.14, oben). Bei den niedrigen Reynoldszahlen ($Re = 0$ und $Re = 11$) dagegen steigt bei einer Erhöhung der Tropfenstartkonzentration y_0 der übergegangene Massenanteil Aceton $z(t)$ tendenziell an (Abb. 5.14, unten). Der Grund hierfür liegt in den bei höheren Tropfenstartkonzentrationen y_0 stärkeren Auftriebskräften aufgrund der größeren Acetonanteile in der kontinuierlichen Phase. Daraus resultieren bei den niedrigen Reynoldszahlen größere Relativgeschwindigkeiten im Bereich der Phasengrenze, die zu einem verbesserten Stofftransport führen. Bei den größeren Reynoldszahlen wird der Einfluss der freien Konvektion durch die erzwungene Anströmung unterdrückt.

Wird bei den Rechnungen nur Stofftransport aufgrund von Diffusion und Marangoni-konvektion berücksichtigt (keine erzwungene Konvektion, $Re = 0$), so ergibt sich infolge der Ausbildung von Rollzellen zunächst eine Erhöhung des Stofftransportes mit stei-

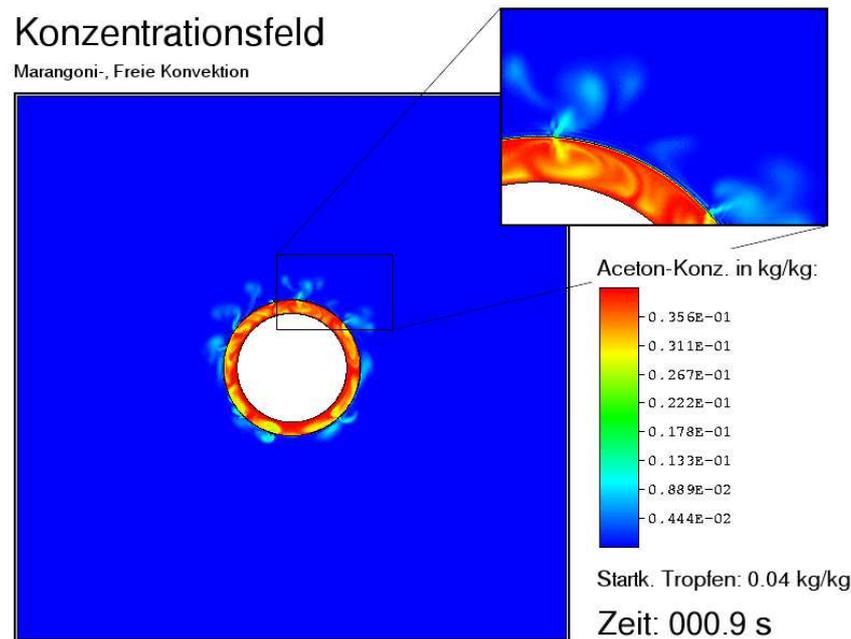


Abb. 5.12: Konzentrationsfeld für eine Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,04$ kg/kg und einer Reynoldszahl von $Re = 11$ unter Berücksichtigung von Diffusion, Marangoni-konvektion, freier und erzwungener Konvektion

gender Tropfenstartkonzentration (Abb. 5.15, oben). Die Intensität der Rollzellen steigt mit zunehmender Tropfenstartkonzentration y_0 zunächst an. Nach dem Maximum bei $y_0 = 0,04$ kg/kg sinkt der Stofftransport jedoch wieder deutlich ab, da zu hohe Konzentrationsdifferenzen zu einer Begünstigung der hier stabileren Eruptionen führen.

Die zusätzliche Berücksichtigung der freien Konvektion führt zur Unterdrückung der Rollzellen. Bei den Tropfenstartkonzentrationen bis $y_0 = 0,06$ kg/kg resultiert dadurch eine deutliche Reduzierung des Stofftransportes (Abb. 5.15, unten). Nur bei einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,08$ kg/kg kann ab $t = 5$ s eine deutliche Verbesserung des Stofftransportes aufgrund der starken freien Konvektion festgestellt werden.

In den folgenden Abbildungen wird der Stofftransport aufgrund von Diffusion, Marangonikonvektion und erzwungener Konvektion (Fall A) verglichen mit zusätzlich berücksichtigter freier Konvektion (Fall B). Die Rechnungen werden für verschiedene Reynoldszahlen ($Re = 11$, 73 und 185) durchgeführt (Abb. 5.16 und 5.17). Mit steigender Tropfenstartkonzentration y_0 ergibt sich in allen Fällen eine Erhöhung des übertragenen

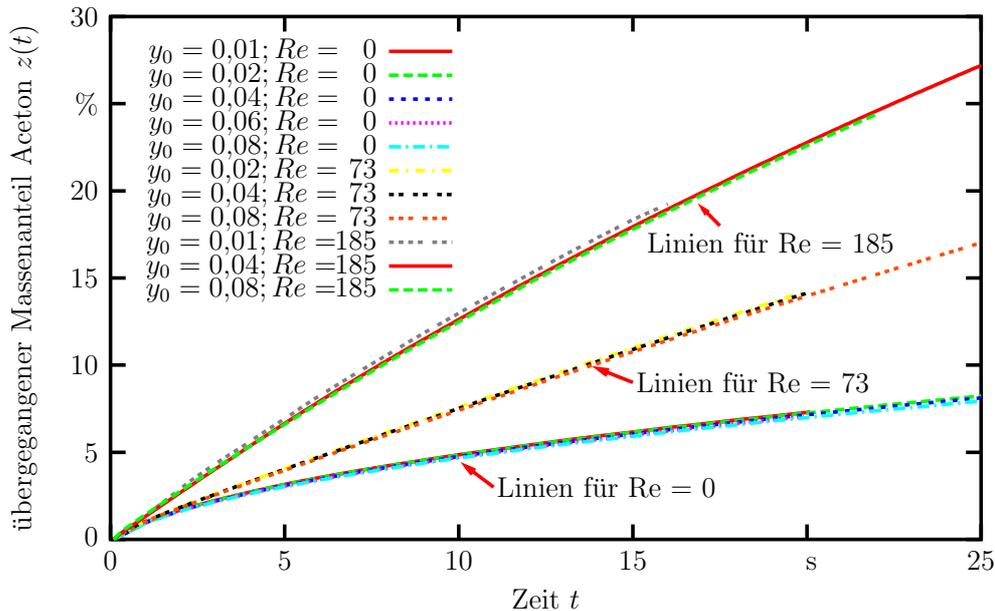


Abb. 5.13: Zeitlicher Verlauf des übergegangenen Massenanteils Aceton $z(t)$ unter Berücksichtigung von Diffusion und erzwungener Konvektion

Massenanteils $z(t)$. Beim Vergleich der Abbildungen ist deutlich zu erkennen, dass der Einfluss der freien Konvektion mit steigender Zwangskonvektion abnimmt. Der Grund hierfür liegt wieder in der zunehmenden Dominanz der erzwungenen über die freie Konvektion. Dagegen nimmt der Einfluss der freien Konvektion mit steigender Tropfenstartkonzentration deutlich zu, da die treibende Dichtedifferenz im Bereich der Phasengrenze ansteigt.

Die in diesem Abschnitt beschriebenen Zusammenhänge sind in Tab. C.2 im Anhang zusammengefasst.

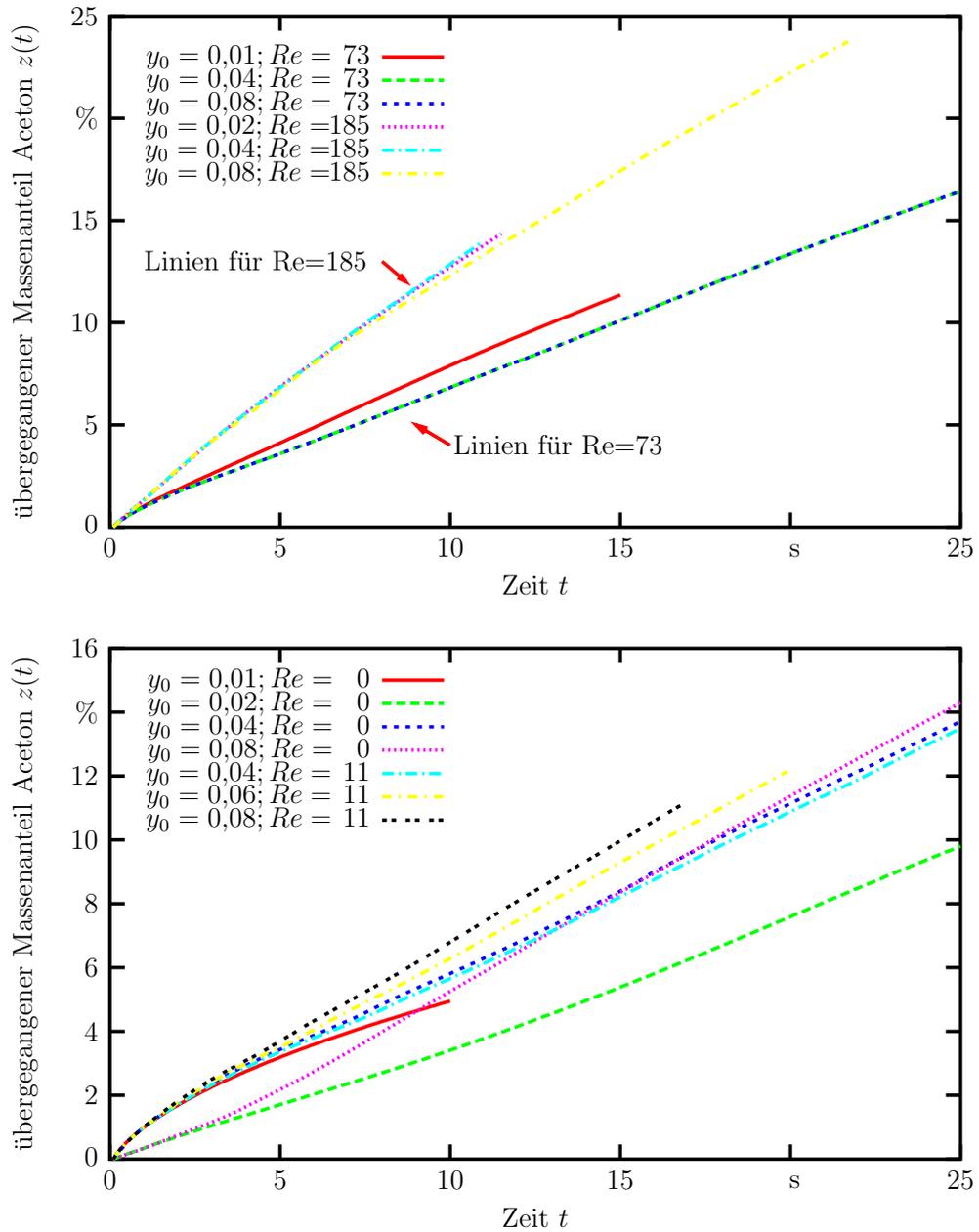


Abb. 5.14: Zeitlicher Verlauf des übergegangenen Massenanteils Aceton $z(t)$ unter Berücksichtigung von Diffusion, freier und erzwungener Konvektion

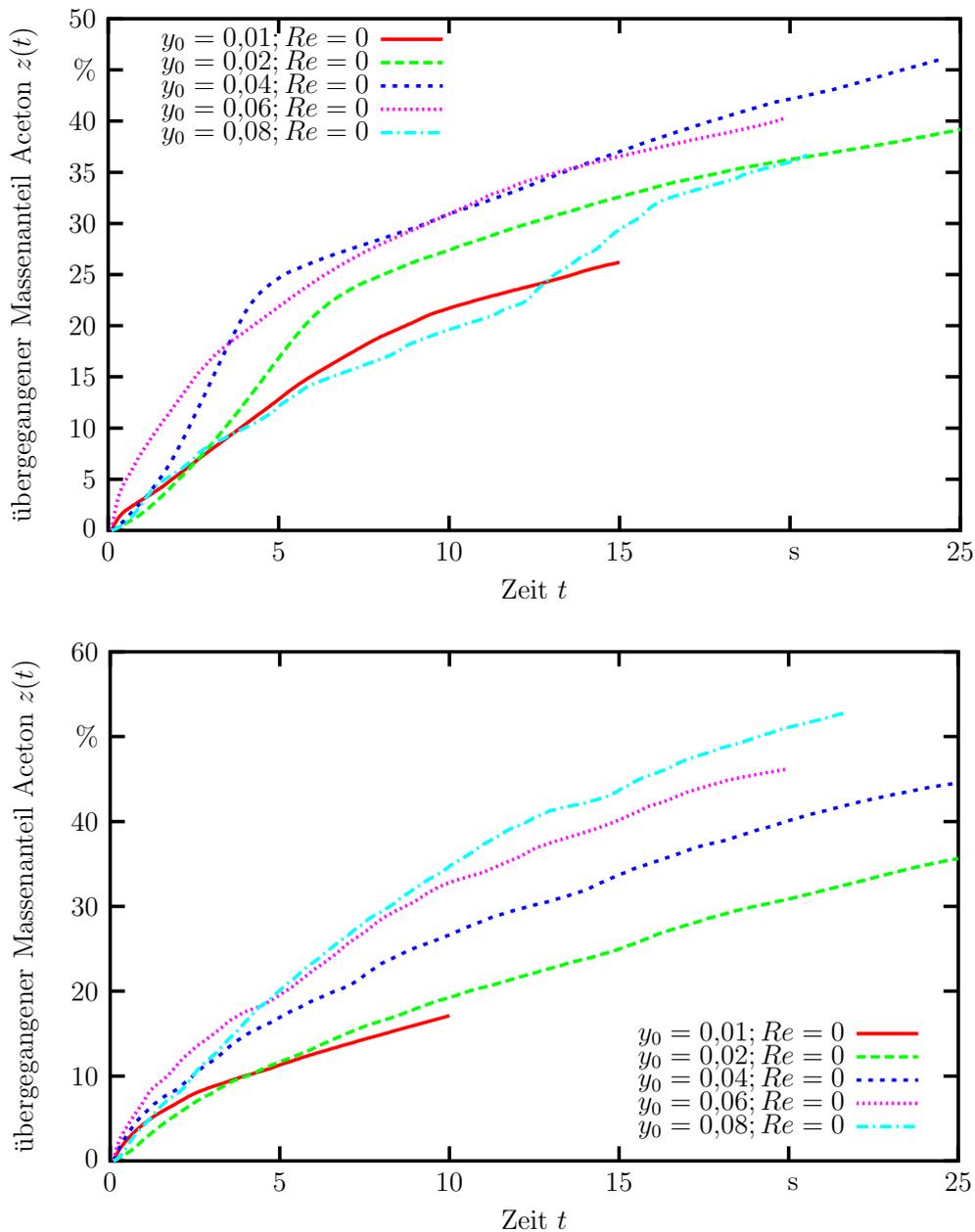


Abb. 5.15: Zeitlicher Verlauf des übergegangenen Massenanteils Aceton $z(t)$ bei einer Reynoldszahl von $Re = 0$. Oben: unter Berücksichtigung von Diffusion und Marangonikonvektion, Unten: unter Berücksichtigung von Diffusion, Marangonikonvektion und freier Konvektion

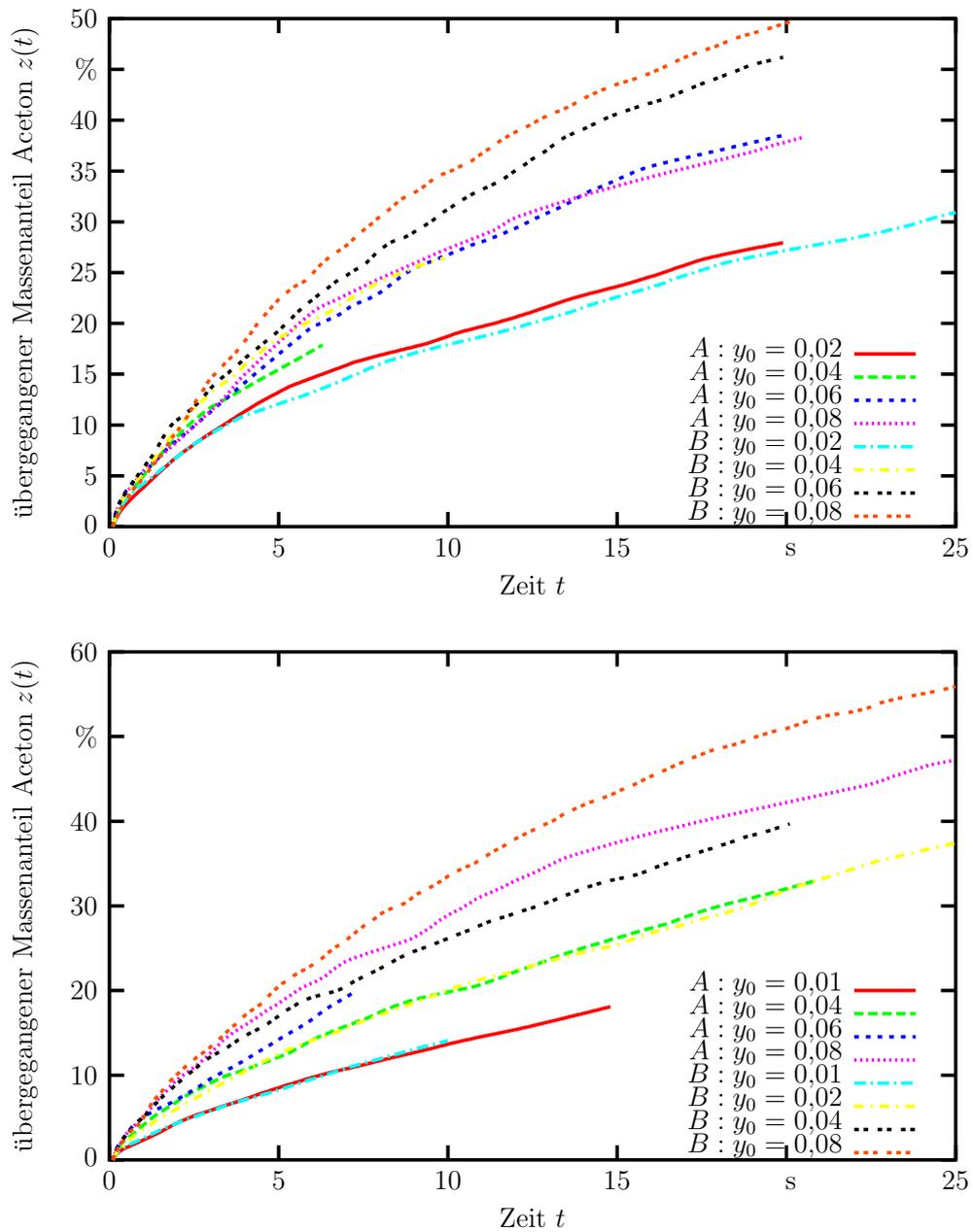


Abb. 5.16: Zeitlicher Verlauf des übergebenen Massenanteils Aceton $z(t)$ bei Berücksichtigung von Diffusion, Marangonikonvektion und erzwungener Konvektion (A) und zusätzlich freier Konvektion (B). Oben: $Re = 11$, Unten: $Re = 73$

