

Simultanes Visualisieren der Konzentrationsfelder zweier Farbstoffe beim Strahlmischen

Von der Fakultät für Maschinenbau
der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover
zur Erlangung des akademischen Grades einer

Doktor-Ingenieurin

genehmigte
Dissertation
von

Dipl.-Ing. Letizia Volpe
geboren am 30. Juli 1977 in Rovigo, Italien

2007

1. Referent: Prof. Dr.-Ing. Dr.h.c. D. Mewes

2. Korreferentin: Frau Prof. Dr.-Ing. A. Luke

Vorsitzender der Prüfungskommission: Herr Prof. Dr.-Ing. habil. L. Schulze

Tag der Promotion: 16. März 2007

Vorwort

Diese Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftliche Mitarbeiterin am Institut für Mehrphasenprozesse der Universität Hannover. Mein besonderer Dank gilt meinem Doktorvater und Institutsleiter a.D. Herrn Prof. Dr.-Ing. Dr.h.c. Dieter Mewes. Er förderte grosszügig meine Arbeit und gab mir den nötigen Freiraum und Vertrauen für die Forschung.

Frau Prof. Dr.-Ing. Andrea Luke, Korreferentin, und Herr Prof. Dr.-Ing. habil. Lothar Schulze, Vorsitzender der Prüfungskommission, danke ich für das wohlwollende Interesse an meiner Arbeit.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft danke ich für die finanzielle Unterstützung meiner Arbeit.

Bei meinen Kolleginnen und Kollegen bedanke ich mich sehr für die freundliche Atmosphäre, die mir die Arbeit wesentlich erleichterte. Insbesondere Karijm Salem, Kerstin Kling, Bastian Mahr, Florian Schmidt, Martin Faes und Senada Maksic danke ich für Ihre Unterstützung, nicht nur auf professioneller Ebene sondern auch im privaten Bereich.

Dank den von mir betreuten Studenten und wissenschaftlichen Hilfskräften, insbesondere Yasin Alakese und Michael Wilkens, die durch Ihr Engagement einen wichtigen Beitrag zu dieser Arbeit geleistet haben. Den technischen Mitarbeitern des Instituts, insbesondere Herr Schickedanz und Herr Siedenbergh, Herr Streichert und Herr Rohatschek danke ich für Ihre Unterstützung beim Aufbau der Anlage bzw. bei der Netzwerkadministration. Frau Sladek und Frau Greiser seien für die organisatorische Hilfe bedankt.

Besonderer Dank gilt meiner Familie, die mir trotz der Entfernung immer nah gewesen ist und mich unterstützt hat, sowie meinem Freund, der mit seinem Verständnis und Hilfe den Abschluss meiner Arbeit sehr erleichtert hat.

Hannover, im März 2007

Letizia Volpe

Kurzfassung

Volpe, Letizia

Simultanes Visualisieren der Konzentrationsfelder zweier Farbstoffe beim Strahlmischen

Konvektive und diffusive Transportprozesse während des Vermischens von Flüssigkeiten mit Hilfe von diskontinuierlich eingesetzten Flüssigkeitsstrahlen werden visualisiert. Die dabei auftretenden räumlichen und zeitveränderlichen Konzentrationsfelder werden mit Hilfe der tomographischen Zweiwellenlängenphotometrie gemessen. Dazu werden ein inerter und ein reagierender Farbstoff eingesetzt. Die Transportphänomene werden im Makro- und Mikrobereich der Ortskalen zeitgleich gemessen und getrennt voneinander analysiert. Das Konzentrationsfeld des inerten Farbstoffs kennzeichnet den Ablauf des Makromischens im Reaktor. Die Abnahme der Konzentration des reagierenden Farbstoffs erfolgt durch eine chemische Reaktion, welche das Mikromischen voraussetzt.

Der Ablauf des Makromischens wird begünstigt, wenn der in den Behälter eingespeiste Flüssigkeitsstrahl von einer exzentrischen Position des Reaktorbodens unter dem Winkel von 20° eintritt. Die Vergrößerung der Reynolds-Zahl und die des eingestrahnten Flüssigkeitsvolumens verbessern die Vermischung, wenn letzteres zwischen 1% und 3% der Reaktorfüllmenge beträgt. In den Versuchen ist der Reaktor mit einer 0,5G % wässrigen Zelluloselösung befüllt. Für steigende Viskosität der dem Strahl umgebenden Flüssigkeit nimmt die Homogenität des Gemisches ab. In den Messungen bleibt die Makrovermischung wegen des beim Einstrahlen nur begrenzt zugeführten Impulses unvollständig. Andererseits wird das Mikromischen bereits innerhalb von 0,6s nach Beenden des Einstrahlens beobachtet. Der reagierende Farbstoff trifft hier sofort während des Einstrahlens auf den Reaktanden im Reaktor.

Stichworte: Flüssigkeitsstrahlen, Mikromischen, tomographische Zweiwellenlängenphotometrie

Abstract

Volpe, Letizia

Simultaneous visualization of the concentration fields of two dyes by jet mixing

Convective and diffusive transport processes are visualized during liquid mixing by means of discontinuous liquid injection. The developed three dimensional and time dependent concentration fields are measured by means of the Tomographical Dual-Wavelength Photometry. For this purpose an inert dye and a reacting one are used. The transport phenomena are measured simultaneously and analysed separately. The concentration field of the inert dye indicates the convective transport and the progress of macromixing inside the reactor. The reacting dye diminishes its concentration by the progress of micromixing indicated by a chemical reaction. The liquid injection from the bottom of the reactor at an eccentric position with an injection angle of 20° of inclination to the vertical axes favours the macromixing. Increased Reynolds-numbers and injection volumes between 1% and 3% of the reactor content improve mixing. In the experiments the reactor is filled with 0,5W % cellulose-water solution. The homogeneity of the mixture decreases by increasing the viscosity of the liquid surrounding the jet. The macromixing remains incomplete because the impulse introduced by the injecting liquid is insufficient.

On the other side 0,6s after the injection micromixing is observed because the reaction is already in progress during the injection.

Keywords: liquid injection, micromixing, Tomographical Dual-Wavelength Photometry

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung	II
Abstract	III
Inhaltsverzeichnis	IV
Formelzeichen.....	VII
1 Einleitung.....	1
2 Ziel der Arbeit	3
3 Stand der Forschung	5
3.1 Theoretische Grundlagen	5
3.2 Ausbreitung von Flüssigkeitsstrahlen.....	8
3.3 Ergebnisse zum Vermischen mit Flüssigkeitsstrahlen	9
3.4 Einfluss der Viskosität.....	21
3.5 Messen von Mikromischzeiten	23
3.6 Messen räumlicher Konzentrationsfelder	26
4 Experimentelle Untersuchungen	30
4.1 Visualisieren räumlicher Konzentrationsfelder	30
4.2 Transportvorgänge im Strömungsfeld.....	31
4.3 Messung der Konzentrationsfelder	33
4.4 Verwendete Flüssigkeiten und Farbstoffe	37
4.5 Physikalische Eigenschaften der eingesetzten Fluide	38

4.6	Die chemische Reaktion.....	41
4.7	Versuchsaufbau.....	42
4.8	Versuchsdurchführung.....	45
5	Messtechnik.....	47
5.1	Physikalische Grundlage der Absorption.....	47
5.2	Absorptionsmessverfahren.....	49
5.3	Zweiwellenlängenphotometrie	49
5.4	Prinzip und Anwendung der Tomographie.....	50
5.5	Optischer Aufbau	52
5.6	Auswertung der gemessenen Daten.....	55
5.6.1	Rekonstruktionsverfahren	55
5.6.2	Anwendung des ART-Algorithmus	56
5.6.3	Visualisieren der gemessenen Konzentrationsfelder	59
5.7	Kalibrieren des Messsystems	60
5.7.1	Messen der Extinktionskoeffizienten.....	61
6	Gemessene Konzentrationsfelder	64
6.1	Einstrahlen von Flüssigkeitsgemischen mit umgebungsgleicher Viskosität.....	65
6.1.1	Variation der Düsenform	65
6.1.2	Einfluss der Betriebsparameter auf die Konzentrationsfelder	69
6.2	Einstrahlen von Flüssigkeitsgemischen mit variabler Viskosität.....	71

6.2.1	Variation der Einbauposition der Düse	73
6.2.2	Variation der Austrittsgeschwindigkeit des Strahls	80
6.2.3	Variation des eingestrahnten Flüssigkeitsvolumens	85
6.2.4	Variation des Viskositätsverhältnisses	90
7.	Zusammenfassung.....	97
	Literaturverzeichnis.....	100

Formelzeichen

Symbol	Einheit	Bedeutung
C	mol/l	Konzentration
\bar{c}	mol/l	mittlere Konzentration
d_n	m	Düsendurchmesser
D	m	Behälterdurchmesser
\dot{E}	W	kinetische Leistung, Gl.(3.10)
g	m/s ²	Erdbeschleunigung
h	m	Höhe des Füllstands
H	m	Behälterhöhe
\dot{j}	kg m/s ²	Impulsstrom, Gl.(3.2)
I	kg m/s	Impuls
I	W/m ²	Intensität der Laserstrahlen, Gl.(5.2)
I^*	-	spezifischer Impuls
I_s	-	Intensität der Segregation, Gl.(4.1)
j	-	Zählvariable für Feldelemente
j	-	Volumenbereich
k_n, K	-	empirische Faktor
l	m	Durchstrahlungsweg, Gl.(5.15)
M	-	Mischgüte
M	-	Mischzeitfaktor
\dot{M}	kg/s	Massenstrom
n	-	Fließexponent
N	-	Anzahl der Feldelemente

VIII

N	mol	Stoffmenge
N^*	-	dimensionslose Restmenge, Gl.(4.2)
r	-	radiale Ortskoordinate
R	-	Eintrainement, Gl.(3.3)
S_i	-	Gewichtungsfaktor
t	s	Zeit
t_{ein}	s	Dosierzeit
t_M	s	Mischzeit
T_r	s	geometrieabhängige Konstante
V	m ³	Volumen des Behälterinhalts
V_{ein}	m ³	eingestrahktes Flüssigkeitsvolumen
\dot{V}	m ³ /s	Volumenstrom
w	m/s	Geschwindigkeit
x, y, z	-	Ortskoordinaten
a, β, n	-	empirische Exponenten
γ	1/s	Schergeschwindigkeit
ε	m ² /mol	Absorptionskoeffizient, Gl.(5.14)
η	Pa s	Viskosität
η^*	-	relative Viskosität
π	-	Kreiskonstante
ρ	Kg/m ³	Dichte
σ	-	Varianz
τ	Pa	Schubspannung, Gl.(4.8)
ν	m ² /s	kinematische Viskosität
Δ	-	Deviationsgrad, Gl.(4.3)

ϕ – integraler Messwert, Gl.(5.7)

Indices

Symbol	Bedeutung
O	Anfangszustand
J	Jod; reagierender Stoff
n	Düse
Na	Natriumthiosulphat
S	Strahlbereich
u	Flüssigkeit im Behälter
∞	Endzustand

Kennzahlen

Kennzahl	Bedeutung
$Fr = \frac{w_n^2}{d_n g}$	Froude-Zahl
$R = \frac{\dot{M}_s}{M_n}$	Entrainementrate
$Re = \frac{w_n d_n \rho}{\eta}$	Reynolds-Zahl
$V_{\text{ein}}^* = \frac{V_{\text{ein}}}{V}$	eingestrahktes Flüssigkeitsvolumen

1 Einleitung

Eine neue Untersuchung über die Störfälle in der chemischen Industrie hat gezeigt [1], dass ca. ein Viertel derselben von durchgehenden Reaktionen herrühren. Hierbei handelt sich um exothermische Reaktionen, bei denen die entstehende Reaktionswärme nicht rasch genug abgeführt wird. Mit wachsender Temperatur steigen die Reaktionsgeschwindigkeit und dadurch der Druck. Mögliche Ursachen sind fehlerhafte Betriebsweisen oder der Ausfall von Kühl- oder Mischeinrichtungen. Dadurch können unkontrollierte Temperaturanstiege und Konzentrationsschwankungen auftreten. Die gleichen Effekte können katalytisch wirksame Verunreinigungen auslösen. Als Sicherheitsmaßnahmen sind folgende Einrichtungen möglich:

- druckfeste Bauweise,
- Druckentlastung oder
- Reaktionsinhibition.

Die ersten beiden Möglichkeiten sind bereits ausführlich untersucht, während selten über die Anwendung von Reaktionsinhibitoren, sog. Notstoppfern berichtet wird [2,3]. Diese Technologie ist bisher nicht vollständig entwickelt [1]. Das Dosieren von Inhibitoren kann mit Hilfe von Flüssigkeitsstrahlen erfolgen. Über deren Wirksamkeit und deren Anwendbarkeit ist bisher keine Vorhersage mit publizierten Daten aus der Literatur möglich [4].

Reaktionsinhibitoren können zum Kühlen der reagierenden Flüssigkeiten eingesetzt werden oder um die Reaktion auf chemischem Wege zu unterbrechen. In beiden Fällen spielt die Mischzeit zwischen dem eingestrahnten Inhibitor und den Reaktanden die Hauptrolle [5]. Der Inhibitor soll in kurzer Zeit im gesamten Volumen des Reaktors die zur sicheren Unterbrechung der Reaktion erforderliche Konzentration erreichen.

Das Einstrahlen von Flüssigkeiten wird seit ca. 50 Jahren auch zum Mischen in betrieblichen Produktionsabläufen eingesetzt. Zum Steuern von Polymerisationsreaktionen werden geringe Mengen derartiger Substanzen in den Reaktor eingestrahlt, um die Reaktion zu beeinflussen. Außerdem bieten Strahlmischer gegenüber mechanischen Rührorganen Vorteile. Sie benötigen weniger Investitionen und besitzen keine beweglichen Teile im Reaktor [6].

In allen bisher beschriebenen Anwendungen ist es das Ziel von Strahlmischern, die zusammengeführten Flüssigkeiten rasch zu vermischen. In den Randzonen der Flüssigkeitsstrahlen, findet ein intensiver Stoffaustausch statt. Der Flüssigkeitsstrahl beschleunigt die ihn umgebende Flüssigkeit und bildet Zirkulationsstrukturen im Strömungsfeld des Reaktors, in denen die Vermischung stattfindet. Die Strömungsfelder, die während des homogenen Vermischens zweier ineinander löslicher Flüssigkeiten entstehen, haben konvektive und diffusive Transportprozesse zur Folge. Diese werden im folgenden Experiment zum Vermischen durch diskontinuierliches Einstrahlen auf tomographischem Wege mit Hilfe der Zweiwellenlängen-Lichtschwächungs-Photometrie visualisiert und räumlich ortsaufgelöst vermessen.

2 Ziel der Arbeit

In der vorliegenden Arbeit werden die Transportvorgänge während des Dosierens von Farbstoffen in Reaktoren mit Hilfe von Flüssigkeitsstrahlen visualisiert und vermessen. Für das Einstrahlen der Flüssigkeit werden unterschiedliche Düsenformen und Arten ihres Einbaus erprobt, wobei sowohl die Einstrahlgeschwindigkeiten und die Einstrahlvolumen variiert werden. Diese Parameter beeinflussen das Strömungsfeld und die zu visualisierende Vermischung.

Da in der chemischen Produktion häufig hochviskose fluide Gemische durch Einstrahlen von niedrigviskosen Reagenzien mit diesen zu vermischen sind, wird zusätzlich die Viskosität der Flüssigkeit im Reaktor variiert. Das Vermischen beider Flüssigkeiten wird visualisiert und der Ablauf im Makro- und Mikrobereich der Ortskalen analysiert. Hierzu dienen ein inerter und ein reagierender Farbstoff. Sie werden als Gemisch in den Reaktor dosiert. Der inerte Farbstoff kennzeichnet das makroskopisch beobachtbare Konzentrationsfeld. Der chemisch reagierende erfährt eine Farbänderung. Diese wird relativ zu der des inerten bewertet, so dass die relativen Konzentrationsänderungen die Transportprozesse und den Reaktionsablauf auf mikroskopischer Ebene sichtbar machen. Dadurch wird der konvektive vom diffusiven Transport im Reaktor unterschieden.

Um die Konzentrationsfelder beider Farbstoffe simultan zu messen, wird die tomographische Zweiwellenlängen-Photometrie eingesetzt. Die lokal gemessene Lichtabsorption ist ein Maß für die Konzentrationsfelder der Farbstoffe. Gegenüber von punktuell messenden Sonden oder der Lichtschnittmethode ermöglicht es diese Messtechnik, räumliche Konzentrationsfelder zu visualisieren. Mit Hilfe der tomographischen Rekonstruktion werden die zeitveränderlichen lokalen Konzentrationen beider Farbstoffe im gesamten Reaktor erhalten. Vorhandene tomographische

Rekonstruktionsalgorithmen, die zum Lösen des inversen Problems notwendig sind, werden für die erforderliche hohe örtliche Auflösung erweitert und verbessert.

3 Stand der Forschung

Im Folgenden werden die Strömungsfelder in mit Flüssigkeitsstrahlen durchmischten Gefäßen dargestellt, die als chemische Reaktoren oder als Behälter in Form von Tanklagern dienen. Dazu werden experimentelle Ergebnisse zum Makromischen erläutert, die mit Hilfe von kontinuierlich oder diskontinuierlich eingespeisten Flüssigkeitsstrahlen erzielt sind. Darüber hinaus werden die eingesetzten Messtechniken und deren Ergebnisse aus Untersuchungen zum Mikromischen beschrieben, sowie ein neuartiges tomographisches Verfahren zum Visualisieren räumlicher Konzentrationsfelder entwickelt.

3.1 Theoretische Grundlagen

Das Mischen kann durch mechanisches Rühren oder durch das Einstrahlen einer Flüssigkeit erfolgen, die mit hoher Geschwindigkeit in eine zweite ruhende Flüssigkeit eingespeist wird. Am Strahlrand erfolgt die Vermischung der Flüssigkeiten. Die dort befindliche Grenzschicht verdickt sich in Ausbreitungsrichtung des Strahls und breitet sich so in der ruhenden umgebenden Flüssigkeit aus. Die Vermischung wird durch den Austrittsort und die Richtung des Flüssigkeitsstrahls relativ zur geometrischen Gestalt des umgebenden Behältervolumens beeinflusst.

Für hinreichend große Behälterabmessungen gelten die Gesetze des Freistrahls, da dann die Strahlausbreitung nicht oder nur in geringem Maße von den Behälterwänden beeinflusst wird. Das Strömungsfeld hängt von der Reynolds-Zahl ab:

$$\text{Re} = \frac{w_n d_n \rho}{\eta} \quad (3.1)$$

Worin w_n die mittlere Geschwindigkeit der Flüssigkeit im Austrittsquerschnitt der Düse, d_n den Düsedurchmesser, ρ die Dichte und η die Viskosität der eingestrahnten Flüssigkeit sind.

Für $Re < 1000$ ist die Strömung im Düsenaustrittsquerschnitt laminar und für $Re > 3000$ turbulent [7]. Liegt eine laminare Strömung im Strahl vor, so ist die folgende Vermischung gering auf Grund der fehlenden turbulenten Schwankungsbewegungen im Strömungsfeld. In technischen Anwendungen liegen fast ausschließlich turbulente Strahlströmungen vor.

Turbulente Freistrahlen lassen sich in 3 Bereiche unterteilen, die in Bild 3.1

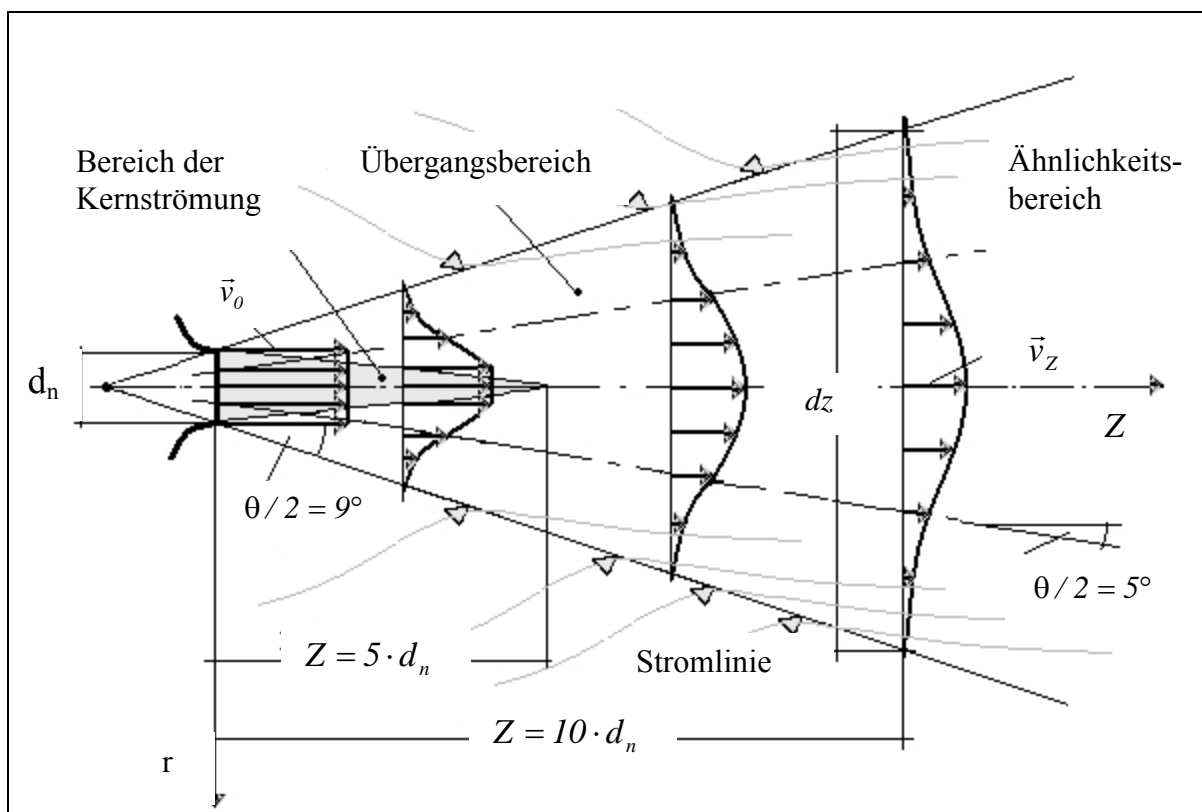


Bild 3.1: Geschwindigkeitsprofil im Freistrahel

dargestellt sind. Zunächst liegt unmittelbar hinter dem Düsenaustrittsquerschnitt eine kegelförmige Kernzone vor, in der die Geschwindigkeit auf der Strahlachse gleich der mittleren Geschwindigkeit im Düsenaustritt ist. Hier ist der Geschwindigkeitsgradient in radialer und axialer Richtung gleich null. Die Länge des Kernbereichs beträgt ungefähr das 5-fache des Düsendurchmessers. Daraus schließt sich ein Übergangsbereich an, in dem sich das radi-

ale Geschwindigkeitsprofil ausbildet. Dieses geht über in den Ähnlichkeitsbereich. In diesem ist das radiale Profil in allen Strahlquerschnitten ähnlich und die Geschwindigkeit nimmt entlang der Strahlachse umgekehrt proportional zur Entfernung vom Düsenaustrittsquerschnitt ab. Die radiale Strahlausbreitung nimmt proportional mit der Strahllänge zu. Die Randzone, in der die Geschwindigkeit auf 5% des Wertes auf der Strahlachse abgesunken ist, wird als Strahlrand definiert [8,9].

Zum Berechnen der Geschwindigkeitsprofile wird das Strömungsfeld als reibungsfrei und mit konstantem Impulsstrom pro Strahlquerschnitt behandelt. Der in jeden Querschnitt in axialer Richtung eindringende Impulsstrom ist konstant und folgendermaßen definiert:

$$\dot{I} = 2\pi\rho \int_0^{\infty} w_z^2(r,z)rdr = \frac{\pi}{4}\rho d_n^2 w_n^2 = \text{konst.} \quad (3.2)$$

Hierhin bedeuten ρ die Dichte der Flüssigkeit im Strahl, $w_z(r,z)$ die axiale örtliche Geschwindigkeit, r und z die Koordinaten in radialer bzw. axialer Richtung.

Die bekannten experimentell ermittelten Profile der axialen und radialen Geschwindigkeitskomponenten werden von Renz [8] erläutert.

Das Eintreten der umgebenden Flüssigkeit in den Strahl wird als Entrainment $R(z)$ bezeichnet. Es wird für einen Strahlquerschnitt mit der Ortskoordinate z durch das Verhältnis zwischen dem Massenstrom $\dot{M}_s(z)$ und dem im Austrittsquerschnitt der Düse vorliegenden \dot{M}_n definiert:

$$R(z) \equiv \frac{\dot{M}_s(z)}{\dot{M}_n} \quad (3.3)$$

Für gleiche Dichten der beiden Flüssigkeiten gilt nach Umformung:

$$R(z) = K \frac{z}{d_n} \quad (3.4)$$

Hierin bezeichnet K einen Proportionalitätsfaktor und z die axiale Koordinate entlang der Strahlachse. Für unterschiedliche Dichten der Flüssigkeiten gilt:

$$R(z) = K \frac{z}{d_n} \sqrt{\frac{\rho_u}{\rho}} \quad (3.5)$$

Hierhin bedeuten ρ_u und ρ die Dichten der umgebenden und der eingestrahnten Flüssigkeit. Renz [8] gibt die bekannten Gleichungen zum Berechnen des Entrainments in der Umgebung von Flüssigkeitsstrahlen an.

3.2 Ausbreitung von Flüssigkeitsstrahlen

Die mit Hilfe einer geeignet gestalteten Düse in den Behälter eingestrahnte Flüssigkeit dringt in die umgebende ruhende Flüssigkeit ein. Der mit dem Strahl bewegte Massenstrom wächst auf Grund des Entrainments an. Dadurch stellt sich im Strahl eine abnehmende Geschwindigkeit in Ausbreitungsrichtung ein. An der sich bildenden Grenzschicht zwischen beiden Flüssigkeiten findet die Vermischung statt.

Erreicht der Strahl die freie Oberfläche der im Behälter befindlichen zunächst ruhenden Flüssigkeit, so entstehen hier Wellen. Die im Strahl befindliche Flüssigkeit wird in Richtung zum Behälterboden umgelenkt. Das gleiche passiert beim Kontakt mit den Behälterwänden. Auf Grund dieser Umlenkung bildet sich eine Rückströmung entgegen der Richtung der Strahlausbreitung. Volumenelemente aus der Rückströmung werden zusätzlich in den Strahl eingesogen. Verglichen mit dem Entrainment bei der Strahlausbreitung im freien Raum, ist das resultierende Entrainment des Strahls daher um 10% bis 20% größer, wenn er sich im Behälter ausbreitet. Allerdings entstehen aufgrund des geringeren Impulstransports im Behälter Bereiche mit schlechter Durchmischung. Beim Anwenden kontinuierlich einspeisender Flüssigkeitsstrahlen wird die Flüssigkeit aus diesen Bereichen abgesaugt und im Behälter erneut verteilt. Dadurch wird das Vermischen verbessert.

