


Quantifizierung der Trenneffizienz einer strukturierten Packung mittels numerischer Simulation

Simon Hill^{1,*}, Thomas Acher², Rainer Hoffmann², Johann Ferstl², Daniel Deising³, Holger Marschall³, Sebastian Rehfeldt¹ und Harald Klein¹

DOI: 10.1002/cite.201900041

 This is an open access article under the terms of the Creative Commons Attribution-NonCommercial-NoDerivs License, which permits use and distribution in any medium, provided the original work is properly cited, the use is non-commercial and no modifications or adaptations are made.

Durch Kopplung einer transienten Zweiphasensimulation in einer strukturierten Packung mit einem Modell zur Simulation des Stoffübergangs wird die numerische Simulation des Rektifikations- und Absorptions-/Desorptionsprozesses ermöglicht. Die Zweiphasenströmung wird hierbei mithilfe der *Volume-of-Fluid* (VoF)-Methode abgebildet. Zur Simulation des lokal aufgelösten Stoffübergangs wird das *Generalised Continuous Species Transfer* (GCST)-Modell verwendet. Die Simulationsdaten werden hinsichtlich der Trenneffizienz der untersuchten Packung ausgewertet, indem der *HETP*-Wert berechnet wird.

Schlagwörter: Absorption/Desorption, Computational fluid dynamics, Rektifikation, Stofftransport, Strukturierte Packung

Eingegangen: 13. Februar 2019; *revidiert:* 03. Juli 2019; *akzeptiert:* 02. Oktober 2019

Quantification of the Separation Efficiency of a Structured Packing by Numerical Simulation

The numerical simulation of the distillation and absorption/desorption process is made possible by coupling a transient two-phase simulation in a structured packing with a model for the simulation of the species transfer. The two-phase flow is modeled by the volume of fluid (VoF) method. The simulation of the locally resolved species transfer is conducted using the generalised continuous species transfer (GCST) model. The simulation data are evaluated for the separation efficiency of the tested packing by calculating the *HETP* value.

Keywords: Absorption/Desorption, Computational fluid dynamics, Distillation, Mass transfer, Structured packing

1 Einleitung

Rektifikationskolonnen werden in vielen Bereichen der Prozessindustrie zur Auftrennung von Gemischen eingesetzt. Das zugrunde liegende thermische Trennverfahren ist die mehrfache Destillation, wobei die Separation des Gemisches aufgrund leichter und schwerer siedender Komponenten erfolgt. Abb. 1a zeigt beispielhaft einen Rektifikationsprozess, bestehend aus einem Feedstrom \dot{m}_F mit dem Molanteil x_{1F} , dem darüber liegenden Verstärkungsteil mit Kondensator und dem darunter liegenden Abtriebsteil mit Verdampfer. Am Kopf der Kolonne wird der Produktstrom \dot{m}_D mit dem Molanteil x_{1D} abgegeben, am Sumpf der Kolonne der Produktstrom \dot{m}_B mit dem Molanteil x_{1B} . Indem am Kopf der Kolonne ein Teil des kondensierten Gasstroms in die Kolonne zurückgeführt wird und am Sumpf ein Teil des Flüssigkeitsstroms verdampft wird, bildet sich über die gesamte Höhe der Kolonne ein Gas/Flüssig-Gegenstrom aus. [1]

Neben der Rektifikation stellen die Absorption und die Desorption weitere thermische Trennverfahren dar. Hierbei

sollen Bestandteile eines Gases in einer Flüssigkeit gelöst (Absorption) oder aber Bestandteile einer Flüssigkeit in einen Gasstrom überführt werden (Desorption). Eine mögliche Realisierung dieses Prozesses ist in Abb. 1b dargestellt. Am Sumpf der Kolonne wird der Trägergasstrom \dot{m}_T mit dem Molanteil des Absorptivs $y_{A,zu}$ zugeführt und am Kopf mit dem Molanteil $y_{A,ab}$ wieder abgezogen. Im Gegenstrom

¹Simon Hill, Dr. Sebastian Rehfeldt, Prof. Dr. Harald Klein
simon.hill@tum.de

Technische Universität München, Lehrstuhl für Anlagen- und Prozesstechnik, Boltzmannstraße 15, 85748 Garching, Deutschland.

²Dr. Thomas Acher, Dr. Rainer Hoffmann, Dr. Johann Ferstl
Linde AG Engineering Division, Dr.-Carl-von-Linde-Straße 6–14,
82049 Pullach, Deutschland.

³Dr. Daniel Deising, Dr. Holger Marschall
Technische Universität Darmstadt, Mathematische Modellierung
und Analysis, Alarich-Weiss-Straße 10, 64287 Darmstadt, Deutschland.

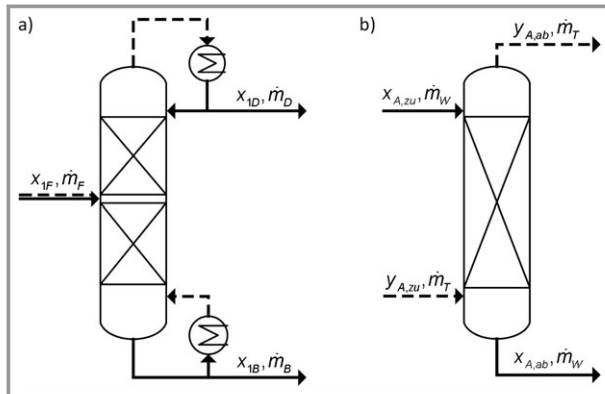


Abbildung 1. a) Rektifikationsprozess mit Verstärkungs- und Abtriebsteil und b) Absorptions-/Desorptionsprozess.

zum Trägergasstrom wird der Waschmittelstrom \dot{m}_W mit dem Molanteil des Absorptivs $x_{A,zu}$ am Kopf zugeführt und am Sumpf mit dem Molanteil $x_{A,ab}$ wieder abgezogen. [1]

Um die Effizienz der beschriebenen Prozesse zu verbessern, muss der Stoffaustausch zwischen beiden Phasen intensiviert werden, was vor allem durch eine Vergrößerung der Phasengrenzfläche mittels Einbauten in der Kolonne erreicht werden kann. Hierbei haben sich neben Bodenkonstruktionen und geschütteten Füllkörpern vor allem strukturierte Packungen bewährt, die sich neben der guten Trenneffizienz auch durch einen geringen Druckverlust auszeichnen. [1]

Mit zunehmender Verfügbarkeit von Rechenleistung haben sich die Bemühungen intensiviert nicht nur den Gesamtprozess mittels Prozesssimulation abzubilden, sondern auch die Vorgänge innerhalb einer strukturierten Packung ort- und zeitdiskret zu erfassen. Ziel dabei ist es, neben der Fluidodynamik auch den Stoffübergang zu simulieren. Die folgenden zwei Hauptgründe dienen hierbei als Motivation.