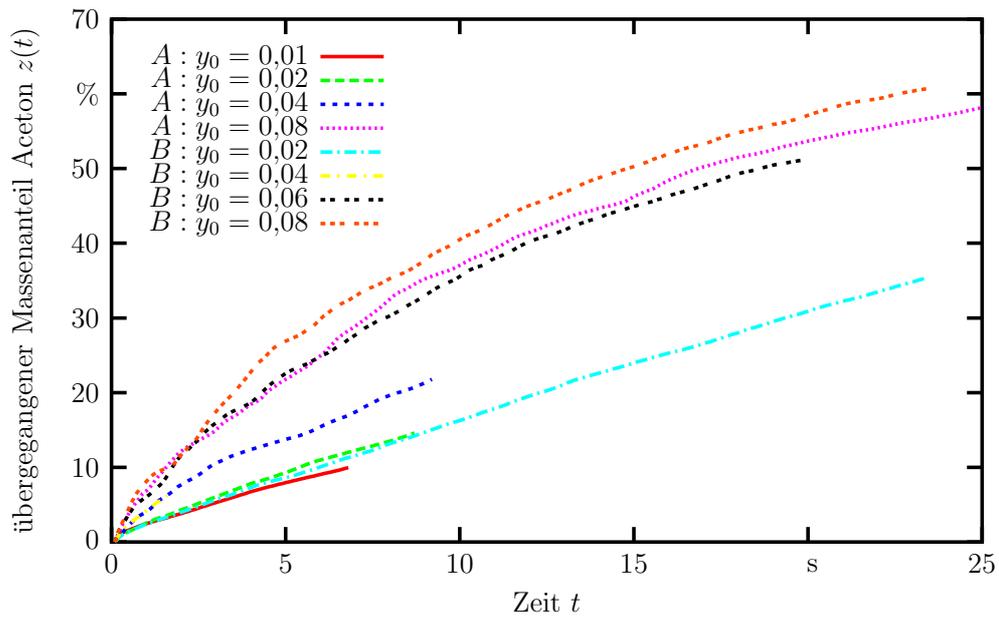


Abb. 5.17: Zeitlicher Verlauf des übergegangenen Massenanteils Aceton $z(t)$ bei einer Reynoldszahl von $Re = 185$ unter Berücksichtigung von Diffusion, Marangonikonvektion und erzwungener Konvektion (A) und zusätzlich freier Konvektion (B)

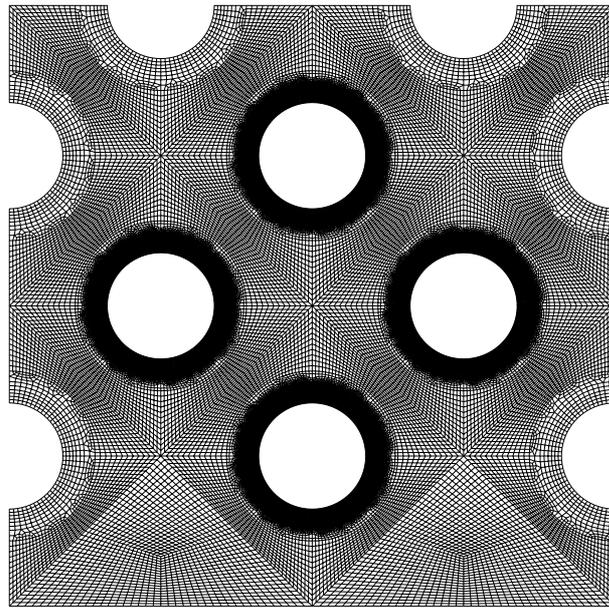


Abb. 5.18: Rechengitter für die Modellierung des Stoffübergangs am Tropfenschwarm

5.7 Stofftransport im Schwarm

Aufbauend auf die Untersuchungen des Stofftransportes am Einzeltropfen wird in diesem Abschnitt der Einfluss benachbarter Tropfen in die Rechnungen mit einbezogen. Zu diesem Zweck werden vier am Stofftransport beteiligte Tropfen und sechs (Halb-)Kugeln, die der Beeinflussung des Strömungsprofils dienen, im Rechengebiet angeordnet. Dadurch verändert sich sowohl das Strömungsprofil als auch das Konzentrationsprofil. Die Abb. 5.18 zeigt das hierfür erstellte Rechengitter. Es besteht aus insgesamt 71.009 Knoten. Die erhöhte Auflösung von 400 Knoten entlang jeder Phasengrenze wird beibehalten, da in diesem Bereich die größten Gradienten zu erwarten sind (vgl. Abschnitt 5.3 und Abb. 5.3).

In Analogie zu den experimentellen Untersuchungen wird nur der Stofftransport an einem Tropfen (oberer Tropfen in Abb. 5.18) ausgewertet und mit den Ergebnissen aus den vorangegangenen Abschnitten verglichen.

Auch diese Rechnungen werden mit den Daten des Stoffsystems Wasser/Aceton/Toluol gerechnet. Die zugrunde liegenden Stoffdaten und ihre Abhängigkeiten von der Zusammensetzung sind der Literatur entnommen [72] oder wurden mit den in Kap. 3 aufgeführten Messmethoden selbst ermittelt (siehe Anhang A.2).

Nachfolgend werden die einzelnen Rechnungen erläutert und die Ergebnisse diskutiert. Mit Hilfe der Rechnungen wird der Einfluss von Marangonikonvektionen, die an benachbarten Tropfen auftreten, auf den Stofftransport am untersuchten Tropfen ermittelt. Es werden stets die Transportmechanismen Diffusion, Marangonikonvektion sowie freie und erzwungene Konvektion berücksichtigt. Die drei benachbarten Tropfen besitzen stets eine Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,08$ kg/kg. Die Tropfenstartkonzentration am untersuchten Tropfen wird im Bereich $y_0 = 0,005 \dots 0,08$ kg/kg, die Reynoldszahl im Bereich $Re = 0 \dots 185$ variiert.

Aus den Simulationsergebnissen wird der mit Gl. 5.21 berechnete zeitliche Verlauf des Stoffdurchgangskoeffizienten k sowie der zu einem bestimmten Zeitpunkt übertragene Massenanteil Aceton $z(t)$ berechnet¹(Gl. 5.23, S. 96).

In Abb. 5.19 (oben) ist der übergegangene Massenanteil Aceton $z(t)$ für den Stofftransport am Einzeltropfen und im Schwarm bei einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,02$ kg/kg für drei verschiedene Reynoldszahlen ($Re = 0, 73, 185$) dargestellt. Unabhängig von der Strömungsgeschwindigkeit wird im Schwarm ein besserer Stofftransport für den untersuchten Tropfen berechnet. Während der Stofftransport am Einzeltropfen bei einer Steigerung der Strömungsgeschwindigkeit auf $Re = 185$ deutlich reduziert wird, ist dieser Einfluss beim Stofftransport im Schwarm deutlich weniger stark ausgeprägt.

In Abb. 5.19 (unten) ist der übergegangenen Massenanteil Aceton $z(t)$ für den Stofftransport am Einzeltropfen und im Schwarm bei einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,08$ kg/kg für zwei verschiedene Reynoldszahlen ($Re = 0, 185$) dargestellt. Unabhängig von der Strömungsgeschwindigkeit wird im Schwarm ein besserer Stofftransport für den untersuchten Tropfen berechnet. Bei dieser Tropfenstartkonzentration wird der Stofftransport sowohl am Einzeltropfen als auch im Schwarm durch eine Steigerung der Strömungsgeschwindigkeit deutlich erhöht.

In Abb. 5.20 ist der übergegangenen Massenanteil Aceton $z(t)$ für den Stofftransport am Einzeltropfen und im Schwarm bei einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,005$ kg/kg (oben) und $y_0 = 0,01$ kg/kg (unten) dargestellt. Es zeigt sich, dass bei sehr niedrigen Tropfenstartkonzentrationen y_0 nur noch bei einer Reynoldszahl von $Re = 185$ erhöhte Werte für den Stofftransport im Schwarm berechnet werden. Bei den anderen Reynoldszahlen bleibt der Stofftransport durch die benachbarten Tropfen un-

¹Die zeitlichen Verläufe des Stoffdurchgangskoeffizienten k sind im Anhang C aufgeführt.

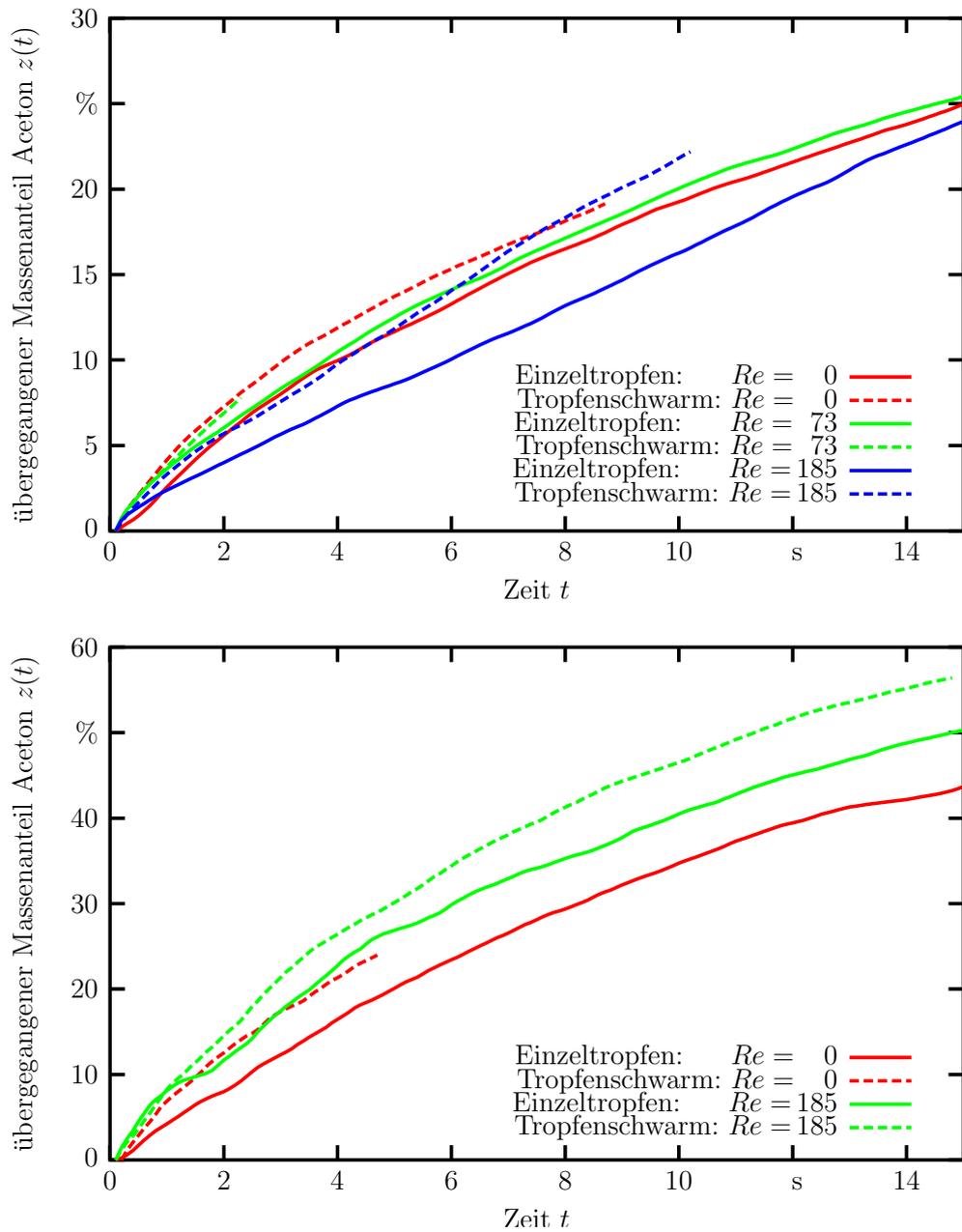


Abb. 5.19: Zeitlicher Verlauf des übergegangenen Massenanteils Aceton $z(t)$ bei verschiedenen Reynoldszahlen Re für den Stofftransport am Einzeltropfen und im Schwarm. Oben: $y_0 = 0,02$ kg/kg, Unten: $y_0 = 0,08$ kg/kg

verändert oder wird sogar reduziert. Diese Ergebnisse bestätigen insbesondere die in Abschnitt 4.6.2 dargestellten experimentellen Ergebnisse.

Aus den Simulationsergebnissen werden Filme erstellt, die den zeitlichen Verlauf der Acetonkonzentration im Rechengebiet darstellen, indem für jeden Zeitschritt ein Bild mit Linien konstanter Konzentration berechnet wird. Die Abb. 5.21 zeigt zwei entsprechende Einzelbilder. Deutlich zu sehen ist, wie sich von allen Tropfen ausgehend acetonreiche Phase in Form von Strahlen ablöst und von der Strömung der kontinuierlichen Phase mitgenommen wird. Die Geschwindigkeit, die Bewegung und die räumlich Ausdehnung dieser Strahlen sind abhängig von der Tropfenstartkonzentration, von der Strömungsgeschwindigkeit der kontinuierlichen Phase und von der Zeit.

Die Rechnungen ohne erzwungene Konvektion ($Re = 0$) zeigen, dass eine Zeitspanne von $t > 10$ s erforderlich ist, bis sich aufgrund freier Konvektion ein voll ausgebildetes, quasistationäres Strömungsprofil ausgebildet hat. In diesem Fall löst sich das Aceton in mehreren Strahlen, die sich sehr weit seitlich in die kontinuierliche Phase hinein bewegen, von den Tropfen ab. Durch die starke Verteilung quer zur Hauptströmungsrichtung beeinflussen auch die seitlich angeordneten Tropfen das Konzentrations- und Strömungsprofil am untersuchten oberen Tropfen. Insgesamt resultieren relativ niedrige Konzentrationen in der kontinuierlichen Phase und es vergeht vergleichsweise viel Zeit, bis benachbarte Tropfen beeinflusst werden. Das vom unteren Tropfen aufsteigende Aceton erreicht nach etwa $t = 2,2$ s den untersuchten Tropfen, das von den seitlichen Tropfen benötigt etwa $t = 1,2$ s (Abb. 5.21, oben).

Eine zusätzlich berücksichtigte erzwungene Konvektion ($Re = 73$) bewirkt, dass sich das Aceton nur noch jeweils in einem einzigen Strahl von den Tropfen ablöst, und dass dessen seitliche Ausdehnung deutlich reduziert ist und er deutlich schneller aufsteigt. Das vom unteren Tropfen aufsteigende Aceton erreicht nach einer Dauer von $t = 1,5$ s den untersuchten Tropfen. Infolge dieser Bündelung trifft das von den seitlich angeordneten Tropfen austretende Aceton nicht mehr auf den untersuchten Tropfen. Der Einfluss dieser Tropfen auf den Stofftransport ist dadurch stark reduziert (Abb. 5.21, unten).

Durch eine weitere Steigerung der Strömungsgeschwindigkeit ($Re = 185$) reduziert sich die Zeit, die das vom unteren Tropfen aufsteigende Aceton benötigt, um den untersuchten Tropfen zu erreichen, auf etwa $t = 0,8$ s (Abb. 5.22). Die aufsteigenden Strahlen werden durch die Strömung noch stärker gebündelt. Bei dieser Strömungsgeschwindigkeit wird ein periodisches Ablösen der auf der Abströmseite gebildeten Wirbel beobachtet (Kármánsche Wirbelstraße, Frequenz $f \approx 0,2 \text{ s}^{-1}$). Die acetonreiche kon-

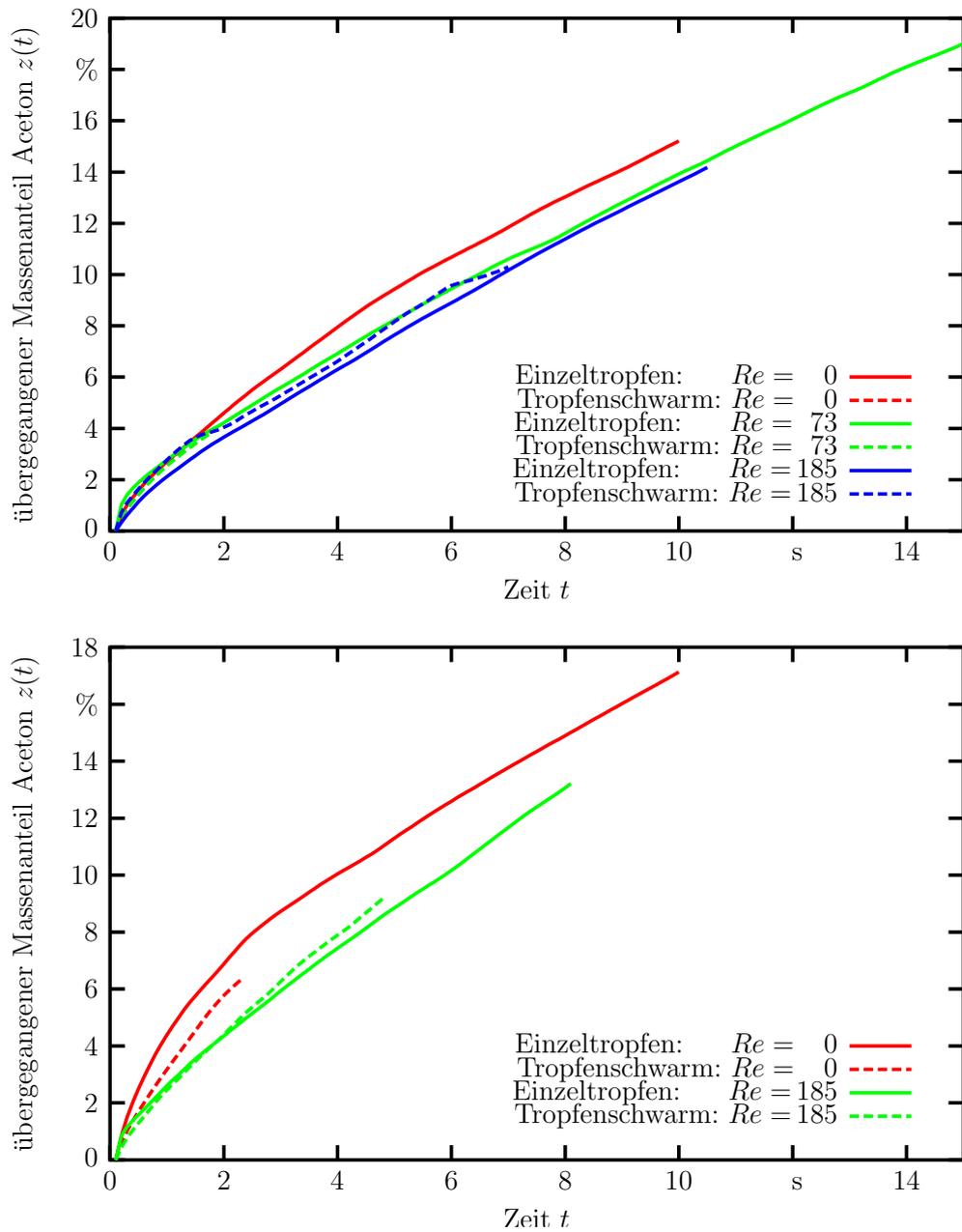


Abb. 5.20: Zeitlicher Verlauf des übergegangenen Massenanteils Aceton $z(t)$ bei verschiedenen Reynoldszahlen Re für den Stofftransport am Einzeltröpfchen und im Schwarm. Oben: $y_0 = 0,005$ kg/kg, Unten: $y_0 = 0,01$ kg/kg