3.3 Ergebnisse zum Vermischen mit Flüssigkeitsstrahlen

Strahlmischvorgänge waren bereits Thema vieler experimenteller Arbeiten. In diesen werden die makroskopischen Mischzeiten oft auf sehr einfache Weise mit Hilfe von Sonden gemessen. Damit wird der zeitliche Verlauf der Konzentration lokal dargestellt. Der Mischvorgang ist abgeschlossen, wenn die zeitlichen Konzentrationsschwankungen lokal geringer als ein festzulegender Wert sind. Dazu wird ein geeigneter Farbstoff mit einer der Flüssigkeiten zugegeben und das Anfärben oder Entfärben der Mischung wird als Maß für die lokale Farbstoffkonzentration verwendet.

Die Mehrheit der beschriebenen Ergebnisse gilt für kontinuierliches Einstrahlen. Sie werden von Haarde [9] erläutert, sofern sie vor 1989 erzielt wurden. Haarde [9] gibt eine auf empirischem Wege hergeleitete Beziehung für die gemessenen Mischzeiten an. Der Vergleich mit bekannten Mischzeiten ist nur bedingt möglich, da unterschiedliche Behälterformen und Einstrahlpositionen verwendet sind. Darüber hinaus wird die Mischgüte unterschiedlich oder nicht definiert. Der Einfluss der Messmethode auf die Ergebnisse ist ebenfalls zu berücksichtigen. Im allgemein wird kein oder nur ein geringer Einfluss von Reynolds- oder Froude-Zahl auf die Mischzeiten beim turbulenten Einstahlen festgestellt.

In den Tabellen 3.1-3.5 sind die wichtigsten Forschungsarbeiten angegeben, in denen Ergebnisse für Mischvorgänge mit Hilfe von kontinuierlich oder diskontinuierlich arbeitenden Flüssigkeitsstrahlen enthalten sind. Die angegebenen Arbeiten sind je nach räumlichem Umfang der eingesetzten Messtechnik gruppiert. In den meisten Fällen ist nur das Makromischen mit Hilfe eines inerten Tracers untersucht. Außerdem werden oft nur lokale Messungen durchgeführt oder es wird das Vermischen auf photooptischem Wege beobachtet.

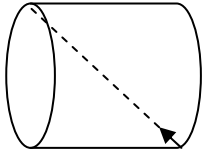
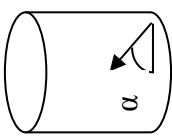
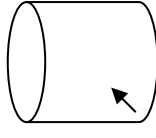
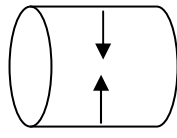
Autoren	Behälterform	Untersuchtes Mischprozess und Applikation	Meßmethode, Mischzeitdef.	Einstrahlgeschwindigkeit od. Reynolds-Zahl	Behälterabmessungen	zusätzlich variierte Parameter
Punktförmige Messungen						
Grenville, Tilton [6-11]		Makromischen; kontinuierliche Strahlmischen	Leitfähigkeit auf 3 Proben; 99% Homogenität	$w_n=9,5-24,8\text{m s}^{-1}$ $Re>10^4$	$D=0,61-1,68-3,98-36\text{m}$ $H/D=0,2-1,0$	Düsedurchmesser; Reaktorrichtung (horiz. und vert.)
Patwardhan und Gaikwad [12]; Patwardhan [7]		Makromischen; kontinuierliche Strahlmischen	Farbstoffvisualisierung und Leitfähigkeit auf 4 Proben; 95% Homogenität	$w_n=2-12\text{m s}^{-1}$	$D=0,5\text{m}$ $H/D=1,5$	Düsedurchmesser; Einstrahlwinkel
Zughibi und Ahmad [13]		Makromischen; kontinuierliche Strahlmischen	Leitfähigkeit auf 2 Proben; 95% Homogenität	$Re=9000-32166$	$D=0,296\text{m}$ $H/D=1$	Einstrahlwinkel; symmetrische und asymmetrische Einstrahlung; Seitenverhältnis
Orfanotiis und Mitarbeiter [14]; Simon und Fournade [15]		Makromischen; kontinuierliche Strahlmischen	Leitfähigkeit auf 8 Proben; 95% Homogenität	$Re=280-27500$	$D_1=0,5\text{m}$ $H/D=1$ $D_2=4,48\text{m}$ $V=70\text{m}^3$	Viskosität, Einstrahlposition, kontinuierliches und alternierendes Einstrahlen

Tabelle 3.1: Zusammenstellung experimenteller Untersuchungen zum Mischen von Flüssigkeiten mit Hilfe von Flüssigkeitsstrahlen

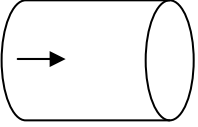
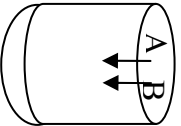
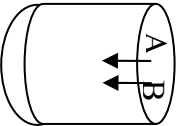
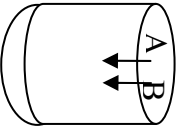
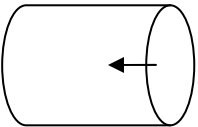
Autoren	Behälterform	Untersuchtes Mischprozess und Applikation	Meßmethode, Mischzeitdef.	Einstrahlgeschw., Re-Zahl	Behälterabmessungen	zusätzlich variierte Parameter
Punktförmige Messungen						
Kammel und Mitarbeiter [16]		Makromischen, Reaktionsinhibition; diskontinuierliches Einstrahlen	12 optische Sonden; 95% Homogenität	Re=25000 bis Re=65000	V=10l	Verhältnis Füllhöhe/Reaktorvolumen; Inhibitorkonzentration und Typ
Baldyga, Bourne und Zimmermann [17]		Makro- und Mikromischen; Semi-batch Reaktor	Spektrophotometrische Messungen des Produktverhältnisses der Reaktion; 95% Homogenität	$w_n=4-12\text{m s}^{-1}$ $w_n=4-10\text{m s}^{-1}$ Re=5200-90000	D=300mm H=0,425m	V_A/V_B : Einbauposition des Zugaberohrs; Anfangkonzentration und Einstrahlzeit von B
Baldyga, Bourne und Gholap [18]						Viskosität der eingesetzten Flüssigkeiten (6,2mPa)
Baldyga und Mitarbeiter [19]				$v_1=2-9,2\text{m s}^{-1}$ $v_2=4,85-11,93\text{m s}^{-1}$ Re ₁ =27000-124000 Re ₂ =170000-420000	D ₁ =0,45m D ₂ =0,61m H ₁ =0,6m H ₂ =1,1m	Düsedurchmesser; Einstrahlzeit von B
Patwardhan und Thatte [20]		Makromischen; kontinuierliches Einstrahlen	4 Leitfähigkeitssproben; 95% Homogenität	V=0,4-3,7m s ⁻¹	D=0,3-0,5-1m H=0,6-0,5-1m	Düsenbauhöhe

Tabelle 3.2: Zusammenstellung experimenteller Untersuchungen zum Mischen von Flüssigkeiten mit Hilfe von Flüssigkeitsstrahlen

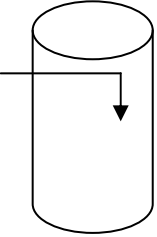
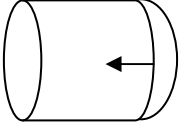
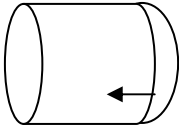
Autoren	Behälterform	Untersuchtes Mischprozess und Applikation	Meßmethode, Mischzeitdef.	Einstrahlgeschwindigkeit od. Reynolds-Zahl	Behälterabmessungen	zusätzlich variierte Parameter
Punktförmige Messungen						
Perona, Hylton, Youngblood und Cummis [21]		Makromischen; kontinuierliches Strahlmischen	Leitfähigkeit auf 4 Proben; 95% Homogenität	Re=15000-130000 Re=80000-311000	D=0,6m H/D=5 D=3m H/D=4	Düsendurchmesser Düsendurchmesser; Düsenanzahl und Position
Schmetzek, Steiff, Weinspach [3]		Makromischen; diskontinuierliches Strahlmischen	Temperatur mit 64 Thermoelementen; selbstdefinierte Mischgüte	Re=30-10 ⁶	V=0,016m ³ H/D=1,05 V=0,127m ³ H/D=0,75-1,05 V=1,016m ³ H/D=0,75-2,00	Düsendurchmesser; Viskosität Reaktor- und eingestrahltten Flüssigkeit
Walzel und Schoft [22]		Makromischen; kontinuierliche und diskontinuierliche Strahlmischer	Temperaturmessungen in unterschiedlichen Stellen und Entfärbungsversuche; 98% Homogenität	Re=80-500000	V ₁ =50l V ₂ =10m ³	H/D

Tabelle 3.3: Zusammenstellung experimenteller Untersuchungen zum Mischen von Flüssigkeiten mit Hilfe von Flüssigkeitsstrahlen

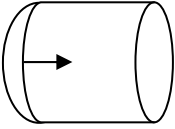
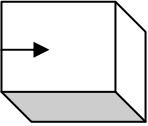
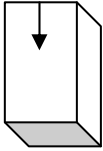
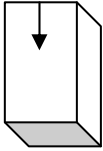
Autoren	Behälterform	Untersuchtes Mischprozess und Applikation	Messmethode, Mischzeitdef.	Einstrahl geschw, Re-Zahl	Behälter-Abmessungen	zusätzlich variierte Parameter	Örtl./Zeitl Aflösung
planare Messungen							
Renz [9]		Makromischen; Freistrahl	Lichtschwächungstomographie; Selbstdefinierte Mischgüte	Re=7000 -54000	D=0,15m; V=0,0065m ³ H/D=1-3m	Düsendurchmesser und Position; Einstrahlwinkel; eingestrahlt. Flüss.vol; Viskositätsverh.	5 Ebene Mess- vol.=(3x3x10) mm ³ f=0,1-3,3Hz
Campbell und Turner [23-24]		Makromischen; disk. Einstrahlen	Videoaufnahmen; Lichschnittverf.	Re=800 -3290	D=0,3m V=0,062m ³	Behälterausrichtung; Bodenform	f=25Hz
				Re=1000	V=(400x196x297)mm ³	Viskositätsverhältnis der Flüssigkeiten;	
Bellerose und Rogers [25]		Mikromischen; Freistrahl	pH-Messungen mit LIF	Re=9000	V=(30x30x60)mm ³	Fluoresceinkonzentration	Messvol.=6cm; f=30Hz
Coppeta und Rogers [26]						Mehrere Farbstoffsysteme; Fluoresceinkonzentration	f=30Hz
Coppeta und Rogers [27]		Umschlagpunkt laminar-turbulent; Freistrahl	pH- und Konzentrationsmessungen mit LIF	Re=400 -1000	V=(48x24x30)d _n	regierender und nicht reagierender Flüssigkeiten; Temperatur	Mess- vol.:(40x40x1) mm ³ mit (0,04x0,04x1) mm ³ /pixel, f=10Hz
Hong, Sugii, Okamoto, Madarame [28]							

Tabelle 3.4: Zusammenstellung experimenteller Untersuchungen zum Mischen von Flüssigkeiten mit Hilfe von Flüssigkeitsstrahlen

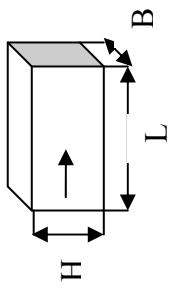
Autoren	Behälterform	Untersuchtes Mischprozess und Applikation	Meßmethode, Mischzeitdef.	Einstrahlgeschwindigkeit od. Reynolds-Zahl	Behälterabmessungen	Örtl./Zeitl. Auflösung
räumliche Messungen						
Merkel, Dracos und Rys [29]		Makromischen; kontinuierliches Strahlmischen	3-D-LIF; Mischzeit undef.	Re=4275	H=1,0m L=3,0m B=1,5m	Messvol.: (15x15x3)mm ³ 60µm/pixel 9,52 Hz

Tabelle 3.5: Zusammenstellung experimenteller Untersuchungen zum Mischen von Flüssigkeiten mit Hilfe von Flüssigkeitsstrahlen

Revill [31] hat die publizierten Ergebnisse zur Strahlvermischung zusammenfassend dargestellt. Er hat Berechnungsverfahren für das Dimensionieren von Strahlmischern vorgeschlagen. Dabei hat er die Anwendung von einzelnen oder mehreren Strahlen, je nach Seitenverhältnis des Reaktors, berücksichtigt. Die Strahlachse soll der Richtung der größten Ausdehnung des Reaktorvolumens folgen und die Strahlgeschwindigkeit soll so gewählt werden, dass Toträume vermieden werden. Der Vergleich zwischen der Energieeffizienz der Strahlvermischung und der von Rührwerken ergibt, dass Strahlmischer nicht effizienter mischen, aber wegen der einfachen apparativen Gestaltung wirtschaftlich attraktiver als Rührwerke sind.

Patwardhan [13] und Parwardhan und Gaikwad [12] verwenden eine experimentelle Anlage, in der der Einfluss des Einstrahlwinkels, des Injektordurchmessers und der Einstrahlgeschwindigkeit auf das Vermischen in einem Tank mit 0,75m Höhe und 0,5m Durchmesser untersucht wird. Der Injektor ist auf einer Seite des Reaktorbodens eingebaut. Das durch den Injektor eingestrahlte Wasser wird rezirkuliert und der Farbstoff wird direkt auf die freie Oberfläche der Flüssigkeit in der Mitte des Behälters dosiert. Vier Leitfähigkeitssonden sind entlang des Behälterumfangs und auf unterschiedlichen Höhen angeordnet, um die Farbstoffkonzentration zu messen. Es wird zusätzlich ein roter Farbstoff dosiert, um das Vermischen und die Geschwindigkeitsprofile im Reaktor zu visualisieren. Die Mischzeit wird als die Zeit definiert, die notwendig ist, um 95% der idealen Endkonzentration zu erreichen. Hinsichtlich des Einstrahlwinkels, wird die schnellste Vermischung unter 45° erreicht. Eine gute Vermischung liegt auch für 30° und 60° vor. Bei achsparalleler Einstrahlung verbleibt die eingestrahlte Flüssigkeit fast nur im unteren Bereich des Reaktors. Für jeden Einstrahlwinkel wird bei gleichem Eintrittsimpuls des Strahls die Vermischung durch Vergrößern des Düsendurchmessers verbessert. Mit vergrößertem Düsendurchmesser führt das Einstrahlen zu geringeren Mischzeiten als das mechanische Rühren bei gleicher Energiezugabe.

Parwardhan und Thatte [21] untersuchen den Einfluss der Düseneinbauhöhe auf das Vermischen in einem zylindrischen Reaktor. Dabei werden die Reaktorabmessungen und die Austrittsgeschwindigkeit der Flüssigkeit variiert. Die Flüssigkeit wird in Richtung des Behälterbodens eingestrahlt. Vier Leitfähigkeitsproben werden eingesetzt, um die Konzentrationen im Reaktor zu messen. Die Mischzeit bis zum Erreichen der Homogenisierung von 95% wird berechnet. Sie nimmt mit zunehmender Einbautiefe der Düse ab. Das Entrainment steigt dadurch und die Vermischung verbessert sich. Diese Ergebnisse werden mit Hilfe der numerischen Berechnung bestätigt.

Grenville und Tilton [32] untersuchen das Vermischen eines Farbstoffs in horizontal und vertikal angeordneten Reaktoren mit Durchmessern zwischen 0,61m und 3,98m. Der Farbstoff wird durch eine Düse in den Reaktor eingestrahlt. Die Konzentration wird an drei Stellen mit Hilfe von Leitfähigkeitssonden gemessen. Die gemessenen Mischzeiten gelten für eine Homogenisierung bis zu 99%. Der Düsendurchmesser wird zwischen 5,8mm und 26mm variiert. Die Düse ist am Reaktorboden außermittig eingebaut. Der Strahlwinkel ist so gewählt, dass sich der Schnittpunkt der Strahlachse mit der Flüssigkeitsoberfläche an der gegenüberliegenden Seite des Behälters befindet. Die Messungen werden für Reynolds-Zahlen $Re > 10^4$ durchgeführt. Das Vermischen wird von der Dissipationsgeschwindigkeit der turbulenten kinetischen Energie in den von der Düse entfernt liegenden Bereichen kontrolliert. Die Verringerung der Strahlgeschwindigkeit wird proportional zur Geschwindigkeit am Düsenaustritt und zum Abstand von der Düse angenommen. Eine Korrelation für die Mischzeit wird vorgeschlagen.

Simon und Fonade [16] und Orfanotis, Fonade, Lalane und Doubrovine [33] untersuchen das Makromischen in zwei zylindrischen Reaktoren, mit Volumen von $0,09\text{m}^3$ bzw. 70m^3 . Dazu setzen sie zwei Düsen ein, die entweder kontinuierlich gleichzeitig oder diskontinuierlich alternierend einstrahlen. Die Strahlen sind waagrecht oder radial gerichtet. Die Düsen sind so eingebaut, dass die erzeugten Strahlen achsparallel versetzt im Gleichstrom oder

Gegenstrom arbeiten bzw. auf gleicher Achse gegeneinander gerichtet sind. In diesem Experiment werden sowohl die Scherströmung favorisiert als auch die schnellere Umwandlung des Strahlimpulses in turbulente Dissipation. Ein inerter Tracer wird in die sich im Reaktor befindliche wässrige Carboxymethylzellulose-Lösung oberhalb einer der Düsen eingespeist. Die Viskosität der Lösung wird variiert. Die Reynolds-Zahl an der Düse beträgt zwischen $Re=280$ und $Re=27500$. 8 Leitfähigkeitssonden werden verwendet, um die Konzentrationen im Reaktor zu messen. Die notwendige Zeit t_M zum Erreichen von 95% Homogenisierung wird gemessen.

Aus den experimentellen Ergebnissen ergibt sich kein wesentlicher Einfluss der relativen Position der Düsen auf das Vermischen. Einen großen Einfluss hat jedoch der Impuls des austretenden Strahls. Um dies zum berücksichtigen wird ein Mischzeit Faktor M definiert, der den Impuls I und die Reaktorform beinhaltet:

$$M = (T_M/T_r) \cdot (I_s^*)^\alpha \quad (3.6)$$

$$I_s^* = (I/\rho Vg)(\eta^*)^\beta \quad (3.7)$$

Es gilt:

$$T_r = D/(gH)^{1/2} \quad (3.8)$$

wobei D den Reaktordurchmesser, H die Reaktorhöhe und g die Erdbeschleunigung bedeuten.

In Gl. (3.7) ist I_s^* der spezifische Impuls eines oder mehrerer Strahlen, ρ und η^* sind die Flüssigkeitsdichte bzw. die relative Viskosität, α und β sind zwei experimentell zu ermittelnde Exponenten. Für die laminare Strömung beträgt der Mischzeitfaktor $M=0,06-0,28$ und für die turbulente Strömung beträgt $M=10-11$. Diese Korrelationen gelten für unterschiedliche Strahlkonfigurati-

onen, aber nur für zylindrische Reaktoren mit Seitenverhältnissen gegen 1. Ein externer Kreislauf mit Hilfe von Förderpumpen wird hier nicht berücksichtigt. Perona, Hylton, Youngblood und Cummis [22] untersuchen das Vermischen mit Hilfe kontinuierlich eingespeister Strahlen in liegende Behälter mit Volumen von $0,87\text{m}^3$ und 95m^3 . Dabei werden einzelne und doppelt angeordnete Flüssigkeitsstrahlen eingesetzt. Zum Beobachten der Vermischung wird ein Tracer von der Behälteroberseite dosiert. Seine Konzentration wird mit Hilfe von Leitfähigkeitssonden gemessen, die an 4 Orten im Behälter angebracht sind, welche durch eine schlechte Durchmischung gekennzeichnet sind. Die Mischzeit kennzeichnet das Konzentrationsfeld mit 95% Homogenisierung. Sie nimmt mit steigender Reynolds-Zahl ab. Die Anzahl der Strahlen hat keinen Einfluss auf die Mischzeit. Für geringere Düsendurchmesser verkürzt sich die Mischzeit. Diese wird als Funktion des Einspeise-Zeitintervalls gemessen. Es wird festgestellt, dass mit dem Strahl ein Volumen, welches dem 28-fachen des Reaktorvolumens entspricht, zugeführt werden muss, um eine gute Vermischung zu erzielen.

Zughbi und Ahmad [14] untersuchen das Vermischen durch kontinuierliches Einstrahlen in einen Behälter mit 296mm Durchmesser und Höhe. Der Düsendurchmesser beträgt 18mm. Die Reynolds-Zahlen werden am Düsenaustritt zwischen $Re=9000$ und $Re=32166$ variiert. Der inerte Tracer wird von der Behälteroberseite eingespeist und seine Konzentration wird mit Hilfe zweier Leitfähigkeitssonden gemessen. Die Mischzeit bis zum Erreichen einer 95%-igen Homogenisierung wird gemessen. Die Flüssigkeit wird vom Behälterboden abgesaugt und seitlich eingestrahlt. Der Einstrahlwinkel wird variiert, um seinen Einfluss auf das Vermischen zu untersuchen. Auf theoretischem Wege wird gezeigt, dass die Mischzeit für asymmetrische Einstrahlung, d.h. unterschiedliche Einstrahl- und Saugwinkel, um 17% geringer ist als für entsprechende symmetrisch angeordnete Strahlen.

Diskontinuierlich betriebene Flüssigkeitsstrahlen werden von Walzel und Schoft [23] und Renz [8] eingesetzt. Diese werden angewendet, um chemische Reaktionen zu unterbrechen. Neben dem Einstrahlen einer Flüssigkeit in dem Reaktor setzen Walzel und Schoft [23] auch Gase ein, die zusätzlich zur Vermischung beitragen. Es werden sowohl Messungen mit stationärer als auch mit instationärer Flüssigkeitseindüsung durchgeführt. Dazu werden zwei Reaktoren mit unterschiedlichen Volumen verwendet: ein 50-l-Modellreaktor und einen 10-m³-Kessel. Das Makromischen im Reaktor wird durch Temperaturmessungen beobachtet. Eine auf 90°C aufgeheizte Flüssigkeit wird in den Reaktor eingestrahlt, dessen Inhalt sich auf Raumtemperatur befindet. Mit Hilfe von mehreren PT-100-Elementen wird die lokale Temperatur an unterschiedlichen Stellen im Reaktor gemessen und der zeitliche Temperaturverlauf registriert. In beiden Versuchsreaktoren wird ein ähnlicher Temperaturverlauf unter gleichen Versuchsbedingungen gemessen. Mit abnehmender Reynolds-Zahl ist ein höherer Strahlimpuls notwendig, um die gleiche Mischgüte zu erreichen.

Renz [8] setzt zwei zylindrische Behälter mit 0,15m und 0,30m Durchmesser ein. Er führt Messungen am stehenden und liegenden Behälter mit variablen Füllständen von $h/D=1-3$ durch. Dazu verwendet er Mischdüsen mit Durchmessern $d_n=1\text{mm}$ und $d_n=2\text{mm}$, die in der Mitte des Behälterbodens oder außermittig eingebaut sind. In den experimentellen Untersuchungen wird der Flüssigkeitsstrahl angefärbt und die Vermischung beobachtet.

Im kleineren Behälter wird die Lichtschwächungstomographie mit 4 Strahlrichtungen angewendet. Die Konzentrationsfelder des Farbstoffs werden auf 5 Querschnittsebenen mit der räumlichen Auflösung von $3\times 3\times 10\text{mm}^3$ berechnet. Mit Hilfe dieser Ergebnisse wird die Mischgüte

$$M = 1 - \frac{\frac{1}{N} \sum_{j=1}^N |c_j - c_\infty|}{c_\infty} = 1 - \frac{|\overline{\Delta c}|}{c_\infty} \quad (3.9)$$

ermittelt. c_j bedeutet die Konzentration für das j -te Volumenelement, c_∞ die gemessene Konzentration im Behälter nach vollständiger Durchmischung und N die Anzahl der Volumenelemente.

Für die Mischgüte $M=0$ ist die Konzentration der eingestrahnten Flüssigkeit in dem gewählten Messausschnitt gleich null, während für $M=1$ der Behälterinhalt homogen vermischt ist.

Der Einfluss von Düsenposition und Reynolds-Zahl auf die dimensionslose mittlere Konzentration wird für ein eingestrahktes Flüssigkeitsvolumen von 1% des Behälterfüllvolumens untersucht. Die bessere Durchmischung wird bei seitlicher Einstrahlung erreicht. Es wird kein Einfluss der Reynolds-Zahl festgestellt, wenn diese zwischen $Re=10000$ und $Re=25000$ variiert. Zusätzlich wird die Mischgüte für unterschiedliche eingestrahkte Flüssigkeitsvolumen V_{ein}^* berechnet.

Die Messungen am Behälter von 0,3mm Durchmesser werden auf visuellem Wege durchgeführt. Bilder der Anfärbvorgänge werden mit Hilfe einer Videokamera mit 25Hz aufgenommen. Die Mischzeiten werden gemessen und als Funktion der kinetischen Energie E des Flüssigkeitsstrahls dargestellt:

$$\dot{E} = \frac{\pi}{8} \rho \omega_n^3 d_n^2 \quad (3.10)$$

Es bedeuten ρ , die Dichte der Flüssigkeit im Strahl ω_n , die mittlere Geschwindigkeit des Flüssigkeitsstrahls am Düsenaustritt und d_n , den Düsendurchmesser. Der Einfluss der Einstrahlposition wird auf die Mischzeiten für unterschiedliche Füllstände und Einstrahlgeschwindigkeiten am stehenden Behälter untersucht. Sowohl für das mittige als auch das seitliche Einstrahlen nimmt die Mischzeit in gleicher Weise ab, wenn der Leistungseintrag \dot{E}/V zunimmt. Für das seitliche Einstrahlen vergrößert sich die Mischzeit mit Erhöhen der Behälterfüllmenge. Für zunehmende Reynolds-

und Froude-Zahlen soll ein größeres Flüssigkeitsvolumen V_{ein}^* eingestrahlt werden, um die gleiche Mischgüte im Behälter zu gewährleisten.

3.4 Einfluss der Viskosität

Der Einfluss der Viskosität auf das Strahlmischen ist nur unzureichend untersucht. Die meisten Untersuchungen werden mit nur geringen Veränderungen der Viskosität durchgeführt, so dass kein Einfluss dieser Eigenschaft auf die Mischzeit festgestellt wird [34].

Für turbulente Strömungen werden in der Nähe fester Wände die Schwankungsbewegungen wegen der hohen Viskosität der Behälterflüssigkeit gedämpft. Scharf [35] untersucht den Einfluss von Polymerzusätzen auf die Turbulenzstruktur in Grenzschichten. Es wird eine verringerte Grenzschichtdicke im Kernbereich des Flüssigkeitsstrahls festgestellt und eine Vergrößerung des Ausbreitungswinkels der Grenzschicht im Bereich turbulenter Strömung. Auf Grund der größeren Schubspannungen wird der Wirbelzerfall in kleinere Wirbel behindert [36]. Für höhere Polymerkonzentrationen im Behälter wird auch die Ausbildung und Ablösung der größeren Wirbel behindert. Starke Schwankungen der axialen Geschwindigkeit im Strahl treten auf und die radiale Ausbreitung des Flüssigkeitsstrahls ist geringer. Der Flüssigkeitsstrahl wird instabiler und einzelne Fäden und Streifen bilden sich am Strahlrand.