Vor dem Hintergrund der weiteren Optimierung der Packungsgeometrie ist der Aufbau eines grundlegenden Verständnisses der Zweiphasenströmung und der Stoffübergangsphänomene innerhalb einer strukturierten Packung unerlässlich. Eine Simulation kann dabei einen wichtigen Beitrag leisten, da sie durch die räumliche und zeitliche Auflösung der Zweiphasensimulation und des Stoffübergangs einen Blick in das Innenleben einer Packung ermöglicht. Auf Basis der dabei gewonnenen Erkenntnisse können Modifikationen der Packungsgeometrie vorgenommen werden, die zu einer Verbesserung der Trenneffizienz führen sollen. In einem nächsten Schritt muss die modifizierte Packungsgeometrie hinsichtlich ihrer Trenneffizienz beurteilt werden, was ebenfalls von einer Simulation geleistet werden kann. Hierzu muss der *HETP*-Wert (engl. *Height Equivalent to one Theoretical Plate*), ein Parameter, der die Trenneffizienz einer Packung beschreibt, auf Basis der Simulationsdaten berechnet werden.

Der zweite Grund bezieht sich auf die Auslegungspraxis von Kolonnen, bei welcher der *HETP*-Wert einer Packung

benötigt wird. Dieser Wert wird experimentell bestimmt oder mithilfe semi-empirischer Korrelationen abgeschätzt. Wie bereits erwähnt, kann der *HETP*-Wert direkt aus den Simulationsdaten gewonnen werden, wobei zu beachten ist, dass je nach Simulationssetup wichtige Effekte wie z. B. Maldistribution nicht abgebildet werden. Darüber hinaus können Parameter, die als Eingabe für die semi-empirischen Korrelationen benötigt werden, wie z. B. die spezifische effektive Phasengrenzfläche oder Stoffdurchgangskoeffizienten, aus den Simulationsdaten extrahiert werden.

In der Literatur befassen sich viele Publikationen mit der Simulation der Fluidodynamik in strukturierten Packungen, während der Stoffübergang nur von wenigen berücksichtigt wird. Die nachstehende Übersicht beschränkt sich auf Arbeiten, die neben der Fluidodynamik auch den Stoffübergang miteinbeziehen.

Haghshenas Fard et al. [2] bilden mithilfe der Euler-Euler-Methode die Zweiphasenströmung ab und zusätzlich zur Kontinuitäts- und Impulsgleichung wird eine Stoffübergangsgleichung gelöst. Die Stoffübergangsgleichung enthält dabei einen Quellterm, dessen Wert unter Verwendung des Zweifilmmodells berechnet wird. Neben den Stoffübergangskoeffizienten der Gas- und Flüssigphase wird auch die spezifische effektive Phasengrenzfläche als Eingabeparameter für das Modell benötigt. Diese Parameter werden anhand von semi-empirischen Korrelationen aus der Literatur bestimmt. Mithilfe der Fenske-Gleichung wird aus den Simulationsergebnissen der *HETP*-Wert berechnet und mit experimentellen Daten verglichen. Die Abweichung ist hierbei kleiner als 10 %. Der Nachteil des Ansatzes ist, dass die Berechnung des Stoffübergangs auf den Stoffübergangskoeffizienten und der spezifischen effektiven Phasengrenzfläche basiert, die anhand von semi-empirischen Modellen abgeschätzt werden. Durch die Vorgabe dieser Größen ist jedoch der zu ermittelnde Parameter, nämlich der *HETP*-Wert, bereits weitgehend vorgegeben.

Ein ähnlicher Ansatz wird von Chen et al. [3] verwendet. Im Gegensatz zu Haghshenas Fard et al. [2] wird für die Simulation der Zweiphasenströmung die *Volume-of-Fluid* (VoF)-Methode angewandt. Für jede Komponente in jeder Phase wird eine Stoffübergangsgleichung gelöst, die neben einem advektiven und diffusiven Term auch einen Quellterm besitzt. Letzterer wird dazu verwendet, den Stoffübergang über die Phasengrenzfläche zu modellieren. Zur Berechnung seines Wertes wird das Zweifilmmodell herangezogen. Die Stoffübergangskoeffizienten der Gas- und Flüssigphase sowie die spezifische effektive Phasengrenzfläche werden wiederum mittels semi-empirischer Korrelationen bestimmt. Xu et al. [4] veröffentlichten ein sehr ähnliches Modell, das sich jedoch in der Bestimmung der erforderlichen Parameter von Chen et al. [3] unterscheidet.

Xu et al. [4] verwenden für die Abschätzung der Stoffübergangskoeffizienten das Penetrationsmodell nach Higbie [5] und die spezifische effektive Phasengrenzfläche wird über den Gradienten des Volumenanteils berechnet. Durch die Verwendung des Volumenanteils, einem Parameter, der

in VoF-Simulationen direkt verfügbar ist, konnte die Phasengrenzfläche somit ohne Verwendung semi-empirischer Korrelationen bestimmt werden.

Im Kontext der Untersuchung von CO₂-Abscheidungsprozessen mit strukturierten Packungen wurde von Haroun et al. [6, 7] ein ebenfalls auf der VoF-Methodik basierendes Modell eingeführt. Unter der Annahme von thermodynamischem Gleichgewicht an der Phasengrenzfläche, ausgedrückt durch das Henrysche Gesetz, wird eine Einfeldformulierung hergeleitet, die den Transport der molaren Konzentration einer Komponente beschreibt. Für Zweiphasengebiete mit einer planaren Phasengrenzfläche können mit diesem Modell sehr gute Ergebnisse erzielt werden. Bei gekrümmten Phasengrenzflächen treten jedoch aufgrund numerischer Ungenauigkeiten artifizielle Flüsse auf, die erst durch das Ausführen zusätzlicher Schritte reduziert werden können. In allen gezeigten Testfällen werden 2D-Berechnungsgebiete verwendet.

Um den Stofftransport von Filmströmungen auf geeigneten Oberflächen zu simulieren, wird von Sebastia-Saez et al. [8] ein Ansatz gewählt, der dem von Xu et al. [4] sehr ähnlich ist. Im Zuge der Auswertung der Simulationsergebnisse werden Sherwood-Zahlen berechnet und mit experimentellen und theoretischen Modellen verglichen. In einer weiterführenden Arbeit [9] wird eine Simulation der Zweiphasenströmung in einer strukturierten Packung unter Berücksichtigung des Stoffübergangs durchgeführt. Um die Rechenzeit gering zu halten, wird der Quellterm der Stoffübergangsgleichung als konstant angenommen und dessen Wert wird basierend auf der Simulation der Filmströmung berechnet.

Ein Ansatz, bei dem nur der Gasstrom in einer strukturierten Packung simuliert, der Stoffübergang aber trotzdem miteinbezogen wird, wurde von Lautenschleger et al. [10] vorgestellt. Bei der Untersuchung eines reaktiven Absorptionsprozesses wird angenommen, dass die Reaktion des absorbierten Stoffes in der Flüssigphase instantan stattfindet und infolgedessen die Stoffkonzentration an der Phasengrenzfläche zu null gesetzt werden kann. Die Prozessdynamik wird demnach ausschließlich von Transportvorgängen in der Gasphase kontrolliert, womit die Abbildung der Flüssigphase nicht notwendig ist. Eine weitere Annahme, die dieser Ansatz impliziert, ist, dass die Oberfläche der Packung der Phasengrenzfläche entspricht. Der Ansatz von Lautenschleger et al. [10] wird von Olenberg et al. [11] verwendet, um die Konfiguration verdillter Bänder in strukturierten Packungen hinsichtlich Druckverlust und Stoffübergang zu optimieren.