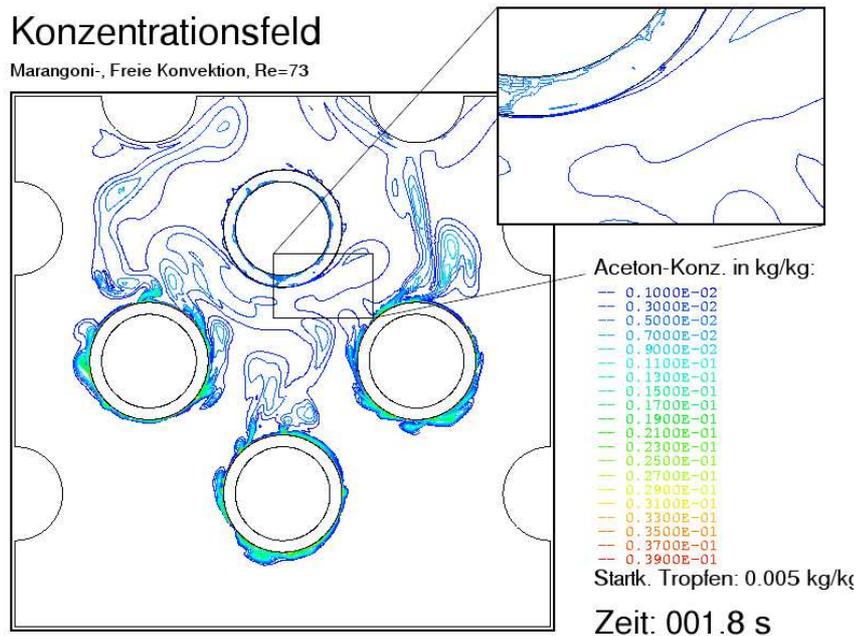
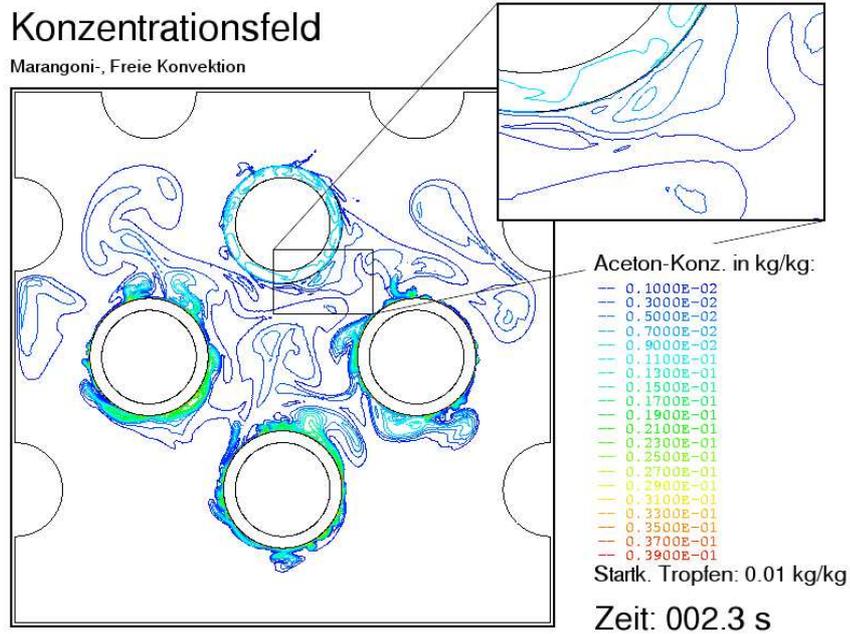


Abb. 5.21: Konzentrationsfeld beim Stofftransport im Schwarm. Oben: Tropfenstartkonzentration $y_0 = 0,01$ kg/kg ohne erzwungene Konvektion ($Re = 0$) Unten: Tropfenstartkonzentration $y_0 = 0,005$ kg/kg mit erzwungener Konvektion ($Re = 73$)

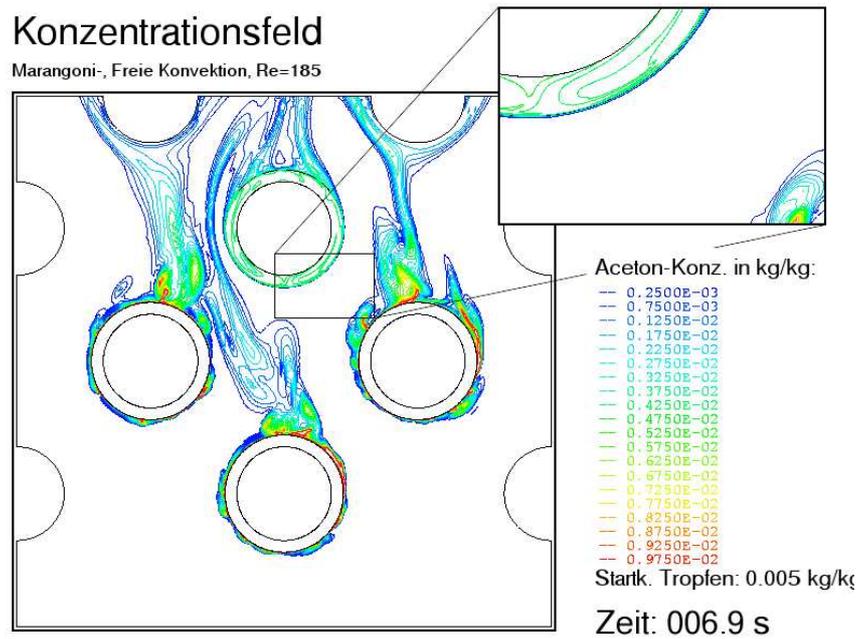
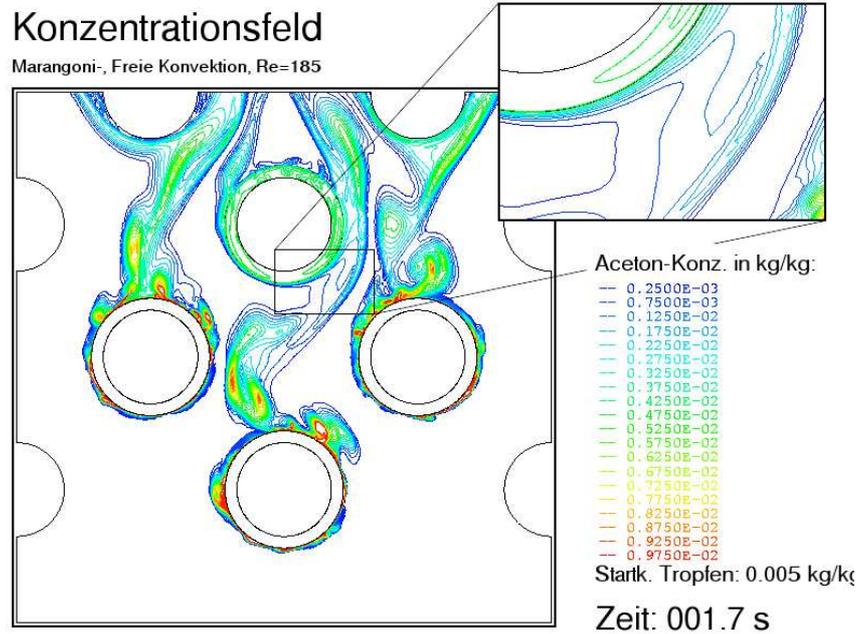


Abb. 5.22: Konzentrationsfeld beim Stofftransport im Schwarm bei einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,005$ kg/kg mit erzwungener Konvektion ($Re = 185$) zu verschiedenen Zeiten

tinuierliche Phase folgt diesen Bewegungen und umströmt den untersuchten Tropfen wechselweise auf der rechten und der linken Seite. Heftiges Umschlagen kann in diesem Fall dazu führen, dass die acetonreiche Phase nicht auf den darüberliegenden Tropfen trifft sondern an ihm vorbei strömt.

6 Zusammenfassung

Der maßgebliche Vorgang in Extraktionskolonnen ist der Stoffübergang zwischen der kontinuierlichen und der dispersen Phase, die in Form eines Tropfenschwarms vorliegt. Aufgrund der aus dem Stoffübergang resultierenden Konzentrationsdifferenzen können im Bereich der Phasengrenze Grenzflächenkonvektionen, so genannte Marangonikonvektionen, ausgelöst werden, die einen signifikanten Einfluss auf den Stoffübergang besitzen. Die auftretenden Marangonikonvektionen beeinflussen zum einen direkt den Stofftransport an den betreffenden Tropfen, reichen zum anderen aber auch teilweise bis weit in die kontinuierliche Phase hinein.

In dieser Arbeit wird erstmals eine Methode zur Erzeugung eines räumlich fixierten Tropfenschwarms eingesetzt und mit laseroptischen Messmethoden kombiniert. Die Erfassung von Konzentrations- und Strömungsprofilen sowie der übergegangenen Stoffmengen ermöglicht eine detaillierte und umfassende Beobachtung der während des Stoffübergangs ablaufenden Vorgänge. Durch die Variation wesentlicher Parameter (Konzentration, Strömungsgeschwindigkeit, Stoffübergangszeit) und die Untersuchung mehrerer simultan am Stofftransport beteiligter Tropfen können die Haupteinflussgrößen auf den Stofftransport bestimmt und Wechselwirkungen zwischen benachbarten Tropfen erfasst werden.

Parallel zu den experimentellen Arbeiten werden mit einem kommerziellen CFD-Programm (Computational Fluid Dynamics) numerische Untersuchungen des Stofftransportes an einer identischen Geometrie durchgeführt. Diese Arbeiten wurden mit Unterstützung durch das Institut für Sicherheitsforschung des Forschungszentrums Rosendorf e. V. durchgeführt. Die Ergebnisse erweitern das Verständnis der experimentell ermittelten Erkenntnisse, indem sie es erlauben, einzelne Stofftransportmechanismen isoliert oder ihr Zusammenwirken und ihre wechselseitige Beeinflussung zu betrachten.

Die zunächst am Einzeltropfen durchgeführten experimentellen Untersuchungen belegen das Vorhandensein einer so genannten kritischen Konzentrationsdifferenz als eine untere Schwelle für die Ausbildung von Marangonikonvektionen. Diese kritische Konzen-

trationsdifferenz ist jedoch kein fester Wert, sondern hängt zum einen von dem verwendeten Stoffsystem und zum anderen wesentlich vom Strömungszustand der beteiligten Phasen bzw. von deren Relativgeschwindigkeit ab. Bei einer Tropfenstartkonzentration von $y_0 = 0,04 \text{ kg/kg}$ führt eine Steigerung der Reynoldszahl von $Re = 18$ auf $Re = 24$ zur Ausbildung von Marangonikonvektionen und einer damit verbundenen Steigerung des mittleren Stoffdurchgangskoeffizienten k_m um den Faktor 2,7. Mit zunehmender treibender Konzentrationsdifferenz zwischen den Hauptphasen kann ein Anstieg der Intensität der Marangonikonvektionen beobachtet werden. Eine größere Intensität führt jedoch nicht in jedem Fall zu einer Steigerung des mittleren Stoffdurchgangskoeffizienten k_m .

Im zweiten Teil der experimentellen Arbeiten wird der Stofftransport an einem einzelnen Tropfen mit Stofftransport innerhalb eines Tropfenschwarms untersucht. Die Ergebnisse entsprechen denen am Einzeltropfen, es werden jedoch stets etwas höhere Werte für den mittleren Stoffdurchgangskoeffizienten k_m ermittelt.

Sowohl beim Einzeltropfen als auch beim einzelnen Tropfen mit Stofftransport im Schwarm wird der Einfluss der Strömungsgeschwindigkeit auf den Stoffdurchgang untersucht. Im betrachteten Bereich ($Re = 0 \dots 217$) wird stets ein Minimum des mittleren Stoffdurchgangskoeffizienten k_m für niedrige Reynoldszahlen ($Re = 10 \dots 20$) festgestellt. Bei höheren Strömungsgeschwindigkeiten sowie bei den Untersuchungen ohne erzwungene Konvektion ($Re = 0$) liegen die ermittelten Werte stets höher. Aufgrund von Wechselwirkungen insbesondere zwischen erzwungener Konvektion und Marangonikonvektion führt eine Steigerung der Strömungsgeschwindigkeit oberhalb von $Re = 20$ zu keiner signifikanten Verbesserung des Stofftransportes. Durch die erzwungene Konvektion wird die Ausbildung der Marangonikonvektion an den Tropfen beeinträchtigt. Die daraus folgende Reduzierung des Stofftransportes wird durch die höhere Anströmung kompensiert. Erst bei deutlich höheren Strömungsgeschwindigkeiten ist eine weitere Zunahme des Stofftransportes zu erwarten.

Für die experimentellen Untersuchungen am Tropfenschwarm wird der Stofftransport eines Tropfens unter dem Einfluss benachbarter Tropfen mit starken Marangonikonvektionen beobachtet. Zu diesem Zweck werden zwei Versuchsreihen durchgeführt. In der ersten werden alle Tropfen simultan erzeugt, in der zweiten Versuchsreihe erfolgte die Tropfenbildung zeitlich versetzt. Die simultane Tropfenbildung führt stets zu einer Verbesserung des Stofftransportes am untersuchten Tropfen. Die Ursache hierfür sind die Marangonikonvektionen an den benachbarten Tropfen, die bis weit in die Kernphasen hinein wirken und am untersuchten Tropfen zu einem verstärkten An- und Ab-

transport der Übergangskomponente führen. Die verminderte Konzentrationsdifferenz zwischen den Hauptphasen ist in diesem Fall von untergeordneter Bedeutung. Werden die Tropfen hingegen zeitlich versetzt gebildet, so wird eine deutliche Reduzierung des Stofftransportes und teilweise sogar eine Richtungsumkehr festgestellt. Die von den benachbarten Tropfen in die kontinuierliche Phase übergehende Komponente löst sich in Abhängigkeit der Strömungsgeschwindigkeit als räumlich weit ausgedehnte Wolke oder in Form dünner Strahlen ab. Diese Strahlen besitzen eine teilweise oberhalb der Gleichgewichtskonzentration liegende Zusammensetzung und bewirken dadurch eine Umkehr des Stofftransportes.

Die numerischen Untersuchungen bestätigen im Wesentlichen die experimentellen Befunde und erlauben eine detaillierte Analyse der Wechselwirkungen zwischen den verschiedenen Transportmechanismen. Zu diesem Zweck werden Rechnungen mit und ohne freier, erzwungener und Marangonikonvektion durchgeführt.

Marangonikonvektionen führen stets zu einer Verbesserung des Stofftransportes. Die höchsten Stofftransportraten werden bei der Ausbildung von Rollzellen ermittelt. Diese Form von Marangonikonvektionen wird bei niedrigen bis mittleren Konzentrationen beobachtet. Höhere Konzentrationen führen zu Eruptionen. Die Ausbildung von Rollzellen wird jedoch bereits durch geringe erzwungene Konvektion oder durch freie Konvektion unterdrückt.

Tritt wegen einer niedrigen treibenden Konzentrationsdifferenz keine Marangonikonvektionen auf, so verbessert eine Anströmung den Stoffübergang. Treten dagegen Marangonikonvektion auf, so führt eine erhöhte Anströmung nicht in jedem Fall zu einer Verbesserung des Stofftransportes. Auch hier zeigt sich, dass die erzwungene Konvektion die Ausbildung bzw. die Auswirkung der Marangonikonvektion reduzieren kann und der Stofftransport über einen großen Bereich unabhängig von der Reynoldszahl ist.

Der direkte Einfluss der freien Konvektion ist gegenüber der erzwungenen und der Marangonikonvektion zu vernachlässigen. Die aus dem Stofftransport resultierenden Dichtedifferenzen führen nur zu geringen Strömungsgeschwindigkeiten. Zudem ist die Zeit für die Ausbildung einer dichtegetriebenen Strömung zu lang, um in bewegten dispersen Zweiphasensystemen einen signifikanten Einfluss auszuüben.

Die numerischen Untersuchungen am Tropfenschwarm zeigen, dass der Stofftransport an einem Tropfen durch benachbarte Marangonikonvektionen meist verbessert wird. Für sehr niedrige Tropfenstartkonzentrationen führt die Reduzierung der treibenden Konzentrationsdifferenz jedoch zu einer Verschlechterung.

A Stoffdaten

A.1 Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser

Die experimentellen Untersuchungen (Kap. 4) wurden mit dem Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser durchgeführt. Die für die Auswertung erforderlichen Stoffdaten und ihre Abhängigkeiten von der Zusammensetzung wurden mit den in Kap. 3 aufgeführten Messmethoden selbst ermittelt. Die Tab. A.1 zeigt die Gleichgewichtsdaten, die Abb. A.1 bis Abb. A.3 zeigen die Konzentrationsabhängigkeit der Brechzahl, der Dichte und der Viskosität.