Campbell und Turner [24,25] untersuchen das Einstrahlen einer Flüssigkeit geringer Viskosität in eine Flüssigkeit hoher Viskosität. Die radiale Aufweitung des Flüssigkeitsstrahls wird wegen der hohen Viskosität der umgebenden Flüssigkeit verringert und deren Mitreißen unterdrückt. Der Energietransport erfolgt mit den größeren Wirbeln. Durch das Gleichgewicht zwischen dem Energietransport in den Wirbeln und der dissipierten Energie in der umgebenden Flüssigkeit, ergibt sich eine Proportionalität zwischen der Reynolds-Zahl der Flüssigkeit am Düsenaustritt und dem Verhältnis v_w/v der

kinematischen Viskositäten der umgebenden und eingestrahnten Flüssigkeiten. Für ansteigende Viskositätsverhältnisse soll die Reynolds-Zahl im Strahl erhöht werden, um den gleichen Vermischungsgrad zu erreichen.

Renz [8,34] führt Messungen mit erhöhten Viskositäten der den Strahl umgebenden Flüssigkeiten in einem Behälter mit $D=0,3\text{m}$ Durchmesser und dem Füllstand $h/D=2$ durch. Das Verhältnis zwischen der Viskosität der Behälterflüssigkeit und der eingestrahnten Flüssigkeit wird zwischen $\eta_u/\eta=54$ und 670 variiert. Das Strömungsfeld wird durch Farbschlieren visualisiert. Mit steigender Viskosität wird die radiale Aufweitung des Flüssigkeitsstrahls verringert und das Mitreißen der umgebenden Flüssigkeit wird nahezu vollständig unterdrückt. Die gemessenen Mischzeiten bis zur Anfärbung von 90% des Reaktorvolumens sind für geringe Viskositätsdifferenzen unabhängig von der Reynolds-Zahl. Die Mischzeiten steigen für steigende Viskositäten und sinkende Reynolds-Zahlen. Nur die größte eingestellte Reynolds-Zahl $Re=48000$ ermöglicht die Vermischung für das Viskositätsverhältnis $\eta_u/\eta=610$. Schimetzek, Steiff und Weinspach [3] untersuchen das diskontinuierliche Vermischen eines Kühlmittels in drei zylindrischen Reaktoren mit Volumen $0,016\text{m}^3$, $0,127\text{m}^3$ und $1,016\text{m}^3$ und ähnlicher geometrischer Form. Die Düse wird in der Mitte des Reaktorbodens eingebaut. Folgende Betriebsparameter werden variiert: die Reynolds-Zahl von $Re=30$ bis 100000, das Seitenverhältnis von $H/D=0,75$ bis 2, das Verhältnis Düse- zum Reaktordurchmesser von $d_n/D=0,01$ bis 0,04, die kinematische Viskosität der Reaktorflüssigkeit von $\nu_u=2 \cdot 10^{-7}$ bis $5 \cdot 10^{-3}\text{m}^2/\text{s}$ und die des Kühlmittels von $\nu_c=1 \cdot 10^{-6}$ bis $7 \cdot 10^{-6}\text{m}^2/\text{s}$. Mit Hilfe von 64 Thermoelementen wird die Temperatur in verschiedenen Stellen im Behälter gemessen und damit eine Mischgüte berechnet, die der direkten Messung des effektiven Wärmetauschs entspricht. Die Mischgüte beträgt $M=0$ für inhomogene Vermischung und $M=1$ für homogene Vermischung. Die Mischzeiten verkürzen sich, wenn die Verhältnisse H/D und d_n/D steigen. Das gilt auch für steigende Reynolds-Zahlen solange $Re<10000$, während für $Re>10000$ der Düsendurchmesser

verringert werden muss, um eine Verbesserung des Mischprozesses zu erhalten. Es ist kein direkter Einfluss der Viskosität auf den Mischprozess beschrieben. Die Viskosität ist nur in die Reynolds-Zahl eingebunden.

Kammel, Schlüter, Steiff und Weinspach [17] untersuchen das Vermischen eines Farbstoffs in einer hochviskosen Flüssigkeit in einem Laborreaktor von 10 Liter Volumen. Der Farbstoff wird durch eine Düse eingestrahlt, wobei die Reynolds-Zahlen am Düsenaustritt zwischen $Re=25000$ und 65000 variieren. Die Farbstoffkonzentrationen werden mit Hilfe von 12 optischen Sonden gemessen und die Mischzeiten für die erfolgte Homogenisierung von 95% angegeben. Die Makromischzeit sinkt für steigende Reynolds-Zahlen und steigt für steigende Verhältnisse h/D . Dabei wird die Inhibition der Polymerisation von Styrol in einem Reaktionskalorimeter untersucht. Mit Zugabe von p-Benzoquinone im Konzentrationsverhältnis von 1,555 zum Reaktionsstarter, kann die Reaktion gestoppt werden. Für Konzentrationsverhältnisse $<1,555$ beginnt die Polymerisationsreaktion in unterschiedlichen Zeitabständen in Abhängigkeit vom Konzentrationsverhältnis erneut. Darüber hinaus kann die Reaktion nach Zugabe des Reaktionsstarters wieder gestartet werden. Die Qualität des Produkts wird nicht beeinflusst.

In Rahmen der bekannten experimentellen Untersuchungen wird allein das Makromischen beobachtet. Um den molekularen Transport und das Mikromischen zu untersuchen, müssen andere Messtechniken eingesetzt werden.

3.5 Messen von Mikromischzeiten

Bekannte Messverfahren zum Messen von Mischzeiten sind von Kling [37] zusammengefasst. Im Vergleich zum Messen des Makromischens, werden der Flüssigkeit zwei Farbstoffe zugegeben, von denen einer sich durch Farbumschlag auf Grund einer chemischen Reaktion verändert. Dadurch werden Aussagen über die Mikrovermischung und den molekularen

Stofftransport möglich [38,39,40,41,42]. Die mit unterschiedlichen Methoden gemessenen Mischzeiten weichen stark voneinander ab und sind daher nicht vergleichbar [43].

Werden zum Messen der Mikromischzeiten reagierende Stoffssysteme eingesetzt, so handelt es sich häufig um konkurrierende Konsekutiv- oder Parallelreaktionen. Das Verhältnis der Mengen an gebildeten Reaktionsprodukten beider Reaktionssysteme ist ein Maß für das Verhältnis von Mikromischzeit zu den Reaktionszeiten der Folge- bzw. langsameren Primärreaktionen.

Die Anwendung von konkurrierenden Parallelreaktionen schlagen Fournier, Falk und Villermaux [44] vor. Es handelt sich um eine mit der Dushman Reaktion gekoppelte Säure-Basis Neutralisation. Die Neutralisation verläuft spontan, während die Dushman Reaktion mit einer Geschwindigkeit abläuft, die von gleicher Größenordnung ist wie der Verlauf des Mikromischens. Das Reaktionsprodukt der langsameren Reaktion bildet sich, wenn die Vermischung langsam verläuft. Aus dem Mengenverhältnis der Reaktionsprodukte kann die Mikromischzeit berechnet werden. Die Menge der Reaktionsprodukte können mit Hilfe der Spektrophotometrie gemessen werden. Das vorgeschlagene Reaktionssystem wird zum Beobachten des Mikromischens in Rührreaktoren mit Volumen von 1l und 20l eingesetzt.

Guichardon und Falk [45] stellen die Betriebsbedingungen zum Anwenden dieses Reaktionssystems in Batch- und kontinuierlichen Mischern zusammen. Die beschriebenen konkurrierenden Parallelreaktionen werden auch von Ferrouillat, Tochon und Peerhossaini [46] zum Untersuchen des Mikromischens in Rohrreaktoren verschiedener Bauarten angewendet.

Assirelli und Mitarbeiter [47] messen das Mikromischen in Reaktoren mit Hilfe der Iodide-Iodate Reaktion. Ein ähnliches System verwenden Akiti und Mitarbeiter [48] für Untersuchungen in semi-batch Reaktoren mit Volumen von 2l und 4l. Die Konzentration des Produkts wird in jeder Probe mit Hilfe eines Gaschromatographen gemessen.

Baldyga, Bourne und Zimmermann [18] untersuchen das Vermischen in Strahlmischern mit Hilfe konkurrierender konsekutiver Reaktionen. Eine alkalische Naphtol-Lösung (A) wird in einen Reaktor mit 0,3m Durchmesser durch einen 8mm Injektor eingestrahlt. Eine Diazo-Sulfanilsäure Lösung (B) wird über ein Rohr mit 1mm Durchmesser ebenfalls in den Reaktor gefördert. Der Injektor ist senkrecht nach unten eingebaut. In den experimentellen Untersuchungen werden die Geschwindigkeiten in der Düse zwischen 4 und 12m s^{-1} variiert. Das Verhältnis zwischen den Volumen der Komponenten A und B, die Anfangkonzentrationen und die Einstrahlzeiten der Komponente B sowie die Einbauposition des Rohrs zur Eingabe von B sind ebenfalls Parameter. Das Produktverhältnis der Reaktionen wird auf spektrophotometrischem Wege gemessen. Es wird für hohe Einstrahlgeschwindigkeit des Eduktes vom Mikromischvorgang kontrolliert.

Baldyga, Bourne und Gholap [19] führen im gleichen Reaktor wie Baldyga, Bourne und Zimmermann [18] Messungen mit Flüssigkeiten der Viskosität von $6,2\text{ mPa s}$ durch. Für geringe Einstrahlzeiten des Eduktes nimmt das Produktverhältnis bei steigender Viskosität ab und wird durch das Mikromischen kontrolliert. Für längere Einstrahlzeiten hängt das Produktverhältnis vom Makromischvorgang ab. Mit dem gleichen Reaktionssystem leiten Baldyga und Mitarbeiter [20] Gesetzmäßigkeiten zum scale-up von Strahlmischern her. Zwei Reaktoren mit Durchmessern von 0,45m und 0,61m werden verwendet. Das Produktverhältnis ist abhängig von der Einstrahlgeschwindigkeit und der Einstrahlzeit sowie unabhängig von der Viskosität. Das Makromischen hat keinen bedeutsamen Einfluss.

Yu [49] bietet eine Zusammenfassung von aus der Literatur bekannten Ergebnissen für die Anwendung dieses Reaktionssystems an.

In den erfassten Ergebnissen aus experimentellen Untersuchungen werden nur zeitlich oder volumetrisch gemittelte Größen dargestellt. Um genaue Kenntnisse über den zeitlichen Ablauf der Vermischung in turbulenten oder

laminaren Strömungsfeldern zu gewinnen, müssen die zeitlich und lokal veränderlichen Konzentrationen bekannt sein [37].

3.6 Messen räumlicher Konzentrationsfelder

Optische und tomographische Messmethoden geben die Möglichkeit, Konzentrationen zeitgleich und berührungslos an allen Orten des Messraums zu ermitteln. Damit können auch instationäre Vorgänge beobachtet werden. Mayinger und Feldmann [50] geben einen Überblick über die existierenden optischen und tomographischen Messverfahren.

Eine hohe örtliche Auflösung bei gleichzeitig hoher zeitlicher Auflösung kann mit Hilfe der Laserinduzierten Fluoreszenz (LIF) erreicht werden. Diese Messtechnik detektiert die Konzentrationen fluoreszierender Farbstoffe sowohl in einem Punkt als auch entlang einer Linie oder in einer Ebene (PLIF). Die von der Abbildungsoptik abhängige örtliche Auflösung erlaubt das Detektieren kleinster Strukturen bis zur Größenordnung der Kolmoroff-Länge. Eine Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse aus bekannten Forschungsarbeiten, in denen Mischvorgänge mit Hilfe dieser Messtechnik untersucht werden, gibt Kling [37]. Die meisten Forschungsgruppen verwenden inerte Tracer, um das Makromischen sichtbar zu machen. Chemisch reagierende Tracer finden Anwendung, um das Vermischen im molekularen Maßstab zu visualisieren. Es handelt sich fast ausschließlich um pH-Wert abhängige Farbstoffe. Bellerose und Rogers [26] messen mit Hilfe der PLIF die pH-Wert-Verteilung in einem turbulenten Freistrahle. Der Einfluss der Säure-Base-Reaktion auf die Strahlaufbreitung wird von Hong, Sugii, Okamoto und Madarame [29] mit der Strahlströmung rein inerter Komponenten verglichen. Das Makro- und Mikromischen können in den genannten Forschungsarbeiten nicht voneinander getrennt werden, da nur ein Farbstoff verwendet wird. Die Regionen, in denen kein Reaktionsprodukt detektierbar ist, sind entweder noch nicht mikrovermischt oder

makroskopisch segregiert [37]. Coppeta und Rogers [28,27] verwenden zwei Fluoreszenzfarbstoffe, um Temperaturfelder mit Hilfe der Profile des pH-Werts in turbulenten Freistrahlen für die Reynolds-Zahl $Re=9000$ zu messen. Ein Farbstoff ist inert, während die Emissionscharakteristik des anderen von der Temperatur oder dem pH-Wert abhängt. Trotz der Anwendung von zwei Farbstoffen ist es nicht möglich, das Makro- vom Mikromischen zu unterscheiden. Der inerte Farbstoff wird nur als Standard verwendet um das Verhältnis zwischen den gemessenen Fluoreszenzintensitäten in Abhängigkeit des pH-Werts oder der Temperatur zu kalibrieren. Dazu wird nur die Konzentration einer der zwei Farbstoffe durch die pH-Messungen erkannt.

Kling [37] wendet ein Gemisch aus zwei Fluoreszenzfarbstoffen an, um das Vermischen auf makro- und mikroskopischen Längenskalen in einer Messebene zu visualisieren. Ein Farbstoff ist inert und dient als Indikator für das Makromischen, während der reagierende Farbstoff unterschiedliche Fluoreszenzintensitäten aufweist. Da die Reaktion molekulare Vermischung voraussetzt, dient der reagierende Farbstoff als Indikator des Mikromischens. Mit Hilfe der PLIF-Technik werden die Konzentrationsfelder beider Farbstoffe simultan gemessen. Die zeitliche Auflösung beträgt 30Hz während die örtliche Auflösung Werte zwischen 0,07mm und 0,13mm/Pixel annimmt und von der Größe des aufgenommenen Bildes abhängt. Die Messungen werden in einem Rührbehälter mit 100mm Außendurchmesser für wässrige Zelluloselösungen mit Massenanteilen zwischen 0,5% und 2% durchgeführt. Für konstante Reynoldszahlen wird im laminaren Strömungsbereich eine starke Abhängigkeit des Prozessfortschritts von der Viskosität sowie von der Farbstoffzugabeposition beobachtet.

Mit Hilfe der LIF-Technik können dreidimensionale Felder nur aus mehreren zeitgleich aber lokal getrennten Messungen rekonstruiert werden [37]. Für kleine Messvolumen kann die Ebene des Lichtschnitts schnell durch das Volumen bewegt werden. Dadurch wird ein quasi-dreidimensionales Konzentrationsfeld gemessen [51]. Deutsch und Dracos [52] und Merkel,

Dracos und Rys [30] wenden unterschiedliche Scanverfahren an, um die Konzentrationsfelder im Freistrahls zu messen. In einen Behälter mit 5m^3 Inhalt wird Wasser und darin gelöstes Dinatrium-Fluoreszin durch einen Injektor mit 5mm Durchmesser eingestrahlt. Das gescannte Volumen misst $45\times 45\times 18\text{mm}^3$ bzw. $35\times 35\times 5,5\text{mm}^3$. Die Optik zur Fluoreszenzanregung und zur Bildaufnahme wird in Strahlrichtung bewegt. Das untersuchte Volumen befindet sich bei $x/d_n \sim 250$, wo die lokale Strömungsgeschwindigkeit etwa die Hälfte der axialen Geschwindigkeit beträgt. Es werden Messungen für Reynolds-Zahlen von 4300 und 6000 durchgeführt. Für turbulente Strömungen darf der zeitliche Versatz der Aufnahmen in Scanrichtung nicht vernachlässigt werden.

Tian und Roberts [53] messen mit Hilfe der 3-dimensionalen LIF Technik die Farbstoffkonzentrationen in einem Tank, in den ein Fluoreszenzfarbstoff eingestrahlt wird. Die Flüssigkeit fließt in den waagerechten Tank mit Geschwindigkeiten von 10mm s^{-1} bis 40mm s^{-1} . Zum Einstrahlen der Flüssigkeit dient eine Düse mit 4mm Durchmesser, die senkrecht zum Bodenquerschnitt eingebaut ist. Die Flüssigkeitsaustrittsgeschwindigkeit beträgt zwischen $0,05\text{mm s}^{-1}$ und $1,2\text{mm s}^{-1}$. Das optische System wird in Strömrichtung bewegt. Für das Volumen von $60\times 20\times 20\text{cm}^3$ werden 20 bis 40 Schnitte vermessen bei der Aufnahme Frequenz von 5Hz . Die Kameraauflösung beträgt 1mm/Pixel und die Bildtiefe 8bit . Das System ist nicht schnell und empfindlich genug, um turbulente Wirbel mit Abmessungen der Kolmoroff-Länge aufzulösen.

Während die LIF-Technik es nur begrenzt ermöglicht, räumliche Konzentrationsfelder zu visualisieren, ist die tomographische Messtechnik dazu in der Lage. Holden, Wang, Mann Dickin und Edwards [54] verwenden die elektrische Widerstandstomographie, zum Visualisieren der Vermischung in einem Tank mit 3m^3 Volumen, in den sie eine Salzlösung dosieren. Die optische Tomographie wird von Haarde [9,55] und Renz [8,34] eingesetzt, um die Ausbreitung von Stoppfern in Lagertanks zu beobachten.

Buchmann und Mewes [56,57] verwenden die tomographische Zweiwellenlängenphotometrie, um die räumlichen Konzentrationsfelder eines inerten und eines reagierenden Farbstoffs simultan in einem Rührgefäß zu messen. Die Konzentrationsfelder des inerten Farbstoffs kennzeichnen die makrovermischten Bereiche, während die Konzentrationsfelder des reagierenden Farbstoffs die erfolgte Mikrovermischung visualisieren. Mit Hilfe dieser Messtechnik werden das Makro- und Mikromischen in einem Rührbehälter mit 100mm Durchmesser simultan gemessen. Die verwendeten wässrigen Lösungen enthalten Carboxymethylzellulose. Es werden Messungen im laminaren und im turbulenten Strömungsbereich durchgeführt. Der Einfluss unterschiedlicher Rührer und Zugabeorte wird beobachtet. Für die Messung werden Kameras mit einer Bildtiefe von 8bit und einer maximalen Bildwiederholfrequenz von 25Hz verwendet. Mit Hilfe eines Rekonstruktionsprogramms werden die Konzentrationsfelder der zwei Farbstoffe berechnet. Die örtliche Auflösung reicht nicht aus, um die im Laufe des Vermischens sich bildenden Lamellen im Strömungsfeld aufzulösen.

4 Experimentelle Untersuchungen

4.1 Visualisieren räumlicher Konzentrationsfelder

Messmethoden, welche eine hohe zeitlich und räumlich aufgelöste Darstellung von Feldgrößen gewährleisten, haben in verfahrenstechnischen Untersuchungen vielfältigen Einsatz. In der Vergangenheit waren derartige Messungen auf einzelne Punkte oder Ebenen beschränkt.

Dazu werden Messsonden eingesetzt, die sehr hohe Messgenauigkeiten für einzelne Feldgrößen besitzen. Diese sind jedoch jeweils nur für einen Messwert, d.h. lokal gültig und ermöglichen keine dreidimensionale Darstellung der Feldgröße. Außerdem stehen diese Instrumente in direktem Kontakt mit dem Messobjekt, so dass sie nicht berührungsfrei arbeiten. Handelt sich z. B. um das Strömungsfeld eines Fluides, so kann dieses durch die Messsonden gestört werden.

Demgegenüber bieten optische und tomographische Messmethoden den Vorteil, berührungslos und gut räumlich sowie zeitlich aufgelöst Messungen durchzuführen. Dazu werden die Werte einer Feldgröße integral längs unterschiedlichen Richtungen, z.B. entlang von Strahlen, gemessen. Die lokalen Werte werden daraus mit Hilfe von Rekonstruktionsalgorithmen berechnet. Die räumlichen Felder der gesuchten Feldgröße lassen sich damit berechnen und ermöglichen so deren Visualisierung.

Im Rahmen dieser Arbeit wird die tomographische Zweiwellenlängenphotometrie eingesetzt, um die Konzentrationsfelder zweier Farbstoffe gleichzeitig zu messen und anschließend zu visualisieren. Das Gemisch zweier Farbstoffe wird in geringen Mengen in einen großvolumigen Behälter mit der Form eines Reaktors dosiert. Einer der Farbstoffe ist inert, während der andere Farbstoff chemisch mit der im Reaktor vorhandenen Flüssigkeit reagiert, um dadurch entfärbt zu werden. Die Absorption unterschiedlich gefärbten Lichtes durch die Farbstoffe ist ein Maß für deren integrale Konzentrationen entlang der

durch die Messung erfassten Strahlwege. Die tomographische Rekonstruktion ergibt aus den gemessenen Lichtintensitäten die zeitveränderlichen räumlichen Konzentrationsfelder beider Farbstoffe innerhalb des gesamten Reaktorvolumens.

Das für die Messungen gewählte Strömungsfeld stellt sich im Reaktor ein, wenn homogen verlaufende chemische Reaktionen mit Hilfe geringer Mengen eines sog. Reaktionsverzögerers abubrechen oder im umgekehrten Falle durch homogene Katalyse, ausgelöst durch einen Reaktionsbeschleuniger, zu starten sind. In beiden Fällen sind geringe Mengen flüssiger Substanzen in großvolumigen Apparaten, wie z.B. chemischen Reaktoren oder Lagertanks, innerhalb kurzer Zeitintervalle zu verteilen. Dies erfordert instationäre Strömungsfelder, in denen die auf dem Mikromaßstab der Ortskoordinaten ablaufenden Ausgleichsvorgänge für die Konzentrationen im gesamten Apparatevolumen volumetrisch möglichst verteilt ablaufen sollen. Die hierzu im Labormaßstab durchgeführten experimentellen Untersuchungen sollen unter Einsatz der beschriebenen tomographisch bildgebenden Messmethode Auskunft geben, wie geringe Flüssigkeitsmengen mit Hilfe instationär betriebener Flüssigkeitsstrahlen im großen Volumen technischer Reaktoren und Lagertanks zu verteilen sind.

4.2 Transportvorgänge im Strömungsfeld

Die Durchmischung der Farbstoffe erfolgt im Reaktor mit Hilfe eines instationären Strömungsfeldes in der Umgebung eines Flüssigkeitsstrahls. Dieser wird von einer turbulenten Grenzschicht umgeben, welche sich in Folge der Relativgeschwindigkeit zwischen der zunächst in Ruhe befindlichen Flüssigkeit und dem Flüssigkeitsstrahl einstellt. Die Flüssigkeit der ruhenden Umgebung wird in der Grenzschicht des Strahls beschleunigt. Sie besteht aus sich instationär bewegendem Wirbeln [49,58,59]. Die großen Wirbel geben ihre Energie ab, indem sie sich in kleinere Wirbel auflösen. Dieser Vorgang ist

schematisch in Bild 4.1 dargestellt. Der Energietransport erfolgt über eine sog. Energiekaskade. Je geringer die Abmessungen der Wirbel sind, umso größer wird die im Strömungsfeld wirksame viskose Reibung. Die Energieübertragung verläuft solange bis die Wirbel so klein sind, dass ihre Energie nur noch in Wärme dissipiert werden kann. Während dieses Prozesses findet gleichzeitig die Verteilung und Vermischung von Strahl- und Behälterflüssigkeit statt. Der Vorgang ist in schematischer Form in Bild 4.2 dargestellt.

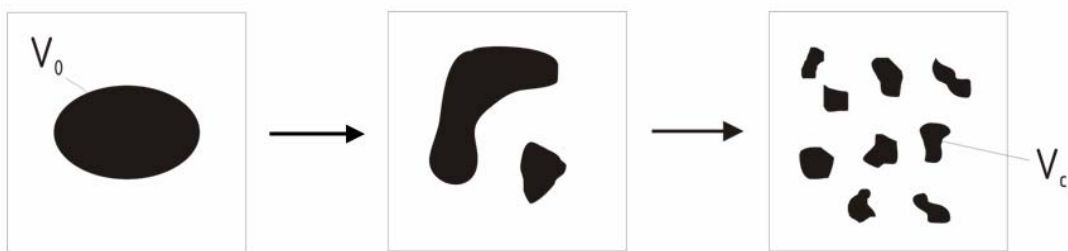


Bild 4.1: Schematischer Ablauf des turbulenten Mischvorgangs

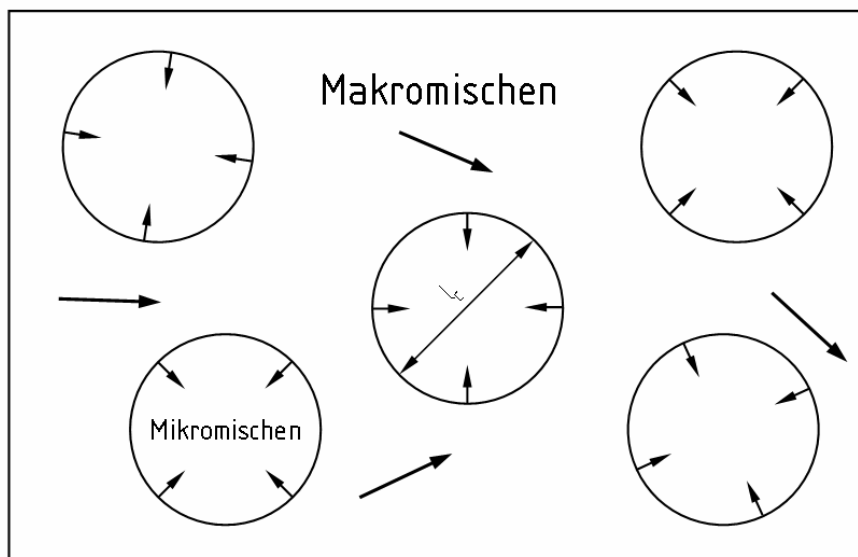


Bild 4.2: Modellvorstellung zum Mikro- und Makromischen nach [60]

Das Mischen der durch Strahlen dosierten Flüssigkeit ist nach wiederholter Zerteilung in einzelne Fluidelemente mit deren Deformation durch viskose Reibung verbunden und wird als Makromischen bezeichnet. Die Fluidelemente sind zunächst von gleicher Konzentration. Sie werden durch turbulente

Schwankungsbewegungen zerteilt und somit in ihrer räumlichen Ausdehnung verringert. Dieser Vorgang wird auch als Erosion bezeichnet und hat die Vergrößerung der Grenzflächen der Fluidelemente zur Folge. Die geringste räumliche Ausdehnung eines derartigen durch konstante Konzentration gekennzeichneten Fluidelementes ist durch die Kolmorov-Länge gegeben. Diese Länge hängt von der Größe der turbulenten Schwankungsgeschwindigkeiten ab. Über die Oberfläche der Fluidelemente findet durch molekulare Diffusion der Konzentrationsausgleich mit der Umgebung statt, der auch als Mikromischen bezeichnet wird. Die Geschwindigkeit des diffusiven Konzentrationsausgleichs hängt von der Kolmorov Länge und von der Intensität der Schwankungsbewegungen ab [61,62,63,64].

