

Technische Universität München  
Lehrstuhl für Fluidmechanik und Prozeßautomation

# **Numerische Simulation der Strömung und des Stofftransportes in Festbett-Bioreaktoren**

Stefan Esterl

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät Wissenschaftszentrum Weihenstephan für Ernährung, Landnutzung und Umwelt der Technischen Universität München zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktor-Ingenieurs

genehmigten Dissertation.

Vorsitzender: Univ.-Prof. Dr.-Ing. H. Weisser

Prüfer der Dissertation:

1. Univ.-Prof. Dr.-Ing. habil. A. Delgado
2. Univ.-Prof. Dr.-Ing. Dr. h.c. P. A. Wilderer

Die Dissertation wurde am 04.10.2001 bei der Technischen Universität München eingereicht und durch die Fakultät Wissenschaftszentrum Weihenstephan für Ernährung, Landnutzung und Umwelt am 28.11.2001 angenommen.

Diese Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Lehrstuhl für Fluidmechanik und Prozeßautomation der Technischen Universität München auf Initiative von Herrn Prof. Dr.-Ing. A. Delgado. Ihm gilt mein ganz besonderer Dank für die Förderung und Unterstützung der Arbeit.

Besonderer Dank gebührt auch den Herren Hermann Nirschl, Martin Ehmann und Christoph Hartmann. Sie haben im Rahmen ihrer Tätigkeit als Abteilungsleiter für numerische Strömungsmechanik durch ihre Unterstützung erheblich zum Gelingen der Arbeit beigetragen.

Einen wichtigen Beitrag lieferten auch meine Kollegen, Mitarbeiter und Studenten in Weihenstephan, allen voran Samson F., Thomas B. und Kristian D. für ihre Hilfe und Geduld.

Herrn Prof. Dr. H. A. Dwyer von der University of California, Davis, U.S.A., danke ich ganz herzlich. Er ließ mir manch guten Ratschlag während seines Aufenthaltes in Freising zukommen.

Mein ganz besonderer Dank gilt natürlich meinen Eltern, die durch ihre langjährige und geduldige Unterstützung diese Arbeit erst ermöglichten.

Der Deutschen Forschungs-Gemeinschaft sei für die Finanzierung der Projekte gedankt.

<b>1</b>	<b>EINLEITUNG UND ZIELSETZUNG .....</b>	<b>8</b>
<b>2</b>	<b>MATERIAL UND METHODEN.....</b>	<b>13</b>
2.1	Numerisches Verfahren und physikalische Annahmen .....	13
2.2	Erhaltungsgleichungen .....	15
2.3	Anfangs und Randbedingungen .....	16
2.4	Modellbildung und Implementierung einer Stoffaustauschkinetik .....	18
2.5	Dimensionslose Form der verwendeten Gleichungen.....	23
2.5.1	Entdimensionierung der Kontinuitäts- und Navier-Stokes Gleichung .....	23
2.5.2	Entdimensionierung der Stofftransportgleichung .....	25
2.5.3	Beschreibung der dimensionslosen Kennzahlen.....	29
2.6	Die Chimära-Gittertechnik.....	33
2.6.1	Grundlagen der Gittertechnik .....	33
2.6.2	Adaption der Chimära-Gitter .....	34
2.7	Numerische Lösung des Gleichungssystems.....	37
2.7.1	Kopplung des Geschwindigkeits- und Druckfeldes.....	37
2.7.2	Konvergenzbeschleunigung der Poisson-Gleichung mittels Mehrgitter und GMRES Verfahren.....	41
2.8	Grundlagen und Basisoperationen der Parallelisierung.....	43
<b>3</b>	<b>VORSTELLUNG UND DISKUSSION DER ERGEBNISSE .....</b>	<b>45</b>
3.1	Numerische Simulation der Strömung in Bioreaktoren .....	45
3.1.1	Grundlagen und Motivation.....	45
3.1.2	Strömungsmechanische Kenndaten von Bioreaktoren .....	47
3.1.3	Aufteilung des Bioreaktors in repräsentative Zonen .....	50
3.1.3.1	Einflußgrößen auf das strömungsmechanische Reaktorverhalten .....	51
3.1.3.2	Strömungsmechanische Charakterisierung des Bioreaktors .....	54
3.1.4	Einfluß abweichender Größenverteilung und Oberflächenbeschaffenheit der Trägerpartikel.....	57

3.1.4.1	Einfluß polydisperser Partikelgrößenverteilung .....	58
3.1.4.2	Auswirkungen der Oberflächenrauigkeit der Trägerpartikel .....	63
3.1.4.2.1	Modifikation der Partikelgitter .....	65
3.1.4.2.2	Strömungsphänomene bei Oberflächenrauigkeit .....	66
3.1.5	Einfluss der strömungsmechanischen Belastung auf die Biomaterie .....	69
3.1.5.1	Quantifizierung der mechanischen Belastung .....	72
3.1.6	Segmentierung des Berechnungsgebietes .....	76
3.1.6.1	Aufteilung der Gitter .....	77
3.1.6.2	Auswahl der Randbedingungen .....	78
3.1.6.3	Verifikation der Segmentation .....	79
<b>3.2</b>	<b>Simulation des Stoffaustausches in Bioreaktoren .....</b>	<b>85</b>
3.2.1	Grundlagen, Motivation und aktuelle Literaturübersicht .....	85
3.2.2	Simulationsaufbau und beschreibende Kennzahlen für den Stoffumsatz .....	88
3.2.2.1	Modifikation des Rechengitters .....	89
3.2.2.2	Charakterisierende Kennzahlen und Wirkungsgrade .....	89
3.2.3	Beispielberechnungen zur Simulation des Stofftransportes .....	92
<b>4</b>	<b>ZUSAMMENFASSUNG DER ERGEBNISSE, AUSBLICK .....</b>	<b>102</b>
<b>4.1</b>	<b>Modifikationen des algebraischen Gleichungslösers und Parallelisierungskonzepts .....</b>	<b>103</b>
<b>4.2</b>	<b>Simulation der Strömung in Festbett-Bioreaktoren .....</b>	<b>104</b>
<b>4.3</b>	<b>Simulation des Stofftransportes in Bioreaktoren .....</b>	<b>106</b>
<b>4.4</b>	<b>Ausblick .....</b>	<b>107</b>
<b>ANHANG A</b>	<b>.....</b>	<b>110</b>
<b>A1</b>	<b>Grundoperationen des geometrischen Mehrgitter-Verfahrens .....</b>	<b>110</b>
<b>A2</b>	<b>Verifikation des Mehrgitter-Verfahrens .....</b>	<b>112</b>
<b>A3</b>	<b>Ablaufsteuerung und Adaption des Mehrgitter-Verfahrens .....</b>	<b>116</b>
<b>A4</b>	<b>Ergebnisse des Mehrgitter-Verfahrens .....</b>	<b>117</b>

<b>ANHANG B .....</b>	<b>119</b>
<b>B1 Grundlagen und Umsetzung des GMRES-Verfahrens .....</b>	<b>119</b>
<b>B2 Ergebnisse des GMRES-Verfahrens .....</b>	<b>120</b>
<b>B3 Beurteilung der Lösungsverfahren ADI- Mehrgitterschema- GMRES .....</b>	<b>128</b>
<b>ANHANG C .....</b>	<b>129</b>
<b>C1 Portierung des Programmcodes auf Supercomputer .....</b>	<b>129</b>
<b>C2 Modifikation des Master-Slave Konzepts .....</b>	<b>132</b>
<b>5 LITERATURVERZEICHNIS .....</b>	<b>134</b>

## Formelzeichen und Symbole

### Lateinische Buchstaben:

$\vec{A}$	Flächennormalenvektor
A	Koeffizientenmatrix
D	Reaktordurchmesser
$D_1$	Diffusionskonstante von Stoff im Fluid
$D_2$	Diffusionskonstante von Stoff in aktiver Schicht
$c_E$	Konzentration der Biomaterie
d	Aufwuchskörperdurchmesser
$\vec{e}$	Einheitsvektor
$\vec{f}$	Inhomogenität eines linearen Gleichungssystems
$K_M$	Michaelis-Menten Konstante
$k_2$	Zerfallskonstante für den Enzym/Substratkomplex
n	Zeitschritt
$\vec{n}$	Normalenvektor
p	hydrodynamischer Druck
$p_\infty$	Druck der ungestörten Strömung
$\Delta p$	Druckabfall
$ \vec{r} $	Betrag der Residuumsnorm
t	Zeit
$t_k$	konvektiver Zeitmaßstab
$t_D$	diffusiver Zeitmaßstab
$\Delta t$	Zeitinkrement
$v_\infty$	ungestörte Anströmgeschwindigkeit
$V_{\max}$	maximale Umsatzgeschwindigkeit der Biomaterie
V	Volumen
$\vec{v}$	Geschwindigkeitsvektor
$\vec{v}_c$	Korrekturgeschwindigkeit
$\vec{v}'$	Zwischengeschwindigkeit
$v_x$	Geschwindigkeit in x-Richtung

$v_y$  Geschwindigkeit in y-Richtung

$v_z$  Geschwindigkeit in z-Richtung

$x, y, z$  kartesische Koordinaten

### Griechische Buchstaben und Symbole:

$\alpha$  Druckkorrektur

$\beta$  Stoffübergangskoeffizient

$\varepsilon$  Porosität

$\dot{\varepsilon}$  Dehnrate

$\dot{\gamma}$  Scherrate

$\Theta$  skalare Feldfunktion (Stoffverteilung)

$\nabla\psi$  Gradient einer skalaren Feldgröße zur Beschreibung der Korrekturgeschwindigkeit

$\bar{\Phi}$  Lösungsvektor eines linearen Gleichungssystems

$\Gamma$  Subscript zur Kennzeichnung der Partikeloberfläche

$\mu$  dynamische Viskosität

$\nu$  kinematische Viskosität

$\underline{\nu}$  viskoser Spannungstensor

$\bar{\nu}_i$  linear unabhängiger Suchvektor

$\rho$  Dichte

$\eta$  Wirkungsgrad

$\xi, \eta, \zeta$  transformierte Koordinaten

### Dimensionslose Kennzahlen:

$Bo$  Bodensteinzahl

$Da$  Damköhlerzahl

$D_{Rf}$  Reaktionsrate

$Re$  Rohr-Reynoldszahl

$Re_p$  Partikel-Reynoldszahl

$Sh$  Sherwoodzahl

$Sc$  Schmidtzahl

$\varepsilon$  Porosität

$\Omega$  Reaktor/Partikel Durchmesser Verhältnis

**Abkürzungen:**

PVM Parallel Virtual Machine

LDA Laser-Doppler-Anemometrie



## 1 EINLEITUNG UND ZIELSETZUNG

Die vorliegende Arbeit geht aus einem Teilprojekt des Sonderforschungsbereiches 411 „Grundlagen der aeroben biologischen Abwasserreinigung“ hervor und beschäftigt sich mit der numerischen Simulation von Impuls- und Stofftransportphänomenen in Festbett-Bioreaktoren. Die Reaktoren sind gefüllt mit verschieden großen (polydispersen), kugelförmigen Trägerpartikeln, an deren Oberfläche sich biologisch aktive Materie befindet. Bei dieser Arbeit werden als Biomaterie entweder aufwachsende Biofilme oder immobilisierte Enzyme betrachtet. Die Aufwuchskörper sind in Form einer zufälligen Festbetschüttung in den Reaktor eingebracht. Dadurch entsteht eine relativ große Oberfläche im Verhältnis zum Reaktorvolumen und es können hohe Umsatzraten mit kompakten Konstruktionen erzielt werden.

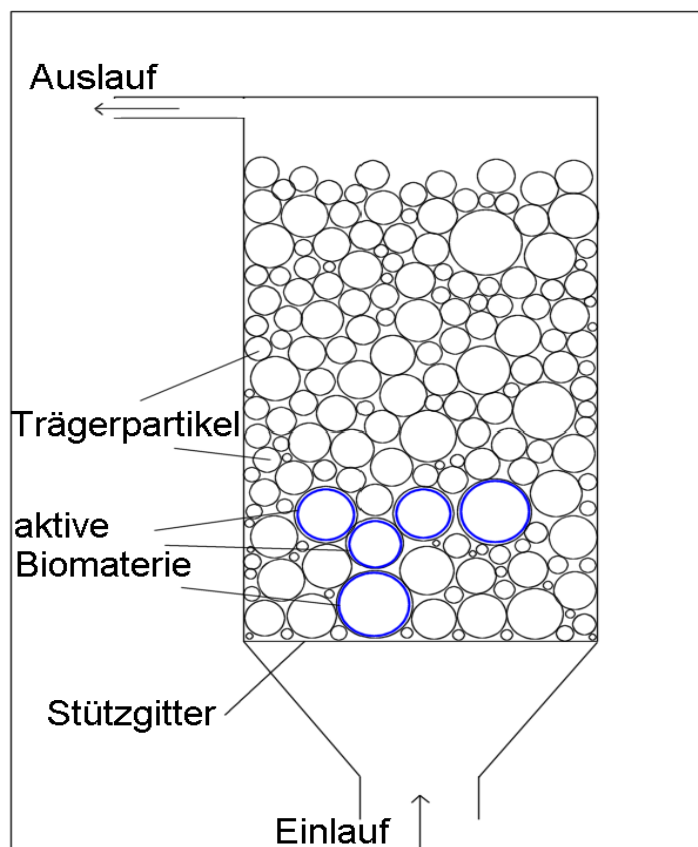


Abbildung 1-1: Prinzipieller Aufbau eines Festbett-Bioreaktors

Im praktischen Gebrauch spielen Festbett-Bioreaktoren eine wichtige Rolle in der Umweltverfahrenstechnik. Dort werden sie zur biologischen Eliminierung von Phosphat oder zur Nitrifikation bzw. Denitrifikation von Abwasser verwendet. Auch in der Lebensmittelbiotechnologie und Medizintechnik finden sie in Form von katalytischen Enzymreaktoren Einsatz. Industriell am meisten verbreitet sind wohl die Herstellung von Glucose/Fructosesirup mittels Glucoseisomerase oder die Spaltung von Milchzucker mittels Lactase, um Lactoseintoleranzen zu vermeiden. In der Medizin wird z. B. immobilisierte Urease zur Blutreinigung in der Dialysetechnik eingesetzt.

Der Kenntnisstand zur Beschreibung der Vorgänge im Reaktor beschränkt sich bisher vor allem auf chemische Reaktoren mit idealen Kugeloberflächen und ohne die Unwägbarkeiten biologischer Aktivität, siehe *Vortmeyer et al.* [1], *Eigenberger et al.* [2]. Ausgehend von experimentellen Ergebnissen wird üblicherweise der globale Strömungszustand in Festbettreaktoren durch integrale Näherungsmodelle beschrieben, wie z.B. bei *Ergun* [3] oder dem Ansatz von *Molerus* [4]. Hierbei erfolgt die Strömungsmodellierung im Festbett durch ein Kontinuumsmodell, d.h. der Reaktor wird als Ganzes betrachtet ohne die lokalen Strukturen aufzulösen. Diese Modelle werden zunehmend verfeinert, wie durch die Berücksichtigung verschiedener Porositäten, vgl. *Durst et al.* [5] oder z.B. die Klärung der vorherrschenden Strömungsform bei bestimmten Reynoldszahlen, (*Dybbs et al.* [6]). Zunehmend finden sich in der Literatur auch numerische Ansätze, die sich mit Strömungen in Festkörperschüttungen beschäftigen, *Dixon et al.* [7, 8], *Manz et al.* [9]. Dabei werden hauptsächlich Wärmetransportphänomene betrachtet.

Auch neuste Untersuchungen mit teilweise sehr aufwendigen Messtechniken von *Rottschäfer* [10], *Götz* [11] oder *Chang et al.* [12] liefern wichtige Beiträge zur Aufklärung lokaler Strömungs- und Transportvorgänge, betrachten aber ebenfalls ideale Schüttungen. Falls biologische Aktivität mit einbezogen wird, handelt es sich meist um Untersuchungen ebener Geometrien wie Platten oder Kanäle, *Schindler* [13], *Picioreanu et al.* [14].

Die fehlende Möglichkeit der zitierten Arbeiten bezüglich lokaler Auflösung und die fehlende Betrachtung der biologischen Aktivität zeigen, daß weitere Untersuchungen erforderlich sind.

Um den Kenntnisstand bezüglich der genannten Fragestellungen zu erweitern, beschäftigt sich ein gesamter Teilbereich des oben erwähnten SFB 411 mit der Simulation lokaler Vorgänge im Bioreaktor.

Die einzelnen Teilprojekte behandeln Probleme wie den Impuls- und Stoffaustausch im Biofilm selbst, sowie Vorgänge, welche beim Begasen oder Rückspülen von Reaktoren ablaufen. Diese Arbeit liefert im Rahmen eines Teilprojektes die Verknüpfung zwischen den mikroskopischen Betrachtungen des Biofilms und der globalen Charakterisierung eines Reaktors.

Eine genaue Auflösung der örtlichen Vorgänge in Verbindung mit der biologischen Aktivität erweist sich als notwendig, um die Interaktionen zwischen Strömungsmechanik und Biomaterie zu erfassen und dadurch Einfluß auf die Modellbildung und optimale Auslegung von Reaktor und Füllkörperschüttung nehmen zu können. Weiterhin lassen sich dadurch Aussagen zur optimalen Betriebsweise und Empfehlungen zum Verhalten bei Störfällen ableiten.

Als Grundlage zur Lösung dieser Problematik dient ein am Lehrstuhl für Fluidmechanik und Prozeßautomation der TU-München entwickelter Programm-Code zur Lösung der zwei- und dreidimensionalen Navier-Stokes Gleichungen für inkompressible Strömungen im Bereich niedriger und mittlerer Reynoldszahlen ( $0 < Re < 200$ ). Das verwendete Lösungsverfahren basiert auf der Methode der Finiten-Volumen und wird von *Nirschl, Nirschl et al.* [15, 16] beschrieben.

Zusätzlich ist eine von *Dougherty et al.* [17] und *Keeling et al.* [18] vorgeschlagene Chimära-Gittertechnik von *Nirschl et al.* [19] in den Löser integriert, so daß sich mit Hilfe der Überlagerung mehrerer Einzelgitter die Umströmung von beliebigen Partikelkonfigurationen simulieren läßt.

Eine Verfeinerung der Chimära-Gittertechnik durch *Debus*[20], *Debus et al.*, [21] ermöglicht insbesondere die exakte Auflösung der engen Kanäle zwischen den einzelnen Kugeln der Schüttung und damit die numerische Auflösung großer Geschwindigkeitsgradienten in der Strömung. Dies stellt auch eine besonders gute Basis dar, um die bei größeren Reynoldszahlen zu erwartende Entstehung von dünnen Reibungsschichten angemessen zu erfassen.

Die Hauptziele der Arbeit betreffen die Beschreibung der strömungsmechanischen Bedingungen und den Einfluß der Strömungsmechanik auf Stofftransport und Stoffumsatz im Reaktor.

Die Erarbeitung des erstgenannten Punktes erfordert einige Modifikationen des vorliegenden Programmcodes. Die beschriebenen Reaktortypen sind mit bis zu mehreren Millionen Einzelpartikeln befüllt, und es ist auch mit modernsten Rechnern nicht möglich, die

Gesamtheit aller Partikel zu simulieren. Unter Einbeziehung der physikalischen Gegebenheiten in Festbetten und einer Erhöhung der bisher berechenbaren Partikelanzahl können jedoch adäquate Ergebnisse erzielt werden. Dabei wird mit Hilfe moderner Lösungsalgorithmen wie Mehrgitter-Verfahren oder GMRES-Verfahren eine Verkürzung der Rechenzeit erreicht. Weiterhin erlaubt der Einsatz dieser Mittel Berechnungen für höhere Reynoldszahlen und schnellere Konvergenz.

Neben den programmiertechnischen Modifikationen behandelt der erstgenannte Punkt insbesondere die physikalischen und strömungsmechanischen Aspekte im Reaktor. Dabei ergeben sich folgende Fragestellungen:

- In welche Zonen läßt sich ein Bioreaktor einteilen?
- Wie gestaltet sich der lokale Impulsaustausch zum Biofilm bzw. zur aktiven Schicht?
- Können strömungsinduzierte, mechanische Belastungen zu Stressreaktionen der Biomaterie, zur Beschädigung des Biofilmes oder gar zur Selektion von bestimmten Mikroorganismen führen?
- Wie ist die Übertragbarkeit von Untersuchungen an Laborreaktoren auf Praxisanlagen zu beurteilen?
- Ist die Strömung im Kugelzwischenraum instabil oder gar turbulent und liegt daher eine zeitlich abhängige Belastung der Biomaterie vor?
- Wie wirken sich polydisperse Aufwuchskörper auf die Strömung aus?
- Wie beeinflusst die Oberflächenrauigkeit der Trägerpartikel den Impulstransport?

Wie oben erwähnt, besteht das zweite Hauptziel der vorliegenden Arbeit darin die Interaktion zwischen biologischer Aktivität und Strömungsmechanik in der komplizierten Geometrie einer Zufallsschüttung zu studieren. Die sich dabei ergebenden Fragestellungen sind für alle Reaktortypen sehr ähnlich. Durch die biologische Aktivität findet ein Stoffumsatz statt. Die Effektivität des Stoffumsatzes wird entweder durch die Menge an herantransportiertem Substrat oder die Schnelligkeit der biochemischen Reaktion bestimmt. Wieviel Substrat pro Zeiteinheit an die biologisch aktive Schicht herangeliefert wird, hängt stark von den Strömungsverhältnissen ab.

Um die Aspekte des Stofftransports möglichst vollständig zu beschreiben, werden folgende Fragestellungen geklärt:

- Besteht ein Zusammenhang zwischen dem lokalen Nährstofftransport und dem Biofilmwachstum, bis hin zur lokalen Reaktorverblockung durch übermäßiges Wachstum?
- Beeinflusst die Rauigkeit der in der Praxis verwendeten Aufwuchskörper den Nährstofftransport und die biochemischen Umsetzungen?
- Wie groß sind die Zonen von latenter biologischer Aktivität durch verminderten Substrattransport und wie wirkt sich dies auf die globale und lokale Effektivität des Reaktors aus?
- Lassen sich durch eine gezielte Prozeßführung aktive und passive Zonen im Reaktor vermeiden und Standzeiten erhöhen?

Eine umfassende Behandlung der genannten Aspekte mittels numerischer Simulation verdeutlicht beispielweise, daß bei der Auslegung von Reaktoren vier charakteristische Zonen berücksichtigt werden müssen. Weiterhin kann ein gleichmäßiges Verweilzeitverhalten durch den Einsatz von polydispersen Trägerpartikeln erreicht werden.

Bei der Beantwortung von Fragestellungen den zweiten Hauptteil betreffend zeigt sich, daß ein erheblicher Einfluß der Strömungsmechanik auf den Stoffumsatz besonders bei biologisch hoch aktiver Materie besteht.

## 2 MATERIAL UND METHODEN

### 2.1 Numerisches Verfahren und physikalische Annahmen

Ziel der numerischen Berechnungen ist es, Aussagen über das lokale Geschwindigkeits-, Druck-, Temperatur- und Stoffkonzentrationsfeld in einem Berechnungsgebiet zu gewinnen. Dieses Gebiet wird mittels Diskretisierung der zugrundeliegenden Gleichungen in finite Teilgebiete zerlegt. Als geeignete Verfahren haben sich die Methoden der Finiten-Elemente und der Finiten-Volumen etabliert [22].

In der vorliegenden Arbeit wird die Methode der Finiten-Volumen verwendet. Sie bietet im Zusammenhang mit der Chimära-Gittertechnik die Möglichkeit, das sehr komplizierte Berechnungsgebiet einer Festkörperschüttung mit Partikelumströmung auflösen zu können. Dabei ermöglicht die Integration über die einzelnen Teilvolumina eine Bilanz der transportierten Größen und die Konvergenz der Berechnung ist einfach zu kontrollieren.

Wie jede andere experimentelle und theoretische Methode weist der hier angewendete numerische Ansatz Grenzen auf, wenn es darum geht, Vorgänge mit charakteristischen zeitlichen und räumlichen Maßen großer Spannweite abzubilden, vgl. Abbildung 2-1. So erstreckt sich der umspannte Längenbereich von wenigen  $\mu\text{m}$  (Mikroorganismen) bis hin zu den Abmessungen eines Praxisreaktors, der im Bereich von mehreren Metern liegen kann. Die charakteristischen Zeitmaße umfassen etwa sieben Größenordnungen, beginnend mit den kinetischen Zeiten biochemischer Reaktionen, bis hin zu den Betriebszeiten von Biofilmanlagen zwischen zwei Spülvorgängen von ca. einer Woche.

Um die aus den Längenskalen resultierenden methodischen Einschränkungen zu illustrieren, wird hier derjenige numerische Aufwand abgeschätzt, der sich ergibt, wenn der gesamte Reaktor mit der Auflösung simuliert werden würde, die zur Beschreibung der mikrobiologischen Vorgänge notwendig ist. Das Volumen einer Zelle liegt in der Größenordnung von  $10^{-18}\text{m}^3$ , so daß für einen Praxisreaktor eine Gesamtzellzahl von  $10^{19}$  angenommen werden kann. Das Studium des Verhaltens jeder einzelner Zelle würde bei einer

Untersuchungszeit von nur einer Millisekunde - ungeachtet dessen, dass dies schon aus statistischen Erwägungen wohl nur wenig Sinn ergibt - etwa dreihundert Millionen Jahre beanspruchen. Abbildung 2-1 zeigt den großen Bereich der in einem Bioreaktor vorkommenden Längenabmessungen.

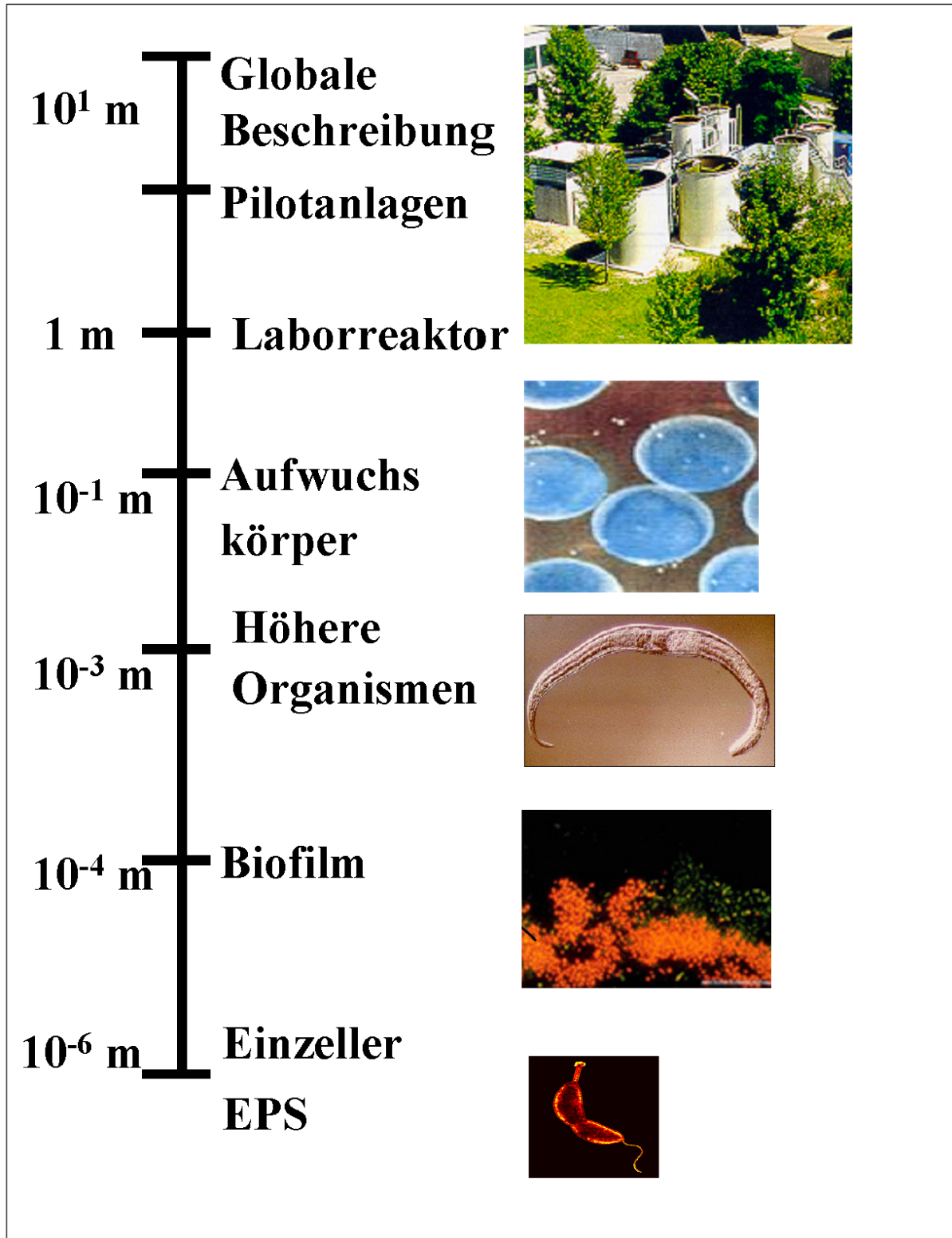


Abbildung 2-1: Die verschiedenen Größenmaßstäbe in einem Festbett-Bioreaktor

Wegen der Problematik den gesamten Bereich abbilden zu können, konzentrieren sich die hier vorgenommenen Untersuchungen auf Längenskalen in der Größenordnung der Aufwuchskörper. In diesem Längenmaßstab ist es möglich, nicht nur die lokalen Strömungsprozesse im Aufwuchskörperzwischenraum, sondern zugleich auch das Strömungsverhalten von Aufwuchskörperagglomeraten, vollständige Laborreaktoren und sogar Praxisreaktoren zu simulieren. Die Beeinflussung der lokalen Strömung bzw. des lokalen Impulsaustausches durch einzelne Mikroorganismen, Makroinvertebraten oder Kolonien bleibt wegen des Problems einer umfassenden räumlichen Auflösung außer Betracht. Indessen werden die Transportprozesse zum Biofilm eingehend simuliert.

Für die erfolgte Simulation gelten folgende Annahmen:

- stationäre, isotherme Strömung
- inkompressibles, newtonsches Medium
- keine Auftriebskonvektion
- kleine Strömungsgeschwindigkeiten (laminar)
- vernachlässigbare strömungsbedingte Dissipation mechanischer Energie
- starre Aufwuchskörper bzw. Teilchen
- ortsfeste Aufwuchskörper
- Aufwuchskörper elektrisch neutral und inert
- Aufwuchskörper überall von Flüssigkeit umgeben
- Der Biofilm bzw. die Enzymschicht an der Oberfläche wird als homogen (ohne Kanalbildung und Poren) betrachtet.

## 2.2 Erhaltungsgleichungen

Grundlegend für die numerischen Berechnungen sind die Navier-Stokesschen Bewegungsgleichungen in den drei Raumrichtungen. Es handelt sich hierbei um nichtlineare, partielle Differentialgleichungen. Diese beschreiben den Transport von Impuls in einem geschlossenen System. Zusätzlich zur den Navier-Stokes Gleichungen erfolgt die gekoppelte Lösung der Kontinuitäts- und Transportgleichung für skalare Größen. Sie beschreiben den Erhalt von Masse und Größen wie z.B. Stoffkonzentrationen. Die Gleichungen lauten für ein



Mehrkomponentengemisch (z. B. Fluid und gelöster Stoff) in allgemeiner vektorieller Schreibweise in integraler Form:

1. Kontinuitätsgleichung des Fluids (Komponente 1):

$$\rho \iint_A \vec{v} \cdot d\vec{A} = 0, \quad (2-1)$$

2. Kontinuitätsgleichung für Stoff (Komponente 2):

$$\iint_A \Theta \cdot \vec{v} \cdot d\vec{A} = 0, \quad (2-2)$$

3. Impulsgleichung:

$$\iiint_V \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} dV + \iint_V \vec{v} \cdot \nabla \vec{v} dV = - \frac{1}{\rho} \iint_A p d\vec{A} + \nu \iint_A \nabla \vec{v} \cdot d\vec{A}, \quad (2-3)$$

4. Skalare Transportgleichung:

$$\iiint_V \frac{\partial \Theta}{\partial t} dV + \iint_V \vec{v} \cdot \nabla \Theta dV = D_1 \iint_A \nabla \Theta d\vec{A}. \quad (2-4)$$

Sie sind für ein kartesisches Koordinatensystem  $x$ ,  $y$  und  $z$  formuliert, wobei  $\vec{v} = (v_x, v_y, v_z)$  den Geschwindigkeitsvektor,  $p$  den Druck und  $\Theta$  eine skalare Feldgröße wie Stoffkonzentration in  $\text{mol/m}^3$  bezeichnet. Die Symbole  $\nu$  und  $\rho$  stehen für die kinematische Viskosität und die Dichte. Die Größe  $D_1$  kann als Diffusionskonstante von gelöstem Stoff im Fluid interpretiert werden.

## 2.3 Anfangs und Randbedingungen

Die Lösung von elliptischen Differentialgleichungen erfordert die Formulierung von Anfangs- und Randbedingungen im gesamten Berechnungsgebiet. Die Anfangsbedingungen

beschreiben die Feldgrößen zur Zeit  $t = 0$ . Die Randbedingungen stellen Funktionen dar, die die Grundgleichungen auf einer geschlossenen Kurve für beliebige Zeiten erfüllen müssen.

Die Formulierung der Randbedingungen hat für den Ein- und Auslauf sowie für die Wand zu erfolgen. Der Wahl der Einströmbedingungen kommt bei der Strömungssimulation in Bioreaktoren besondere Bedeutung zu.

In [20] wird gezeigt, daß die Lösung bei der Vorgabe einer Bezugsgeschwindigkeit  $v_z = 1$ ,  $v_x = 0$ ,  $v_y = 0$  divergiert. Da bei der Durchströmung von Reaktoren der Druckabfall von besonderem Interesse ist, bietet sich die Möglichkeit, einen Druckgradienten zur Initialisierung des Strömungsfeldes anzugeben. So wird ein linearer Druckverlauf  $p_{\text{Ein}} - p_{\text{Aus}}/L$  für den Berechnungsbereich als Anfangsverteilung der Iteration gesetzt. Dabei bedeutet  $L$  die axiale Ausdehnung des Reaktors. Die entsprechende Geschwindigkeit kann somit  $v_x = v_y = v_z = 0$  gesetzt werden, so daß sich innerhalb der ersten dimensionslosen Zeitschritte (Iterationsachse) bei der Lösung der Strömungsgleichungen das Geschwindigkeitsprofil moderat ausbilden kann.

Für den Auslauf wird eine Neumann-Bedingung verwendet, d.h. keine Änderung der Geschwindigkeiten,  $\partial \bar{v} / \partial z = 0$ . Dabei kennzeichnet  $z$  die axiale Koordinate im Reaktor. Die Druck-Randbedingung am Einlauf ergibt sich durch den aufgebrauchten Druckgradienten zu  $p_{\text{Ein}}$ .

Unter der Annahme, daß weit von der Schüttung entfernt der Druck am Auslauf wieder konstant ist, bleibt die Druckänderung in diesem Bereich konstant. An der Partikeloberfläche und der Wand gilt die Haftbedingung mit den Geschwindigkeitskomponenten  $v_z = 0$ ,  $v_x = 0$ ,  $v_y = 0$ . Die Koordinaten normal zur Wand bzw. zur Partikeloberfläche werden mit  $\eta$  und  $\xi$  gekennzeichnet. Die Ableitungen des Druckes werden dort gemäß der Grenzschichttheorie gleich 0 gesetzt

Zur Berechnung von Strömungen mit mehreren Komponenten wird zunächst die Stoffkonzentration im gesamten Strömungsfeld gleich null gesetzt. Randbedingung ist die Einlaufkonzentration für den gelösten Stoff. An den Wänden und der Partikeloberfläche wird die Stoffkonzentration des umgebenden Fluids übernommen.

Tabelle 2-1 zeigt die Randbedingungen für Geschwindigkeit, Druck und Stoff für die Berechnungen in einem Reaktor.

Tabelle 2-1: Randbedingungen für Geschwindigkeit, Druck und Stoff

	Einlauf	Auslauf	Wand	Partikel
Geschwindigkeit	$\frac{\partial \vec{v}}{\partial z} = 0$	$\frac{\partial \vec{v}}{\partial z} = 0$	$\vec{v} = 0$	$\vec{v} = 0$
Druck	$p = p_{\text{Ein}}$	$\frac{\partial p}{\partial z} = 0$	$\frac{\partial p}{\partial \eta} = 0$	$\frac{\partial p}{\partial \xi} = 0$
Stoff	$\Theta = \Theta_{\text{Ein}}$	$\frac{\partial \Theta}{\partial z} = 0$	$\frac{\partial \Theta}{\partial \eta} = 0$	$\frac{\partial \Theta}{\partial \xi} = 0$

## 2.4 Modellbildung und Implementierung einer Stoffaustauschkinetik

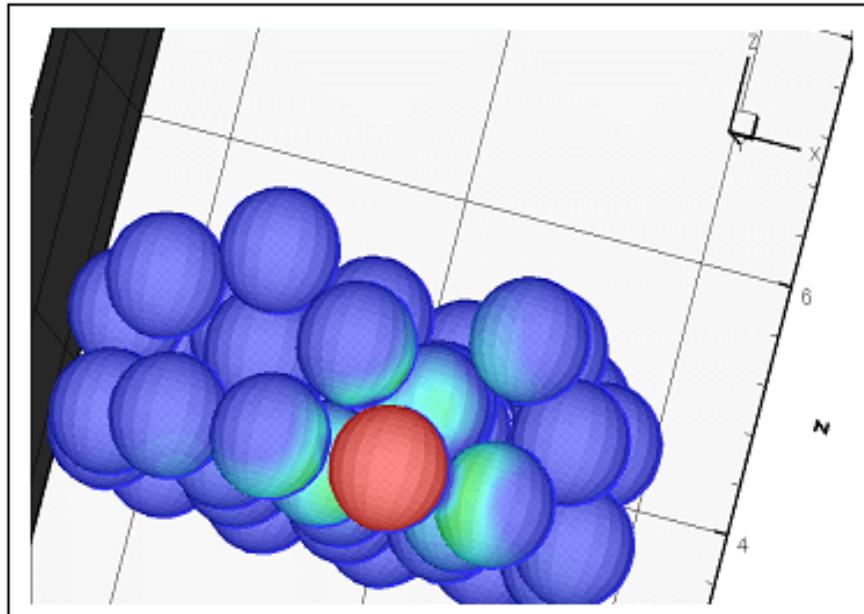
Ziel dieses Abschnitts ist die Beschreibung der mathematischen Kopplung von fluiddynamischen Prozessen und Stofftransport, um einen Reaktor vollständig charakterisieren zu können. Kriterien für die Charakterisierung sind der Einfluß des externen Stofftransports auf die Produktivität, die latente Aktivität, die Detektion aktiver und passiver Zonen bezüglich des Reaktionsablaufs im Reaktor, und die Bestimmung von Inhomogenitäten in der Substrat- und Produktverteilung.

Zunächst wird dazu der Einfluß des externen Transports von im Trägerfluid gelöstem Substrat hin zur Oberfläche der Biomaterie auf die Produktivität ermittelt. Die Viskosität des Trägerfluids wird während des Umsatzes als konstant angesehen. Die Produktivität ist definiert als die prozentuale Konvertierungsrate von Substrat in Produkt bei gegebener Reaktorkonfiguration und Biomaterienkonzentration. Der Transport von Substrat wird durch das dynamische Verhalten des Trägerfluids (Konvektion) und durch Diffusion bestimmt. Weitere, die Produktivität beeinflussende, Parameter sind die kinetischen Kenndaten der Biomaterie.

In der vorliegenden Arbeit wird eine Michaelis-Menten bzw. Monod-Kinetik als Modell zur Beschreibung des Substratumsatzes verwendet. In ihr treten die Michaelis-Menten Konstante  $K_M$  und eine maximale Reaktionsrate  $V_{\text{Max}}$  auf. In der Berechnung können die für die betrachtete Biomaterie spezifischen Werte übernommen werden. Im Sinne einer allgemeinen mathematischen Behandlung des Transports werden die Parameter vorab nicht auf bestimmte

biologische Systeme festgelegt. Der daraus resultierende Vorteil besteht in der Untersuchung einer großen Bandbreite kinetischer Reaktionen.

Resultat der mathematischen Analyse der Substratumsetzung in Kopplung mit strömungsmechanischen Transportprozessen ist eine raum-zeitlich aufgelöste Darstellung der Substrat- und Produktkonzentrationen. Abbildung 2-2 zeigt beispielhaft, wie mittels Simulation eine inhomogene Verteilung eines Stoffs visualisiert werden kann.



**Abbildung 2-2: Inhomogene Stoffverteilung im Festbett**

Das mathematische Modell basiert auf folgender Überlegung: Die Biomaterie ist in einer Schicht endlicher Dicke auf der Trägeroberfläche aufgebracht, wo die Reaktion stattfindet. Der Stoffumsatz ist durch Diffusion und Reaktion sowie durch die an diese Schicht gestellten Randbedingungen bestimmt. Die Randbedingungen lauten zum einen, daß der Massenfluss in die Trägeroberfläche hinein unterbunden ist. Zum andern herrscht am Übergang zwischen beiden Schichten die Bedingung eines kontinuierlichen Massenaustauschs. Masse darf an dieser Stelle weder entstehen noch verschwinden. Hieraus lassen sich von-Neumann Randbedingungen ableiten.

Im Strömungsgebiet findet Stofftransport durch Konvektion und Diffusion statt. Das Fluid hat eine konstante Dichte und Viskosität. Diese Annahmen sind gerechtfertigt, solange die Umsatzreaktion diese Stoffwerte nur in geringem Maße beeinflusst. Dies gilt beispielsweise für Isomerisierungsreaktionen (Glucoseisomerase). Des weiteren gilt die Randbedingung des

kontinuierlichen Massenflusses. Als kinematische Randbedingung für das Fluid ist Haften an der Wand realisiert, vgl. auch Tabelle 2-1. In Abbildung 2-3 sind die Grundgedanken der Modellierung graphisch dargestellt.

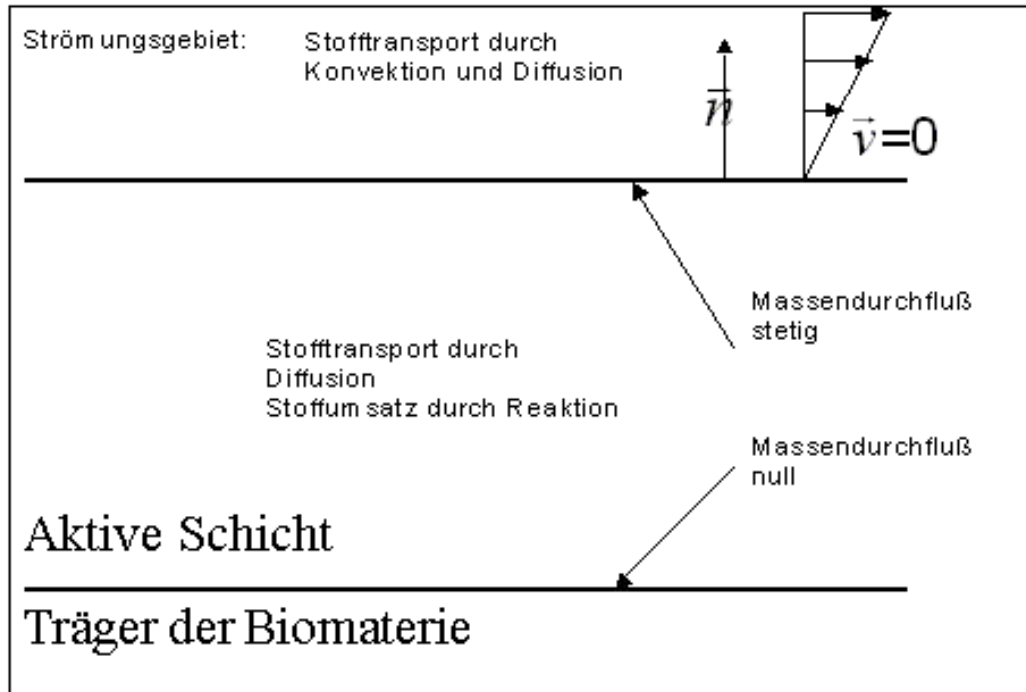


Abbildung 2-3: Modellbildung am Beispiel einer enzymatischen Umsetzung

Die numerische Lösung der Stofftransportgleichung erfolgt nach zu dem in Kapitel 2.1 beschriebenen Verfahren. Dabei werden die Gradienten der Konzentrationen über zentrale Differenzen approximiert. Ebenso geschieht dies für den Laplace-Operator im Diffusionsterm der rechten Seite. Die für den konvektiven Transport maßgebliche Strömungsgeschwindigkeit stammt aus der simultan berechneten Lösung der Navier-Stokes Gleichungen.

In der biologisch aktiven Schicht erfolgt, bedingt durch die Anwesenheit von Biomaterie, die Umsetzung von Substrat in Produkt. Die Umsatzgeschwindigkeit wird entscheidend durch die Substrat- und Produktkonzentrationen in dieser Schicht bestimmt. Zur mathematischen Modellierung der Umsatzkinetik wird ein Michaelis-Menten- bzw. Monod-Modell verwendet. In der Literatur gelten diese Modelle als Standard zur Beschreibung vieler enzym- und biotechnologischer Umsatzreaktionen, siehe *Bailey et al.* [23]. Die differentielle Form der Kinetik lautet:

$$\frac{\partial \Theta_S}{\partial t} = \frac{k_2 c_E \Theta_S}{K_m + \Theta_S}, \quad \frac{\partial \Theta_P}{\partial t} = -\frac{\partial \Theta_S}{\partial t}, \quad (2-5, 2-6)$$

wobei  $k_2$  die Zerfallskonstante des Enzym-Substrat-Komplexes,  $c_E$  die Enzymkonzentration und  $K_m$  die Michaelis-Menten Konstante ist. Die Michaelis-Menten Konstante gibt den Wert der Substratkonzentration bei halbmaximaler Umsatzgeschwindigkeit an und beschreibt so die Affinität von Biomaterie zu Substrat. Die Zerfallskonstante von Enzym-Substrat-Komplex, multipliziert mit der Enzymkonzentration, ergibt die maximal mögliche Umsatzgeschwindigkeit  $V_{\max}$  unabhängig von der Substratkonzentration an.

$$V_{\max} = k_2 * C_e \quad (2-7)$$

Die Produktbildung ergibt sich nach Gleichung (2-6) aus der Abnahme des Substrats. Eine Produkthemmung wird aus Gründen der einfacheren mathematischen Behandlung zunächst nicht berechnet.

Um den Stoffumsatz mit dem Stofftransport zu koppeln, wird zusätzlich zu den Erhaltungsgleichungen (2-1, 2-2, 2-3, 2-4) eine weitere Gleichung mit dem kinetischen Ansatz nach Michaelis-Menten, vgl. Gleichung (2-5), als Senkenterm eingeführt.

$$\iiint_V \frac{\partial \Theta}{\partial t} dV = D_2 \iint_A \nabla \Theta d\bar{A} + \iiint_V \frac{V_{\max} \Theta}{K_m + \Theta} dV \quad (2-8)$$

Dabei ist  $D_2$  die Diffusionskonstante von gelöstem Stoff in der Biomaterie.

Gleichung (2-8) entspricht vom Aufbau der Stofftransportgleichung (2-4) ohne den konvektiven Anteil des Stofftransports. Da in der biologisch aktiven Schicht Stoff nur durch Diffusion transportiert wird, ist es zulässig, den konvektiven Anteil zu vernachlässigen.

Die physikalische Kopplung der beiden Gleichungen (2-4) und (2-8) erfolgt über die Bedingung:

$$\beta(\Theta_{Ein} - \Theta_{Oberfläche}) = -D_2 \frac{\partial \Theta}{\partial \eta}. \quad (2-9)$$

Dabei steht  $\beta$  für den Stoffübergangskoeffizienten.

Gleichung (2-9) sagt aus, daß an der Berandung der aktiven Schicht die vom Fluid herantransportierte Stoffmenge gleich dem Diffusionsstrom in das innere der aktiven Schicht ist.