Im vorliegenden Artikel wird ein Ansatz vorgestellt, der die gleichzeitige Simulation der Fluidodynamik und des Stoffübergangs in strukturierten Packungen beinhaltet und somit eine ganzheitliche Abbildung einer Rektifikation und Absorption/Desorption ermöglicht. Die Fluidodynamik des Gas/Flüssig-Gegenstroms wird dabei innerhalb einer repräsentativen Einheit in Kombination mit periodischen Randbedingungen abgebildet. Der Stoffübergang wird durch ein

Modell beschrieben, das weder die Stoffübergangskoeffizienten der Gas- und Flüssigphase noch die spezifische effektive Phasengrenzfläche als Eingabeparameter benötigt. Dieser Ansatz wird auf einen vereinfachten, idealisierten Rektifikationsprozess angewandt. Im Zuge der Auswertung wird für diesen Fall die Trenneffizienz der Packung ermittelt.

2 Aufbau der Simulation

Im nachstehenden Kapitel soll das Setup zur Simulation von Rektifikations- und Absorptions/Desorptionsprozessen vorgestellt werden. Hierbei wird separat auf die Simulation der Fluidodynamik und die Simulation des Stoffübergangs eingegangen.

2.1 Fluidynamik

Wie bereits bei der Beschreibung der in Abb. 1 dargestellten Prozesse angemerkt, liegt in beiden Fällen ein Gas/Flüssig-Gegenstrom vor, wobei die jeweiligen Massenströme festgelegt sind. Da die Zweiphasenströmung inklusive deren Phasengrenzfläche ort- und zeitdiskret aufgelöst werden soll, wird hierfür die VoF-Methode angewandt. Darüber hinaus sollen in der Simulation alle turbulenten Strukturen aufgelöst werden, weshalb eine Direkte Numerische Simulation (DNS) durchgeführt werden muss. Letztere erfordert eine extrem hohe räumliche und zeitliche Auflösung. Daher sollte die Größe des Berechnungsgebietes möglichst klein gehalten werden, um den Rechenaufwand auf ein vertretbares Maß zu begrenzen.

Betrachtet man die Geometrie von kommerziell erhältlichen strukturierten Packungen, ist festzustellen, dass für eine Mehrheit der Packungen eine repräsentative Einheit existiert, die bereits die gesamte geometrische Information der Packung enthält (vgl. Petre et al. [12]). Die gesamte Packung kann somit durch eine Vielzahl solcher Einheiten abgebildet werden. Abb. 2 zeigt neben der kleinstmöglichen repräsentativen Einheit 1×1 auch Vielfache derselben, benannt 2×2 und 3×3. In der Simulation nutzt man diese sich geometrisch wiederholende Struktur einer Packung, indem man eine bzw. Vielfache dieser Einheit als Berechnungsgebiet verwendet und gegenüberliegende Randflächen durch periodische Randbedingungen koppelt. Hierdurch ist es möglich, Einlass- und Auslasseffekte zu vermeiden und theoretisch ein unendlich großes Gebiet abzubilden. Trotz der theoretisch unendlichen Ausdehnung des Gebietes können jedoch nur solche Wirbelstrukturen aufgelöst werden, deren Größe die Ausdehnung des verwendeten Berechnungsgebietes nicht übersteigt. Für den konkreten Fall muss deshalb eine intensive Untersuchung der Gasströmung in Berechnungsgebieten verschiedener Größe erfolgen, um die minimale Größe eines Berechnungsgebietes zu ermitteln, die alle dominanten Wirbelstrukturen abbilden kann.

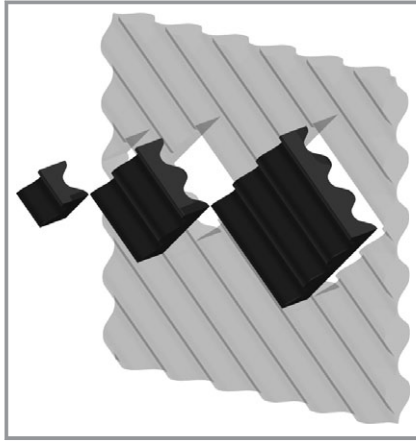


Abbildung 2. 1x1, 2x2 und 3x3-Berechnungsgebiet.

Aufgrund der periodischen Randbedingungen ist es jedoch nicht möglich, den zu simulierenden Gas/Flüssig-Gegenstrom durch entsprechende Geschwindigkeitseinlass- und Druckauslassrandbedingungen beider Phasen zu realisieren. Der Druckgradient über der Höhe des Berechnungsgebietes wird deshalb mithilfe eines konstanten Volumenkraftvektors f modelliert, um den die Impulserhaltungsgleichung erweitert wird. Die Annahme eines konstanten Vektors entspricht dabei einer Linearisierung des Druckverlaufs über die Höhe des Berechnungsgebietes.

Eine weitere Herausforderung, welche die Anwendung periodischer Randbedingungen mit sich bringt, ist, dass die Massenströme der Gas- und Flüssigphase, festgelegt durch den jeweiligen Prozess, nicht direkt vorgegeben werden können. Die Parameter, welche die Massenströme indirekt definieren, sind neben dem eben eingeführten Volumenkraftvektor f der initiale Holdup der Flüssigphase. Beide Parameter müssen iterativ nach dem in Abb. 3 gezeigten Schema eingestellt werden. Die Anpassung erfolgt so lange, bis der Massenstrom der herabfließenden Flüssigphase \dot{m}_l und der Massenstrom der aufsteigenden Gasphase \dot{m}_g den durch den Prozess vorgegebenen Massenströmen entsprechen.

Unter Verwendung periodischer Randbedingungen und der Einführung des Volumenkraftvektors f ist es demnach möglich, die Zweiphasensimulation in strukturierten

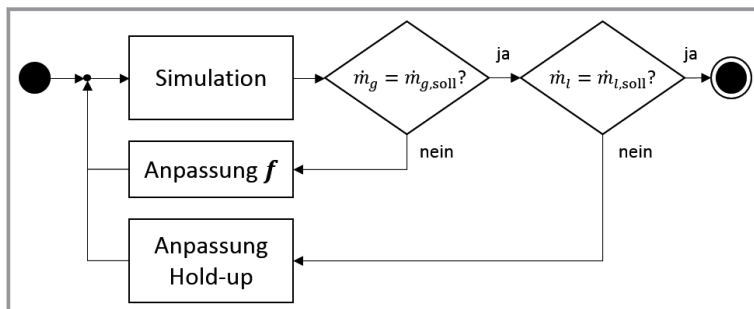


Abbildung 3. Flussdiagramm zur Einstellung der Gas- und Flüssigmassenströme in der Simulation.

Packungen durchzuführen, ohne die Geschwindigkeit der beiden Phasen oder die Dicke des Flüssigkeitsfilms an den Randflächen vorgeben zu müssen. Beides kann sich bei dem gewählten Aufbau der Simulation frei einstellen.