4.3 Messung der Konzentrationsfelder

Mit Hilfe der auf tomographischem Wege visualisierten Konzentrationsfelder werden die Transportprozesse im Makro- und Mikrobereich der Ortskalen zweier Flüssigkeiten beobachtet. In Bild 4.3 sind die Transportprozesse während des turbulenten Strahlmischens und deren Einflüsse auf den inerten und den reagierenden Farbstoff im Mikro- und Makrobereich schematisch dargestellt. Das Einstrahlen der Mischung beider Farbstoffe ermöglicht das Visualisieren der Transportprozesse im Makro- und Mikrobereich der Ortsskalen für beide Farbstoffe gleichzeitig. Zu Beginn des Mischprozesses werden beide Farbstoffe konvektiv im Reaktor transportiert. Eine Vermischung der zerteilten Fluidelemente findet mit der umgebenden Flüssigkeit im molekularen Skalenbereich der Ortskoordinate noch nicht statt. Dadurch kann keine chemische Reaktion ablaufen. Beide Farbstoffe werden im Reaktor verteilt. Das Konzentrationsfeld des inerten Farbstoffs lässt sich als Indikator für den ersten Teil des Mischprozesses nutzen. Aufgrund der Abnahme der Segregation, d.h. der charakteristischen Längenabmessungen

der Fluidelemente bewirken große Konzentrationsgradienten den molekularen Ausgleich der vorhandenen Konzentrationsunterschiede. Im molekularen Bereich der Ortsskalen findet jetzt die chemische Reaktion statt. Dadurch wird der reagierende Farbstoff entfärbt. Die dadurch verursachte Intensitätsänderung des monochromatischen Lichts, dessen Wellenlänge auf das Absorptionsverhalten des Farbstoffs eingestellt ist, ist ein indirektes Maß für die Mikrovermischung und die ablaufende Diffusion. Sind beide Farbstoffe auf molekularer Ortsskala im Volumen verteilt, so ist nur noch der inerte Farbstoff sichtbar.

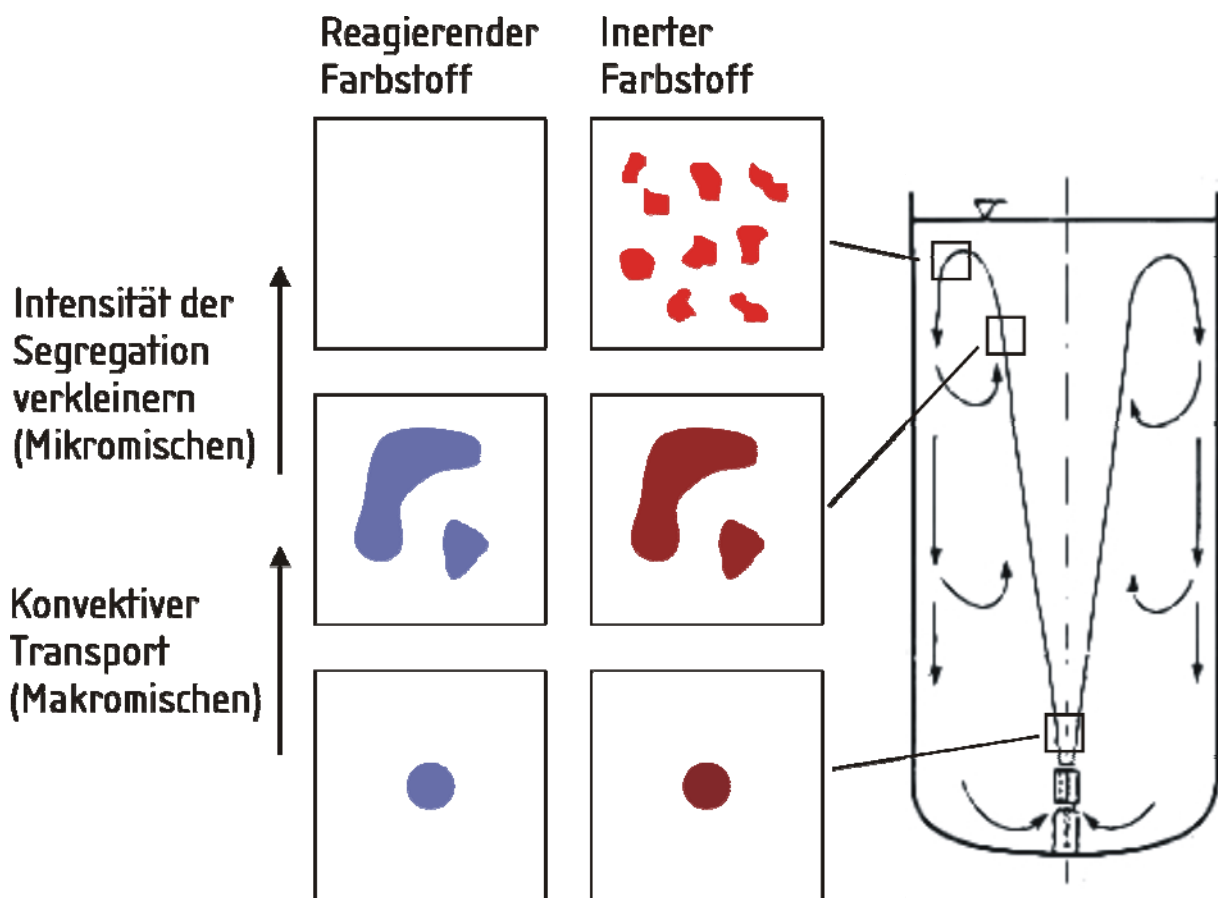


Bild 4.3: Verteilung von Flüssigkeitselementen eines inerten und eines reagierenden Farbstoffs in Strahlmischern

Um die zeitlichen Fortschritte der im Reaktor ablaufenden Transportprozesse im Makro- und Mikromaßstab vergleichen zu können, werden zwei Mischgütemaße verwendet. Diese sind von Danckwerts [64] vorgeschlagen. Die charakteristische Abmessung eines Fluidelements konstanter

Konzentration wird als Längenmassstab der Segregation s bezeichnet. Die Konzentrationsunterschiede zwischen den einzelnen Fluidelementen werden als Intensität der Segregation bezeichnet. Diese lautet

$$I_s(t) = \frac{\sigma^2(t)}{\sigma_0^2} = \frac{\sum_i (c^i(t) - \bar{c})^2}{\sum_i (c_0^i - \bar{c})^2} \quad (4.1)$$

Hierhin bedeuten c^i die Konzentration der Fluidelemente i und \bar{c} die mittlere Konzentration. Der globale Segregationsgrad ist die zeitabhängige Varianz $\sigma^2(t)$ der Konzentration $c^i(t)$ bezogen auf die Varianz σ_0^2 unmittelbar nach der vollständigen Zugabe des zu vermischenden Fluids. Die Konzentration des Fluidelements i zu Beginn des Mischvorgangs ist c_0^i . Es gilt $0 < I_s < 1$, wobei für $I_s=0$ die Mischung aus makroskopischer Sicht vollständig homogen ist. Für $I_s=1$ liegt eine vollständige Entmischung vor.

Die Fortschritte des diffusiven Stofftransports können im Reaktor mit Hilfe des Maßes für die Mikromischgüte beschrieben werden:

$$N^*(t) = \frac{N(t)}{N_0} = \frac{\sum_i c^i(t)V^i}{\sum_i c_0^i V^i} \quad (4.2)$$

Die Gesamtmenge $N(t)$ des reagierenden Farbstoffs im Mischvolumen zur Zeit t wird auf die ursprünglich zugegebene Menge N_0 bezogen. Die örtlichen Konzentrationen c^i werden mit dem entsprechenden Volumen des Fluidelements V^i , in dem diese Konzentration vorliegt, multipliziert. Die dimensionslose Restmenge des reagierenden Farbstoffs $N^*(t)$ fällt während des Mischvorgangs ebenso wie die Intensität der Segregation $I_s(t)$ von 1 auf 0 ab.

In Analogie zur Intensität der Segregation nach Gl.(4.1), definiert Käppel [38] den Deviationsgrad Δ als:

$$\Delta(t) = \frac{\alpha(t)}{\alpha_0} = \frac{\sum_i |c^i(t) - \bar{c}|}{\sum_i |c_0^i - \bar{c}|} \quad (4.3)$$

Wobei statt der Varianz σ^2 , das erste absolute zentrale Moment der Konzentrationsverteilung α verwendet wird. Nach Käppel ist der Deviationsgrad

$$\Delta = \frac{c_r(t)}{c_{r,0}} \quad (4.4)$$

gleich dem Verhältnis zwischen der Gesamtkonzentration c_r eines im Gefäß homogen vorgelegten entfärbenden Farbstoffes zur Zeit t und dessen anfänglicher Konzentration $c_{r,0}$, wenn das Entfärbungsmittel stöchiometrisch zugegeben wird. Es kann der lokale Deviationsgrad Δ definiert werden:

$$\Delta(\vec{x}, t) = \frac{c_r(\vec{x}, t)}{c_{r,0}(\vec{x}, t)} \quad (4.5)$$

$c_{r,0}$ bedeutet die lokale Konzentration, die der reagierende Farbstoff hätte, wenn die Reaktion nicht statt gefunden hätte. Dieser Wert kann nicht direkt gemessen werden. Er lässt sich jedoch kann mit Hilfe der lokalen Konzentrationen des inerten Farbstoffs $c_i(\vec{x}, t)$ berechnen. Es gilt:

$$c_{r,0}(\vec{x}, t) = c_i(\vec{x}, t) \cdot \frac{c_{r,0}}{c_{i,0}} \quad (4.6)$$

Wobei das Verhältnis zwischen den Konzentrationen der ins Gefäß eingespeisten Farbstoffe verwendet wird. Der lokale Deviationsgrad ist gleich dem Anteil des reagierenden Farbstoffs, der noch nicht umgesetzt ist. Dieser besitzt die Werte Eins für komplette Segregation und Null für komplette Vermischung.

Die Fortschritte des konvektiven und diffusiven Transports werden unabhängig voneinander gemessen. Dies ist möglich, wenn ein großer Überschuss des Reaktionspartners vorhanden ist und die Reaktion sehr schnell verläuft. In diesem Fall findet die Reaktion in dem Moment statt, sobald zwei reaktionsfähige Moleküle in Kontakt kommen. Für diesen Fall liegt Diffusionshemmung vor und die Reaktion beeinflusst den Umsatz nicht.

4.4 Verwendete Flüssigkeiten und Farbstoffe

Die Wahl der Farbstoffe hängt von unterschiedlichen Faktoren ab. Generell gilt, dass die Farbstoffe wasserlöslich, ungiftig und leicht zu entsorgen sind. Hier sollen auch die optischen Eigenschaften der Farbstoffe für das geplante Messsystem geeignet sein. Dies bedeutet, dass die verwendeten Farbstoffe Absorptionsspektren aufweisen, die in Abhängigkeit der Lichtwellenlänge weit auseinander liegen. Das ermöglicht die genaue Zuordnung der absorbierten Lichtintensität jeder Wellenlänge für eine der verwendeten Farbstoffe. Zusätzlich sollen Laser verwendet werden, deren emittierte Lichtwellenlängen sich im sichtbaren Bereich des Spektrums befinden.

Das optische Messverfahren und die zusätzliche tomographische Rekonstruktion verlangen, dass keine wesentlichen Unterschiede zwischen dem Brechungsindex der Flüssigkeit im Reaktor und der eingestrahlten Flüssigkeit auftreten. Andernfalls träte Schlierenbildung auf, die zu einer ungenauen Brechung der Farbstoffkonzentrationen führen würde.

Eine weitere wichtige Eigenschaft der Farbstoffe ist mit der chemischen Reaktion verbunden. Da nur einer der Farbstoffe mit der Flüssigkeit im Reaktor reagieren soll, muss dessen Reaktionsgeschwindigkeit viel größer als die Vermischung sein. Dadurch liegt Diffusionshemmung statt Reaktionshemmung vor, so dass die Diffusion der limitierende Faktor des gesamten Prozesses ist.

Für die experimentellen Untersuchungen werden nach den oben beschriebenen Wahlkriterien folgende Komponenten verwendet: als Flüssigkeit dient im Reaktor eine wässrige Lösung mit 0,1G % in Gewicht Stärke. Diese wird je nach Versuchsreihe mit Carboxymethylzellulose (Typ:CRT 10000 Fa. Wolff Walsrode) in unterschiedlichen Konzentrationen gemischt. Damit werden Messungen mit unterschiedlichen viskosen Flüssigkeiten möglich.

Nach dem Herstellen der Lösung wird der Anteil, der sich in dem zylindrischen Gefäß befindet, mit Natriumthiosulfat, welches als reagierender Stoff dient, vermischt. Der Anteil, der eingespritzt wird, wird mit zwei

Farbstoffen vermischt, Duasyn-Säureponceau und Jod. Das Duasyn-Säureponceau ist der rote inerte Farbstoff, welcher mit keiner der verwendeten Chemikalien reagiert. Jod ist der reagierende Farbstoff, der mit der eingesetzten Stärke einen tiefblauen Komplex bildet. Durch die Reaktion mit Natriumthiosulfat, das sich im Reaktor findet, wird der blaue Jod-Stärke-Komplex entfärbt.

Das beschriebene Stoffsystem wird von Buchmann [57] vorgeschlagen. Anders als von Buchmann vorgeschlagen, wird der Lösung jedoch kein Zucker zugesetzt. Die vom Zucker verursachte Erhöhung des Brechungsindex der Flüssigkeit würde im vorliegenden Fall den Abgleich des Brechungsindex mit dem der Gefäßwände verhindern.

4.5 Physikalische Eigenschaften der eingesetzten Fluide

Wird die Carboxymethylzellulose in Wasser gelöst, so entsteht eine Polymerlösung, die ein strukturviskoses Fließverhalten aufweist. Es handelt sich um eine nicht-newtonsche Flüssigkeit, deren Viskosität von der Schergeschwindigkeit nicht unabhängig ist.

Das Fließverhalten der verwendeten Wasser-Stärke-Zellulose Lösungen wird mit Hilfe eines Rotationsviskosimeters gemessen und ist in Bild 4.4 dargestellt.

Die gemessenen Viskositäten werden oberhalb 0,5G % Zellulose durch die empirische Gleichung von Carreau [65]

$$\frac{\eta(\dot{\gamma}) - \eta_{\infty}}{\eta_0 - \eta_{\infty}} = (1 + (k_N \cdot \dot{\gamma})^2)^{\frac{n-1}{2}} \quad (4.7)$$

beschrieben. Die Gl. (4.7) beschreibt die von der Schergeschwindigkeit $\dot{\gamma}$ abhängige Viskosität $\eta(\dot{\gamma})$, als Funktion der Nullviskosität η_0 für kleine Schergeschwindigkeiten und die Endviskosität η_{∞} für sehr große Schergeschwindigkeiten. Der Konsistenzfaktor ist k_N und der Fließexponent

ist n . Für kleine Deformationsgeschwindigkeiten nähert sich die Viskosität der Lösung dem Wert η_0 .

Für Massenteile der Zellulose unter 0,5G % lassen sich die Viskositäten mit Hilfe des Potenzansatzes von Oswald und de Waele [66] wiedergeben:

$$\tau = K \cdot \dot{\gamma}^n \quad (4.8)$$

oder

$$\eta(\dot{\gamma}) = K\dot{\gamma}^{n-1} \quad (4.9)$$

Darin ist τ die Schubspannung, K der Oswald-Faktor und n ein Exponent, der auf experimentellem Wege zu ermitteln ist.

Die Ausgleichskurven in Bild 4.4 sind mit Gl. (4.7) berechnet, wobei die an den experimentellen Ergebnissen ermittelten Parameter in der Tabelle 4.1 zusammengefasst sind.

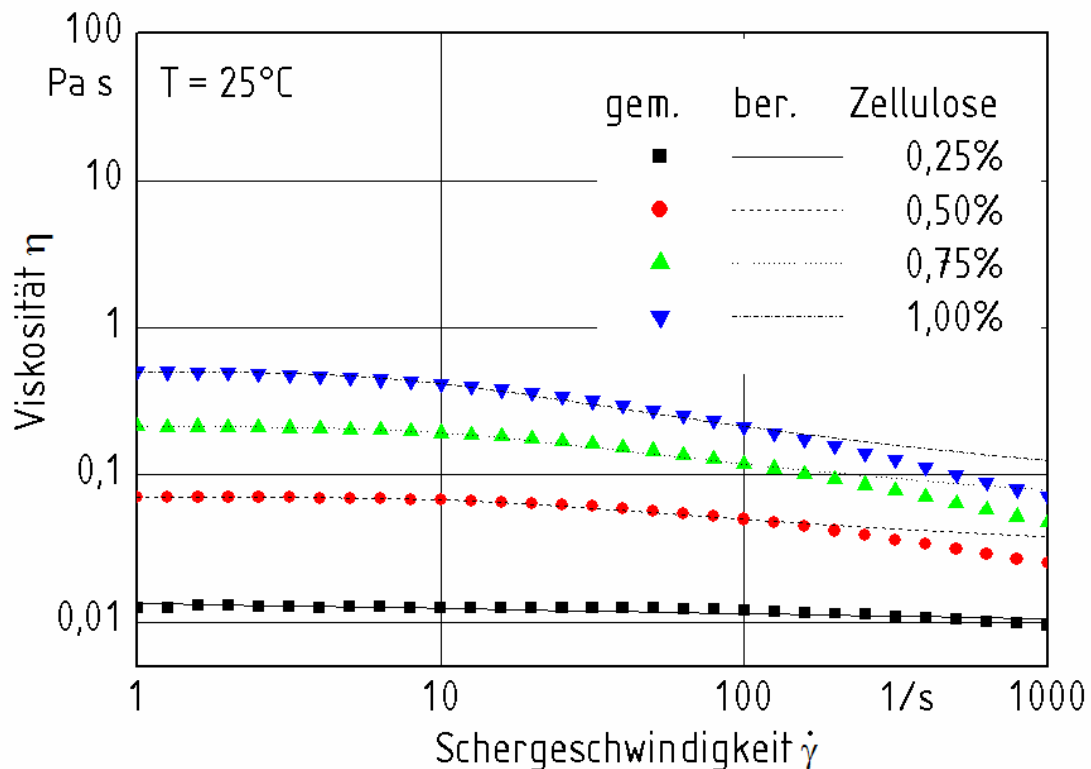


Bild 4.4 Gemessene und berechnete Viskosität in Abhängigkeit von der Schergeschwindigkeit für unterschiedlich konzentrierte Zelluloselösungen

Das rheologische Verhalten der Zelluloselösung wird nach Zusatz der Farbstoffe und der Natriumthiosulfatlösung ebenfalls untersucht. Dabei wird keine wesentliche Veränderung der Viskositäten dieser Lösungen festgestellt, da die zugegebenen Farbstoffmengen klein sind.

Die Absorptionsspektren der verwendeten Farbstoffe sind in Bild 4.5 dargestellt. Es sind dazu die Wellenlängen der verwendeten Laser dargestellt.

Carboxymethylzellulose Konzentration [% (w/w)]	Nullviskosität η_0 [mPa s]	Endviskosität η_∞ [mPa s]	Konsistenzfaktor k_n [-]	Fließindex n [-]
0,50	70	38	0,08	0,71
0,75	213	79	0,10	0,64
1,00	503	125	0,14	0,58

Tabelle 4.1: Parameter für Viskositätsmessdaten von wässriger Carboxymethylzellulose-Lösungen durch das Bird-Carreau-Modell [66]

Das grüne Licht des Argon-Ionen-Lasers wird hauptsächlich vom roten Farbstoff Duasyn-Säureponceau absorbiert und in geringem Maße vom blauen Farbstoff Jod-Stärke. Das rote Licht des Helium-Neon-Lasers wird fast nur von der Jod-Stärke absorbiert und unwesentlich von dem inerten Farbstoff. Diese gegenläufige Wellenlängenabhängigkeit der Extinktionskoeffizienten ermöglicht eine genaue Berechnung der Konzentration.

Es werden Messungen des Brechungsindex der Lösungen durchgeführt. Der Brechungsindex des Wassers bei 22°C ist $n=0,333$ und der der Lösung mit 0,5G% an Zellulose beträgt $n=0,334$. Die Berechnungen für die Konzentration werden mit dieser maximalen Konzentration an Zellulose in der Lösung durchgeführt. Die Differenz Δn zwischen den beiden Indizes beträgt 1/1000. Für diesen Wert ist die Schlierenbildung gering und das Berechnen der Konzentrationsfelder ist möglich. Für höhere Zelluloseanteile werden die Anfärbvorgänge auf den projizierten Schattenbildern qualitativ auf visuellem Wege ausgewertet.

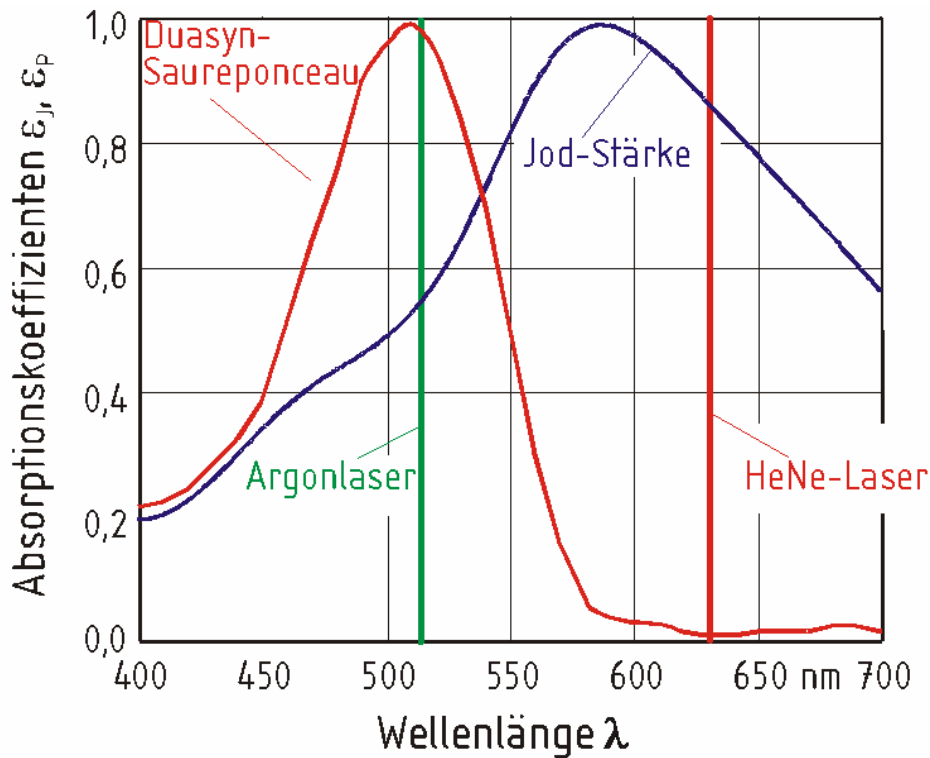


Bild 4.5: Absorptionskoeffizienten der verwendeten Farbstoffe als Funktion der Lichtwellenlänge

4.6 Die chemische Reaktion

Das Jod bildet mit der eingesetzten Stärke einen tiefblauen Komplex. Dabei lagern sich die Moleküle des Jods in die Amylosehelix der Stärke ein. Durch die Reaktion mit Natriumthiosulfat, wird der blaue Jod-Stärke-Komplex entfärbt. Die Auslagerung des Jods aus der Stärke verläuft nach Halban und Heisner [67] schneller als die Reduktion des Jods durch das Thiosulfat. Die Entfärbungsreaktion wird also nur durch die hohe Reaktionsgeschwindigkeit der Redoxreaktion begrenzt.

Die genannte Reaktion läuft nach folgendem Muster:



Es handelt sich um eine Reaktion dritter Ordnung. Für diese schlagen Rao und Mali [68] den folgenden Reaktionsmechanismus vor:





Die Reaktion (4.11) ist von zweiter Ordnung und läuft viel schneller ab als die zweite. Die Reaktion (4.12) ist deswegen die Teilreaktion, die den Umsatz limitiert. Die Geschwindigkeitskonstante dieser Reaktion ist $k=1,51 \cdot 10^5$ l/mol s bei 25°C.

In wässrigen Lösungen sind die für 25°C gemessenen die Diffusionskoeffizienten der Tri-Jodid Ionen [69] und der Thiosulfat Ionen [70] $1,13 \cdot 10^{-5}$ cm²/s bzw. $1,08 \cdot 10^{-5}$ cm²/s. Die Diffusionskoeffizienten kleiner Moleküle weichen in Carboxymethylzellulose-Lösungen nur gering von den Diffusionskoeffizienten in Wasser ab [71], da sich die kleinen Moleküle ungehindert durch die Struktur der Makromoleküle bewegen. Es kann daher der Diffusionskoeffizient für Wasser verwendet werden.

Da mit starkem Überschuss von Natriumthiosulfat gegenüber Jod gearbeitet wird, sind damit immer genügende Mengen an unverbrauchtem Natriumthiosulfat für die Reaktion vorhanden. Dieser Überschuss stellt in Verbindung mit der hohen gewählten Reaktionsgeschwindigkeit und dem geringen Diffusionskoeffizient der reagierenden Stoffe sicher, dass der Stofftransport nur von der Diffusionshemmung begrenzt wird.

4.7 Versuchsaufbau

Für die experimentellen Untersuchungen wird ein zylindrischer Reaktor mit 99 mm Innendurchmesser und 3 mm Wandstärke verwendet. Der Reaktor ist aus Glas mit dem Brechungsindex $n=1,52$. Er besitzt einen halbkugelförmigen Boden aus PVC. Für die verwendeten Wellenlängen des Laserlichtes $\lambda=514$ nm und $\lambda=632$ nm ist der Reaktor innen und außen entspiegelt. Die Reaktorhöhe ist 200 mm, so dass das Verhältnis des Füllstands zum Reaktordurchmesser zwischen 1 und 2 variabel einstellbar ist. Der Reaktor ist von einem 6-eckigen Außengefäß umgeben, dessen Glasscheiben wie die Reaktorwände auf beiden Seiten entspiegelt sind. Das Außengefäß und der Reaktor sind mit der gleichen Flüssigkeit gefüllt, damit die drei zur

photometrischen Zweiwellenlängen-Tomographie eingesetzten parallelen Lichtbündel das Messvolumen unverzerrt passieren.