Bei simultaner Berechnung von Impulsaustausch und Stofftransport ergibt sich die Problematik, daß beide Vorgänge auf unterschiedlichen Zeitskalen stattfinden. In realen Systemen kann der Stoffaustausch bis zu 1000 mal langsamer ablaufen als der Impulsaustausch. Besonders die Diffusion in der aktiven Schicht mit Diffusionskonstanten im Bereich von  $10^{-9}$  verlangsamt den Prozeß.

Einen Ausweg aus dieser Problematik liefert die entkoppelte Berechnung des Geschwindigkeits- und Konzentrationsfeldes. Bei niedrigen Stoffkonzentrationen kann man davon ausgehen, daß die Strömungsmechanik den Stofftransport beeinflusst, aber das Konzentrationsfeld, bei hinreichend kleinen Konzentrationen, keinen signifikanten Einfluß auf das Strömungsfeld hat.

Bei der Durchführung von Simulationen wird deswegen zuerst das Strömungsfeld bestimmt und in einem zweiten Schritt die zeitliche Verteilung der Stoffkonzentration. Diese Vorgehensweise bietet neben der physikalischen Entkopplung auch einen großen zeitlichen Vorteil. Bei Parametervariationen, die das biologische System oder Einlaufkonzentrationen betreffen, muß das Strömungsfeld nur einmal berechnet werden und dient dann als Eingabedatei für die jeweilige Simulation des Stofftransportes. Die Simulationszeiten werden dadurch etwa um den Faktor 8 verkürzt.

## 2.5 Dimensionslose Form der verwendeten Gleichungen

Der Impuls- und Stoffaustausch im Bioreaktor hängt von einer Vielzahl von Einzelparametern ab. Durch die Gruppierung der verschiedenen Einflußparameter zu dimensionslosen Kennzahlen ist es möglich, ihre Anzahl zu verringern ohne Informationen über das Problem zu verlieren. Eine genaue Beschreibung der Vorgehensweise bei der Dimensionsanalyse findet man z. B. bei *Stichlmair* [24]. Es gibt prinzipiell mehrere Möglichkeiten, komplette Sätze von Kennzahlen für einen naturwissenschaftlichen Sachverhalt zu finden:

- aus algebraischen Gleichungen
- aus Differentialgleichungen
- aus Relevanzlisten

In den nächsten beiden Kapiteln werden die Möglichkeiten der Gewinnung aus Relevanzlisten und Differentialgleichungen vorgestellt.

### 2.5.1 Entdimensionierung der Kontinuitäts- und Navier-Stokes Gleichung

Dieses Kapitel beschreibt die Vorgehensweise zur Entdimensionierung der Differentialgleichungen (2-1, 2-2, 2-3).

Dazu werden die in den Gleichungen vorkommenden Variablen auf charakteristische Größen der zugrundeliegenden Geometrie oder Strömungsphysik bezogen.

Die Längenabmessungen werden auf eine charakteristische Größe der Geometrie bezogen, wie z.B. ein Partikeldurchmesser oder der durchschnittliche Durchmesser eines Partikelkollektivs. Die mit \* gekennzeichneten Größen bezeichnen in dieser Arbeit immer dimensionsbehaftete Zahlen. Demgemäß lassen sich die kartesischen Koordinaten wie folgt transformieren:

$$\begin{aligned}x &= x^*/d, \\y &= y^*/d, \\z &= z^*/d.\end{aligned}\tag{2-10}$$



Dabei bedeutet  $d$  den Partikeldurchmesser (bei polydispersen Schüttungen den gemittelten Durchmesser).

Der Geschwindigkeitsvektor  $\vec{v}^*$  wird mit einer ungestörte Anströmgeschwindigkeit  $U_\infty$  gebildet. Der Spannungstensor  $\underline{v}^*$  und der Druck  $p^*$  werden mit einem fiktiven Staudruck mit  $U_\infty$  gebildet und auf die Dichte  $\rho$  des umgebenden Fluides bezogen.

$$\vec{v} = \frac{\vec{v}^*}{U_\infty}, \quad \underline{v} = \frac{\underline{v}^*}{\rho^* U_\infty^2}, \quad p = \frac{p^* - p_\infty^*}{\rho^* U_\infty^2}. \quad (2-11, 2-12, 2-13)$$

Als charakteristische Größe für den zeitlichen Verlauf ist der Zeitmaßstab des Systems zu betrachten. Er läßt sich in dimensionsloser Form sowohl als konvektiver als auch als konduktiver Maßstab betrachten.

1. Konvektiver Zeitmaßstab:

$$t_k = \frac{t^* U_\infty}{d}. \quad (2-14)$$

2. Konduktiver Zeitmaßstab:

$$t_d = \frac{t^* \nu}{d^2}. \quad (2-15)$$

Bei der Berechnung des Durchströmungsprozesses haben die Scher- bzw. Dehnraten große Bedeutung. Diese Verformungsgrößen schreiben sich in dimensionsloser Form wie folgt:

$$\dot{\gamma} = \frac{\dot{\gamma}^* d}{U_\infty}, \quad \dot{\epsilon} = \frac{\dot{\epsilon}^* d}{U_\infty}. \quad (2-16, 2-17)$$

Werden bei den nachfolgend dargestellten Berechnungen andere Bezugsgrößen eingesetzt, wie beispielsweise der Rohrdurchmesser oder die mittlere Rohrgeschwindigkeit, so wird an der jeweiligen Stelle darauf explizit hingewiesen.

Beim Einsetzen der oben angeführten Beziehungen in die Grundgleichungen ergibt sich das folgende dimensionslose Gleichungssystem in integraler Form:

$$\iint_A \vec{v} \cdot d\vec{A} = 0, \quad (2-18)$$

$$\iint_A \Theta \cdot \vec{v} \cdot d\vec{A} = 0, \quad (2-19)$$

$$\iiint_V \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} dV + \iiint_V \vec{v} \cdot \nabla \vec{v} dV = - \iint_A p d\vec{A} + \frac{1}{\text{Re}} \iint_A \nabla \vec{v} \cdot d\vec{A}, \quad (2-20)$$

### 2.5.2 Entdimensionierung der Stofftransportgleichung

Dieser Abschnitt beschreibt die Möglichkeit der Gewinnung von dimensionslosen Kennzahlen aus Relevanzlisten. Der entscheidende Punkt bei dieser Vorgehensweise ist es, alle Einflußparameter des Problems zu kennen, und bei der Aufstellung einer Relevanzliste zu berücksichtigen, siehe auch [24]. Die zugrunde liegenden Gleichungen müssen nicht unbedingt bekannt sein. Wie am Ende dieses Abschnitts gezeigt wird, können die aus der Relevanzliste gewonnenen Kennzahlen auch direkt aus den beschreibenden Differentialgleichungen gewonnen werden, vgl. Kapitel 2.5.1.

Die folgende Tabelle erhält in der ersten Zeile die für den Stoffumsatz relevanten Größen, die erste Spalte zeigt die Basiseinheiten (Länge L, Zeit T, Masse M) der Größen. Die Anzahl der dimensionslosen Kennzahlen ergibt sich aus:

$$N_{\text{Dimlos}} = N_{\text{Einflussparameter}} - N_{\text{Basiseinheiten}} \quad (2-21)$$

Tabelle 2-2: Relevanzliste für die Dimensionsanalyse

	D	$U_{\infty}$	$D_1$	$D_2$	$K_M$	$\Theta_0$	$V_{\max}$	$\nu$
L	1	1	2	2	-3	-3	-3	2
T	0	-1	-1	-1	0	0	-1	-1
M	0	0	0	0	1	1	1	0

Dabei ist  $d$  der Partikeldurchmesser des Trägerkörpers,  $\nu$  die Fluidgeschwindigkeit,  $D_1$  und  $D_2$  die Diffusionskonstanten von Substrat im Fluid bzw. in der biologisch aktiven Materie,  $\Theta_0$  die Einlaufkonzentration,  $K_M$  die Michaelis-Menten Konstante des Enzymsystems,  $\nu$  die kinematische Viskosität des Fluids,  $V_{\max}$  die maximal mögliche Umsatzrate der Biomaterie und  $U_{\infty}$  die ungestörte Einströmgeschwindigkeit.

In dem Parameter  $V_{\max}$  sind die Größen Biofilmdichte bzw. Enzymkonzentration und, im Fall eines Bioreaktors, maximal mögliche Biofilmwachstumsraten und realer Biomassenzuwachs zusammengefasst. In den durchgeführten Simulationen bleiben diese Größen konstant und lassen sich deswegen in einem Wert zusammenfassen. Dieser Parameter ist neben  $K_M$  von großer Wichtigkeit, um die Simulation auf verschiedene Enzym- bzw. Biofilmsysteme zu adaptieren, weil diese Werte das System charakterisieren und dessen Affinität zu einem bestimmten Substrat festlegen.

Nach den erforderlichen Äquivalenztransformationen von Tabelle 2-2 erhält man die Einheitsmatrix, vgl. Tabelle 2-3 mit den ‚freien Größen‘ und eine Restmatrix mit den gebundenen Größen‘ über der Matrix, vgl. Abbildung 2-4.

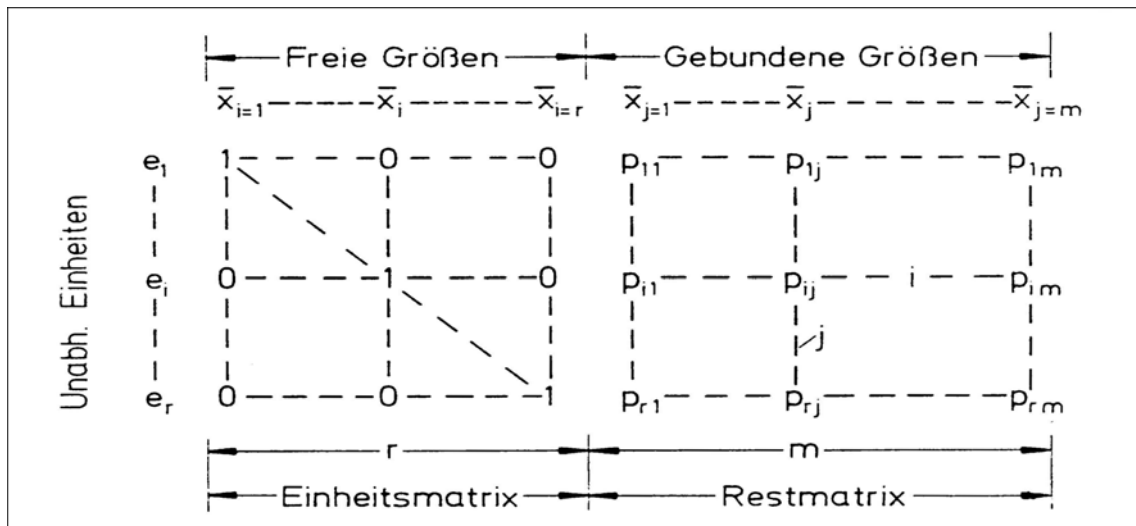


Abbildung 2-4: Normierte Form der Dimensionsmatrix nach [24]

Bei dieser Darstellungsform wird unterstellt, daß die Größen a priori in die Größen  $\bar{x}_i$  mit unabhängigen Einheiten und die Größen  $\bar{x}_j$  mit abhängigen Einheiten unterteilt werden können.

Tabelle 2-3: Relevanzliste für die Dimensionsanalyse nach den Äquivalenztransformationen

	D	D/U <sub>∞</sub>	D <sup>3</sup> /K <sub>M</sub>	D <sub>1</sub>	D <sub>2</sub>	Θ <sub>0</sub>	V <sub>max</sub>	v
L	1	0	0	2	2	-3	-3	2
T	0	1	0	-1	-1	0	-1	-1
M	0	0	1	0	0	1	1	0

Mit der Rechengvorschrift:

$$\pi_j = \frac{\bar{x}_j}{\sum_{i=1}^r \bar{x}_i^{p_{ij}}} \quad \text{mit } j=1 \text{ bis } m. \quad (2-22)$$

lassen sich die dimensionslosen Kennzahlen des Systems bilden. Die Anzahl der gebundenen Größen wird durch m dargestellt. Für das gegebene Problem erhält man insgesamt 5 Zahlen, die mittels Potenzprodukten untereinander umgewandelt werden können, da das Potenzprodukt von dimensionslosen Gruppen wiederum dimensionslos ist. Die Kennzahlen des Problems sind bei der Beschreibung der Impulstransports üblichen Form dargestellt:

$$\pi_1 = \frac{d * U_\infty}{\nu} = Re \text{ (Reynoldszahl)}, \quad (2-23)$$

$$\pi_2 = \frac{d * U_\infty}{D_1} = Bo_1 \text{ (Bodensteinzahl 1)}, \quad (2-24)$$

$$\pi_3 = \frac{d * U_\infty}{D_2} = Bo_2 \text{ (Bodensteinzahl 2)}, \quad (2-25)$$

$$\pi_4 = \frac{\Theta_0}{K_M} = \Theta_{S_0} \text{ (dimensionslose Einlaufkonzentration)}, \quad (2-26)$$

$$\pi_5 = \frac{V_{\max} * d}{K_M * U_\infty} = D_{Rr} \text{ (dimensionslose Reaktionsrate)}. \quad (2-27)$$

Diese Zahlen bilden die Grundlage für die Beschreibung des Stofftransports. Zu Beginn der Simulation werden ihre Werte als Eingabebedingungen festgeschrieben. In Abhängigkeit von diesen Größen stellt sich im Laufe der Simulation ein bestimmter Stoffumsatz und die dazugehörige Konzentrationsverteilung im Bioreaktor ein.

Die Kennzahlen aus den Gleichungen (2-26 bis 2-30) können auch durch Entdimensionierung der Differentialgleichungen (2-4) und (2-8) gewonnen werden. Bei entsprechender Vorgehensweise erhält man:

$$\iiint_V \frac{\partial \Theta}{\partial t} dV + \iiint_V \vec{v} \cdot \nabla \Theta dV = \frac{1}{Bo_1} \iint_A \nabla \Theta d\vec{A}, \quad (2-28)$$

$$\iiint_V \frac{\partial \Theta}{\partial t} dV = \frac{1}{Bo_2} \iint_A \nabla \Theta d\vec{A} + D_{Rr} \iiint_V \frac{\Theta}{1 + \Theta} dV. \quad (2-29)$$

### 2.5.3 Beschreibung der dimensionslosen Kennzahlen

Der in den vorherigen Kapiteln hergeleitete Satz an dimensionslosen Kennzahlen erlaubt die vollständige Beschreibung des Impuls- und Stoffaustausches im Bioreaktor. Durch die Überführung der dimensionsbehafteten Navier-Stokes Gleichung in die dimensionslose Form ergibt sich zunächst die Partikel-Reynoldszahl  $Re_p$  zur strömungsmechanischen Charakterisierung des Systems.

$$Re_p = \frac{U_\infty d}{\nu}. \quad (2-30)$$

Die Partikel-Reynoldszahl gibt das Verhältnis von Trägheits- und Zähigkeitskräften in der Strömung an. Ihr Wert dient zur Beschreibung des laminar – turbulenten Umschlagpunktes, siehe auch Kapitel 3.1.1.

Bei der Beschreibung von Reaktoren treten als weitere dimensionslose Kennzahlen das Durchmesser Verhältnis  $\Omega$  und die Porosität  $\varepsilon$  auf.

$$\Omega = \frac{\text{Aufwuchspartikeldurchmesser}}{\text{Reaktordurchmesser}}. \quad (2-31)$$

Das Durchmesser Verhältnis ist eine wichtige Kennzahl zur Charakterisierung des Verweilzeitverhaltens von Reaktoren.

Die Porosität ist definiert als:

$$\varepsilon = \frac{V_H}{V_{Ges}}. \quad (2-32)$$

Dabei ist  $V_H$  der Hohlraumvolumenanteil,  $V_{Ges}$  das gesamte Volumen des betrachteten Reaktors. Die Bedeutung der Porosität und des Durchmesser Verhältnisses auf das Reaktorverhalten werden in Kapitel 3.1.4 näher erläutert.

Die Ausführungen in Kapitel 2.3 beschreiben, daß der Druckgradient  $dp/dz$  als Anfangsbedingung für die Simulation verwendet wird. Aufgrund des vorgegebenen Druckabfalls über die Schüttungslänge stellt sich das Geschwindigkeits- und Druckfeld im Reaktor ein.

Aufgrund des Massenerhalts ist bei einer konvergenten Berechnung der Volumenstrom entlang der vertikalen Horizontalen Reaktorachse konstant. Der Reaktor lässt sich in Schichten mit einer bestimmten Dicke aufteilen. Die Dicke einer Schicht errechnet sich aus der Reaktorlänge dividiert durch die Anzahl der Gitterpunkte in vertikaler Richtung. Nach der Kontinuitätsgleichung (2-2) ist der einströmende Massenstrom in eine Schicht gleich dem ausströmenden Massenstrom.

$$\rho \iint_A \vec{v}_{Ein} d\vec{A} = \rho \iint_A \vec{v}_{Aus} d\vec{A} . \quad (2-33)$$

Eine über den Querschnitt gemittelte dimensionslose Axialgeschwindigkeit  $\bar{v}_z$  erhält man durch folgende Rechenvorschrift:

$$\sum_{i=1}^{i=ni*nj} \frac{v_z A_z}{A} = \bar{v}_z . \quad (2-34)$$

Dabei ist A die Querschnittsfläche des Reaktors. Die Aufsummierung von  $i = 1$  bis  $i = ni * nj$  bedeutet, daß über alle Kontrollvolumina einer horizontalen Schicht gemittelt wird. Mit der gemittelten dimensionslosen Axialgeschwindigkeit  $\bar{v}_z$  kann eine Reynoldszahl bestimmt werden, die sich entsprechend des aufgetragenen Druckgradienten ausbildet. Im Programm wird die Reynoldszahl mit dem Reaktordurchmesser gebildet. Durch Division mit dem Durchmesser Verhältnis, siehe Gleichung (2-31), ergibt sich eine ‚neue‘ Partikel-Reynoldszahl.

$$\text{Re}_p = \frac{\bar{v}_z d}{\nu} . \quad (2-35)$$

Die in Gleichung (2-30) definierte Partikel-Reynoldszahl wird beim Start der Simulation mit dem Wert **1** belegt und ändert sich während der Berechnung nicht. Sie ist physikalisch als Viskositätsverhältnis zu interpretieren. Um die dimensionslosen Werte wie Geschwindigkeit, Schubspannung oder Druck in dimensionsbehaftete Größe überführen zu können, müssen diese mit der ungestörten Anströmgeschwindigkeit  $U_\infty$  multipliziert werden, siehe Gleichungen (2-11, 2-12, 2-13). Setzt man in Gleichung (2-30) die gewünschten Werte für ein reales Fluid bzw. Partikeldurchmesser kann  $U_\infty$  nach folgender Vorschrift berechnet werden:

$$U_{\infty} = \text{Re}_P \frac{v}{d}. \quad (2-36)$$

Durch Multiplikation von  $\bar{v}_z$  mit  $U_{\infty}$  wird eine dimensionsbehaftete gemittelte Geschwindigkeit ermittelt. Multipliziert man die dimensionslosen Werte der Geschwindigkeit an den jeweiligen Stellen des errechneten Strömungsfeldes mit  $U_{\infty}$  so kann das gesamte Feld in dimensionsbehaftete Größen umgerechnet werden. Analog wird bei der Dimensionierung des Druckes und der Spannungen vorgegangen.

Alle in den folgenden Abbildungen dimensionslos angegebenen Größen werden mit dieser Vorgehensweise in reale Werte umgerechnet.

Die in den Gleichungen (2-24) und (2-25) dargestellte Bodensteinzahl  $Bo$  lässt sich als das Verhältnis zwischen konvektivem Stofftransport zur Stoffdiffusion interpretieren. Sie ergibt sich auch aus einer Verknüpfung der Schmidtzahl mit der Reynoldszahl

$$Bo = \text{Re} \cdot Sc, Sc = \frac{v}{D}. \quad (2-37)$$

Die Indizes 1 und 2 bei den Gleichungen (2-24) und (2-25) für die Bodensteinzahl beziehen sich auf die Formulierung der Kennzahl außerhalb und in der aktiven Schicht.

Die dimensionslose Reaktionsrate  $D_{Rr}$ , siehe Gleichung (2-27), legt in Form eines Eingabeparameters die Aktivität der Biomaterie fest. Eine große dimensionslose Reaktionsrate bedeutet hohe Umsatzgeschwindigkeiten im Reaktor.

Die dimensionslose Einlaufkonzentration  $\Theta_0$ , siehe Gleichung (2-26), tritt nicht explizit in den Erhaltungsgleichungen auf. Ihr Wert stellt neben dem Druckgradienten  $dp/dz$  die wichtigste Anfangsbedingung bei der Simulation dar.

Bei der Betrachtung von Stoffübergängen an einer Berandung fest/flüssig ist der Stofftransportkoeffizient  $\beta$  von großer Bedeutung. Er lässt sich aus der Betrachtung von Stoffströmen an der Berandung durch Gleichung (2-9) darstellen:

Gleichung (2-9) verdeutlicht den Sachverhalt, daß im stationären Fall der vom Fluid übertragene Stoffstrom an der Berandung in das Partikelinnere diffundiert. Eine dimensionslose Form des Stoffübergangskoeffizienten  $\beta$  wird über die Formulierung einer Sherwoodzahl wiedergegeben. Sie wird aus Gleichung (2-9) abgeleitet bildet das Verhältnis



von der an der Fluid/Partikel Berandung von außen zugeführten Stoffmenge zur im Partikel geleiteten Stoffmenge.

$$Sh = \frac{\beta d}{D_1} = \frac{-d \frac{\partial \Theta_P}{\partial \eta}}{(\Theta_{Ein} - \Theta_P)}. \quad (2-38)$$

Im stationären Zustand kann das Substrat nicht an der Partikeloberfläche akkumulieren. Folglich halten sich dort Substrattransferate und Substratverzehr der Reaktion die Waage. Unter Annahme von Michaelis-Menten Kinetik erhält man:

$$\beta(\Theta_0 - \Theta) = \frac{V_{\max} \Theta}{K_m + \Theta}. \quad (2-39)$$

Wobei  $\beta$  den Substrattransferkoeffizienten darstellt.

Aus dieser Beziehung läßt sich durch Entdimensionierung der Parameter die Damköhlerzahl ableiten. Sie erweist sich als wichtig für die Beurteilung des Zustandes des biologischen Systems.




$$Damköhler = \frac{V_{\max}}{\beta^* \Theta}. \quad (2-40)$$

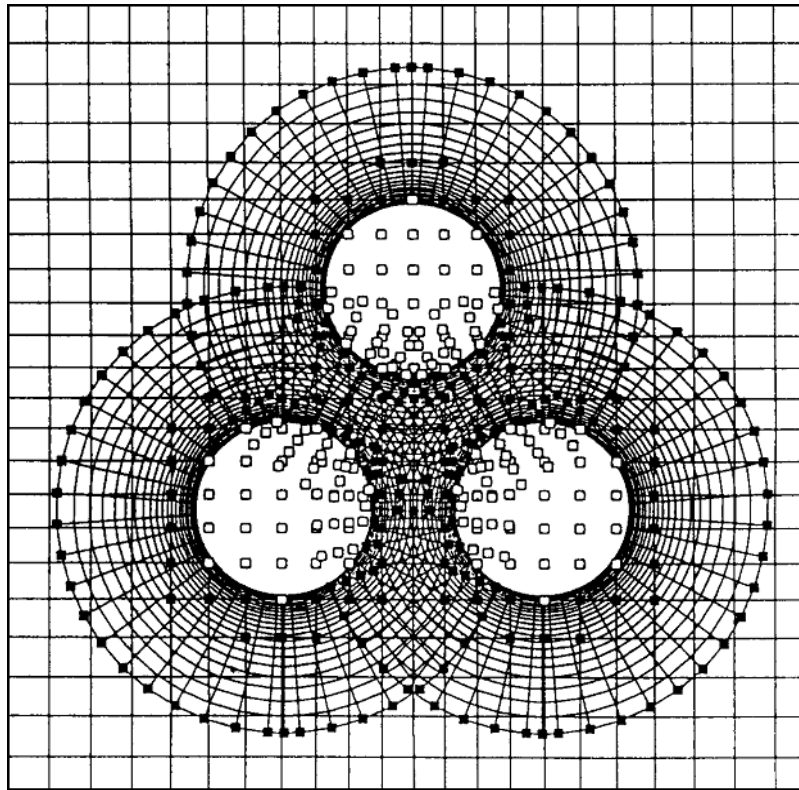
Ist die Damköhlerzahl viel kleiner als eins, übersteigt die Stofftransportrate den maximal möglichen Umsatz. Das heißt, es wird in jedem Fall genügend Substrat herangeliefert, um die Reaktion zu sättigen. Dieser Zustand stellt den optimalen Fall des Reaktorbetriebes bezüglich Umsatzleistung und Auslastung der Biomaterie dar. Bei Damköhlerzahlen größer als eins ist der Stofftransport der limitierende Prozeß, d. h. die Biomaterie könnte mehr umsetzen, es wird aber nicht genügend Stoff herantransportiert. In der Praxis versucht man, solche Fälle zu vermeiden.

## 2.6 Die Chimära-Gittertechnik

### 2.6.1 Grundlagen der Gittertechnik

Die Chimära-Gittertechnik stellt eine Diskretisierungsmethode zur Lösung von Systemen partieller Differentialgleichungen mittels Aufteilung des Berechnungsgebietes dar. Ein Vorteil ist, daß die gesamte Domäne durch die Verknüpfung einfacher Gittergeometrien beschrieben werden kann. Bei der Simulation von Bioreaktoren wird bei der Chimära-Technik ein zylindrisches Hauptgitter verwendet, das den gesamten in der Rechnung erfassten Strömungsbereich abdeckt und den Reaktorraum darstellt. In diesem Strömungsfeld befindliche Trägerpartikel werden durch ein sphärisches Nebengitter beschrieben. Damit wird zum einen Speicherplatz gespart, zum anderen liefert das Verfahren eine besonders geeignete, grobkörnige Struktur zur Parallelisierung des Programm-Codes, *Geist et al.* [25]. Zusätzlich vereinfacht sich die aufwendige Gittergenerierung bei komplizierten Geometrien, deren Komplexität durch strukturierte, überlappende Einzelgitter reduziert wird [17]. Die Verwendung strukturierter Gitter ermöglicht ein implizites Rechenschema mit besonders gutem Konvergenzverhalten.

Die Verknüpfung zwischen den einzelnen Gittern erfolgt durch Interpolation. Ihre prinzipielle Funktionsweise ist in Abbildung 2-5 dargestellt. Die mit  gekennzeichneten Gitterpunkte stellen sogenannte 'Löcher' dar, an denen der Löser keine Berechnungen im jeweiligen Gitter durchführt, da sie innerhalb des Partikels liegen. An den Interpolationspunkten  werden die Informationen der jeweiligen Gitter ausgetauscht. Jeder Interpolationspunkt  eines Gitters ist von acht Eckpunkten des anderen Gitters umgeben. In der Interpolationsroutine werden die jeweiligen Abstände von Interpolationspunkt zu Eckpunkt bestimmt und mittels trilinearärer Interpolation gewichtet. Durch die Approximation mit einem Polynom ersten Grades weist die trilineare Interpolation zwar nur eine geringe Genauigkeit im Vergleich zu anderen Interpolationsverfahren auf, diese hat sich aber in gegebenen Fall als ausreichend erwiesen. Das kann vor allem durch die sehr kleinen Gitterabmessungen in den Partikelzwischenräumen, welche durch die in Kapitel 2.6.2 beschriebenen Gitteradaption verursacht wird, erklärt werden.



**Abbildung 2-5 : Zweidimensionale Darstellung der Interpolationspunkte ■ und Löcher □ im sphärischen Partikelgitter und im Hauptgitter des Reaktors**

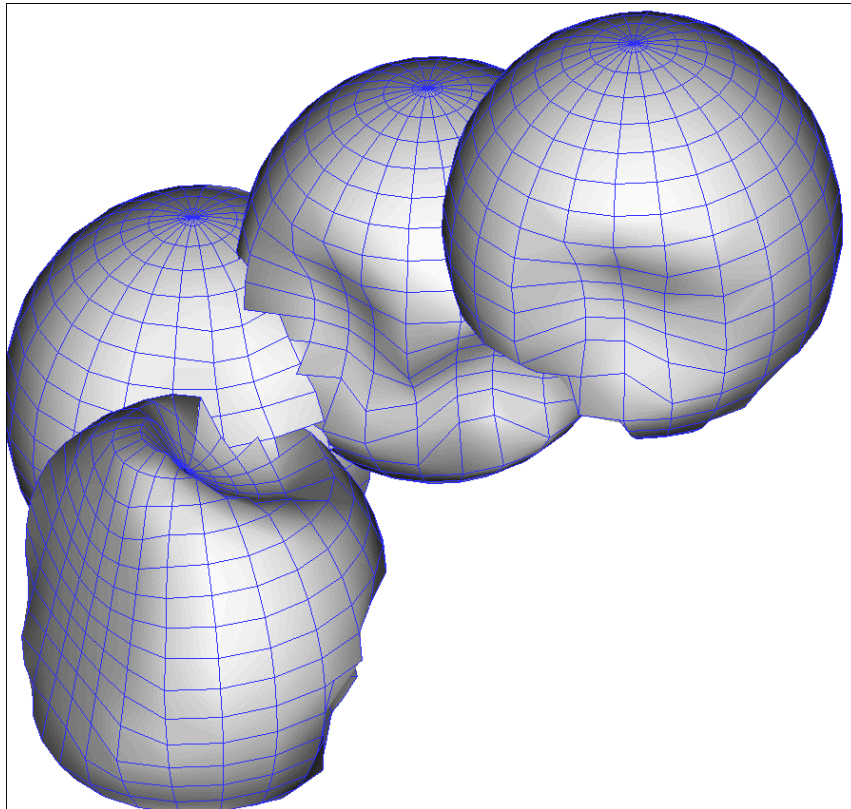
Eine genaue Beschreibung zur Integration der Interpolationsvorschrift in den Navier-Stokes Löser kann in [15, 16, 20] nachgelesen werden.

### 2.6.2 Adaption der Chimära-Gitter

Bei der dreidimensionalen Berechnung von Reaktoren mit einer Vielzahl von Einzelpartikeln und niedriger Porosität hat sich gezeigt, daß es nicht möglich ist, Konvergenz in den Bewegungsgleichungen (2-3) und (2-4) zu erzielen und die Kontinuitätsgleichung (2-2) zu erfüllen. *Debus* [20] hat daher ein Verfahren zur Anpassung der sphärischen Trägerpartikelgitter aneinander implementiert.

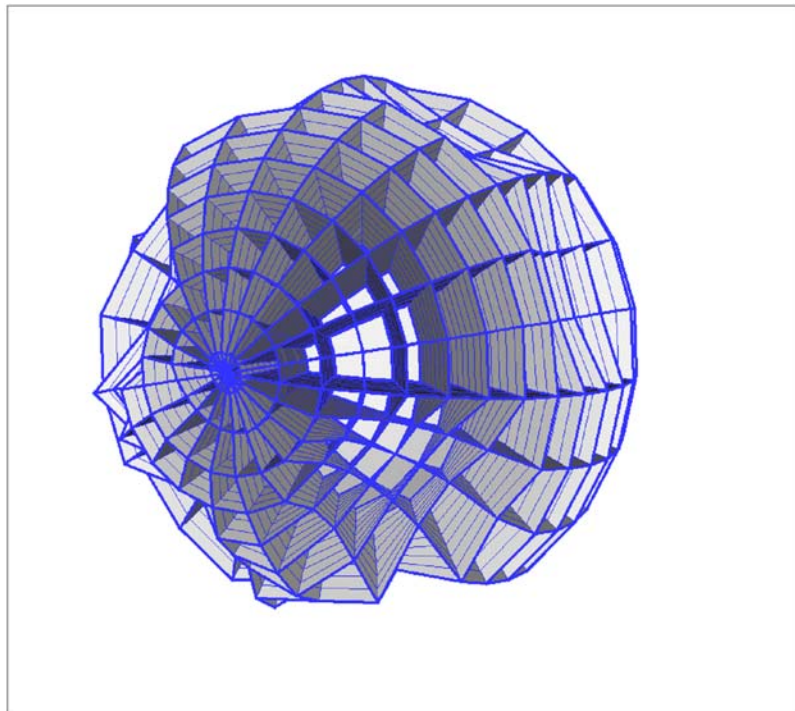
Dadurch wird die Gitterauflösung in den kritisch engen Strömungskanälen optimiert. Die Strömung in diesen Zwangspassagen zwischen den Trägerpartikelgittern und zwischen Partikel und Wand weist hohe Geschwindigkeits-Gradienten mit großen lokalen Reynoldszahlen auf. Erst eine verfeinerte Auflösung dieser Zonen durch Verdichtung der Gitter ermöglicht eine korrekte Berechnung [20, 21]. Die Adaption der Gitter erfolgt nach folgendem Schema:

Jedes Kugelgitter passt sich sowohl an seine Nachbarn, als auch an die Wand an. Die bisher ungenutzten Gitterpunkte in den Überlappungspunkten der Partikel und Gitter außerhalb des Hauptgitters werden komprimiert. Das ermöglicht eine feine Auflösung in diesen Bereichen. Abbildung 2-6 verdeutlicht die geometrische Gitteradaption.



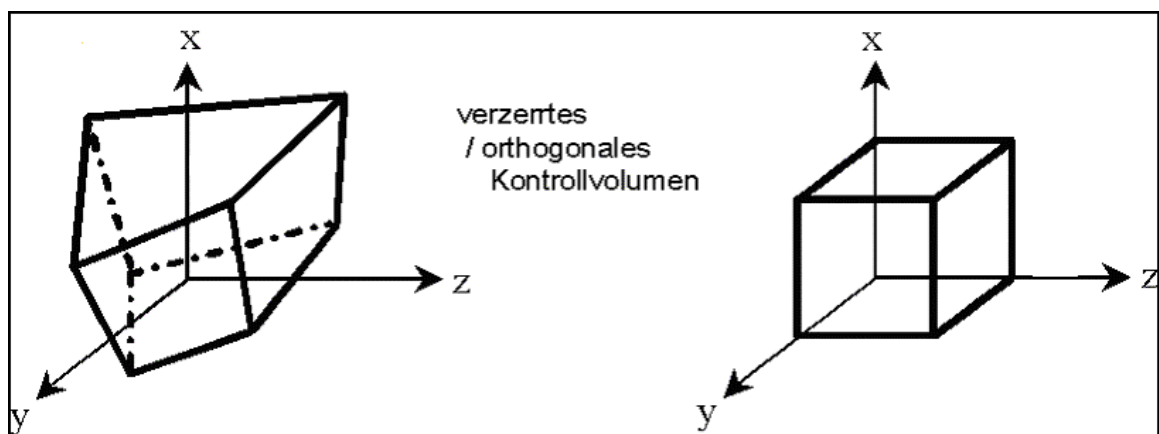
**Abbildung 2-6: Anpassung der Chimära-Gitter an die Nachbarpartikel für den dreidimensionalen Fall nach Debus [20]**

Die radialen Gitterlinien des strukturierten Nebengitters werden mit dem benachbarten Objekt geschnitten und die Gitterpunkte neu auf der Strecke zwischen den Objekten verteilt. Dabei erfolgt die Neuordnung der Gitterpunkte entsprechend dem ursprünglichen Streckungsfaktor des Gitters. Der neue Außenpunkt des nun adaptierten Gitters befindet sich somit auf der Oberfläche des Nachbarobjekts, so daß für diese bisher als Löcher definierten Punkte Haftbedingungen, siehe Kapitel 2.3, gesetzt werden können. Radiale Gitterlinien, die keine Nachbarobjekte schneiden oder berühren, bleiben unverändert. Eine Ausnahme bilden Linien, die direkt neben verkürzten Gitterabschnitten liegen. Um einen möglichst homogenen Gitteraufbau zu erreichen, werden diese Linien um 50% ihrer angepaßten Nachbarlinien reduziert und auch hier entsprechend die Gitterpunkte neu verteilt. Abbildung 2-7 verdeutlicht die Deformation eines Trägerpartikelgitters das an seine Nachbarpartikel angepasst ist.



**Abbildung 2-7: Gitterstruktur eines deformierten Trägerpartikels als Folge der Anpassung an Nachbarpartikel**

Zur Verdeutlichung der Verzerrung von Kontrollvolumina durch die Gitteranpassung ist in Abbildung 2-8 die Vergrößerung eines Kontrollvolumens aus Abbildung 2-7 zeigt. Durch die Verwendung generalisierter Koordinaten [15] können grundsätzlich beliebige Volumenformen verwendet werden. Es ist jedoch bekannt, daß die Genauigkeit der berechneten Lösung deutlich von der Gitterverzerrung abhängt.



**Abbildung 2-8: Verzerrtes Volumen im Vergleich zu einem orthogonalen Kontrollvolumen**

Aus diesem Grund hat *Debus* [20] den Einfluß der nichtorthogonalen Terme detailliert untersucht und festgestellt, daß es beim gegebenen Problem möglich ist, den Einfluß der nicht orthogonalen Gitter im gegebenen Problem zu vernachlässigen.

## 2.7 Numerische Lösung des Gleichungssystems

### 2.7.1 Kopplung des Geschwindigkeits- und Druckfeldes

Bei dem verwendeten Lösungsverfahren handelt es sich um ein „quasistationäres“ Verfahren. Das Strömungsfeld im Bioreaktor ist stationär und kann prinzipiell ohne zeitliche Diskretisierung iterativ gelöst werden. Es ist jedoch auch bei Berechnungen von stationären Strömungsfeldern von Vorteil eine „künstliche“ Zeitachse einzuführen.

Die in Kapitel 2.3 eingeführten Anfangsbedingungen schreiben einen Druckgradienten in axialer Richtung und  $\bar{v} = 0$  zu Beginn der Berechnung vor. Der Übergang von  $\bar{v} = 0$  zum endgültigen Strömungsfeld kann als instationärer Vorgang gesehen werden. Unterscheiden sich die Anfangsbedingungen zu sehr von der Lösung treten bei der Iteration starke Gradienten auf die zu Schwierigkeiten bei der Berechnung führen. Durch die Wahl von kleinen Zeitschritten ist es möglich, diese Gradienten zu dämpfen und so z. B. auch Simulationen bei höheren Reynoldszahlen (große Gradienten) durchführen zu können.

Bei der zeitlichen Diskretisierung treten zwei Zeitebenen auf. Die Feldgrößen werden zum Zeitpunkt  $t = n$  und  $t = n+1$  bestimmt. Zu Beginn der Iteration ( $t = 0$ ) sind die Feldgrößen durch die Anfangsbedingungen bekannt und ihr Wert zum Zeitpunkt  $n+1$  kann bestimmt werden. Im Verlauf der Iteration werden die „neuen“ Werte zur Zeit  $n+1$  gleich den „alten“ Werten zur Zeit  $n$  gesetzt. Die alten Werte bilden nun die Grundlage zur Berechnung des nächsthöheren Zeitschritts.

Die Impulsgleichung (2-3) für die Lösung des Geschwindigkeits- und des Druckfeldes wird in zwei Schritten bearbeitet. Im ersten Schritt wird die Gleichung linearisiert und mit den alten Werten für das Druckfeld gelöst. Der zweite Schritt beruht auf einem Lösungsalgorithmus für den Druck unter Berücksichtigung der Kontinuitätsbedingung (2-1).

Die Kopplung zwischen Geschwindigkeit und Druck erfolgt im Programm über die Lösung einer Poisson-Gleichung, die aus der Kontinuitätsgleichung abgeleitet werden kann. Dieses

Verfahren lehnt sich zum großen Teil an die Arbeiten von *Chorin* [26] und *Chorin et al.* [27] an.

$$\iiint_V \frac{\vec{v}' - \vec{v}_n}{\Delta t} dV + \iiint_V \vec{v}_n \cdot \nabla \vec{v}' dV = - \iint_S p_n d\vec{A} + \frac{1}{\text{Re}} \iint_S \nabla \vec{v}' \cdot d\vec{A}. \quad (2-41)$$

Im ersten Schritt wird die Zwischengeschwindigkeit  $\vec{v}'$  durch Verwendung des alten Strömungsfeldes zum Zeitpunkt  $n$  errechnet. Ebenso wird aufgrund des Fehlens der expliziten Gleichung für den Druck das Druckfeld zum Zeitpunkt  $n$  verwendet. Die Zwischengeschwindigkeit  $\vec{v}'$  ergibt sich iterativ mittels eines Prädiktor-Korrektor Verfahrens, siehe [15].

In einem zweiten Schritt muß die Zwischengeschwindigkeit  $\vec{v}'$  korrigiert werden.

Dies geschieht durch Einführung einer Druckkorrektur  $\alpha$ , woraus sich folgende Gleichung ergibt:

$$\iiint_V \frac{\vec{v}_{n+1} - \vec{v}'}{\Delta t} dV = - \iint_S \alpha d\vec{A}, \quad (2-42)$$

mit

$$\alpha = p_{n+1} - p_n. \quad (2-43)$$

Die Verknüpfung beider Schritte, d.h. Addition von Gleichung (2-41) mit Gleichung (2-42), ergibt bei gleichzeitiger Iteration des nichtlinearen konvektiven Terms das gewünschte implizite Schema der Bewegungsgleichung.

$$\iiint_V \frac{\vec{v}_{n+1} - \vec{v}_n}{\Delta t} dV + \iiint_V \vec{v}_{n+1} \cdot \nabla \vec{v}_{n+1} dV = - \iint_S p_{n+1} d\vec{A} + \frac{1}{\text{Re}} \iint_S \nabla \vec{v}_{n+1} \cdot d\vec{A}. \quad (2-44)$$

Zur weiteren Behandlung von Gleichung (2-42) steht noch die Kontinuitätsgleichung zur Verfügung, die für alle Zeitpunkte, also auch für  $n+1$ , gelten muss,

$$\iint_S \vec{v}_{n+1} \cdot d\vec{A} = 0. \quad (2-45)$$

Führt man eine Geschwindigkeitskorrektur  $\vec{v}_c$  ein, mit

$$\vec{v}_{n+1} = \vec{v}' + \vec{v}_c, \quad (2-46)$$

folgt mit Gleichung (2-45)

$$\iint_S \vec{v}_c \cdot d\vec{A} = -\iint_S \vec{v}' \cdot d\vec{A}. \quad (2-47)$$

Die Korrekturgröße  $\vec{v}_c$  kann durch den Gradienten einer skalaren Größe

$$\nabla\Psi = -\vec{v}_c \quad (2-48)$$

ersetzt werden, so daß sich für Gleichung (2-47) eine Poisson-Gleichung ergibt

$$\iint_S \nabla\Psi \cdot d\vec{A} = \iint_S \vec{v}' \cdot d\vec{A}. \quad (2-49)$$

Die Poisson-Gleichung läßt sich, ähnlich wie die Impulsgleichung, ebenfalls mit einem Prädiktor-Korrektor-Verfahren lösen.

Mit bekanntem  $\Psi$  bzw.  $\vec{v}_c$  erhält man aus Gleichung (2-46) den Vektor  $\vec{v}_{n+1}$  des neuen Geschwindigkeitsfeldes.

Das neue Druckfeld ergibt sich durch eine Verknüpfung des Skalars  $\Psi$  mit der Druckkorrektur  $\alpha$ . Aus den Gleichungen (2-42) und (2-46) folgt

$$\iiint_V \frac{(\vec{v}' + \vec{v}_c) - \vec{v}'}{\Delta t} dV = -\iint_S \alpha d\vec{A}, \quad (2-50)$$

und nach dem Gaußschen Satz

$$\iiint_V \frac{\vec{v}_c}{\Delta t} dV = -\iiint_V \nabla\alpha dV. \quad (2-51)$$



Daraus ergibt sich direkt

$$\nabla \alpha = -\frac{\bar{v}_c}{\Delta t} \text{ bzw. } \alpha = \frac{\Psi}{\Delta t}. \quad (2-52)$$

Damit erhält man einen direkten Zusammenhang zwischen der Druckkorrektur  $\alpha$  und der aus der Kontinuitätsgleichung errechneten Geschwindigkeitskorrektur  $\bar{v}_c$  bzw. dem Skalar  $\Psi$ .

Zusammengefaßt wird die Impulsgleichung nach folgendem Schema gelöst:

- (1) Lösen der linearisierten Bewegungsgleichung (2-41) mit dem Druck- und Geschwindigkeitsfeld im konvektiven Term zum Zeitpunkt  $n$ .
- (2) Iteration einer Poisson-Gleichung (2-49), die aus der Kontinuitätsgleichung abgeleitet werden kann, bis zur Konvergenz.
- (3) Korrektur der Werte für das neue Geschwindigkeits- und Druckfeld nach den Gleichungen (2-43) bzw. (2-46).
- (4) Berechnung des nächsten Zeitschritts bis die Konvergenz für das Druck- und Geschwindigkeitsfeld erreicht ist.

Die Iteration der Poisson-Gleichung stellt einen erheblichen Rechenaufwand dar. Um zu konvergenten Berechnungen für das Druck- und Geschwindigkeitsfeld zu gelangen, sind 20 Iterationen pro „künstlichem“ Zeitschritt nötig. Bei der Berechnung von Umströmungen um Einzelpartikel oder wenige Partikelagglomerate ist der Aufwand zu akzeptieren. Sollen jedoch Bioreaktoren mit bis zu mehreren hundert Partikel simuliert werden, ist eine Verkürzung der Rechenzeit notwendig.

### 2.7.2 Konvergenzbeschleunigung der Poisson-Gleichung mittels Mehrgitter und GMRES Verfahren

Wie in Kapitel 2.7.1 beschrieben, benötigt die Lösung der Poisson-Gleichung den überwiegenden Teil der Simulationszeit. In der Literatur finden sich zahlreiche Veröffentlichungen, die sich mit der Konvergenzbeschleunigung iterativer Verfahren beschäftigen, *Saad et al.* [28], *Briggs* [29], *Brandt* [30]. Im Zusammenhang mit Finiten-Volumen haben sich vor allem Mehrgitter-Verfahren und Verfahren zur gewichteten Residuumsminimierung (GMRES) etabliert.

Die Lösung der Poisson-Gleichung kann im Programmablauf als ein entkoppeltes Problem angesehen werden. Dabei sind die sich aus der Diskretisierung ergebenden geometrischen Parameter der rechten Seite der Poisson-Gleichung (2-49) zur Matrix  $A$  zusammengefasst. Die numerische Lösung des Integrals auf der linken Seite der Poisson-Gleichung als Vektor  $\vec{f}$  bezeichnet. Hierbei ergibt sich das algebraische Gleichungssystem:

$$A \cdot \vec{\Phi} = \vec{f}, \quad (2-53)$$

wobei  $\Phi$  den Lösungsvektor darstellt.

Es ist wichtig, bei den folgenden Überlegungen daran zu denken, daß  $A$  eine Matrix ist, die allein von geometrischen Größen abhängt und sich von einer zur nächsten Iteration des übergeordneten Hauptprogramms nicht ändert;  $\vec{f}$  dagegen hängt neben geometrischen Daten auch von der Zwischengeschwindigkeit  $\vec{u}'$  ab und ändert sich somit bei jeder Iteration des Hauptprogramms.

In der von *Debus* [20] entwickelten Programmversion wird die Poisson-Gleichung mit einem Unterprogramm behandelt, welches das Gleichungssystem mit der festen Anzahl von 20 Iterationen näherungsweise löst. Zur Beurteilung der Güte der Lösung werden folgende zwei Schritte durchgeführt:

- Nach jeweils drei Iterationen des ADI (je eine in jede Raumrichtung) wird das Residuum  $\vec{r}$  des Gleichungssystems (2-37) berechnet:

$$A \cdot \vec{\Phi}_n - \vec{f} = |\vec{r}|. \quad (2-54)$$

Die maximale Komponente dieses Residuums kann als Maß für die Genauigkeit der Lösung  $\vec{\Phi}_n$ , nach der n-ten Iterationen, angesehen werden. Bei exakter Lösung ist das Residuum gleich dem Nullvektor; also ist die Lösung um so besser, je kleiner der Absolutbetrag der maximalen Residuumskomponente ist.