Um das Setup zur Simulation der Fluidodynamik zu validieren, wurde am Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf (HZDR) eine mit Silikonöl belastete strukturierte Packung tomographisch untersucht. Die dabei verwendete Messmethodik ist in Schubert et al. [13] beschrieben. Für den Vergleich der Flüssigkeitsverteilung in Experiment und Simulation werden horizontal durch ein Packungselement verlaufende Schnittbilder herangezogen. Abb. 4a zeigt ein aus tomographischen Daten generiertes, Abb. 4b ein entsprechend aus simulativen Daten generiertes Schnittbild. Es kann eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Experiment und Simulation festgestellt werden.

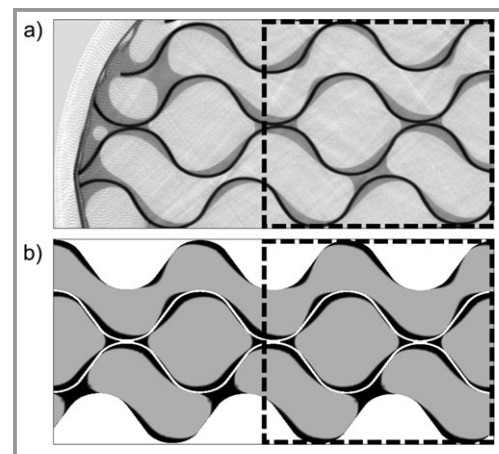


Abbildung 4. Horizontaler Schnitt durch vier Packungsbleche in a) Experiment und b) Simulation. Die Flüssigphase ist dabei dunkelgrau/schwarz dargestellt, die Gasphase hellgrau.

2.2 Stoffübergang

Um nun von einer Simulation, welche die Fluidodynamik in strukturierten Packungen transient abbildet, zu einer Simulation von Rektifikations- und Absorptions/Desorptionsprozessen überzugehen, muss simultan zur Fluidodynamik der Stoffübergang modelliert werden.

Ein konsistentes Modell zur Simulation des Stoffübergangs in Zweiphasensimulationen ist das *Continuous Species Transfer* (CST)-Modell. Das CST-Modell, erstmals veröffentlicht von Marschall et al. [14], verwendet eine Einfeldformulierung für die Beschreibung des Stoffübergangs einer stark verdünnten Komponente und basiert auf der algebraischen VoF-Methode. Eine ausführliche Herleitung der Einfeldformulierung findet sich in Deising et al. [15]. Von Hill et al. [16] wird die Anwendbarkeit des CST-Modells, das auf Absorptions- und Desorptionsprozesse beschränkt ist, auf Rektifikationsprozesse erwei-

tert. Dieses erweiterte Modell, genannt *Generalised Continuous Species Transfer* (GCST)-Modell, wird in der vorliegenden Arbeit zur Simulation des Stoffübergangs verwendet.

Bei der Herleitung des Modells in [16] wird angenommen, dass die Fluidodynamik vom Stoffübergang nicht beeinflusst wird. Dies bedeutet, dass der Stoffübergang zu keiner Veränderung der Massenströme der Gas- bzw. Flüssigphase führen darf. Diese Annahme ist nur dann gerechtfertigt, wenn der zu simulierende Prozess bestimmte Voraussetzungen erfüllt. Im Fall einer Absorption/Desorption muss die übergehende Komponente stark verdünnt vorliegen, wodurch der Effekt des Stoffübergangs auf den Massenstrom vernachlässigt werden kann. Diese Vernachlässigung ist für Rektifikationsprozesse im Allgemeinen nicht gerechtfertigt. Eine Entkopplung der Fluidodynamik und des Stofftransports ist aber dennoch zulässig, falls ein binäres Gemisch vorliegt und die beiden Komponenten neben ähnlichen molaren Verdampfungsenthalpien auch ähnliche molare Massen aufweisen. In diesem Fall geht für jedes Molekül des Leicht sieders, das in die Gasphase übergeht, ein Molekül des Schwersieders in die Flüssigphase über. Die molaren Ströme der Gas- und Flüssigphase bleiben demnach über der Höhe konstant und durch die Annahme ähnlicher molarer Massen beider Komponenten erfahren auch die Massenströme keine Veränderung über der Höhe.

An der Phasengrenzfläche wird im Modell stoffliches Gleichgewicht angenommen, das unter Verwendung der relativen Flüchtigkeit α_{ij} mit Gl. (1) beschrieben wird:

$$y_i = \frac{\alpha_{ij} x_i}{1 + (\alpha_{ij} - 1) x_i} \quad (1)$$

Als Transportvariable wird schließlich ein Gemischmolanteil \bar{x}_i definiert, der in beiden Phasen Gültigkeit besitzt und mittels der molaren Gesamtkonzentration der Gas- und Flüssigphase c_g und c_l , des Volumenanteils der Flüssigphase γ_l und des Molanteils der Komponente i in Gas- und Flüssigphase y_i und x_i berechnet wird:

$$\bar{x}_i = \frac{\gamma_l \alpha_{ij} x_i + (1 - \gamma_l) c_g y_i}{\gamma_l \alpha_{ij} + (1 - \gamma_l) c_g} \quad (2)$$

In der Gasphase gilt somit $\bar{x}_i = y_i$ und in der Flüssigphase $\bar{x}_i = x_i$.

Neben Stoffparametern benötigt das GCST-Modell sowohl das Geschwindigkeitsfeld als auch den Volumenanteil beider Phasen im Berechnungsgebiet. Die benannten Felder werden daher für jeden Zeitschritt aus der Fluiddynamiksimulation entnommen. Aufgrund der Tatsache, dass sich die Transportvariable \bar{x}_i über der Höhe der Packung verändert, können die Randflächen nicht mehr periodisch gekoppelt werden, sondern die Randbedingungen müssen an den jeweiligen Prozess angepasst werden. Die Höhe der simulierten Kolonne entspricht damit der Höhe des Berechnungsgebietes. Hieraus ergeben sich zwei Nachteile. Betrachtet man die Geometrie möglicher Berechnungsgebiete in Abb. 2, wird ersichtlich, dass die Randflächen nicht hori-

zontal, sondern schräg angestellt verlaufen. Belegt man nun die oberen beiden Randflächen mit Randbedingungen, die den Kopf der Kolonne, und die unteren beiden Randflächen mit Randbedingungen, die den Sumpf der Kolonne simulieren, gäbe es keinen Bereich, der nicht direkt von Randbedingungen beeinflusst wäre. Das Ergebnis wäre somit dominiert von Randbedingungeffekten. Ein zweiter Nachteil beruht auf der Tatsache, dass durch die geringe absolute Höhe der Berechnungsgebiete kein nennenswerter Trenneffekt zu erwarten ist.