Der Reaktor ist in Bild 4.6 schematisch dargestellt. Außerdem sind die Vorrichtungen für das instationäre Dosieren variabler Flüssigkeitsvolumina eingezeichnet. Die Dosierung erfolgt aus einem Vorlagebehälter mit Hilfe von Druckluft. Die Einstrahlzeit wird durch das einstellbare Magnetventil gesteuert. Experimente mit unterschiedlichen Dosierzeiten und unterschiedlichen Volumen des eingestrahnten Flüssigkeitsgemisches werden durchgeführt. Der Druck im Vorlagebehälter ist mit Hilfe eines Druckminderers wählbar, wodurch der Volumenstrom der eingestrahnten Flüssigkeit einstellbar ist. Es werden 2 unterschiedliche Düsen verwendet, die unterschiedliche Form aufweisen. Die Mischdüse ist im Bild 4.7 schematisch dargestellt. Sie besteht aus zwei Teilen, die mit Stiften zusammengehalten werden: einer Treibstrahldüse mit 1mm Durchmesser und einem Impulsaustauschrohr mit 3,5mm Austrittsdurchmesser. Das Impulsaustauschrohr besteht aus 3 Teilen: Der erste Teil ist der Einlaufkonus, in den die Flüssigkeit aus der Umgebung der Düse durch den mit hoher Geschwindigkeit aus der Düse austretenden Flüssigkeitsstrahl eingesaugt wird. Es folgt ein Mischraum, in dem ein intensiver Impulsaustausch zwischen den Flüssigkeitsvolumenströmen stattfindet. Ein Diffusor bewirkt die Ausbreitung des vorvermischten Flüssigkeitsstrahls. In der Grenzschicht zwischen der ruhenden Flüssigkeit im Reaktor und der Flüssigkeit im Strahl findet der Stofftransport der zu vermischenden Flüssigkeiten statt. Der Vorteil der Mischdüse liegt im Vergleich zu normalen Düsen in der Verstärkung des Zustroms an Flüssigkeit aus der Umgebung der Mischdüse speziell aus den Volumenbereichen am Reaktorboden. Der resultierende Volumenstrom am Austritt des Diffusors wird dadurch wesentlich erhöht. Somit wird das durch den Strahl beeinflusste Strömungsfeld vergrößert. Die zweite eingesetzte Düse hat 1,6mm Ausgangsdurchmesser. Sie hat die gleiche Form wie die

Treibstrahldüse innerhalb der Mischdüse. Das Impulsaustauschrohr ist hier nicht eingebaut.

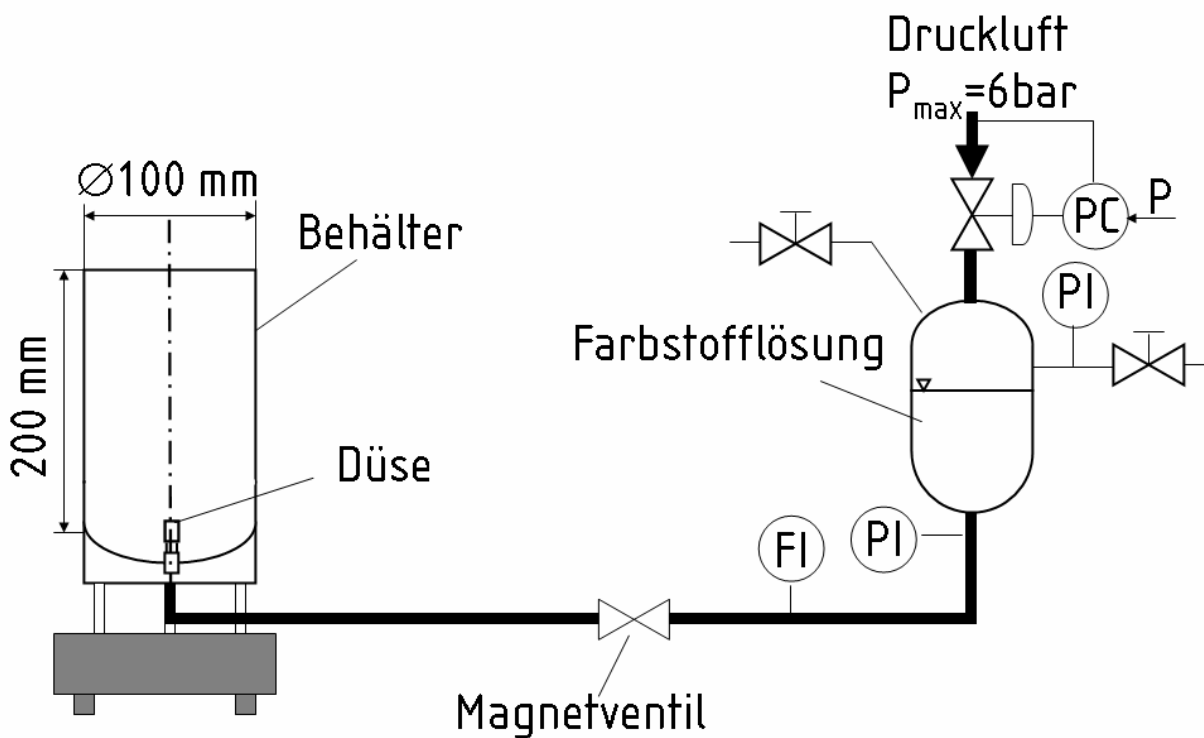


Bild 4.6: Aufbau des Reaktors und der Dosiervorrichtung für die Farbstofflösung

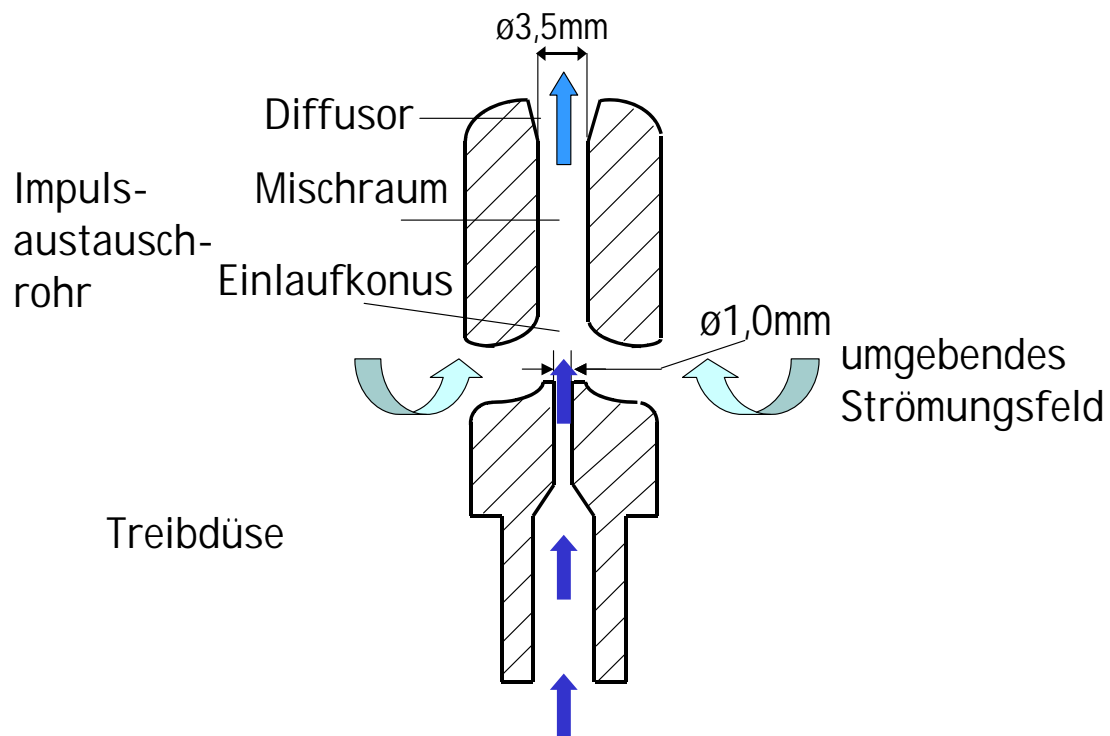


Bild 4.7: Schematische Darstellung der Impulsaustauschdüse

Die Düse am Boden des Reaktors kann wahlweise mittig oder um maximal zwei Drittel des Reaktorradius nach außen versetzt eingebaut sein. In dieser Position kann die Neigung der Düse zur Vertikalen bis maximal 30° stufenlos variiert werden.

4.8 Versuchsdurchführung

Die Wasser-Stärke-Zellulose-Lösung wird mit je nach Versuchsreihe unterschiedlichen Massenanteilen an Zellulose in den Reaktor gefüllt, dessen Volumen zwischen 800ml und 1000ml variiert. Die Flüssigkeit wird mit 1V % der 0,1-molaren Natriumthiosulfatlösung versetzt, so dass die Konzentration des reagierenden Stoffs bis 10^{-3} mol/l beträgt. Der Vorlagebehälter für den unter Druck dosierten Flüssigkeitsstrahl wird mit 1l Wasser-Stärke-Lösung gefüllt. Diese Lösung wird mit Duasyn-Säureponceau und einer 0,05-molaren Jodlösung vermischt. Die zugegebene Farbstoffmenge wird je nach Größe des eingestrahnten Volumens so eingestellt, dass die Endkonzentration im Messbehälter nach dem Einstrahlen etwa gleich bleibt. Die genauen Konzentrationen an Lösungsmitteln und Farbstoffen sind in Tabelle 4.2 angegeben.

Einspritzvolumen	[%]	1	2	3
Duasyn-Säureponceau	[g]	0,0169	0,0253	0,0169
0,05-molare Jodlösung	[ml]	14	7	3,5
0,1G% wässrige Stärkelösung	[ml]	986	993	996,5
\bar{c}_{Duasyn} im Druckbehälter	[mol/l]	$2,79 \cdot 10^{-5}$	$4,18 \cdot 10^{-5}$	$2,79 \cdot 10^{-5}$

Tabelle 4.2: Konzentrationen der Farbstoffe im Vorlagebehälter

Die Farbstoffkonzentrationen werden nach der von ihnen verursachten Lichtabsorption ausgewählt. Die Konzentration an Natriumthiosulfat wird im

Reaktor so gewählt, dass nach der Zugabe des Jods sich ein 200-facher stöchiometrischer Überschuss von Natriumthiosulfat gegenüber Jod eingestellt. Damit ist sichergestellt, dass in der Nähe des eingespritzten Jods immer genug Natriumthiosulfat für die Reaktion zur Verfügung steht. Die Konsequenz ist, dass die Entfärbung des Jods nur durch den diffusiven Transport begrenzt wird.

Zum Durchführen der experimentellen Untersuchungen wird der Versuchsraum abgedunkelt, da Jod lichtempfindlich ist. Das sechseckige Außengefäß wird mit entionisiertem Wasser befüllt. Die Wasser-Stärke-Lösung bzw. die Wasser-Stärke-Zellulose-Lösung werden in den Reaktor gefüllt. Die Strahlengänge und die Laserintensitäten werden justiert, sowie die Kameras eingestellt. Es werden zunächst Kalibriermessungen durchgeführt, die in Kapitel 5.7 beschrieben sind. Danach werden die eigentlichen Messungen durchgeführt. Die Öffnungszeiten des Magnetventils werden entsprechend dem gewählten Einstrahlvolumen und den vorliegenden Einstrahlrücken festgelegt.

5 Messtechnik

Die tomographische Zweiwellenlängenphotometrie wird zum Visualisieren der Konzentrationsfelder zweier Farbstoffe innerhalb eines Messvolumens angewendet. Hierzu werden zwei auf die unterschiedlichen spektralen Absorptionseigenschaften der Farbstoffe abgestimmte Laser eingesetzt. Sie durchstrahlen das Messvolumen in drei unterschiedliche Richtungen. Dadurch können die Konzentrationsfelder der zwei Farbstoffe gleichzeitig vermessen werden. Aufgrund der Intensitätsänderungen der jeweiligen Laserstrahlungen, welche definierten Lichtwegen zuzuordnen sind, lassen sich auf tomographischem Wege, die räumlichen Konzentrationsfelder beider Farbstoffe rekonstruieren.

5.1 Physikalische Grundlage der Absorption

Wenn die Lichtwellen eines Lasers eine optisch transparente Flüssigkeit durchstrahlen, so wird ihre Intensität durch Absorption, Reflektion oder Streuung, wie in Bild 5.1 dargestellt, geschwächt. Der absorbierte Anteil der Strahlung ist unabhängig von deren Intensität. Das Gesetz von Lambert sagt aus, dass die Änderung der Intensität proportional zur Dicke der durchstrahlten Schicht und der eingestrahnten Intensität ist:

$$dI = -kI dl \quad (5.1)$$

In Gl. (5.1) ist k der Extinktionskoeffizient, der für die Lichtabsorption verantwortlichen Substanz. Handelt es sich dabei um eine verdünnte Lösung, so ist k proportional zur Konzentration c der gelösten Komponente. Durch Integration der Gl. (5.1) entlang des Strahlwegs l ergibt sich das Lambert-Beersche Gesetz in der Form:

$$I = I_0 e^{-acl} \quad (5.2)$$

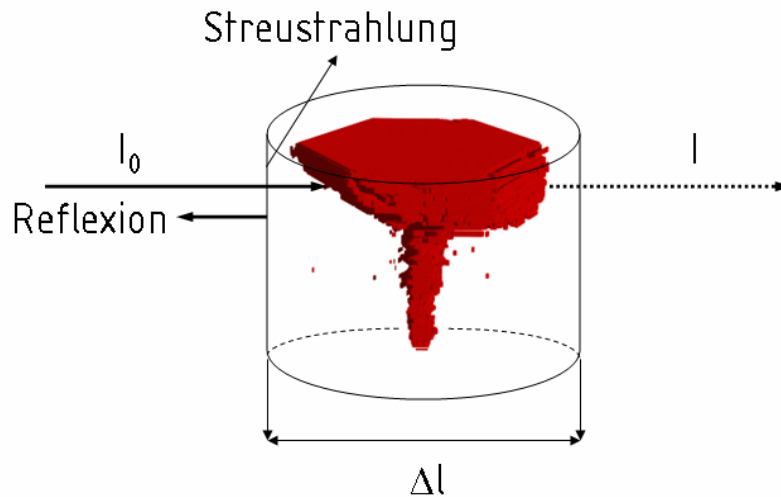


Bild 5.1: Absorption im Messvolumen

worin I_0 die in die verdünnte Lösung einfallende Lichtintensität, I die Intensität des transmittierten Lichts und a den molaren Extinktionskoeffizienten darstellt. Das Verhältnis I/I_0 wird auch als Transmission T bezeichnet. Aus Gl. (5.2) folgt:

$$\log \frac{I_0}{I} = \alpha c l \log e = \epsilon c l \quad (5.3)$$

ϵ ist der molare dekadische Extinktionskoeffizient und das Verhältnis $\log I_0/I$ wird als Extinktion E bezeichnet. Im Folgenden wird der molare dekadische Extinktionskoeffizient verwendet und zur Abkürzung Extinktionskoeffizient genannt.

Die physikalische Bedeutung der Gl. (5.3) liegt in der linearen Abhängigkeit der Konzentration einer Substanz von ihrer messbaren Extinktion. Das Lambertsche Gesetz gilt nur für monochromatisches Licht und nur für optisch transparente Lösungen. Auf absorptionsphotometrischem Wege lassen sich die Konzentrationen der gelösten Substanzen nur unterhalb spezifischer maximaler Konzentrationen messen. Dabei ist zu beachten, dass in verdünnten Lösungen die Absorption monochromatischen Lichtes für jede Molekülart von der Absorption durch die übrigen Molekülarten abhängt.

5.2 Absorptionsmessverfahren

Die Abschwächung der Strahlungsintensität durch Absorption in optisch transparenten Fluiden wird zum Messen der Absorptionsfelder eingesetzt. Das Messvolumen wird in drei unterschiedlichen um jeweils 60° zueinander gedrehten Richtungen durchstrahlt. Die Strahlungsintensitäten werden mit Hilfe von Sensoren als integrale Änderung des Extinktionskoeffizienten entlang des jeweiligen Durchstrahlungswegs gemessen:

$$\log\left(\frac{I}{I_0}\right) = -\int_l \varepsilon \cdot c(x, y, z) \cdot dl \quad (5.4)$$

Der Extinktionskoeffizient hängt sowohl von der Wellenlänge der verwendeten Laserstrahlung als auch von den optischen Eigenschaften des im Messvolumen enthaltenen Flüssigkeitsgemisches ab. Beim Anwenden monochromatischen Lichts kann mit Hilfe eines tomographischen Rekonstruktionsverfahrens jedem Ort im Messvolumen ein lokaler Extinktionskoeffizient und damit ein Wert der Konzentration des Flüssigkeitsgemisches zugeordnet werden.

5.3 Zweiwellenlängenphotometrie

Werden zwei monochromatische Lichtquellen unterschiedlicher Wellenlänge eingesetzt, so lassen sich mit Hilfe von Absorptionsmessverfahren die Konzentrationsfelder von zwei gelösten Substanzen gleichzeitig messen. In diesem Fall müssen die Extinktionskoeffizienten der zu vermessenden Substanzen für die verwendeten Wellenlängen unterschiedlich sein. Eine derartige Messtechnik, wird als Zweiwellenlängenphotometrie bezeichnet und von Buchmann [57] beschrieben.

In [Bild 4.5](#) sind die Extinktionskoeffizienten zweier zur Messung eingesetzten Farbstoffe als Funktion der Wellenlängen sichtbaren Lichts dargestellt. Die beim Durchstrahlen längs der Weglänge eintretende Lichtschwächung beträgt

für die in den Experimenten eingesetzte monochromatische Strahlung eines Argon-Ionen-Lasers bzw. eines He-Ne-Lasers:

$$\log\left(\frac{I_0}{I}\right)_{\text{Ar}} = (\epsilon_{\text{in,Ar}} c_{\text{in}} + \epsilon_{\text{r,Ar}} c_{\text{r}}) \cdot l \quad (5.5)$$

$$\log\left(\frac{I_0}{I}\right)_{\text{He}} = (\epsilon_{\text{in,He}} c_{\text{in}} + \epsilon_{\text{r,He}} c_{\text{r}}) \cdot l \quad (5.6)$$

Der Index *in* bezeichnet den inerten Farbstoff Duasyn-Säureponceau, *r* den reagierenden Farbstoff Jod, *Ar* kennzeichnet den Ar-Ionen Laser und *He* den He-Ne Laser.

Mit den gemessenen Intensitätsänderungen können mit Hilfe des Gleichungssystems die integral gemessenen Farbstoffkonzentrationen längs der Strahlen berechnet werden. Um die räumlichen Konzentrationsfelder zu berechnen, muss ein tomographisches Rekonstruktionsverfahren angewendet werden.

5.4 Prinzip und Anwendung der Tomographie

Die aus der Medizin und der Werkstoffprüfung bekannten tomographischen Verfahren ermöglichen es, zeitgleich lokale Parameter an vielen unterschiedlichen Orten eines Querschnitts aus integralen Messungen zu ermitteln. Die Messungen erfolgen i.a. berührungslos und sind daher rückwirkungsfrei für die untersuchten Strömungs- und Konzentrationsfelder. Durch das gleichzeitige Vermessen in mehreren Querschnitten lassen sich dreidimensionale Konzentrationsfelder rekonstruieren und visualisieren.

Tomographische Messverfahren beinhalten grundsätzlich zwei voneinander unabhängige Schritte zur Ergebnisfindung und Darstellung [7]. Diese sind schematisch in Bild 5.2 dargestellt. Zuerst werden mit Hilfe eines zu wählenden Sensors integrale Messwerte Φ_M des Feldes einer physikalischen

Eigenschaft $g(x,y)$, wie z.B. die des Extinktionskoeffizienten im Strömungsfeld gemessen.

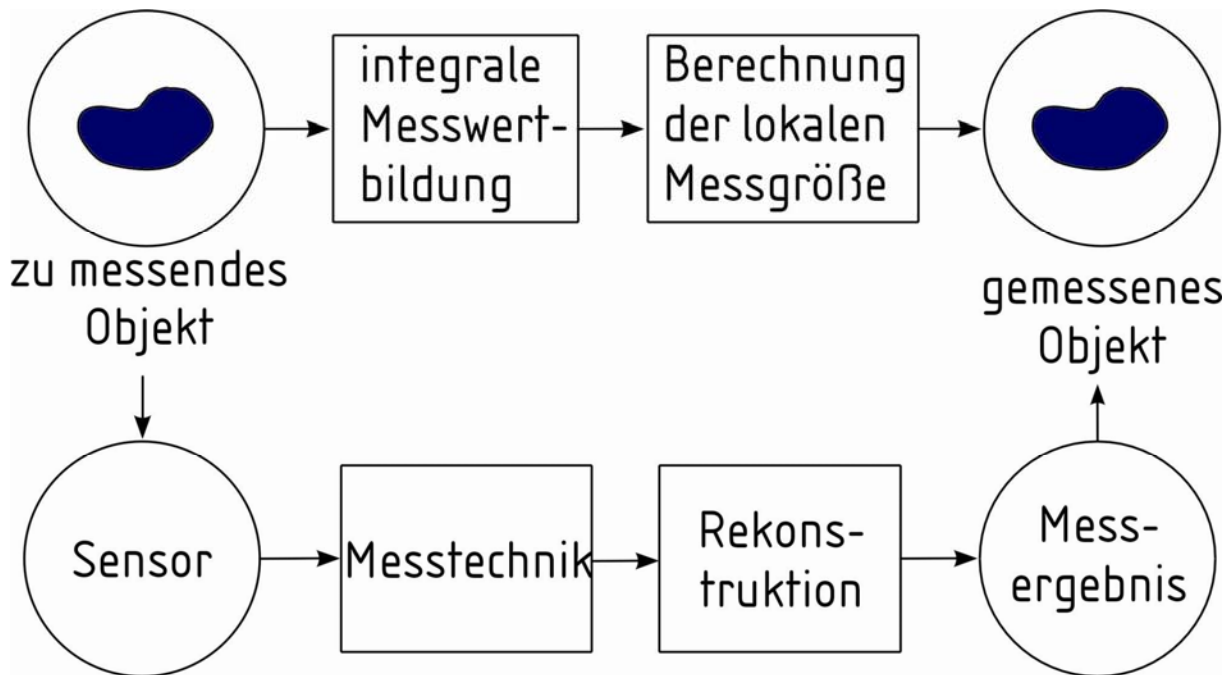


Bild 5.2: Schematische Darstellung der Messkette tomographischer Messverfahren

Die integralen Messwerte Φ_M beinhalten bereits Informationen über die lokalen Werte des Feldes $g(x,y)$. Diese sind jedoch nur implizit in den integralen Messwerten Φ_M enthalten, so dass sich die Berechnung der lokalen aus den integral gemessenen Größen, die sog. Rekonstruktion, anschließt. Das Ergebnis sind die lokalen Werte $g(x,y)$ der vermessenen Feldgröße eines Strömungsfelds.

In Bild 5.3 ist das Messprinzip der optischen Tomographie schematisch dargestellt. Im ersten Schritt wird mit Hilfe eines geeigneten Verfahrens der integrale Messwert Φ_M der gesuchten Feldgröße $g(x,y)$ erzeugt. Dazu wird der Querschnitt mit Hilfe eines Laserstrahls aus einer Richtung durchstrahlt und die Schwächung der Lichtintensität gemessen. Mit Hilfe der Messung entlang eines Lichtstrahls ist noch kein Rückschluss auf das räumliche Feld des gesuchten Extinktionskoeffizienten möglich. Deshalb wird der Querschnitt aus weiteren Richtungen durchstrahlt, so dass weitere Projektionen Φ_{M2} , Φ_{M3} ... erhalten werden. Entlang jeden Lichtstrahls sind Informationen über das

gesuchte Feld g des Extinktionskoeffizienten implizit enthalten. Die einzelnen Messungen sind linear voneinander unabhängig, da sich kein Ergebnis aus dem vorhergehenden herleiten lässt. Das Ergebnis der tomographischen Messung ist ein Messwertvektor Φ_M , der sich aus den Messungen an einzelnen Strahlen ergibt.

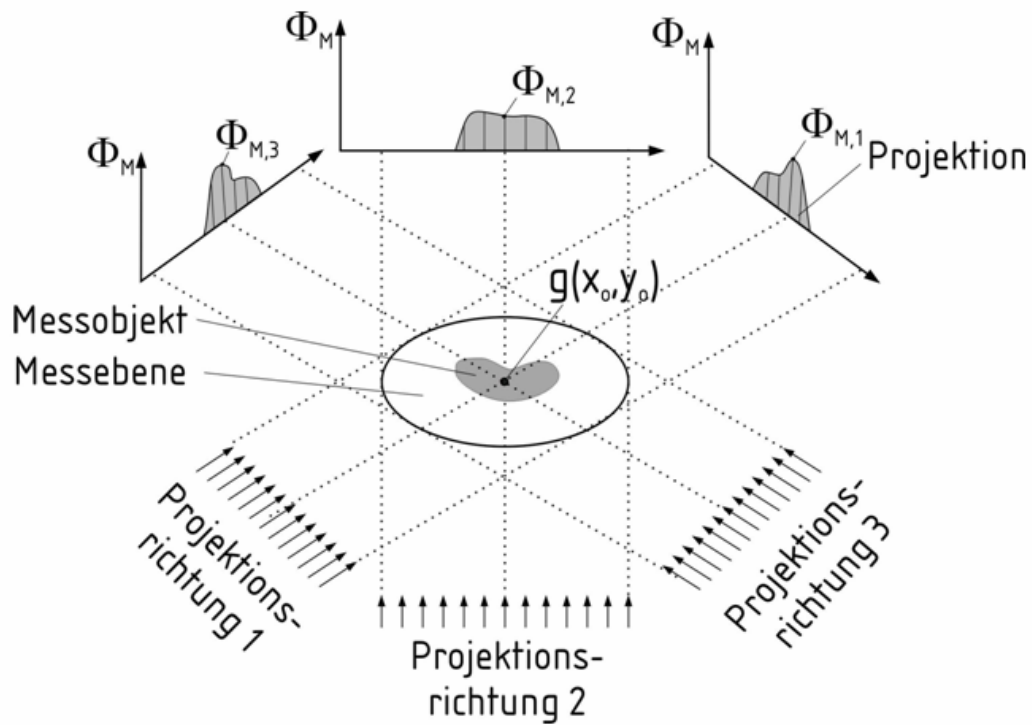


Bild 5.3: Schematische Darstellung der integralen Messwertbildung am Beispiel der optischen Durchlicht-Tomographie

5.5 Optischer Aufbau

Der Aufbau der optischen Komponenten zum Messen der räumlichen Konzentrationsfelder ist in Bild 5.4 schematisch dargestellt. In Bild 5.5 ist eine Abbildung des Messaufbaus gezeigt, in der die Strahlwege des Lichts als Linien eingezeichnet sind. Es werden ein Argon-Ionen-Laser mit der Wellenlänge 514 nm und ein Helium-Neon-Laser mit der Wellenlänge 632 nm verwendet. Die Wahl der Lichtwellenlängen der Laser ist auf die einzusetzenden Farbstoffe abgestimmt. Die zwei Laserstrahlen werden überlagert und in drei Einzelstrahlen entsprechend der drei gewählten

Durchstrahlungsrichtungen geteilt. Hierzu müssen ihre Polarisationsrichtungen übereinstimmen.