- Als zweites Kriterium wird die Summe der Abweichungen der Lösungen für das Geschwindigkeitsfeld von zwei aufeinanderfolgenden Iterationen des Hauptprogramms als Maß für die Konvergenz des Gesamtsystems verwendet. Die Summe geht im Konvergenzfall gegen null. Ihre Berechnung dient dazu, die Richtigkeit der Lösung der Poisson-Gleichung anhand ihrer Auswirkungen auf das Verhalten des Gesamtsystems zu prüfen. Aus dieser Größe kann auch eine Aussage abgeleitet werden, wie sich die Genauigkeit der Lösung der Poisson-Gleichung auf die Konvergenz der Gesamtlösung auswirkt, d.h. welcher Aufwand bei der Lösung der Poisson-Gleichung noch sinnvoll ist.

Eine konvergente Lösung zeichnet sich dadurch aus, daß die numerische Lösung gegen die Lösung des Gleichungssystems strebt. Dies bedeutet nicht nur, daß sich die sie sich von einer zur nächsten Iteration nicht mehr ändern, sondern auch, daß die Lösung konsistent ist.

Letzteres ist nur dann gegeben, wenn die numerische Lösung in der Tat eine Approximation der Lösung der partiellen Differentialgleichung darstellt. Anders ausgedrückt bedeutet Inkonsistenz, daß durch die Diskretisierung ein anderes System partieller Differentialgleichungen angenähert wird.

Bei nichtlinearen Problemen, die sehr stark von den Randbedingungen beeinflusst werden, ist es schwierig das Konvergenzverhalten einer numerischen Methode zu zeigen. Aus diesem Grund wird sie üblicherweise mit ‚numerischen Experimenten‘ überprüft, d.h. die Berechnungen werden an nacheinander verfeinerten Gittern wiederholt. Ist die Methode stabil und sind die Approximationen durch die Diskretisierung konsistent, kann eine Lösung gefunden werden die nicht von der Gittergröße abhängt.

Für hinreichend kleine Gitter wird die Konvergenzrate von der Ordnung des Rundungsfehlers bestimmt. Das ermöglicht die Abschätzung des Fehlers der Lösung. Eine genaue Beschreibung der Fehlerabschätzung und Konvergenzbeurteilung mittels  $\epsilon$ -Intervallen sind in [22] nachzulesen.

Im Anhang **A** und **B** werden die Grundlagen und Ergebnisse des Mehrgitter- und GMRES Verfahrens zur Konvergenzbeschleunigung des gegebenen Problems detailliert erläutert.

## 2.8 Grundlagen und Basisoperationen der Parallelisierung

Durch die Gebietsaufteilung des Berechnungsraums, wie sie durch den Einsatz der Chimära-Technik entsteht, bietet der ursprünglich entwickelte, sequentielle Programm-Code sehr gute Möglichkeiten zur Parallelisierung auf oberster Programmebene (niedrige Granularität, dh. einfacher struktureller Aufbau). Die Notwendigkeit, die Algorithmen auf parallele Rechnerarchitekturen zu portieren, resultiert aus dem Bestreben, möglichst praxisnahe Strömungen in Bioreaktoren (hohe Partikelanzahl) zu simulieren und dabei einen vertretbaren Zeitaufwand einzuhalten.

Die für die Parallelisierung notwendige Arbeitsumgebung wird mit Hilfe des Software-Pakets PVM geschaffen. Der Name PVM steht als Abkürzung für ‚Parallel Virtual Machine‘ [25]. Dies bedeutet, daß ein ‚virtueller Parallelrechner‘ generiert wird. Dieses Programmpaket ermöglicht es, ein heterogenes Rechnernetz als Grundlage für die Entwicklung von parallelen Programmen einzusetzen, *Burkhardt* [31]. Es spielt dabei keine Rolle, um welche Art von Rechnern, Workstations, Parallelrechnern oder Vektorrechnern etc. es sich handelt. PVM besteht aus zwei Teilen: dem ‚Dämon‘ (Dämonprozesse sind vom System abgesetzte Hintergrundprozesse), der auf den verwendeten Maschinen installiert wird, sowie den Programmbibliotheken in FORTRAN und C, mit denen parallele Programme erstellt werden können.

Eine genaue Beschreibung der Entwicklung des Parallelisierungskonzepts bei *Debus* [20]. Zur Vollständigkeit sollen hier nur noch einmal kurz die grundlegenden Routinen aufgezeigt werden. Die Parallelisierung basiert auf einem klassischen Master-Slave Konzept. Üblicherweise wird bei diesem Aufbau ein Master-Prozeß gestartet, der dann über Message-Passing Routinen Slave-Prozesse initiiert. Der Master übernimmt hierbei also lediglich eine Kontrollfunktion.

Dieses Konzept wird hier übernommen, jedoch werden dem Master-Prozeß zusätzliche Aufgaben zugeteilt. Er übernimmt die Berechnung des Strömungsfeldes im zylindrischen Gitter und die Interpolation zwischen den einzelnen Gittern.

In einem Preprozessor Programm werden zunächst mit Hilfe der Daten des Generatos für Zufallsschüttungen, die Geometrie der Kugelgitter und des Hauptgitters für die Berechnung der Navier-Stokes Gleichungen berechnet. Der Master-Prozeß liest die für das Hauptgitter relevanten Daten und startet die Slave-Prozesse. Die Anzahl dieser Slaves und die Anzahl der

Trägerpartikel, für welche die Slaveprogramme die Navier-Stokes Gleichungen lösen, wird vom Benutzer in Abhängigkeit der zur Verfügung stehenden Rechneranlage definiert.

Der jeweilige Slave-Prozeß liest dann die Daten der für ihn relevanten Kugeln aus einer Geometriedatei ein, und es folgt die Berechnung der Geschwindigkeits-, Druck- und Stoffdaten ( $v$ ,  $p$ ,  $\Theta$ ). Während in den Slaveprogrammen die Gleichungen gelöst werden, wird gleichzeitig vom Master-Prozeß das Hauptgitter berechnet. Es folgt der Datentransfer der für die Interpolation notwendigen Größen an den Master-Prozeß, in dem die Interpolationen zwischen den Gittern ausgeführt werden.

Das Master-Slave Konzept ist prinzipiell auf einem Workstationcluster und anderen Rechnerarchitekturen lauffähig. Der institutseigene Cluster bietet Möglichkeiten zur Simulation von Reaktoren mit einer Trägerpartikelanzahl von ca. 1000. Trotz Parallelisierung nimmt diese Berechnung etwa einen Zeitraum von etwa 10 Tagen in Anspruch.

Eine Verkürzung der Rechenzeit ist durch die Portierung des Programms auf leistungsfähige Großrechenanlagen zu erreichen. In Anhang C wird die Problematik, welche sich bei der Portierung des Programmcodes auf Supercomputer ergibt, detailliert beschreiben.

## **3 VORSTELLUNG UND DISKUSSION DER ERGEBNISSE**

### **3.1 Numerische Simulation der Strömung in Bioreaktoren**

#### **3.1.1 Grundlagen und Motivation**

Wie in Kapitel 1 beschrieben, beschränken die meisten Forschungsarbeiten bezüglich der Strömung in Festbettreaktoren auf chemische Reaktoren. Der Einfluß biologischer Aktivität wird bei den Untersuchungen nicht berücksichtigt.

Weiterhin werden bei den Ansätzen zur Beschreibung von Festbettreaktoren [1, 2, 3, 4], die in vielen Bereichen der Technik Einsatz finden, ganz überwiegend Näherungsmodelle verwendet, die zwar die globalen Strömungsgrößen - etwa den Druckabfall über die Aufwuchskörperschüttung - zuverlässig voraussagen, aber über die lokalen Prozesse aufgrund der notwendigen Mittelung keine Information zu liefern vermögen.

Bei der Beurteilung der Aussagefähigkeit von gemittelten Größen bezüglich des Betriebes eines Festbett-Biofilm-Reaktors ist jedoch nicht nur zu berücksichtigen, daß die biochemischen und strömungsmechanischen Prozesse einen stark nichtlinearen Charakter besitzen, sondern auch, daß es sich um parameterbegrenzte Systeme handelt, bei welchen die lokale Überschreitung von bestimmten Grenzwerten je nach Anwendung als unzulässig oder erwünscht betrachtet werden muß.

Wie eigene Untersuchungen zeigen, weicht die lokale Geschwindigkeitsverteilung in Schüttungen einheitlicher Kugeln qualitativ und quantitativ stark von den gemittelten Profilen in den homogenen Modellen ab, siehe [20, 21]. Es treten beispielsweise lokale Geschwindigkeitserhöhungen auf, die im Maximalfall bis zum 10-fachen der mittleren Geschwindigkeit reichen.

Um das bisher erreichte Verständnis der physikalischen und biochemischen Wechselwirkungen zwischen dem fließenden Medium und der biologischen Materie in biotechnologischen Strömungen zu erweitern, beschäftigt sich im Rahmen des SFB 411 „Grundlagen der aeroben biologischen Abwasserreinigung“ ein Projektbereich mit dem Titel

„Strömung, Transport und sedimentäre Trennung“ mit der Aufklärung lokaler Strömungsvorgänge in Festbett-Bioreaktoren.

Die Untersuchungen reichen dabei von der Aufklärung mikroskopischer Strömungsstrukturen im Biofilm (TP C4) bis hin zur Beschreibung des lokalen hydrodynamischen Impulsaustausches auf der Größenskala der Aufwuchskörper in dieser Arbeit (TP C5) und in Teilprojekt C6.

Dabei wird insbesondere ein besseres Verständnis der Grundlagen der Strömungsprozesse in Festbett-Bioreaktoren gewonnen, um zukünftig gezielte Optimierungen hinsichtlich der Aufwuchskörpergeometrie, der Geschwindigkeitsverteilung im fließenden Medium, des biochemischen Stoffaustausches und der abrasiven Wirkung der Strömung vornehmen zu können.

Bei der Berechnung des lokalen Impulsaustausches wird zunächst von einer zufälligen Schüttung räumlich fixierter, monodisperser Kugeln ausgegangen.

Die weiteren Ergebnisse zeigen den Einfluß von polydispersen Aufwuchskörpern auf das Verweilzeitverhalten von Reaktoren, charakterisieren die Strömung bei rauen Trägerpartikeln und stellen die strömungsmechanischen Belastungen auf die Biomaterie dar.

### 3.1.2 Strömungsmechanische Kenndaten von Bioreaktoren

Um eine möglichst realitätsnahe Simulation eines Reaktors durchführen zu können, ist es notwendig, strömungsmechanische und geometrische Daten an Reaktoren aufzunehmen. Als Beispiel sind die technischen Kenndaten einer Pilotanlage sowie die eines Laborreaktors des Lehrstuhls für Wassergüte und Abfallwirtschaft der TU-München in Garching in Tabelle 3-1 veranschaulicht.

**Tabelle 3-1: Strömungsmechanische Daten typischer Bioreaktoren**

	Laborreaktor	Pilotreaktor
Trägerpartikelanzahl	ca. 90.000	ca. 44 Mio.
Reaktordurchmesser	0.2 m	2.2 m
Partikeldurchmesser	4-8 mm	4-8 mm
Partikeldichte	1420 kg/m <sup>3</sup>	1420 kg/m <sup>3</sup>
Biomassendichte	1000 kg/m <sup>3</sup>	1000 kg/m <sup>3</sup>
Durchmesserverhältnis	32	360
Volumenstrom	0.17*10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup> /s	13.88*10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup> /s
Durchschn. Geschwindigkeit	5.3*10 <sup>-3</sup> m/s	1.75*10 <sup>-3</sup> m/s
Porosität	0.39	0.39
Partikel-Reynoldszahl	31	10

Bei den Auswuchskörpern handelt es sich um aus Blähton gefertigte, kugelförmige Partikel. Das Herstellungsverfahren bedingt viele Lufteinschlüsse und eine relativ geringe Dichte der Partikel. Die hohe Porosität und Oberflächenrauigkeit bietet Mikroorganismen eine große Besiedlungsoberfläche und erleichtert das Anhaften.

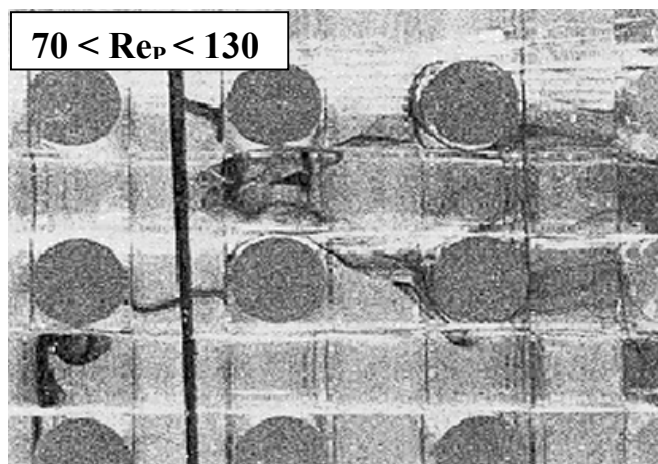
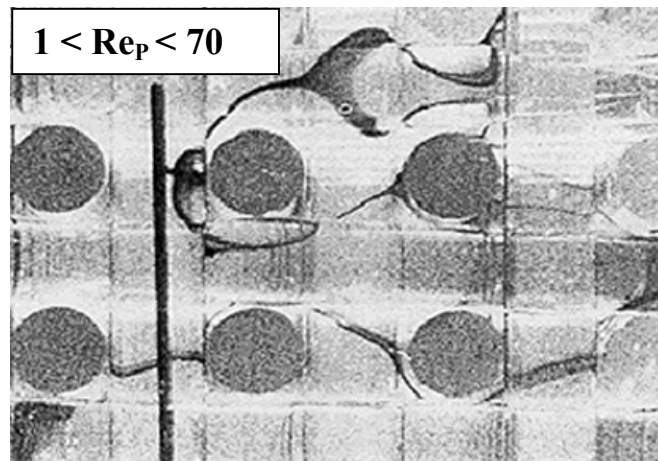
Die entscheidende Größe für den Impulsaustausch ist die Partikel-Reynoldszahl  $Re_p$ , siehe Gleichung (2-30). Die Größe  $Re_p$  ist ein Maß für das Verhältnis von Trägheits- zu Reibungskräften in einer Strömung. Bei Werten kleiner einer kritischen Reynoldszahl

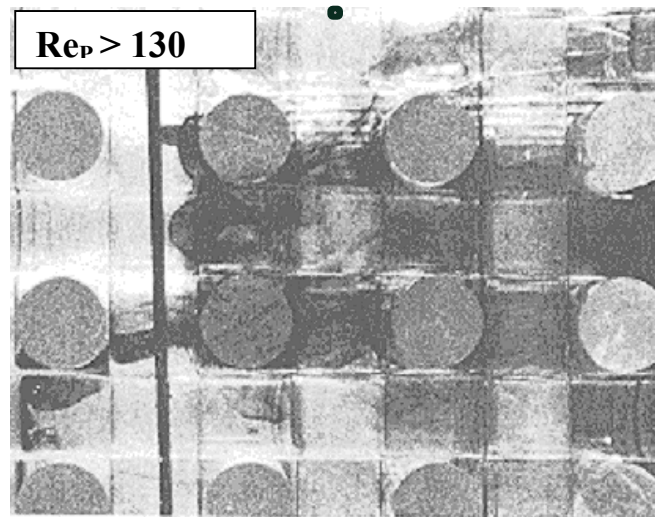


$Re_p < Re_{krit}$  ist die Strömung stabil und benachbarte Fluidschichten gleiten geordnet ohne Impulsaustausch aneinander vorbei. Man spricht in diesem Fall von laminarer Strömung.

Übersteigt die Partikel-Reynoldszahl einen kritischen Wert  $Re_p > Re_{krit}$  wird die Strömung turbulent. Die Strömungsgeschwindigkeit beginnt in zufälliger und chaotischer Weise zu schwanken und es bilden sich Wirbelstrukturen verschiedener Längenskalen. Der Umschlag laminar – turbulent in Abhängigkeit von der Reynoldszahl ist für einfache Geometrien wie die Kanalströmung sehr gut untersucht.

Ungleich schwieriger ist die Festlegung des Umschlagpunkts in der komplizierten Struktur eines Festbettreaktors. *Dybb, Edwards* führen in [6] Tracerexperimente in einem Plexiglasbehälter mit festbettähnlicher Strukturen durch. Anhand des Verhalten des Tracers lässt sich feststellen, bis zu welcher Reynoldszahl noch eine geordnete Schichtenströmung vorliegt und wann der Übergang zu instationärem, chaotischem Verhalten stattfindet. Abbildung 3-1 zeigt in einer Serie von Bildern den Übergang von laminarer zu turbulenter Strömung bei den entsprechenden Reynoldszahlen.





**Abbildung 3-1: Tracereperimente mit Tintenstrahlinjektion zur Entwicklung der Strömungsform in einem Festbett bei steigender Reynoldszahl nach [6]**

Die Anströmung in Abbildung 3-1 erfolgt von links nach rechts. Die Abfolge der Bilder zeigt von oben nach unten den in [6] beschriebenen Umschlag laminar - turbulent. Dabei sind 3 charakteristische Bereiche zu erkennen.

Bei der stationären laminaren Strömung,  $1 < Re_p < 70$ , folgt die Strömung der lokalen Geometrie und es sind keine Verwirbelungen und Ablösungen zu beobachten, vgl. Abbildung 3-1, oben. Beim Übergang zur instationären laminaren Strömung,  $70 < Re_p < 130$  beginnen die Stromlinien zu oszillieren, Wirbelablösungen sind zu beobachten und die Tracerflüssigkeit ist beim Verlassen des Festbettes dispergiert, vgl. Abbildung 3-1, Mitte. Ab einer Partikel-Reynoldszahl  $Re_p > 130$  beginnt die turbulente Strömung. Es sind die oben beschriebenen chaotischen Wirbelstrukturen zu beobachten und die Tracerflüssigkeit ist schon kurz nach dem Einlauf vollständig dispergiert, vgl. Abbildung 3-1, unten.

Wie Tabelle 3-1 demonstriert, liegt die größte Partikel-Reynoldszahl von 31 beim Laborreaktor vor. Für diese Größenordnung ist nach [6] mit einer laminaren und stabilen Strömungsform zu rechnen. Simulationen für Partikel-Reynoldszahlen in diesem Bereich lassen sich mit dem selbstentwickelten Programmcode ohne wesentliche Probleme realisieren. Die dimensionsbehafteten Absolutwerte der Geschwindigkeiten liegen im Bereich von einigen Millimetern pro Sekunde. Überdies weichen die Dichten von Wasser und suspendierten Inhaltsstoffen (Mikroorganismen, Kolloide, feste Bestandteile im Abwasser) nur geringfügig voneinander ab, vgl. [14].

Die suspendierten Inhaltsstoffe folgen demgemäß der Strömung ohne Schlupf. Thermodynamische gelöste Stoffe vermögen ohnehin nur die Stoffeigenschaften des

Abwassers - und dies auch nur in äußerst geringer Form - zu verändern, nicht aber das Strömungsbild zu beeinträchtigen. Aus diesen Überlegungen läßt sich schlussfolgern, daß mit dem lokalen Impulsaustausch auch der Nährstofftransport beschrieben wird.

Nach Tabelle 3-1 reichen die Partikelanzahlen von etwa 90000 für den Laborreaktor bis zu etwa 44 Mio. in der Pilotanlage. Diese Partikelanzahlen führen zu einem nicht zu bewältigenden Rechenaufwand. Deshalb wird in Kapitel 3.1.6 ein Ansatz vorgestellt, der es erlaubt, Biofilm-Reaktoren mit großen Teilchenanzahlen durch sinnvolle Zerlegung zu simulieren.

Die folgenden Ergebnisse strömungsmechanischer Vorgänge in Bioreaktoren wie sie Tabelle 3-1 charakterisiert, lassen sich prinzipiell auf Enzymreaktoren übertragen. Sie werden auch mit Strömungsgeschwindigkeiten im Bereich von wenigen cm pro Sekunde betrieben und besitzen kugelförmige Aufwuchskörper, *George et al.* [32]. Von den Abmessungen sind sie meist kleiner als Bioreaktoren, besitzen deshalb eine geringere Partikelanzahl und können mit dem bestehenden Berechnungsmodell leichter erfasst werden. Die Auswuchspartikel können, wie im Bioreaktor, für die Berechnung idealisiert und zunächst als kugelförmig und inert betrachtet werden.

### **3.1.3 Aufteilung des Bioreaktors in repräsentative Zonen**

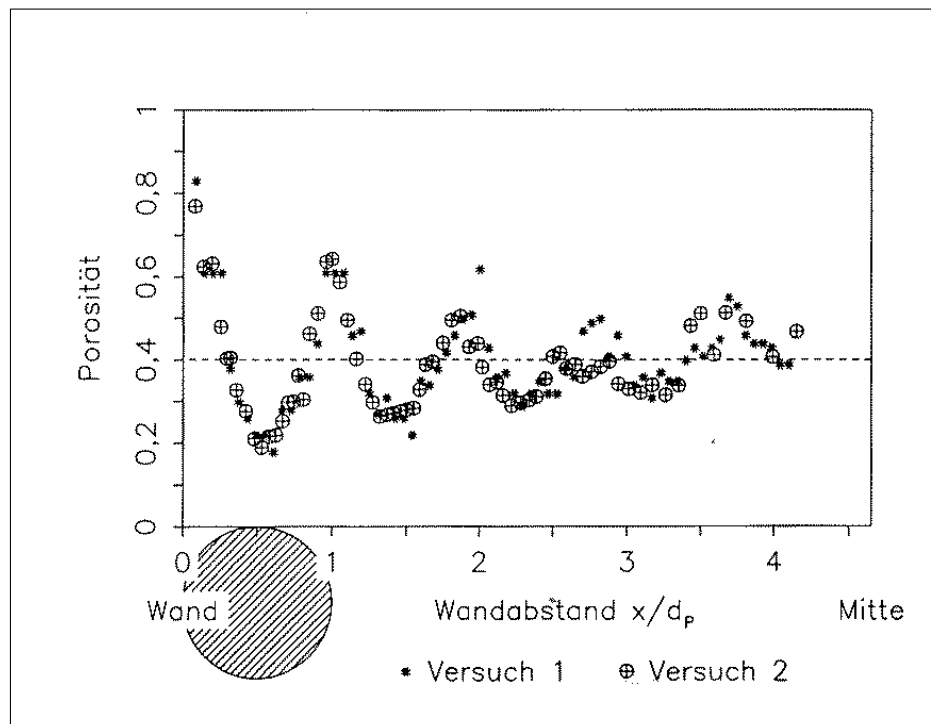
Die Grundlage für die Interpretation der weiteren Ergebnisse bildet eine detaillierte Diskussion der strömungsmechanischen Verhältnisse im Bioreaktor. Um die Zuverlässigkeit der numerischen Methode zu überprüfen, ist ein Vergleich mit Messdaten unerlässlich. Da in der Literatur bis jetzt keine Daten über Geschwindigkeitsmessungen in Bioreaktoren vorliegen, werden als Vergleichsmaßstab die Messungen aus [10] herangezogen. *Rottschäfer* mißt in [10] die Geschwindigkeitsverteilung in einem Festbett mit Plexiglastkugeln mittels Laser-Doppler-Anemometrie.

Zwar handelt es sich hierbei um einen Reaktor ohne biologische Aktivität, aber auch bei der Betrachtung eines Festbettreaktors mit ideal glatten Partikeln und monodisperser Größenverteilung lassen sich grundlegende Folgerungen über die wichtigsten Einflußgrößen auf das fluiddynamische Verhalten und die Biomaterie ziehen. Ist die Strömung im Reaktor vollständig charakterisiert, erfolgt eine Diskussion über die Besonderheiten, welche unregelmäßige Partikelgrößenverteilungen und Oberflächenformen auf die Biomaterie haben.

### 3.1.3.1 Einflußgrößen auf das strömungsmechanische Reaktorverhalten

Nach den Ergebnissen aus [10] und eigenen Simulationen [20, 21] bestimmen neben der Partikel-Reynoldszahl  $Re_p$  vor allem die Porositätsverteilung  $\epsilon(r)$ , und das Durchmesser-Verhältnis  $\Omega$ , siehe Gleichungen (2-23, 2-24), das strömungsmechanische Reaktorverhalten.

Aufgrund der zufälligen Anordnung der Trägerpartikel herrscht im Reaktor eine inhomogene Porositätsverteilung vor. Abbildung 3-2 zeigt den in [10] experimentell bestimmten Verlauf der Porosität ausgehend von der Reaktorwand an der linken Seite bis zur Reaktormitte, die durch den rechten Rand festgelegt wird. Das Durchmesser-Verhältnis beträgt 9.3 und zur Veranschaulichung der räumlichen Dimension ist im Maßstab der Querschnitt eines an der Wand anliegenden Trägerpartikels eingezeichnet. Das Profil schwingt um den Mittelwert 0.4, der als unterbrochenen Linie dargestellt ist.



**Abbildung 3-2: In mehreren Versuchen experimentell bestimmter Porositätsverlauf in einer Festbettschüttung nach Rottschäfer [10]**

In Abbildung 3-2 ist deutlich zu erkennen, daß die Porosität in Wandnähe deutlich höhere Werte aufweist als zur Reaktormitte hin. Im Kontaktbereich zwischen Trägerpartikel und Wand nimmt die Porosität den höchsten Wert an. Theoretisch kann der Wert 1 vorausgesagt

werden, da die Partikel punktförmig anliegen. Im Verlauf des Porositätsprofils fällt der Lückengrad auf das absolute Minimum von ca. 0.18 bei einem Wandabstand von ungefähr  $0.6 d_p$ . Nach etwa  $3 d_p$  sind keine ausgeprägten Minima und Maxima mehr zu erkennen, das Profil pendelt sich auf den Mittelwert 0.4 ein.

Nach den Untersuchungen in [10] ist der eben beschriebene Verlauf auch für nicht ideal runde Partikel und verschiedene Durchmesserhältnisse gültig. Immer nach ca.  $3 d_p$  ist die Schwingung des Lückengrades abgeklungen und pendelt sich auf einen Mittelwert ein.

Bei Bioreaktoren mit einem Durchmesser Verhältnis kleiner 6 bedeutet dies beispielsweise, daß im gesamten Raum der Wand einfluß zu spüren ist und es keine ausgeprägte Kernzone gibt.

Der Grund für die ausführliche Diskussion des Porositätsverlaufes liegt an den Auswirkungen auf die Strömungsmechanik. In Bereichen hoher Porosität erfährt das Fluid weniger Widerstand, dadurch treten in diesen Zonen erhöhte Geschwindigkeiten auf. Das hat wiederum direkten Einfluß auf die Belastung der Biomaterie und den Nährstofftransport.

Deshalb ist es für die Simulation von großer Wichtigkeit den Porositätsverlauf möglichst gut nachbilden zu können. Abbildung 3-3 zeigt den Verlauf einer computergenerierten Trägerpartikelschüttung. Es ist auch hier deutlich der ordnende Einfluß der Wand zu erkennen, der nach ca. 3 Partikeldurchmessern gedämpft wird.

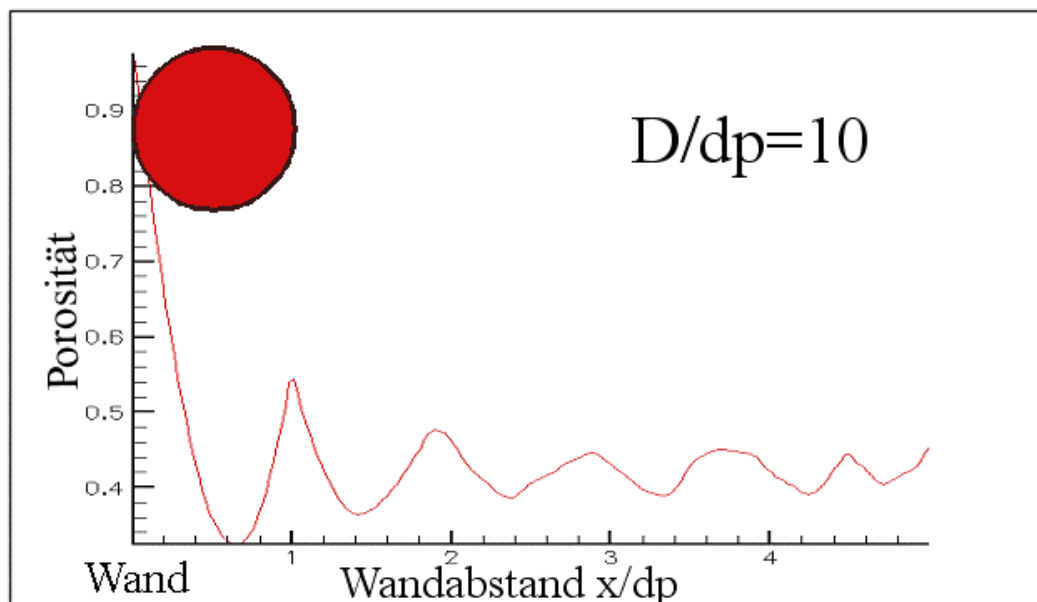


Abbildung 3-3: Porositätsverlauf einer computergenerierten Zufallsschüttung nach dem Algorithmus von Müller [34, 35, 36]

Als Grundlage zur numerischen Generierung einer willkürlichen Kugelanordnung wird ein von *Chan et. al.* [33] angegebener Algorithmus zur rechnerischen Erzeugung der Geometrie eines dreidimensionalen, unstrukturierten Festbettes verwendet. Er ermöglicht die Erzeugung einer Zufallsschüttung in Zylindern oder Quadern für gleich oder unterschiedlich große Kugeln.

Eine genaue Beschreibung der Strategie und Modifikationen des in [33] beschriebenen Algorithmus findet man bei *Debus* [20]. Vereinfacht wird mit einem Zufallsgenerator eine Startposition des Trägerpartikels ermittelt. Von dort wird der freie Fall eines Partikels bis auf den Boden oder auf eine anderes Partikel simuliert. Der Auftreffort wird mit Hilfe des Abstandes des Partikelmittelpunktes vom Boden oder von anderen Partikelmittelpunkten festgestellt. Liegt es am Boden, wird das nächste Partikel 'fallengelassen'. Trifft es auf ein anderes Partikel, rollt es in Richtung seines Schwerpunktes auf dem getroffenen Partikel ab und zwar so lange, bis es wieder frei fällt und auf ein zweites Partikel oder eine Wand trifft. Jetzt rollt es entweder über die zwei Partikel oder über ein Partikel und an der Wand in Richtung seines Schwerpunktes ab, bis es entweder auf 3 Partikel oder zwei Partikel und eine Wand stößt und somit eine stabile Endposition erreicht hat.

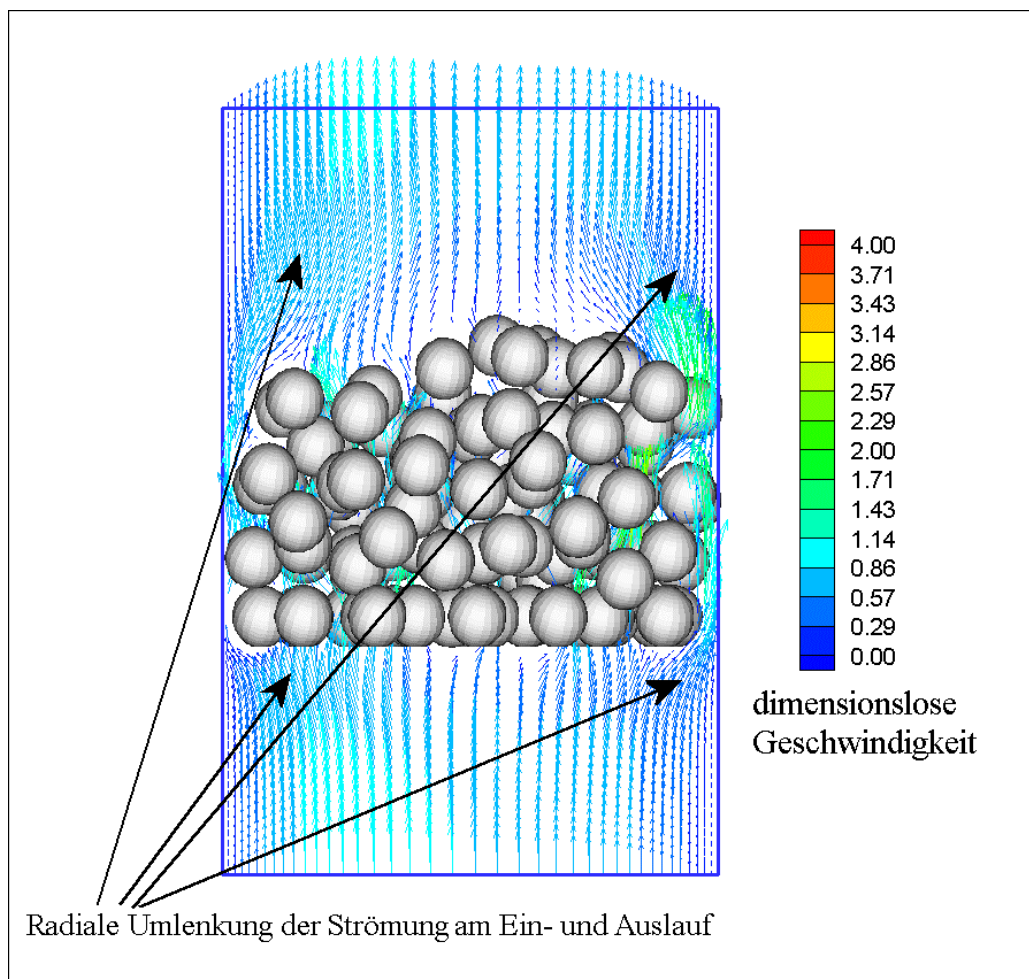
Problematisch bei dieser Art der Erstellung von Schüttungen am Computer ist die etwa um den Faktor 0.1 erhöhte Porosität im Vergleich zu realen Festbetten. Verursacht wird das Problem durch die Schwierigkeit, die statisch festen Trägerpartikel im Reaktor nachträglich durch Vibrationen zu fixieren und somit eine Verdichtung durch Absetzen zu erreichen. *Müller* [34, 35, 36] und *Nadakumar* [37] schlagen in zahlreichen Veröffentlichungen verschiedene Strategien zur Lösung dieses Problems vor.

Die Grundidee dieser Strategien beruht darauf, die Startposition eines Partikels nicht über einen Zufallsgenerator zu bestimmen, sondern beim Aufbau der Schüttung die Positionen zu suchen, die durch ein Teilchen mit gegebenem Radius optimal ausgefüllt werden. Dadurch ist es möglich, größere Lücken, die von kleineren Partikeln aufgefüllt werden könnten, zu vermeiden. Mit dieser Strategie wird die Porositätsstruktur von realen Systemen annähernd realistisch wiedergegeben, vgl. Abbildung 3-2 mit Abbildung 3-3. Im Vergleich zur herkömmlichen Methode nach [33] ist die mittlere Porosität nur noch um ca. 0.03 höher als in realen Schüttungen. Für die Simulation bedeutet dies sehr praxisnahe Eingabedateien für die geometrische Grundkonfiguration im Reaktor.

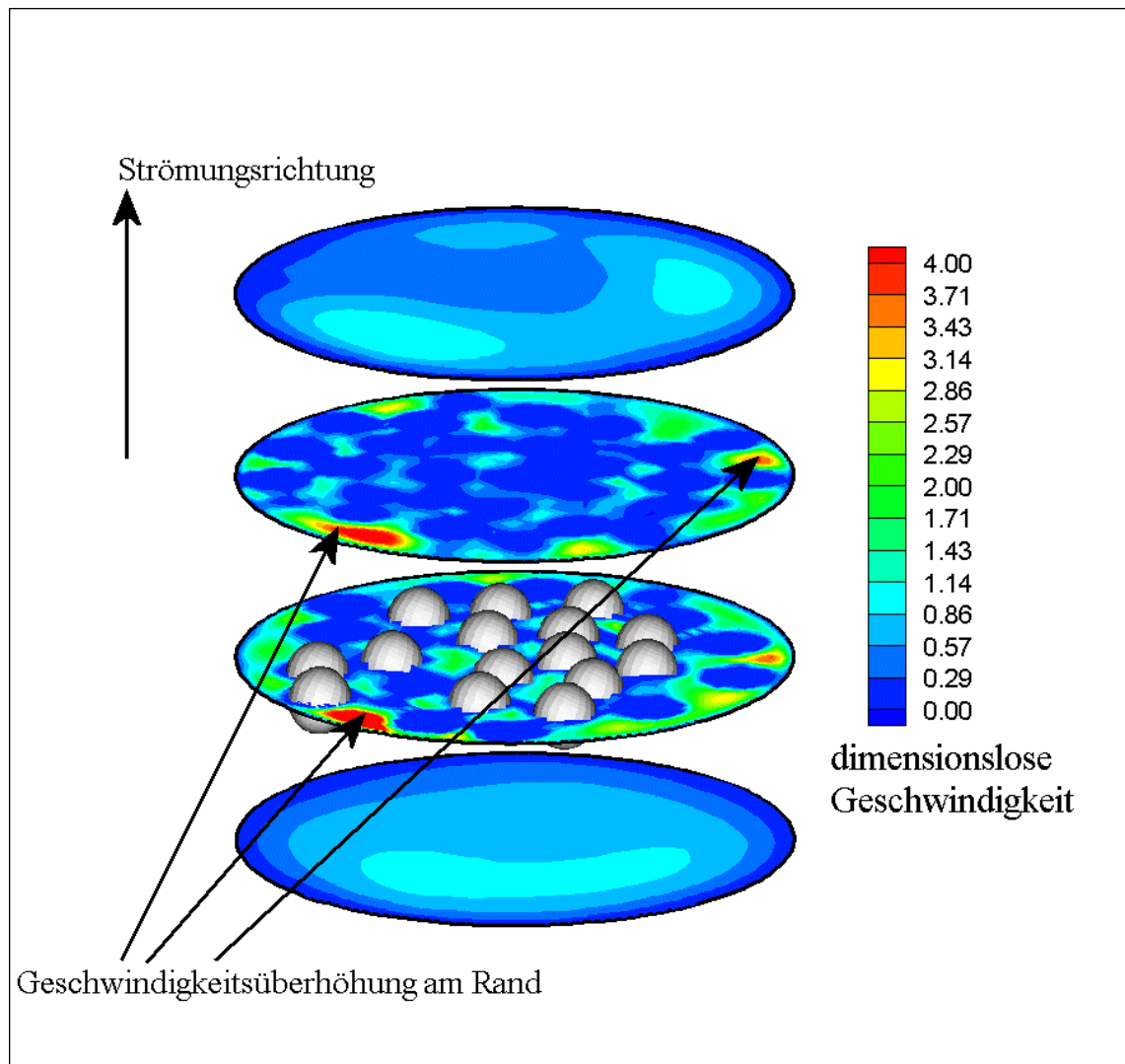
### 3.1.3.2 Strömungsmechanische Charakterisierung des Bioreaktors

Wie in Kapitel 3.1.3.1 erläutert, bestimmen vor allem der Porositätsverlauf und das Durchmesser Verhältnis die strömungsmechanischen Gegebenheiten im Bioreaktor. Sie dienen als Eingabeparameter bei der Simulation und müssen auch bei der Konstruktion von Reaktoren berücksichtigt werden. Um praktische Empfehlungen zur Auslegung geben zu können erweist es sich es deshalb notwendig, die Auswirkungen der Strömung im Festbettreaktor im Hinblick auf die Biomaterie und den Stoffumsatz detailliert zu interpretieren.

Abbildung 3-4 und Abbildung 3-5 zeigen die Simulationsergebnisse der Geschwindigkeitsverteilung in verschiedenen Schnittebenen durch die Festbettschüttung. Die Anzahl der Partikel ist 120 das Durchmesser Verhältnis ist 10. Die Partikel-Reynoldszahl beträgt 10.



**Abbildung 3-4: Vektordarstellung der Geschwindigkeitsverteilung in einem axialen Schnitt durch die Mittelebene einer Festbettschüttung**



**Abbildung 3-5: Konturdarstellung der wandnahen Geschwindigkeitsüberhöhung in mehreren radialen Schnitten durch eine Festbettschüttung**

In Abbildung 3-5 sind zu besserer Veranschaulichung einige Trägerpartikel herausgenommen. Es ist deutlich zu sehen, daß die Strömung dem in Abbildung 3-3 gezeigten Porositätsverlauf folgt. In Wandnähe treten wegen der hohen Porosität die größten Geschwindigkeiten auf (Pfeile), in der Reaktormitte ist auch schon beim Durchmesser Verhältnis von 7 ein Ausgleich des Strömungsprofils zu erkennen. Am Ein- und Auslauf (unterer bzw. oberer Schnitt in Abbildung 3-5) sind die Strömungsgeschwindigkeiten relativ gleichmäßig über den Querschnitt verteilt.

Diese Erkenntnisse decken sich mit den Ergebnissen von *Rottschäfer* [10] und führen bei weiterer Interpretation zur Einteilung eines Bioreaktors in 4 repräsentative Zonen.

In Abbildung 3-6 ist die Einteilung des Festbett-Bioreaktors in Einlauf- Auslauf- Wand und Kernzone schematisch dargestellt. Wegen der Wichtigkeit für die späteren Ergebnisse nimmt



die Diskussion der Zonen vor allem Bezug auf mögliche Auswirkungen auf die immobilisierte Biomaterie im Reaktor einen breiten Raum ein.

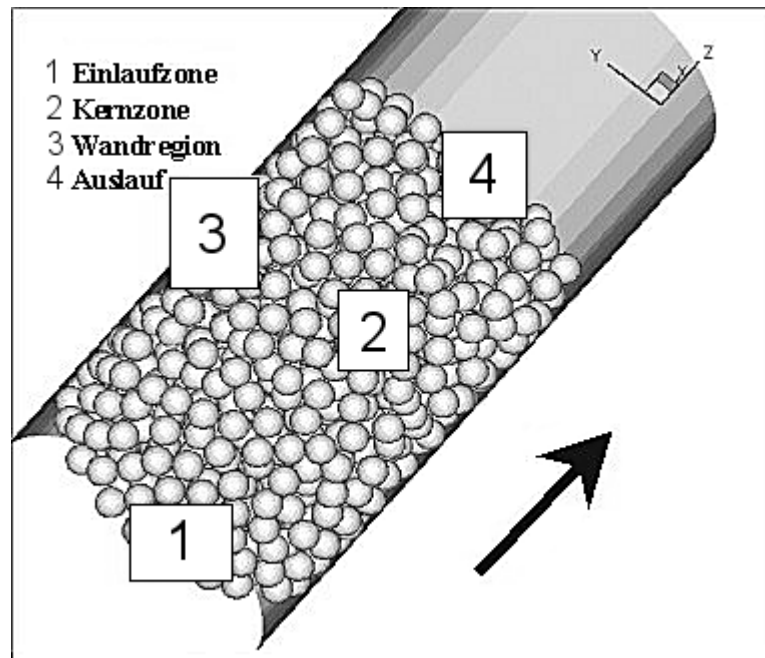


Abbildung 3-6: Einteilung eines Bioreaktors in 4 verschiedene Zonen

Die Einlaufzone erstreckt sich über eine Länge von ca. 2-3 Partikeldurchmessern, vgl. auch Abbildung 3-4. In dieser Zone sorgen hohe radiale Geschwindigkeitskomponenten für den Transport des Fluids in den Wandbereich des Reaktors, vgl. Abbildung 3-4. Durch die plötzliche Verengung des zur Verfügung stehenden Strömungsquerschnitts in den unregelmäßigen und engen Kanälen treten hohe Dissipationseffekte auf. Daraus resultiert ein steiler Druckabfall in diesem Bereich, siehe auch [20].

Darüber hinaus zeichnet sich die Einlaufzone durch eine höhere Porosität und das Fehlen von „Toträumen“ aus. Die der Strömung zugewandten Partikel werden durch die radialen Geschwindigkeitskomponenten „schräg“ angeströmt. Von der Strömung transportierte Mikroorganismen verfügen somit über eine geringere Zeitspanne und Oberfläche, um sich an den Aufwuchskörpern anzulagern. In der Tat finden man sowohl in Labor- als auch in Praxisanlagen dünne Biofilme in dieser Zone.

Wie bereits erläutert, ist die Wandzone durch eine im Vergleich zur Kernzone stark erhöhte Porosität geprägt, vgl. Abbildung 3-4 und 3-5. Das Fluid erfährt dort einen geringeren

Strömungswiderstand als in der Reaktormitte. Daraus resultiert auch eine erhöhte Geschwindigkeit in diesem Bereich, was zu einer größeren mechanischen Belastung von Biomaterie und verbessertem Stofftransport führt. Der Wandbereich mit erhöhter Axialgeschwindigkeit reicht etwa 3 Partikeldurchmesser in die Kernzone. In diesem Bereich ist die Durchschnittsgeschwindigkeit im Extremfall bis um den Faktor 10 erhöht, *Arnz et al.* [38], *Esterl et al.* [39, 40].

In der Kernzone des Reaktors, die ca. 2-3 Partikeldurchmesser nach der Einlaufzone beginnt, sind die Strömungsgeschwindigkeiten über den Querschnitt ausgeglichen. Besonders in den unteren Bereichen der Kernzone werden die Biofilme zunehmend dicker, weil die hindernden Effekte der Wand- und Einlaufströmung fehlen, und das Nährstoffangebot noch sehr groß ist. Das führt zu einem übermäßigen Wachstum des Biofilms bis hin zur Verblockung des Reaktors. Um einen effektiven Reaktorbetrieb gewährleisten zu können, müssen die Verblockungen durch regelmäßiges Rückspülen beseitigt werden.

In der Auslaufzone erfolgt eine Vergleichmäßigung des durch die Schüttungsgeometrie geprägten Strömungsprofils, vgl. Abbildung 3-4. Die Vergleichmäßigung weist eine starke Abhängigkeit von der Reynoldszahl auf. Bei kleinen Werten erfolgt durch den vermehrten Einfluß der Viskosität ein rascher Abbau der Geschwindigkeitsüberhöhung. Im Bereich höherer Reynoldszahlen überwiegen die Trägheitseffekte und die hohen Geschwindigkeiten können nicht so schnell durch die Wand abgebremst werden. Sie nähern sich deshalb nur verzögert den Werten einer Rohrströmung.

Dieser Effekt ist zu beachten, wenn mittels Messgeräten am Auslauf der Schüttung auf die Strömungsverhältnisse im Reaktor geschlossen werden soll. Um repräsentative Messungen zu erhalten, ist bei der Platzierung von Sensoren unmittelbar hinter der Schüttung immer die Reynoldszahl zu berücksichtigen [38]. Aus den erhaltenen Ergebnissen wird empfohlen bei den langsamen Betriebsgeschwindigkeiten von Bioreaktoren, vgl. Tabelle 3-1, Sensoren unmittelbar nach der Schüttung zu positionieren.