Tab. A.1: Gaschromatografisch ermittelte Gleichgewichtsdaten für das Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser bei $T = 20\text{ °C}$ in Massenanteilen

Wasser	Wasser-Phase		Wasser	3-Chlortoluol-Phase	
	Aceton	3-Chlortoluol		Aceton	3-Chlortoluol
1,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	1,0000
0,9488	0,0512	0,0000	0,0000	0,0273	0,9727
0,9001	0,0999	0,0000	0,0000	0,0579	0,9422
0,8551	0,1449	0,0000	0,0018	0,0913	0,9070
0,8124	0,1876	0,0000	0,0028	0,1277	0,8695
0,7693	0,2307	0,0000	0,0041	0,1677	0,8283
0,7368	0,2632	0,0000	0,0057	0,2069	0,7874
0,7003	0,2997	0,0000	0,0081	0,2517	0,7402
0,6619	0,3381	0,0000	0,0104	0,2980	0,6915
0,6299	0,3701	0,0000	0,0140	0,3461	0,6399
0,5912	0,4029	0,0059	0,0192	0,3904	0,5904
0,5580	0,4335	0,0085	0,0257	0,4348	0,5395
0,5208	0,4663	0,0129	0,0353	0,4848	0,4799
0,4810	0,4998	0,0193	0,0477	0,5327	0,4196
0,4303	0,5410	0,0288	0,0645	0,5732	0,3623
0,3728	0,5799	0,0473	0,0911	0,6152	0,2937
0,3289	0,6047	0,0663	0,1213	0,6273	0,2514

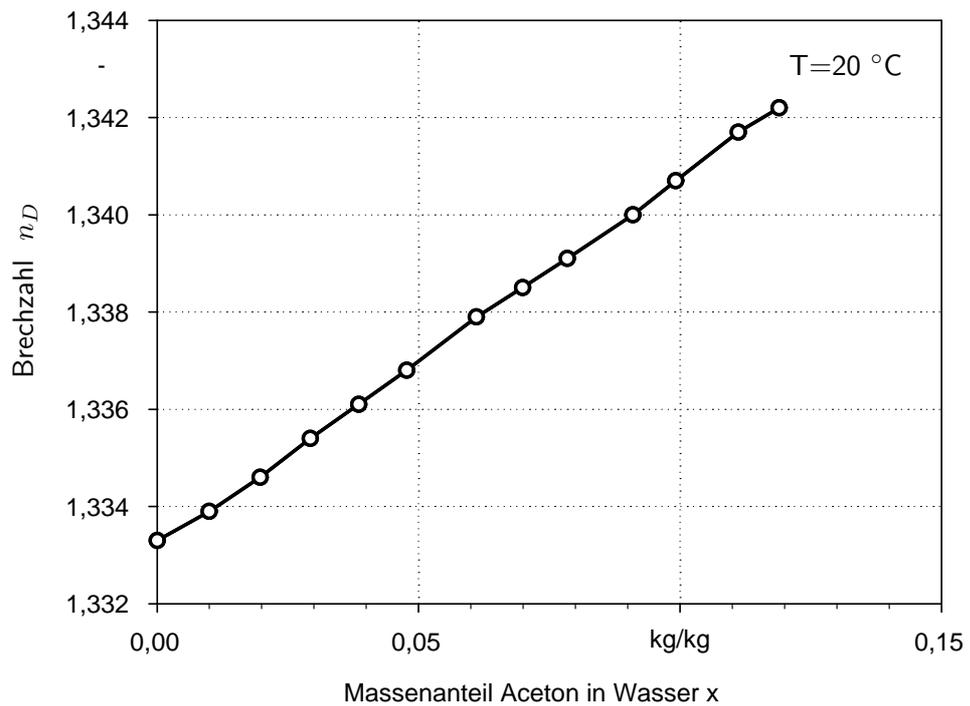
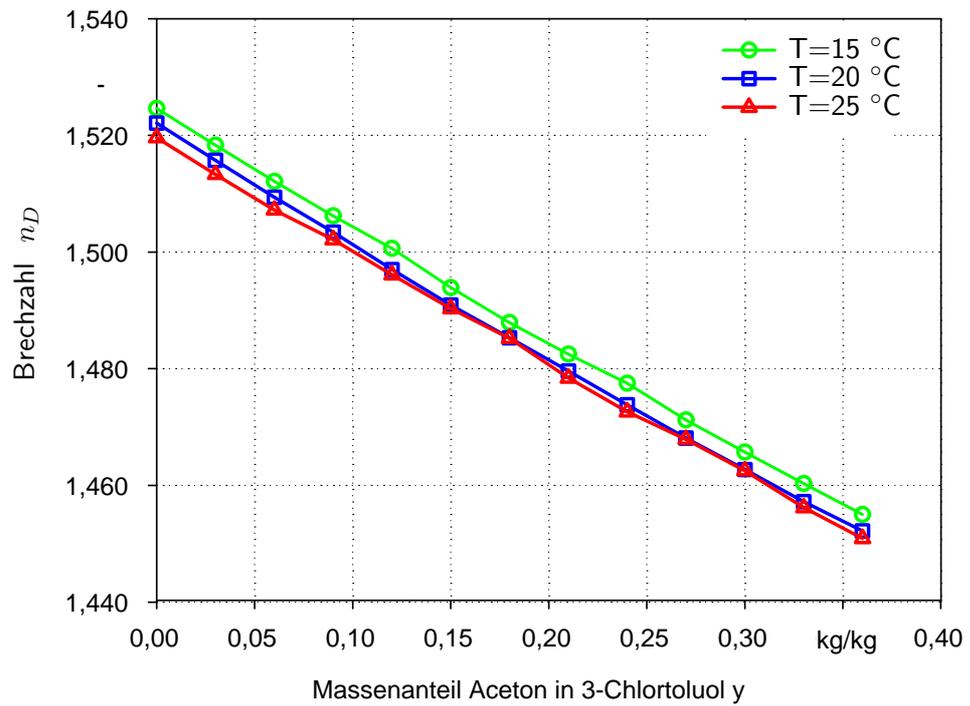


Abb. A.1: Abhängigkeit der Brechzahl von der Zusammensetzung. Oben: Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton, Unten: Stoffsystem Wasser/Aceton

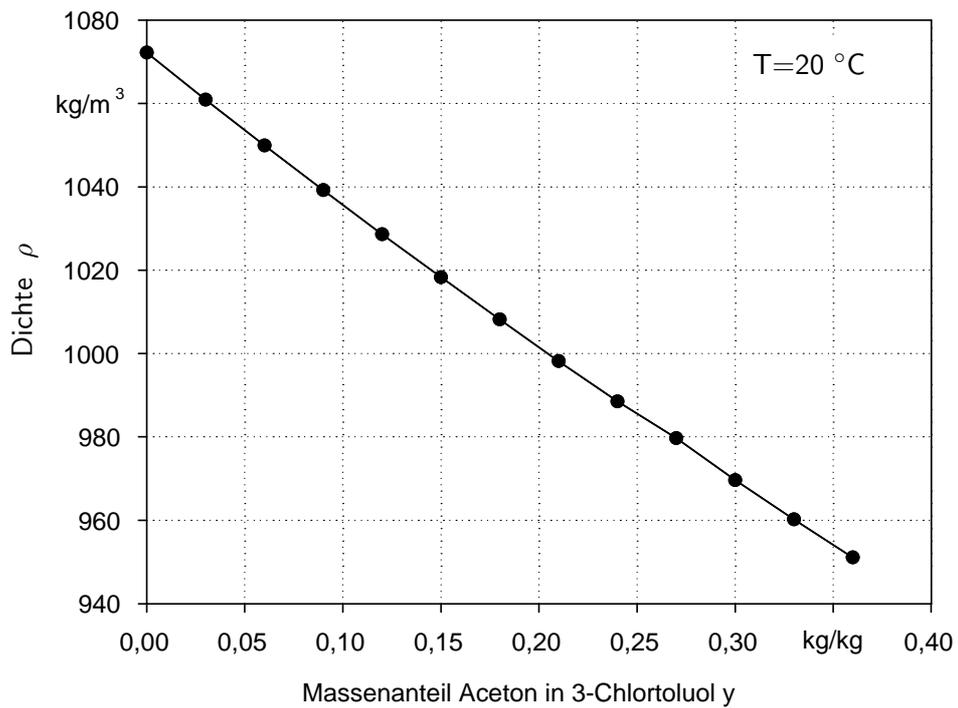
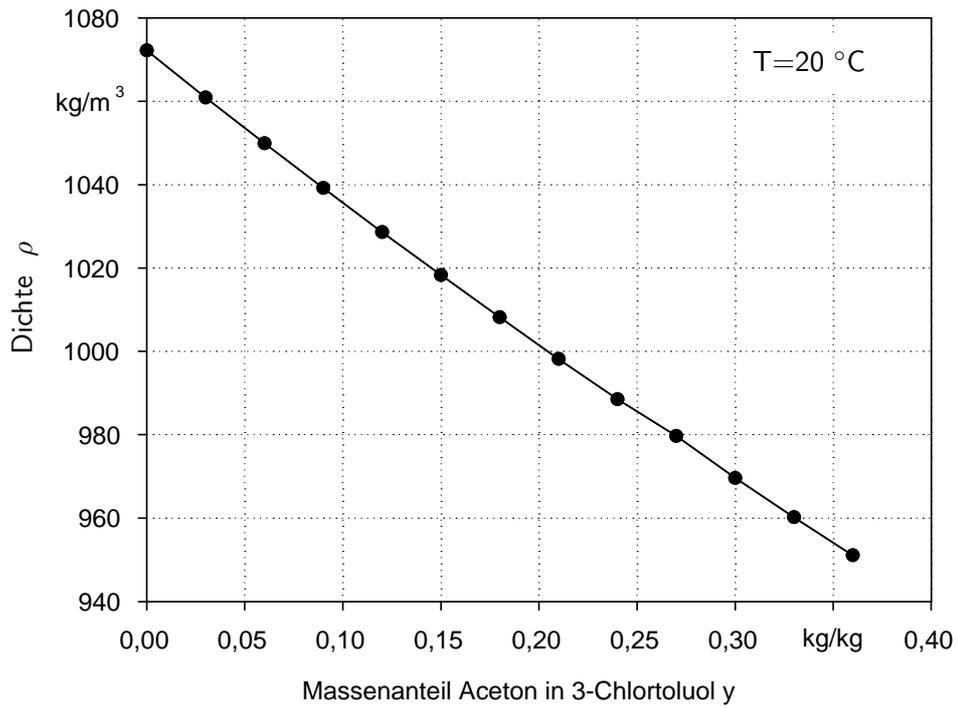


Abb. A.2: Abhängigkeit der Dichte von der Zusammensetzung. Oben: Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton, Unten: Stoffsystem Wasser/Aceton

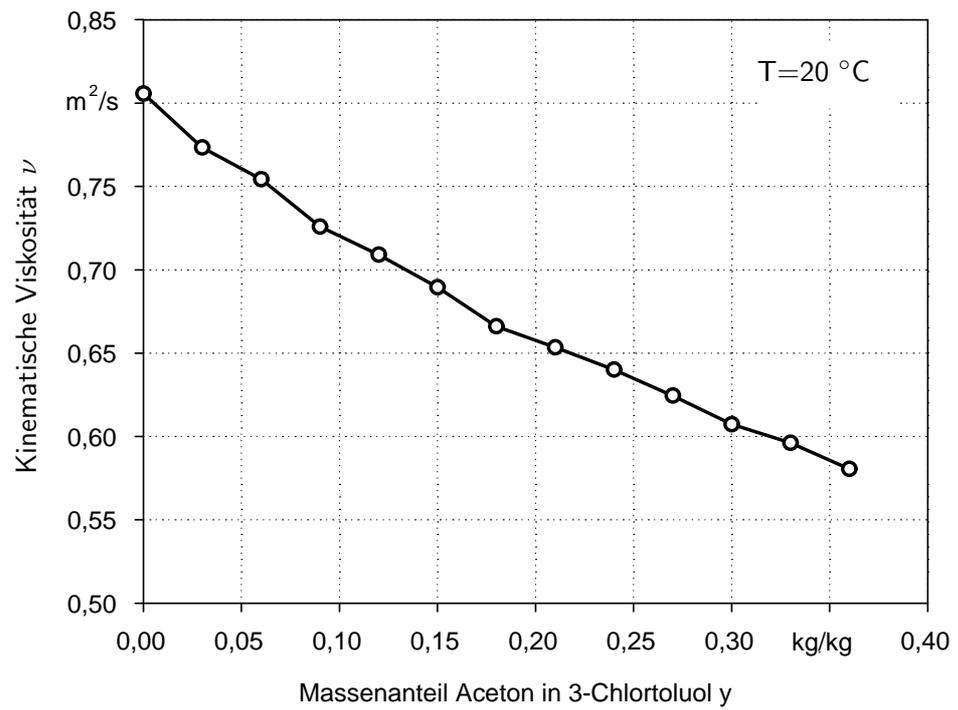


Abb. A.3: Abhängigkeit der Viskosität von der Zusammensetzung im Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton

A.2 Stoffsystem Toluol/Aceton/Wasser

Die numerischen Simulationen (Kap. 5) wurden auf Basis der Stoffdaten des Stoffsystems Wasser/Aceton/Toluol durchgeführt. Die den Rechnungen zugrunde liegenden Daten und ihre Abhängigkeiten von der Zusammensetzung bei $T = 20 \text{ °C}$ wurden [72] entnommen oder mit den in Kap. 3 aufgeführten Messmethoden selbst ermittelt. Die Abb. A.4 bis Abb. A.6 zeigen das Phasengleichgewicht, die dynamische Viskosität, die Dichte und die Grenzflächenspannung. Die einzelnen Größen wurden bei den Rechnungen durch die folgenden Gleichungen wiedergegeben.

- Dynamische Viskosität η :

$$\eta_W = 0,001012 \text{ kg}/(\text{m} \cdot \text{s}) + 0,00233 \text{ kg}/(\text{m} \cdot \text{s}) \cdot x \quad (\text{A.1})$$

$$\eta_T = 0,00058596 \text{ kg}/(\text{m} \cdot \text{s}) - 0,00039234 \text{ kg}/(\text{m} \cdot \text{s}) \cdot y \quad (\text{A.2})$$

- Dichte ρ (Die schwache Abhängigkeit läßt die Boussinesq-Approximation (Abschnitt 5.1.5) zu.):

$$\rho_W = 998,2 \text{ kg}/\text{m}^3 - 160,86 \text{ kg}/\text{m}^3 \cdot x \quad (\text{A.3})$$

$$\rho_T = 866,0 \text{ kg}/\text{m}^3 - 52,362 \text{ kg}/\text{m}^3 \cdot y \quad (\text{A.4})$$

- Grenzflächenspannung σ :

Die für die Simulation erforderlichen Werte werden von dem Programm FIDAP durch Interpolation der in Abb. A.6 dargestellten Messwerte gewonnen.

- Diffusionskoeffizient $D_{i,j}$ (Für die Rechnungen wurde jeweils ein konstanter Wert für den Diffusionskoeffizienten gewählt.):

$$D_{Ac,W} = 1,14 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s} \quad (\text{A.5})$$

$$D_{Ac,T} = 2,70 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s} \quad (\text{A.6})$$

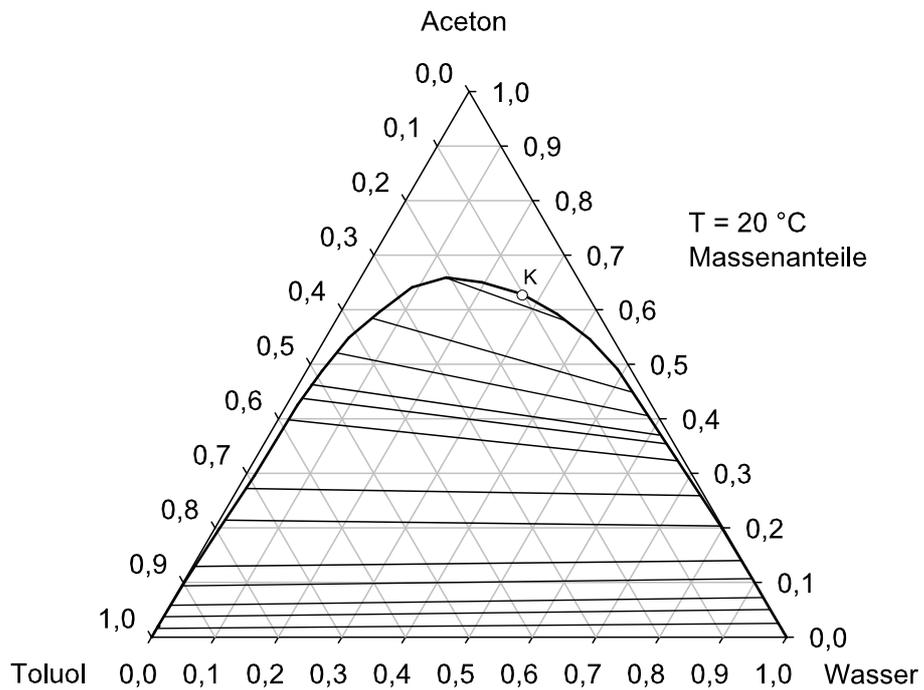


Abb. A.4: Phasengleichgewicht im Stoffsystem Wasser/Aceton/Toluol, [72]

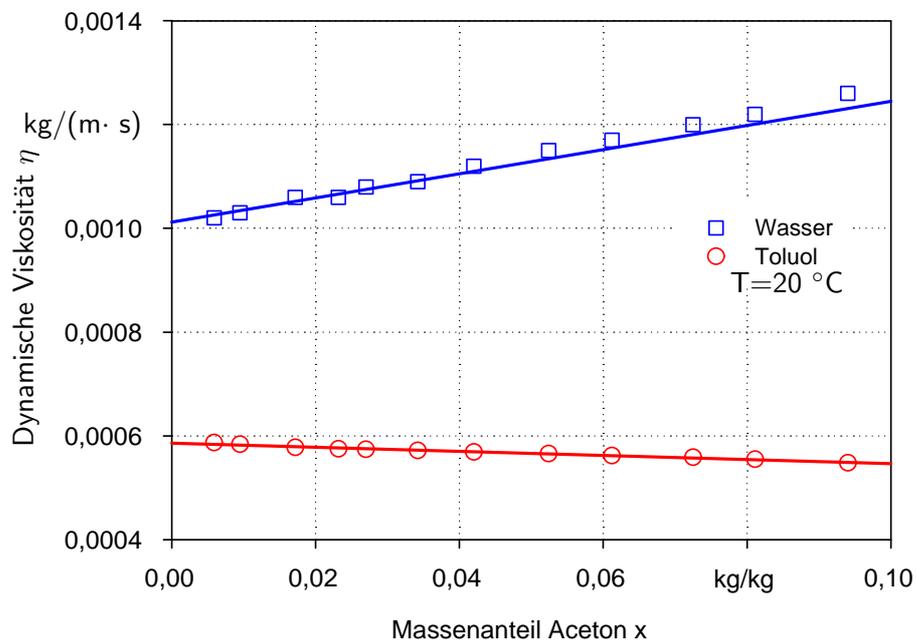


Abb. A.5: Konzentrationsabhängigkeit der dynamischen Viskosität η im Stoffsystem Wasser/Aceton/Toluol [72]