Beide Nachteile können durch den nachstehend beschriebenen Ansatz umgangen werden. Das Berechnungsgebiet für den Stoffübergang wird vervielfältigt und, wie in Abb. 5 dargestellt, übereinandergestapelt. Nur an den obersten und untersten Randflächen werden nun die an den jeweiligen Prozess angepassten Randbedingungen definiert. Die inneren Randflächen werden mit den Randflächen des darüber- bzw. darunterliegenden Berechnungsgebietes explizit gekoppelt. Hierbei muss zwischen ein- und austretenden Flüssen unterschieden werden. Für eintretende Flüsse werden die Werte des Gemischmolanteils der benachbarten Randfläche übernommen, für austretende Flüsse wird eine freie Auslassrandbedingung definiert. Die Fluidodynamik wird weiterhin nur in einem Berechnungsgebiet simuliert und ist aufgrund ihrer Periodizität für alle Gebiete des Stoffübergangs gültig. Der zusätzliche Rechenaufwand für die Simulation einer höheren Kolonne beschränkt sich demnach auf das Lösen einer zusätzlichen Gleichung pro hinzugefügtem Berechnungsgebiet. Die aufwendig zu lösenden Navier-Stokes-Gleichungen bleiben auf ein einzelnes Berechnungsgebiet beschränkt.

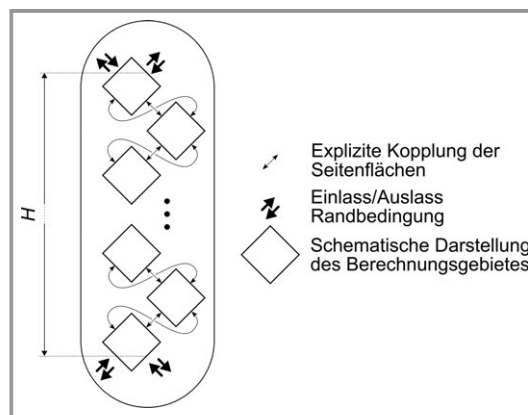


Abbildung 5. Vervielfältigung des Berechnungsgebietes und Kopplung der Seitenflächen für die Simulation des Stoffübergangs.

Aufgrund der Tatsache, dass die Randflächen der Einlass- und Auslassrandbedingungen schräg angestellt sind und somit eine vertikale Ausdehnung besitzen, muss die Höhe H der Kolonne eindeutig festgelegt werden. Wie in Abb. 5 dargestellt, wird in dieser Arbeit die Höhe als Abstand zwischen den Mittelpunkten der oberen und unteren Randflächen definiert.

3 Modellsystem

Der in Abschn. 2 beschriebene Simulationsaufbau, der sowohl für rektifikative als auch absorptive/desorptive Prozesse Gültigkeit besitzt, soll im nachstehenden Abschnitt auf einen vereinfachten, idealisierten Rektifikationsprozess angewandt werden.

Bei experimentellen Untersuchungen, welche die Bestimmung des *HETP*-Wertes einer strukturierten Packung zum Ziel haben, wird bevorzugt die rektifikative Auftrennung eines binären Gemisches bei totalem Rücklauf untersucht. Dieser Fall wird auch als Modellsystem für die Simulation herangezogen. Das Fließbild des entsprechenden Prozesses ist in Abb. 6a dargestellt. Im Gegensatz zu dem in Abb. 1a gezeigten Rektifikationsprozess wird weder ein Feedstrom zugeführt noch werden Produktströme abgezogen. Infolgedessen entspricht der Massenstrom der aufsteigenden Gasphase \dot{m}_g dem Massenstrom der herabfließenden Flüssigphase \dot{m}_l .

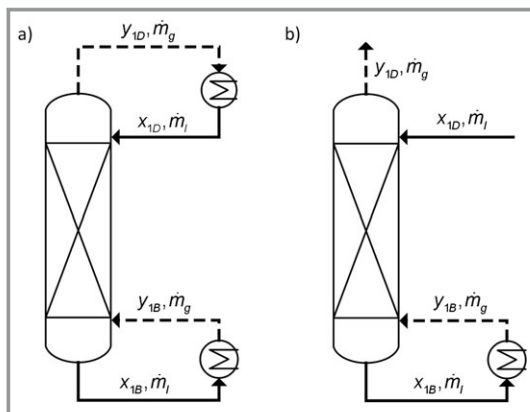


Abbildung 6. a) Rektifikationsprozess bei totalem Rücklauf und b) in Simulation realisierter Prozess.

Wird eine Rektifikationskolonne bei totalem Rücklauf betrieben, stellt sich, abhängig von der initialen Gemischzusammensetzung, nach einiger Zeit eine konstante Gemischzusammensetzung am Kopf und am Sumpf der Kolonne ein. Für die finale Auswertung der Trenneffizienz ist dabei nur dieser stationäre Endzustand von Interesse. Simulativ kann dieser stationäre Endzustand schneller erreicht werden, indem man x_{1D} , den Molanteil des Leichtsieders der am Kopf einströmenden Flüssigphase, konstant hält und so nur x_{1B} und y_{1B} als sich frei einstellende Parameter zulässt. Der so angepasste Prozess kann durch das in Abb. 6b gezeigte Fließbild dargestellt werden. Ist der stationäre Zustand erreicht, muss der Molanteil der am Kopf der Kolonne ausströmenden Gasphase y_{1D} dem Molanteil der am Kopf einströmenden Flüssigphase x_{1D} entsprechen und der simulierte Prozess entspricht einer Rektifikation bei totalem Rücklauf.

Für den konkret zu simulierenden Prozess wird ein *F*-Faktor von $F = 0,8 \text{ Pa}^{0,5}$ angenommen. Die entsprechende Berieselungsdichte *B* ergibt sich aus der Bedingung, dass die Gas- und Flüssigmassenströme identisch sein müssen. Das

zu trennende Gemisch soll aus den Komponenten Stickstoff (Index 1) und Sauerstoff (Index 2) bestehen, wobei angenommen wird, dass sowohl die Verdampfungsenthalpien als auch die molaren Massen beider Komponenten identisch sind, um die Bedingungen des GCST-Modells zu erfüllen. Die adiabate Kolonne soll eine Höhe von ca. 13 cm aufweisen und der Molanteil der am Kopf einströmenden Flüssigphase soll $x_{1D} = 0,9$ betragen. Bei einem festgelegten Kolonneninnendruck von $p = 3 \text{ bar}$ ergeben sich aus der NIST-Datenbank die in Tab. 1 aufgeführten Stoffwerte, die als konstant angenommen werden.

Tabelle 1. Stoffwerte des Stickstoff/Sauerstoff-Gemisches.

Größe	Flüssigphase	Gasphase
Dichte ρ [kg m^{-3}]	833,21	12,29
Kinematische Viskosität ν [m^2s^{-1}]	$1,473 \cdot 10^{-7}$	$5,505 \cdot 10^{-7}$
Diffusionskoeffizient D_{12} [m^2s^{-1}]	$3,141 \cdot 10^{-9}$	$7,975 \cdot 10^{-7}$
Molare Gesamtkonzentration c [mol m^{-3}]	28 525,78	420,87
Oberflächenspannung σ [N m^{-1}]		$8,494 \cdot 10^{-3}$
Relative Flüchtigkeit α_{12} [-]		3,012

Die verwendete strukturierte Packung ist in Abb. 2 und Abb. 4 gezeigt und besteht aus in abwechselnder Orientierung gegeneinander geschichteten gewellten Blechen. Die Bleche weisen dabei keine Sekundärstruktur und auch keine Perforierung auf.