### **3.1.4 Einfluß abweichender Größenverteilung und Oberflächenbeschaffenheit der Trägerpartikel**

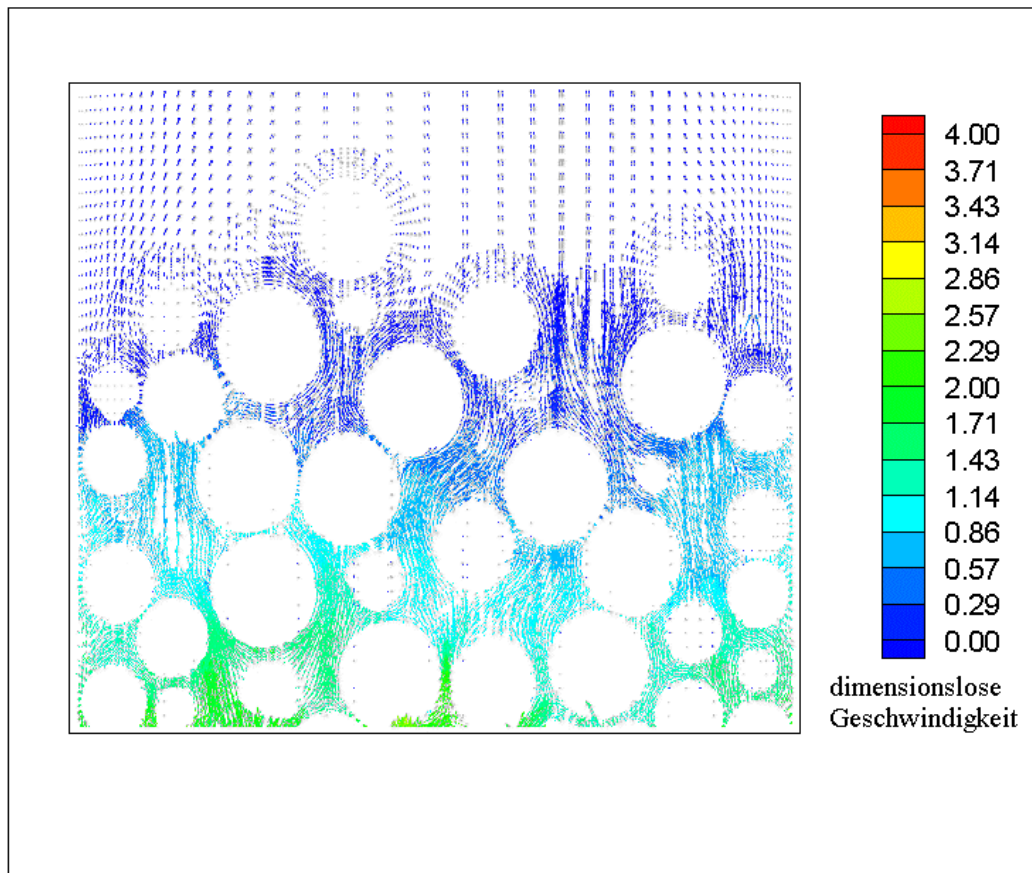
Die Ausführungen in Kapitel 3.1.3 beziehen sich auf Bioreaktoren, die mit ideal runden Auswuchskörpern befüllt sind. Besonders bei Bioreaktoren für die Abwasserreinigung handelt

es sich bei den Aufwuchskörpern um Partikel mit einer rauhen Oberfläche und einer Größenverteilung zwischen 4-8 mm, siehe Tabelle 3-1. Dennoch fehlen solche Untersuchungen in der Literatur bisher völlig

Für den Betrieb eines Reaktors hat dies beispielsweise Auswirkungen auf das Verweilzeitverhalten oder die Anlagerungswahrscheinlichkeit der Biomaterie. Um die Simulation an reale Gegebenheiten anzupassen, ist es deshalb von großer Wichtigkeit die Abweichungen von der idealen Geometrie zu berücksichtigen und das bestehende Berechnungsmodell entsprechend anzupassen.

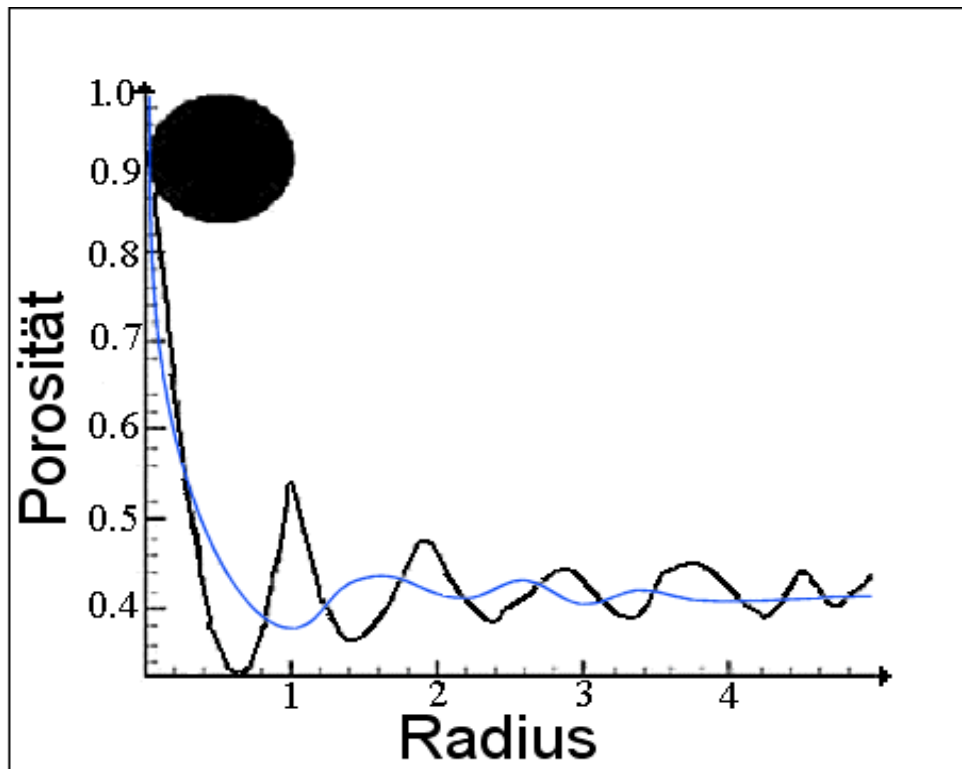
#### *3.1.4.1 Einfluß polydisperser Partikelgrößenverteilung*

Die Ergebnisse in [10] und die durchgeführten Simulationen zeigen deutlich den Einfluß der Porositätsfunktion auf die Geschwindigkeitsverteilung im Reaktor. Um der Anforderung einer möglichst realitätsnahen Simulation gerecht zu werden, ist es notwendig, Trägerpartikelschüttungen mit polydisperser Größenverteilung berechnen zu können. Abbildung 3-7 zeigt das Simulationsergebnis einer polydispersen Schüttung bei einer Partikel-Reynoldszahl von 10.



**Abbildung 3-7: Qualitative Geschwindigkeitsverteilung in einem axialen Schnitt durch die Mittelebene einer polydispersen Trägerpartikelschüttung**

Polydisperse Schüttungen weisen in ihrer Struktur entscheidende Abweichungen zu monodispersen Schüttungen auf. Dieses abweichende Verhalten und seine Konsequenzen können am besten anhand eines Vergleiches der Porositätsverläufe verdeutlicht werden. Abbildung 3-8 vergleicht die Porositätsverläufe zwischen mono- und polydisperser Schüttung.



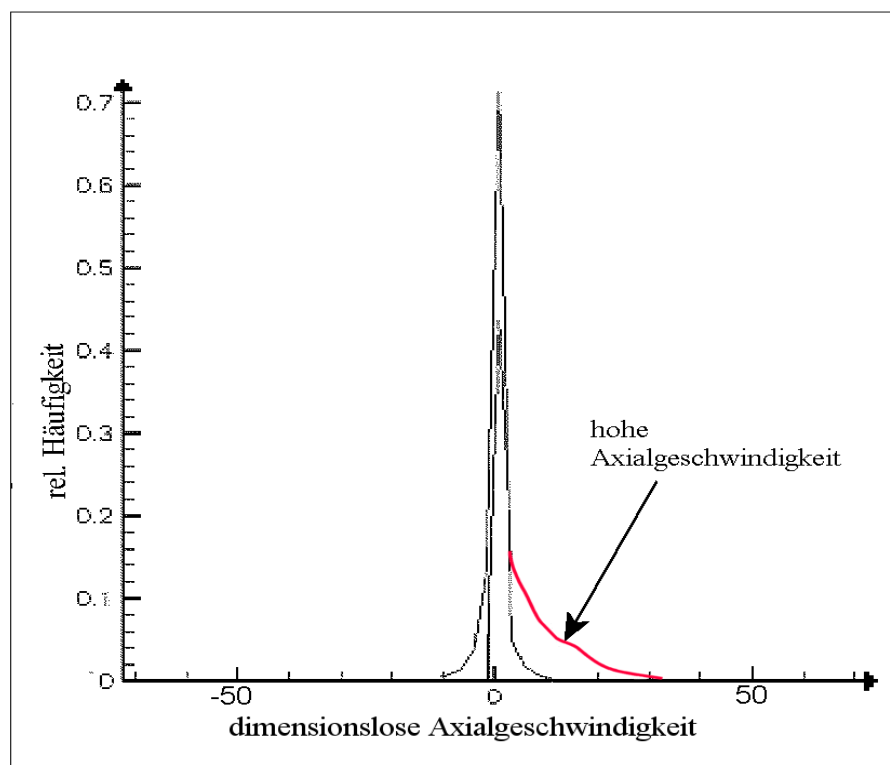
**Abbildung 3-8:** Vergleich zwischen dem Verlauf der Porositätsfunktion vom Wandbereich bis zur Kernzone eines Reaktors bei monodisperser (schwarze Linie) und polydisperser (blaue Linie) Schüttung

Eine Vergleich der beiden Kurven in Abbildung 3-8 zeigt deutliche Unterschiede in der Ausprägung der Porositätsfunktion. Während bei der monodispersen Schüttung (schwarze Linie) der Verlauf einer gedämpften Schwingung zu erkennen ist, kann bei der polydispersen Schüttung (blaue Linie) kein regelmäßiger Verlauf festgestellt werden. Es ist zwar deutlich ein Bereich erhöhter Porosität in Wandnähe zu sehen, diese Überhöhung klingt aber schon nach einem Partikeldurchmesser auf den Mittelwert in der Kernzone ab.

Der ordnende „Einfluß“ der Wand, siehe [10], ist vermindert, weil kleinere Partikel die wandnahen Zwischenräume besser auffüllen können. Daraus resultiert eine Verminderung der unter 3.1.3.2 beschriebenen Randgängigkeit der Strömung weil das Auftreten freier Strömungskanäle im Wandbereich deutlich vermindert wird.

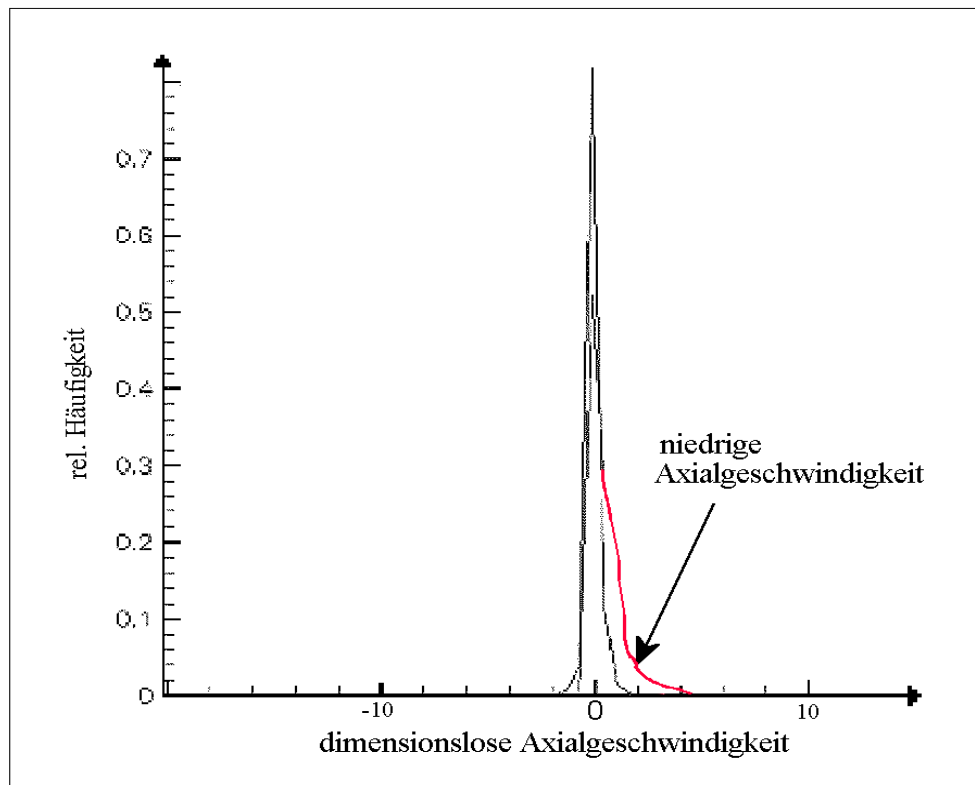
Dies hat besonders bei Durchmesserhältnissen  $< 50$  einen deutlichen Einfluß auf das Verweilzeitverhalten des Reaktors. Bei einem Durchmesserhältnis von 50, monodispersen Partikeln und einer Randzone von drei Partikeldurchmessern, siehe Kapitel 3.1.3.2, beträgt der Anteil der Randfläche ca. 22% der Gesamtfläche des Reaktors, siehe [38, 39]. Das

bedeutet, daß, bei etwa dreifach überhöhter Geschwindigkeit im Wandbereich, ca. 40% des Massenstroms durch den Wandbereich fließen. Daraus resultiert eine erhebliche Abweichung von der in der Literatur häufig getroffenen Annahme einer Kolbenströmung in Festbettreaktoren, vgl. [9, 10]. Abbildung 3-9 verdeutlicht Anhand des Verweilzeitverhaltens die Abweichungen von der Kolbenströmung bei Reaktoren mit monodisperser Partikelgrößenverteilung. Die Berechnung wurde bei einer Partikel-Reynoldszahl von 10 durchgeführt.



**Abbildung 3-9: Verteilungsfunktion der relativen Häufigkeit der Axialgeschwindigkeit bei monodisperser Schüttung**

Der rot gekennzeichnete Ast in Abbildung 3-9 zeigt den Anteil von hohen Axialgeschwindigkeiten im Reaktor. Diese kommen durch die bereits erwähnte hohe Porosität im Wandbereich zustande. Im Falle einer polydispersen Packungsstruktur fällt die Kurve flacher ab und es treten weniger hohe Axialgeschwindigkeiten auf, vgl. Abbildung 3-10.



**Abbildung 3-10: Verteilungsfunktion der relativen Häufigkeit der Axialgeschwindigkeit bei polydisperser Schüttung**

Ein Vergleich der beiden Abbildungen zeigt, daß im polydispersen Fall geringere Schwankungen der Axialgeschwindigkeit auftreten. Weiterhin sind die auftretenden Geschwindigkeitsspitzen geringer, man beachte die Maßstäbe der Abszissen von Abbildung 3-9 und Abbildung 3-10.

Aus diesen Erkenntnissen lassen sich Wege zur Reaktorgestaltung ableiten. Durch den gezielten Einsatz polydisperser Trägerpartikel kann ein Reaktor mit engem Verweilzeitverhalten „konstruiert“ werden. Das Auftreten von breiten Strömungskanälen im Wandbereich, welche von substratbeladenem Fluid sehr schnell passiert werden, wird vermindert.

Für den praktischen Einsatz bedeutet dies einen gleichmäßigen Transport und Abbau von Nährstoffen in alle Zonen des Reaktors. Die strömungsmechanische Belastung der Biomaterie ist in allen Zonen des Reaktors ausgeglichen, die Auswirkungen der durch das Fluid übertragenen Normal- und Tangentialspannungen wird in Kapitel 3.1.5 genauer erläutert.

Eine weiterer wichtiger Punkt bei der Konstruktion von Bioreaktoren ist das scale-up von Laborreaktoren zu praxistauglichen Pilot- oder Großanlagen. Die grundlegenden Mecha-

nismen bei Biokatalyse oder biologischen Abwasserreinigung werden meist in kleineren Laboranlagen untersucht. Um die Übertragbarkeit der Ergebnisse auf große Anlagen gewährleisten zu können, ist es notwendig, bei einem scale-up sowohl die geometrischen als auch die physikalischen Ähnlichkeitsverhältnisse einzuhalten. Nach der Ähnlichkeitstheorie, siehe [24], müssen die beschreibenden dimensionslosen Kennzahlen für beide Anlagen den gleichen Wert besitzen. Diese Bedingungen lassen sich für die Partikel-Reynoldszahl  $Re_p$  und die Porosität  $\epsilon$  relativ leicht einhalten.

Problematisch wird die Übertragbarkeit beim Durchmesser Verhältnis  $\Omega = d/D$ . In diesem Zusammenhang muß besonders berücksichtigt werden, daß in der Literatur die im Reaktor vorliegende Strömung in der Regel als Kolbenströmung betrachtet wird. Während Laboranlagen mit Durchmesser Verhältnissen  $< 50$  noch eine erhebliche Abweichung vom Kolbenströmungsverhalten aufweisen können, treten bei Praxisanlagen Durchmesser Verhältnisse von 360 und mehr auf, vgl. Tabelle 3-1. Bei korrekter Anwendung der Ähnlichkeitsgesetze muß die dimensionslose Kennzahl  $\Omega$  für beide Reaktoren gleich sein. Das bedeutet, daß beispielsweise bei einem 10-fachen Reaktordurchmesser die Aufwuchskörper einen 10-mal größeren Wert besitzen müssten. Diese Forderung ist aus zwei Gründen nicht erfüllbar. Erstens sind die im Handel erhältlichen Aufwuchspartikel in ihrer Größe beschränkt und zweites wird durch eine Erhöhung des Partikeldurchmessers die zur Verfügung stehende Reaktionsoberfläche im Reaktor erheblich vermindert. Eine Lösungsmöglichkeit um die geometrischen Ähnlichkeiten zu Erfüllen, bietet das Verwenden von entsprechend kleinen Partikeln im Laborreaktor.

Dieser Sachverhalt ist beim scale-up von Bioreaktoren zu beachten. In manchen Fällen können die Größenverhältnisse in gewissen Grenzen mit vergrößerten Trägerpartikeln eingehalten werden, andernfalls muss eine veränderte Charakteristik der Verweilzeit in Kauf genommen- oder durch den Einsatz von polydispersen Partikeln angepasst werden.

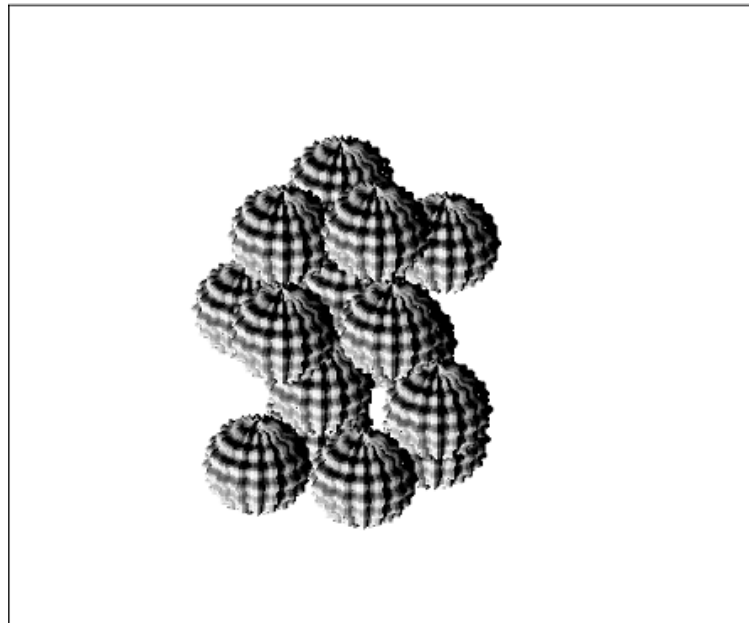
#### *3.1.4.2 Auswirkungen der Oberflächenrauigkeit der Trägerpartikel*

Die Oberfläche der Aufwuchskörper für die immobilisierte Biomaterie ist nicht vollständig eben. Um der Biomaterie das Anhaften zu erleichtern und die Besiedlungsfläche zu vergrößern, besitzen die Partikel Hohlräume und Oberflächenrauigkeiten. Die Rauigkeit führt zu einer Veränderung der strömungsmechanischen Verhältnisse in der Nähe der



Partikeloberfläche [14]. Veränderte strömungsmechanische Verhältnisse können zu einem modifizierten Anlagerungsverhalten und Nährstofftransport sowie inhomogener Immobilisation der Biomaterie führen, siehe *Nicolella et al.* [41], *Visser* [42].

In Abbildung 3-11 ist ein Partikelagglomerat mit rauher Oberfläche dargestellt. Zur besseren Darstellung ist die Rauhigkeit überhöht gezeichnet.



**Abbildung 3-11: Modellhafte Darstellung von Partikelagglomerat mit rauher Oberfläche**

Eine kurze Diskussion über Partikelhaftung und Transport, vgl. [42], soll helfen, die Wirkung der Oberflächenrauheit auf die Biomaterie besser einordnen zu können. In Experimenten über die Anlagerungskinetik von *Saccaromyces cerevisiae* auf festen Oberflächen hat sich gezeigt, daß die Oberflächenrauheit einen entscheidenden Einfluss auf die Aggregationsrate hat. Auf glatten polierten Oberflächen mit einer Rauheit unter  $1\ \mu\text{m}$  verhindert der Adhäsionseffekt die Bildung eines Biofilms. Die Zellen sind flach auf der Außenseite positioniert und haben den kleinst möglichen Abstand zur Oberfläche. In diesen Fall sind überwiegend die Van-der-Waals und elektrostatischen Kräfte für die Partikelhaftung verantwortlich. Steigt die Oberflächenrauheit in den Bereich zwischen  $1\text{-}6\ \mu\text{m}$  erreicht die Anlagerungsrate ein Minimum. Wegen des größeren Abstandes zwischen Partikel und Oberfläche wird der Effekt der Van-der-Waals und elektrostatischen Kräfte vermindert. Die hydrodynamischen Kräfte wie Scherung oder Dehnung führen zu einer Abtragung biologischen Materials. Übersteigt die Rauheit einen Wert von  $6\ \mu\text{m}$ , sind die

hydrodynamischen Kräfte zwar immer noch vorhanden, aber nicht groß genug, um die Zellen abzulösen. In diesem Fall befinden sich die meisten Zellen in Kanälen und Vertiefungen und sind somit vor dem strömungsmechanischen Einfluß geschützt.

#### 3.1.4.2.1 Modifikation der Partikelgitter

Um die Simulation der Strömung durch Geometrien wie in Abbildung 3-11 durchführen zu können, bedarf es zunächst einer Anpassung der Partikelgitter. Dabei wird die neue Oberfläche mit einer Formfunktion beschrieben. Diese Funktion gibt im einfachsten Fall einen sinusförmigen Verlauf wieder. Es können aber prinzipiell beliebige Formen modelliert werden.

Die in der Praxis verwendeten Aufwuchskörper unterliegen sowohl einer gewissen Schwankung in der Größenverteilung, als auch in der Oberflächenbeschaffenheit. Abbildung 3-12 zeigt zwei Möglichkeiten wie die Oberfläche gestaltet werden kann. Im Rahmen dieser Arbeit soll und kann kein Vergleich der Simulation mit exakten Rauigkeitsmodellen. vgl. [14], aufgestellt werden. Es geht vielmehr um das Aufzeigen der Möglichkeit, Rauigkeiten an der Oberfläche eines oder einiger weniger Partikel zu simulieren. Um konvergente Geschwindigkeitsfelder zu erhalten, muß die Gitterstruktur an der Oberfläche extrem fein aufgelöst werden, siehe Abschnitt 3.1.4.2.2. Dies liegt an den engen Zwischenräumen und deformierten Zellen in den Vertiefungen.

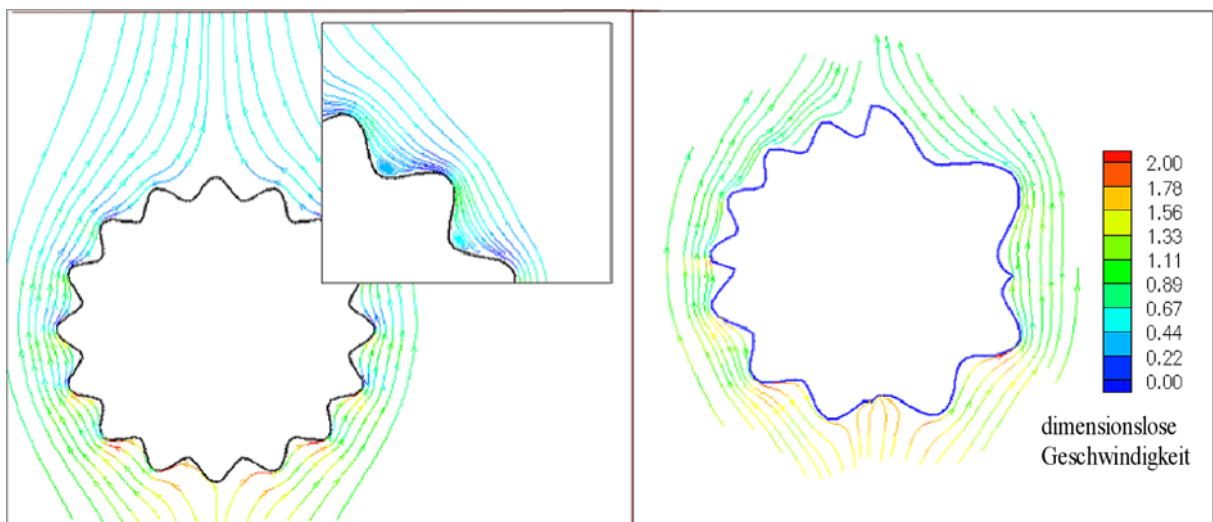


Abbildung 3-12: Vergleich verschiedener Oberflächenformen der Trägerpartikel

Auch wenn die hier vorgenommene Modellierung der Oberfläche nicht den exakten Gegebenheiten in der Natur entsprechen kann, erhält man durch Simulationen von verschiedenen Rauheitsformen wie in Abbildung 3-12 aufschlussreiche und weiterführende Ergebnisse über strömungsmechanische Vorgänge um das Partikel und in den Zwischenräumen. Demgemäß wird auf das Studium von rauhen Oberflächen verzichtet, bei welchen - in Analogie zu den tatsächlichen Vorgängen – die Partikelanlagerung mit statistischen Ansätzen beschrieben wird, siehe *Brück* [43] und *Horwatt et al.* [44].

#### 3.1.4.2.2 *Strömungsphänomene bei Oberflächenrauigkeit*

Die folgenden Ausführungen beziehen sich auf die Umströmung von Einzelpartikeln. Wie in 3.1.4.2.1 beschrieben, besteht die Notwendigkeit, das Gitter an der Oberfläche stark zu verfeinern. Daraus resultiert ein starker Anstieg der Berechnungsdauer. Um ein konvergentes Ergebnis zu erhalten, ist eine Auflösung von etwa 50\*50\*80 Punkten für das Reaktorgitter und 50\*130\*50 für das Partikelgitter sowie eine Berechnungszeit von 3-4 Tagen notwendig. Prinzipiell ist es möglich, mit dem gemäß Abschnitt 3.1.4.2.1 modifizierten Programm auch Partikelagglomerate zu berechnen. Abbildung 3-11 zeigt erste Ansätze dazu. Die zusätzliche Schwierigkeit bei der Simulation von Aggregaten besteht darin, daß der Berechnungsraum noch feiner aufgelöst werden muß. Bei der Annäherung und Berührung der rauhen Oberflächen entstehen weitere sehr kleine Kanäle und Zwischenräume. Hier treten hohe Geschwindigkeitsgradienten auf, welche die Konvergenz beeinflussen.

Abbildung 3-13 zeigt die Anströmung eines Partikels bei der Partikel-Reynoldszahl von 46.5. Oben ist die Strömungsgeschwindigkeit mit Vektoren dargestellt. Der untere Teil zeigt die Kontur der Geschwindigkeit und einen Ausschnitt der Stromlinien um das Partikel.

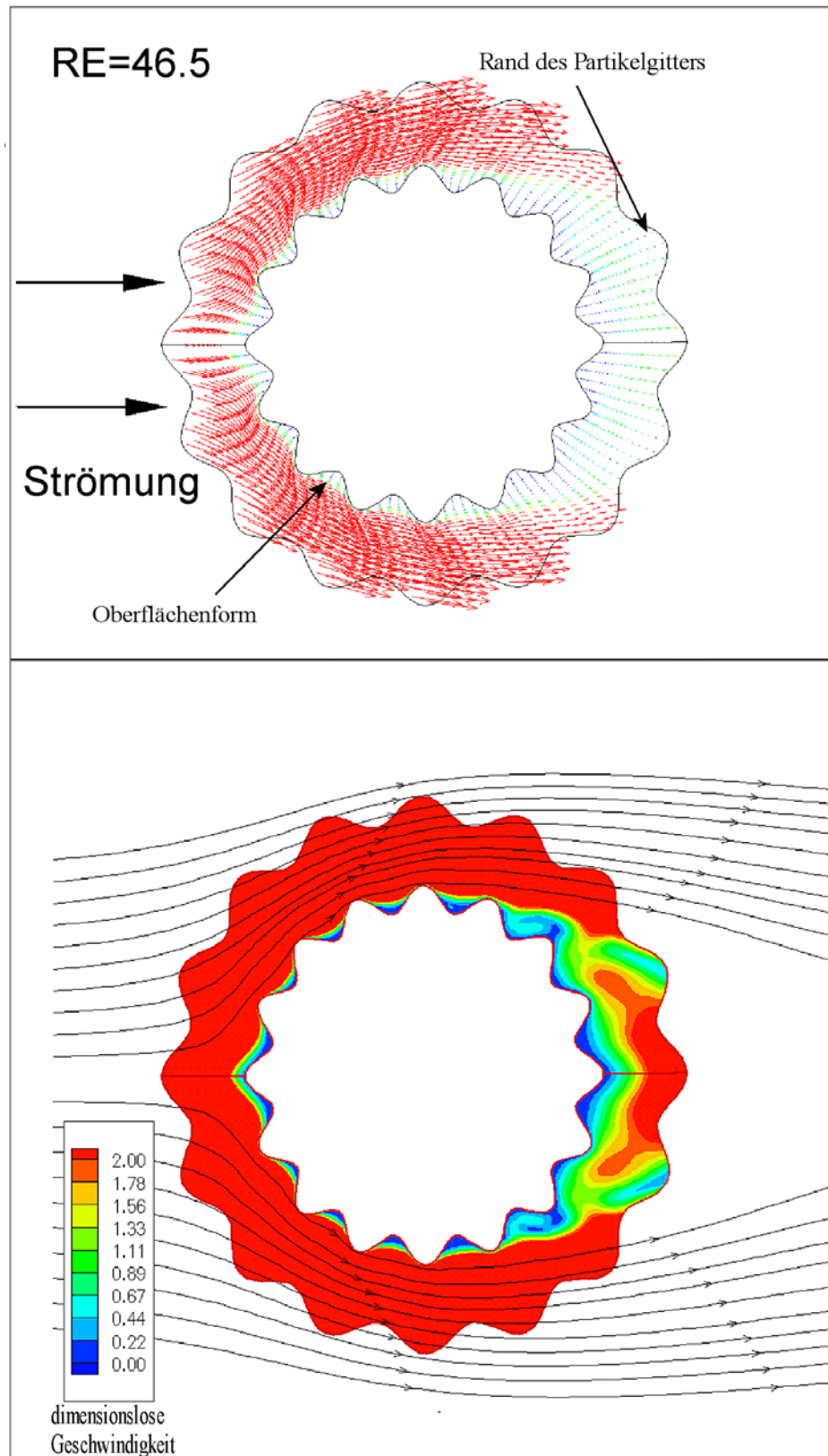
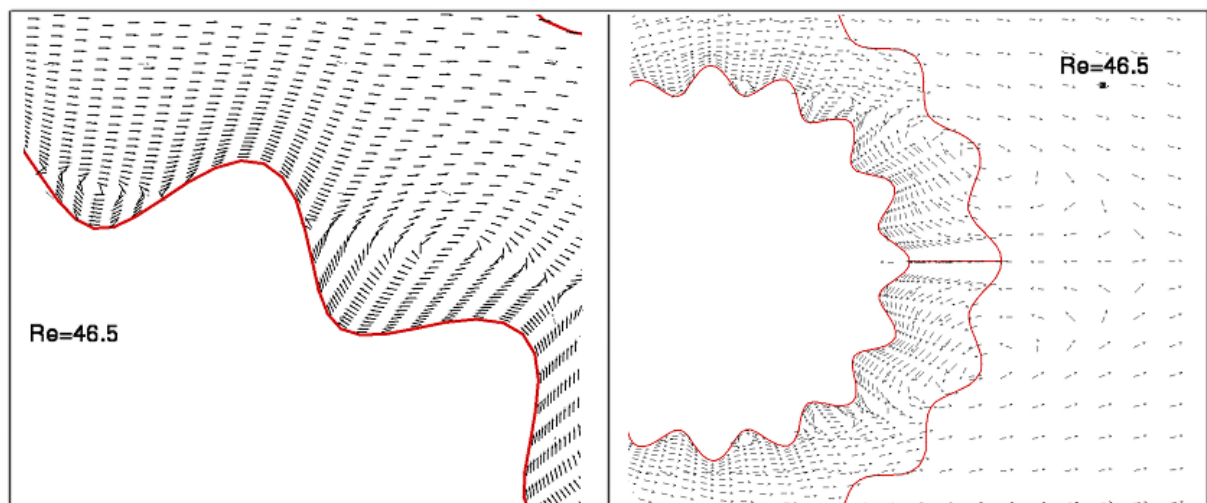


Abbildung 3-13: Vektor- und Konturplot des Strömungsfelds um ein Einzelpartikel bei der Partikel-Reynoldszahl von 46.5

Wegen der meist geringen Erhebungen im Vergleich zum Durchmesser wird die Partikel-Reynoldszahl bei rauhen Partikeln mit Gleichung (2-30) gebildet.

Es ist deutlich ein Ablösegebiet hinter dem Partikel zu erkennen. Betrachtet man die Rauigkeitsvertiefungen so zeigt sich, daß die Strömung bis zum Erreichen des Ablösegebietes im hinteren Drittel des Partikels anliegt und der Oberflächenkontur folgt. Die primäre Ursache dieser Ablösung ist die im Gebiet stattfindende Druckerhöhung. Im hinteren Drittel bilden sich neben dem Hauptablösegebiet auch kleinere Verwirbelungen in den Einbuchtungen in direkter Nähe zur Partikeloberfläche. Deutlich ist dies in Abbildung 3-13 unten durch die Unregelmäßigkeiten der blauen Kontur im hinteren Partikelbereich zu sehen. Weiterhin verdeutlicht die blaue Farbgebung, daß die Strömungsgeschwindigkeit in den Oberflächenvertiefungen im Bereich von nur wenigen mm pro Sekunde bis zum Wert null schwankt.

Abbildung 3-14 zeigt eine Detailansicht der eben beschriebenen Strömungsvorgänge um ein rauhes Partikel. Die Rückströmungen und Verwirbelungen können großen Einfluß auf die immobilisierte Biomaterie an der Oberfläche haben. Durch die sehr niedrigen Strömungsgeschwindigkeiten und den daraus resultierenden großen Verweilzeiten wird erstens die Anlagerung von Mikroorganismen erleichtert und zweitens ein bereits vorhandener Biofilm vor mechanischen Belastungen geschützt.



**Abbildung 3-14: Vektordarstellung des Ablösegebietes in den Vertiefungen an der Partikelrückseite**

Kommt es durch Störungen wie z.B. Schadstoffeintrag zu einer Schädigung des Biofilms ist vor allem der erste Punkt von Interesse, weil die langsamen Geschwindigkeiten die

Neubesiedelung durch Mikroorganismen erleichtern. Die Wahrscheinlichkeit für einen Organismus, in einer Vertiefung haften zu bleiben, ist viel größer als an einer glatten Oberfläche. Bilden sich die ersten Kolonien, wird das Gefüge stabiler und die Besiedlung der gesamten Partikeloberfläche mit Biofilm erleichtert. Auch Immobilisate, die an die Oberfläche gebunden werden, können sich in den Vertiefungen besser halten. Inwieweit die strömungsmechanischen Kräfte die Bildung von Biofilm oder die Haftung von immobilisierten Enzymen beeinflussen können, wird im nächsten Kapitel geklärt.

Die langsamen Geschwindigkeiten und Verwirbelungen bieten nicht nur Vorteile für die Biomaterie. Der konvektive Transport von Substrat wird durch langsame Geschwindigkeiten behindert. Nährstoffe können im wesentlichen nur über Diffusion in tiefere Schichten dringen und die Biomaterie wird unzureichend versorgt. Dies führt zu Einbußen in der Effektivität und Umsatzleistung eines Reaktors. Ferner werden hemmende Endprodukte und Verschmutzungen nur unzureichend aus den Vertiefungen transportiert.

Wie in Kapitel 3.1.4.2.1 beschrieben, ist die Simulation rauher Oberflächen auf Einzelpartikel beschränkt. Durch Interpretation der physikalischen Zusammenhänge im Reaktor können einige Aspekte der Einzelpartikelumströmung auf den gesamten Reaktor übertragen werden. Aus der unregelmäßigen Packungsstruktur resultieren ständige Umlenkungen des Fluids und die Strömung kann sich nicht vollständig ausbilden. Neben der Störung durch benachbarte Partikel führt dieser Sachverhalt zur weitgehenden Unterdrückung von Ablöserscheinungen an der Partikelrückseite. Das durch die Ablösung entstehende Unterdruckgebiet begünstigt auch die Bildung von kleinen Verwirbelungen in den Vertiefungen, siehe Abbildung 3-14 links. Dennoch kommt es zu einer starken Verlangsamung der Strömungsgeschwindigkeit an der Oberfläche und die Bildung von feinen Wirbeln wird nicht vollständig unterdrückt.

### **3.1.5 Einfluss der strömungsmechanischen Belastung auf die Biomaterie**

Eine der wichtigsten Fragestellungen dieser Arbeit betrifft den Sachverhalt, inwieweit die strömungsmechanischen Kräfte die immobilisierte Biomaterie schädigen können. Durch die Strömung entstehen sowohl an glatten als auch rauhen Oberflächen Schub- und Normalspannungen. Diese Spannungen greifen an der Oberfläche der Biomaterie an und führen zu Belastung und Deformation der Matrix.

Ob diese Belastungen einen schädigenden Einfluß ausüben, hängt neben der zeitlichen Dauer und des absoluten Betrages auch im wesentlichen von der strukturellen Beschaffenheit der Biomaterie ab. Ohne genaue Aussagen über Struktur und Kohäsionskräfte machen zu können, ist es nicht möglich, die Stabilität zu beurteilen.

In diesem Zusammenhang beschreibt *Brück* [43] anhand eines Modells die Zerstörung von sensiblen biologischen Agglomeraten durch Scher- und Normalspannungen. Überschreitet die Schubspannung einen überkritischen Wert so sinkt der Agglomeratdurchmesser bei einer gegebenen Scherrate exponentiell mit der Belastungsdauer. Dies impliziert, daß auch geringe mechanische Spannungen einen entscheidenden Einfluß auf die Agglomeratgröße haben können, wenn nur die Einwirkdauer lange genug ist. Die Überlegungen von *Brück* stimmen gut mit den Ergebnissen von *Horwatt et al.* [44] überein. Sie beschreiben das Aufbrechen von Flocken mit einem „Liner-Trajectory-Aggregation Modell (LTA)“. Wichtigste Erkenntnis ist, daß Agglomerate mit kleinem Durchmesser zwar kleineren hydrodynamischen Kräften ausgesetzt sind, aber diese Kräfte auch weniger Bindungen aufbrechen müssen.

Aussagen in der Literatur sowohl über die Maximalspannungen, die Mikroorganismen ertragen können, als auch über die Wechselwirkungen zwischen Biofilmstruktur und Strömungsmechanik sind sehr begrenzt und beschränken sich meist auf die Beschreibung von Schereffekten. *Mersmann et al.* [45] geben einen Überblick über die maximalen Spannungen, die Prokaryonten, Eukaryonten und pflanzliche und tierische Zellen ertragen.

Bakterien wie *Micrococcus luteus* oder *Synechococcus nidulans* ertragen maximale Schubspannungen von bis zu  $10^8$  N/m<sup>2</sup>. Hefen wie *Saccaromyces cerevisiae* werden beschädigt, wenn die Scherrate  $8 \cdot 10^7$  N/m<sup>2</sup> übersteigt. Die Toleranz von pflanzlichen und tierischen Zellen liegt mit Zellen  $2 \cdot 10^6$  N/m<sup>2</sup> und  $500$  N/m<sup>2</sup> weitaus niedriger. Alle diese Werte beziehen sich auf suspendierte Organismen, die nicht in einen Biofilm eingebunden sind. Organismen, die durch extrapolymere Substanzen (EPS) geschützt sind, können noch einer weitaus höhern Belastung standhalten. Tabelle 3-2 gibt eine Zusammenfassung der von verschiedenen Autoren ermittelten maximalen Schubspannungen diverser biologischer Systeme.

Tabelle 3-2: Kritische Schubspannungswerte von für verschiedene biologische Systeme

Biomaterie	Kritische Schubspannung [ $\text{N/m}^2$ ]	Referenz
Bakterien (Hochdruckextrusion)	$10^7$ - $10^8$	[45]
Bakterien (Agglomeration auf einer flachen Platte)	$10^1$	[46]
Hefe	$8 \times 10^7$	[45]
pflanzliche Zellen	$2 \times 10^6$	[45]
tierische Zellen	$5 \times 10^{-3}$ - $5 \times 10^2$	[45]
Heißwürste	$5 \times 10^1$	[43]
Milchfettropfen	$1,9 \times 10^1$	[47]

Die verschiedenen Werte in Tabelle 3-2 geben einen Überblick, wie unterschiedlich die Toleranzen verschiedener Systeme auf mechanische Belastung sein können. Betrachtet man die Größenordnung der tolerierten Kräfte in [45] und [46], wird auch der bereits angesprochene Unterschied zwischen Organismen sehr deutlich die im Fluid suspendiert vorliegen oder als Biofilm mit EPS verbunden sind. Der hohe Schubspannungswert von  $5 \times 10^2 \text{ N/mm}^2$  in [45] betrifft eine Belastungsdauer, die nur sehr kurze Zeit ertragen werden kann. Werden die Zellen über einen längeren Zeitraum belastet, reduzieren sich die tolerierten Kräfte erheblich. Dieser Sachverhalt wird in Abbildung 3-15 verdeutlicht.

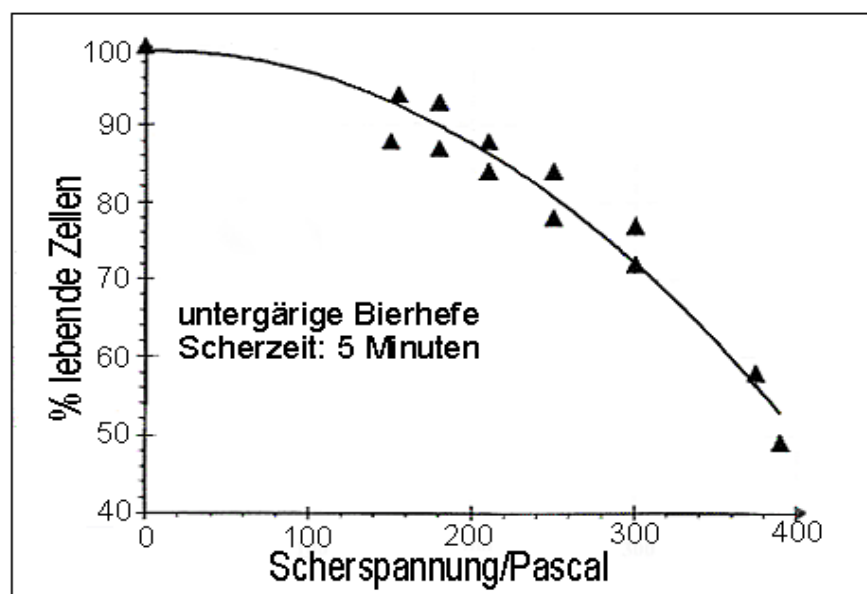


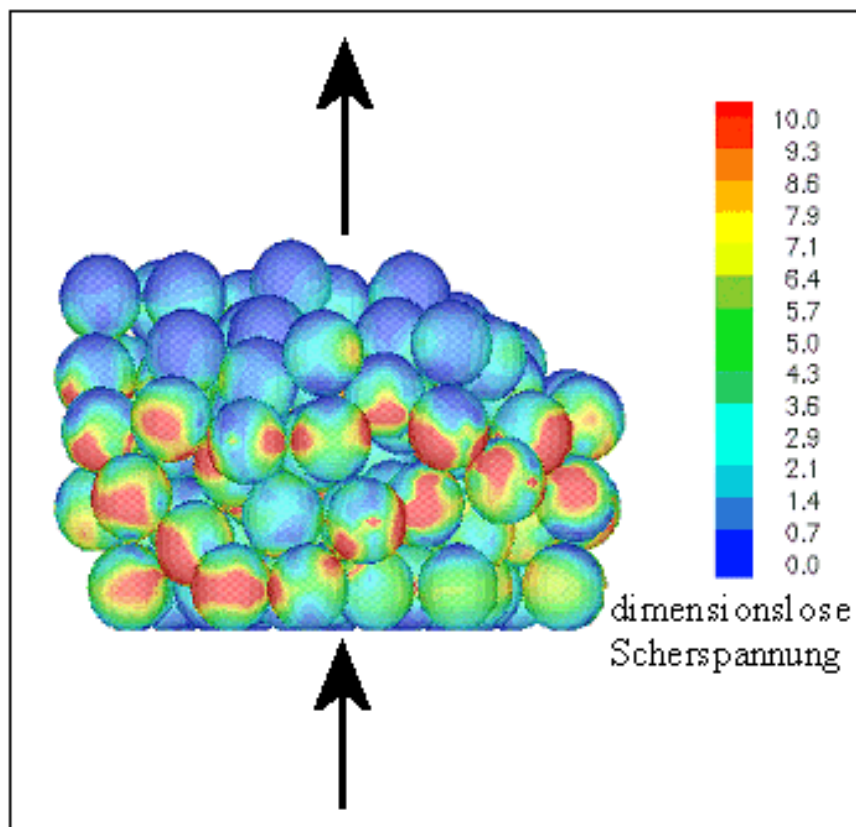
Abbildung 3-15: Deaktivierungskinetik von Hefezellen nach 5 Minuten Scherung



Abbildung 3-15 zeigt den Einfluß der Schubspannung auf die Inaktivierung von Hefezellen nach einer Belastungsdauer von 5 Minuten. Die Inaktivierung von *Saccaromyces cerevisiae* beginnt bereits beim Überschreiten einer Scherrate von 50 Pascal. Unter diesem kritischen Schwellenwert werden Belastungen eine beliebig lange Zeit ertragen.

### 3.1.5.1 Quantifizierung der mechanischen Belastung

Verglichen mit der Belastung nach Abbildung 3-15 erweisen sich die in einem Bioreaktor auftretenden Spannungen als relativ gering. Abbildung 3-16 zeigt die dimensionslose Schubspannungsverteilung, siehe Gleichung (2-12), als Ergebnis einer Simulation mit einer Partikel-Reynoldszahl von 9.3.



**Abbildung 3-16: Verteilung der Schubspannung an der Trägerpartikeloberfläche**

Die an einem Fluidelement angreifenden Spannungen können anhand eines symmetrischen Spannungstensors in neun Komponenten aufgeteilt werden, siehe auch [22]. Abbildung 3-16 zeigt die Komponenten des Tensors welche tangential zur Partikeloberfläche angreifen. Der tangentielle Anteil wird durch eine Koordinatentransformation, welche an die Form der

Partikeloberfläche angepasst ist, erhalten. Im allgemeinen spricht man bei tangential zu einer Oberfläche angreifenden Spannungen von Scher- oder Schubspannung.

Die in Abbildung 3-16 gezeigte Scherspannung lässt sich mit Gleichung (2-12) nach der in Kapitel 2.5.3 beschriebenen Vorgehensweise in dimensionsbehaftete Werte überführen. Ein Vergleich der Simulationsergebnisse mit den Werten in Tabelle 3-2 zeigt offensichtlich, daß die auftretenden Belastungen zu keiner Schädigung der Mikroorganismen führen, selbst wenn sie diesen eine lange Zeit ausgesetzt sind.

Nach Tabelle 3-1 werden Bioreaktoren im allgemeinen mit sehr geringen Geschwindigkeiten betrieben. Einerseits steigt so der Druckabfall nicht zu stark, andererseits erhöht sich die Verweilzeit und das Substrat wird mit wenigen Umläufen konvertiert.