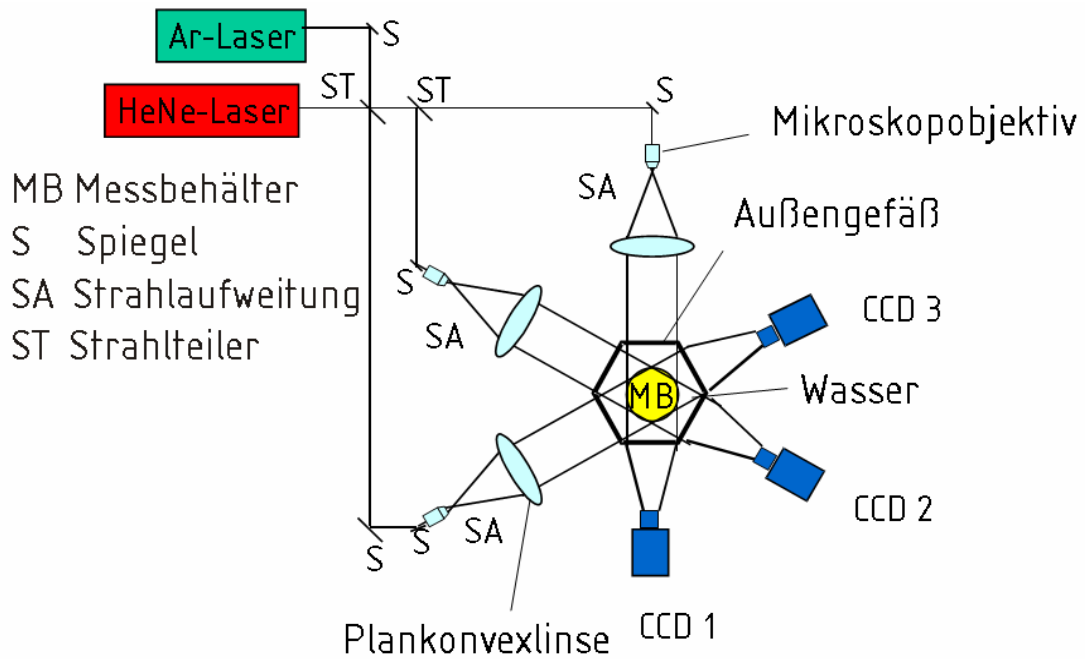


Bild 5.4: Optischer Aufbau für die tomographische Zweiwellenlängen-Photometrie

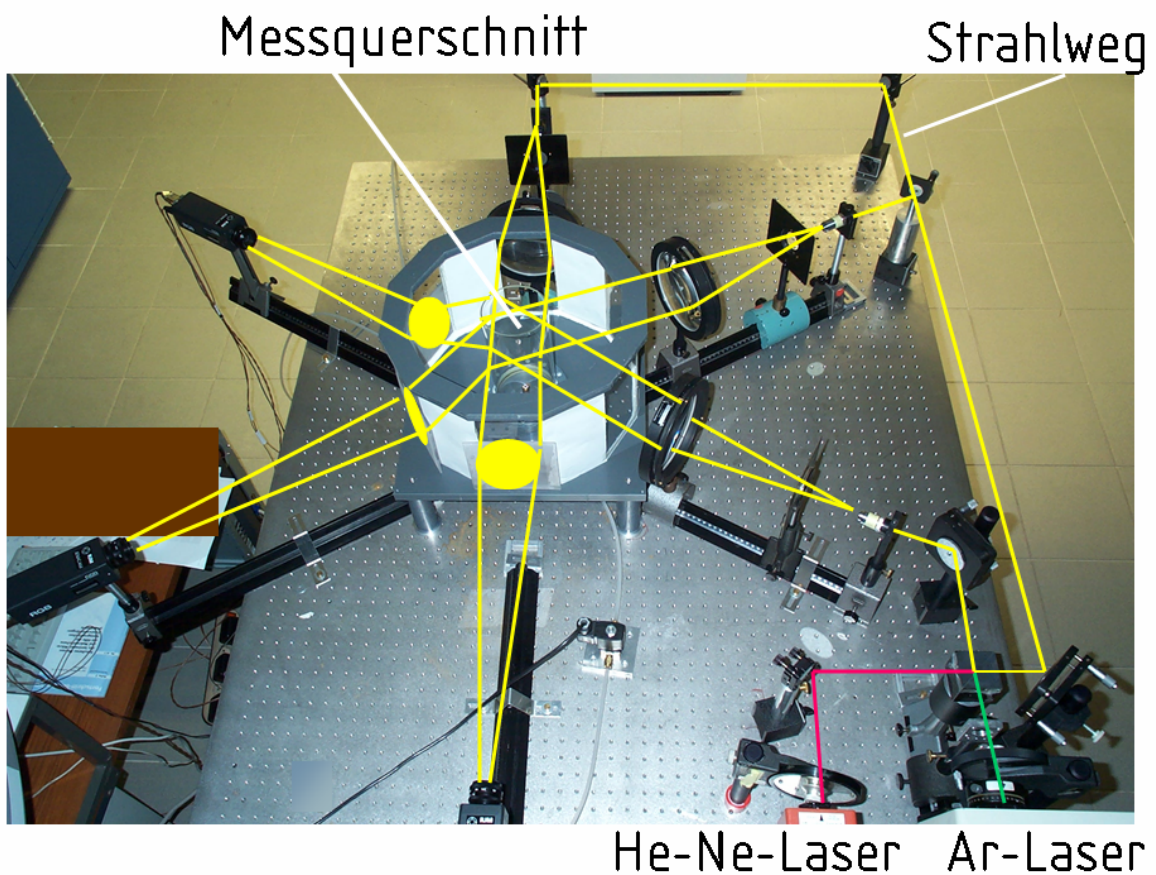


Bild 5.5: Photographie des optischen Aufbaus

Das Licht des Argon-Ionen-Lasers ist senkrecht polarisiert und das des He-Ne-Lasers ist nicht polarisiert. Daher ist hinter dem Argon-Ionen-Laser ein Polarisator eingebaut, der es gestattet, die Polarisierung des Argon-Ionen-Lasers zwischen senkrecht und waagrecht einzustellen. Die Strahlen beider Laser gleicher Leistung werden zunächst überlagert, um sie anschließend in drei Strahlen gleicher Intensität zu teilen. Die drei so erhaltenen Strahlen werden jeweils mit Hilfe eines Objektivs von 40-facher Vergrößerung aufgeweitet. Jedes Objektiv ist so positioniert, dass sein Brennpunkt mit dem einer Plankonvexlinse von 150 mm Durchmesser zusammenfällt. Somit wird jeder ausgeweitete Strahl durch die Linse parallelisiert. Mikroskopobjektive und Linsen sind auf optischen Schienen montiert, um die Justierung zu vereinfachen.

Die parallelisierten Strahlen treffen senkrecht auf die Glasscheiben des 6-eckigen Außengefäßes und treten unverzerrt in den zylindrischen Messbehälter ein. Das Glas beider Gefäße ist mit einer Antireflexschicht für die verwendeten Laserwellenlängen versehen. Da Unterschiede zwischen dem Brechungsindex des Messbehälters und dem der Flüssigkeit im Außengefäß und der im Behälter existieren, werden die Strahlen im Randbereich leicht verzerrt. Aus diesem Grund wird die Breite des Messvolumens auf 80 mm reduziert. Innerhalb dieses Bereiches laufen die Strahlen weitestgehend parallel.

Die Strahlen werden bei Verlassen des Behälters partiell gebrochen. Nach Durchtritt durch das Außengefäß treffen sie in jeder der drei gewählten Richtungen auf ein Blatt transparenten Papiers, welches als Projektionsfläche dient. Auf diese Art wird keine zusätzliche Verzerrung der Strahlen verursacht. Die projizierten Bilder der Konzentrationsfelder werden von drei CCD-Farbkameras aufgenommen und vor der Rekonstruktion mit Hilfe einer Kalibrierung korrigiert. Somit wird das tatsächliche Konzentrationsfeld ohne Einfluss der Brechung wiedergegeben.

Die optischen Komponenten, die CCD-Kameras und der Behälter sind auf einem optischen Tisch montiert, der das System gegen Störungen aus der Umgebung während der Messungen schützt.

Der Ausgleich von Unterschieden in der Farbstoffkonzentration verläuft im Behälterinhalt so schnell, dass für die tomographische Rekonstruktion alle integralen Messdaten gleichzeitig aufgenommen werden müssen. Aus diesem Grunde werden alle Kameras mit Hilfe eines externen Triggerimpulses gestartet. Jede Kamera ist mit einem Rechner verbunden. Die Bildwiederholfrequenz der Kameras, die von der Rechnerleistung unterstützt ist, beträgt 50Hz. Nach der Aufnahme werden die Daten auf den drei Rechnern gespeichert. Die eingesetzten CCD-Kameras (Typ: pixelfly 205XS Fa. Pco.imaging) haben Auflösungen von 640x480 Pixel und 12 Bit Dynamik. Vor dem CCD Sensor der Kameras ist ein Bayer Filter positioniert, der das Speichern der Farbinformationen ermöglicht.

5.6 Auswertung der gemessenen Daten

5.6.1 Rekonstruktionsverfahren

Um mit Hilfe der gemessenen Lichtintensitäten die Konzentrationsfelder der Farbstoffe zu berechnen, wird ein Rekonstruktionsverfahren verwendet. Zahlreiche Algorithmen sind bekannt. Sie sind von Mewes und Renz [72] beschrieben und unterschiedlich geeignet, die lokalen Daten mit Hilfe weniger Projektionsrichtungen zu rekonstruieren. Im Rahmen dieser Arbeit wird die Kombination aus dem iterativen algebraischen Rekonstruktionsalgorithmus (ART) und diskreten Fouriertransformationen (Sample-Verfahren) eingesetzt. Die iterative Reihenentwicklung zeichnet sich durch eine hohe Rekonstruktionsgüte für Anwendungen mit kleinem Gesamtblickwinkel und einer geringen Anzahl an Strahlrichtungen aus. Mit Hilfe der Messwerte werden die nicht bekannten Koeffizienten des unterbestimmten Gleichungssystems berechnet. Dazu ist die diskrete

Verteilung von Feldelementen in einer Zielmatrix gesucht. Das Sample-Verfahren beinhaltet die Reihenentwicklung der Form

$$\sum_{j=1}^N w_{ij} f_j = \Phi \quad (5.7)$$

Wobei $i = 1, 2, \dots, M$ ist.

Darin sind Φ_i die Messwerte des Strahles i und f_j die Feldelemente der gesuchten Extinktion an den Orten j . Mit w_{ij} wird eine $i \times j$ große Koeffizientenmatrix beschrieben. Die Koeffizienten sind Gewichtungsfaktoren, die den Beitrag des Gitterelementes j am Strahlverlauf i darstellen. Sie beschreiben für jedes Gitterelement j die anteilige Fläche, die von dem jeweiligen Strahl i erfasst wird [5]. Die Gl. (5.7) wird mit Hilfe der ART gelöst.

Während des Rechnungsgangs werden die nach jedem Iterationsschritt berechneten Projektionswerte mit den gemessenen verglichen. Danach wird eine Korrektur der Feldelemente vorgenommen. Zuerst werden die Feldelemente f_i auf den Anfangswert $f_j^{(1)}=1$ gesetzt. Der Wert $\Phi_i^{(k)}$, der nach dem k -ten Iterationsschritt mit Gl. (5.7) berechnet wird, weicht oft vom Messwert Φ_i ab. Die Differenz lautet

$$\Delta\Phi_i^{(k)} = \Phi_i - \Phi_i^{(k)} = \Phi_i - \sum_{j=1}^N w_{ij} f_j^{(k)} \quad (5.8)$$

Mit diesem Wert wird das $(k+1)$ -te iterierte Feldelement mit der Gleichung

$$f_j^{(k+1)} = f_j^{(k)} \left(\frac{\Phi_i}{\Phi_i^{(k)}} \right) \quad (5.9)$$

korrigiert. Diese Korrektur wird multiplikatives ART-Verfahren genannt.

5.6.2 Anwendung des ART-Algorithmus

Für die in dieser Arbeit durchgeführte Rekonstruktion wird das Messvolumen in Ebenen unterteilt. Eine Projektionsrichtung wird wiederum in Teilstrahlen

aufgeteilt. Die Strahlen der drei Strahlrichtungen schneiden sich, wie in Bild 5.6 dargestellt, in prismenförmigen Elementen.

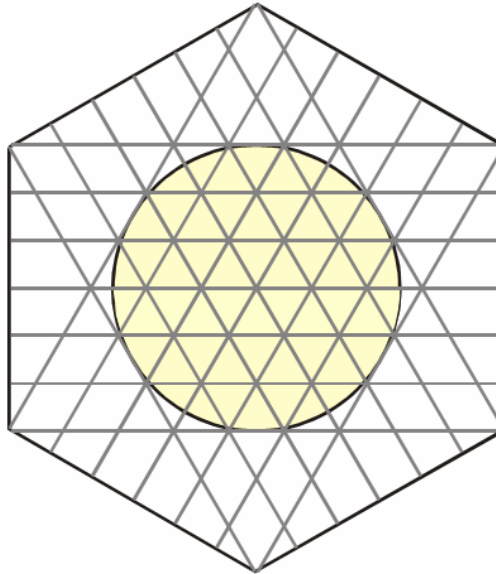


Bild 5.6: Wahl der Gitterelemente für die tomographische Rekonstruktion

Diese Anordnung bietet den Vorteil, dass die Form der Elemente sowohl an das Koordinatensystem als auch an die Projektionsrichtungen angepasst ist. Reinecke, Petritsch und Mewes [73,74,75] haben nachgewiesen, dass eine Vergrößerung der Anzahl der Strahlrichtungen nicht zwangsläufig zu einer verbesserten Rekonstruktionsgüte führen muss. Wichtiger als die Anzahl der Strahlrichtungen ist die Wahl des Koordinatensystems. Dieses sollte an die Strahlrichtungen angepasst sein, so dass die Zuordnung der Elemente auf die Strahlen eindeutig ist. Für die in Bild 5.7 dargestellten quadratischen Elemente sind wegen nicht angepasster Strahlengänge Gewichtungsfaktoren S_i zu berechnen, die den Flächenanteil des Strahls an der Gesamtfläche des Elements berücksichtigen. Für ein an dreieckige Elemente angepasstes Koordinatensystem werden alle Gewichtungsfaktoren für alle Elemente zu Eins gesetzt. Das Gleichungssystem wird dadurch stark vereinfacht und liefert auch für eine geringere Anzahl an Strahlrichtungen verbesserte Lösungen.

In dieser Arbeit werden Gitter mit unterschiedlichen Abmessungen erprobt. Das Gitter, welches zur Rekonstruktion am besten geeignet ist, entspricht dem

mit 120 Strahlen in jeder Richtung. Die Anzahl der Ebenen ist 86. Die sich ergebenden Voxelabmessungen sind $0,69\text{mm} \times 0,8\text{mm} \times 0,85\text{mm}$, so dass sich die gesamte Anzahl von 1857600 Elementen, ergibt, was 21600 Elementen pro Ebene entspricht.

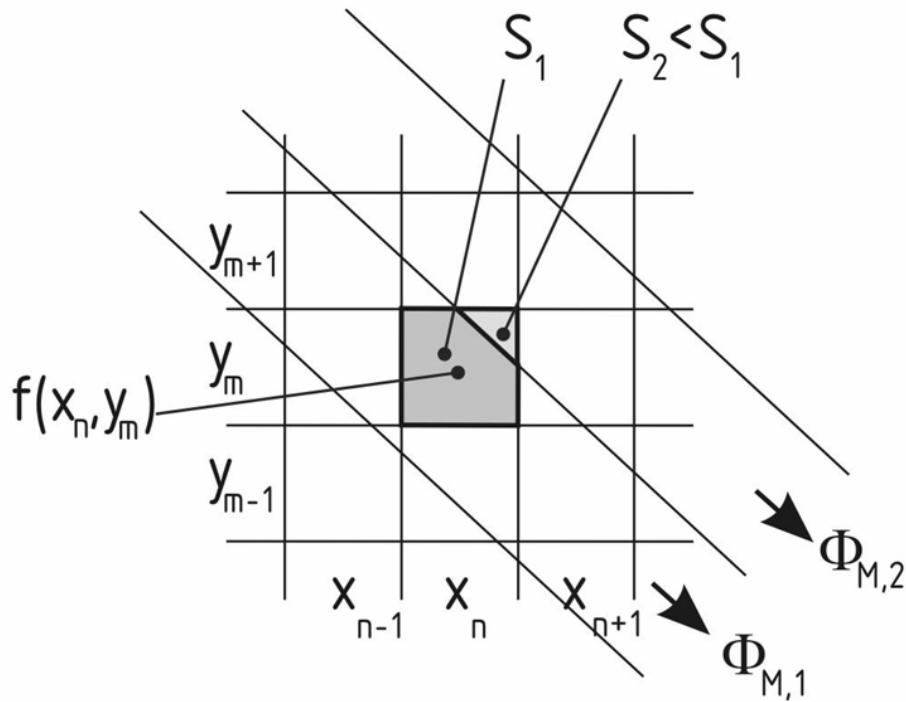


Bild 5.7: Gitter mit quadratischen Elementen

Die Farbstoffkonzentration wird für jedes Element des Gitters berechnet. Dazu wird von einem geschätzten Konzentrationsfeld in einer Ebene des Messvolumens ausgegangen. Damit werden die integralen Werte für jeden Strahlengang durch dieses Feld berechnet. Diese berechneten Werte werden mit den gemessenen Werten verglichen. Unter Verwendung der Differenz wird das geschätzte Konzentrationsfeld neu berechnet. Die Abweichungen zwischen den tatsächlichen Konzentrationsfeldern und den berechneten hängen von der Anzahl der Iterationsschritte ab. Der Vorgang wird so lange wiederholt, bis die Fehlerabweichung einen vorgegebenen Toleranzwert nicht übersteigt. Diese Rekonstruktion wird für alle Ebenen des Messvolumens und für beide Farbstoffe durchgeführt.

5.6.3 Visualisieren der gemessenen Konzentrationsfelder

Die von den Kameras aufgenommenen Bilder werden als Grauwerte mit 12 Bit Dynamik gespeichert. Jeder Grauwert beinhaltet eine vom RGB-Filter erzeugte Farbinformation. Dies ist in Bild 5.8 dargestellt. Um die Bilder bearbeiten zu können, wird jedem Pixel die entsprechende Farbinformation zugeordnet.

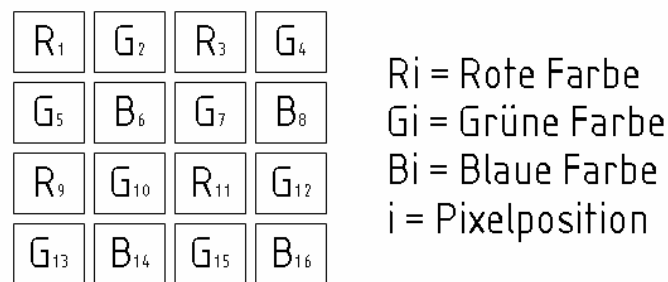


Bild 5.8: Farbinformation in jedem Pixel des Bildes

Dafür dienen Umrechnungsalgorithmen, die die vorhandene Farbinformation in jedem Pixel erkennen und die fehlende durch Interpolation berechnen. Der hier verwendete Algorithmus ist geeignet, die Optimierung der örtlichen Auflösung durchzuführen. Dazu wird für jeden Pixel farbspezifisch ein Wert errechnet und auf die jeweiligen Nachbarpixel bezogen. Damit werden beispielhaft für Pixel 6 die folgenden Intensitätswerte für die Farben rot und grün berechnet:

$$P_{\text{rot}} = (R_1 + R_3 + R_9 + R_{11})/4 \quad (5.10)$$

$$P_{\text{grün}} = (G_2 + G_5 + G_7 + G_{10})/4 \quad (5.11)$$

Für Pixel 7 werden folgende Werte berechnet:

$$P_{\text{rot}} = (R_3 + R_{11})/2 \quad (5.12)$$

$$P_{\text{grün}} = G_7 \quad (5.13)$$

Die farbkodierten Intensitätswerte der in Strahlrichtung projizierten Bilder werden mit Hilfe des Rekonstruktionsprogramms berechnet. Die Intensitätswerte können im roten Bereich eindeutig dem Helium-Neon-Laser zugeordnet werden, wogegen die Intensitätswerte im grünen Bereich eindeutig dem Argon-Ionen-Laser zuzuordnen sind. Damit lassen sich die Konzentrationsfelder der zwei Farbstoffe auf separaten Wegen berechnen. Gesucht sind die Extinktionskoeffizienten der Farbstoffe in Abhängigkeit des verwendeten Laserlichtes. Hierzu sind die Ebenen, in denen die Rekonstruktion erfolgen soll, die Anzahl der Iterationsschritte und die Anzahl der Punkte, die für eine Glättung der Mess- und rekonstruierten Werten berücksichtigt werden sollen, festzulegen.

Zunächst wird die mittlere Konzentration der Farbstoffe, der Segregationsgrad $I_s(t)$ und die dimensionslose Restjodmenge $N_{j}^*(t)$ berechnet. Die in jeder Ebene berechneten Konzentrationsfelder der Farbstoffe werden als Matrix und als Grauwerte in 8-bit Bildern gespeichert. Diese Schnittbilder werden mit Hilfe des Programms „VG Studio Max“ bearbeitet, um von der 2 - D Farbstoffkonzentration eine 3 - D Darstellung zu erzeugen. Ein Beispiel dafür ist in Bild 5.9 dargestellt. Das Programm ermöglicht nicht nur die 3 - D Darstellung des gesamten Volumens, sondern auch die von Querschnitten entlang aller drei Achsen des Voxeldatensatzes.

5.7 Kalibrieren des Messsystems

Mit Hilfe der Zweiwellenlängenphotometrie werden die Intensitäten des eingestrahnten und des transmittierten Lichts gemessen. Mit Hilfe des Lambert-Beerschen Gesetztes wird das Verhältnis zwischen den Intensitäten in die Konzentrationen der Farbstoffe umgerechnet. Sollte das Laserlicht starke Intensitätsschwankungen während einer Messreihe aufweisen, so wird die Messgenauigkeit beeinflusst. Zusätzlich müssen zum Berechnen der Konzentrationen die wellenlängeabhängigen Extinktionskoeffizienten der

Farbstoffe und die Länge der Strahlenwege innerhalb des Messquerschnitts bekannt sein.

horizontale Querschnittsebene

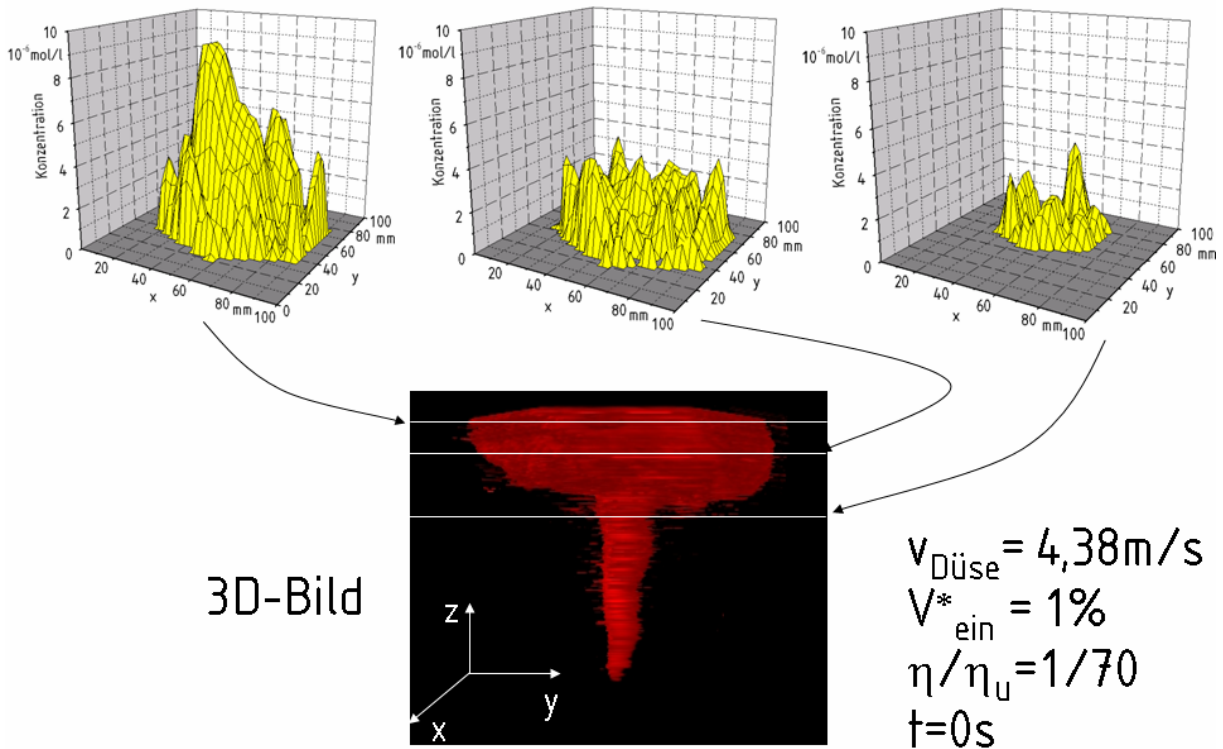


Bild 5.9: Rekonstruierte Schnittbilder und räumliche Darstellung eines Konzentrationsfeldes

5.7.1 Messen der Extinktionskoeffizienten

Jede Justage der Optiken beeinflusst die Extinktionskoeffizienten der Farbstoffe. Aus diesem Grunde soll nach jeder Justage eine Kalibrierung in jeder der durchgestrahlten Richtungen erfolgen. Das Kalibrieren wird für jeden Farbstoff und mit Hilfe beider Laser getrennt durchgeführt.

Dazu werden zunächst 10 Referenzbilder aufgenommen, in denen die Flüssigkeit im Messbehälter ohne Farbstoff durchstrahlt wird. Danach werden hintereinander zwei bekannte Konzentrationen des gleichen Farbstoffs eingestellt und entsprechende 10 Bilder mit der transmittierten Intensität gespeichert. Die mit gleicher Farbstoffkonzentration aufgenommenen Bilder werden gemittelt. Einige Ebenen werden aus den Bildern gewählt. Ihre

Intensitätsprofile dienen dazu, die Transmission T zu berechnen. Dies erfolgt im roten Bereich, für den Extinktionskoeffizient des He-Ne-Lasers und im grünen Bereich für den Extinktionskoeffizient des Ar-Ionen-Lasers. Die so erzeugten ortsabhängigen Transmissionen werden, wie in Bild 5.10 dargestellt, durch ein Polynom zweiter Ordnung angenähert und gemittelt.