3.1 Simulation der Fluidynamik

In einem ersten Schritt muss die Größe des Berechnungsgebietes festgelegt werden (vgl. Abb. 2). Dabei wird durch eine Untersuchung der Gasströmung in Berechnungsgebieten verschiedener Größe das kleinste Berechnungsgebiet ermittelt, das alle dominanten Wirbelstrukturen abbilden kann. Im Anschluss daran wird durch eine Netzkonvergenzstudie die hinreichende Auflösung für eine DNS ermittelt.

Um die Massenströme, die sich aus der Vorgabe des *F*-Faktors ergeben, einzustellen, wird das in Abb. 3 dargestellte Schema verwendet. Abb. 7 zeigt die Massenströme der Gas- und Flüssigphase über der Zeit und durch Anpassung des Volumenkraftvektors *f* und des Holdups der Flüssigphase wird erreicht, dass die Massenströme im zeitlichen Mittel den Sollmassenströmen des Prozesses entsprechen.

Eine Betrachtung des Ergebnisses der Fluidynamiksimulation lässt erkennen, dass die Packungsbleche von einem dünnen Flüssigkeitsfilm benetzt werden, während die Gasphase stark turbulente Strukturen aufweist. Eingefärbt mit dem normierten Betrag des Geschwindigkeitsvektors ist in Abb. 8 ein Ausschnitt dreier Packungselemente gezeigt, wobei die Wirbelstrukturen in der Gasphase deutlich zu erkennen sind.

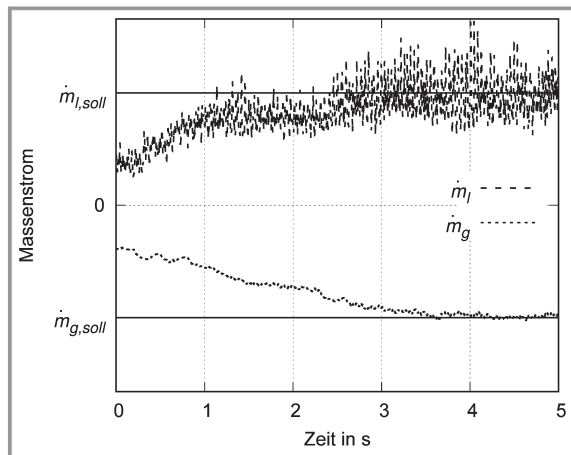


Abbildung 7. Zeitliche Veränderung der Massenströme der Gas- und Flüssigphase bei Anwendung des in Abb. 3 dargestellten Schemas. Bei Erreichung der jeweiligen Sollwerte ist der geforderte F -Faktor erreicht und es liegt totaler Rücklauf vor.

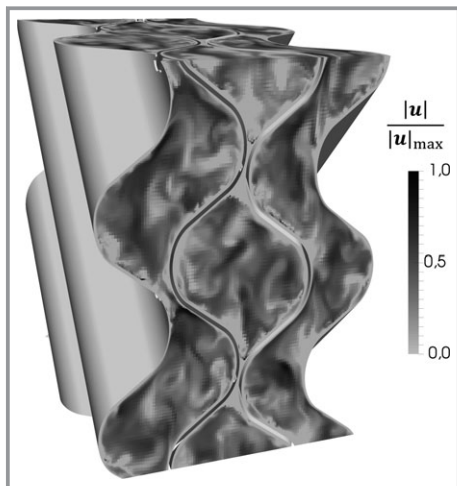


Abbildung 8. Visualisierung der turbulenten Strukturen durch Darstellung des normierten Betrages des Geschwindigkeitsvektors. Dargestellt sind drei Packungselemente und somit das Gebiet zwischen vier vertikal aneinander geschichteten Packungsblechen.

3.2 Simulation des Stoffübergangs

Nach der erfolgreichen Einstellung der Massenströme in der transienten Fluidynamiksimulation wird diese fortgeführt, wobei nun die Stoffübergangssimulation hinzugeschaltet wird. Wie bereits bei der Beschreibung des GCST-Modells in Abschn. 2.2 erwähnt, benötigt das Modell für jeden Zeitschritt das Geschwindigkeitsfeld sowie den Volumenanteil beider Phasen. Um jegliche Interpolationsschritte bei der Feldübergabe zu vermeiden, wird für die Simulation des Stoffübergangs das exakt gleiche Rechengitter verwendet wie für die Simulation der Fluidynamik. Durch eine Netzkonvergenzstudie konnte gezeigt werden, dass dieses Rechengitter fein genug ist, um auch die zu

simulierenden Stoffübergangsprozesse detailliert genug abzubilden.

Als Einlassrandbedingung am Kopf der Kolonne wird gemäß dem in Abb. 6b dargestellten Prozess $x_{1D} = 0,9$ definiert. Für die austretende Gasphase wird eine freie Auslassrandbedingung gewählt. Am Sumpf der Kolonne muss gelten, dass der mittlere Molanteil x_{1B} der austretenden Flüssigphase dem mittleren Molanteil y_{1B} der eintretenden Gasphase entspricht. Für die austretende Flüssigphase wird somit eine freie Auslassrandbedingung gewählt, der Wert des mittleren Molanteils y_{1B} der eintretenden Gasphase muss hingegen für jeden Zeitschritt wie folgt berechnet werden:

$$y_{1B} = \frac{\int_A \mathbf{n}_A \cdot \bar{x}_1 \mathbf{c} u \, dA}{\int_A \mathbf{n}_A \cdot \mathbf{c} u \, dA} \quad (3)$$

Die Fläche A bezeichnet dabei nicht die gesamte Randfläche, sondern nur den Teil, durch den Fluid aus dem Berechnungsgebiet austritt. Aufgrund der transienten Fluidynamik ist die Auslassfläche A somit nicht konstant, sondern ändert sich über der Zeit.

Um die geforderte Kolonnenhöhe von ca. 13 cm zu erreichen, werden für die Simulation des Stoffübergangs insgesamt 11 Berechnungsgebiete übereinandergesetzt, wobei alle mit einem Molanteil von $\bar{x}_1 = 0,9$ initialisiert werden.

Zur Auswertung der Ergebnisse wird zunächst der zeitliche Verlauf von y_{1D} , dem Molanteil der austretenden Gasphase am Kopf der Kolonne, diskutiert. In Abb. 9a ist zu erkennen, dass die Kurve bei einem Wert von $y_{1D} = 0,9$ beginnt, ein Maximum durchläuft und sich schließlich bei einem Wert von $y_{1D} = 0,9$ einpendelt. Dies entspricht dem zu erwartenden Verlauf, da durch die konstante Initialisierung der gesamten Kolonne mit einem Molanteil von $\bar{x}_1 = 0,9$ und der gleichzeitigen Festlegung eines konstanten Molanteils der am Kopf eintretenden Flüssigphase von $x_{1D} = 0,9$ der initiale Anteil des Leichtsieders in der Kolonne zu hoch ist. Der Überschuss wird so lange über den Gastrom am Kopf der Kolonne ausgetragen, bis sich ein quasi-stationärer Verlauf des Molanteils über der Höhe ausgebildet hat. Nun gilt am Kopf der Kolonne $y_{1D} = x_{1D} = 0,9$, womit der simulierte Prozess dem in Abb. 6a dargestellten Prozess einer Rektifikation bei totaler Rücklauf entspricht.