Entdimensioniert man die Schubspannungen bei der gegebenen Reynoldszahl, vgl. Kapitel 2.5.3, in Abbildung 3-16 treten im Mittel Werte von ca.  $2 \text{ N/m}^2$  auf. Selbst im Wandbereich mit überhöhten Geschwindigkeiten übersteigt die Schubspannung selten Werte höher als  $6 \text{ N/m}^2$ . *Flemming* [48] zeigt, daß es bei Belastungen unter  $13 \text{ N/m}^2$  nicht einmal möglich ist, 'freie' Mikroorganismen von einer Anlagerung an eine Membranoberfläche abzuhalten. So erscheint es sehr unwahrscheinlich, daß während der Rezirkulationsphase die Biofilmstruktur verändert oder zerstört wird, zumal der Biofilm auf einer rauhen Oberfläche wächst und eine von EPS verstärkte Struktur aufweist.

Bestätigt wird diese Aussage durch Abbildung 3-17. Auch bei höheren Strömungsgeschwindigkeiten schützen Rauheitsvertiefungen die Biomaterie. Die Schubspannung erreicht die Spitzenwerte an exponierten Stellen wodurch die primäre Besiedlung behindert wird. Hat sich aber erst einmal ein Biofilm manifestiert, kann dieser durch EPS geschützt auch die exponierten Stellen besiedeln.

Den überwiegenden Einfluß auf die Biofilmstruktur und Erosion stellt die Rückspülung des Reaktors dar. Sie muss in regelmäßigen Abständen durchgeführt werden, um Verblockungen im Reaktor zu lösen. Dabei werden die Trägerpartikel teilweise fluidisiert, reiben aneinander und der Biofilm wird durch diesen massiven mechanischen Einfluß abrasiert. *Arnz* [49] zeigt in Anlagerungsversuchen, daß sich der Biofilm auf den Trägerpartikeln anpassen kann und bei einer intensiven Rezirkulation eine festere Struktur entwickelt.

Einen weiteren Einfluß auf die Biofilmstruktur und Organismenpopulation hat das Nährstoffangebot im Reaktor. Nach *Schramm et al.* [50] können sich unter Bedingungen wie Nährstoffmangel unterschiedliche Populationen entlang der axialen Position im Reaktor einstellen. Der Nährstofftransport wird ganz entscheidend von den strömungsmechanischen Verhältnissen beeinflusst. Aus diesem Grund ist es zur vollständigen Beschreibung notwendig, Stofftransportvorgänge mit in die Simulation einzubeziehen, vgl. Kapitel 3.2.

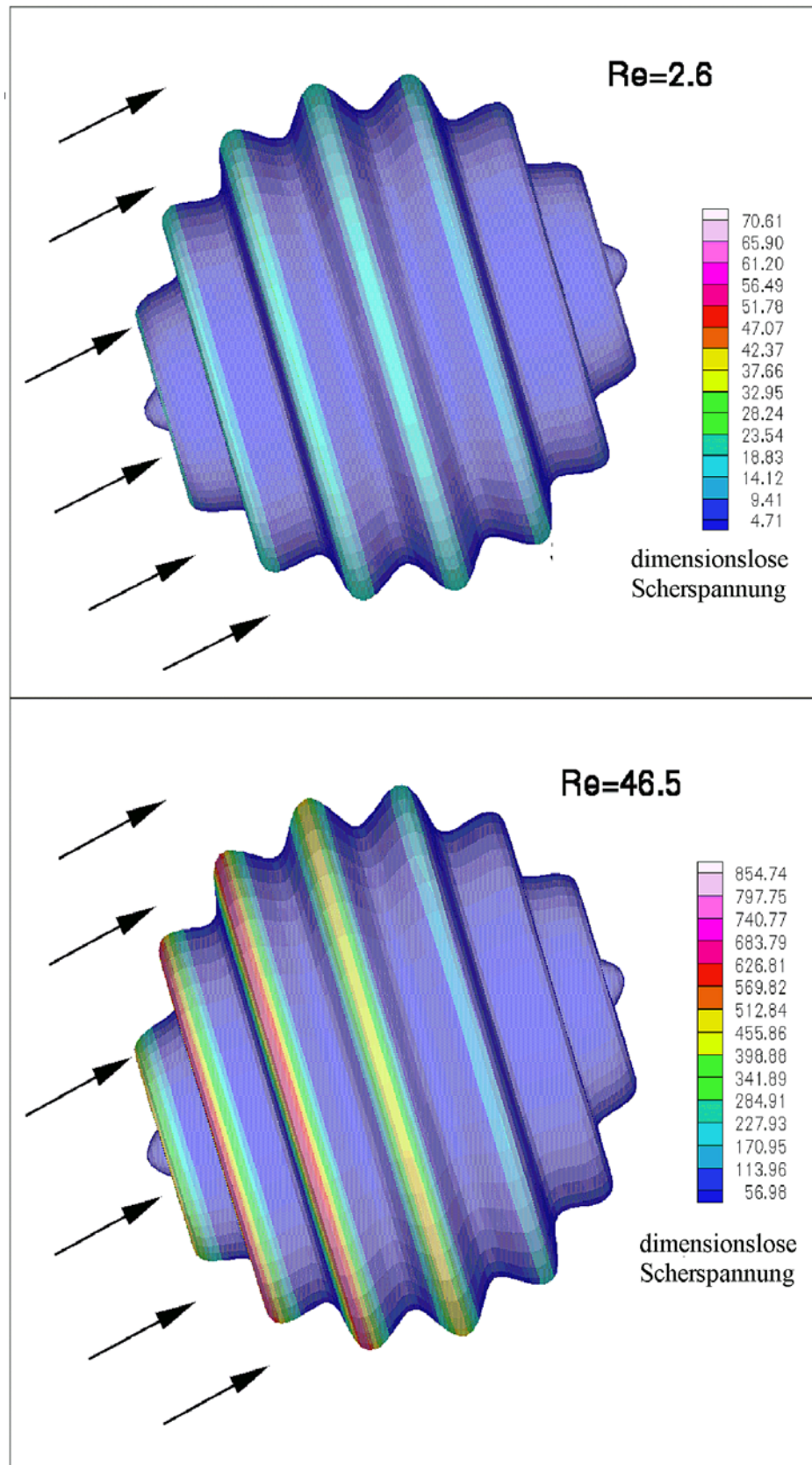


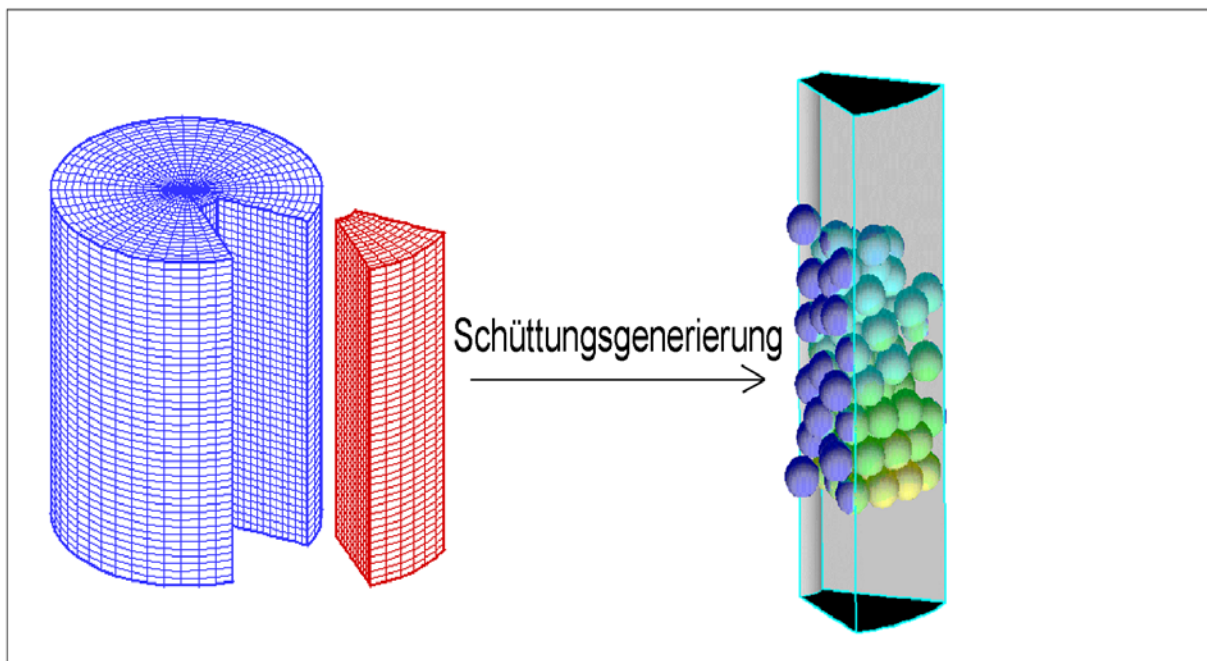
Abbildung 3-17: Schubspannungsverteilung an einer rauhen Partikeloberfläche bei verschiedenen Partikel-Reynoldszahlen

### 3.1.6 Segmentierung des Berechnungsgebietes

Tabelle 3-1 ist zu entnehmen, daß sowohl in Labor- als auch in Pilotanlagen eine Vielzahl von Trägerpartikeln vorhanden ist. Die Simulation der lokalen Strömungsprozesse aller Trägerpartikel im Reaktor ist selbst mit modernsten Computern nicht realisierbar. Deshalb ist es notwendig, mit geeigneten Maßnahmen den Rechenaufwand zu reduzieren. Eine in der Strömungssimulation übliche Vorgehensweise, siehe [22], ist die Ausnutzung von Symmetrien im Berechnungsraum. Weist die Rechendomäne z. B. Achsen- oder Rotationssymmetrischen Aufbau auf genügt, bei der Implementierung entsprechender Symmetrie-Randbedingungen, die Berechnung von nur einem Teilbereich der Domäne. Die anderen Gebiete besitzen den gleichen Strömungsaufbau.

Die Kenntnis der charakteristischen Zonen in Bioreaktor, siehe Kapitel 3.1.3, bietet die Möglichkeit nur einen Teilbereich des gesamten Reaktorraums zu simulieren und dennoch alle physikalischen Vorgänge in Reaktor zu erfassen. Dabei ist bei der Wahl des Berechnungssegments zu beachten, keine Information über die verschiedenen Zonen zu verlieren.

Abbildung 3-18 links zeigt das für die Berechnung vorgesehene Gittersegment. Auf der rechten Seite ist das gewählte Teilgebiet, befüllt mit Trägerpartikeln, als Eingabegeometrie für die Simulation zu sehen.



### **Abbildung 3-18: Selektion des Rechensegments und Aufbau der Zufallsschüttung**

Das in Abbildung 3-18 rot gezeichnete Segment eignet sich sehr gut um alle im Reaktor vorkommenden Zonen abzubilden. Durch die Ausdehnung über die gesamte Reaktorlänge werden die Ein- und Auslaufzone mit berücksichtigt. Um den Kernbereich abzubilden berücksichtigt die Wahl des Segments weiterhin, daß die radiale Ausdehnung mindestens drei Partikeldurchmesser beträgt.

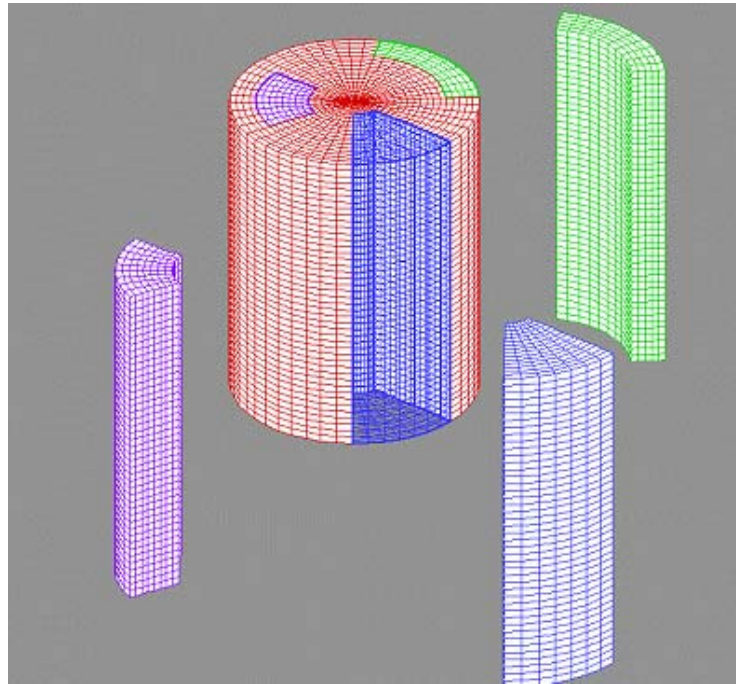
Die Trägerpartikelschüttung weist zwar einen zufälligen aber sich dennoch über den Umfang periodisch wiederholenden Aufbau auf. Das bedeutet, daß sich die Strömungsverhältnisse nach einer bestimmten Anzahl von aneinanderliegenden Partikeln in Umfangsrichtung prinzipiell wiederholen. Deshalb ist zu beachten, daß der Segmentwinkel einen genügend großen Wert annimmt um die Individualität des Einzelpartikels vernachlässigen zu können und den Wandeinfluß darzustellen. Die Größe des Segmentwinkels ist stark abhängig vom Durchmesser Verhältnis des Reaktors und vom Durchmesser der Trägerpartikel. Als Richtwert gilt, daß er mindestens vier an der Wand horizontal nebeneinanderliegende Partikel umfassen muß.

#### *3.1.6.1 Aufteilung der Gitter*

Bei den Simulationen des gesamten Reaktorraums erzeugt ein elliptischer Gittergenerator das Gitter des Berechnungsgebiets. Mit Hilfe dieses Generators können fünfseitige Kontrollvolumina, wie sie in der Mittelachse des Containers auftreten würden, vermieden werden. Dies erleichtert die Handhabung des Gleichungssystems bei der Lösung weil die Sonderfälle von Flächen mit einer Ausdehnung von null nicht durch spezielle Routinen behandelt werden müssen.

Um mit dem vorliegenden elliptischen Gittergenerator verschiedene Segmente zu diskretisieren, bedarf es einer Vielzahl von Modifikationen. Aus diesem Grund wird für die Diskretisierung in verschiedene Teilbereiche ein klassisches zylindrisches Gitter verwendet. Bei dieser Art von Gitter treffen in der Mittelachse des Reaktors zwei Seitenflächen aufeinander und es entstehen fünfseitigen Kontrollvolumina.

Abbildung 3-19 veranschaulicht den prinzipiellen Aufbau des Reaktorgitters mit möglichen Segmentierungen. Die dargestellten Teilvolumina zeigen, daß bei der Segmentierung nicht zwingend die Zylinderachse in das Berechnungsgebiet mit einbezogen werden muss. Wählt man ein Segment wie in Abbildung 3-18 dargestellt, werden alle relevanten Zonen abgebildet und zusätzlich läßt sich die Problematik der fünfseitigen Kontrollvolumina vermeiden. Die Gitter der Trägerpartikel bleiben beim Ansatz der Segmentierung unverändert.



**Abbildung 3-19: Mögliche Teilsegmente des Berechnungsgitters**

### 3.1.6.2 Auswahl der Randbedingungen

Mit den Ergebnissen der Simulation für ein Segment soll eine möglichst repräsentative Aussage für die physikalischen und biotechnologischen Vorgänge im gesamten Reaktorgebiet getroffen werden.

Bei der Wahl der Randbedingungen für das Segment ist deshalb Sorgfalt angebracht. An der Reaktorwand sind wie bei der vollständigen Berechnung Wandrandbedingungen implementiert. An den neu entstandenen Außenflächen können a priori keine physikalischen Randbedingungen angegeben werden. Deshalb sind für diesen Bereich sinnvolle Annahmen zu treffen.

Diesen Flächen haben Randbedingungen in der Form, daß kein Massenfluß normal zur Wand stattfinden kann und das Fluid nicht an der Außenfläche haftet. Partikel, die aus dem Berechnungsgebiet des Segments ragen, siehe Abbildung 3-19, werden nur mit ihrem innerhalb des Segments befindlichen Anteil bei der Berechnung berücksichtigt. Diese Bedingungen sorgen für eine physikalisch sinnvolle Annäherung an reale Verhältnisse, weil durch den Schnitt der herausragenden Partikel Zonen mit hoher Porosität an den neu entstandenen Außenflächen vermieden werden. Auf diese Weise kann trotz der Begrenzung des Berechnungsraums an den neu entstandenen Seitenflächen der Eindruck einer Wand vermieden werden.

Eine weitere Möglichkeit zum Einbringen zweckmäßiger Randbedingungen ist noch nicht realisiert, soll aber, um die verschiedenen Möglichkeiten aufzuzeigen, hier kurz erwähnt werden. Bisher werden die aus dem Segment herausragenden Partikel nicht in die Berechnung mit einbezogen und die ungeordnete Struktur der Schüttung wird durch Ausschnitt eines genügend großes Teilgebiets wiedergegeben. Durch Modifikation des Schüttungsgenerators besteht die Möglichkeit, eine streng periodische Struktur im Segment aufzubauen. Partikel die auf einer Seite in das Berechnungsgebiet treten werden, auf der anderen Seite in exakt derselben Position abgebildet. Daraus resultiert ein periodischer Aufbau der Geometrie in den neu entstandenen Begrenzungsflächen und die Simulation kann mit periodischen Randbedingungen für diesen Bereich durchgeführt werden.

### *3.1.6.3 Verifikation der Segmentation*

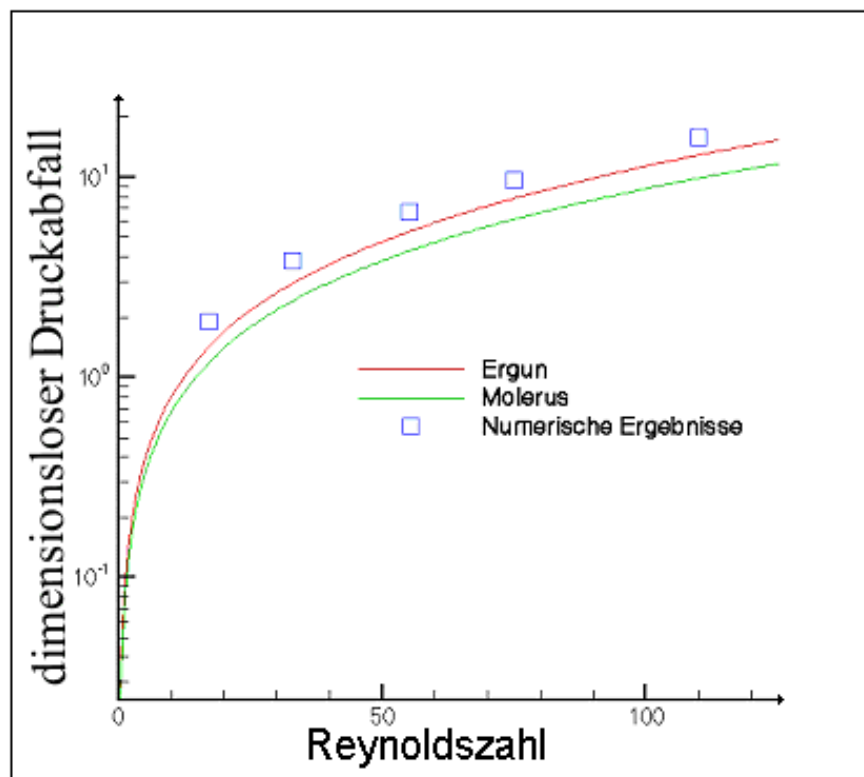
Zwei Beispielkonfigurationen mit großer Partikelanzahl dienen dazu, den Ansatz der Segmentierung zu beurteilen: eine Konfiguration mit 1000 Partikeln, einem Durchmesser Verhältnis  $\varnothing_{\text{Reaktor}}/\varnothing_{\text{Partikel}}$  von zehn und dem Längenverhältnis Schüttungslänge/ $\varnothing_{\text{Reaktor}}$  von 1.47, die andere mit 4000 Partikeln, einem Durchmesser Verhältnis  $\varnothing_{\text{Reaktor}}/\varnothing_{\text{Partikel}}$  von 20 und dem Längenverhältnis Schüttungslänge/ $\varnothing_{\text{Reaktor}}$  von 0.58. Aus den beiden Schüttungen wurden jeweils Segmente von 150 Partikeln ( $45^\circ$ ) bzw. 300 Partikeln ( $28.7^\circ$ ) geschnitten.

Ein wichtiger Parameter zur Überprüfung der Methode durch den Vergleich mit Literaturdaten ist der globale Druckabfall über der Schüttungslänge. Die Angaben über Druckabfälle von Kontinuumsmodellen, wie sie in der Literatur zu finden sind [3, 4] können



durch zahlreiche Versuche als gesichert gelten. Stimmen Druckverlauf von Literaturdaten Simulation überein, so sind die Reibungs- und Druckverluste von ähnlicher Größenordnung und die Simulation des Segments gibt die strömungsmechanischen Vorgänge richtig wieder.

Abbildung 3-20 zeigt den Druckabfall in Abhängigkeit der Reynoldszahl für einen vollständigen, d.h. nicht segmentierten Reaktor. Die Kurven zeigen die Ergebnisse der Kontinuumsmodelle nach [3, 4] sowie die Werte einer Simulation mit geringerer Partikelanzahl. Die Resultate der Simulation liegen leicht über den Literaturwerten, prinzipiell ist aber ein gleicher Kurvenverlauf zu erkennen. Die leichte Erhöhung des Druckabfalls bei der Berechnung des Segments wird mittels Abbildung 3-22 erklärt.



**Abbildung 3-20: Vergleich des dimensionslosen axialen Druckabfalls mit Literaturdaten**

Auch Vergleiche mit den Ergebnissen vollständiger Simulationen des Reaktors [20] können dazu dienen, die Richtigkeit des Segmentierungsansatzes zu überprüfen. Abbildung 3-21 zeigt eine Gegenüberstellung des axialen Druckabfalls zwischen Segment und vollständigem Reaktor. Die Kurven stimmen sowohl vom quantitativen als auch qualitativem Verlauf sehr gut überein.

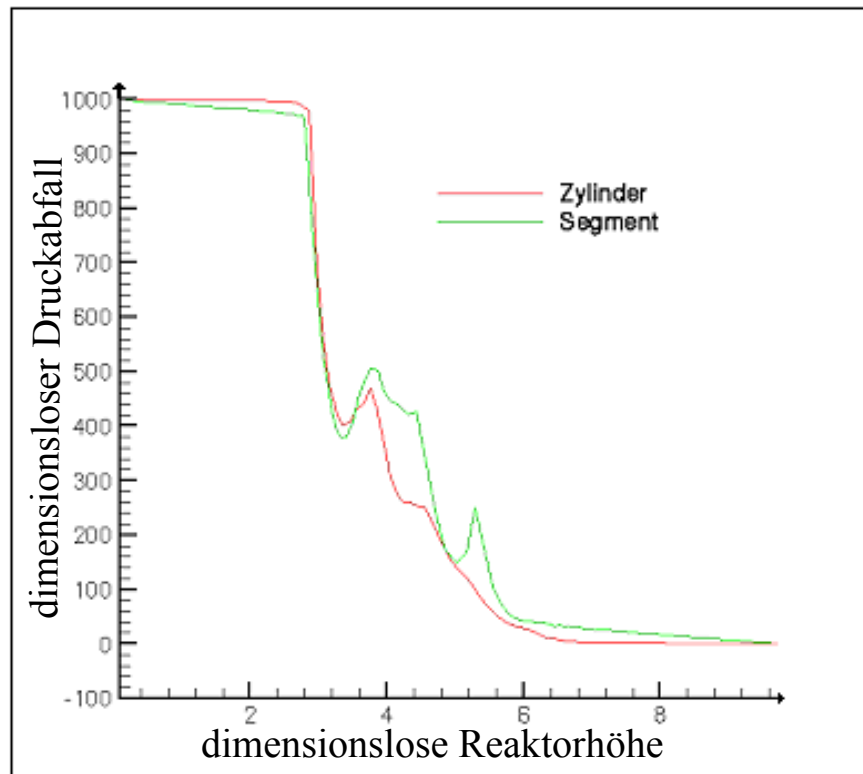
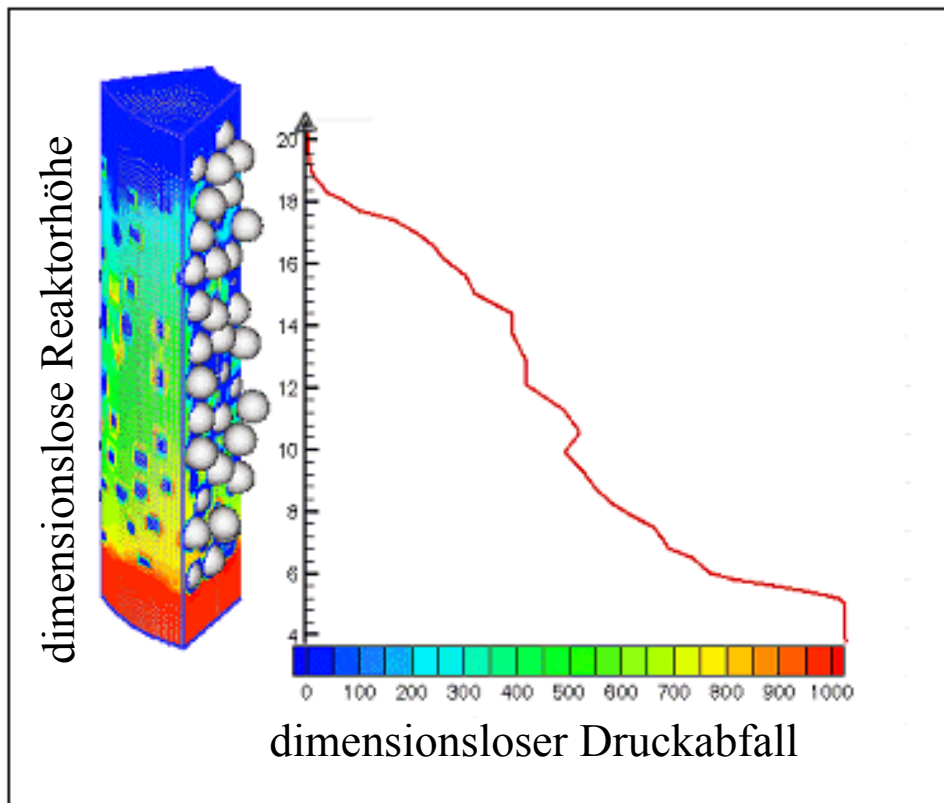


Abbildung 3-21: Vergleich der axialen Druckabfälle Segment - vollständiger Reaktor

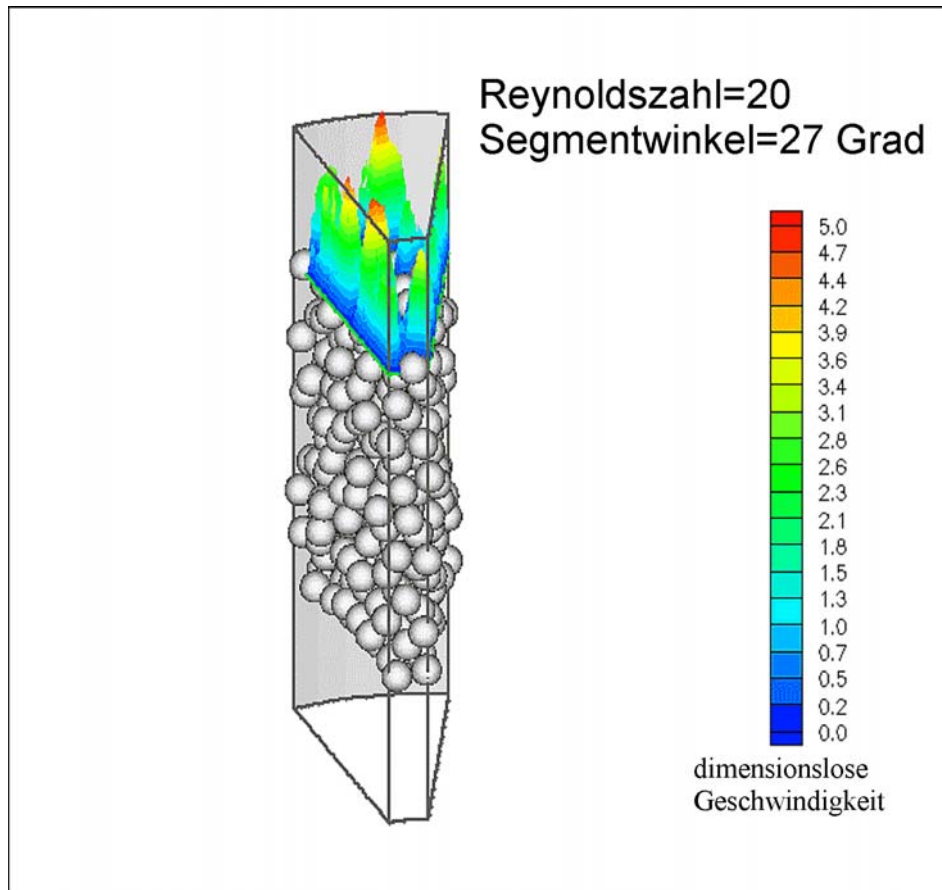
Den Verlauf des Druckabfalls verdeutlicht Abbildung 3-22 noch einmal. Die dimensionslose Reaktorhöhe ist auf den Partikeldurchmesser bezogen. Das farbige Gitter zeigt die globale Druckverteilung im Berechnungsgebiet. Der steile Druckabfall am Einlauf wird zum einen durch Reibungsverluste aufgrund des hohen Strömungswiderstands am Einlauf in die unregelmäßigen und engen Kanäle der Packung, zum anderen durch die Beschleunigung und Umlenkung des Fluids durch die plötzliche Verengung des zur Verfügung stehenden Strömungsquerschnitts bedingt.



**Abbildung 3-22: Errechnete Druckverteilung im Schüttungssegment**

Bereits in den ersten Schichten der Packungszone ist, wie in Abbildung 3-21 zu sehen, ein sehr steiler Druckabfall zu erkennen. Es folgt ein Bereich mit geringerer Steigung und gleichmäßigem Abfall, bis schließlich der Kurvenverlauf in der Nähe der Auslaufzone zunehmend abflacht.

Wichtige Erkenntnisse bezüglich der Validierung der Segmentation liefert die physikalische Interpretation von Abbildung 3-21 und Abbildung 3-22. Bei der Simulation in Abbildung 3-21 sind Wandrandbedingungen an den Schnittebenen implementiert. Die Schüttung in Abbildung 3-22 ist mit symmetrischen Randbedingungen an den Ebenen berechnet. Wie oben beschrieben, ist in beiden Bildern ein steiler Druckabfall in den ersten Partikelschichten zu erkennen, wobei in Abbildung 3-21 50% des Gesamtdrucks bereits in den ersten Schichten abfallen. Zur Interpretation dieses Phänomens soll Abbildung 3-23 dienen.



**Abbildung 3-23: Axiale Geschwindigkeitsverteilung im Schüttungssegment**

Die farbigen Konturen in Abbildung 3-23 zeigen die axiale Geschwindigkeitsverteilung in einer nahe den Auslauf liegenden Ebene des Festbetts. Das Berechnungsgebiet beinhaltet eine ursprüngliche Wand des Reaktors sowie, wie unter 3.1.6.2 beschrieben, die Randbedingungen an den ursprünglich der Schüttung zugewandten Außenflächen des Segments. Ähnlich den Ergebnissen einer vollständigen Berechnung sind an der ursprünglichen Wand Geschwindigkeitsüberhöhungen in Wandnähe aufgrund der hohen Porosität zu finden.

Abbildung 3-23 zeigt deutlich den Einfluß der Wände, die dem Fluid zusätzlichen Widerstand bieten. Daraus resultiert ein größerer axialer Druckverlust, wie Abbildung 3-21 verdeutlicht. Wird das Fluid an den Schnittebenen nicht durch Reibungseffekte beeinflusst, (symmetrische Randbedingung), ist dies eine physikalisch sinnvollere Annäherung, weil in kompletten realen Reaktoren auch keine zusätzlichen Flächen existieren, die das Fluid behindern.

Insgesamt demonstrieren die Ergebnisse, daß die Druckabfallsdaten, die aus den Berechnungen eines Schüttungssegments gewonnen werden, den Verlauf in einem kompletten Festbett sehr gut annähern. Um die Simulation zu optimieren müssen Partikel, die das

Berechnungsgebiet schneiden, korrekt in die Berechnung einbezogen werden. Dadurch wird keine „künstliche“ Porosität an den angenäherten Randbedingungen generiert. Im Rahmen zukünftiger Berechnungen werden „geschnittene“ Partikel mit einbezogen und somit der Einfluß einer an sich nicht vorhandenen Wand ausgeschaltet.

Problematisch bei diesem Ansatz ist benötigte Anzahl von Gitterpunkten. Um Konvergenz des Geschwindigkeitsfeldes zu erreichen, liegt die Gitterpunktanzahl für eine Segmentsberechnung in der Größenordnung für eine Simulation des gesamten Reaktors. Dies liegt an der daraus resultierenden dichten Packungsstruktur und dem weitgehenden Fehlen eines Wandbereichs. Eine Verringerung der Gitterpunkte und Rechnerzeit kann durch eine weitere Verkleinerung des Segments erreicht werden. Einen Ansatz dazu bildet die Überlegung, daß sich auch in axialer Richtung, nach der Ausbildung der Strömung, die Strömungsvorgänge in verschiedenen radialen Schnitten nicht wesentlich voneinander unterscheiden.

Dies führt zu einer Segmenthöhe von nur wenigen Partikeldurchmessern. Nach den Ausführungen in Kapitel 3.1.3 ist die Strömung nach ca. 2-3 Partikeldurchmessern eingelaufen. Somit ist es denkbar, mit einer Segmenthöhe von nur ca. 5-6 Partikeln, alle Bereiche im Reaktor abzubilden. Diese Ausführungen bilden den Gegenstand zukünftiger Untersuchungen.

## **3.2 Simulation des Stoffaustausches in Bioreaktoren**

### **3.2.1 Grundlagen, Motivation und aktuelle Literaturübersicht**

Um das Verhalten von biotechnologischen Systemen charakterisieren zu können, ist die alleinige Berechnung des Strömungsfeldes nicht ausreichend. Erst durch die Bestimmung der Substratabbaurrate als Schlüsselparameter ist es möglich, Aussagen zur Auslegung von Biofilmprozessen zu machen. Die folgenden Ausführungen beziehen sich auf die Simulation des Stofftransports in Reaktoren mit immobilisierter Biomaterie.

Bei dieser Biomaterie kann es sich entweder um einen Biofilm oder immobilisierte Enzyme handeln. Durch biologische Mechanismen wie Wachstum, Verblockung, Gasentwicklung, Populationsschwankungen und Selektion ist der Stofftransport in einem Biofilmreaktor schwer zu erfassen. Immobilisierte Enzyme bieten den Vorteil eines übersichtlichen Systems. Es befindet sich meist nur ein bestimmtes Enzym im Reaktor. Die Reaktionspartner sind bekannt, und die ablaufende Reaktion ist definierbar. Die Enzymkonzentration bleibt über einen gewissen Zeitraum konstant und die hemmende Wirkung der Endprodukte ist einschätzbar.

Alle diese Punkte führen dazu, daß die Ergebnisse der Simulation leichter auf ein definiertes Enzymsystem übertragbar sind. Unter der Annahme von Vereinfachungen wie konstante Biofilmaktivität ohne Wachstums- oder Absterbekinetik ist es auch möglich, prinzipielle Aussagen über Stofftransportvorgänge in Biofilmreaktoren zu machen.

In der Literatur findet man unzählige Veröffentlichungen über den Stofftransport in beiden Systemen. Wegen der besonderen Relevanz für diese Arbeit soll hier zunächst die Problematik der Transportvorgänge in Enzymreaktoren angesprochen werden.

Immobilisierte Biokatalysatoren haben innerhalb der letzten 20 Jahre für die praktische Anwendung ebenso wie für die Grundlagenforschung ständig wachsende Bedeutung erlangt. Industriell am meisten verbreitet sind wohl die Herstellung von Glucose/Fructosesirup mittels Glucoseisomerase oder die Spaltung von Milchzucker mittels Lactase, um Lactoseintoleranzen zu vermeiden. In der Medizin wird z.B. immobilisierte Urease in der Dialysetechnik eingesetzt.

Im Vergleich zu in einer Substratlösung suspendierten Enzymen besitzen immobilisierte Biokatalysatoren veränderte Charakteristiken. Dieser Sachverhalt läßt sich durch zwei Mechanismen erklären:

Zum einen findet bei der Immobilisierung von Enzymen an die Trägersubstanz eine Veränderung der Enzymstruktur statt. Dies hat Auswirkungen auf die katalytischen Eigenschaften. Zum anderen beeinflussen Stofftransportphänomene die Substrat- und Produktkonzentration an den katalytisch aktiven Oberflächen und somit die Produktivität der Katalyse. Die limitierende Wirkung des Stofftransports auf die Umsatzkinetik wird unterteilt in den Substrattransport an der Grenzfläche Biofilm/Fluid (externer Stofftransport), und in den Transport im Biofilm (interner Stofftransport, interne Porendiffusion).

In der vorliegenden Arbeit werden sowohl der innere als auch äußere Stofftransport betrachtet. Besonders externe Stofftransportphänomene enzymkatalysierter Reaktionen sind von großer praktischer Relevanz. Die Notwendigkeit weitergehender Erkenntnisse verdeutlicht eine Vielzahl von aktuellen Veröffentlichungen. Einige der neuesten Arbeiten sollen im folgenden kurz beschrieben und deren Bezug auf die vorliegende Arbeit aufgezeigt werden.

*Shiraishi et al.* [51, 52] befassen sich mit der Entwicklung von Methoden zur numerischen und experimentellen Bestimmung der effektiven Michaelis-Menten Konstanten und der maximalen Umsatzgeschwindigkeiten. Sie stellen die Ergebnisse eines integralen numerischen Modells experimentellen Untersuchungen mit immobilisierter Glucoamylase gegenüber und erhalten gute Übereinstimmungen. Dabei verdeutlichen sie den starken Einfluß der Substratkonzentration auf die Effektivwerte, besonders bei niedrigen Fließgeschwindigkeiten. So sinkt die effektive Michaelis-Menten Konstante bei einer Substratkonzentration von  $5 \text{ kg/m}^3$  unter Variation der Durchflußgeschwindigkeit zwischen  $0 \text{ m/s}$  und  $0.01 \text{ m/s}$  um 30%.

Eine Erhöhung der Geschwindigkeit auf  $0.05 \text{ m/s}$  bringt keine weitere Erniedrigung der Konstante, das heißt, daß ab ca.  $0.01 \text{ m/s}$  genügend Substrat von der Strömung zugeführt wird. Hierin spiegelt sich die Bedeutung des externen Stofftransports auf die enzymatische Umsetzung wider.

*George et al.* [53, 54] immobilisieren Urease an diverse Trägermatrizen und untersuchen die Kinetik in Abhängigkeit von der Fließgeschwindigkeit bei Behälterreynoldszahlen von ca. 150. Dabei stellen sie bei diesem Enzym mit Umsatzraten bis zu  $30000/\text{s}$  erhebliche Abhängigkeiten von den strömungsmechanischen Parametern fest. Für einen Reaktor im

Labormaßstab (Länge 30 cm, Durchmesser 2.5 cm) wird ein monotonen Anwachsen der Produktivität bei steigender Fließgeschwindigkeit beobachtet. Eine Übertragbarkeit auf eine größere Konfiguration ist nicht gewährleistet. Experimente in einem Reaktor der Länge 94 cm und einem Durchmesser 4.5 cm zeigen, daß die Monotonie gebrochen wird. Es liegt somit ein ausgeprägtes Maximum der Produktivität vor.

Auch *Daka, Laidler et al.* [55, 56] diskutieren den deutlichen Einfluß des Stofftransports bei immobilisierter Lactase. Das Enzym ist auf einer rotierenden Nylonscheibe bzw. in einer dünnen Nylonröhre fixiert. Die theoretisch mögliche Effektivität der Umsetzung wird erst bei genügend hohen Umdrehungsgeschwindigkeiten der Scheibe oder genügend schnellen Durchflußraten erreicht. Die Reynoldszahlen für die Rohrströmung liegen im Bereich von 11 bis 90. Ab Reynoldszahlen oberhalb 90 und großen Umdrehungsgeschwindigkeiten besteht ein gesteigerter Einfluß der Substratkonzentration, weil in diesem Bereich die Diffusion eine untergeordnete Rolle spielt und die Affinität des Enzyms für den Umsatz maßgeblich ist.

*Pörtner und Kopp* [57] betrachten experimentell und analytisch einen Festbettreaktor mit immobilisierten Zellen, die mit Sauerstoff versorgt werden müssen. Sie modellieren die Strömungsverhältnisse im Reaktor durch eine Anzahl von parallelen, gleich langen Kapillaren, in welchen sie Kolbenströmung annehmen und die axiale Diffusion vernachlässigen. In jeder der Modellkapillaren wird das Ficksche Gesetz in radialer Richtung numerisch gelöst. Durch Lösung der Stoffübergangsgleichungen mit Substratverbrauch als Senkenterm errechnen sie die Sauerstoffverteilung im Reaktor als Funktion von Festbetthöhe und Durchflusgeschwindigkeit. Auch für dieses System zeigt sich ein deutlicher Einfluß der Fluidgeschwindigkeit. Mit gesteigerter Rate ist ein starker Anstieg des spezifischen Sauerstoffverbrauchs festzustellen. Die auf den Behälterdurchmesser bezogene Reynoldszahl variiert in einem Bereich zwischen 30 und 60. Die Autoren stellen eine Dominanz des limitierenden Einflusses der Konvektion neben der Diffusion in dem Biofilm fest. Ferner stellen sie eine Schädigung des Films aufgrund strömungsmechanischer Kräfte bei höheren Durchflusraten fest.

*Stoodley et al.* [58, 59] beschäftigen sich mit dem internen Stofftransport in Biofilmsystemen. Der Biofilm ist nicht homogen aufgebaut sondern mit Kanälen durchzogen die erheblichen Einfluß auf den Stofftransport haben können. In den Kanälen kann neben der Diffusion das Substrat auch konvektiv transportiert werden. Dies hat besonders bei hohen Strömungsgeschwindigkeiten signifikanten Einfluß auf den Stofftransport. Bei geringen Geschwindigkeiten können heterogene Biofilme als plane Strukturen modelliert werden. Je



höher die Strömungsgeschwindigkeit wird, um so komplexer werden die Vorgänge im Biofilm. Sie sind nur noch mit dreidimensionaler Simulation erfassbar.

*Horn und Hempel* [60] zeigen, daß die Stofftransportkoeffizienten bei heterogenem (mehrere Organismen) und homogenem Biofilm (nur eine Art) in etwa den gleichen Wert besitzen. Dies unterstützt die Vereinfachung der Simulation, den Biofilm als homogenes System zu betrachten. Weiter zeigen sie, daß die Stofftransportkoeffizienten durch die Reaktion von Substrat um eine Größenordnung höher sind als ohne Reaktion. Durch die ‚Sogwirkung‘ der Biomaterie stellen sich andere Verhältnisse ein und es ist nicht zulässig Koeffizienten von rein hydrodynamischen Untersuchungen zu übertragen.

Keine der zitierten Arbeiten befasst sich mit einer physikalischen und mathematischen Beschreibung der lokalen Strömungs- und Stoffübertragungsmechanismen in einem Bioreaktor unter strenger Kopplung der strömungsmechanischen Grundgleichungen mit enzymkinetischen Modellgleichungen (wie z.B. die Kinetik nach Michaelis–Menten). Gründe hierfür sind zum einen die Schwierigkeit, ein nichtlineares, gekoppeltes System partieller Differentialgleichungen zu lösen und zum anderen die Behandlung der komplexen Geometrie der Strömungskanäle, in denen das Substrat dem Enzym zugeführt wird. Effektivwerte werden als integrale Größen über den gesamten Reaktorraum angegeben und es fehlen Angaben über deren lokale Verteilung und Schwankungsbreite. Eine rein zweidimensionale Beschreibung der sehr komplexen Systeme führt besonders bei gleichzeitiger Betrachtung von externem und internem Stofftransport und schnelleren Geschwindigkeiten nicht immer zu befriedigenden Ergebnissen [58, 59]. Um die Transportvorgänge im und um die Biomaterie genau beschreiben zu können, wird hier die Implementierung einer Stofftransportgleichung in das dreidimensionale Simulationsmodell vorgenommen.

### **3.2.2 Simulationsaufbau und beschreibende Kennzahlen für den Stoffumsatz**

Um den Umsatz quantitativ zu erfassen und die Reaktorleistung beurteilen zu können, haben sich in der Reaktortechnologie eine Vielzahl von beschreibenden Kennzahlen etabliert, vgl. [23]. In den folgenden Kapiteln sollen der prinzipielle Aufbau des Simulationsmodells und die wichtigsten Zahlen vorgestellt werden.

### 3.2.2.1 Modifikation des Rechengitters

Zur Implementierung der in Kapitel 2.4 beschriebenen Modellbildung und Kopplung von Strömungsmechanik und Impuls- und Stofftransport muß zunächst das in Kapitel 2.6 beschriebene Rechengitter modifiziert werden. Abbildung 3-24 zeigt den prinzipiellen Gitteraufbau eines Trägerpartikels für die Simulation von Stoffaustauschphänomenen

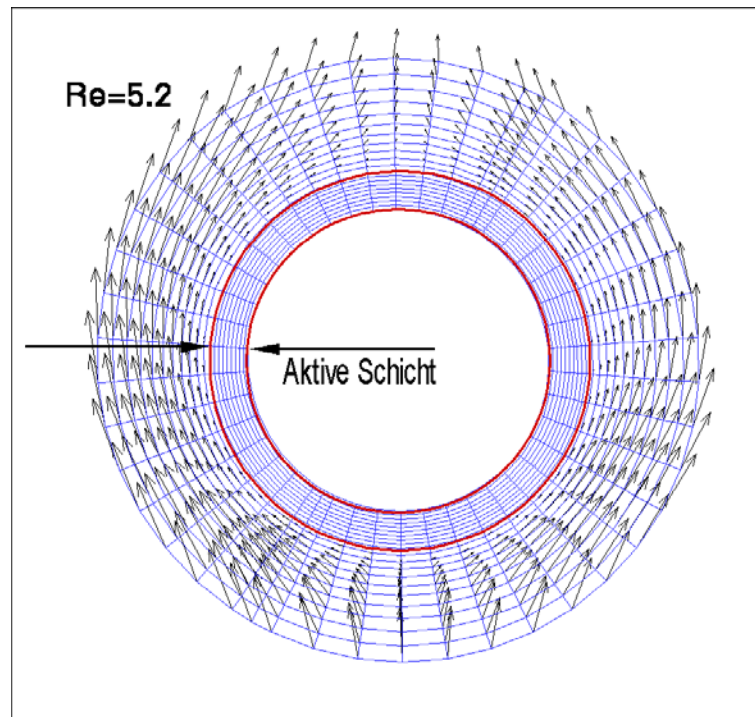


Abbildung 3-24: Gitteraufbau eines Trägerpartikels zur Immobilisierung von Biomaterie

Der rot gekennzeichnete Bereich stellt die mit Biomaterie besiedelte Schicht dar, in ihr findet nur diffusiver Stofftransport statt. Außerhalb der aktiven Schicht transportiert das Fluid Substrat an die Partikeloberfläche. Die aktive Schicht im Rechenmodell beträgt etwa 10% des Partikeldurchmessers und wird mit 10 Gitterpunkten in radialer Richtung abgebildet.