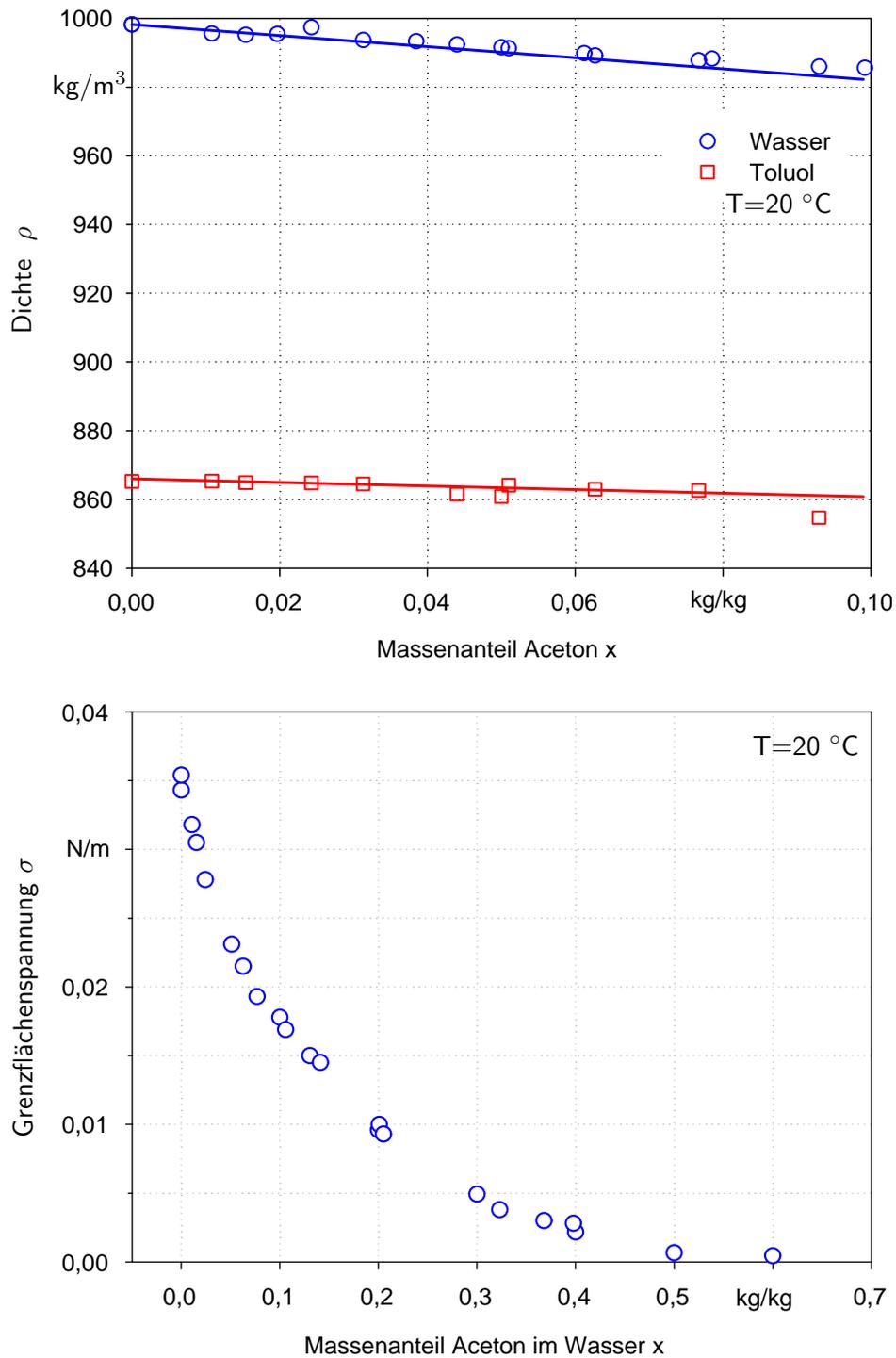


Abb. A.6: Konzentrationsabhängigkeit der Dichte (oben) und der Grenzflächenspannung (unten) im Stoffsystem Wasser/Aceton/Toluol, [72] u. eigene Messungen

B Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen

B.1 Bestimmung der Massenstromdichte

Die zeitlich gemittelte Massenstromdichte \dot{m}_m für ein Zeitintervall τ berechnet sich aus der Änderung der im Tropfen enthaltenen Acetonmasse $\Delta M_{Ac,Tr}$, der für den Stofftransport zur Verfügung stehenden Austauschfläche A_{Tr} und der Dauer des betrachteten Zeitintervalls τ .

$$\dot{m}_m(\tau) = \frac{\Delta M_{Ac,Tr}}{A_{Tr} \cdot \tau} = \frac{M_{Ac,Tr,0} - M_{Ac,Tr,\omega}}{A_{Tr} \cdot \tau} \quad (\text{B.1})$$

Die Masse Aceton im Tropfen zu Beginn des Stofftransportes $M_{Ac,Tr,0}$ läßt sich aus den bekannten Größen Tropfenvolumen $V_{Tr,0}$ (experimentelle Vorgabe), Dichte $\rho_{Tr,0}$ und Massenanteil y_0 (experimentelle Vorgabe oder Analyse) berechnen.

$$M_{Ac,Tr,0} = V_{Tr,0} \cdot \rho_{Tr,0} \cdot y_0 \quad (\text{B.2})$$

Die Masse Aceton im Tropfen am Ende eines Versuchs $M_{Ac,Tr,\omega}$ läßt sich nicht direkt bestimmen, sondern muss berechnet werden.

$$M_{Ac,Tr,\omega} = V_{Tr,\omega} \cdot \rho_{Tr,\omega} \cdot y_\omega \quad (\text{B.3})$$

Der Massenanteil y_ω wird durch Analyse bestimmt und daraus die Dichte $\rho_{Tr,\omega}$ bestimmt (siehe Anhang A.1). Als unbekannte Größe verbleibt das Tropfenvolumen am Ende eines Versuchs $V_{Tr,\omega}$.

Die zu Beginn des Stofftransportes im Tropfen enthaltene Masse Aceton $M_{Ac,Tr,0}$ ist gleich der Summe aus der am Ende eines Versuchs im Tropfen enthaltenen Masse an Aceton $M_{Ac,Tr,\omega}$ und der in die kontinuierliche Phase übergegangenen Masse Aceton ΔM_{Ac} .

$$M_{Ac,Tr,0} = M_{Ac,Tr,\omega} + \Delta M_{Ac} \quad (\text{B.4})$$

Die Massen können durch die entsprechenden Volumina und Dichten ausgedrückt werden.

$$V_{Tr,0} \cdot \rho_{Tr,0} \cdot y_0 = V_{Tr,\omega} \cdot \rho_{Tr,\omega} \cdot y_\omega + \Delta V_{Ac} \cdot \rho_{Ac} \quad (B.5)$$

Unter Vernachlässigung von Volumeneffekten gilt, dass das Tropfenvolumen zu Beginn des Stofftransportes $V_{Tr,0}$ gleich der Summe aus dem Tropfenvolumen am Ende eines Versuchs $V_{Tr,\omega}$ und dem übergegangenen Volumen Aceton ΔV_{Ac} ist.

$$V_{Tr,0} = V_{Tr,\omega} + \Delta V_{Ac} \quad (B.6)$$

Durch Kombination der Gleichungen B.4, B.5 und B.6 läßt sich das Tropfenvolumen am Ende eines Versuchs $V_{Tr,\omega}$ aus bekannten Größen berechnen.

$$V_{Tr,\omega} = V_{Tr,0} \cdot \frac{\rho_{Tr,0} \cdot y_0 - \rho_{Ac}}{\rho_{Tr,\omega} \cdot y_\omega - \rho_{Ac}} \quad (B.7)$$

Durch Einsetzen in Gl. B.3 kann mit Gl. B.1 schließlich die Massenstromdichte berechnen werden.

B.2 Stofftransport am Einzeltropfen

Tab. B.1: Messergebnisse aus den experimentellen Untersuchungen am Einzeltropfen. Tropfenstartkonzentration y_0 , Reynoldszahl Re , Brechzahl der dispersen Phase n_D nach der Zeit t .

y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D
kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-
0,02	12	30	1,51837	0,04	18	30	1,51490	0,06	24	30	1,51353
0,02	12	60	1,51870	0,04	18	60	1,51560	0,06	24	60	1,51423
0,02	12	120	1,51920	0,04	18	120	1,51630	0,06	24	120	1,51810
0,02	12	240	1,51990	0,04	18	240	1,51850	0,06	24	240	1,51720
0,02	18	30	1,51840	0,04	24	30	1,51600	0,08	12	30	1,51210
0,02	18	60	1,51880	0,04	24	60	1,51620	0,08	12	60	1,51327
0,02	18	120	1,51933	0,04	24	120	1,51693	0,08	12	120	1,51520
...											

Tab. B.1: Fortsetzung

y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D
kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-
0,02	18	240	1,51960	0,04	24	240	1,51890	0,08	12	240	1,51780
0,02	24	30	1,51840	0,06	12	30	1,51445	0,08	18	30	1,51450
0,02	24	60	1,51813	0,06	12	60	1,51490	0,08	18	60	1,51567
0,02	24	120	1,51883	0,06	12	120	1,51613	0,08	18	120	1,51760
0,02	24	240	1,52000	0,06	12	240	1,51767	0,08	18	240	1,51890
0,04	12	30	1,51470	0,06	18	30	1,51403	0,08	24	30	1,51240
0,04	12	60	1,51557	0,06	18	60	1,51530	0,08	24	60	1,51360
0,04	12	120	1,51633	0,06	18	120	1,51700	0,08	24	120	1,51533
0,04	12	240	1,51890	0,06	18	240	1,51837	0,08	24	240	1,51927

B.3 Einzelner Tropfen mit Stofftransport im Schwarm

Tab. B.2: Messergebnisse aus den experimentellen Untersuchungen am Tropfen Nr. 3 im Schwarm. Tropfenstartkonzentration y_0 , Reynoldszahl Re , Brechzahl der dispersen Phase n_D nach der Zeit t .

y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D
kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-
0,02	11	15	1,51840	0,04	21	15	1,51530	0,06	62	15	1,51320
0,02	11	30	1,51860	0,04	21	30	1,51540	0,06	62	30	1,51360
0,02	11	60	1,51880	0,04	21	60	1,51610	0,06	62	60	1,51510
0,02	11	120	1,51950	0,04	21	120	1,51730	0,06	62	120	1,51600
0,02	11	240	1,52000	0,04	21	240	1,51850	0,06	62	240	1,51790
0,02	16	15	1,51850	0,04	34	15	1,51550	0,06	82	15	1,51240
0,02	16	30	1,51860	0,04	34	30	1,51550	0,06	82	30	1,51400
0,02	16	60	1,51890	0,04	33	60	1,51610	0,06	82	60	1,51550
0,02	16	120	1,51960	0,04	34	120	1,51720	0,06	82	120	1,51700
0,02	16	240	1,52020	0,04	33	240	1,51890	0,06	82	240	1,51840
0,02	21	15	1,51860	0,04	62	15	1,51630	0,08	11	15	1,51190

...

Tab. B.2: Fortsetzung

y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D
kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-
0,02	21	30	1,51870	0,04	62	30	1,51610	0,08	11	30	1,51300
0,02	22	60	1,51910	0,04	62	60	1,51670	0,08	11	60	1,51390
0,02	24	120	1,51950	0,04	62	120	1,51750	0,08	11	120	1,51540
0,02	21	240	1,52020	0,04	62	240	1,51900	0,08	11	240	1,51820
0,02	34	15	1,51870	0,04	82	15	1,51610	0,08	16	15	1,51050
0,02	33	30	1,51870	0,04	82	30	1,51620	0,08	16	30	1,51140
0,02	33	60	1,51900	0,04	82	60	1,51670	0,08	16	60	1,51320
0,02	34	120	1,51960	0,04	82	120	1,51750	0,08	16	120	1,51530
0,02	33	240	1,52030	0,04	82	240	1,51900	0,08	16	240	1,51850
0,02	62	15	1,51880	0,06	11	15	1,51260	0,08	21	15	1,51070
0,02	62	30	1,51890	0,06	11	30	1,51310	0,08	21	30	1,51200
0,02	62	60	1,51910	0,06	11	60	1,51430	0,08	22	60	1,51330
0,02	62	120	1,51960	0,06	11	120	1,51550	0,08	21	120	1,51610
0,02	62	240	1,52030	0,06	11	240	1,51750	0,08	21	240	1,51800
0,02	82	15	1,51870	0,06	16	15	1,51220	0,08	33	15	1,51050
0,02	82	30	1,51870	0,06	16	30	1,51223	0,08	33	30	1,51150
0,02	82	60	1,51920	0,06	16	60	1,51350	0,08	33	60	1,51290
0,02	82	120	1,51950	0,06	16	120	1,51570	0,08	33	120	1,51440
0,02	82	240	1,52040	0,06	16	240	1,51740	0,08	33	240	1,51740
0,04	11	15	1,51520	0,06	21	15	1,51300	0,08	62	15	1,51060
0,04	11	30	1,51540	0,06	22	30	1,51370	0,08	62	30	1,51080
0,04	11	60	1,51610	0,06	21	60	1,51430	0,08	62	60	1,51250
0,04	11	120	1,51730	0,06	21	120	1,51580	0,08	62	120	1,51440
0,04	11	240	1,51900	0,06	21	240	1,51760	0,08	62	240	1,51670
0,04	16	15	1,51520	0,06	34	15	1,51210	0,08	82	15	1,51000
0,04	16	30	1,51570	0,06	33	30	1,51280	0,08	82	30	1,51020
0,04	16	60	1,51630	0,06	33	60	1,51340	0,08	82	60	1,51190
0,04	16	120	1,51730	0,06	34	120	1,51520	0,08	82	120	1,51420
0,04	16	240	1,51840	0,06	33	240	1,51750	0,08	82	240	1,51690

Tab. B.3: Messergebnisse aus den experimentellen Untersuchungen am Tropfen Nr. 12 im Schwarm. Tropfenstartkonzentration y_0 , Reynoldszahl Re , Brechzahl der dispersen Phase n_D nach der Zeit t .

y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D
kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-
0,02	11	15	1,51840	0,04	21	15	1,51540	0,06	62	15	1,51400
0,02	11	30	1,51860	0,04	21	30	1,51540	0,06	62	30	1,51350
0,02	11	60	1,51880	0,04	21	60	1,51610	0,06	62	60	1,51430
0,02	11	120	1,51960	0,04	21	120	1,51720	0,06	62	120	1,51540
0,02	11	240	1,52010	0,04	21	240	1,51870	0,06	62	240	1,51830
0,02	16	15	1,51830	0,04	33	15	1,51570	0,06	82	15	1,51550
0,02	16	30	1,51860	0,04	33	30	1,51550	0,06	82	30	1,51440
0,02	16	60	1,51880	0,04	33	60	1,51610	0,06	82	60	1,51670
0,02	16	120	1,51950	0,04	33	120	1,51750	0,06	82	120	1,51820
0,02	16	240	1,52010	0,04	33	240	1,51910	0,06	82	240	1,51920
0,02	21	15	1,51840	0,04	62	15	1,51530	0,08	11	15	1,51160
0,02	21	30	1,51870	0,04	62	30	1,51550	0,08	11	30	1,51200
0,02	21	60	1,51890	0,04	62	60	1,51630	0,08	11	60	1,51320
0,02	21	120	1,51950	0,04	62	120	1,51720	0,08	11	120	1,51430
0,02	21	240	1,52020	0,04	62	240	1,51870	0,08	11	240	1,51670
0,02	33	15	1,51870	0,04	82	15	1,51600	0,08	16	15	1,51260
0,02	34	30	1,51870	0,04	82	30	1,51600	0,08	16	30	1,51230
0,02	33	60	1,51890	0,04	82	60	1,51630	0,08	16	60	1,51310
0,02	33	120	1,51940	0,04	82	120	1,51780	0,08	16	120	1,51660
0,02	33	240	1,52060	0,04	82	240	1,51920	0,08	16	240	1,51890
0,02	62	15	1,51870	0,06	11	15	1,51220	0,08	21	15	1,51300
0,02	62	30	1,51880	0,06	11	30	1,51220	0,08	21	30	1,51220
0,02	62	60	1,51890	0,06	11	60	1,51320	0,08	21	60	1,51310
0,02	62	120	1,51940	0,06	11	120	1,51510	0,08	21	120	1,51550
0,02	62	240	1,52030	0,06	11	240	1,51710	0,08	21	240	1,51800
0,02	82	15	1,51890	0,06	16	15	1,51220	0,08	33	15	1,51280

...

Tab. B.3: Fortsetzung

y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D
kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-
0,02	82	30	1,51890	0,06	16	30	1,51240	0,08	33	30	1,51190
0,02	82	60	1,51900	0,06	16	60	1,51360	0,08	33	60	1,51260
0,02	82	120	1,51950	0,06	16	120	1,51580	0,08	33	120	1,51710
0,02	82	240	1,52040	0,06	16	240	1,51760	0,08	33	240	1,51920
0,04	11	15	1,51550	0,06	22	15	1,51250	0,08	62	15	1,51520
0,04	11	30	1,51540	0,06	21	30	1,51250	0,08	62	30	1,51470
0,04	11	60	1,51600	0,06	21	60	1,51480	0,08	62	60	1,51630
0,04	11	120	1,51700	0,06	21	120	1,51590	0,08	62	120	1,51890
0,04	11	240	1,51860	0,06	21	240	1,51800	0,08	62	240	1,51970
0,04	16	15	1,51550	0,06	33	15	1,51260	0,08	82	15	1,51550
0,04	16	30	1,51530	0,06	33	30	1,51310	0,08	82	30	1,51610
0,04	16	60	1,51600	0,06	33	60	1,51500	0,08	82	60	1,51700
0,04	16	120	1,51700	0,06	33	120	1,51640	0,08	82	120	1,51800
0,04	16	240	1,51860	0,06	33	240	1,51820	0,08	82	240	1,51950