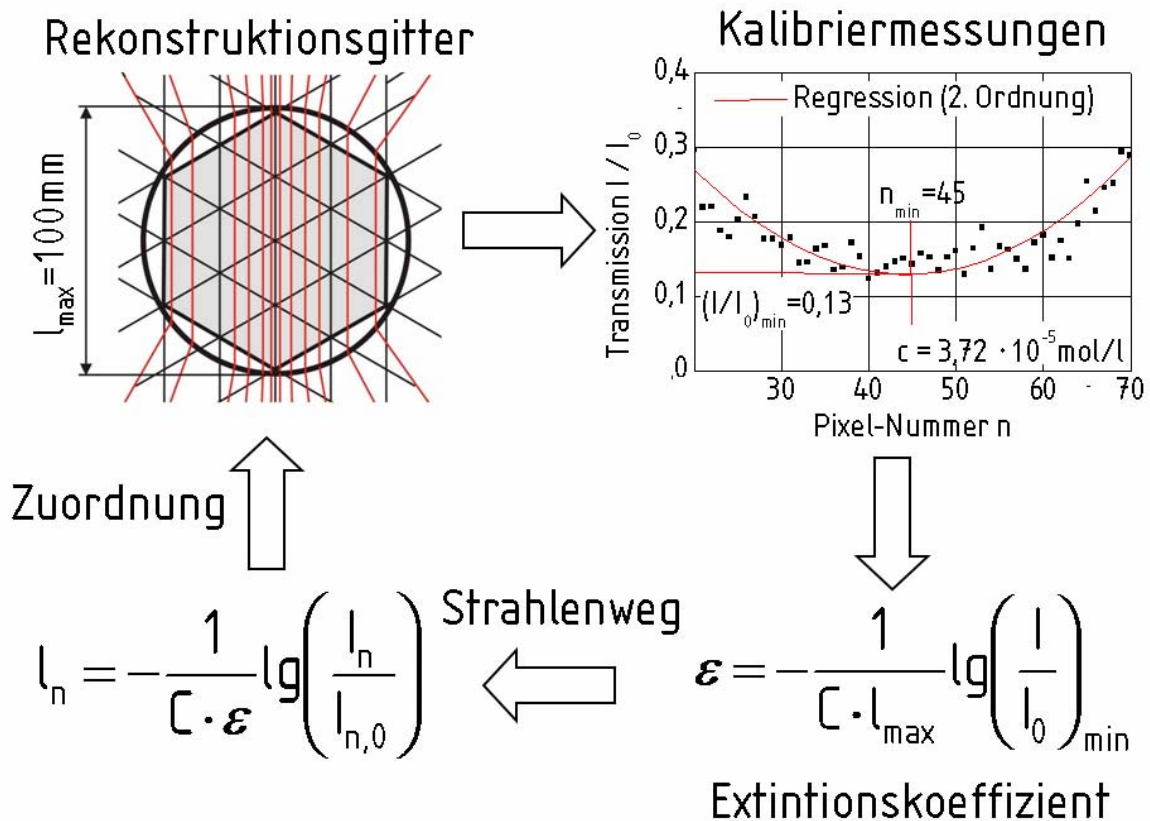


Bild 5.10: Ablauf der Kalibrierung

Das Minimum der Ausgleichskurve entspricht dem längsten Durchstrahlungsweg durch das Messvolumen des Reaktors, dem Reaktordurchmesser. Die berechneten Transmissionsminima T_{\min} werden als Funktion der Konzentration dargestellt. Daraus wird der Extinktionskoeffizient ε wie folgt berechnet:

$$\varepsilon = \frac{\Delta(-(\log(T_{\min})))}{\Delta c \cdot 9,9 \text{ cm}} \quad (5.14)$$

Wenn der Extinktionskoeffizient bekannt ist, kann jedem Pixel einer Ebene eine Weglänge zugeordnet werden. Da mit Hilfe der Ausgleichskurve die Transmission für jeden Pixel bekannt ist, kann die zugehörige Weglänge l wie folgt berechnet werden:

$$l = -\frac{\log T}{c \cdot \varepsilon} \quad (5.15)$$

Die berechneten Weglängen werden gespeichert und für die Rekonstruktion verwendet.

6 Gemessene Konzentrationsfelder

Für die ersten Messreihen werden sowohl für die eingestrahnten als auch für die im Reaktor befindlichen Flüssigkeiten solche mit der Viskosität des Wassers, d.h. 1 mPa s gewählt. Dabei werden die Düsenform, die Einstrahlgeschwindigkeit und das eingestrahnte Volumen variiert. Die erzeugten räumlichen Konzentrationsfelder werden rekonstruiert und für einen Querschnitt senkrecht zum Behälterboden dargestellt. Diese Ergebnisse werden beschrieben.

Danach werden die Ergebnisse für Messreihen erläutert, in denen Unterschiede zwischen der Viskosität der Flüssigkeit im Reaktionsbehälter und der des eingestrahnten Flüssigkeitsvolumens bestehen. Die rekonstruierten Konzentrationsfelder werden sowohl als Isoflächen dreidimensional als auch in Querschnitt dargestellt. Es werden zusätzlich die zeitlichen Verläufe der Intensität der Segregation und der Restjodmenge berechnet. Dafür werden einige ausgewählte Bilder zu unterschiedlichen Zeitpunkten ausgewertet. Hierbei ist es nicht möglich, aus allen integralen Messungen die lokalen Konzentrationsfelder zu rekonstruieren. Der Grund dafür ist, dass für einige Messungen das Laserlicht die bewegte Flüssigkeitsoberfläche trifft und Reflexe erzeugt. Unter derartigen Bedingungen kann keine Farbstoffsabsorption gemessen werden, da Fehler beim Berechnen des gesamten Konzentrationsmittelwerts entstehen. Ein zweiter Fehler tritt auf, wenn die Geschwindigkeiten der Flüssigkeit am Düsenaustritt groß sind. Erreicht die eingestrahnte Flüssigkeit die Oberfläche, so entstehen Wellen, die ihrerseits ein Geschwindigkeitsfeld verursachen. Dadurch können Luftblasen in die Flüssigkeit des Reaktors eingetragen werden. Es entstehen Lichtbrechungen und starke Lichtabsorptionen.

6.1 Einstrahlen von Flüssigkeitsgemischen mit umgebungsgleicher Viskosität

In diesen Messreihen wird im Behälter eine wässrige Lösung mit 0,1% in Gewicht Stärke und Natriumthiosulfat eingesetzt. Die Strahlen bestehen aus der gleichen Stärke-Lösung wie im Reaktor vorhanden, sind jedoch zusätzlich mit Duasyn-Säureponceau und Jodlösung angefärbt. Da die Menge der Farbstoffe in der eingestrahlten Flüssigkeit und die an Natriumthiosulfat im Reaktor gering sind, verhalten sich beide Flüssigkeiten rheologisch wie reines Wasser.

6.1.1 Variation der Düsenform

Für die Messungen wird zunächst die im Kapitel 4.7 beschriebene Form der Mischdüse eingesetzt. Dazu werden unterschiedliche Konzentrationen des Natriumthiosulfats im Reaktor vorgelegt. Entsprechend der Reaktionsgleichung (4.10) beträgt die stöchiometrische molare Konzentration des Natriums das 0,75 fache der molaren Jodkonzentration. Die Konzentration des Natriumthiosulfats wird zwischen $c_{Na}=10^{-5}$ mol/l und $c_{Na}=2 \cdot 10^{-4}$ mol/l variiert. Dies entspricht einem stöchiometrischen Überschuss an Natriumthiosulfat gegenüber dem Jod von 2 bzw. 38 zu 1. In den Reaktor wird die wässrige Stärke-Jod Lösung eingestrahlt. Die Reynolds-Zahl beträgt in der Düsenöffnung $Re_n=2600$. Die Bilder 6.1-6.2 sind von einer Seite des Reaktors aufgenommen und zeigen die Projektion der Felder der Jodkonzentration jeweils nach 0,04s bzw. 0,4s. Die Konzentrationen des Natriumthiosulfats betragen $c_{Na}=10^{-5}$ mol/l bzw. $c_{Na}=2 \cdot 10^{-4}$ mol/l. Je größer die Verhältnisse der Konzentration des Natriumthiosulfats zur Jodkonzentration sind, desto schneller reagiert das Jod. Bei mehr als dem 100 fachen Überschuss ist das Jod während des Austritts aus der Düse nicht mehr sichtbar. Die Reaktion findet dann bereits innerhalb des Impulsaustauschraums der Mischdüse statt.

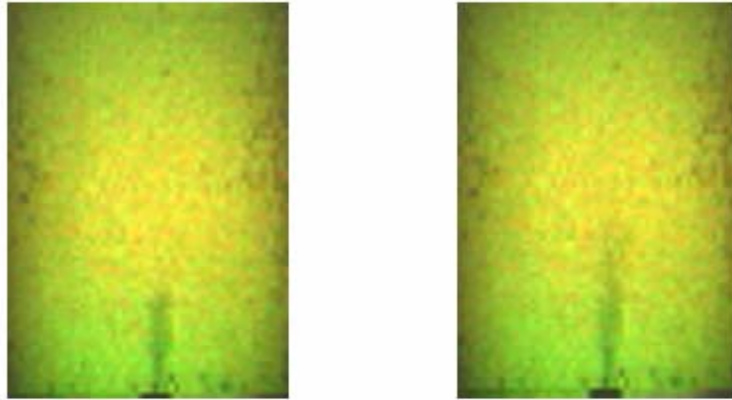


Bild 6.1: Projektionsbilder für $c_{Na}=10^{-5}$ mol/l und für $t=0,04$ s und $t=0,4$ s nach Beginn des Einstrahlens

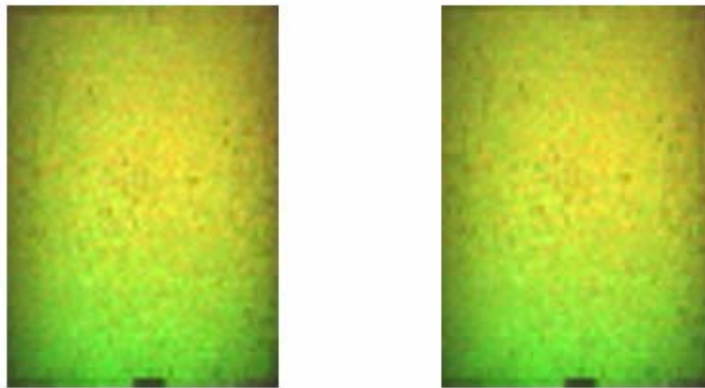


Bild 6.2: Projektionsbilder für $c_{Na}=10^{-4}$ mol/l und für $t=0,04$ s und $t=0,4$ s nach Beginn des Einstrahlens

Mit der Natriumthiosulfatkonzentration von $c_{Na}=9,9 \cdot 10^{-4}$ mol/l werden einige Messreihen für die Austrittsgeschwindigkeit der Flüssigkeit an der Düse von $w_n=2,27$ m/s durchgeführt. Das eingestrahle Volumen beträgt 1% zur Reaktorfüllmenge. In Bild 6.3 ist das Konzentrationsfeld des inerten Farbstoffs für einen ausgewählten Querschnitt dargestellt. Die Konzentrationsfelder gelten für einzelne senkrecht zur Behälterachse stehende Ebenen. 0,24s nach Beginn des Einstrahlens erreicht das zugegebene Flüssigkeitsgemisch die Oberfläche des Reaktorsvolumens und wird rezykliert. Nach 0,76s ist das Farbstoffgemisch vollständig eingestrahlt

und sein Konzentrationsfeld erscheint in der qualitativ vorgenommenen Bilderanalyse homogen verteilt.

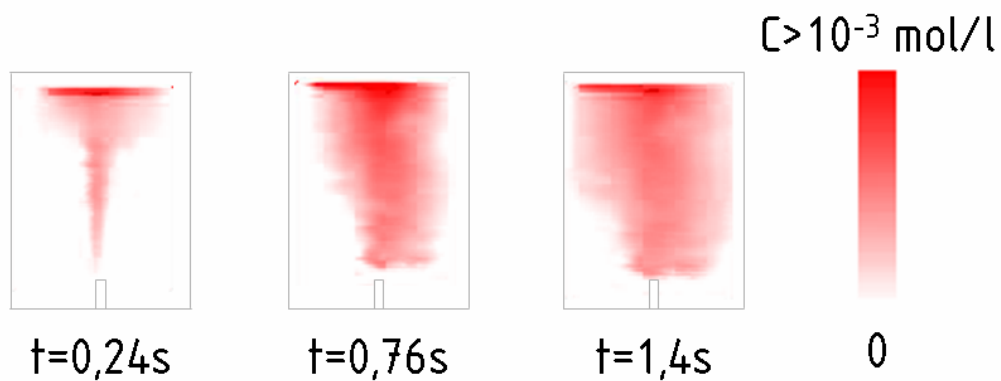


Bild 6.3: Rekonstruierte im Querschnitt dargestellte Konzentrationsfelder des inerten Farbstoffs nach dem Einstrahlen durch die Mischdüse mit $w_n=2,27\text{m/s}$

Es sind innerhalb des Zeitintervalls 0,76s und 1,4s keine wesentlichen Unterschiede im Konzentrationsfeld bemerkbar. Auf Grund der schnellen Reaktion des Jods im Reaktor ist es nicht möglich, das Konzentrationsfeld im Reaktorvolumen auf tomographischem Wege zu rekonstruieren.

Um die Rekonstruktion zu ermöglichen, werden Versuchsreihen mit Hilfe der in Kapitel 4.7 beschriebenen Düse durchgeführt. In Bild 6.4 sind die Konzentrationsfelder für das eingestrahlte wässrige Gemisch aus Jod und Stärke in Form von durch ein Lichtbündel projizierten Schattenbildern dargestellt. In diesem ist unreaktiertes Jod während des Einstrahlvorgangs sichtbar. Der Grund dafür ist, dass die reagierenden Komponenten innerhalb der Düse separiert geführt sind und erst am Düsenaustrittsquerschnitt mit der Flüssigkeit im Reaktor in Kontakt kommen und reagieren können.

In Bild 6.5 ist das zeitveränderliche Konzentrationsfeld des inerten Farbstoffs für einen ausgewählten Querschnitt dargestellt. Die Austrittsgeschwindigkeit der Flüssigkeit beträgt an der Düse $w_n=4,29\text{m/s}$ und das Einstrahlvolumen ist 1% des Reaktionsvolumens. Nach 0,3s setzt die Rückströmung des eingestrahnten Farbstoffs ein. Nach 0,48s ist der Einstrahlvorgang beendet

und die Flüssigkeit ist nur im oberen Teil des Reaktors verteilt. Nach 2,02 s kehrt die eingestrahelte Flüssigkeit zum Boden des Reaktors zurück.

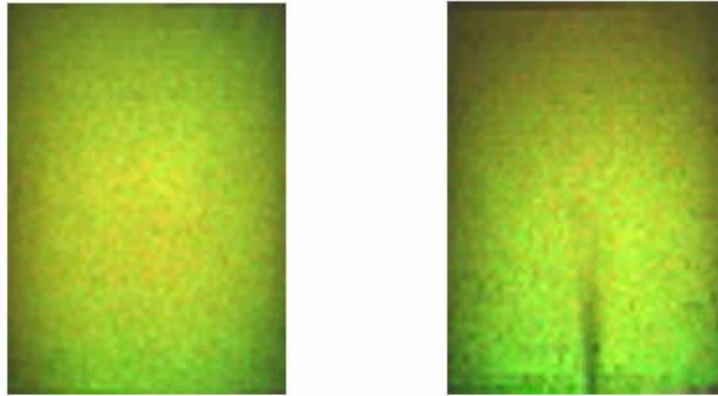


Bild 6.4: Vergleich der Sichtbarkeit des reagierenden Farbstoffs nach dem Einstrahlen mit Hilfe der Mischdüse (links) und der Düse (rechts)

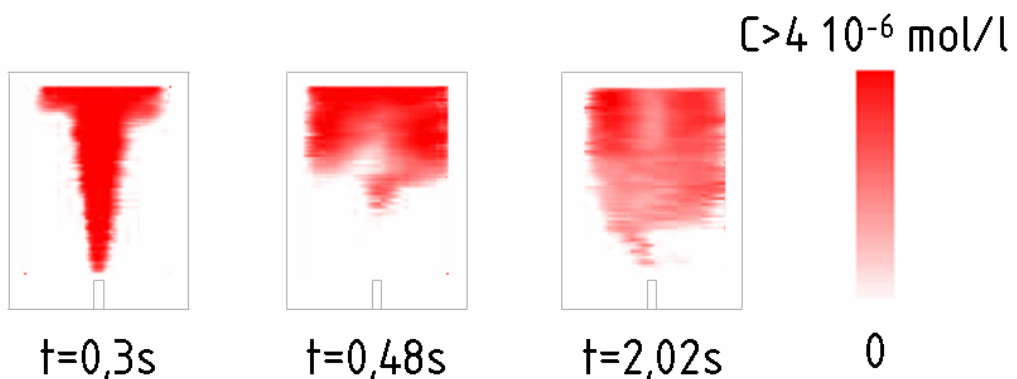


Bild 6.5: Rekonstruierte im Querschnitt dargestellte Konzentrationsfelder des inerten Farbstoffs nach dem Einstrahlen durch die Düse mit $w_H=4,29\text{m/s}$

Ein Vergleich der örtlichen und zeitlichen Veränderungen der Konzentrationsfelder der Farbstoffe bestätigen, dass die Mischdüse gegenüber der einfachen Düse eine schnellere und bessere Verteilung der Flüssigkeit im Behälter ermöglicht. Dadurch wird die konvektive Bewegung verbessert, und die Lamellenbildung der zu vermischenden Flüssigkeitsvolumen fördert die Diffusion zwischen den sich im Strömungsfeld bildenden Schichten. Die zwei zu vermischenden Flüssigkeiten werden schon im Impulsaustauschraum der

Mischdüse vermischt. Diesem Vorteil bietet die Düse nicht. Daher wird die Entfärbung des Jods durch die ablaufende chemische Reaktion langsamer stattfinden. Die Flüssigkeiten liegen zunächst in segregierter Form, d.h. unvermischt und räumlich getrennt vor. Im Strömungsfeld treten Wirbel infolge der lokal unterschiedlichen Schergeschwindigkeiten auf. Dies führt zur Durchmischung zunächst in Form von Schichten oder Lamellenbildung. Durch die sich vergrößernden Oberflächen findet die molekulare Vermischung als Diffusion statt, welche durch sich verringernde Schichtdicke unterstützt wird. Wegen der stark verwirbelten Strömung verläuft der Diffusionsvorgang zwischen beiden Flüssigkeiten so schnell, dass die Reaktion fast unverzögert abläuft. Das Jod ist nach seinem Austritt aus der Düse zwar sichtbar, jedoch nur für so kurze Zeit, dass es nicht sinnvoll wäre, sein Konzentrationsfeld zu rekonstruieren. Es werden trotzdem Messungen mit der Düse durchgeführt. Der Volumenstrom der Flüssigkeit im Düsenaustrittsquerschnitt, sowie das eingestrahlte Volumen werden variiert und deren Einflüsse auf die Konzentrationsfelder des inerten Farbstoffs werden gemessen.

6.1.2 Einfluss der Betriebsparameter auf die Konzentrationsfelder

In einigen Messreihen wird die Austrittsgeschwindigkeit der Flüssigkeit in der Düse zwischen $w_n=4,29\text{m/s}$ und $w_n=9,28\text{m/s}$ variiert. Dabei wird allein der inerte Farbstoff dem Einstrahlvolumen von $V_{ein}=1\%$ des Reaktorsinhalts beigemischt.

Für niedrige Einstrahlgeschwindigkeiten ist der Farbstoff nach 0,48s in der oberen Hälfte des Reaktors verteilt. Ab 2,02s ist der Farbstoff im ganzen Reaktor verteilt. Die entsprechenden Konzentrationsfelder sind für einen ausgewählten Querschnitt in Bild 6.5 dargestellt. Für höhere Einstrahlgeschwindigkeiten beginnt die Rückströmung in Richtung Reaktorboden früher und dieser wird schneller als bei $w_n=4,29\text{m/s}$ erreicht. Die in einem ausgewählten Querschnitt rekonstruierten Konzentrationsfelder,

die für Austrittsgeschwindigkeiten $w_n=6,61\text{m/s}$ und $w_n=9,28\text{m/s}$ gelten, sind in Bild 6.6 und Bild 6.7 dargestellt. Die Farbstoffkonzentration ist mit Beginn der Rückströmung höher an den Behälterwänden als in der Behältermitte. Erreicht das zugegebene Flüssigkeitsgemisch die Oberfläche des Reaktorsvolumens, so wird der Strahl parallel zur Oberfläche in Richtung der Wände umgelenkt. Entlang der Wände gelangt der Strahl in Richtung Boden, wo er weiter umgelenkt wird. Dadurch steigt die Farbstoffkonzentration in Wandnähe, während sie in Reaktormitte abnimmt. Die Flüssigkeit bewegt sich weiter in Richtung zum Boden. Während dieses Prozesses verteilt sich der Farbstoff langsam in Richtung Behältermitte. Nach 2,02s erscheint der Farbstoff homogen verteilt.

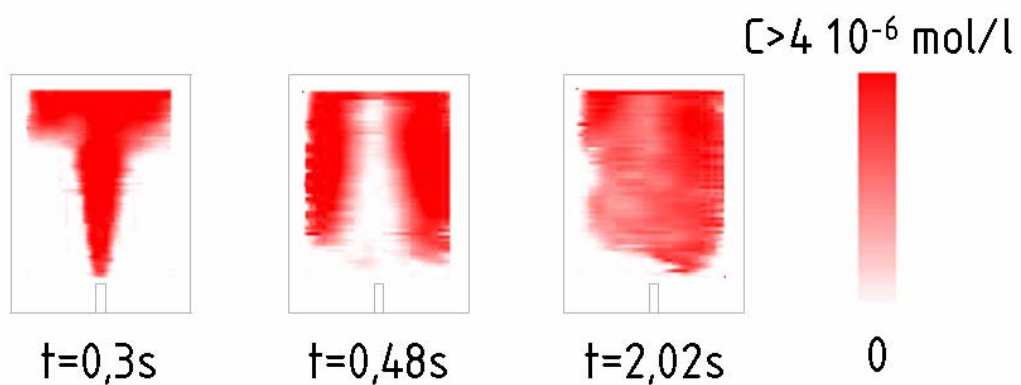


Bild 6.6: Rekonstruierte im Querschnitt dargestellte Konzentrationsfelder des inerten Farbstoffs nach dem Einstrahlen durch die Düse mit $w_n=6,61\text{m/s}$

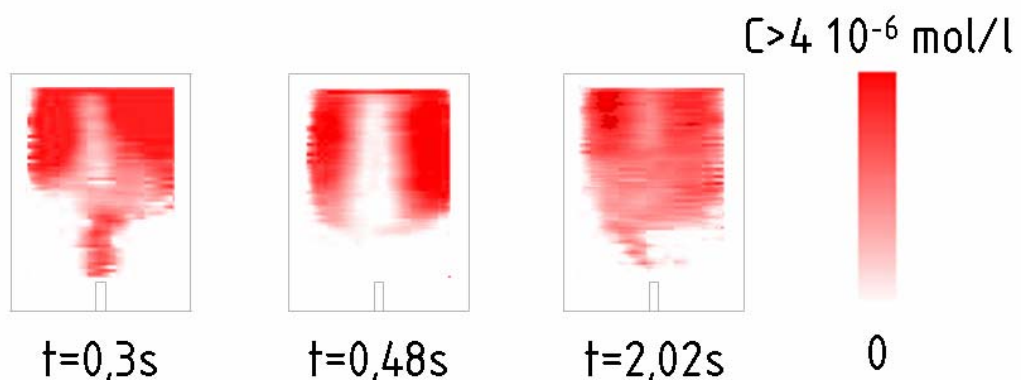


Bild 6.7: Rekonstruierte im Querschnitt dargestellte Konzentrationsfelder des inerten Farbstoffs nach dem Einstrahlen durch die Düse mit $w_n=9,28\text{m/s}$

Das eingestrahlte Flüssigkeitsvolumen V_{ein} wird zwischen 1% und 3% der Reaktorfüllmenge variiert. Um in allen Messreihen die gleiche mittlere Farbstoffkonzentration im Reaktor nach dem Einstrahlen des Flüssigkeitsgemisches zu erreichen, wird die Farbstoffkonzentration im Vorlagebehälter entsprechend variiert. Die Austrittsgeschwindigkeit der Flüssigkeit beträgt $w_n=4,29\text{m/s}$. Bei gleicher Geschwindigkeit der eingestrahnten Flüssigkeit am Düsenaustritt dauert die Homogenisierung der Konzentration für vergrößerte eingestrahlte Flüssigkeitsvolumen länger als für kleinere Mengen. Noch während des Einstrahlens beginnt $V_{ein}>1\%$ die Rückströmung. Sie setzt für $V_{ein}=3\%$ sofort nach dem vollständigem Einstrahlen ein und der Farbstoff hat bereits den Behälterboden erreicht. Bilder des Konzentrationsfeldes sind für den letzten Fall in Bild 6.8 für einen ausgewählten Querschnitt dargestellt.

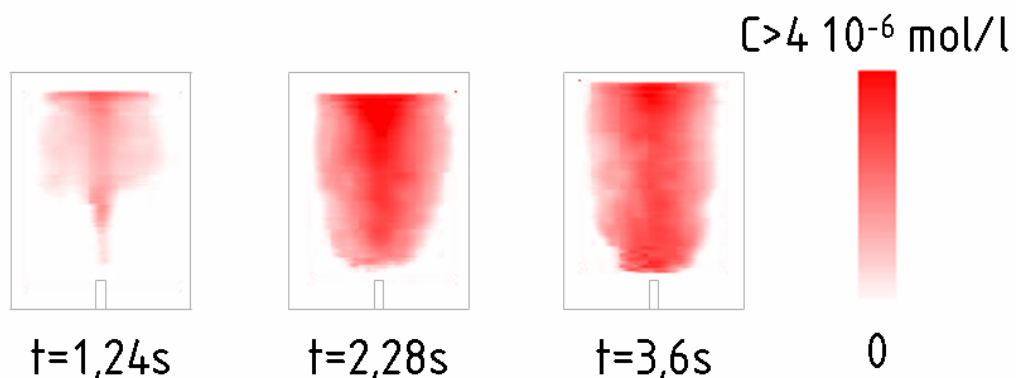


Bild 6.8: Rekonstruierte im Querschnitt dargestellte Konzentrationsfelder des inerten Farbstoffs nach dem Einstrahlen durch die Düse mit $V_{ein}=3\%$ und $w_n=4,29/\text{s}$

6.2 Einstrahlen von Flüssigkeitsgemischen mit variabler Viskosität

Die Viskosität der im Reaktor befindlichen wässrigen Lösung wird erhöht. Eingestrahlt wird weiterhin die Lösung der zwei bisher eingesetzten Farbstoffe. Infolge der Viskositätsdifferenz zwischen der eingestrahnten und der im Reaktor befindlichen Lösung entstehen große

Schubspannungsdifferenzen zwischen den unterschiedlichen Flüssigkeiten. Wegen der hohen viskosen Reibung werden konvektive Transportprozesse verlangsamt. Der reagierende Farbstoff segregiert langsamer, um mit der reagierenden Komponente in Kontakt zu kommen. Auf diese Art wird es möglich, die Konzentrationsfelder der reagierenden Komponente Jod im Volumen des Reaktors zu visualisieren, bevor sie infolge der Reaktion mit der im Reaktorvolumen im Überschuss vorhandenen Komponente Natriumthiosulfat reagiert und farblos wird.

Im Verlaufe dieser Messreihen werden die folgenden Parameter variiert, um deren Einfluss auf die Konzentrationsfelder beider Farbstoffe festzustellen:

- Düsenposition,
- Viskositätsverhältnis der beiden Flüssigkeiten,
- Flüssigkeitgeschwindigkeit am Düsenaustritt,
- Volumen der eingestrahnten Lösung.