### 3.2.2.2 Charakterisierende Kennzahlen und Wirkungsgrade

Um die Transportvorgänge in den verschiedenen Bereichen erfassen zu können, werden in der Literatur [14, 23] Wirkungsgrade für die verschiedenen Zonen definiert. Die Wirkungsgrade ergeben sich aus der Bilanzierung der Stoffkonzentrationen in den einzelnen Zonen. Durch die lokale Auflösung des Strömungs- und Konzentrationsfeldes können für jeden

Trägerpartikel gesondert Effizienzfaktoren angegeben werden. Dies ist von großer Wichtigkeit, um die latente Aktivität von Biomaterie an bestimmten Positionen im Reaktor beurteilen zu können. Folgende Beziehungen geben einen Überblick über die verwendeten Wirkungsgrade:

- externer Stofftransport (von Fluid zu Trägerpartikel):

$$Ratereal = \sum_{i,j} D_{Rr} * \Theta(i, j, nksol) * Vol(i, j, nksol) / (1 + \Theta(i, j, nksol)), \quad (3-1)$$

$$Rateopt = \sum_{i,j} D_{Rr} * \Theta_{S0} * Vol(i, j, nksol) / (1 + \Theta_{S0}), \quad (3-2)$$

$$\eta_{extern} = \frac{Ratereal}{Rateopt}. \quad (3-3)$$

Die Indizes  $i$ ,  $j$  und  $k$  stellen den Laufindex des Gitters dar. Der Wert  $nksol$  ist die  $k$ -Index Position direkt an der Oberfläche des Trägerpartikels. Die Variable  $Vol$  bezeichnet das jeweilige Volumen der Gitterzelle. Mit diesen Definitionen lassen sich die dargestellten Gleichungen wie folgt erklären: *Ratereal* bezeichnet den tatsächlichen Stoffumsatz der direkt an der Partikeloberfläche beobachtet werden kann. *Rateopt* ist die Rate, die ohne Stofftransporterwiderstände erreicht werden könnte. Aus dem Quotienten der beiden Zahlen läßt sich der externe Wirkungsgrad  $\eta_{extern}$  definieren.

Eine weitere wichtige Größe für den externen Stofftransport stellt die Sherwoodzahl dar. Sie ist in Gleichung (2-38) definiert. Im Programm wird sie nach folgender Rechenvorschrift gebildet:

$$Sh_{extern} = \sum_{i,j,Oberfläche} (\Theta(i, j, nksol) - \Theta(i, j, nksol-1)) / (Dist * (\Theta_{S0} - \Theta(i, j, nksol))). \quad (3-4)$$

*Dist* ist der Abstand von Partikeloberfläche zur benachbarten Gitterschicht  $nksol+1$ . Aus der Sherwoodzahl kann durch Summation des Substrattransfers über die Partikeloberfläche der Substrattransferkoeffizient  $\beta$  ermittelt werden.

Neben dem externen Stofftransport existieren auch interne Transportmechanismen in der biologisch aktiven Schicht. Auch diese Mechanismen können Einfluß auf die gesamte Umsatzleistung eines Reaktors nehmen. Die Diffusionskoeffizienten von Substrat wie z.B.

Sauerstoff in Biofilm betragen nur etwa 90% des Diffusionskoeffizienten von Sauerstoff in Wasser.

Ferner können Festkörpereinschlüsse oder Porenbildung die Diffusion im Film beeinflussen. In jedem Fall bilden sich Konzentrationsgradienten in der Schicht. Um deren Einfluß auf die Reaktorleistung messen zu können werden, wie oben, Wirkungsgrade und dimensionslose Parameter aufgestellt:

- interner Stofftransport (Diffusion in der aktiven Schicht, Porendiffusion):

$$Rate_{real} = \sum_{i,j,nksol} D_{Rr} * \Theta(i, j, k) * Vol(i, j, k) / (1 + \Theta(i, j, k)), \quad (3-5)$$

$$Rate_{all} = \sum_{i,j,nksol} D_{Rr} * \Theta(i, j, nksol) * Vol(i, j, k) / (1 + \Theta(i, j, nksol)), \quad (3-6)$$

$$Rate_{opt} = \sum_{i,j,nksol} D_{Rr} * \Theta_{S0} * Vol(i, j, k) / (1 + \Theta_{S0}), \quad (3-7)$$

$$\eta_{Global} = \frac{Rate_{real}}{Rate_{opt}}, \quad (3-8)$$

$$\eta_{intern} = \frac{Rate_{real}}{Rate_{all}}. \quad (3-9)$$

$Rate_{real}$  bedeutet in diesem Fall die beobachtete Umsatzrate im gesamten Volumen der aktiven Schicht.  $Rate_{all}$  bildet den imaginären Umsatz der Schicht wenn überall die Konzentration an der Oberfläche vorliegen würde, d. h. kein Konzentrationsgradient in der Schicht existieren würde. Aus diesen Werten läßt sich der interne Wirkungsgrad  $\eta_{intern}$  bilden.

Ein weiterer Wirkungsgrad  $\eta_{Global}$  beurteilt die gesamte Reaktorleistung. Er wird durch Division von  $Rate_{real}$  durch  $Rate_{opt}$  gebildet.  $Rate_{opt}$  ist die optimale Umsatzleistung wenn überall im Reaktor die Einlaufkonzentration vorliegt und keinerlei Limitierungen den Umsatz beeinflussen. Er ist ein Maß dafür, wie nahe der Reaktor, bei gegebener Konfiguration, am absoluten Idealzustand gefahren werden kann.

Auch beim internen Stofftransport läßt sich eine Sherwoodzahl zur Bestimmung eines Stoffübergangskoeffizienten  $k_s$  bilden. Er enthält nur den Einfluß der Diffusion.

$$Sh_{\text{intern}} = \sum_{i,j,\text{Oberfläche}} (\Theta(i, j, nksol) - \Theta(i, j, nksol - 1)) / (Dist * (\Theta_{s0} - \Theta(i, j, nksol))) \quad (3-10)$$

$Dist$  ist in diesem Fall der Abstand von Partikeloberfläche zur benachbarten Gitterschicht  $nksol-1$  im Partikel.

Mit Hilfe der Wirkungsgrade für internen und externen Stofftransport läßt sich das Verhalten eines Reaktors unter Berücksichtigung der Auslastung des einzelnen Trägerpartikels vollständig charakterisieren.

Bei der Simulation handelt es sich um ein Verfahren, bei dem im Laufe der Iterationen ein stationäres Geschwindigkeits- und Konzentrationsfeld vorliegt, siehe Kapitel 2.4. Die Simulation kann abgebrochen werden, wenn zeitlich konstante Werte von Geschwindigkeit und Konzentration im Reaktor vorliegen. Dieses Abbruchkriterium läßt sich durch Bilanzierung der Massenströme kontrollieren:

$$Q_{\text{React}} = Q_{\text{in}} - Q_{\text{out}} = \iint_A \vec{j}_{\text{in}} d\vec{A} - \iint_A \vec{j}_{\text{out}} d\vec{A} \quad (3-11)$$

$$Q_{\text{React}} = \text{ratereal}_{\text{intern}} = \iint_{A_{\text{Partikel}}} \vec{j}_{\Gamma} d\vec{A}_{\Gamma} \quad (3-12)$$

Dabei ist  $\vec{j}$  der spezifische Substratstrom in  $kg/m^2$ ,  $Q_{\text{React}}$  bezeichnet die Menge an umgesetzten Substrat in  $kg$  und der Zusatz  $\Gamma$  kennzeichnet, daß über die Oberfläche des Trägerpartikels integriert wird.

Die Gleichungen (3-26, 3-27) besagen, daß bei Erreichen eines stationären Zustandes der Unterschied zwischen ein- und ausströmender Substratmasse gleich dem über die Grenzfläche zwischen Fluid und Partikeloberfläche transportiertem Substrat sein muss. Dieser Stoffstrom entspricht im Falle von Konvergenz dem von der aktiven Schicht verbrauchten Substrat (*ratereal*).

### 3.2.3 Beispielberechnungen zur Simulation des Stofftransportes

Um den Einfluß des Stofftransportes bei verschiedenen Eingangsparametern wie Reynoldszahl oder Einlaufkonzentration berechnen zu können, bedarf es einer Vielzahl von Einzel-

simulationen. Die Simulation werden Anhand eines vereinfachten Schüttungsmodells durchgeführt. Abbildung 3-25 zeigt den prinzipiellen Aufbau der verwendeten Schüttung.

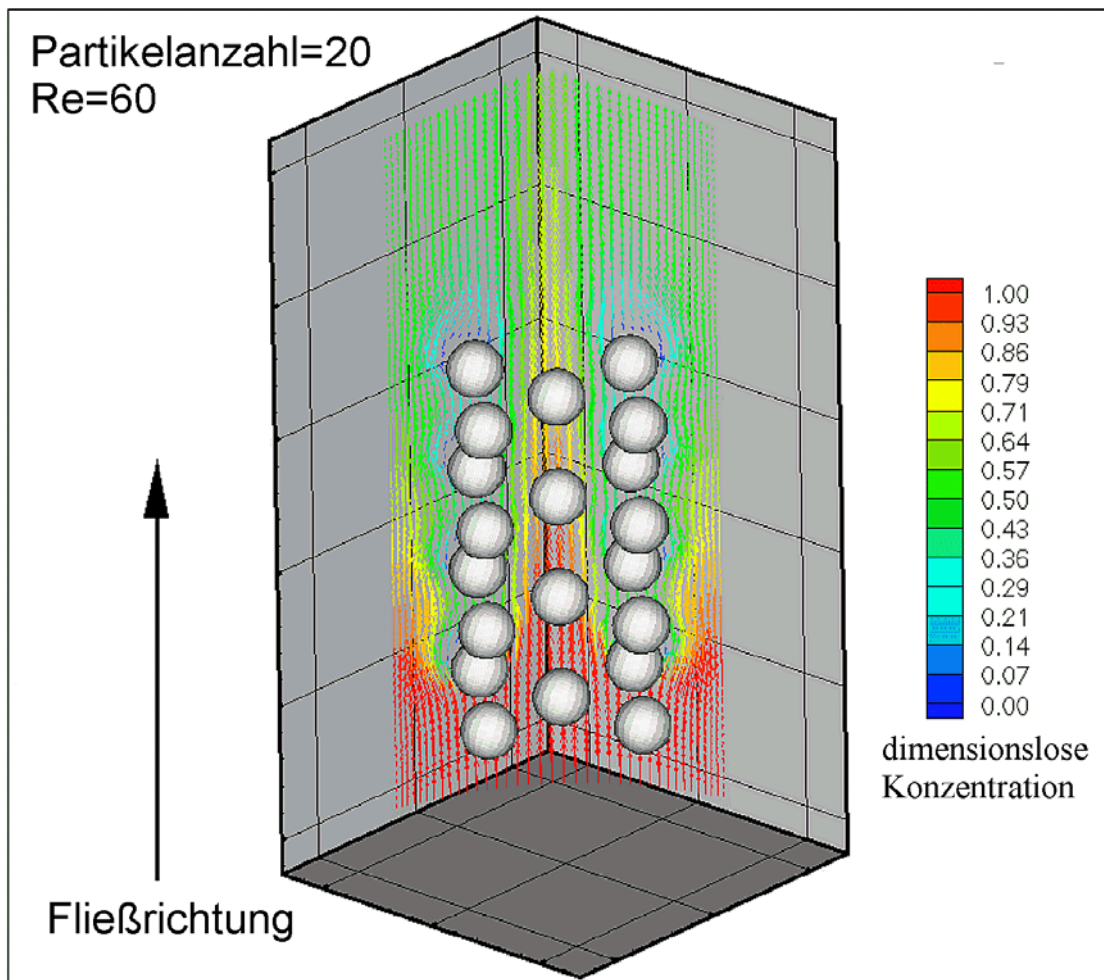


Abbildung 3-25: Beispielkonfiguration einer Schüttung im Bioreaktor

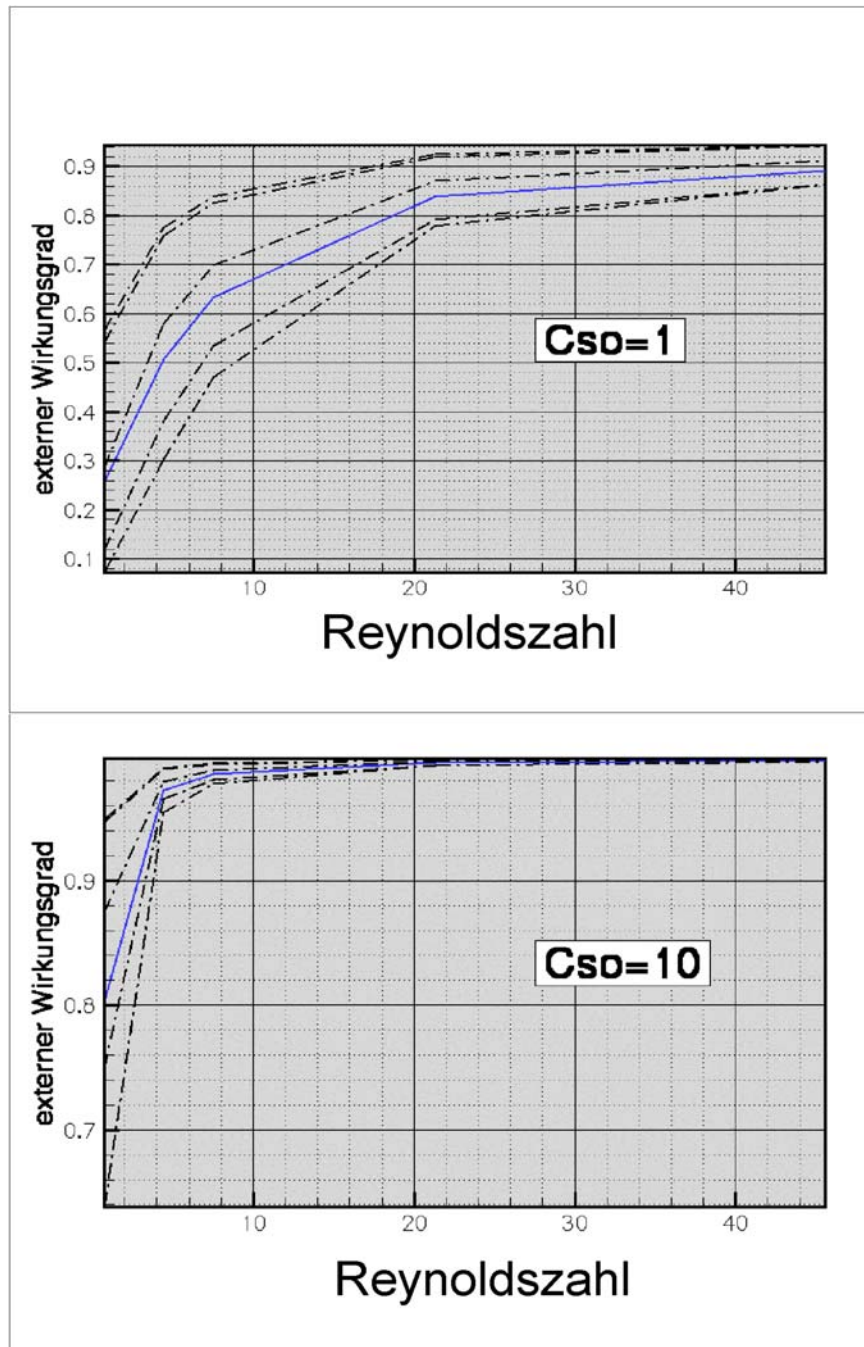
Es handelt sich um eine Konfiguration mit 20 Einzelpartikeln. Die Partikel sind in 4 parallelen Ebenen mit jeweils 5 Partikeln angeordnet. Abbildung 3-25 zeigt das berechnete Strömungsfeld bei einer Rohr-Reynoldszahl von 60. Die Abnahme der Substratkonzentration in axialer Richtung ist farbig gekennzeichnet. Die Fließrichtung verläuft von unten nach oben.

Wie bereits erwähnt, hängt der Stoffabbau von einer Vielzahl von Einzelparametern ab. Um den Einfluß des einzelnen Parameters beurteilen zu können, werden für eine Simulation alle Parameter bis auf einen konstant gehalten.

Es sollen hier nur die grundsätzlichen Phänomene beim Stoffumsatz mit immobilisierter Biomaterie erläutert werden. Daher werden keine konkreten Stoff- und Materialdaten realer Systeme verwendet.

Die Werte der Diffusionskonstanten von Substrat in aktiver Schicht und Trägerfluid, sowie Werte der Biomaterie wie  $K_M$  und  $V_{max}$  liegen als konstante Eingangsgrößen vor. Durch Wahl dieser Parameter kann aber prinzipiell sehr flexibel auf verschiedene reale biologische Systeme eingegangen werden.

Für die Simulation bleibt die Variation der Einlaufkonzentration und der Reynoldszahl. Diese beiden Werte verdeutlichen besonders den strömungsmechanischen Einfluss. Abbildung 3-26 und 3-26 sind mit der in Abbildung 3-25 beschriebener Beispielkonfiguration errechnet.



**Abbildung 3-26: Einfluß der Reynoldszahl auf den externen Wirkungsgrad einer biochemischen Umsetzung bei unterschiedlichen Einlaufkonzentrationen**

Der obere Teil von Abbildung 3-26 zeigt den externen Wirkungsgrad bei der Einlaufkonzentration  $C_{S0} = 1$ . Die gestrichelten Linien veranschaulichen den Wirkungsgrad verschiedener Einzelpartikel, die blaue Line stellt den gemittelten Wirkungsgrad aller Partikel im Reaktor dar.

Bei dieser relativ geringen Einlaufkonzentration ist eine starke Abhängigkeit des Umsatzes sowohl von der Reynoldszahl als auch von der Position des Partikels im Reaktor zu erkennen.



Bei Reynoldszahlen  $< 30$  sind die Kurven der Einzelpartikel stark gespreizt. Das zugeführte Substrat wird von den unteren Schichten schon stark abgebaut, weiter oben im Reaktor platzierte Partikel können ihre Kapazität nicht mehr voll auslasten.

Bei einer Reynoldszahl von 10 sind nahe am Einlauf gelegene Trägerkörper bis zu 85% ausgelastet, weiter am Auslauf gelegene Partikel nur zu 50%.

Durch die hohe Verweilzeit bei langsamen Geschwindigkeiten hat die Biomaterie mehr Zeit, das vorhandene Substrat umzusetzen. Der Rest reicht nicht mehr aus, um die oben gelegenen Partikel zu sättigen. Die Damköhlerzahlen für diesen Bereich sind größer als eins, die maximal mögliche Reaktionsrate überwiegt die Stofftransportrate um einige Größenordnungen.

Für die Praxis bedeutet dies, daß der Reaktor in seiner Kapazität nicht voll ausgelastet wird. Es ist zwar immer ein bestimmter Puffereffekt erwünscht, um Konzentrationsdurchbrüche bei Ausfall von Biomaterie (z. B. Alterung von immobilisierten Enzymen) abzufangen. Zur Kostenersparnis ist es dennoch wünschenswert, die latente Aktivität von Biomaterie kontrollieren und auf ein vernünftigen Maß beschränken zu können, um somit optimale Betriebsbedingungen für den Reaktor zu finden.

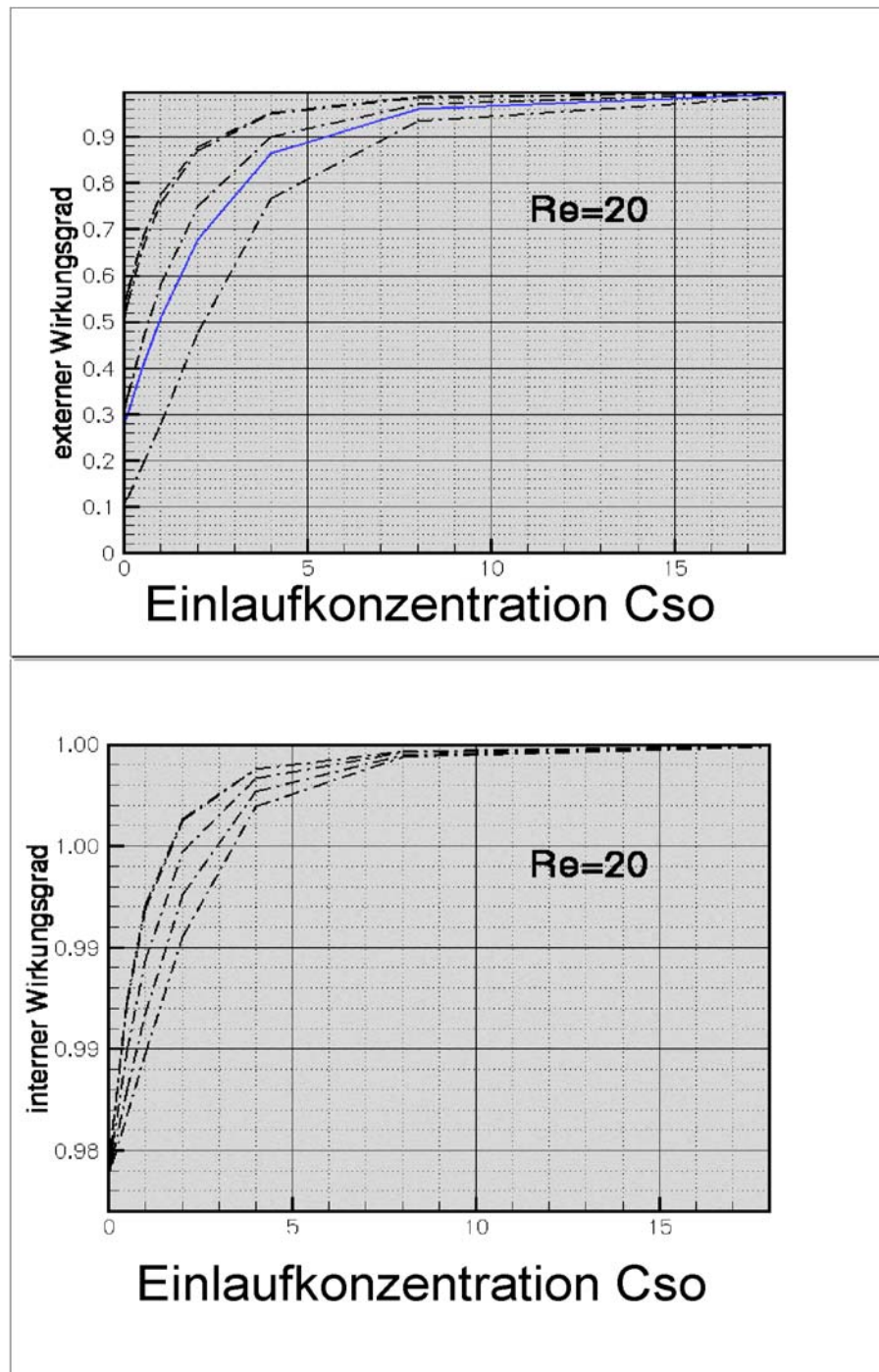
Bei Reynoldszahlen  $> 30$  wird dem Reaktor mehr Substrat pro Zeit zugeführt, die unteren Schichten können diese Menge in der gegebenen Zeit nicht mehr vollständig umsetzen, und die Auslastung des Reaktors steigt auf nahezu 100%. Wie die Ergebnisse aus Kapitel 3.1.5 zeigen, ist bei diesen Geschwindigkeiten noch keine Schädigung der Biomaterie zu erwarten. Die Ergebnisse der Simulation bieten also ein Hilfsmittel, Wege zur optimalen Betriebsführung zu finden und die vorhandene Kapazität von Reaktoren besser beurteilen zu können.

Der untere Teil von Abbildung 3-26 zeigt, daß der Einfluß der Reynoldszahl durch eine erhöhte Einlaufkonzentration ausgeglichen werden kann. Selbst bei langsamen Geschwindigkeiten vermag die Biomaterie nicht das gesamte Substrat umzusetzen. Sie ist vollständig ausgelastet (Damköhler  $< 1$ ) und es bleibt genug Substrat für die oberen Schichten übrig.

In der Praxis bleibt zu beachten, daß das Substrat zu einem genügend hohen Prozentsatz umgesetzt wird. Im allgemeinen ist ein gleichmäßiger Umsatz von Substrat mit einer konstanten Auslaufkonzentration erwünscht. Dies läßt sich, wie die Diagramme zeigen, entweder mittels Variation der Durchflussgeschwindigkeit oder Einlaufkonzentration erreichen. Die Simulation soll in diesem Fall helfen, den Bereich der Variationsmöglichkeiten im Rahmen der technischen Möglichkeiten und Grenzen einzuschätzen.

Auch *Benthack et al.* [61] zeigen dies durch eine integrale Simulation des Stoffaustausches in Bioreaktoren. Durch Variation der Einlaufkonzentration (Substratverdünnung) ist es mittels eines Regelkreises und Berücksichtigung der sich ändernden Aktivität von Biomaterie möglich, konstante Werte der Auslaufkonzentration zu erhalten.

Wie in Kapitel 3.2.2 erläutert, spielt nicht nur der externe Stofftransport, sondern auch die interne Diffusion in der aktiven Schicht eine Rolle bei den Umsetzungen im Bioreaktor. Die Ergebnisse des folgenden Kapitels sollen deshalb die Auswirkungen der internen Diffusion verdeutlichen.



**Abbildung 3-27: Einfluß der Einlaufkonzentration auf externen und internen Wirkungsgrad einer biochemischen Umsetzung**

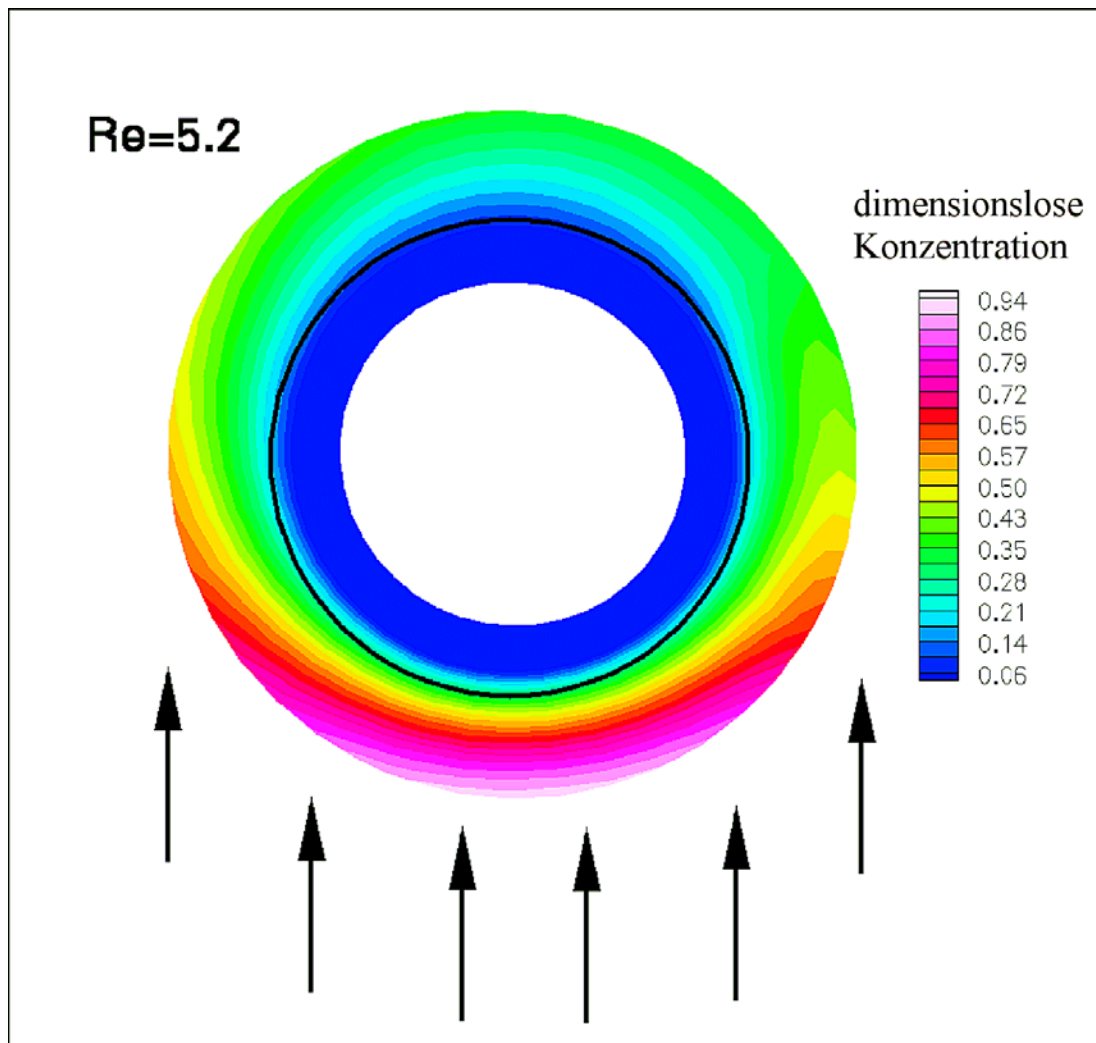
Die Ergebnisse in Abbildung 3-27 zeigen noch einmal das Zusammenspiel von Einlaufkonzentration und Reynoldszahl, diesmal aber in anderer Auftragung. Bei geringen Einlaufkonzentrationen ist der Wirkungsgrad der aktiven Schicht stark von der Position im Reaktor abhängig. Das einlaufende Substrat wird in den unteren Schichten verbraucht und erst bei genügend hohen Konzentrationen gelangt es in die oberen Bereiche des Reaktors

Ein ähnlicher Kurvenverlauf zeigt sich im unteren Teil von Abbildung 3-27 . Auch hier muß die Konzentration eine gewisse Schwelle überschreiten, um die aktive Schicht vollständig zu sättigen.

Der Grund, für eine sehr hohe Effektivität auch bei geringen, liegt an der Definition des internen Wirkungsgrads. Dieser berücksichtigt nach Gleichung (3-9) nur den Gradienten in der Schicht und nicht den Absolutwert des Substratumsatzes. Der zeitliche Massenfluß in der aktiven Schicht hängt von der Diffusionskonstante, der Umsatzgeschwindigkeit und dem damit verbundenen Konzentrationsgradienten ab.

Pro Zeiteinheit und Volumen wird eine gewisse Menge an herangeliefertem Substrat umgesetzt. Überschüssiges Substrat kann in tiefer gelegene Schichten diffundieren. Sind die Diffusionskonstanten sehr gering, häuft sich Substrat an der Oberfläche und die Gradienten zwischen Außenströmung und aktiver Schicht verringern sich. Dies führt zu einem geringeren Massenfluß über die Oberfläche und es stellt sich ein Gleichgewichtszustand zwischen Diffusion und Umsatzrate ein.

Die Ordinate im unteren Teil von Abbildung 3-27 zeigt, daß im Beispielfall die Wirkungsgrade sehr nahe eins liegen, was eine sehr gleichmäßige Konzentrationsverteilung in der aktiven Schicht bedeutet. Selbst bei Einlaufkonzentrationen die nicht zur Sättigung der Biomaterie führen, kann das Substrat nicht vollständig in den äußeren Schichten konvertiert werden. Den diffusiven Prozessen steht genügend Zeit zur Verfügung, die Konzentrationsgradienten auszugleichen. Abbildung 3-28 verdeutlicht diesen Effekt noch einmal.



**Abbildung 3-28: Lokale Konzentrationsverteilung in der aktiven Schicht und im Außenbereich eines Trägerpartikels mit immobilisierter Biomaterie**

Sie spiegelt den Verlauf des internen Wirkungsgrades in Abbildung 3-27, unten, wieder. Innerhalb der aktiven Schicht, die mit einem schwarzen Kreis gekennzeichnet ist, herrschen fast überall gleiche Konzentrationen. Die Substratkonzentration in der Schicht ist sehr niedrig, was auf einen nahezu vollständigen Umsatz und einen untersättigten Zustand schließen läßt. Trotz dieser Unterauslastung wird das Konzentrationsprofil durch Diffusion ausgeglichen. Nur im Bereich des Staupunkts ist ein kleiner Gradient zu erkennen. Dies liegt an dem effektiven externen Stofftransport in dieser Zone. Die Biomasse gerät lokal in einen übersättigten Bereich, das Substrat wird aber sofort von den nahegelegenen unterausgelasteten Zonen umgesetzt.

Diese Ausführungen zeigen, daß durch lokale Simulation ein vertieftes Verständnis der Transportvorgänge erlangt werden kann. In realen Systemen werden die internen

Diffusionsvorgänge durch Porenbildung und Oberflächenrauigkeiten in Biomaterie und Trägerpartikel stark beeinflusst. Die Berücksichtigung dieser Effekte und weitere Anpassungen des Simulationsmodells sollen den Inhalt zukünftiger Vorhaben bilden und werden im nächsten Abschnitt vorgestellt.

## 4 ZUSAMMENFASSUNG DER ERGEBNISSE, AUSBLICK

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der numerischen Simulation des Impuls- und Stoffaustausches in Reaktoren mit immobilisierter Biomaterie. Die verwendete Berechnungsmethode löst die dreidimensionalen Erhaltungsgleichungen für Impuls und Stoff. Das Berechnungsgebiet wird mit finiten Volumen diskretisiert und das daraus entstehende algebraische Gleichungssystem Anhand einer Prädiktor-Korrektor-Methode gelöst. Als Besonderheit ist die in das Lösungsverfahren implementierte Chimära-Gittertechnik hervorzuheben, die es erlaubt, eine zu berechnende, komplexe Geometrie in einzelne, einfache Gitter aufzuteilen.

Das Simulationsmodell ermöglicht die Berechnung laminarer Strömungen in Behältern mit zufällig verteilten, kugelförmigen Partikeln. Mit dem Modell können vollständige Reaktoren mit bis zu 1000 Einzelpartikel und Partikel-Reynoldszahlen im Bereich bis 20 simuliert werden. Das Programm ist mittels eines Master-Slave Konzepts parallelisiert und auf einem Workstationcluster einsatzfähig. Basierend auf den Codeentwicklungen von [15] und [20] wird das Programm weiterentwickelt.

Die Ziele der Arbeit lassen sich in folgende Teilbereiche gliedern:

- Erweiterung des algebraischen Gleichungslösers mit Mehrgitter- und GMRES-Verfahren um die Simulationszeiten zu verkürzen.
- Modifikation des Parallelisierungskonzepts und Portierung auf Großrechner.
- Erweiterung der Erkenntnisse über Festbett-Bioreaktoren im Hinblick auf die strömungsmechanischen Vorgänge in verschiedenen Bereichen, die Belastung der Biomaterie und das Aufzeigen des Einflusses von Oberflächenrauigkeit der Trägerpartikel.
- Die Implementierung einer biochemischen Stoffaustauschkinetik um den Stofftransport im Reaktor mit der Strömungsmechanik koppeln zu können und Information über optimales Betriebsverhalten und Auslastung zu erhalten.

## 4.1 Modifikationen des algebraischen Gleichungslösers und Parallelisierungskonzepts

Bei der iterativen Lösung des Strömungsfeldes wird der weitaus größte Rechenaufwand zur Lösung einer Poisson-Gleichung benötigt. Um diesen Schritt zu beschleunigen, wird ein geometrisches Mehrgitter-Verfahren in den bestehenden Code implementiert.

Anhand des vereinfachten Systems der Rohrströmung kann gezeigt werden, daß die Implementierung des Mehrgitter-Verfahrens funktioniert und das Residuum um einige Zehnerpotenzen niedriger liegt als beim herkömmlichen ADI-Verfahren, wenn der Lösungsvektor Schwingungskomponenten verschiedener Frequenz aufweist.

Untersuchungen des realen Problems zeigen, daß der Lösungsvektor sehr nahe null liegt und keine Anteile mit verschiedenen Frequenzen aufweist. Verluste, die durch Interpolation beim Transfer des Lösungsvektors zwischen den Gittern entstehen überwiegen in diesem Fall die Vorteile des Mehrgitter-Verfahrens.

Um das Gleichungssystem effektiver zu lösen und die Problematik beim Einsatz eines Mehrgitter-Verfahrens zu umgehen, wird das GMRES-Verfahren (**G**eneral **M**inimised **R**esidual **A**lgorithm) in den Code integriert.

Die Grundidee des GMRES-Verfahrens ist es, die Norm des Residuums durch Addition linear unabhängiger Vektoren zum Startvektor  $\vec{x}_0$  zu minimieren. Exemplarisch wird das Verhalten des GMRES-Verfahrens am Problem eines aus zehn Partikel bestehenden Kugelhaufens in einem zylindrischen Rohr untersucht. Beispielsimulationen ergeben, daß die mit GMRES erzielte Residuumsnorm um ein bis zwei Zehnerpotenzen unter der herkömmlichen ADI-Methode liegt. Weiterhin weist das GMRES-Verfahren gegenüber der ADI-Methode deutliche Vorteile hinsichtlich der Rechenzeit auf.

Das von *Debus* [20] entwickelte Programm ist prinzipiell auf allen gängigen Parallelrechnern einsetzbar. Beim ursprünglichen Master-Slave Konzept, vgl. [20], führt der erhöhte Speicherbedarf des Master-Prozesses zu Problemen bei Computern mit gleichmäßiger Verteilung des Arbeitsspeichers. Ein neues Parallelisierungskonzept macht den Speicherbedarf des Master-Prozesses unabhängig von der Anzahl der berechneten Trägerpartikel. Somit lässt sich die Anzahl der zur berechnenden Einzelpartikel an die Anzahl der zur Verfügung stehenden Prozessoren anpassen.

Das neue Konzept erfordert einen erhöhten Kommunikationsaufwand zwischen den Einzelprozessen, der Rechenaufwand bleibt unverändert. Das Konzept ist auf einem



Workstationcluster einsatzfähig. Der Geschwindigkeitsnachteil durch vermehrten Datentransfer verlangsamt durch schnelle Netzverbindungen die Rechnung nicht wesentlich.

## 4.2 Simulation der Strömung in Festbett-Bioreaktoren

Aufgrund der Problematik, nichtinvasive Messgeräte im Reaktor zu positionieren, existieren in der Literatur wenig Daten zum Strömungszustand in Bioreaktoren. Deshalb werden in dieser Arbeit mit Hilfe der numerischen Simulation neu gewonnene Erkenntnisse über den Impulsaustausch in Bioreaktoren vorgestellt.

Bioreaktoren werden sowohl im Labor als auch im Praxisbetrieb mit sehr geringen Geschwindigkeiten betrieben. Die Partikel-Reynoldszahlen liegen im Bereich von 10 bis 20. In diesem Bereich ist die Strömung im gesamten Reaktor als laminar zu betrachten und es treten keine Ablöseerscheinungen in Form von freien Scherschichten oder Wirbeln auf.

Die Simulationsergebnisse zeigen, daß der Bioreaktor in vier strömungsmechanisch unterschiedliche Zonen zerlegt werden kann: Eine Einlaufzone mit Umlenkung der Strömung in radialer Richtung und Ausbildung des typischen Profils. Eine Kernzone mit relativ gleichmäßiger Geschwindigkeitsverteilung, eine Randzone, die sich drei Partikeldurchmesser ausdehnt und, wegen der hohen Porosität in diesem Bereich, bis zu 2-3 Fach erhöhte Axialgeschwindigkeiten aufweist. Und schließlich eine Auslaufzone, in welche, je nach Reynoldszahl, eine Vergleichmäßigung des Strömungsprofils stattfindet. Diese Aussagen haben für den Betrieb von Reaktoren folgende Konsequenzen:

- Erst bei Durchmesserverhältnissen ( $D_{\text{Reaktor}}/d_{\text{Partikel}}$ ) von etwa 50 ist der Effekt des Wandbereichs zu vernachlässigen und es kann näherungsweise eine Kolbenströmung angenommen werden.
- Der Rückschluss auf die Strömungsverhältnisse im Reaktor durch Platzierung von Messgeräten über der Trägerpartikel führt besonders bei geringen Reynoldszahlen zu einer falschen Einschätzung des Geschwindigkeitsprofils.
- In den untersten zwei bis drei Partikelschichten wird die Anhaftung von Biofilm durch die Umlenkung der Strömung erschwert.
- Im unteren Bereich der Kernzone sind dicke Biofilme zu finden. Dies liegt an der homogenen und langsamen Strömung in diesem Bereich. Zusätzlich begünstigt das hohe

Nährstoffangebot im unteren Abschnitt das Wachstum. Deswegen neigt ein Reaktor im ersten Drittel der Kernzone vermehrt zur Verblockung.

- Im Randbereich weist das Fluid durch die hohe Porosität eine durchschnittlich um den Faktor 2-3 erhöhte Strömungsgeschwindigkeiten auf. Dies führt zu einer verringerten Verweilzeit in dieser Zone.

Untersuchungen der Scher- und Normalspannungen an der Oberfläche der Trägerpartikel ergeben selbst im Wandbereich eine geringe Belastung der Biomaterie. Vergleiche mit der Literatur zeigen, daß durch strömungsmechanische Kräfte im Bereich von maximal ca.  $6 \text{ N/m}^2$  keine Schädigung zu erwarten ist.

Zur Vergrößerung der Besiedlungsfläche werden in der Realität Partikel mit rauher Oberfläche eingesetzt. Die Simulation zeigt, daß es innerhalb der Vertiefungen zu kleinen Verwirbelungen und Ablösungen kommen kann. Die Geschwindigkeiten und Schubspannungen in den Einbuchtungen sind niedriger und steigen auch bei Erhöhung der Anströmgeschwindigkeit nicht stark an. In diesen Nischen finden sich ideale Bedingungen zur Ansiedlung von einzelnen Mikroorganismen, die als Grundlage für die Entwicklung eines Biofilms dienen.

In Bioreaktoren befinden sich meist mehrere tausend Trägerpartikel. Durch Limitierungen in der Rechnerkapazität können bei einer Simulation des kompletten Reaktors im Höchstfall tausend Partikel berücksichtigt werden. Um die Vorgänge im Reaktor möglichst vollständig abbilden zu können und dabei Rechenzeit zu sparen, wird der Ansatz vorgestellt, ein Segment aus dem Berechnungsgebiet zu berechnen, und daraus auf die Strömung im gesamten Reaktor zu schließen.

Mit der Wahl geeigneter Randbedingungen ist es möglich, den Druckverlust über dem Segment mit den Ergebnissen von Modellgleichungen und Simulationen des vollständigen Modells zur Übereinstimmung zu bringen. Problematisch bei diesem Ansatz ist die hohe Anzahl von Gitterpunkten, die benötigt wird, um die Konvergenz des Geschwindigkeitsfeldes zu erreichen. Dies liegt an der dichten Packungsstruktur und dem weitgehenden Fehlen eines Wandbereichs. Die Rechenzeiten für ein Segment liegen in der Größenordnung der Simulation des vollständigen Reaktors.

Ein möglicher Lösungsansatz um die Rechenzeiten zu verringern, kann durch eine weitere Verkleinerung des Segments erreicht werden. Einen Ansatz dazu bildet die Überlegung, daß

sich auch in axialer Richtung, nach der Ausbildung der Strömung, die Strömungsvorgänge in verschiedenen radialen Schnitten nicht wesentlich voneinander unterscheiden.

Dies führt zu einer Segmenthöhe von nur wenigen Partikeldurchmessern. Nach den Ausführungen in Kapitel 3.1.3 ist die Strömung nach ca. 2-3 Partikeldurchmessern eingelaufen. Somit ist es denkbar, mit einer Segmenthöhe von nur ca. 5-6 Partikeln, alle Bereiche im Reaktor abzubilden. Diese Ausführungen werden bei zukünftigen Simulationen, siehe Abschnitt 4.4, berücksichtigt.

### **4.3 Simulation des Stofftransportes in Bioreaktoren**

Um einen Bioreaktor vollständig zu charakterisieren, ist es notwendig, die Stoffaustausch- und Stoffumsatzvorgänge zu berücksichtigen. Darum wird das Simulationsmodell um eine skalare Transportgleichung für Substrat erweitert und mit dem Impulstransport gekoppelt. In diese Gleichung ist ein Senkenterm in Form einer Michaelis-Menten Kinetik integriert. Dieser Term berücksichtigt die Umsetzungen biologisch aktiver Materie. Bei der Materie kann es sich z.B. um immobilisierte Enzyme oder Biofilm handeln. Auf die Trägerpartikel wird durch Erweiterung des Rechengitters ein biologisch aktiver Film aufgebracht. Innerhalb dieses Film laufen nur Diffusionsvorgänge ab.

Um Rechenzeit zu sparen und unter Ausnutzung der verschiedenen Zeitskalen von Impuls und Stoffaustausch, werden beide Vorgänge entkoppelt berechnet. Dies ist möglich weil die Substratverteilung bei niedrigen Konzentrationen das Strömungsfeld nicht beeinflusst.

Der Stoffumsatz hängt von einer Vielzahl von Einzelparametern ab. Durch eine Dimensionsanalyse wird die Parameteranzahl reduziert. Der Einfluß der Strömungsmechanik wird durch Variation der Substratkonzentration und Reynoldszahl eingebracht.

Erste Ergebnisse Anhand einer Beispielkonfiguration mit 20 Partikeln zeigen die vielfältigen Möglichkeiten der Simulation, die Transportvorgänge im Reaktor zu beschreiben. Mittels Bildung von Wirkungsgraden für jedes einzelne Trägerpartikel ist es möglich, deren jeweilige Auslastung in Abhängigkeit von Substratkonzentration und Reynoldszahl zu bestimmen. Ferner ist es möglich, Regionen mit limitiertem Stofftransport bzw. reaktionslimitierte Zonen ausfindig zu machen.

Der Stofftransport hängt nicht nur von externen Vorgängen an der Partikeloberfläche, sondern auch von der internen Diffusion von Substrat in der aktiven Schicht ab. Auch hier kann die

Simulation durch Bestimmung von Auslastungen zeigen, welcher der beiden Vorgänge den entscheidenden Einfluß auf Transport und Umsatzleistung hat.

Erste Berechnungen stellen den externen Wirkungsgrad der Einlaufkonzentration gegenüber. Parameter ist die Reynoldszahl. Die Berechnungen sind bewußt nicht an einem konkreten Beispielsystem durchgeführt, um allgemein gültige Effekte herauszustellen. Unterschiedliche biologische Systeme lassen sich jedoch einfach durch Variation der charakterisierenden dimensionslosen Parameter einstellen.

Es zeigt sich, daß die Auslastung der biologisch aktiven Schicht stark von der Position im Reaktor abhängt. Bei wenig Substratangebot kann sie bis zu 35% schwanken. Wird das Substratangebot bzw. bei gleichbleibender Konzentration die Reynoldszahl erhöht, kann eine gleichmäßige Auslastung des Reaktors erreicht werden. Diese Ausführungen zeigen, daß durch lokale Simulation ein vertieftes Verständnis der Transportvorgänge im Reaktor erlangt wird.

Um ein möglichst vollständiges Simulationsmodell zur Charakterisierung der Stofftransportvorgänge zu erhalten, bedarf es noch einiger Anpassungen des biologischen Systems. Die wichtigsten sollen im nächsten Abschnitt als Ausblick für weiterführende Arbeiten kurz vorgestellt werden.

#### **4.4 Ausblick**

Während des Betriebes eines Bioreaktors unterliegt die Aktivität der Biomaterie immer gewissen Schwankungen. Immobilisierte Enzyme verlieren im Laufe der Zeit durch Verunreinigung und Verstopfung der Poren an Aktivität. Biofilme können, durch das Überangebot von Nährstoffen, ein erhebliches Wachstum aufweisen. Dies führt nach einer bestimmten Standzeit bis zur Verblockung des Reaktors.

Um möglichst reale Simulationen durchführen zu können, ist es ein wichtiges Ziel diese Vorgänge in das vorhandene Simulationsmodell einzubauen. Das Wachstum des Biofilms kann z.B. durch eine sich zeitlich ändernde Konzentration der Biomasse und dadurch geänderte Aktivität angenähert werden. Die Anpassung muss dabei gekoppelt mit der Substratkonzentration in den verschiedenen Bereichen des Reaktors erfolgen. Dies erlaubt weitere Möglichkeiten, das biologische System zu analysieren. Beispielsweise kann die Veränderung der Auslaufkonzentration, bei gleichbleibender Einlaufkonzentration, in

Abhängigkeit des zeitlichen Biofilmwachstums bestimmt werden. Sie ist eine wichtige Leitgröße bei der Beurteilung von Umsatzleistung und Effektivität des Reaktors.

Auch bei Enzymreaktoren spielt die Auslaufkonzentration eine wichtige Rolle. Sie wird durch eine Verringerung der enzymatischen Aktivität beeinflusst. In diesem Zusammenhang spielt die latente Enzymaktivität eine wichtige Rolle. Durch die Immobilisierung in den Poren der Trägerpartikel gibt es immer eine gewisse Enzymmenge, die nicht genügend mit Substrat ausgelastet ist. Sinkt die Aktivität der ‚äußeren‘ Enzyme, können diese deren Funktion teilweise übernehmen und so für einen gewissen Zeitraum einen stabilen Reaktorbetrieb aufrechterhalten.