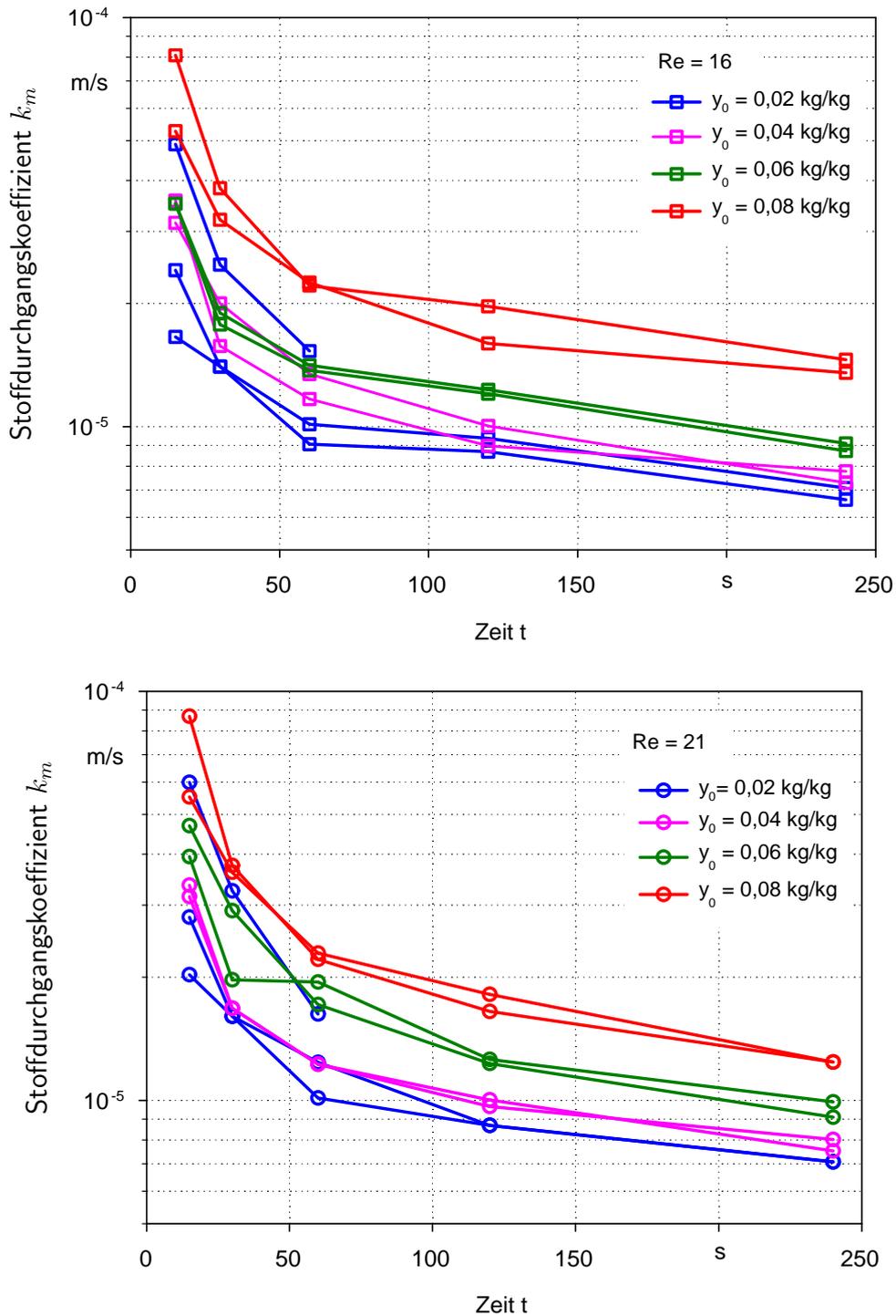


Abb. B.1: Zeitlicher Verlauf des Stoffdurchgangskoeffizienten k_m bei verschiedenen Tropfenstartkonzentrationen y_0 für Messungen an einzelnen Tropfen (Nr. 3, Nr. 12) mit Stofftransport innerhalb eines Schwarms im Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser. Oben: $Re = 16$, Unten: $Re = 21$

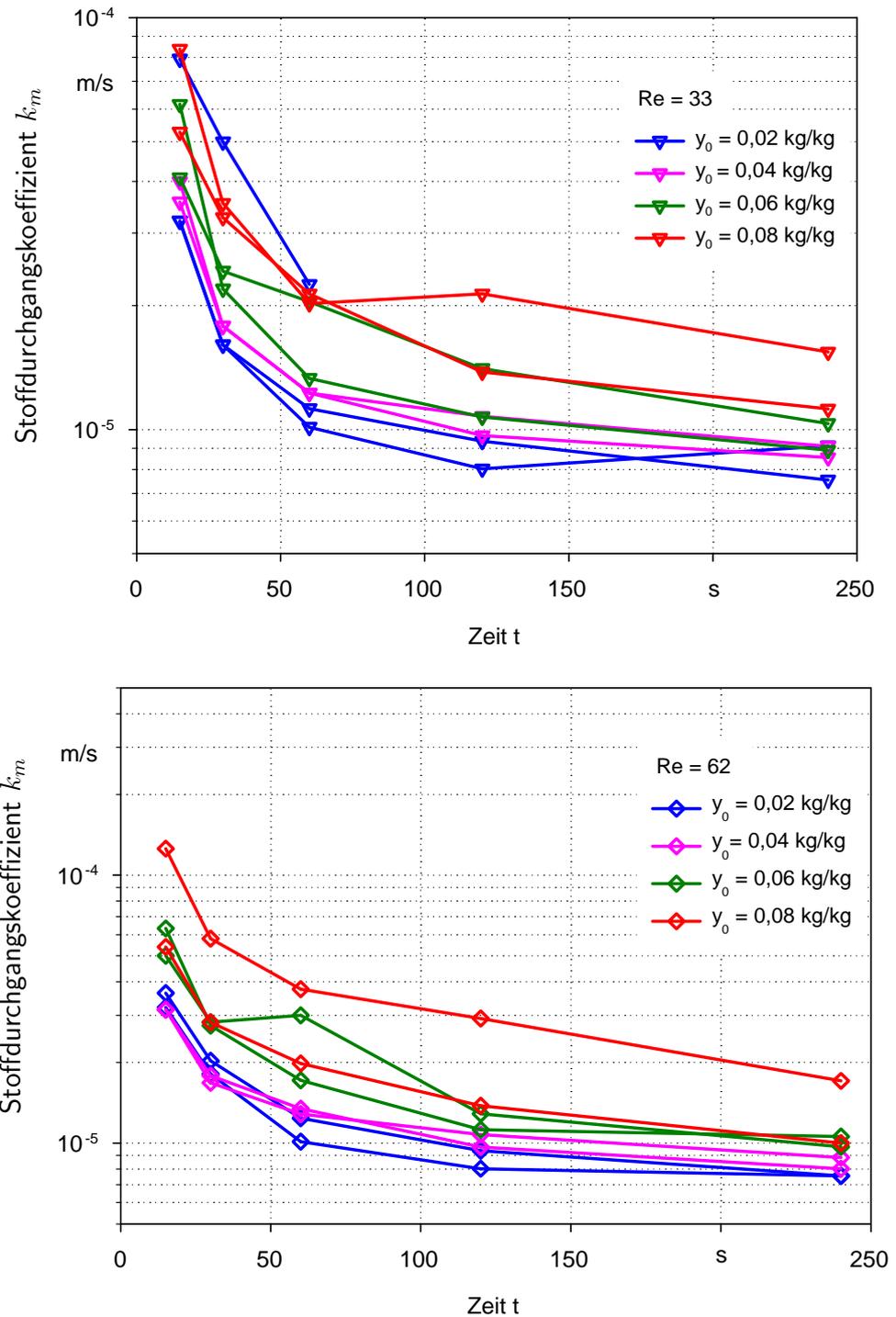


Abb. B.2: Zeitlicher Verlauf des Stoffdurchgangskoeffizienten k_m bei verschiedenen Tropfenstartkonzentrationen y_0 für Messungen an einzelnen Tropfen (Nr. 3, Nr. 12) mit Stofftransport innerhalb eines Schwarms im Stoffsystem 3-Chlortoluol/Aceton/Wasser. Oben: $Re = 33$, Unten: $Re = 62$

B.4 Stofftransport im Schwarm

Tab. B.4: Messergebnisse aus den experimentellen Untersuchungen am Tropfen Nr. 3. Referenzmessungen zu Daten in Tab. B.5 zur Ermittlung des Schwarmeinflusses bei simultaner Tropfenerzeugung. Tropfenstartkonzentration y_0 , Reynoldszahl Re , Brechzahl der dispersen Phase n_D nach der Zeit t .

y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D
kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-
0,01	0	15	1,52020	0,03	73	30	1,51700	0,06	73	30	1,51330
0,01	0	30	1,52030	0,03	185	15	1,51670	0,06	73	60	1,51520
0,01	0	15	1,52030	0,03	185	30	1,51700	0,06	185	15	1,51433
0,01	0	30	1,52040	0,04	0	15	1,51610	0,06	185	30	1,51590
0,01	0	60	1,52050	0,04	0	30	1,51613	0,06	185	15	1,51170
0,01	0	120	1,52063	0,04	0	60	1,51660	0,06	185	15	1,51163
0,01	0	240	1,52100	0,04	11	15	1,51560	0,06	185	30	1,51207
0,01	11	15	1,52020	0,04	11	30	1,51570	0,06	217	15	1,51363
0,01	11	30	1,52030	0,04	11	60	1,51610	0,06	217	30	1,51403
0,01	73	15	1,52030	0,04	73	15	1,51543	0,06	217	60	1,51490
0,01	73	30	1,52040	0,04	73	30	1,51560	0,07	0	15	1,51240
0,01	185	15	1,52040	0,04	73	60	1,51673	0,07	0	30	1,51360
0,01	185	30	1,52040	0,04	185	15	1,51530	0,07	11	30	1,51290
0,02	0	15	1,51890	0,04	185	30	1,51600	0,07	11	15	1,51140
0,02	0	30	1,51890	0,04	217	15	1,51573	0,07	73	15	1,51210
0,02	0	60	1,51917	0,04	217	30	1,51627	0,07	73	30	1,51330
0,02	11	15	1,51850	0,04	217	60	1,51710	0,07	185	30	1,51380
0,02	11	30	1,51870	0,05	0	15	1,51413	0,07	185	15	1,51200
0,02	11	60	1,51890	0,05	0	30	1,51433	0,08	0	15	1,51250
0,02	73	15	1,51850	0,05	11	15	1,51357	0,08	0	30	1,51380
0,02	73	30	1,51870	0,05	11	30	1,51390	0,08	0	60	1,51320
0,02	73	60	1,51910	0,05	73	15	1,51363	0,08	11	15	1,51147
0,02	185	15	1,51860	0,05	73	30	1,51433	0,08	11	30	1,51220
0,02	185	30	1,51880	0,05	185	15	1,51370	0,08	11	60	1,51350

...

Tab. B.4: Fortsetzung

y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D
kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-
0,02	217	15	1,51833	0,05	185	30	1,51440	0,08	73	15	1,51360
0,02	217	30	1,51880	0,06	0	15	1,51380	0,08	73	30	1,51440
0,02	217	60	1,51930	0,06	0	30	1,51410	0,08	73	60	1,51590
0,03	0	15	1,51643	0,06	0	60	1,51410	0,08	185	15	1,51110
0,03	0	30	1,51670	0,06	11	15	1,51227	0,08	185	30	1,51267
0,03	11	15	1,51660	0,06	11	30	1,51250	0,08	217	15	1,51280
0,03	11	30	1,51670	0,06	11	60	1,51370	0,08	217	30	1,51420
0,03	73	15	1,51660	0,06	73	15	1,51230	0,08	217	60	1,51777

Tab. B.5: Messergebnisse aus den experimentellen Untersuchungen am Tropfen Nr. 3 unter dem Einfluss von Tropfen Nr. 7, 8 und 12. Tropfenstartkonzentration y_0 , Reynoldszahl Re , Brechzahl der dispersen Phase n_D nach der Zeit t .

y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D
kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-
0,02	0	15	1,51890	0,04	11	15	1,51600	0,06	73	60	1,51507
0,02	0	30	1,51913	0,04	11	30	1,51620	0,06	217	15	1,51360
0,02	0	60	1,51930	0,04	11	60	1,51670	0,06	217	30	1,51433
0,02	11	15	1,51910	0,04	73	15	1,51600	0,06	217	60	1,51530
0,02	11	30	1,51910	0,04	73	30	1,51613	0,08	0	15	1,51300
0,02	11	60	1,51920	0,04	73	60	1,51740	0,08	0	30	1,51410
0,02	11	120	1,51950	0,04	217	15	1,51610	0,08	0	60	1,51280
0,02	11	240	1,52013	0,04	217	30	1,51670	0,08	11	15	1,51260
0,02	73	15	1,51893	0,04	217	60	1,51710	0,08	11	30	1,51330
0,02	73	30	1,51890	0,06	0	15	1,51400	0,08	11	60	1,51450
0,02	73	60	1,51920	0,06	0	30	1,51393	0,08	73	15	1,51440
0,02	217	15	1,51890	0,06	0	60	1,51480	0,08	73	30	1,51560
0,02	217	30	1,51900	0,06	11	15	1,51350	0,08	73	60	1,51590
0,02	217	60	1,51933	0,06	11	30	1,51353	0,08	217	15	1,51370

...

Tab. B.5: Fortsetzung

y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D
kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-
0,04	0	15	1,51640	0,06	11	60	1,51470	0,08	217	30	1,51470
0,04	0	30	1,51660	0,06	73	15	1,51260	0,08	217	60	1,51790
0,04	0	60	1,51700	0,06	73	30	1,51380	0,02	217	60	1,51930

Tab. B.6: Messergebnisse aus den experimentellen Untersuchungen am Tropfen Nr. 3. Referenzmessungen zu Daten in Tab. B.7 und Tab. B.8 zur Ermittlung des Schwarmeinflusses bei zeitlich versetzter Tropfenerzeugung. Tropfenstartkonzentration y_0 , Reynoldszahl Re , Brechzahl der dispersen Phase n_D nach der Zeit t .

y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D
kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-
0,02	0	15	1,51847	0,02	72	60	1,51980	0,08	11	30	1,51473
0,02	0	30	1,51850	0,08	73	15	1,51387	0,08	11	60	1,51620
0,02	0	60	1,51897	0,08	73	30	1,51610	0,08	33	15	1,51300
0,02	11	15	1,51857	0,08	73	60	1,51800	0,08	33	30	1,51600
0,02	11	30	1,51870	0,08	33	15	1,51333	0,08	33	60	1,51823
0,02	11	60	1,51890	0,08	33	30	1,51653	0,08	72	15	1,51487
0,02	33	15	1,51857	0,08	33	60	1,51690	0,08	72	30	1,51640
0,02	33	30	1,51860	0,08	0	15	1,51160	0,08	72	60	1,51780
0,02	33	60	1,51897	0,08	0	30	1,51367	0,08	92	15	1,51420
0,02	72	15	1,51863	0,08	0	60	1,51577	0,08	92	30	1,51630
0,02	72	30	1,51887	0,08	11	15	1,51280	0,08	92	60	1,51600

B Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen

Tab. B.7: Messergebnisse aus den experimentellen Untersuchungen am Tropfen Nr. 3 unter dem Einfluss von Tropfen Nr. 12. Tropfenstartkonzentration y_0 , Reynoldszahl Re , Brechzahl der dispersen Phase n_D nach der Zeit t .

y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D
kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-
0,02	0	15	1,51850	0,02	33	60	1,51883	0,08	11	30	1,51200
0,02	0	30	1,51850	0,02	73	15	1,51823	0,08	11	60	1,51347
0,02	0	60	1,51873	0,02	73	30	1,51853	0,08	33	15	1,51397
0,02	11	15	1,51840	0,02	73	60	1,51883	0,08	33	30	1,51480
0,02	11	30	1,51860	0,08	0	15	1,51303	0,08	33	60	1,51613
0,02	11	60	1,51880	0,08	0	30	1,51333	0,08	69	15	1,51460
0,02	33	15	1,51840	0,08	0	60	1,51380	0,08	69	30	1,51480
0,02	33	30	1,51867	0,08	11	15	1,51053	0,08	69	60	1,51393

Tab. B.8: Messergebnisse aus den experimentellen Untersuchungen am Tropfen Nr. 3 unter dem Einfluss von Tropfen Nr. 7, 8 und 12. Tropfenstartkonzentration y_0 , Reynoldszahl Re , Brechzahl der dispersen Phase n_D nach der Zeit t .

y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D	y_0	Re	t	n_D
kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-	kg/kg	-	s	-
0,02	0	15	1,51710	0,02	33	60	1,51880	0,08	11	30	1,51360
0,02	0	30	1,51820	0,02	68	15	1,51800	0,08	11	60	1,51453
0,02	0	60	1,51880	0,02	68	30	1,51840	0,08	33	15	1,51500
0,02	11	15	1,51710	0,02	68	60	1,51920	0,08	33	30	1,51617
0,02	11	30	1,51790	0,08	0	15	1,51133	0,08	33	60	1,51720
0,02	11	60	1,51860	0,08	0	30	1,51180	0,08	71	15	1,51190
0,02	33	15	1,51740	0,08	0	60	1,51330	0,08	71	30	1,51390
0,02	33	30	1,51810	0,08	11	15	1,51320	0,08	71	60	1,51570

C Ergebnisse der numerischen Untersuchungen

C.1 Stofftransport am Einzeltropfen

Tab. C.1: Vergleich der Stoffdurchgangskoeffizienten k bei Berücksichtigung der Transportmechanismen Diffusion (D), freie Konvektion (FK), erzwungene Konvektion (ZK) und Marangonikonvektion (MK)

k in 10^{-5} m/s	D, ZK	D, FK, ZK	D, MK, ZK	D, MK, FK, ZK
$y_0 = 0,01$ kg/kg				
$Re = 0$	0,203 bis 0,282	0,302 bis 0,760	0,925 bis 2,891	1,154 bis 2,929
$Re = 11$	–	–	–	–
$Re = 73$	–	0,696 bis 0,840	0,875 bis 2,193	1,061 bis 1,884
$Re = 185$	1,140 bis 1,539	–	1,102 bis 1,465	–
$y_0 = 0,02$ kg/kg				
$Re = 0$	0,166 bis 0,281	0,319 bis 0,507	0,795 bis 5,360	1,091 bis 3,181
$Re = 11$	0,208 bis 0,758	–	0,815 bis 3,111	0,823 bis 2,633
$Re = 73$	0,681 bis 0,852	–	–	0,980 bis 2,679
$Re = 185$	–	1,294 bis 1,454	1,321 bis 2,006	1,173 bis 2,239
$y_0 = 0,04$ kg/kg				
$Re = 0$	0,164 bis 0,281	0,432 bis 0,828	1,278 bis 8,212	1,089 bis 3,784
$Re = 11$	0,205 bis 0,752	0,417 bis 0,781	1,992 bis 4,410	1,149 bis 4,763
$Re = 73$	0,679 bis 0,847	0,589 bis 0,799	0,949 bis 3,211	1,077 bis 4,569
$Re = 185$	1,284 bis 1,347	1,258 bis 1,496	1,415 bis 4,569	2,736 bis 3,602
$y_0 = 0,06$ kg/kg				
$Re = 0$	0,200 bis 0,747	–	1,206 bis 5,182	1,394 bis 6,245
$Re = 11$	0,223 bis 0,747	0,494 bis 0,817	1,176 bis 3,566	1,513 bis 6,188
$Re = 73$	–	–	1,728 bis 3,508	–
...				