Abb. 9b zeigt den zeitlichen Verlauf des mittleren Molanteils des am Sumpf austretenden Flüssigstromes x_{1B} , der identisch zu dem Molanteil der eintretenden Gasphase y_{1B} ist. Ausgehend vom initial vorgegebenen Molanteil von $x_{1B} = 0,9$ fällt der Wert, was einer zunehmenden Auftrennung des Gemisches über der Höhe der Kolonne entspricht. Nach einiger Zeit stellt sich ein konstanter Molanteil ein. Dieser Wert ist nicht vorhersagbar, sondern ist das Ergebnis von komplexen transienten Stoffübergangsprozessen innerhalb der Packung.

Abb. 9c zeigt den zeitlichen Verlauf des $HETP$ -Wertes. Letzterer wird unter Verwendung der Molanteile x_{1D} und x_{1B} sowie der Packungshöhe H wie folgt berechnet:

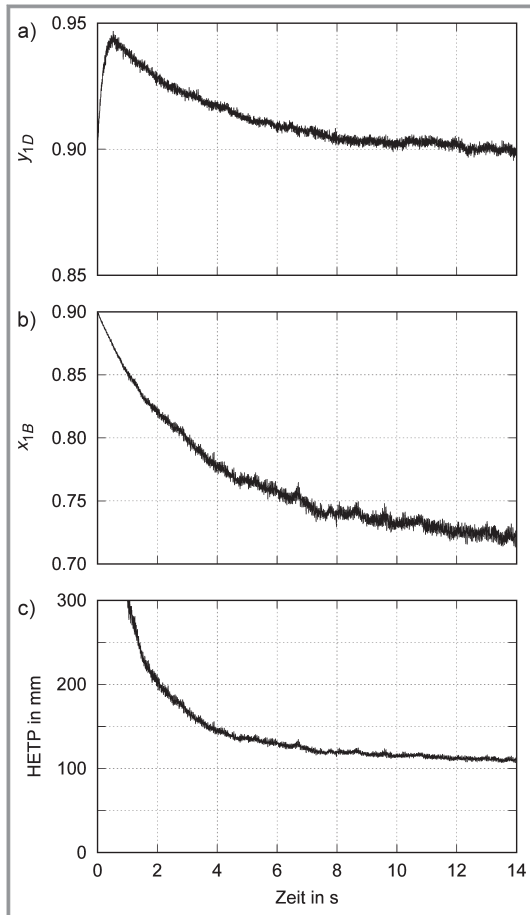


Abbildung 9. Zeitlicher Verlauf der Molanteile am a) Kopf und b) Sumpf der Kolonne sowie c) des berechneten *HETP*-Wertes.

$$HETP = H/n = H / \left(\frac{1}{\ln \alpha_{12}} \ln \left(\frac{x_{1D}}{1-x_{1D}} \frac{1-x_{1B}}{x_{1B}} \right) \right) \quad (4)$$

Die Anzahl der sich ergebenden Gleichgewichtsstufen n wird dabei mittels der Fenske-Gleichung ermittelt. Zum Zeitpunkt $t = 0$ ergibt sich aufgrund der über der Höhe konstanten Gemischzusammensetzung ein unendlich großer *HETP*-Wert. Mit fallendem Molanteil x_{1B} fällt auch der *HETP*-Wert und stellt sich schließlich bei ungefähr 110 mm ein. Dieser Wert stimmt mit Erfahrungswerten überein.

Zur weiteren Auswertung der Ergebnisse wird nun ein vertikaler Schnitt durch drei Packungsbleche zu einem Zeitpunkt $t_1 = 14$ s betrachtet. Dieser in Abb. 10 dargestellte Schnitt zeigt nicht die gesamte Höhe H der simulierten Kolonne, sondern einen mittleren Bereich der 11 übereinandergestapelten Berechnungsgebiete. Abb. 10a und Abb. 10b zeigen dabei einen identischen Ausschnitt, wobei der Schnitt einmal mit dem Gemischmolanteil \bar{x}_1 und einmal mit dem Volumenanteil γ_l eingefärbt ist.

Zunächst lässt sich erkennen, dass der untere Teil von Abb. 10a im Mittel dunkler eingefärbt ist als der obere Teil. Dies zeigt die Auftrennung des Gemisches über der Kolonnenhöhe, wobei der Anteil des Leichtsieders mit zunehmender Kolonnenhöhe ansteigt. Bei Betrachtung der lokalen Verteilung des Gemischmolanteils \bar{x}_1 wird deutlich, dass die Phasengrenzfläche, deren Position aus Abb. 10b abgeleitet werden kann, zu erkennen ist. Der Parameter des Gemischmolanteils \bar{x}_1 besitzt in beiden Phasen Gültigkeit, wobei der Sprung im Molanteil an der Phasengrenzfläche lokal aufgelöst wird. Dieser Sprung macht sich im Schnittbild durch einen Farbkontrast kenntlich. Es ist zu sehen, dass auf der flüssigseitigen Phasengrenzfläche der Molanteil des Leichtsieders niedriger ist als auf der gasseitigen Phasengrenzfläche, was dem lokalen thermodynamischen Gleichgewicht entspricht. In der Gasphase sind zusätzlich turbulente Strukturen zu erkennen, die den Stoffübergangsprozess entscheidend beeinflussen.

4 Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurde ein Setup zur Simulation von Rektifikations- und Absorptions/Desorptionsprozessen vorgestellt und auf einen vereinfachten, idealisierten Rektifikationsprozess angewandt. Hierbei wird die Fluidodynamik mittels einer DNS abgebildet und zeitgleich der Stoffübergang mithilfe des GCST-Modells simuliert. Die geometrische Periodizität von strukturierten Packungen wurde dahingehend ausgenutzt, dass für die Fluidodynamik periodische Randbedingungen verwendet werden und die Stoffübergangssimulation auf mehreren miteinander gekoppelten Berechnungsgebieten simuliert wird, die jedoch alle die gleiche Fluidodynamik aufweisen.

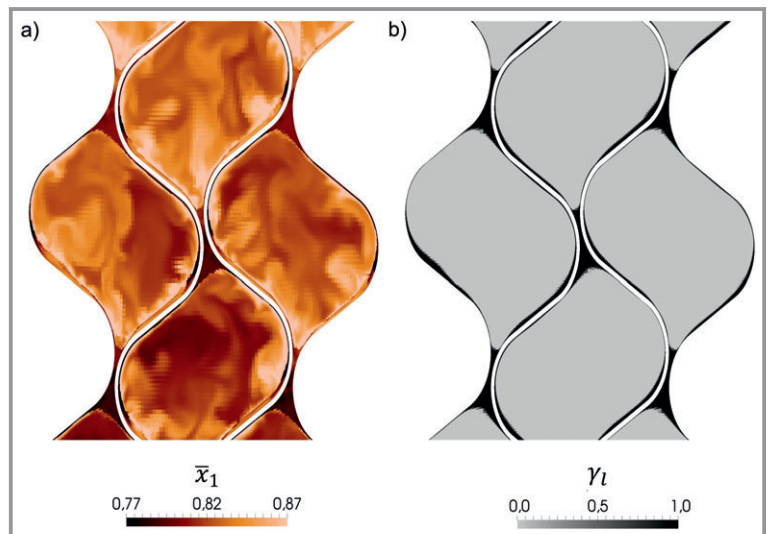


Abbildung 10. Vertikaler Schnitt durch drei Packungselemente. a) Darstellung des Gemischmolanteils \bar{x}_1 in Gas- und Flüssigphase und b) zugehörige Verteilung des Volumenanteils γ_l der Flüssigphase.