Nicht nur Verschmutzungen oder Wachstum haben Einfluß auf die biologische Aktivität. Biologische Systeme arbeiten am effektivsten bei einem Temperaturoptimum. Schon geringfügige Schwankungen können erhebliche Aktivitätseinbußen nach sich ziehen. Zum Tragen kommt dies z.B. bei Biofilmreaktoren für die Abwassertechnologie. Sie unterliegen in starkem Maße den jahreszeitlichen Temperaturschwankungen. Um diese Einflüsse mit berücksichtigen zu können, soll die Simulation mit einem Modell zur Aktivierung bzw. Inaktivierung durch Temperatur erweitert werden.

Das bei der Konversion von Substrat entstehende Produkt wirkt sich oft hemmend auf die weitere Umsetzung von Substrat. In der Literatur gibt es eine Vielzahl von kinetischen Modellen, die die veränderte Umsatzgeschwindigkeit unter dem hemmenden Einfluß von Produkt beschreiben. Solche Modelle können Anstelle einer klassischen Michaelis-Menten Kinetik als Senkenterme in die Stofftransportgleichung implementiert werden.

Weitere Einsatzgebiete und Erweiterungen des Modells sind z.B. in der Simulation von Belastungsstößen zu denkbar. Dieser Punkt ist insbesondere für die Praxis von großer Relevanz. Durch zeitliche Schwankungen der Einlaufkonzentration kann es vorkommen, daß die Menge an Substrat nicht mehr abgebaut werden kann. Daraus resultieren Substratdurchbrüche, was in der Abwassertechnologie zur Überschreitung von Grenzwerten führen kann.

Wie bereits erwähnt, besitzen die Aufwuchskörper für die Biomaterie eine große Oberfläche mit Rauigkeiten, Vertiefungen und Poren. Hier kann der Stofftransport durch mangelnde Konvektion behindert werden. Das Berechnungsmodell zur Simulation von Strömungen um raue Partikel existiert bereits. Eine Kopplung mit dem Stofftransport und eventuelle Erweiterung dieses Modells mit geometrischer Abbildung von Poren würde die Veränderung des Stofftransports bei behinderter Konvektion aufklären. Es ist auch denkbar, die Porendiffusion über modifizierte Diffusionskonstanten aus der Literatur zu implementieren.

Diese Ausführungen zeigen, daß mit dem bestehenden Modell eine Vielzahl weiterführender Simulationen möglich ist. Die grundlegende Funktionalität ist anhand vieler Beispielrechnungen gesichert. Der weiterentwickelte Programm-Code ist ein wichtiger Grundstein zur Simulation komplexer biologischer Vorgänge mit sehr genauer lokaler Auflösung.

## ANHANG A

### A1 Grundoperationen des geometrischen Mehrgitter-Verfahrens

Im betrachteten Fall werden Lösungen für ein Gleichungssystem gesucht, dessen Koeffizientenmatrix von geometrischen Größen bestimmt ist, die wiederum von der Wahl der Gitterpunkte abhängen. Von einem geometrischen Mehrgitter-Verfahren spricht man dann, wenn zur Lösung eines solchen Gleichungssystems Berechnungen an verschiedenen groben Gittern durchgeführt werden und die Ergebnisse dieser Berechnungen zwischen den Gittern transferiert und weiter verwendet werden. Im einfachsten Fall sind die Gitter so aufgebaut, daß das jeweils feinere Gitter jeden zweiten Punkt mit dem gröberen Gitter gemein hat, vgl. Abbildung A-1.

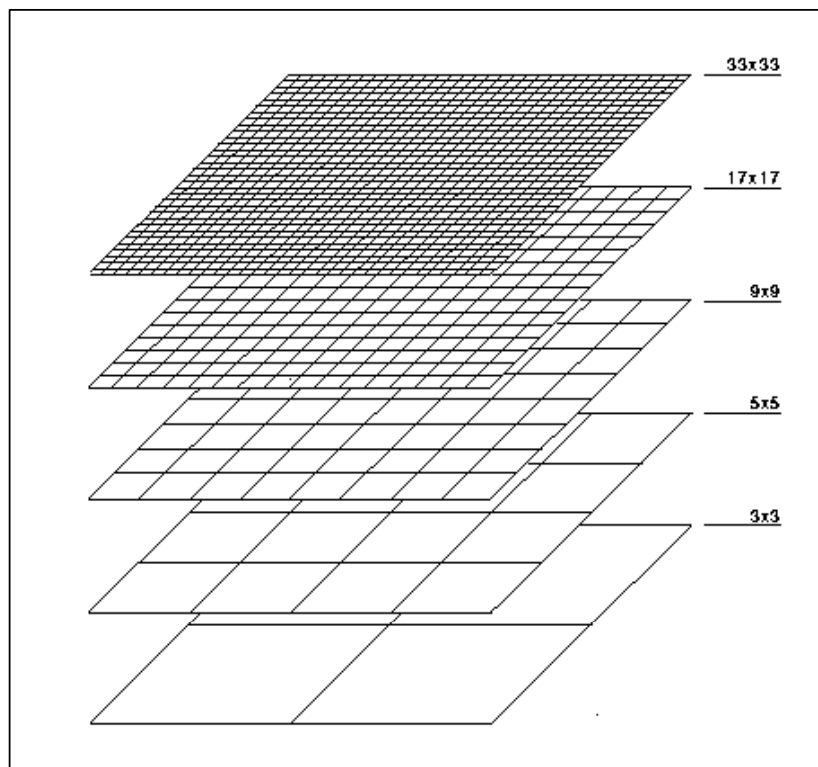
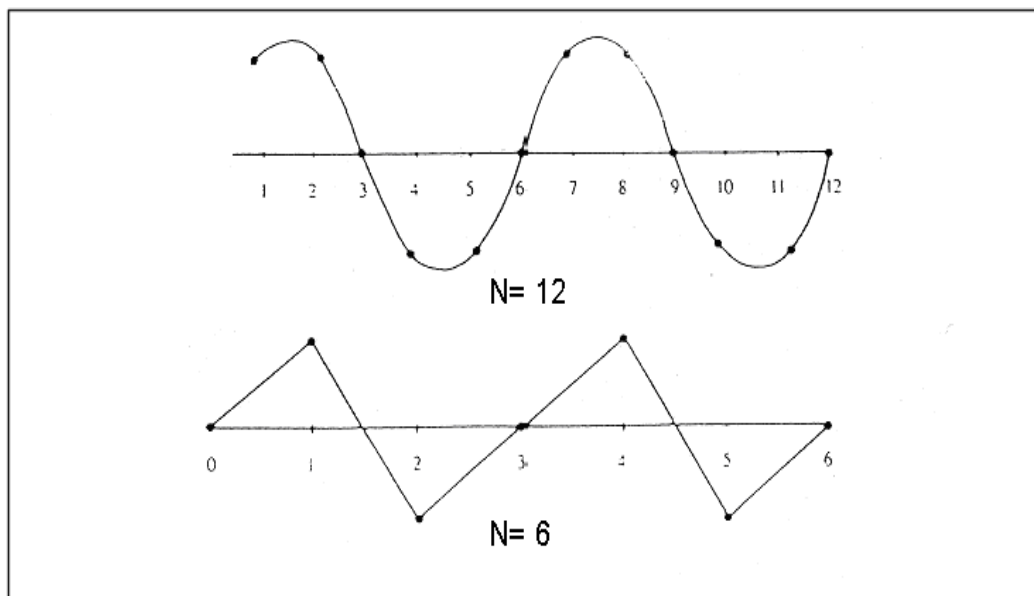


Abbildung A-1: Prinzipieller Aufbau verschiedene grober Gitterstrukturen bei einem Mehrgitterverfahren

Mehrgitter-Verfahren werden im wesentlichen auf zwei verschiedene Weisen eingesetzt. Man beobachtet, daß die Ausgangswerte für den Lösungsvektor (Anfangswert) bei einem iterativen Lösungsansatz für ein Gleichungssystem – unter der Voraussetzung von Konvergentem Verhalten - ein umso schnelleres Lösen des Systems ermöglichen, je näher sie sich bereits an der unbekannt wahren Lösung befinden. Das kann man ausnutzen, indem man an groben Gittern mit vergleichsweise moderatem Rechenaufwand eine angenäherte Lösung berechnet. Sie wird auf ein feineres Gitter transferiert und dient dort als Anfangswert. Dieses Verfahren nennt man geschachtelte Iteration, vgl. *Briggs* [29].

Wenn für die Berechnung an einem feinen Gitter ein Anfangswert verwendet wird, dessen Abweichung von der wahren Lösung niedrigfrequente Schwingungskomponenten aufweist, können diese mit den meisten iterativen Lösungsalgorithmen nur schwer oder gar nicht beseitigt werden [29]. Ein Ausweg bietet der Transfer der Lösung auf ein gröberes Gitter: Entsprechend der Verhältnisse der Gitterpunktanzahl sind diese Schwingungskomponenten dann hochfrequent und können leichter beseitigt werden. Ein eindimensionales Beispiel dazu zeigt Abbildung A-2. Dabei entspricht  $N$  der Anzahl der Gitterpunkte.



**Abbildung A-2: Erscheinungsbild niedrigfrequenter Schwingungen auf verschiedenen Gittern**

Bei einem Transfer des Anfangswertes vom feineren Gitter (Abbildung A-2, oben) auf das grobe Gitter (Abbildung A-2, unten) verringert sich die Frequenz um die Hälfte. Die niederfrequenten Anteile erscheinen also auf dem groben Gitter höherfrequent.



Der Transfer der Lösungsvektoren zwischen Gittern verschiedener Gitterpunktanzahlen erfolgt auf unterschiedliche Weise: Interpolation ermöglicht den Übergang von einem groben auf ein feines Gitter. In umgekehrter Richtung werden aus der Lösung für feine Gitter einfach die benötigten Werte herausgenommen. Die dabei nicht verwendeten Nachbarpunkte können mit einem Gewichtungsverfahren in die Rechnung mit einbezogen werden. Dieser Schritt wird als Restriktion bezeichnet.

Mit den beschriebenen Grundstrukturen das Mehrgitter-Verfahren realisiert werden. Bei dem implementierten kompletten Mehrgitter-Verfahren nach *Briggs* [29] mit insgesamt vier verschiedenen Gittern werden die Unterprogramme in der in Abbildung A-3 ausgewiesenen Reihenfolge aufgerufen.

Dabei entspricht Gitter 4 dem größten und Gitter 1 dem feinsten Gitter.

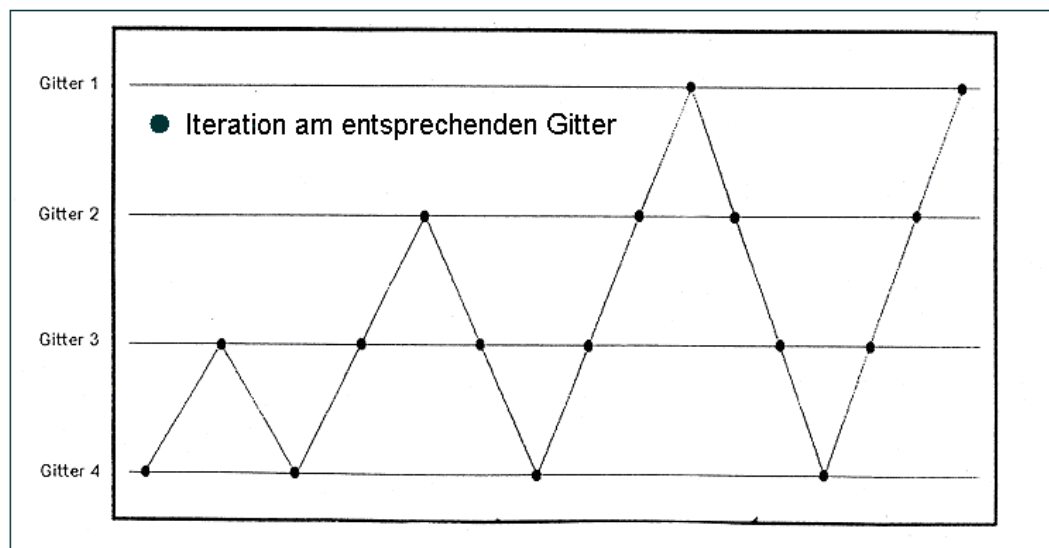


Abbildung A-3: Das komplette Mehrgitter-Verfahren nach [29]

## A2 Verifikation des Mehrgitter-Verfahrens

Um an einem System arbeiten zu können, dessen Verhalten leicht zu charakterisieren ist, wird die Lösung der Poisson-Gleichung als gesondertes Problem betrachtet. Der Einfluß des Informationsaustausches zwischen Haupt- und Nebengitter wird dadurch ausgeschaltet, daß mit einer reinen Rohrströmung, also mit einer Kugelanzahl null, gerechnet wird. Das Unterprogramm zur Behandlung der Poisson-Gleichung löst ein Gleichungssystem der Form

$$A \cdot \vec{\Phi} = \vec{0}. \quad (\text{A-1})$$

Dies ist ein mathematisches Modellproblem ohne physikalische Relevanz. Man kennt die genaue Lösung des Gleichungssystems (den Nullvektor) und kann die Richtigkeit der Lösung kontrollieren.

Um verfolgen zu können, wie sich aus dem ursprüngliche Anfangswert die Näherungslösung der exakten Lösung annähert, wird bei der Lösung die jeweils aktuelle Näherungslösung nach jedem Schritt der geschachtelten Iteration bzw. der Grob-Gitter-Korrektur als Diagramm dargestellt. Die folgenden Bilderserien, vgl. Abbildungen A-4 bis A-7, beginnen mit einer überlagerten Sinusschwingung verschiedener Frequenzen als Anfangswert. Diese Vorgabe zeigt den Verlauf der Lösung besonders deutlich und demonstriert Vorteile des Mehrgitter-Verfahrens. Der Anfangswert wird in Abhängigkeit von den Gitterplatzindizes  $i, j, k$  durch Gleichung (A-2) vorgeschrieben.

$$\Phi(i, j, k) = 4 \sin\left(\frac{2\pi i}{33}\right) \cdot \sin\left(\frac{2\pi i}{66}\right) \cdot 3 \sin\left(\frac{2\pi j}{33}\right) \cdot \sin\left(\frac{2\pi j}{99}\right) \cdot 2 \sin\left(\frac{16\pi k}{65}\right). \quad (\text{A-2})$$

Pro Gitter wird jeweils 5 Mal iteriert. Die Bilderserie zeigt die stufenweise Konvergenz der Lösung. Die auf die Gitterplätze verweisenden Indizes werden hier bedeutungslos, da es sich um ein vom ursprünglichen geometrischen Problem losgelöstes, künstlich erzeugtes Gleichungssystem handelt, dessen Lösung der Nullvektor ist. Auf der x-Achse sind die  $\Phi$ -Werte für jeden Gitterpunkt bei 1 beginnend lückenlos durchgezählt. Die y-Werte der Diagramme sind direkt die  $\Phi$ -Werte. Bei den Abbildungen der Näherungslösungen für das feinste Gitter werden zur Übersichtlichkeit nicht alle Residuumskomponenten dargestellt.

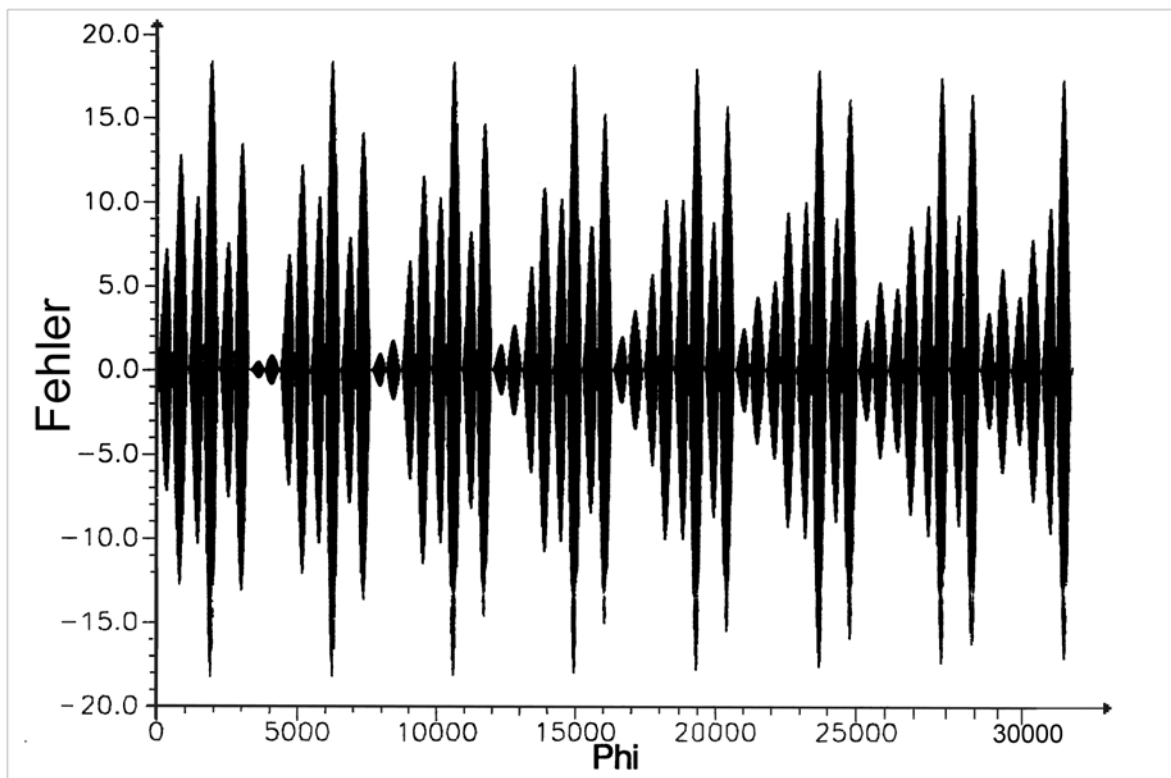


Abbildung A-4: Anfangswert mit verschiedenfrequenter Sinusschwingung nach Gleichung A-2

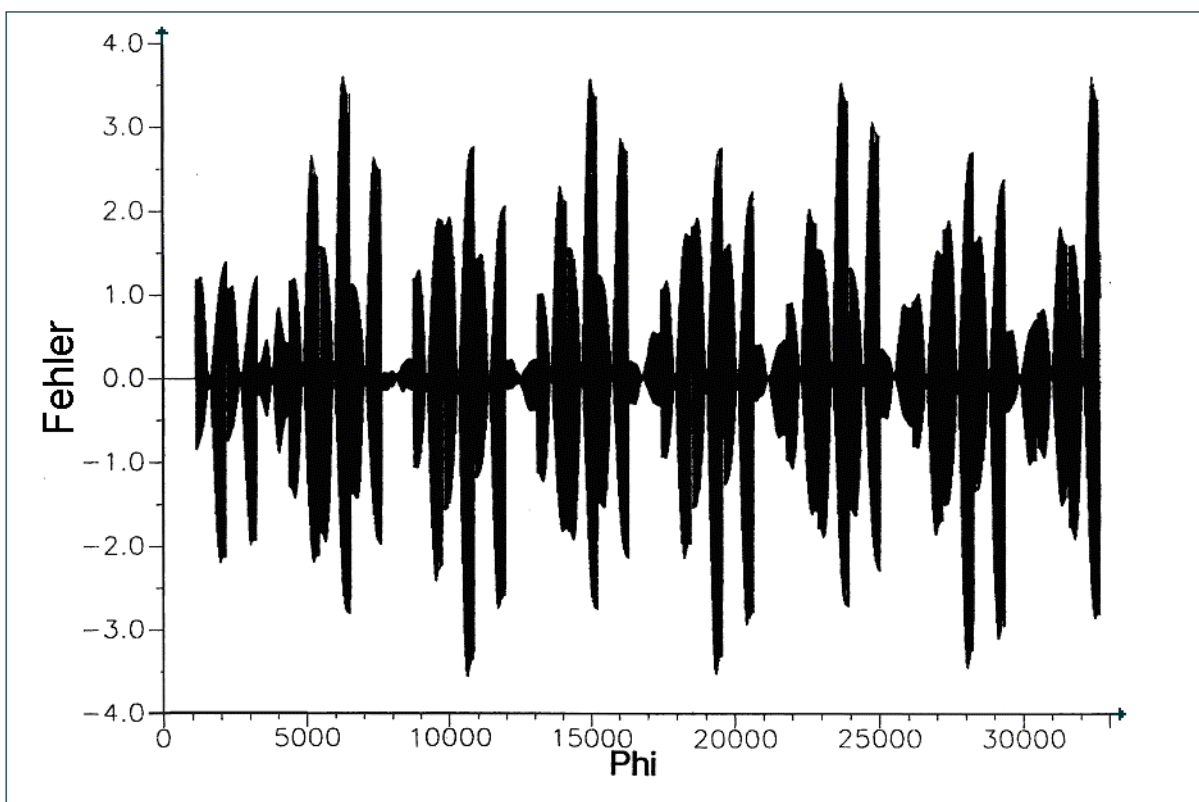


Abbildung A-5: Verbesserung des Anfangswertes nach 5 Iterationen am groben Gitter 4

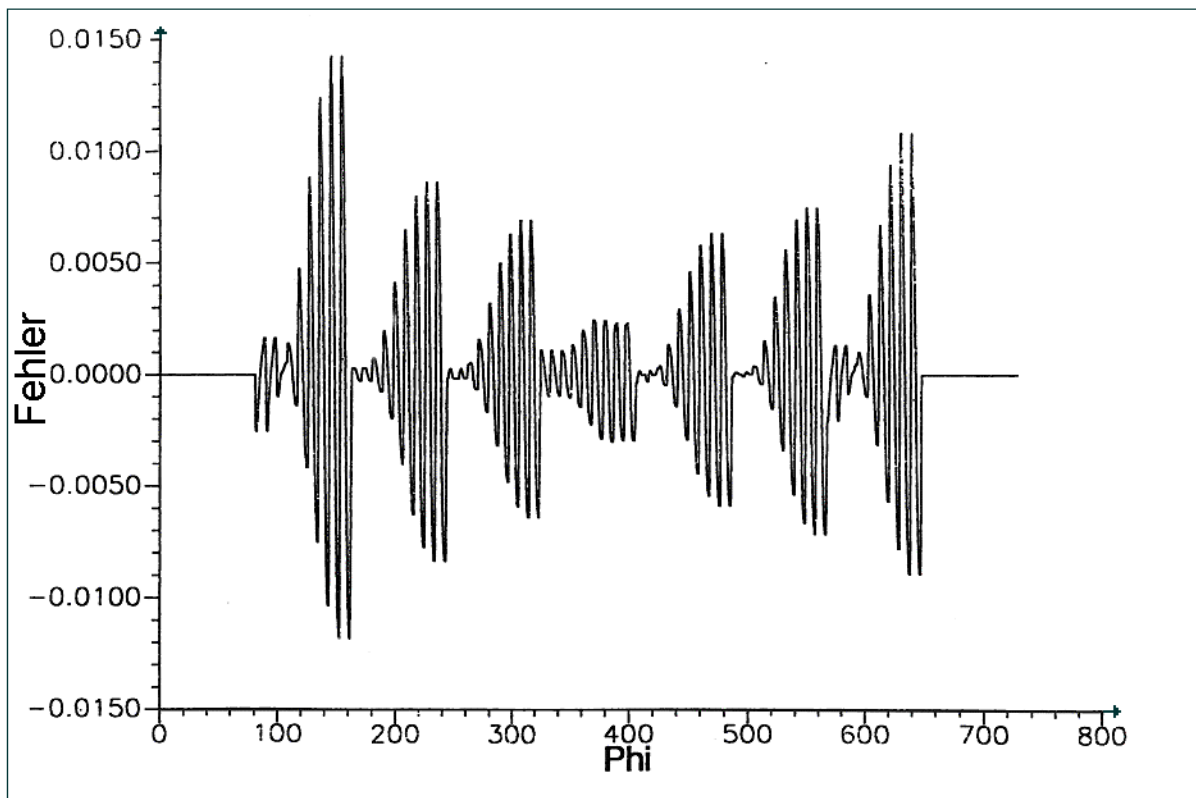


Abbildung A-6: Weitere Reduktion des Fehlers nach 5 Iterationen an Gitter 3

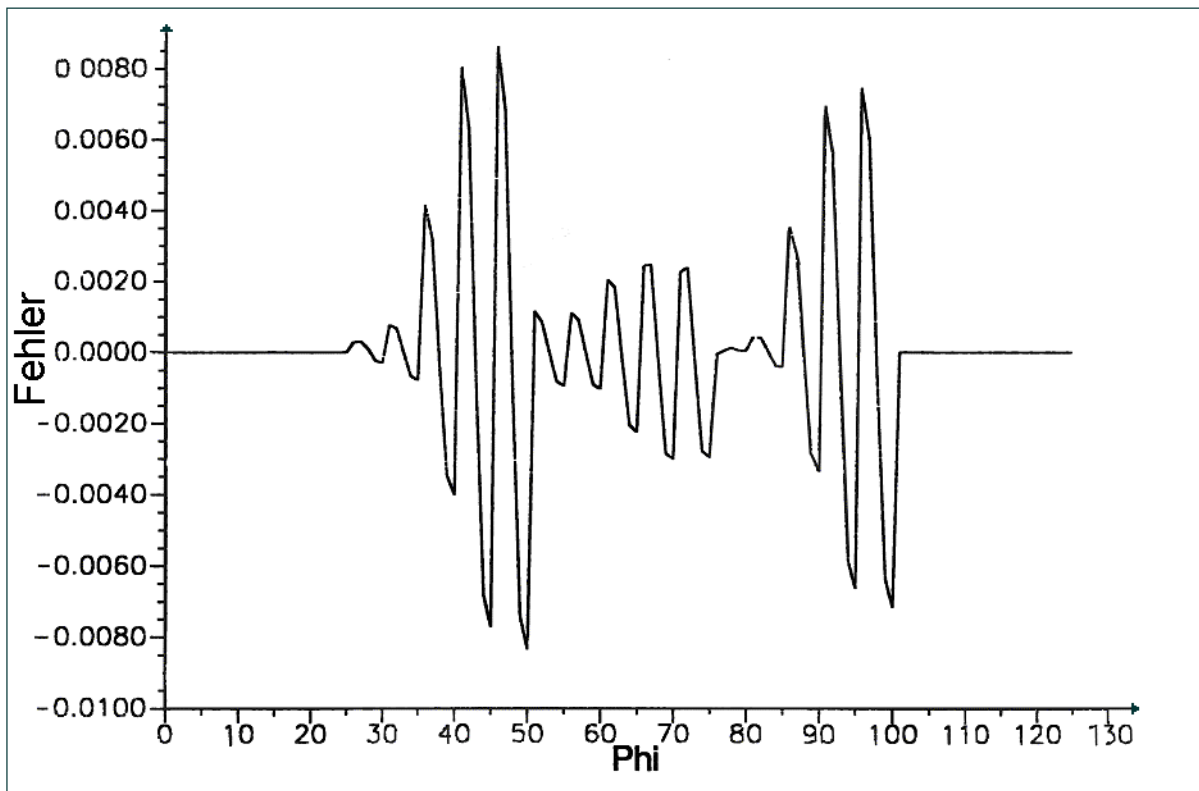


Abbildung A-7: Weitgehende Konvergenz des Lösungsvektors nach 5 Iterationen an Gitter 1

Ein Vergleich von Abbildung A-4 mit Abbildung A-5 zeigt deutlich, daß bereits 5 Iterationen am gröbsten Gitter den Anfangswert erkennbar verbessern. Besonders die hohen Amplituden und niedrigfrequenten Schwingungen werden gedämpft. Im weiteren Verlauf der Iterationen nähert sich die Lösung sehr schnell dem Nullvektor an, und es bleibt nur eine extrem niederfrequente Schwingung mit sehr kleiner Amplitude, die offensichtlich auch auf dem gröbsten Gitter nur unzureichend relaxiert wurde. Nach 5 Iterationen am feinsten Gitter ist der Lösungsvektor weitgehend zum Nullvektor Lösung konvergiert, vgl. Abbildung A-7.

### **A3 Ablaufsteuerung und Adaption des Mehrgitter-Verfahrens**

Wird die Poisson-Gleichung auf den verschiedenen groben Gittern mit dem herkömmlichen Verfahren weiterhin mit je 20 Iterationen angenähert gelöst, bringt das genannte Schema keinerlei Verkürzung der Rechenzeit. Um eine Verkürzung herbeizuführen, werden die Iterationen dann abgebrochen, wenn sich die maximale Komponente der Residuen zweier aufeinanderfolgender Iterationsschritte um nicht mehr als 20% unterscheidet. Da hochfrequente Anteile im Fehler schon gedämpft sind, kann erwartet werden, daß zusätzliche Iterationen nicht mehr sinnvoll sind.

Dazu wird nach jedem Iterationsschritt nach Gleichung (2-38) die maximale Komponente des Residuums berechnet und mit dem Wert der vorausgehenden Iteration verglichen. Ist der Absolutbetrag des neuen Wertes im Vergleich zum vorausgehenden Iterationsschritt größer als 80% so wird die Iterationsschleife verlassen. Bei dem Wert von 80% wird die Poisson-Gleichung immer noch zuverlässig so genau gelöst, daß die Konvergenz des gesamten Systems gewährleistet wird.

Um das Mehrgitterschema des vereinfachten Systems von Abschnitt A-2 in das ursprüngliche Programm übernehmen zu können, ist es notwendig, einige Änderungen durchzuführen.

Das Programm zur Lösung des Gleichungssystem für das zylindrische Gitter behandelt die mit Kugeln besetzten Gitterplätze als Löcher, an denen wegen der Haftbedingung die Geschwindigkeit gleich null gesetzt und nicht gerechnet wird. Diese Löcher werden mit einer Lage von Punkten begrenzt, an denen die Werte durch Interpolation der Werte der benachbarten Gitterpunkte des jeweiligen Nebengitters gewonnen werden. Die Löcher der groben Hauptgitter müssen gegebenenfalls künstlich mit einer Schicht von Interpolationspunkten umgeben werden, falls die Interpolationspunkte des feineren Gitters bei der Restriktion nicht auf das gröbere Gitter übertragen werden. Sonst kann der Poisson-Löser die

Haftbedingung nicht richtig umsetzen. Dies wird durch ein Unterprogramm erreicht, das die Nachbarschaft jedes Punktes prüft und bei direktem Übergang normaler Punkt/Loch-Punkt einen Interpolationspunkt an die Stelle des normalen Punktes setzt.

#### A4 Ergebnisse des Mehrgitter-Verfahrens

Anhand des vereinfachten Systems aus Abschnitt A-2 der Rohrströmung kann gezeigt werden, daß die Implementierung des Mehrgitter-Verfahrens prinzipiell funktioniert. Wenn als Anfangswert eine Überlagerung verschiedenfrequenter Sinusschwingungen, vgl. Gleichung (A-2), verwendet wird, liefert das Mehrgitter-Verfahren bei vergleichbarem Rechenaufwand Lösungen, deren Residuen um mehrere Zehnerpotenzen geringer sind als die des herkömmlichen Verfahrens, siehe Tabelle A-1. Wird bei gleichem Problem ein besserer Anfangswert verwendet, z.B. der Nullvektor, kann der Rechenaufwand durch das Mehrgitter-Verfahren nicht reduziert werden. In diesem Fall wird die Poisson-Gleichung bei vergleichbarem Rechenaufwand um etwa eine Zehnerpotenz schlechter als beim ADI Verfahren gelöst, vgl. Tabelle A-2.

**Tabelle A-1: Vergleich Mehrgitter-Schema/ADI Verfahren mit Sinus-Schwingung als Anfangswert**

Maximale Residuumskomponente	Mehrgitter-Schema	ADI Verfahren
Nach 10 Iterationen	$9.40 \cdot 10^{-7}$	0.177239
Nach 20 Iterationen	$9.00 \cdot 10^{-7}$	0.175242
Nach 30 Iterationen	$1.08 \cdot 10^{-6}$	0.173001

**Tabelle A-2: Vergleich Mehrgitter-Schema/herkömmliches Verfahren mit Nullvektor als Anfangswert**

Maximale Residuumskomponente	Mehrgitter-Schema	ADI Verfahren
Nach 10 Iterationen	$1.13 \cdot 10^{-6}$	$6.3 \cdot 10^{-7}$
Nach 20 Iterationen	$1.11 \cdot 10^{-6}$	$2.9 \cdot 10^{-7}$
Nach 30 Iterationen	$1.21 \cdot 10^{-6}$	$2.1 \cdot 10^{-7}$

Untersuchungen des Startwertes haben gezeigt, daß der bisher vorgegebene Anfangswert null für das Geschwindigkeitspotential an allen Gitterpunkten bereits sehr nahe an der Lösung

liegt. Der Wert kann durch Rechnung an groben Gittern nicht ausreichend verbessert werden kann, weil die Korrekturgeschwindigkeit  $\bar{v}_c$  sehr nahe null ist.

Eine Begründung hierfür ist, daß die Geometrie der Schüttung im Hauptgitter nur unzureichend auf die gröberen Gitter übertragen wird, weil deren Gitterpunktanzahl zu klein ist, um alle Informationen aufzunehmen. Deutlich wird das am Beispiel einer Kugel mit dem typischen Durchmesser von 6 Gitterpunktabständen. Am größten Gitter ist sie im häufigeren Fall nicht mehr auszumachen, weil ihre Abmessungen unterhalb der Auflösungsgrenze des größten Gitters liegen. Dadurch entsteht die Situation, daß das grobe Gitter nicht mehr in geometrischem Zusammenhang zum feinen Gitter steht. Folglich kann die Lösung des zum groben Gitter gehörenden Gleichungssystems nicht mehr als guter Anfangswert für die Lösung auf dem feinen Gitter betrachtet werden.

Es können aber die für das Mehrgitterschema programmierten Abbruchbedingungen auf das bisherige iterative Lösungsschema der Poisson-Gleichung angewendet werden. Die Iterationsschleife wird dann in der Regel nach bereits fünf oder sechs Iterationen beim Hauptgitter bzw. zwei bis drei Iterationen bei den Nebengittern verlassen, ohne daß die Konvergenz des Gesamtsystems nachteilig beeinflusst wird.

Allein diese Maßnahme bringt eine deutliche Verkürzung der Rechenzeit. Um die Berechnung zusätzlich zu beschleunigen, wird in den folgenden Abschnitten das Verfahren zur gewichteten Residuumsminimierung zu erörtert.

## ANHANG B

### B1 Grundlagen und Umsetzung des GMRES-Verfahrens

Folgende Ausführungen zeigen die Möglichkeiten auf, das sich aus der Poisson-Differentialgleichung ergebende lineare Gleichungssystem mit einem Verfahren zur Residuumsminimierung (**General Minimised Residual Algorithm**, GMRES) effektiver zu lösen, als dies bisher mit dem bestehenden ADI-Algorithmus (**Alternating-Directions-Algorithm**) möglich ist.

Das Grundprinzip des GMRES-Verfahren besteht darin, die Norm des Residuums durch Addition linear unabhängiger Vektoren zum Startvektor  $\vec{x}_0$  zu minimieren.

Die Norm des Residuums  $\|\vec{r}\|$  ist umso näher an null, je weniger sich  $\vec{x}$  von der exakten Lösung  $\vec{x}_{\text{exakt}}$  unterscheidet. Die Differenz zwischen  $\vec{x}_0$  und  $\vec{x}_{\text{exakt}}$  läßt sich als Linearkombination linear unabhängiger Vektoren darstellen:

$$\vec{x}_{\text{exakt}} - \vec{x}_0 = \sum_{i=1}^n y_i \vec{v}_i. \quad (\text{B-1})$$

Hierin entspricht  $n$  dem Rang der Matrix  $A$ . Die Vektoren  $\vec{v}_i$  werden so bestimmt, daß sie die Orthonormalbasis eines Krylow-Unterraums sind. Als erster dieser Vektoren wird das normierte Residuum selbst gewählt:

$$\vec{v}_1 = \vec{r} / \|\vec{r}\|. \quad (\text{B-2})$$

Die übrigen Vektoren werden als Suchrichtungen bezeichnet. Man gewinnt sie dadurch, daß unterschiedlich wählbare Vektoren mit dem Gram-Schmidt Verfahren, siehe [28] so modifiziert werden, daß sie jeweils zu allen bisher bestimmten Vektoren orthogonal sind. Wegen der linearen Unabhängigkeit der Suchrichtungen ist die Lösung des Minimumproblems eindeutig.

Beim GMRES-Verfahren handelt es sich um ein Standardverfahren der numerischen Mathematik zur Lösung linearer Gleichungssysteme. Eine detaillierte Beschreibung aller Rechenoperationen ist in der Veröffentlichung von *Saad* und *Schulz* [28] zu finden. Die



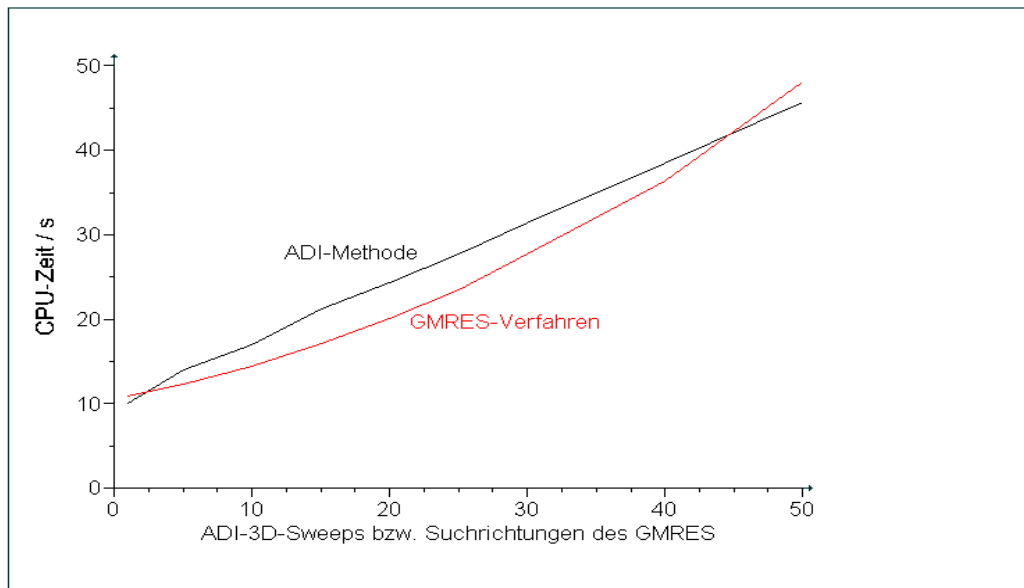
Umsetzung des GMRES-Verfahrens im Programm erfolgt durch den Einbau einer vorgefertigten Unterroutine in den Poisson-Gleichungslöser.

## **B2 Ergebnisse des GMRES-Verfahrens**

Um die Leistungsfähigkeit des GMRES-Verfahrens mit der ADI-Methode zu vergleichen, muß die Güte der Lösung beurteilt und die zu ihrer Berechnung benötigte Rechenzeit ermittelt werden. Exemplarisch wird das Verhalten der ADI-Methode sowie des GMRES-Verfahrens mit einem ADI-3D-Durchlauf am Problem eines aus zehn Partikel bestehenden Kugelhaufens in einem zylindrischen Rohr untersucht. Die Gitterpunktanzahl des Hauptgitters beträgt  $33 \times 33 \times 65$ , die der Nebengitter  $23 \times 23 \times 16$ . Kriterium für die Güte der Lösung ist die Norm des Residuums, gebildet mit der jeweiligen Lösung nach Gleichung (2-38).

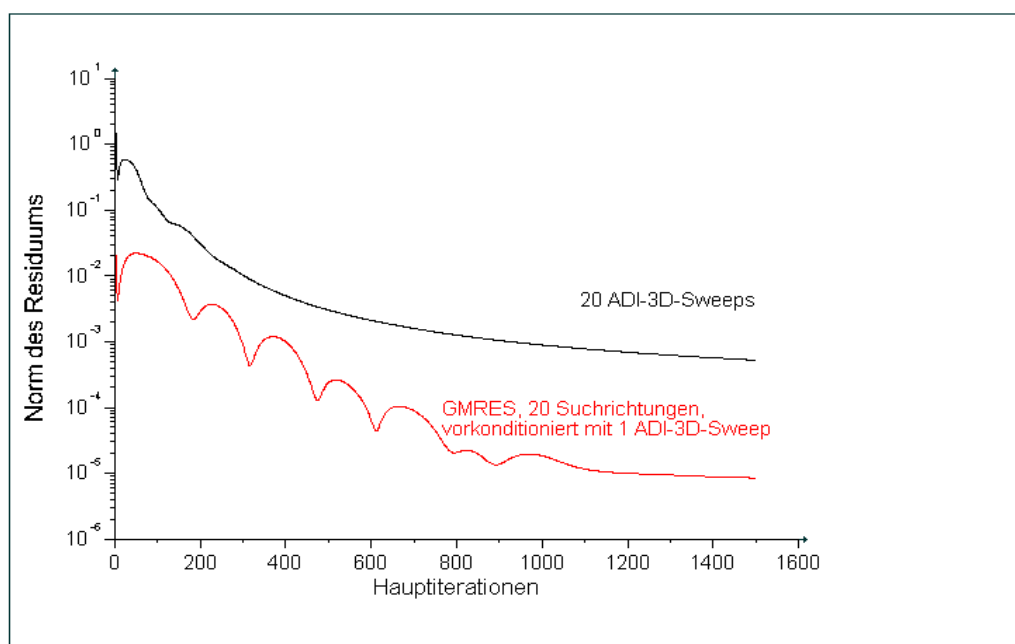
Die Ermittlung der jeweils erforderlichen Rechenzeit ist hier per Funktionsaufruf nicht möglich, weil der Compiler, der auf die benötigten Parallelisierungsfunktionen Zugriff hat, die Rechenzeit nicht zur Verfügung stellt. Die Berechnung eines einfachen Beispielsystems der Rohrströmung ohne Kugeln kommt ohne die Parallelisierungsfunktionen aus und kann mit Ausgabe der verstrichenen Rechenzeit ausgeführt werden. Es werden die erforderlichen Rechenzeiten für einen Funktionsaufruf des Navier-Stokes Gleichungslösers bestimmt. Dieser ruft den Poissonlöser als Funktion auf, bei dem als Parameter die Anzahl der 3D-Gitterdurchläufe bei der ADI-Methode bzw. der Suchrichtungen beim GMRES-Verfahren variiert werden.

Wie Abbildung B-1 zeigt, besteht hinsichtlich der Rechenzeit zwischen der ADI-Methode und dem GMRES-Verfahren je nach Anzahl der 3D-Durchläufe bzw. Suchrichtungen ein Unterschied bis zu 20%. Weil bis auf die Methode zur Lösung der Poisson-Gleichung der restliche Algorithmus nicht verändert wurde, kann für Vergleiche der beiden Verfahren der Betrag der Residuumsnorm der Poisson-Gleichung herangezogen werden.



**Abbildung B-1: Vergleich der Rechenzeiten ADI-GMRES bei einer Rohrströmung**

Abbildung B-2 vergleicht die von den verschiedenen Gleichungslösern erreichte Norm des Residuums. Die Anzahl der Suchrichtungen bzw. der 3D-Durchläufe so gewählt, daß die Rechenzeiten gemäß Abbildung B-1 nicht stark voneinander abweichen. Man erkennt, daß die mit GMRES erzielte Norm um ein bis zwei Zehnerpotenzen unter der mit der ADI-Methode erreichten Norm liegt.



**Abbildung B-2: Residuumsnorm der Poisson-Gleichung an einem Beispielproblem; GMRES-Verfahren mit 20 Suchrichtungen und ADI-Verfahren mit 20 3D-Durchläufen**

Auf der Abszisse von Abbildung B-2 ist die Anzahl der Hauptiterationen aufgetragen. Unter Hauptiteration ist die Gesamtheit aller Rechenschritte, die zur Lösung der Navier-Stokes Gleichung während einer Iteration nötig sind, zu verstehen. Die in Abbildung B-2 erwähnte Vorkonditionierung des GMRES-Verfahrens bezieht sich auf den Startwert des Lösungsvektors. Wie in Abschnitt B-1 beschreiben, ist die Residuumsnorm eines Gleichungssystems umso geringer, je näher der Startvektor am Lösungsvektor liegt. Der einmalige ADI-Durchlauf dient dazu, den Startvektor mit einem verbesserten Anfangswert zu belegen.

Ein vorkonditioniertes System erreicht mit einer geringeren Anzahl von Suchrichtungen die gleiche Residuumsnorm wie ein nicht vorkonditioniertes mit einer größeren Anzahl von Suchrichtungen. Dies führt letztlich zu einer Verkürzung der Rechenzeit.

Wie Abbildung B-3 zeigt, nähert sich nach einer bestimmten Anzahl von Hauptiterationen die Differenz der über den Querschnitt des durchströmten Zylinders gemittelten Reynoldszahlen vor und nach der Schüttung auf einen Wert nahe null. Das Erreichen dieses Wertes dient als Abbruchkriterium der Simulation, vgl. [20]. Wie Abbildung BB-3 zeigt, ist dies mit dem GMRES-Verfahren nach einer geringeren Anzahl von Hauptiterationen der Fall.

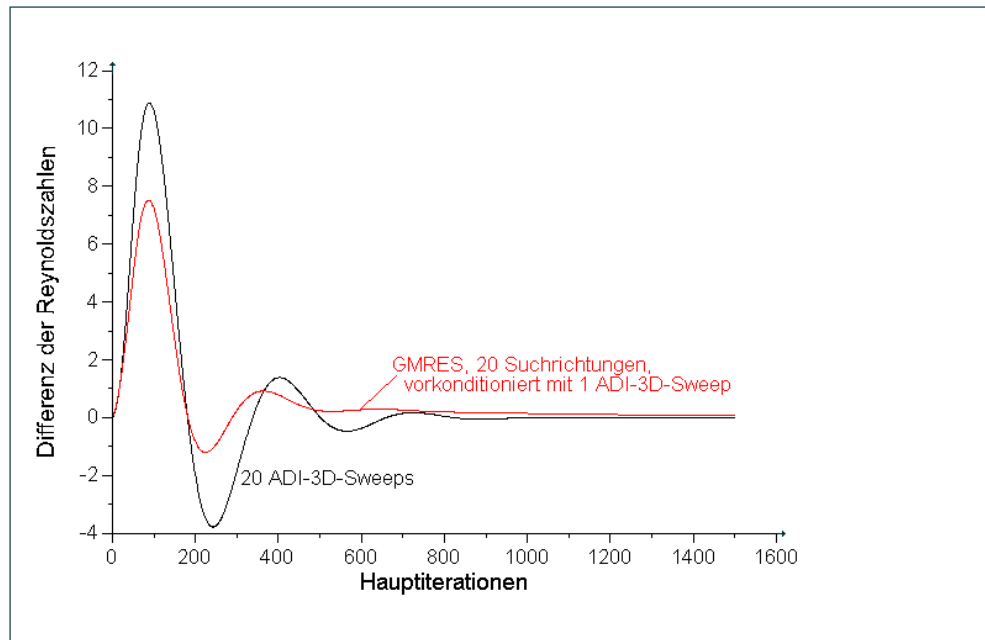


Abbildung B-3: Differenz der mittleren Reynoldszahlen vor und nach der Schüttung

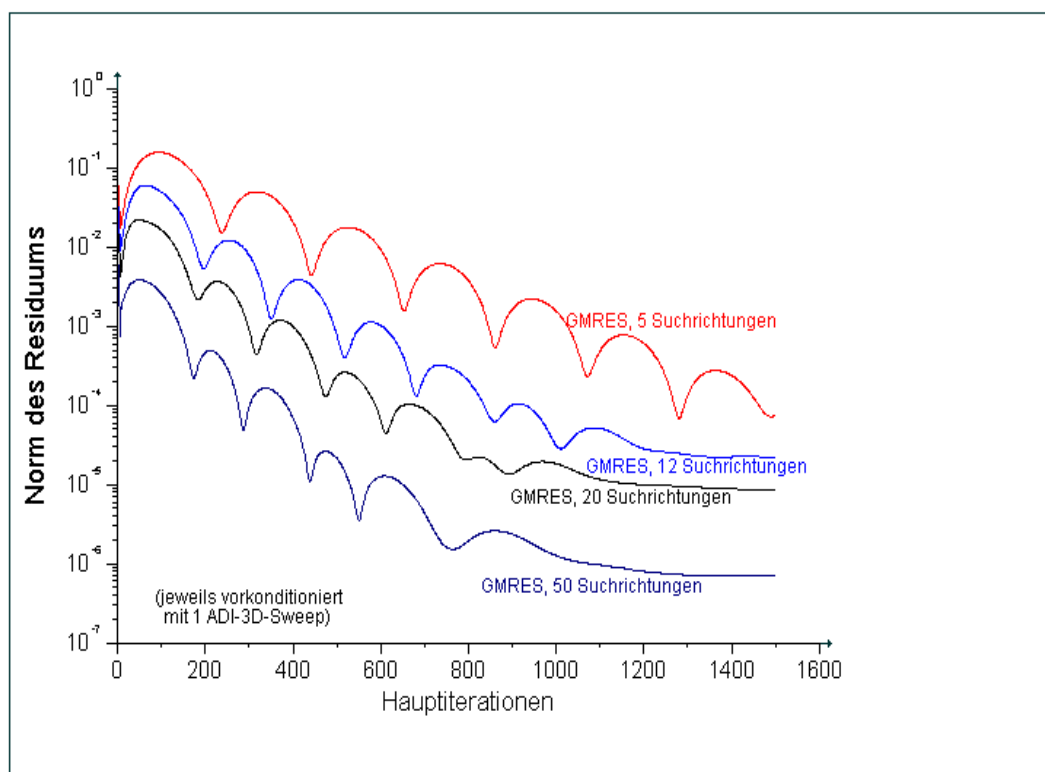
Es ist ebenfalls erkennbar, daß beim GMRES-Verfahren wegen der exakteren Lösung der Poisson-Gleichung die Differenz der Reynoldszahlen in engeren Grenzen schwankt.