Tab. C.1: Fortsetzung

k in 10^{-5} m/s	D, ZK	D, FK, ZK	D, MK, ZK	D, MK, FK, ZK
$Re = 185$	–	–	–	1,537 bis 7,793
$y_0 = 0,08$ kg/kg				
$Re = 0$	0,162 bis 0,275	0,386 bis 0,740	1,340 bis 4,729	1,335 bis 5,575
$Re = 11$	0,197 bis 0,740	0,556 bis 0,860	1,335 bis 5,040	1,492 bis 6,234
$Re = 73$	0,674 bis 0,838	0,589 bis 0,799	1,487 bis 4,845	0,998 bis 7,075
$Re = 185$	1,247 bis 1,338	1,115 bis 1,551	1,048 bis 6,423	1,613 bis 7,640

Tab. C.2: Vergleich des übertragenen Massenanteils $z(t = 15s)$ bei Berücksichtigung der Transportmechanismen Diffusion (D), freie Konvektion (FK), erzwungene Konvektion (ZK) und Marangonikonvektion (MK)

Massenanteil	D, ZK	D, FK, ZK	D, MK, ZK	D, MK, FK, ZK
$z(t = 15 s)$:				
in Prozent				
$y_0 = 0,01$ kg/kg				
$Re = 0$	6,2	26,2	26,2	–
$Re = 11$	–	–	–	–
$Re = 73$	–	11,4	11,4	–
$Re = 185$	18,4	–	–	–
$y_0 = 0,02$ kg/kg				
$Re = 0$	6,2	5,4	32,6	25,0
$Re = 11$	6,2	–	23,6	22,6
$Re = 73$	11,0	–	–	25,4
$Re = 185$	–	–	–	24,0
$y_0 = 0,04$ kg/kg				
$Re = 0$	6,1	8,4	37,0	33,7
$Re = 11$	6,2	8,2	–	–
$Re = 73$	11,0	10,1	26,2	33,2
$Re = 185$	18,0	–	–	–
$y_0 = 0,06$ kg/kg				
...				

Tab. C.2: Fortsetzung

Massenanteil	D, ZK	D, FK, ZK	D, MK, ZK	D, MK, FK, ZK
$z(t = 15 \text{ s})$:				
in Prozent				
$Re = 0$	6,0	–	36,5	40,2
$Re = 11$	6,1	9,3	34,1	40,6
$Re = 73$	–	–	–	–
$Re = 185$	–	–	–	45,0
$y_0 = 0,08 \text{ kg/kg}$				
$Re = 0$	5,9	8,4	29,4	43,7
$Re = 11$	6,0	10,0	33,5	43,6
$Re = 73$	10,8	10,1	37,5	43,5
$Re = 185$	17,8	17,4	46,2	50,3

C.2 Stofftransport im Schwarm

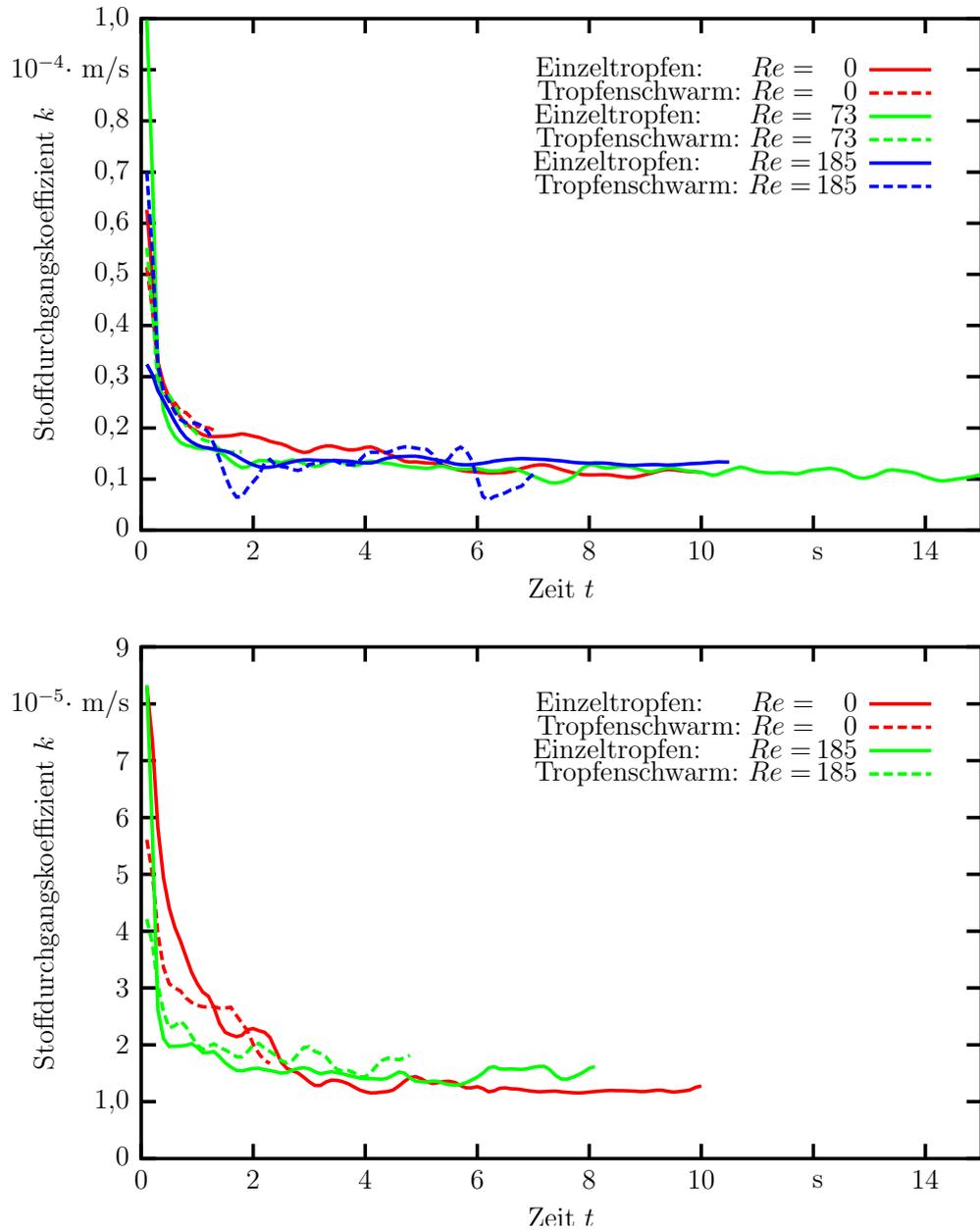


Abb. C.1: Vergleich des berechneten Stoffdurchgangskoeffizienten k für den Stofftransport am Einzeltropfen und im Schwarm für verschiedene Reynoldszahlen Re . Oben: $y_0 = 0,005 \text{ kg/kg}$, Unten: $y_0 = 0,01 \text{ kg/kg}$

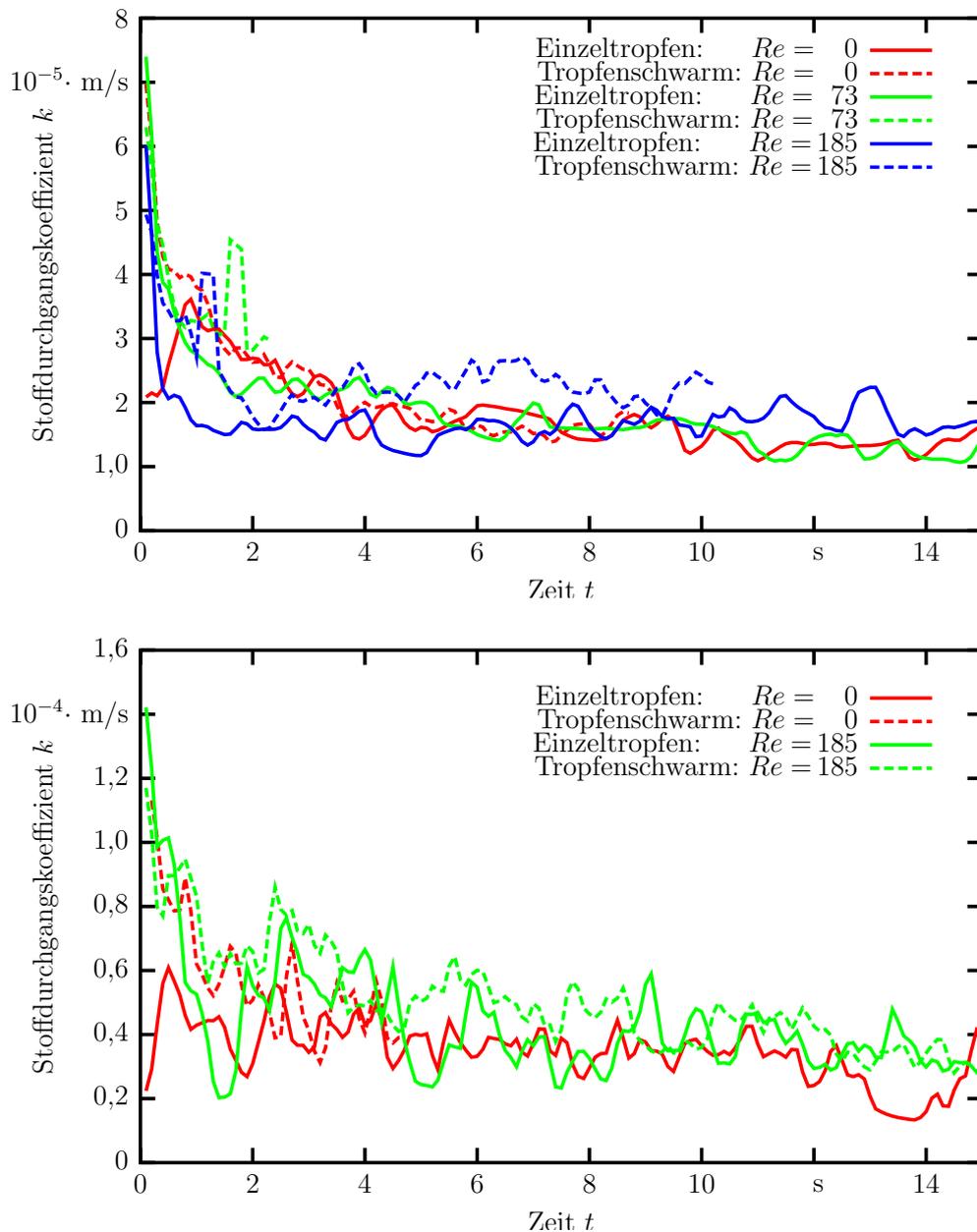


Abb. C.2: Vergleich des berechneten Stoffdurchgangskoeffizienten k für den Stofftransport am Einzeltröpfchen und im Schwarm für verschiedene Reynoldszahlen Re . Oben: $y_0 = 0,02 \text{ kg/kg}$, Unten: $y_0 = 0,08 \text{ kg/kg}$

D Studienarbeiten

Im Rahmen dieses Projektes wurden folgende Semester- und Diplomarbeiten betreut.

- Lill, Dietmar
Aufbau und Inbetriebnahme eines Strömungskanals für Stoffübergangsuntersuchungen, Semesterarbeit 1999
- Kammermaier, Markus
Aufbau und Inbetriebnahme eines holografischen Interferometers, Semesterarbeit 2000
- Winkler, Anton
Konstruktion einer Messzelle für Stoffübergangsuntersuchungen, Semesterarbeit 2001
- Marin, Liana
Ermittlung von Gleichgewichtsdaten ternärer Stoffsysteme, Semesterarbeit 2001
- Stocker, Stephanie
Stoffübergang am Einzeltropfen unter dem Einfluss von Marangonikonvektionen, Semesterarbeit 2001
- Dueñas, Daniel
Aufbau und Inbetriebnahme einer Versuchsanlage für Stoffübergangsuntersuchungen, Diplomarbeit 2002
- Müller, Kilian
Stoffübergang am Tropfenschwarm unter dem Einfluss von Marangonikonvektionen, Semesterarbeit 2002
- Rennschmid, Stephan
Stoffübergang am Tropfenschwarm unter dem Einfluss von Marangonikonvektionen, Semesterarbeit 2002

- Kusterer, Andreas
Untersuchung der Wechselwirkungen beim Stofftransport in Tropfenschwärmen, Semesterarbeit 2002
- Bauer, Ludwig
Modellierung des Stofftransportes in Tropfenschwärmen, Diplomarbeit 2002/2003
- Peterat, Frank
Experimentelle Untersuchungen des Stofftransportes in Tropfenschwärmen, Semesterarbeit 2003

Literaturverzeichnis

- [1] AGARWAL, P. K. ; MITCHELL, W. J.: Transport Phenomena in Multi-Particle Systems III. Active Particle Mass Transfer in Fluidized Beds of Inert Particles. In: *Chem. Eng. Sci.* (1988), 43/9, S. 2511–2521
- [2] AGBLE, D. ; MENDES-TATSIS, M. A.: The Effect of Surfactants on Interfacial Mass Transfer in Binary Liquid-Liquid Systems. In: *Int. J. Heat Mass Transfer* (2000), 43, S. 1025–1034
- [3] AGRAWAL, S. K. ; WASAN, D. T.: Einfluss der Grenzflächenviskosität auf die Bewegung von Tropfen und Blasen. In: *Chem. Eng. J.* (1979), 18/3, S. 215–223
- [4] ATKINS, P. W.: *Physikalische Chemie*. Weinheim : VCH-Verlag, 1987
- [5] AYDIN, O. ; GUESSOUS, L.: Fundamental Correlations for Laminar and Turbulent Free Convection from a Uniformly Heated Vertical Plate. In: *Int. J. Heat Mass Transfer* (2001), 44, S. 4605–4611
- [6] BAHMANYAR, H. ; SLATER, M.: Assessment of a New Type of Liquid-Liquid Extraction Column. In: *Chem. Eng. Technol.* (2002), 25, S. 1087–1094
- [7] BAILES, P. J. ; GODFREY, J. C. ; STATER, M. J.: Liquid-Liquid Extraction Test Systems. In: *Chem. Eng. Res. Des.* (1983), 61, S. 321–324
- [8] BAKKER, C. ; BUYTENEN, P. M. van ; BEEK, W. J.: Interfacial Phenomena and Mass Transfer. In: *Chem. Eng. Sci.* 21 (1966), Nr. 11, S. 1039–1046
- [9] BART, H.-J. ; MARR, R. ; BAUER, A.: Stoffumwandlungen und Stoffaustausch bei Flüssig/Flüssig-Systemen. In: *Chem. Ing. Tech.* (1989), 61, S. 941–948
- [10] BAUER, H.: *Lasertechnik*. Würzburg : Vogel Buchverlag, 1991

- [11] BAUMANN, K.-H. ; MÜHLFRIEDEL, K.: Untersuchung von Stoffübergangsvorgängen an Flüssig/Flüssig-Phasengrenzen mit laserinduzierter Fluoreszenz. In: *Chem. Ing. Tech.* 72 (2000), Nr. 9, S. 965–966
- [12] BAUMANN, K.-H. ; MÜHLFRIEDEL, K.: Untersuchung von Stoffübergangsvorgängen an Flüssig/Flüssig-Phasengrenzen mit laserinduzierter Fluoreszenz. In: *Chem. Ing. Tech.* 73 (2001), Nr. 10, S. 1306–1309
- [13] BÖCKER, J.: *Chromatographie*. Würzburg : Vogel-Verlag, 1997
- [14] BEEK, W. J. ; MUTTZALL, K. M. ; VAN HEUVEN, J. W.: *Transport Phenomena*. Chichester : John Wiley & Sons Ltd., 1999
- [15] BIRD, R. B. Et Al: *Transport Phenomena*. Wiley, 1960
- [16] BLASIUS, H.: Das Ähnlichkeitsgesetz bei Reibungsvorgängen in Flüssigkeiten. In: *VDI Forschungsheft* 131 (1913)
- [17] BLASS, W. ; PIETZSCH, W.: Neue Ergebnisse zur Vorausberechnung pulsierter Siebbodenextraktoren. In: *Chem. Ing. Tech.* (1985), 57/10, S. 872–873
- [18] BOTHE, D. ; KOEBE, M. ; WIELAGE, K. ; PRÜSS, J. ; WARNECKE, H.-J.: Direct Numerical Simulation of Mass Transfer between Rising Gas Bubbles and Water. In: *CHISA, Summaries Fluid Flow, Multiphase Systems*, 2002, S. 66–67
- [19] CAI, X. ; WALLIS, G. B.: Ein verallgemeinerbares Zellenmodell für die Berechnung der Zusatzmasse beschleunigt bewegter fluider und fester Partikeln im Schwarm - A More General Cell Model for Added Mass in Two-Phase Flow. In: *Chem. Eng. Sci.* (1994), 49/10, S. 1631–1638
- [20] CHURCHILL, S. W.: Fortschritte in der Wärmeübertragung. - Tl. 3: Turbulente Strömung und turbulente freie Konvektion in Rohren - Advances in Heat Transfer. - Pt. III: Turbulent Flow and Convection. In: *Adv. Heat Transfer* (2000), 34, S. 255–361
- [21] DAVENPORT, J. F ; KING, C. J.: Freie Konvektion bei instationären Temperaturprofilen an einer Gas-Flüssigkeitsgrenzfläche. In: *Int. J. Heat Mass Transfer* (1974), 17/1, S. 77–83

- [22] DE BOUTER, J. A. ; HEERTJES, P. M. ; JONGENELEN, F. ; BOU, L. D.: Die Wirkung einer beweglichen Grenzschicht auf den Wärmeübergang durch freie Konvektion. In: *Chem. Eng. Sci.* (1970), 25/12, S. 1881–1890
- [23] DEL CARMEN REY, M. ; GLASSERMAN, P. ; BOEHM, U.: Stofftransport in strukturierten Packungen bei kleinen Reynolds-Zahlen und bei freier Konvektion - Mass Transfer to Regular Packings at Low Reynolds Numbers and under Natural Convection. In: *Int. J. Heat Mass Transfer* (1998), 41/12, S. 1693–1706
- [24] ECKERT, E. R. G. ; GOLDSTEIN, R. J. ; IBELE, W. E. ; PATANKAR, S. V. ; SIMON, T. W. ; STRYKOWSKI, P. J. ; TAMMA, K. K. ; BAR-COHEN, A. ; HEBERLEIN, J. V. R.: Wärmeübergang - eine Übersicht über Literatur aus 1992 - Heat Transfer - a Review of 1992 Literature. In: *Int. J. Heat Mass Transfer* (1994), 37/9, S. 1285–1375
- [25] ECKERT, K. ; GRAHN, A.: Plume and Finger Regimes Driven by an Exothermic Interfacial Reaction. In: *Phys. Rev. Lett.* 82 (1999), S. 4436–4439
- [26] EMERY, A. F. ; MACGREGOR, R. K.: Freie Konvektion in senkrechten Schichten bei mittleren und hohen Prandtlzahlen. In: *J. Heat Transfer* (1969), 91/3, S. 391–403
- [27] ERVIN, E. A. ; TRYGGVASON, G.: Der Aufstieg von Blasen in vertikaler Scherströmung - The Rise of Bubbles in a Vertical Shear Flow. In: *J. Fluids Eng.* (1997), 119/2, S. 443–449
- [28] FAN, L. T. ; SHEN, B. C. ; CHOU, S. T.: Stoffaustausch an fluiden Grenzflächen - eine Begründung der Oberflächenerneuerungstheorie aufgrund einer stochastischen Betrachtungsweise - The Surface-Renewal Theory of Interphase Transport: a Stochastic Treatment. In: *Chem. Eng. Sci.* (1993), 48/23, S. 3971–3982
- [29] FLUENT, INC.: *FIDAP 8 Manual*. 1998
- [30] GABOR, D.: A New Microscopic Principle. In: *Nature* 161 (1948), S. 777–778
- [31] GEWEKE, M. ; MILLIES, M. ; MEWES, D.: Messen der Durchmesser- und Geschwindigkeitsverteilung von Tropfen im Schwarm - Measurement of Diameter and