Eine weitere Verbesserung des Simulationsaufbaus würde darin bestehen, die initiale Gemischzusammensetzung nicht konstant zu wählen, sondern die Berechnungsgebiete gemäß der Fenske-Gleichung zu initialisieren. Dies hätte eine deutliche Reduzierung der Simulationszeit bis zum stationären Zustand zur Folge.

Darüber hinaus sollen neben dem untersuchten Fall eines F -Faktors von $F = 0,8 \text{ Pa}^{0,5}$ weitere Gasbelastungen simuliert werden, um die dabei erhaltenen $HETP$ -Werte miteinander vergleichen zu können. Neben dem $HETP$ -Wert können für jede Simulation auch weitere relevante Parameter wie globale Stoffübergangskoeffizienten oder die spezifische effektive Phasengrenzfläche den Simulationsdaten direkt entnommen werden.

Die Autoren danken dem „Gauß Centre for Supercomputing e.V.“ (www.gauss-centre.eu) für die Finanzierung dieses Projekts durch Bereitstellung von Rechenzeit auf dem GCS Hochleistungsrechner SuperMUC im Leibniz-Supercomputing-Center (www.lrz.de).

Formelzeichen

A	$[\text{m}^2]$	Auslassfläche
B	$[\text{m}^3 \text{m}^{-2} \text{h}^{-1}]$	Berieselungsdichte
c	$[\text{mol m}^{-3}]$	molare Gesamtkonzentration
D_{ij}	$[\text{m}^2 \text{s}^{-1}]$	Diffusionskoeffizient der Komponente i in Komponente j
\mathbf{f}	$[\text{N m}^{-3}]$	Volumenkraftvektor
F	$[\text{Pa}^{0,5}]$	Gasbelastung
H	$[\text{m}]$	Packungshöhe
\dot{m}	$[\text{kg s}^{-1}]$	Massenstrom
\mathbf{n}	$[-]$	Normalenvektor
n	$[-]$	Anzahl der Gleichgewichtsstufen
\mathbf{u}	$[\text{m s}^{-1}]$	Geschwindigkeitsvektor
x_i	$[-]$	Molanteil der Komponente i in der Flüssigphase
\bar{x}_i	$[-]$	Gemischmolanteil der Komponente i
y_i	$[-]$	Molanteil der Komponente i in der Gasphase

Griechische Symbole

α_{ij}	$[-]$	relative Flüchtigkeit
γ	$[-]$	Volumenanteil
ν	$[\text{m}^2 \text{s}^{-1}]$	kinematische Viskosität
σ	$[\text{N m}^{-1}]$	Oberflächenspannung

Indizes

1	Komponentenindex Leichtsieder im binären Gemisch
---	--

2	Komponentenindex Schwertsieder im binären Gemisch
A	Absorptiv
ab	abgeführter Strom
B	Sumpf
D	Destillat
F	Feed
g	gas
i	Komponente i
j	Komponente j
l	flüssig
T	Trägergas
W	Waschmittel
zu	zugeführter Strom

Literatur

- [1] J. Stichlmair, J. R. Fair, *Distillation: Principles and Practices*, Wiley, New York 1998.
- [2] M. Haghshenas Fard, M. Zivdar, R. Rahimi, M. Nasr Esfahani, A. Afacan, K. Nandakumar, K. T. Chuang, *Chem. Eng. Technol.* 2007, 30 (7), 854–861. DOI: <https://doi.org/10.1002/ceat.200700011>
- [3] J. Chen, C. Liu, X. Yuan, G. Yu, *Chin. J. Chem. Eng.* 2009, 17 (3), 381–388. DOI: [https://doi.org/10.1016/S1004-9541\(08\)60220-7](https://doi.org/10.1016/S1004-9541(08)60220-7)
- [4] Y. Y. Xu, S. Paschke, J.-U. Repke, J. Q. Yuan, G. Wozny, *Chem. Eng. Technol.* 2009, 32 (8), 1227–1235. DOI: <https://doi.org/10.1002/ceat.200900099>
- [5] R. Higbie, *Trans. AIChE* 1935, 31, 365–389.
- [6] Y. Haroun, D. Legendre, L. Raynal, *Chem. Eng. Sci.* 2010, 65 (1), 351–356. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ces.2009>
- [7] Y. Haroun, D. Legendre, L. Raynal, *Chem. Eng. Sci.* 2010, 65 (10), 2896–2909. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ces.2010.01.012>
- [8] D. Sebastia-Saez, S. Gu, P. Ranganathan, K. Papadikis, *Int. J. Greenhouse Gas Control* 2013, 19, 492–502, 2013. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ijggc.2013.10.013>
- [9] D. Sebastia-Saez, S. Gu, P. Ranganathan, K. Papadikis, *Int. J. Greenhouse Gas Control* 2015, 42, 388–399. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ijggc.2015.08.016>
- [10] A. Lautenschleger, A. Olenberg, E. Y. Kenig, *Chem. Eng. Sci.* 2015, 122, 452–464. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ces.2014.09.040>
- [11] A. Olenberg, W. Reschetnik, G. Kullmer, E. Y. Kenig, *Chem. Eng. Res. Des.* 2018, 132, 1–8. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.cherd.2017.12.036>
- [12] C. F. Petre, F. Larachi, I. Iliuta, B. P. A. Grandjean, *Chem. Eng. Sci.* 2003, 58 (1), 163–177. DOI: [https://doi.org/10.1016/S0009-2509\(02\)00473-6](https://doi.org/10.1016/S0009-2509(02)00473-6)
- [13] M. Schubert, A. Bieberle, F. Barthel, S. Boden, U. Hampel, B. Moran, W. G. Hoover, S. Bestiale, *Chem. Ing. Tech.* 2011, 83, 979–991. DOI: <https://doi.org/10.1002/cite.201100022>
- [14] H. Marschall, K. Hinterberger, C. Schüler, F. Habla, O. Hinrichsen, *Chem. Eng. Sci.* 2012, 78, 111–127. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ces.2012.02.034>
- [15] D. Deising, H. Marschall, D. Bothe, *Chem. Eng. Sci.* 2016, 139, 173–195. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ces.2015.06.021>
- [16] S. Hill, T. Acher, R. Hoffmann, J. Ferstl, D. Deising, H. Marschall, S. Rehfeldt, H. Klein, *Chem. Eng. Trans.* 2018, 69, 337–342. DOI: <https://doi.org/10.3303/CET1869057>