Bei der Simulation von Strömungen mit hohen Reynoldszahlen ( $Re_p > 20$ ) neigt der Navier-Stokes Löser zur Divergenz. Dies kommt durch einen starken Anstieg der Reynoldszahl hinter der Schüttung zu Beginn der Iterationen zustande.

Im Bereich der Partikel kommt es während dieser Phase zu einem errechneten Anstieg des Massenstroms. Damit ergeben sich lokal überhöhte Geschwindigkeiten und damit überhöhte Geschwindigkeitsgradienten im abflußseitigen Bereich der Schüttung. Diese Gradienten sind umso steiler je größer die Reynoldszahl ist, bei zu großen Gradienten ist ein Abbruch des Programms die Folge.

Das GMRES-Verfahren ist in der Lage, die Differenz der Reynoldszahlen näher an null zu halten als die herkömmliche ADI-Methode, somit sind Berechnungen mit höheren Reynoldszahlen möglich.

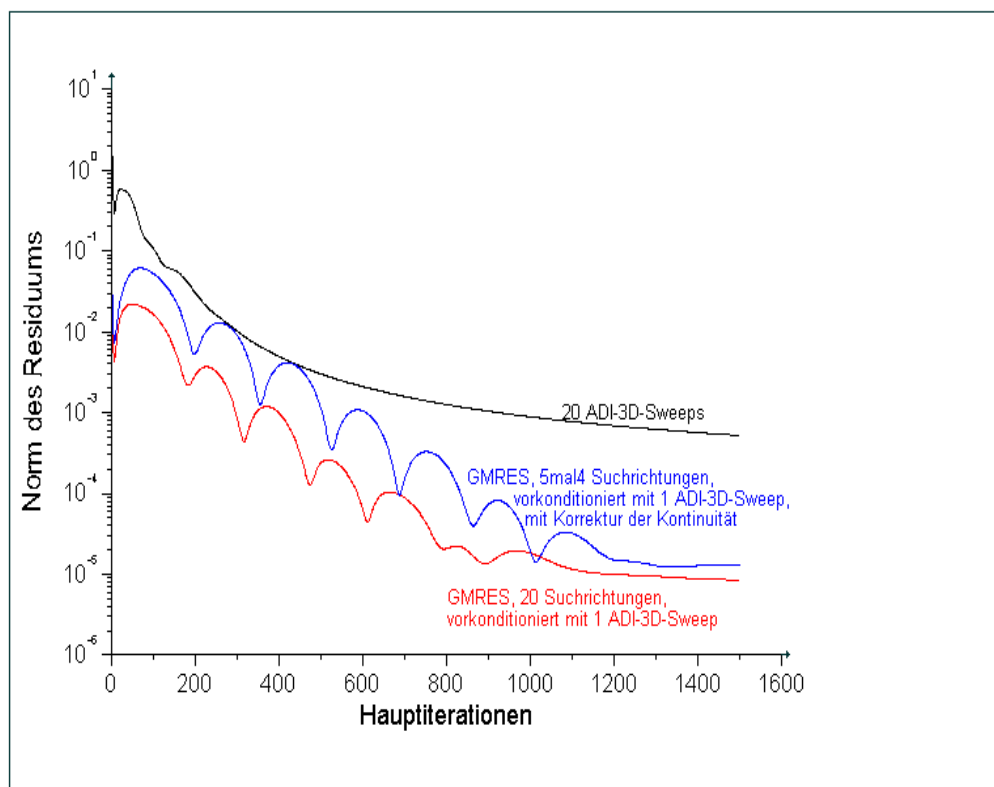
Nach [28] besteht das Grundprinzip des GMRES-Verfahrens darin, die Norm des Residuums durch Addition linear unabhängiger Vektoren zum Startvektor  $\vec{x}_0$  zu minimieren. Abbildung B-4 verdeutlicht, daß die Residuumsnorm durch eine steigende Anzahl der linear unabhängigen Vektoren (Suchrichtungen) deutlich gesenkt werden kann.



**Abbildung B-4: Residuum der Poisson-Gleichung an einem Beispielproblem; GMRES-Verfahren mit 5, 10, 20 und 50 Suchrichtungen**

Es ist möglich, den GMRES-Algorithmus in mehreren Durchgängen mit verringerter Anzahl an Suchrichtungen nacheinander ablaufen zu lassen, wobei die vom ersten Durchgang berechnete Näherungslösung als Ausgangswert (wie eine Vorkonditionierung) für den zweiten Durchgang verwendet wird, usw..

Abbildung B-5 zeigt, daß die Residuumsnorm mit fünf Durchgängen zu je vier Suchrichtungen nach 1000 Hauptiterationen annähernd auf den Wert bei 20 Suchrichtungen und einmaligem Durchlauf gesenkt werden kann. In beiden Fällen sind die Rechenzeiten etwa gleich.



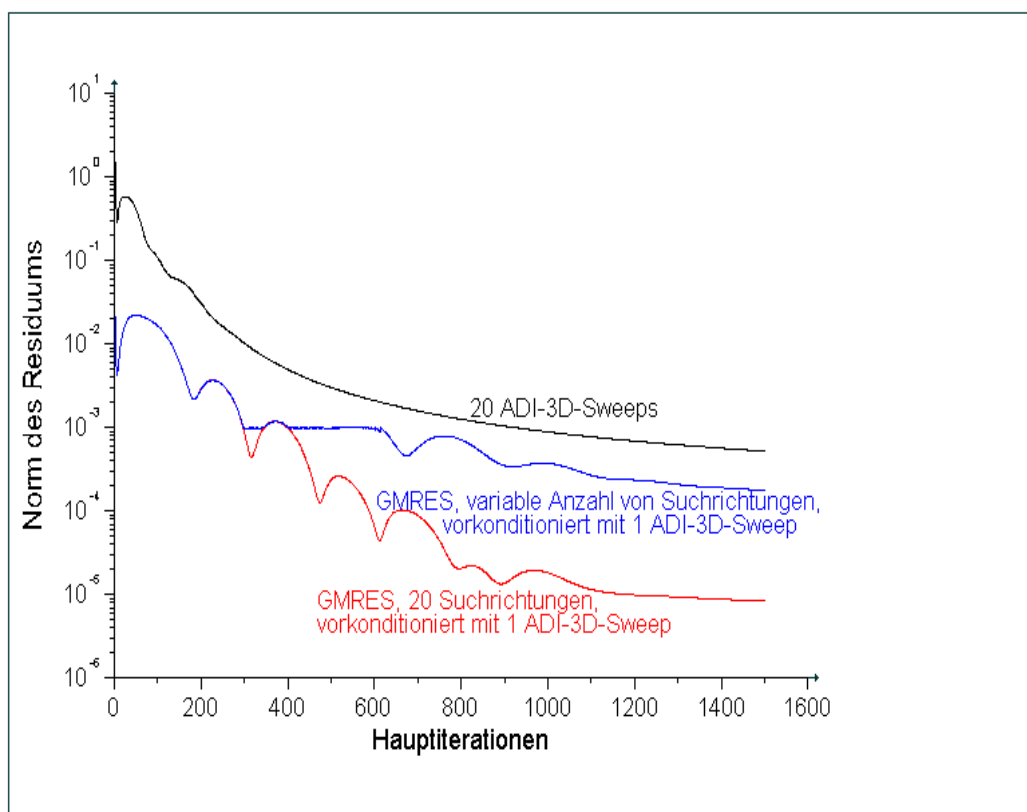
**Abbildung B-5: Residuum der Poisson-Gleichung an einem Beispielproblem; GMRES-Verfahren mit 20 sowie 5×4 Suchrichtungen und ADI-Verfahren mit 20 3D-Sweeps**

Gegenüber dem GMRES-Verfahren mit 20 Suchrichtungen vermag diese Variante eine interessante Alternative darzustellen, weil sie nur für vier statt 20 n-dimensionale Vektoren Speicherplatz benötigt.

Es ist möglich, für die Norm des Residuums eine Schranke festzulegen, bei deren Unterschreiten neue Suchrichtungen ermittelt werden. Die Anzahl der Suchrichtungen ist damit variabel. Der Rechenaufwand wird auf das zum Erreichen einer gewünschten Residuumsnorm notwendige Minimum reduziert.

Abbildung B-6 zeigt, wie sich die Norm des Residuums bei einer variablen Anzahl von Suchrichtungen verhält. In diesem Beispiel wird das Suchen von linear unabhängigen Vektoren nach dem Unterschreiten der Schranke von 0.001 beendet.

Es ist zu erkennen, daß die Residuumsnorm bei einer variablen Anzahl von Suchrichtungen die gewünschte Grenze unterschreitet, jedoch nicht auf den Wert bei konstant 20 Suchrichtungen gesenkt werden kann. Die geringere Anzahl von Suchrichtungen ist mit einer erheblichen Reduzierung des Rechenaufwands verbunden. Ist für die Berechnung nur das Unterschreiten einer bestimmten Residuumschranke notwendig kann so Rechenzeit gespart werden.

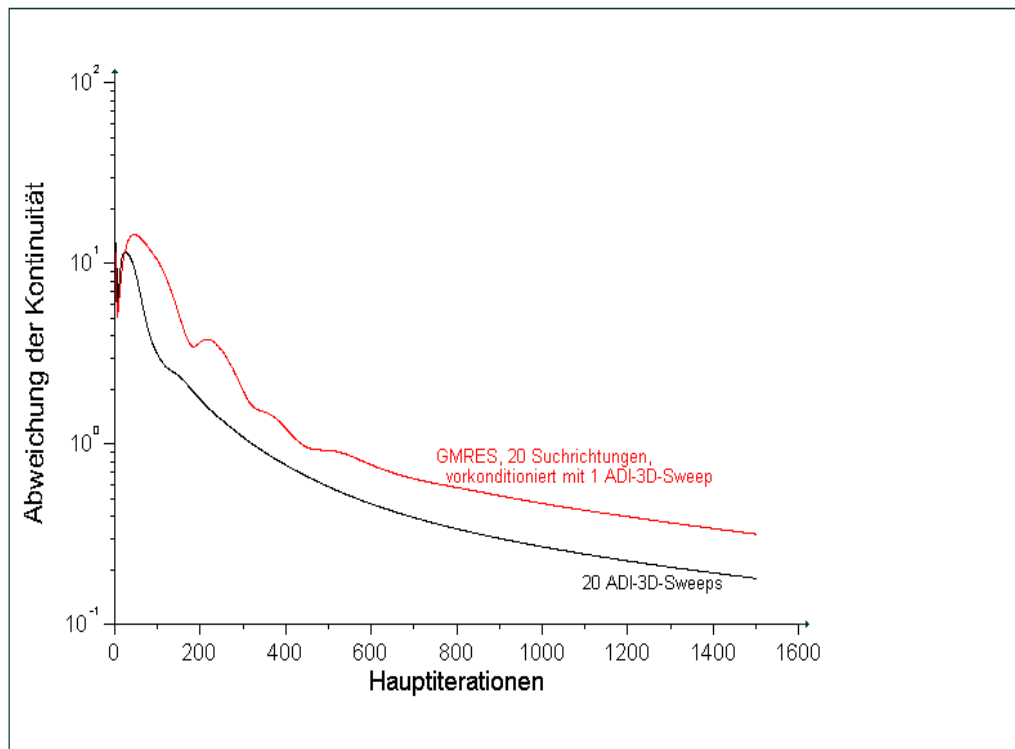


**Abbildung B-6: Residuum der Poisson-Gleichung an einem Beispielproblem; GMRES-Verfahren mit 20 Suchrichtungen sowie mit Abbruchschranke von 0.001 bzw.0.005 und ADI-Verfahren mit 20 3D-Sweeps**

Ein wichtiges Kriterium auf welches bei numerischen Simulationen geachtet werden muß, ist die Erfüllung der Kontinuitätsgleichung (2-1). Durch Rundungs- und Abbruchfehler, die bei der Diskretisierung der algebraischen Grundgleichungen unvermeidlich sind, treten während der Berechnung Abweichungen von der Kontinuitätsbedingung auf. Im Programm wird die Erfüllung der Kontinuitätsgleichung durch Bilanzieren der Massenströme in ein

Kontrollvolumen und Summation des Betrages der Abweichungen über das gesamte Strömungsfeld überprüft.

Ein Vergleich der beiden Gleichungslöser, siehe Abbildung B-6, zeigt, daß die Erfüllung Kontinuität beim GMRES-Verfahren um ca. 20% schlechter als die der ADI-Methode ist.



**Abbildung B-6: Erfüllung der Kontinuitätsbedingung an einem Beispielproblem; GMRES-Verfahren mit 20 Suchrichtungen und ADI-Verfahren mit 20 3D-Sweeps**

Die Ursache dafür liegt darin, daß die Potentialfunktion, für welche die Poisson-Gleichung gelöst wird, an den Ecken des von Partikeln ausgefüllten Raumes wegen des Fehlens von Nachbarpunkten eine Unstetigkeit aufweist, vgl. Abbildung B-7.

Die Randbedingungen für  $\Phi$  werden im allgemeinen über die Geschwindigkeit, also die Ableitung von  $\Phi$  nach der entsprechenden Ortskoordinate, aufgestellt.  $\Phi$  in der ersten Punkteschicht an der Oberfläche des zur Kugel gehörenden Raumes muss gleich  $\Phi$  der letzten Punkteschicht des vom Fluid ausgefüllten Raums gesetzt werden. Dafür sind die Elemente der Matrix  $A$  zu bestimmen. Auf diese Weise wird die Forderung erfüllt, daß kein Massenfluß in die Kugeln stattfindet. An den Ecken ist diese Vorschrift aber nicht eindeutig, weil die Potentialfunktion hier nicht differenzierbar ist.

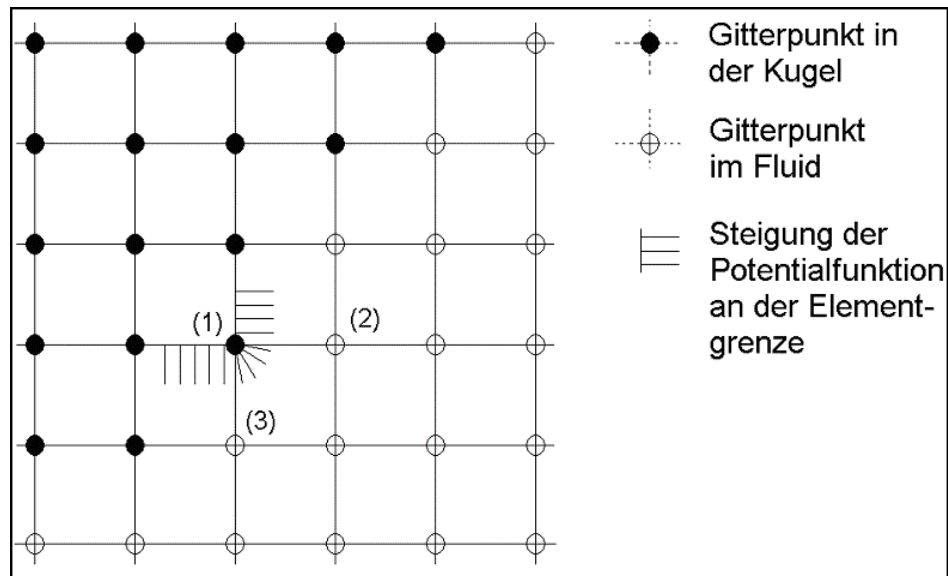


Abbildung B-7: Aufstellung der Randbedingungen an der Grenzfläche Partikelgitter-Reaktorgitter

Es muss im zweidimensionalen Fall gleichzeitig gelten, siehe Abbildung B-7:

$$\Phi(1) = \Phi(2) \quad \text{und}$$

$$\Phi(1) = \Phi(3) . \tag{B-3}$$

Da aber  $\Phi(2) = \Phi(3)$  nicht erfüllt sein muss, kann nur einer der beiden Bedingungen genügt werden. Ein errechneter Massenfluß in die Kugeln ist die Folge. Im dreidimensionalen Fall kann es dazu kommen, daß nur eine von drei Bedingungen erfüllt werden kann.

Im Falle der iterativen ADI-Methode kann das Problem dadurch gelöst werden, daß bei Durchläufen in unterschiedlichen Richtungen jeweils eine andere Randbedingung erfüllt wird. Nach jedem Durchlauf werden die Randbedingungen durch Korrektur der  $\Phi$ -Werte wiederhergestellt. Die periodische Wiederholung der Durchläufe bewirkt, daß mit der Lösung alle Randbedingungen abwechselnd berücksichtigt werden.

Beim GMRES-Verfahren bleibt die vor dem Start der Iterationen des Navier-Stokes Löser aufgestellte Matrix  $A$  unverändert. Damit wird nur eine Randbedingung berücksichtigt. Als Lösungsansatz ist ein gezielter Eingriff in die Struktur der Matrix  $A$  nach jeder Iteration denkbar.



### **B3 Beurteilung der Lösungsverfahren ADI- Mehrgitterschema- GMRES**

Das GMRES-Verfahren weist gegenüber der ADI-Methode hinsichtlich Rechenzeit und Konvergenz deutliche Vorteile auf. Die weniger gute Erfüllung der Kontinuitätsbedingung sowie ein höherer Speicherplatzbedarf sind die augenfälligsten Nachteile. Ob auf das eine oder andere Verfahren zurückgegriffen werden kann, kommt auf die spezifische Problemstellung an. Bei Berechnungen von Reaktoren mit einer großen Anzahl von Trägerpartikeln stellt der Speicherplatzbedarf den limitierenden Faktor dar.

Das GMRES-Verfahren bietet zahlreiche Möglichkeiten, den Betrag der Residuumsnorm zu minimieren. Verbesserungen können schnell dadurch erreicht werden, die Anzahl der Suchrichtungen bzw. die Schranke des Residuums optimal zu wählen.

Die Implementierung des geometrischen Mehrgitterschemas zeigt, daß das Verfahren bei einem Testfall mit einer Sinusschwingung verschiedener Frequenzen zu entscheidenden Verbesserungen führt. Bei der Simulation der Strömung durch einen Bioreaktor bringt die Methode keine entscheidenden Vorteile gegenüber dem ursprünglichen Lösungsverfahren. Eine mögliche Ursache dafür ist, daß bei der Interpolation des Lösungsvektors auf die verschiedenen groben Gitter Verluste durch Rundungsfehler und Diskretisierungsfehler auftreten können. Bei dem gegebenen Problem liegt der Nullvektor als Startwert bereits sehr nahe an der exakten Lösung und enthält kaum niedrigfrequente Fehlerkomponenten. Die Vorteile des Mehrgitter-Verfahrens können in diesen Fall nicht zum Tragen kommen und Interpolationsverluste überwiegen.

Die erarbeitete Abbruchbedingung der Iterationsschleife bei der Lösung der Poisson-Gleichung kann jedoch auch beim ADI Gleichungslöser verwendet werden und wird den Rechenaufwand deutlich reduzieren.

Eine weitere Verringerung der Rechenzeit ist möglich, wenn die Koeffizienten der zu lösenden Gleichungssysteme anders als bei der jetzigen Programmierung komplett zur gleichen Zeit im Speicher abgelegt sind. Dann können beispielsweise algebraische Mehrgitter-Verfahren [30] angewendet werden. Auch hier stellt sich die Frage, ob der größere Speicherplatz den Geschwindigkeitsvorteil rechtfertigt. Dies kann nur Anhand spezifischer Problemstellungen beantwortet werden.

## ANHANG C

### C1 Portierung des Programmcodes auf Supercomputer

Im Rahmen europäischer Austauschprogramme stehen für universitäre Anwendungen mehrere Supercomputer in internationalen Rechenzentren zur Verfügung. Die in dieser Arbeit verwendeten Rechenanlagen befinden sich im 'Interuniversity Supercomputing Center' CINECA in Italien, Bologna, *Erbacci* [62], *Cray Research* [63], und im 'European Parallel Computing Center' in Edinburgh, Schottland.

Es handelt sich um die Rechner T3D und T3E der Firma Silicon Graphics (Cray). Einer der derzeit modernsten Parallelrechner ist Cray T3E. Er setzt sich aus bis zu 256 ALPHA Prozessoren mit 300 MHz Taktfrequenz zusammen. Je Prozessor stehen bis zu 512 MB lokaler Arbeitsspeicher zur Verfügung, d. h. der Speicher wird wie beim Einzelrechner nur vom jeweiligen Prozessor genutzt und nicht als globaler Speicher der gesamten Maschine. Die Prozessoren kommunizieren über ein schnelles Verbindungsnetzwerk mit der Möglichkeit, bis zu 800 MB Daten pro Sekunde zu transferieren.

Im Gegensatz zu einem Workstationcluster mit verschiedenen Rechnern besitzen bei parallelen Rechenanlagen alle Prozessoren gleich großen Arbeitsspeicher und Rechengeschwindigkeit. Aus Gründen der optimalen Auslastung ist ein Programmkonzept wünschenswert, in dem jeder Teilprozess exakt die gleiche Arbeit ausführt. Somit können Wartezeiten zwischen den einzelnen Prozessen minimiert und deren Abstimmung aufeinander vereinfacht werden. Im Idealfall sind alle Prozesse gleichberechtigt und bei optimiertem Datentransfer wird eine Auslastung von annähernd 100% erreicht.

Beim ursprünglichen Master-Slave Konzept für ein Workstationcluster ist der hauptsächliche Speicheraufwand vom Master-Prozess zu tragen. Die Slave-Prozesse beanspruchen einen vergleichsweise geringen Speicherraum. Im Workstationcluster kann diese Ungleichmäßigkeit durch den flexiblen Einsatz von Rechnern ausgeglichen werden. Für den optimalen Einsatz auf Parallelrechnern muss gleichmäßige Aufgabenverteilung erreicht werden. Jeder Sklave muss ein Teilstück der Arbeit des Masters übernehmen, bis dessen Aufgaben vollständig von

den neu entstandenen, einheitlichen Prozessen abgearbeitet werden. Dieses Vorgehen wird als SPMD- Modell (**S**ingle-**P**rogram/**M**ultiple-**D**ata) bezeichnet. Im allgemeinen wird dabei das betreffende Gebiet in viele kleinere Teilaufgaben mit unterschiedlichen Daten, aber identischen Programmen und auf einem Rechner mit verteiltem Speicher gelöst.

Weiterhin sind bei der Portierung auf reine Parallelrechenanlagen wie der T3E folgende Aspekte zu beachten:

- Das Dateisystem ist so aufgebaut, daß ein Zugriff auf eine Datei von verschiedenen Prozessen im Gegensatz zu NFS (**N**etwork-**F**ile-**S**ystem) nicht getrennt erfolgen kann. Öffnet ein Programm z.B. eine Datei und beginnt mit dem Einlesen von Werten, dann ist diese Datei für alle Prozesse geöffnet. Falls ein anderer Prozeß auf die gleiche Datei zugreifen will, kann das Einlesen nicht mehr korrekt erfolgen, weil je nach zeitlichem Abstand der Zugriffe schon ein gewisser Teil der Datei abgearbeitet wurde. Folglich müssen entweder alle Dateien verschiedene Namen tragen, oder nur ein Prozeß (Master) übernimmt das Einlesen und versendet die betreffenden Werte an die anderen Prozesse (Slaves). Im hier weiterentwickelten Master-Slave Konzept liegt eine Verknüpfung aus beiden Möglichkeiten vor.
- Um Rechenzeit und Speicher zu sparen, werden die Variablen im ursprünglichen Master-Slave Konzept mit einfacher Genauigkeit (single precision) dimensioniert und versendet. Auf dem Parallelrechner sind alle Variablen prinzipiell mit doppelter Genauigkeit (double precision) festgelegt. Deshalb ist es nötig, die Genauigkeit der versendeten und empfangenen Daten umzustellen. Die Systemkonfiguration der T3E ist zum momentanen Zeitpunkt auf doppelte Genauigkeit festgelegt und erlaubt keine Prozesse mit Variablen einfacher Genauigkeit.

Ein Visualisierungsprogramm auf der T3E ermöglicht eine Beurteilung der Auslastung und Arbeitsverteilung der Prozesse und Programme. Es bietet die Möglichkeit, wichtige Prozeßkenndaten auf einer graphischen Oberfläche darzustellen.

Abbildung C-1 zeigt in einer dreidimensionalen Ansicht alle Prozessoren und deren jeweils aktuelle Arbeits- bzw. Speicherauslastung. Es ist auch möglich, die CPU-Systemzeit sowie die momentane Datentransferleistung je Prozessor graphisch darzustellen.

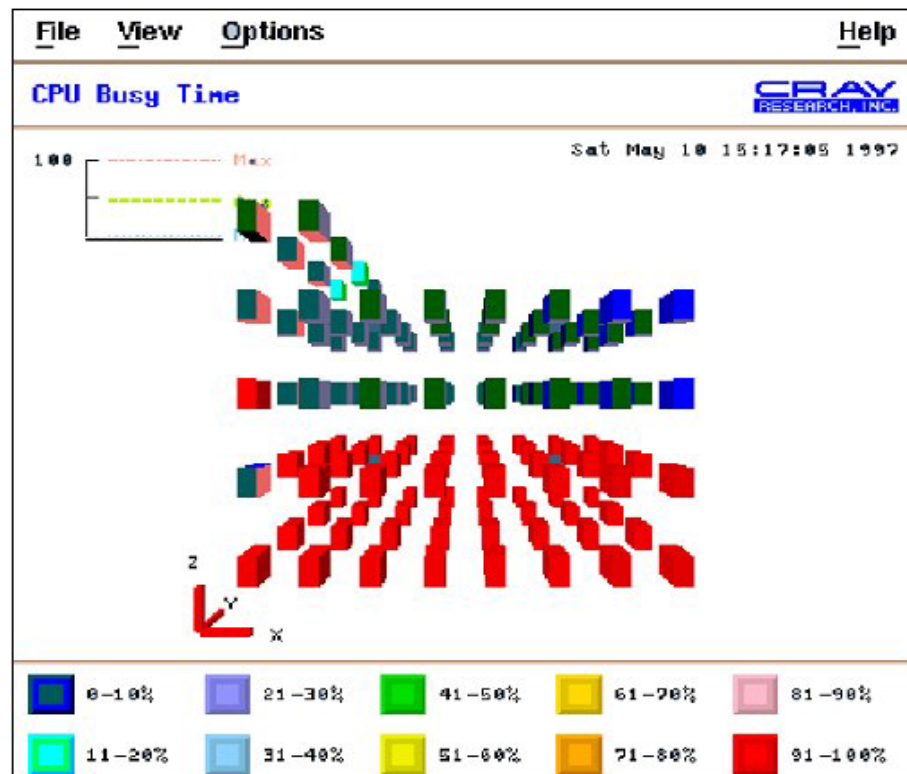


Abbildung C-1: Prozeßvisualisierung mit XMPVIEW

Testläufe mit dem herkömmlichen Konzept (neun Partikeln auf insgesamt 4 Prozessoren) erreichen eine Auslastung von ca. 75%. Die Rechenzeiten sind im Vergleich zum Workstationcluster auf 50% verkürzt, was auf die hohe Rechengeschwindigkeit aller beteiligten Prozessoren zurückzuführen ist. Ein weiterer Grund ist die schnelle Verbindung und Datenübertragung zwischen den einzelnen Prozessoren. Workstationcluster können im Vergleich zu Parallelrechnern keine zur Rechenleistung ausgewogene Kommunikationsleistung bereitstellen.

Ihr Einsatz eignet sich für vorwiegend kommunikationsarme Algorithmen, falls Systemdurchsatz und Datentransferrate nicht durch schnelle Verbindungen (fast links) erhöht werden können.

Wie bereits erwähnt, ist das bestehende Master-Slave Konzept für eine optimale Auslastung der Kapazitäten eines Parallelrechners ungeeignet. Um effektive Simulationen auf Supercomputern durchführen zu können, sind einige Modifikationen nötig.

## **C2 Modifikation des Master-Slave Konzepts**

Das Hauptproblem stellt der hohe Arbeitsspeicherbedarf des Master-Prozess es dar. Um die Interpolation zwischen den Gittern durchführen zu können, muß dieser Prozess Speicher für die Variablen aller Slave-Prozesse reservieren. Dies kann durch den Aufbau einer Stufenstruktur umgangen werden.

Ein Beispiel ist die Simulation eines Reaktors mit 500 Trägerpartikeln. Jeder Slave-Prozess hat die Aufgabe, das Strömungsfeld um 100 Partikel zu simulieren. Das gesamte System besteht somit aus 6 Einzelprozessen, einen Master-Prozess und 5 Slave-Prozessen. Beim ursprünglichen Konzept erhält der Master-Prozess nach jeder Iteration die gesamte Information über das Strömungsfeld von allen Slave-Prozessen zugleich.

Die Stufenstruktur ermöglicht eine gestaffelte Weitergabe der Information. Es sendet jeweils nur ein Slave-Prozess Daten zum Master, dieser führt die Interpolation durch und schickt die interpolierten Werte zurück. Erst dann bekommt der nächste Slave-Prozess Sendeerlaubnis. Mit dieser Vorgehensweise benötigt der Master-Prozess im Beispiel nur Speicher für 100 Partikel. Abbildung C-2 verdeutlicht den prinzipiellen Aufbau der Stufenstruktur.

Testrechnungen auf dem institutseigenen Workstationcluster weisen die Funktionsfähigkeit des Stufenkonzepts nach. Im Vergleich zum bisherigen Konzept ist jedoch eine Verlangsamung der Rechengeschwindigkeit zu beobachten. Dies läßt sich durch den erhöhten Kommunikationsaufwand zwischen den Prozessen und den verlängerten Wartezeiten der einzelnen Slave-Prozesse bis zum Erhalt der interpolierten Daten erklären.

Durch schnelle Datenleitungen zwischen den Prozessoren ist es möglich, diesen Nachteil weitgehend zu eliminieren.

Die aufgeführten Modifikationen stellen die Grundlage für eine effektivere Auslastung von Großrechenanlagen dar. Um einen erfolgreichen Einsatz des neuen Konzepts auf Parallelrechnern zu bestätigen, müssen noch umfangreiche Testsimulationen durchgeführt werden.

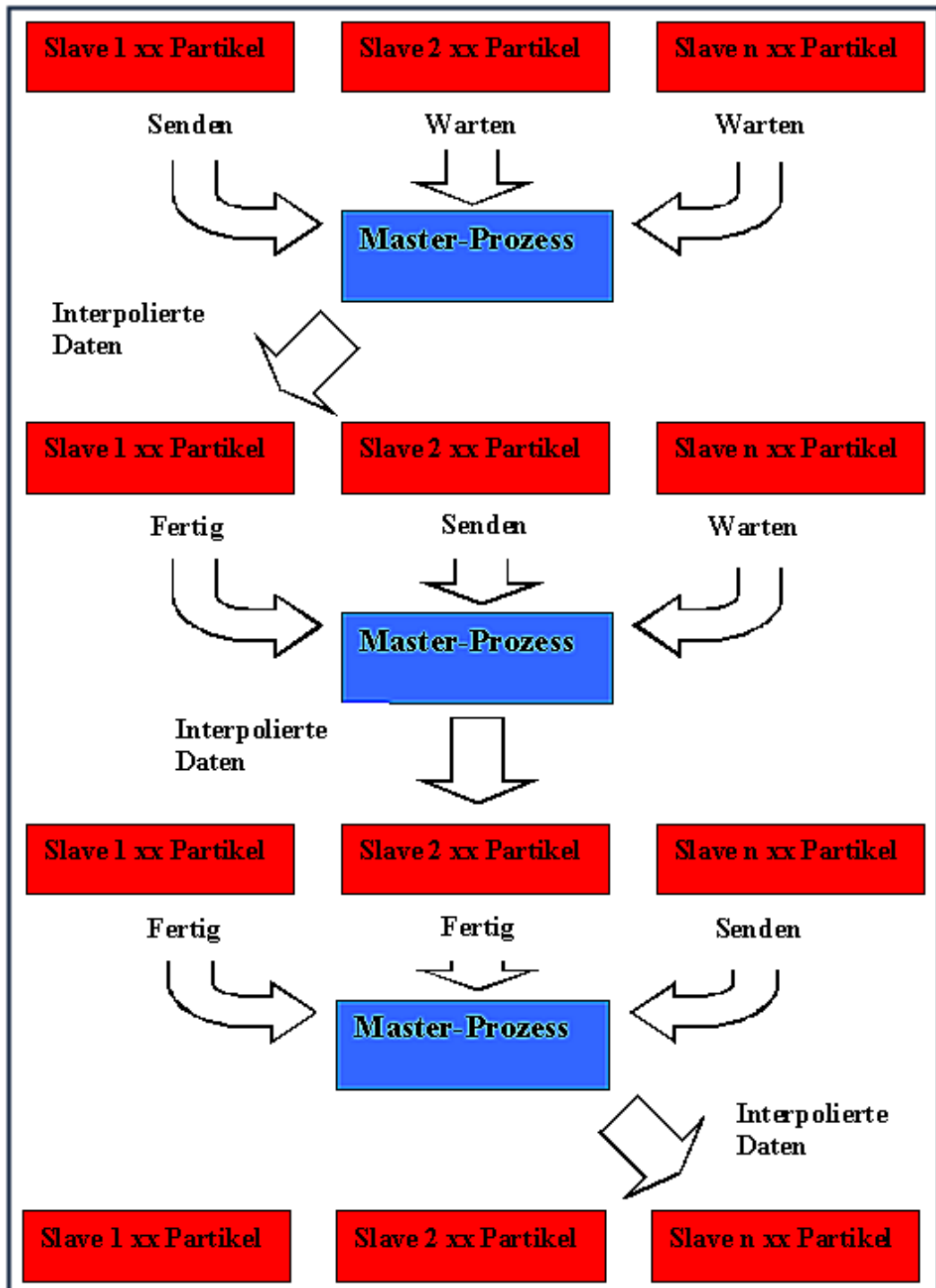


Abbildung C-2: Ablauf der Interpolation beim modifizierten Master-Slave Konzept

## 5 LITERATURVERZEICHNIS

---

- 1 Vortmeyer, D.; Schuster, H.: Evaluation of steady flow profiles in rectangular and circular packed beds by variational methods. *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 38 (1983), S. 1691/1699.
- 2 Eigenberger, G.; Bey, O.: Bestimmung von Strömungsverteilung und Wärmetransport-parametern in schüttungsgefüllten Röhren. *Chemie Ingenieur Technik*, 68 (1996), 10/96, S. 1294/1299.
- 3 Ergun, S.: Fluid flow through packed columns, *Chem. Eng. Prog.*, 48(2) (1952), S. 89/94.
- 4 Molerus, O.: Druckverlustgleichung für die Durchströmung von Kugelschüttungen im laminaren und Übergangsbereich. *Chem. Ing. Tech.* (1977), 49, 657.
- 5 Durst, F.; Haas, R.; Interthal, W.: The Nature of Flows through Porous Media. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*. 22 (1987), S.169/189.
- 6 A. Dybbs, A.; Edwards, R.V.: A new look at Porous Media Fluid Mechanics- Darcy to Turbulent. *NATO ASI Ser.*, 82(1) (1995), S.199.
- 7 Logtenberg, S.; Dixon, A.: Computational fluid dynamics of fixed bed heat transfer. *Chemical Engineering and Processing No. 37* (1998), S.7/21.
- 8 Dixon, A.: Determination of the fixed bed wall heat transfer coefficient using Computational fluid dynamics. *Numerical Heat Transfer No. 27* (1996), Part A, S.777/794.
- 9 Manz, B.; Warren, P.B.: Flow and dispersion in Porous Media: Lattice-Boltzmann and NMR Studies. *AiChE Journal*. September Vol. 45 (1999), No. 9, S.437/444, S.1845/1854.
- 10 Rottschäfer, K.; Vortmeyer, D.: Geschwindigkeitsverteilungen in durchströmten Füllkörperschüttungen, Dissertation, TU-München, 1996.
- 11 Götz, J.: Visualisierung der Strömungsverhältnisse in schüttgefüllten Festbettreaktoren mit Hilfe der Kernspintomographie zur Bestimmung der lokalen Porositäten, der Geschwindigkeiten sowie der axialen und radialen Dispersionskonstanten. University of Karlsruhe. Private communication, 1997.
- 12 Chang, P.; Watson, A.: NMR Imaging of flow velocity in porous media. *AiChE Journal*. March Vol. 45 (1999), No. 3, S.437/444.
- 13 Schindler, U.: Dioden-Faser-Laser-Doppler-Anemometrie zur Untersuchung der Strömung in Biofilmreaktoren, Dissertation, TU-München, 1998.
- 14 Picioreanu, C.; van Loosdrecht, M.; Heijnen, J.: A Theoretical Study on the Effect of Surface Roughness on Mass Transport and Transformation in Biofilms. *Biotechnol. Bioeng.* Vol 68 (2000), No. 4, S.355/369
- 15 Nirschl, H.: Mikrofluidmechanik - Numerische und experimentelle Untersuchungen zur Umströmung kleiner Körper, Dissertation, TU-München, 1994.
- 16 Nirschl, H.; Dwyer, H.A.; Denk, V.: Three Dimensional Calculations of the Simple Shear Flow around a Single Particle between two Moving Walls. *J. of Fluid Mech.* 283 (1995), S.273/285.
- 17 Dougherty, C.F.: Development of a Chimera Grid Scheme with Applications to Unsteady Problems, Stanford, University, Ph. D. Thesis, 1985.
- 18 Keeling, S.L.; Tramel, R.W.; Benek, J.A.: A Theoretical Framework for Chimera Domain Decomposition, Sixth International Symposium on CFD, Lake Tahoe, NV, Sept. 4-8, 1995.

- 19 Nirschl, H.; Dwyer, H.A.; Denk, V.: A Three Dimensional Chimera Grid Scheme for the Calculation of Particle - Wall Interactions. Proc. of the 5th Int. Symp. of Computational Fluid Dynamics - Sendai, Vol. II (1993), S.357/362.
- 20 Debus, K.: Numerischen Untersuchung zur Kugelhaufendurchströmung– Ansätze zur Berechnung strömungsbedingter Deformation verformbarer Körper, Dissertation, TU-München, 1997.
- 21 Debus, K.; Nirschl, H.; Delgado, A.; Denk, V.: Numerische Simulation des lokalen Impulsaustausches in Kugelschüttungen, Chemie Ingenieur Technik, 70 (1998), Nr. 4, S415 /418.
- 22 Ferziger J.H., Peric M.: Computational Methods for Fluid Dynamics, Berlin, Springer Verlag, 1996
- 23 Bailey, J.; Ollis, D.: Biochemical Engineering Fundamentals. USA: McGraw-Hill Chemical Engineering Series 1986.
- 24 Stichlmair, J.: Kennzahlen und Ähnlichkeitsgesetze im Ingenieurwesen. 1. Auflage. Essen: Altos-Verlag Doris Stichlmair 1990.
- 25 Geist et al, G.A.: PVM 3 user's guide and reference manual, Mathematical Science Section, Oak Ridge National Laboratory, 1994.
- 26 Chorin, A.J.: A Numerical Method for Solving Incompressible Viscous Flow Problems, Journal of Computational Physics 2 (1967), S.12/26.
- 27 Chorin, A.J.; Marsden, J.E.: A Mathematical Introduction to Fluid Mechanics. Second Printing. New York Berlin Heidelberg Tokyo: Springer-Verlag 1984.
- 28 Saad, Y.; Schulz, M.H.: GMRES: A Generalized Minimal Residual Algorithm for Solving Nonsymmetric Linear Systems, SIAM J. Sci. Stat. Comput., Vol. 7 (July 1986), No. 3, S. 856/869.
- 29 Briggs, W.L.: A Multigrid Tutorial, Society for Industrial and Applied Mathematics, Philadelphia, 1987.
- 30 Brandt, A.: Multigrid Techniques: Guide with Applications to Fluid Dynamics. GMD-Studien Nr. 85, Gesellschaft für Mathematik und Datenverarbeitung mbH Bonn: 1984.
- 31 Burkhart, S.: Parallele Rechnersysteme, Programmierung und Anwendung. 1.Auflage. München: Verlag Technik GmbH 1993.
- 32 George, S.; Chellapandian, M.: Flow rate dependent kinetics of urease immobilized onto diverse matrices, Bioprocess Engineering, 15 (1996), S.311/315.
- 33 Chan, S.K.; Ng, K.M.: Geometrical characteristics of a computer-generated three-dimensional packed column of equal and unequal sized spheres with special reference to wall effects, Chem. Eng. Comm., Vol. 48 (1986), S.215/236.
- 34 Mueller, G.: Radial Void Fraction Correlation for Annular Packed Beds, AIChE Journal. Vol. 45 (November 1999), No. 11, S.2458-2460.
- 35 Mueller, G.: Angular void fraction distributions in randomly packed fixed beds of uniformly sized spheres in cylindrical containers. Powder Technology. No. 77 (1993), S.313/319.
- 36 Mueller, G.: Radial void fraction distributions in randomly packed fixed beds of uniformly sized spheres in cylindrical containers. Powder Technology. No. 72 (1992), S.269/275.
- 37 Nadakumar, K.: Predicting Geometrical Properties of Random Packed Beds from Computer Simulation. AIChE Journal. Vol. 45 (1999), No. 11, November, S.2286/2297.
- 38 Arnz, P.; Esterl, S.; Nerger, C.; Delgado, A. and Wilderer, P.: Simultaneous loading and displacement as a means to enhance efficacy of Sequencing Biofilm Batch reactors, Water Research., Vol. 34 (2000), No. 5, S.1763-1766.
- 39 Esterl, S.; Delgado, A.: Numerical Simulation of the flow field in different zones of a biological reactor, Water Science and Technology, Vol. 41 (2000), No. 4-5, S.207-210.



- 40 Esterl, S. and Delgado, A.: Numerical Simulation of the flow field in different zones of a biological reactor, Posterbeitrag zur internationalen IAWQ Conference, New York, October 1999.
- 41 Nicolella, C.; van Loosdrecht, M. C.: Terminal Settling Velocity and Bed-Expansion Characteristics of Biofilm-Coated Particles, *Biotechnol. Bioeng.*, 62 (1999), S.62/70.
- 42 Visser, J.: Particle Adhesion And Removal, *Particulate Science and Technology*, 13 (1995), S.169/196.
- 43 Brück, D.: Einfluß mechanischer Belastungen auf dispergierte, empfindliche Inhaltsstoffe von Flüssigkeiten in Leitungssystemen und Behälterströmungen, Dissertation, TU-München, 1998.
- 44 Horwatt, W. S.: Simulation of the breakup of dense Agglomerates in simple Shear flows. *Rubber Chem. Technol.* Nr. 65 (1992), S.805/821.
- 45 Mersmann, A.; Schneider, G.; Voit, H.: Selection and Design of Aerobic Bioreactors. *Chem. Eng. Technol.*, 13 (1990), 357-370.
- 46 Duddridge, J.E.; Kent, C.A.: Effect of Surface Shear Stress on the Attachment of *Pseudomonas fluorescens* to Stainless Steel under Defined Flow Conditions. *Biotechnol. Bioeng.* 24 (1982), 153-164.
- 47 Hinrichs J.: Die mechanische Stabilität von Fettkugeln mit kristallinem Fettanteil im Strömungsfeld, Dissertation, TU-München, 1993.
- 48 Flemming, H. C.: Biofilme, Biofouling und mikrobielle Schädigung von Werkstoffen, Habilitationsschrift Forschungs- und Entwicklungsinstitut für Industrie- und Siedlungswasserwirtschaft sowie Abfallwirtschaft E. V. Stuttgart, Kommissionsverlag R. Oldenburg, München, Stuttgarter Berichte zur Siedlungswasserwirtschaft, Band 129, 1994.
- 49 Arnz, P.: Private Mitteilung, 1999.
- 50 Schramm, A.; De Beer, D.: Microscale Distribution of Populations and Activities of *Nitospira* and *Nitrospira* spp. Along a Macroscale Gradient in a Nitrifying Bioreactor: Quantification by in Situ Hybridisation and the use of Microsensors, *Applied and Environmental Microbiology*, Aug 1999, S.3690/3696.
- 51 Shiraishi, F.; Miyakawa, H.: A Computational Method for Determination of the Mass – Transfer Coefficient Packed - Bed Immobilized Enzyme Reactors. *J. Chem. Tech. Biotechnol.*, 66(1996), S.405/413.
- 52 Shiraishi, F.; Hasegawa, T.: Characteristics of Apparent Kinetic Parameters in a Packed – Bed Immobilized Enzyme Reactors, *Chem. Ing. Sci.*, 11 (1996), S.2847/2852
- 53 George, S.; Chellapandian, M.: Flow rate dependent kinetics of urase immobilized onto diverse matrices, *Bioprocess Eng.*, 15 (1996), S.311/315.
- 54 George, S.; Chellapandian, M.: A new process for the treatment of fertilizer effluent using immobilized urease, *Bioprocess Eng.*, 16 (1997), S.83/85.
- 55 Daka, J.N.; Laidler, J.K.: Immobilisation and Kinetics of Lactate Dehydrogenase at a Rotating Nylon Disk, *Biotechnol. Bioeng.*, 32 (1988), S.213/219.
- 56 Daka, N.; Laidler, K.J.: Flow kinetics of lactate dehydrogenase chemically attached to nylon tubing, *Canadian Journal of Biochemistry*, 56 (1978), S.774/779.
- 57 Pörtner, R.; Koop, M.: A model for oxygen supply in fixed bed reactors with immobilized hybridoma cells, *Bioprocess Eng.*, 17 (1997), S.269/275.
- 58 Stoodley, P.; De Beer, D.; Lewandowski, Z.: Liquid flow in Biofilm Systems, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 60 (Aug. 1994), No. 8, S.2711/2716.
- 59 Stoodley, P.; De Beer, D.; Lewandowski, Z.: Liquid flow and mass transport in heterogeneous biofilms, *Water Research*, Vol. 30 (1996), No. 11, S.2761/2765.
- 60 Horn, H.; Hempel, D.C.: Mass transfer coefficients for an autotrophic and a heterotrophic biofilm system, *Water Sci. Tech.*, Vol. 32 (1996), No. 8, S.199/204.

- 
- 61 Benthack, C.; Srinivasan, B.; Bonvin, D.: An Optimal Operating Strategy for Fixed-Bed Bioreactors Used in Wastewater Treatment, *Biotechnol. Bioeng.*, Vol. 72 (2001), No.1, S.34/40.
- 62 Erbacci, G.: *Parallel Computing on Cray Machines*, Interuniversity Supercomputing Center CINECA, Bologna, Italy, 1997
- 63 Cray Research Inc.: *T3E: User's Manual*, Interuniversity Supercomputing Center CINECA, Bologna, Italy, 1997