- Velocity Distribution in a Swarm of Droplets. In: *Chem. Ing. Tech.* (1994), 66/8, S. 1051–1054
- [32] GOKHALE, M. Y. ; AL SAMMAN, F. M.: Effects of Mass Transfer on the Transient Free Convection Flow of a Dissipative Fluid along a Semi-Infinite Vertical Plate with Constant Heat Flux. In: *Int. J. Heat Mass Transfer* (2003), 46, S. 999–1011
- [33] GOLOVIN, A. A.: Mass Transfer under Interfacial Turbulence: Kinetic Regularities. In: *Chem. Eng. Sci.* 47 (1992), Nr. 8, S. 2069–2080
- [34] GOLOVIN, A. A. ; RABINOVICH, L. M.: Models of Mass Transfer in Presence of Interface Mass Transfer. In: *Teoreticheskie Osnovy Khimicheskoi Tekhnologii* 24 (1990), Nr. 5, S. 592–610. – Übersetzung aus Plenum Publishing Corporation, 1991, S. 388–403
- [35] GRAHN, A.: Doppeldiffusive Instabilität beim Flüssig-Flüssig-Stoffübergang: Simulation und Experiment. In: *Chem. Ing. Tech.* 74 (2002), S. 570
- [36] GRAHN, A.: *Strömungsinstabilitäten bei Stoffübergang und chemischer Reaktion an der ebenen Grenzfläche zwischen zwei nicht mischbaren Flüssigkeiten*, TU Dresden, Dissertation, 2004
- [37] GRAHN, A. ; ECKERT, K.: Experimentelle und numerische Untersuchungen zu Instabilitäten beim reaktiven Stoffübergang an einer ebenen fluiden Phasengrenze im vertikalen Spalt. In: *Chem. Ing. Tech.* 71 (1999), S. 945
- [38] HAMPE, M. J.: *Zur Thermodynamik der Transportprozesse in Grenzflächensystemen*, TU München, Dissertation, 1980
- [39] HANDLOS, A. E. ; BARON, T.: Mass and Heat Transfer from Drops in Liquid-liquid Extraction. In: *AIChE J.* (1957), 3/1, S. 127–136
- [40] HANSON, C.: *Recent Advantages in Liquid-Liquid Extraction*. Oxford : Pergamon Press, 1971
- [41] HARTLAND, St. ; STEINER, L.: Neues zur mathematischen Modellierung von Flüssig/flüssig-Extraktionskolonnen. In: *Chem. Ing. Tech.* (1983), 55/3, S. 194–201

- [42] HAUFF, W. ; GRIGULL, U. ; MAYINGER, F.: *Optische Meßverfahren in der Wärme- und Stoffübertragung*. Berlin : Springer-Verlag, 1991
- [43] HÄBERL, M.: *Mehrkomponenten-Stoffübergang bei der Flüssig-flüssig-Extraktion*, TU München, Dissertation, 1996
- [44] HENNENBERG, M. ; BISCH, P. M. ; VIGNES-ADLER, M. ; SANFELD, A.: Mass Transfer, Marangoni Effect and Instability of Interfacial Longitudinal Waves, I. Diffusion Exchanges. In: *J. Colloid Interface Sci.* 60 (1979), Nr. 1, S. 128–137
- [45] HENSCHKE, M. ; PFENNIG, A.: Influence of Sieve Trays on the Mass Transfer of Single Drops. In: *AIChE J.* 48 (2002), Nr. 2, S. 227–234
- [46] HUBIS, M. ; HARTLAND, St.: Limitations of the Handlos-Baron Model. In: *Chem. Eng. Sci.* (1986), 41/9, S. 2436–2437
- [47] HUMPHREY, J. L. ; ROCHA, J. A. ; FAIR, J. R.: The Essentials of Extraction. In: *Chem. Eng. J.* (1984), Sep/17, S. 76–95
- [48] HUPFAUF, A.: Temperaturmessung von Einzeltropfen in einem Tropfenschwarm. In: *Chem. Ing. Tech.* (1972), 44/15, S. 939–940
- [49] HUSUNG, G. ; MARR, R.: Extraktion. In: *Fortschritte der Verfahrenstechnik* (1984), 22, S. 243–254
- [50] HYNDMAN, C. L. ; LARACHI, F. ; GUY, C.: Strömung der gasförmigen Phase in Blasensäulen. - Modellierung der Blasenauftiegs geschwindigkeit mit Hilfe eines Populationsmodells - Understanding Gas-Phase Hydrodynamics in Bubble Columns: a Convective Model Based on Kinetic Theory. In: *Chem. Eng. Sci.* (1996), 52/1, S. 63–77
- [51] JAMESON, G. J.: Physics and Hydrodynamics of Bubbles. In: *NATO ASI Ser.* (1984), E/75, S. 53–77
- [52] JOERIS, K. ; SCHEPER, T.: Ortsaufgelöste Untersuchung von Stofftransportprozessen an Flüssig/Flüssig-Phasengrenzen. In: *Chem. Ing. Tech.* 74 (2002), Nr. 1-2, S. 56–59

- [53] JUMA, A. K. A. ; RICHARDSON, J.: Heat Transfer from Horizontal Cylinders to Liquids. Combined Effects of Natural and Forced Convection. In: *Chem. Eng. Sci.* (1982), 37/11, S. 1681–1688
- [54] KAMOJIMA, M. ; KOMASAWA, I. ; OTAKE, T.: Das fluiddynamische Verhalten der Flüssigkeitsschlepe hinter einer Blase. In: *J. Chem. Eng. Jpn.* (1980), 13/2, S. 103–109
- [55] KITAMURA, K. ; HONMA, M. ; KASHIWAGI, S.: Wärmetübergang von einem horizontalen Zylinder durch überlagerte freie und erzwungene Konvektion - Heat Transfer by Combined Forced and Natural Convection from a Horizontal Cylinder. In: *Heat Transfer Jpn. Res.* (1993), 21/1, S. 63–76
- [56] KOLB, B.: *Gaschromatographie in Bildern*. Weinheim : Wiley-VCH Verlag, 2003
- [57] KRISCHER, W.: *Trocknungstechnik - Erster Band: Die wissenschaftlichen Grundlagen der Trocknung*. Berlin : Springer Verlag, 1978
- [58] KRISHNA, R.: A Turbulent Film Model for Multicomponent Mass Transfer. In: *Chem. Eng. J.* (1982), 24, S. 163–172
- [59] KRONIG, R. ; BRINK, J. C.: On the Theorie of Extraction from Falling Drops. In: *Appl. Sci. Res.* (1950), A2, S. 142–154
- [60] KUNZE, U. ; SCHWEDT, G.: *Grundlagen der qualitativen und quantitativen Analyse*. Weinheim : Wiley-VCH Verlag, 2002
- [61] LI, Jian ; INGHAM, D. B. ; POP, I.: Natural Convection from a Vertical Flat Plate with a Surface Temperature Oscillation. In: *Int. J. Heat Mass Transfer* (2001), 44, S. 2311–2322
- [62] LIANG, T.-B. ; SLATER, M. J.: Einfluß von oberflächenaktiven Substanzen auf den Stofftransport während der Tropfenbildung bei der Flüssig/flüssig-Extraktion - Liquid-Liquid Extraction Drop Formation: Mass Transfer and the Influence of Surfactants. In: *Chem. Eng. Sci.* (1990), 45/1, S. 97–105
- [63] LINDE, H. ; THIESSEN, D.: Zum dynamischen Verhalten der fluiden Phasengrenze unter Stoffübergangsbedingungen. In: *Z. Phys. Chem.* 221 (1962), Nr. 1/2, S. 97–114

- [64] LOCKSHIN, J. L. ; ZAKHAROV, M. K.: Exact Solutions for Heat and Mass Transfer in a Falling Laminar Film. In: *Int. J. Heat Mass Transfer* (2001), 44, S. 4541–4552
- [65] LOHNER, H. ; BAUCKHAGE, K.: Characterisation of Droplets in Liquid-Liquid Extraction by Laser-Optical Measurement Techniques. In: *Chem. Eng. Technol.* 21 (1998), Nr. 4, S. 337–341
- [66] MAROUDAS, N. G. ; SAWISTOVSKI, H.: Simultaneous Transfer of Two Solutes across Liquid-Liquid Interfaces. In: *Chem. Eng. Sci.* 19 (1964), Nr. 11, S. 919–931
- [67] MARR, R. ; MOSER, F.: Der instationäre Stoffaustausch bei der Tropfenbildung in Flüssig/Flüssig-Systemen. In: *Chem. Ing. Tech.* (1976), 48/9, S. 801
- [68] MARTIN, H.: Wärme- und Stoffübertragung in der Wirbelschicht. In: *Chem. Ing. Tech.* (1980), 52/3, S. 199–209
- [69] MERCK KGaA: *Der Laborkatalog Merck, Chemikalien und Reagenzien*. Merck KGaA. 2000
- [70] MERKER, G. P.: *Konvektive Wärmeübertragung*. Berlin : Springer-Verlag, 1987
- [71] MERSMANN, A.: *Stoffübertragung*. Berlin : Springer-Verlag, 1986
- [72] MIŠEK, T. ; BERGER, R. ; SCHRÖTER, J.: *Standard Test Systems for Liquid Extraction*. European Federation of Chem. Eng. 1984
- [73] MODIGELL, M.: *Untersuchung der Stoffübertragung zwischen zwei Flüssigkeiten unter Berücksichtigung von Grenzflächenphänomenen*, RWTH Aachen, Dissertation, 1981
- [74] MOLERUS, O. ; KURTIN, M.: Zur Fluidodynamik in Blasensäulen - Hydrodynamics of Bubble Columns in the Liquid Circulation Regime. In: *Chem. Eng. Sci.* (1987), 41/10, S. 2685–2692
- [75] NAKAIKE, Y. ; MIZUKOSKI, T. ; AONUMA, T. ; TADAKI, T.: Mass Transfer Accompanied by Interfacial Turbulence During Droplet Formation in a Liquid-Liquid System. In: *Int. Chem. Engng.* (1984), 24/3, S. 527–535

- [76] NIGAM, K. D. P. ; PANDIT, A. B. ; NIRANJAN, K.: Aufstiegsgeschwindigkeit von Kolbenblasen und Stofftransport in unterschiedlich geneigten Röhren - Effect of Angle of Inclination on Liquid-Phase Controlled Mass Transfer from a Gas Slug. In: *Chem. Eng. Sci.* (1995), 50/2, S. 289–298
- [77] NITSCH, W. ; SCHUSTER, U.: Stoffaustausch am Tropfenschwarm als Basis zur Berechnung von Extraktionskolonnen. In: *Chem. Ing. Tech.* (1980), 52/10, S. 814–816
- [78] OERTEL, H.: *Strömungsmechanik, Methoden und Phänomene*. Berlin : Springer-Verlag, 1995
- [79] ONLINE-DATENBANK: *Beilstein Online Informationssysteme GmbH*. 2000
- [80] OSTROWSKI, Ju.: *Holografie - Grundlagen, Experimente und Anwendungen*. Thun; Frankfurt am Main : Verlag Harri Deutsch, 1989
- [81] OSTWALD, W.: *Grundriß der Kolloidchemie*. Dresden : Theodor-Steinkopf-Verlag, 1909
- [82] PANKNIN, W.: *Eine holographische Zweiwellenlängen-Interferometrie zur Messung überlagelter Temperatur- und Konzentrationsfelder*, TU Hannover, Dissertation, 1977
- [83] PASCHEDAG, A. ; PIARAH, W. H. ; KRAUME, M.: Grenzbetrachtungen zum Stofftransport am Einzeltropfen - Validierung numerischer Ergebnisse. In: *Chem. Ing. Tech.* 73 (2001)
- [84] PASCHEDAG, A. ; PIARAH, W. H. ; KRAUME, M.: Treatment of Limits for Mass Transfer at Single Droplets - Validation of Numerical Results. In: *Chem. Eng. Technol.* (2002), 25/10, S. 953–956
- [85] PATANKAR, S. V.: *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow*. Taylor Francis, 1980
- [86] PERTLER, M.: *Die Mehrkomponenten-Diffusion in nicht vollständig mischbaren Flüssigkeiten*. München : Diss. TU München, 1996
- [87] PERTLER, M. ; HÄBERL, M. ; ROMMEL, W. ; BLASS, E.: Mass Transfer across Liquid-Phase Boundaries. In: *Chem. Eng. Process.* 34 (1995), S. 269–277

- [88] PETERKA, J. A. ; RICHARDSON, P.: Freie Konvektion an einem horizontalen Zylinder bei Grashof-Zahlen Zwischen 10^3 und 10^8 . In: *Int. J. Heat Mass Transfer* (1969), 12/6, S. 749–752
- [89] POST, St. ; TSOTSAS, E.: Analyse und Quantifizierung von während und aufgrund der Stoffübertragung eines binären Gemisches durch senkrechte Spalte induzierter Grenzflächenkonvektion. In: *Chem. Ing. Tech.* (2001), 73/10, S. 1310–1314
- [90] REID, R. ; PRAUSNITZ, J. M. ; POLING, B. E.: *The Properties of Gases and Liquids*. New York : McGraw-Hill Book Company, 1987
- [91] ROGERS, R. H.: Freie Konvektion. In: *Rep. Progr. Phys.* (1976), 39/1, S. 1–63
- [92] ROHSENOW, W. M. ; HARTNETT, P. ; CHO, I.: *Handbook of Heattransfer*. New York : McGraw-Hill Handbooks, 1998
- [93] RUCKENSTEIN, E.: A Generalized Penetration Theory for Unsteady Convective Mass Transfer. In: *Chem. Eng. Sci.* 23 (1968), S. 363–371
- [94] SAWISTOWSKI, H. ; AUSTIN, L. J.: Stoffübergang zwischen flüssigen Phasen in einer Rührzelle. In: *Chem. Ing. Tech.* (1967), 5/6, S. 224–231
- [95] SCHRÖDER, G.: *Technische Optik*. Würzburg : Vogel Verlag, 1998
- [96] SCHROETER, J. ; BÄCKER, W. ; HAMPE, M. J.: Stoffaustausch-Messungen an Einzeltropfen und an Tropfenschwärmen in einer Gegenstrom-Messzelle - Mass transfer measurements on single drops and on swarms of drops in a countercurrent measuring cell. In: *Chem. Ing. Tech.* (1998), 70/3, S. 279–283
- [97] SCHULZE, K. ; KRAUME, M.: Optische Verfahren zur Visualisierung von Tropfen in gerührten Zweiphasensystemen. In: *Chem. Eng. Technol.* 51 (1999), Nr. 4, S. 271–275
- [98] SHEN, G. ; FINCH, J. A.: Zweidimensionales Modell der Blasenauftiegeschwindigkeit in einer Säule im Schwarm - Bubble Swarm Velocity in a Column: a Two-Dimensional Approach. In: *Chem. Eng. Sci.* (1997), 52/19, S. 3287–3293
- [99] SLATER, M. J. ; BAIRD, M. H. ; LIANG, T.-B.: Drop Phase Mass Transfer Coefficients for Liquid-Liquid Systems and the Influence of Packings. In: *Chem. Eng. Sci.* (1988), 43/2, S. 233–245

- [100] STERNLING, C. V. ; SCRIVEN, L. E.: Interfacial Turbulence: Hydrodynamic Instability and the Marangoni Effect. In: *AiChE J.* 5 (1959), Nr. 4, S. 514–523
- [101] TSUCHIYA, K. ; OHSAKI, K. ; TAGUCHI, K.: Wechselwirkungen zwischen den Groß- und Kleinblasen in einer Blasensäule - Large and Small Bubble Interaction Patterns in a Bubble Column. In: *Int. J. Multiphase Flow* (1996), 22/1, S. 121–132
- [102] TUDOSE, R. Z. ; APREOTESEI, G.: Mass Transfer Coefficients in Liquid-Liquid Extraction. In: *Chem. Eng. Process.* (2001), 40, S. 477–485
- [103] VERMA, A. R.: Freie Konvektion an einer horizontalen Platte mit überlagerten Temperaturschwingungen. In: *Z. Angew. Math. Mech.* (1982), 62/9, S. 483–487
- [104] WAGNER, W.: Anwendungsgleichungen und -diagramme für den konvektiven Wärmeübergang. In: *Wärme* (1982), 88/3, S. 45–52
- [105] WAHEED, M. A. ; HENSCHKE, M. ; PFENNIG, A.: Mass Transfer by Free and Forced Convection from Single Spherical Liquid Drops. In: *Int. J. Heat Mass Transfer* (2002), 45, S. 4507–4514
- [106] WASOWSKI, T. ; BLASS, E.: Wake-Phänomene hinter festen und fluiden Partikeln - Wake Phenomena behind Solid and Fluid Particles. In: *Chem. Ing. Tech.* (1987), 59/7, S. 544–555
- [107] WASOWSKI, T. ; BLASS, E.: Neue Aspekte zum Einfluß des Blasenwakes auf die Hydrodynamik und den Stoffaustausch in einer Blasensäule. In: *Chem. Ing. Tech.* 61 (1989), S. 519–530
- [108] WEINSPACH, P. M.: Stoffübergang im aufsteigenden Flüssigkeitsstrom. In: *Chem. Ing. Tech.* (1965), 37/12, S. 1215–1220
- [109] WEINSPACH, P. M.: Vergleichende Untersuchung über den Lösevorgang bei der Einzelpartikel und im Haufwerk. In: *Chem. Ing. Tech.* (1966), 38/3, S. 347–350
- [110] WEISS, M. ; DARTON, R. C. ; BATTAL, T. ; BAIN, C. D.: Surfactant Effects in Liquid Jets. In: *CHISA, Summaries Fluid Flow, Multiphase Systems*, 2002, S. 51–52

- [111] WILHELM, R.: *Der Stoffübergang fest-flüssig bei Einzelkörpern und Schüttungen in freier und erzwungener Strömung*. Ludwigshafen : VDI-Forschungsheft 531, 1969
- [112] WOLF, S.: *Phasengrenzkonvektionen beim Stoffübergang in Flüssig-flüssig-Systemen*, TU München, Dissertation, 1999
- [113] YOUNG, M.: *Optik, Laser, Wellenleiter*. Berlin : Springer-Verlag, 1997
- [114] ZGHAL, M. ; GALANIS, N. ; NGUYEN, C. T.: Developing Mixed Convection with Aiding Buoyancy in Vertical Tubes: a Numerical Investigation of Different Flow Regimes. In: *Int. J. Therm. Sci.* (2001), 40, S. 816–824
- [115] ZIEREP, J. ; OERTEL, H.: *Convective Transport and Instability Phenomena*. Karlsruhe : G. Braun, 1982