In allen Messreihen wird die gleiche Düse verwendet. Um den Einfluss der Düsenposition, der Flüssigkeitgeschwindigkeit am Düsenaustritt und des eingestrahnten Volumens auf die Konzentrationsfelder festzustellen, wird das Viskositätsverhältnis $\eta_w/\eta=70$ verwendet. Dieses entspricht der Zellulosekonzentration 0,5G % in der Lösung aus Wasser und Stärke. Die Konzentrationsfelder beider Farbstoffe werden aus drei Richtungen in integraler Form gemessen, die lokalen Konzentrationen werden auf tomographischem Wege rekonstruiert und in dreidimensionaler Form als Isoflächen dargestellt. Dazu werden alle Volumenelemente in denen die Konzentration des inerten Farbstoffs größer als 1% der Anfangskonzentration ist, visualisiert. In diesen Volumenbereichen findet das Makromischen statt. Der reagierende Farbstoff wird für Volumenelemente, deren Deviationsgrade größer als 10% sind, dargestellt. Für diese hat das Mikromischen noch nicht stattgefunden. Zusätzlich zur räumlichen Darstellung des Deviationsgrads mit Hilfe von Isoflächen, ist seine Variation auf dem zur Behälterachse parallelen Querschnitt angegeben. Für jeden Betriebsparameter sind die

Makrosegregationsgrade I_s und die Restjodmengen N_J entlang der Reaktorhöhe eingetragen und verglichen. Die Zeitskala beginnt unmittelbar nach dem vollständigen Dosieren durch Einstrahlen des Farbstoffgemischs.

6.2.1 Variation der Einbauposition der Düse

Um den Einfluss der Düsenposition auf die Konzentrationsfelder der Farbstoffe zu untersuchen, werden nachfolgend beschriebene Messungen durchgeführt. Die Reynolds-Zahl am Düsenaustritt beträgt $Re_n=6864$ und das eingestrahlte Flüssigkeitsvolumen ist $V_{ein}=1\%$ der Reaktorfüllmenge. Die Düse wird entweder in der Mitte oder bei $2/3$ des Radius exzentrisch im Reaktorboden eingebaut. Für die mittige Einbauposition erfolgt die Flüssigkeitszugabe parallel zur Behälterachse, während für die exzentrische Einbauposition Messungen mit einem Einspritzwinkel von 0° oder 20° zur Behälterachse durchgeführt werden.

Für alle drei Düsenpositionen wird die Farbstofflösung bis zur Oberfläche der im Reaktor befindlichen Lösung transportiert. Auf Grund des mit dem Flüssigkeitsstrahl eingetragenen Impulses bildet sich eine Welle auf der Oberfläche, so dass die Farbstoffkonzentration in Oberflächennähe nicht gemessen werden kann.

In Bild 6.9 sind Isoflächen für Konzentrationsverhältnisse, die größer als 1% der Anfangskonzentration betragen für unterschiedliche Zeiten für den Einspritzwinkel von 20° dargestellt. Zu Beginn bei $t=0s$ hat die eingestrahlte Flüssigkeit die freie Oberfläche bereits erreicht und die Rückströmung hat sich in Form eines Wirbels ausgebildet. Dieser Wirbel sinkt in Richtung zum Behälterboden auf der strahlabgewandten Seite der Düseneinbauposition. Nach ca. $0,78s$ erreicht der Wirbel den Behälterboden. Nach Kontakt mit diesem steigt er entlang der Behälterachse auf. Das damit verbundene Geschwindigkeitsfeld ist von der Oberfläche in Richtung zur Behälterwand und entlang des Behälterbodens zur Mitte gerichtet.

Das Konzentrationsfeld unterscheidet sich für den Einspritzwinkel 0° stark von dem für den Einspritzwinkel 20° . Es ist im Bild 6.10 dargestellt. Zu Beginn bei $t=0s$ befindet sich eine große Farbstoffmenge in der Nähe der Behälterwand. Auch in diesem Fall bildet der eingespritzte farbstoffhaltige Strahl eine Welle entlang der Oberfläche. Dadurch sinkt die Flüssigkeit aus den Wellenbogen ab und bildet einen Flüssigkeitswirbel, der sich in Richtung zur Behältermitte bewegt, ohne im Behälter zu sinken. Für Zeiten $t > 1,2s$ sind daher nur unmerkliche Änderungen der Konzentrationsfelder zu bemerken.

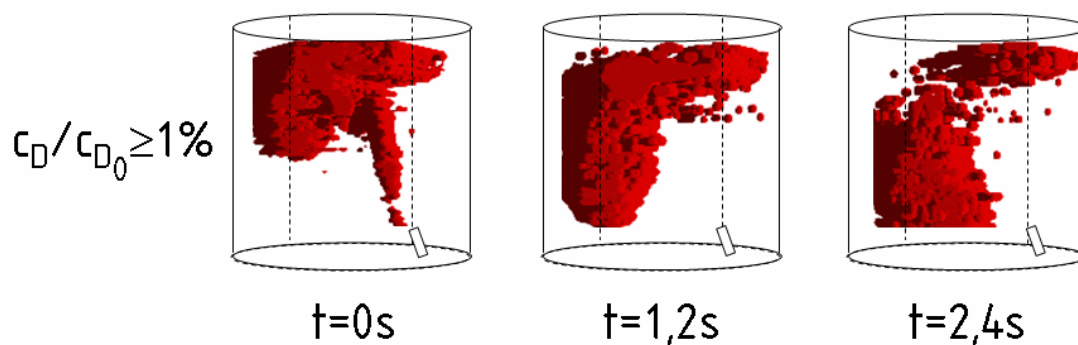


Bild 6.9: Darstellung der auf tomographischem Wege gemessenen lokalen Konzentrationen zu den im Strahl eingestellten für die Düsenposition 20°

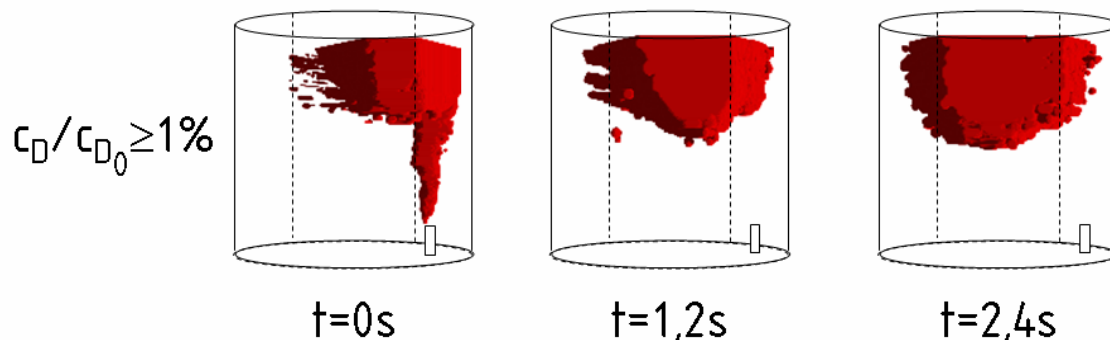


Bild 6.10: Darstellung der auf tomographischem Wege gemessenen lokalen Konzentrationen für die Düsenposition 0° in dimensionsloser Form

Die im Bild 6.11 dargestellte zeitliche Variation des Konzentrationsfeldes ist für die mittige Einstrahlung ähnlich der der exzentrischen Einstrahlung mit 0° Einspritzwinkel. Hier bildet die zurückströmende Flüssigkeit zwei achssymmetrische in den Behälter absinkende Wirbel. In diese Wirbel wird Farbstoff von der Oberfläche eingelesen. Dieser dringt in die

Behälterflüssigkeit bis zur Behältermitte ein. Für Zeiten $t > 1,2\text{s}$ nach Beenden des Einstrahlens ist das Konzentrationsfeld stationär.

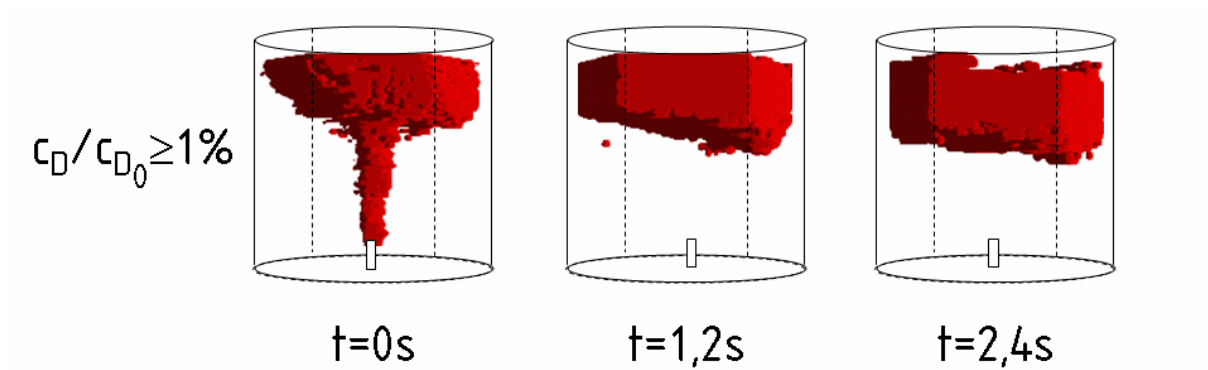


Bild 6.11: Darstellung der auf tomographischem Wege gemessenen lokalen Konzentrationen für die Düsenposition mitte in dimensionsloser Form

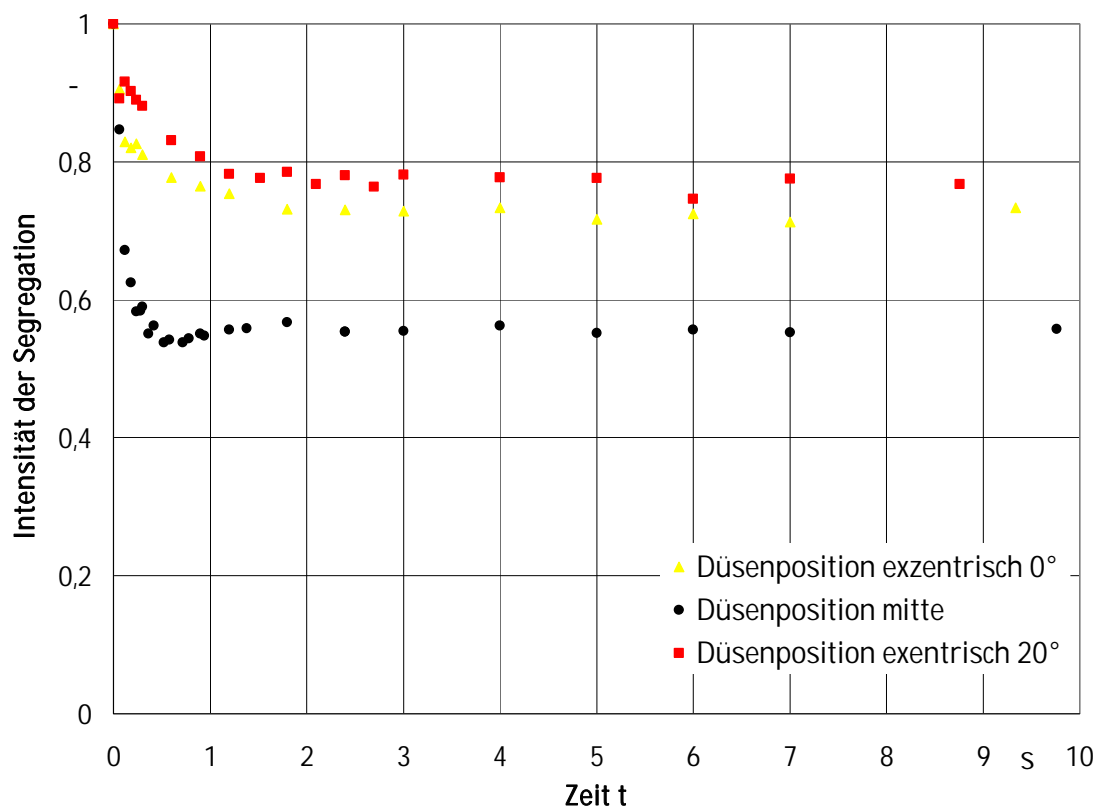


Bild 6.12: Intensität der Segregation als Maß des zeitlichen Verlaufs der Vermischung für unterschiedliche Einstrahlpositionen

In Bild 6.12 ist der zeitliche Ablauf der Intensität der Segregation für alle drei Düsenpositionen dargestellt. Wegen der großen Viskosität und der damit verbundenen Schubspannungen wird eine gleichmäßige Vermischung in keiner der drei Messreihen erreicht. Der Ablauf des Makromischens ist für die exzentrische Einstrahlposition mit Einstrahlwinkeln senkrecht zum Behälterboden stark verlangsamt. Der Endwert der Intensität der Segregation ist sehr ähnlich für die exzentrischen Düsenpositionen. Er liegt zwischen 0,7 und 0,8, während er für die mittige Position 0,55 beträgt. Für alle Einstrahlpositionen wird der Endwert nach ca. 1,2s erreicht. Nach diesem Zeitpunkt verteilt sich der inerte Farbstoff nicht mehr konvektiv, da der durch das Einstrahlen gegebene Anfangsimpuls auf Grund der viskosen Reibung zwischen den unterschiedlichen Flüssigkeiten aufgebraucht ist. Beim Vergleich der Varianz der gemessenen Konzentrationen des inerten Farbstoffs ist die Situation anders. Der kleinste Wert entspricht der besten Vermischung und wird mit exzentrischer Einstrahlung und 20° Einstrahlwinkel erreicht. Diese Düsenposition verbessert den Impulsaustausch zwischen der eingestrahnten Flüssigkeit und der Behälterflüssigkeit. Die schlechteste Verteilung liegt für die exzentrische Position und 0° Einstrahlwinkel vor.

Die Vermischung, welche im molekularen Skalenbereich der Ortskoordinate abläuft, kann mit Hilfe der zeitlichen Änderung des Deviationsgrads beobachtet werden. In Bild 6.13 bis 6.15 sind die räumlich unterschiedlichen Deviationsgrade für verschiedene Zeiten und Einstrahlpositionen angegeben. Sowohl die räumlichen Profile des Deviationsgrads in Form von Isoflächen mit $\Delta \geq 10\%$ als auch sein Feld entlang des achsparallelen Querschnitts in der Behältermittelpunkt sind dargestellt. Zum Zeitpunkt $t=0s$, ist das Feld des Deviationsgrads unmittelbar nach dem Einspritzen dargestellt. Danach verteilt sich der reagierende Stoff im Reaktor. Er reagiert sehr rasch für alle drei Einstrahlpositionen. Bereits nach 0,3s sind die örtlichen Deviationsgrade unter 10% gesunken. In allen drei Fällen sind nur geringe Unterschiede

zwischen den Zeitintervallen 0,3s und 1,2s nach Beenden des Einstrahlens zu beobachten.

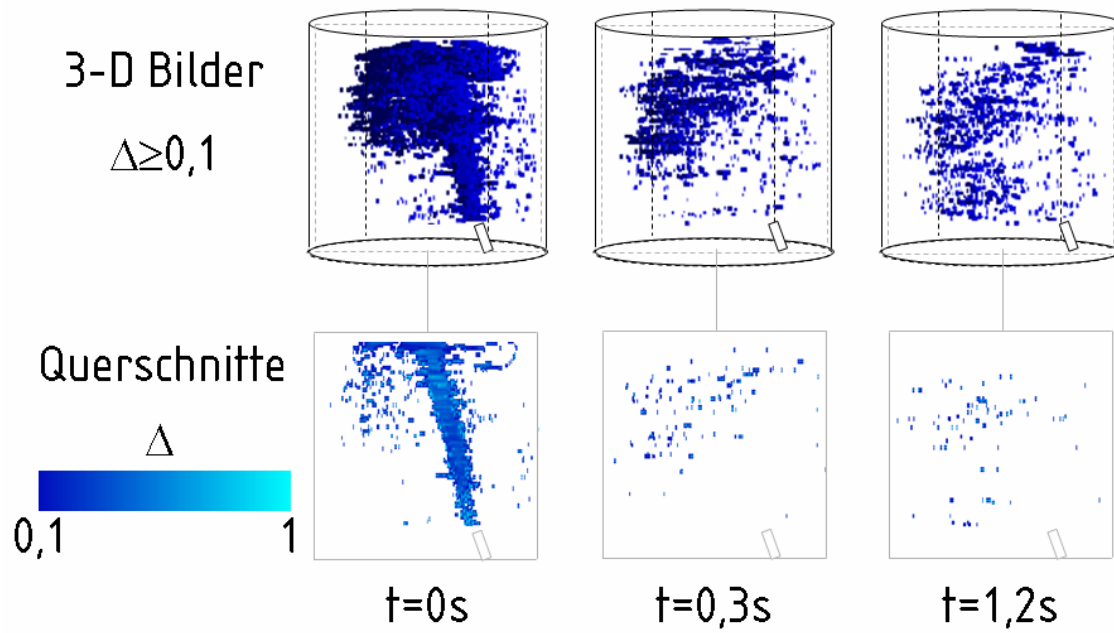


Bild 6.13: Lokale berechnete Deviationsgrade für eine exzentrische Düsenposition und den Einstrahlwinkel 20°

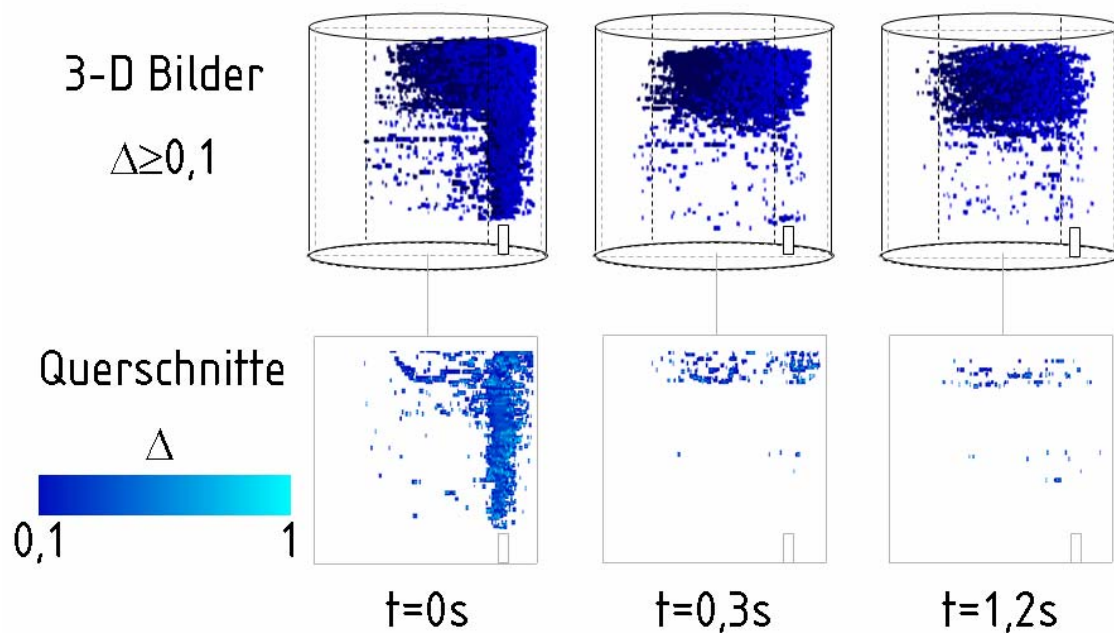


Bild 6.14: Lokale berechnete Deviationsgrade für eine exzentrische Düsenposition und den Einstrahlwinkel 0°

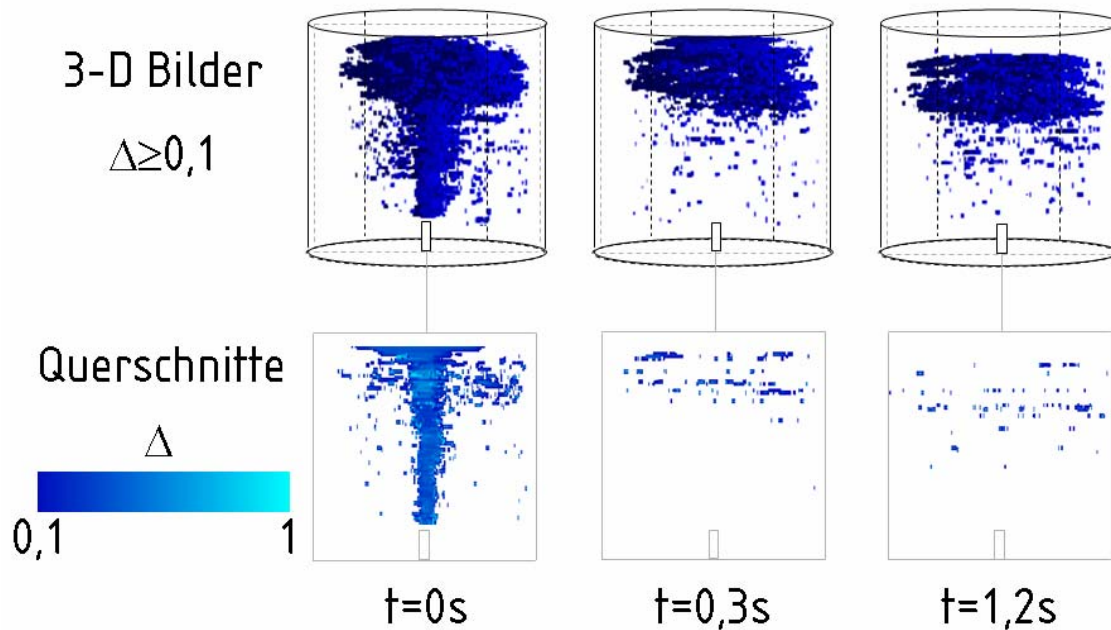


Bild 6.15: Lokale berechnete Deviationsgrade für die zentrische Düsenposition (Winkel 0°)

Für die mittige Einstrahlposition und die exzentrische mit 0° Einstrahlwinkel bleiben kleine Mengen des reagierenden Stoffs in unreagierter Form zurück. Gründe dafür sind die hohe Viskosität und der für die konvektive Vermischung nicht ausreichende Impuls der eingestrahltten Flüssigkeit. Für den Einstrahlwinkel 20° bleiben nur sehr kleine Restmengen an reagierendem Farbstoff zurück.

Diese Beobachtungen werden durch die Darstellung in Bild 6.16 bestätigt. Das Diagramm zeigt den zeitlichen Verlauf der im Reaktorvolumen verbleibenden Restjodmenge. Nach 0,6s erreicht diese ihren Endwert für alle Einstrahlpositionen. Dieser beträgt $N_j < 0,02$.

Mit Hilfe der Kenntnisse zu den zeitlichen Veränderungen der Konzentrationsfelder beider Farbstoffe können nun Schlussfolgerungen zum Einfluss der unterschiedlichen Düseneinstellungen auf das Strömungsfeld gezogen werden.

Die Düsenposition beeinflusst den konvektiven Transport im Behälter. Durch das mittige Einspritzen und das exzentrische achsparallele Einspritzen werden

ähnliche Strömungsfelder erzeugt. Die eingespritzte Flüssigkeit erreicht die freie Oberfläche, bildet dort einen Wirbel und sinkt bis zur Behältermitte ab. Es ist keine weitere konvektive Vermischung der Flüssigkeit im Behältervolumen möglich. Der anfängliche Impuls wird durch viskose Reibung verbraucht.

Mit exzentrischer Einstrahlposition und 20° Einstrahlwinkel wird der Strahlimpuls im gesamten Reaktorvolumen dissipiert.

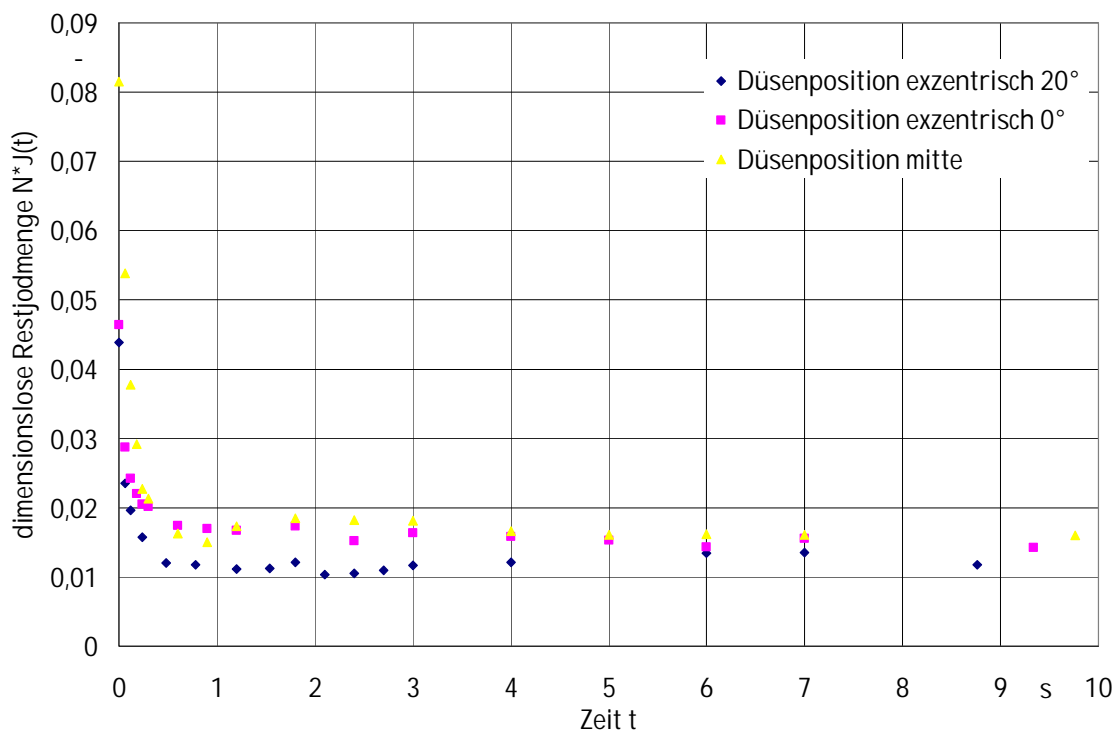


Bild 6.16: Zeitlicher Verlauf der durch volumetrische Mittelung berechneten Menge an nicht reagiertem Jod für unterschiedliche Einstrahlpositionen

Durch den verbesserten konvektiven Transport dringt die eingestahlte Flüssigkeit bis zum Behälterboden vor und steigt wieder auf. Dies reicht jedoch nicht aus, um eine homogene Verteilung beider Flüssigkeiten zu erreichen. Die ablaufende Segregation der Flüssigkeit ist für keine der drei Einstrahlpositionen so weit fortgeschritten, um innerhalb der Beobachtungszeit eine nennenswerte Mikrovermischung einzuleiten. Für die Diffusion lassen sich geringe Unterschiede im Ablauf des molekularen Transports zwischen den drei Einstrahlpositionen feststellen. Allgemein

erfolgt die Diffusion entlang der Strahlränder. Hier läuft die Reaktion am schnellsten ab. Erreicht der reagierende Farbstoff die freie Oberfläche der Flüssigkeit, so sind keine weiteren Geschwindigkeitsgradienten zu beobachten. Für den Einstrahlwinkel von 20° ist der molekulare Transport am größten.

6.2.2 Variation der Austrittsgeschwindigkeit des Strahls

Um den Einfluss der Strahlaustrittsgeschwindigkeit auf die Konzentrationsfelder der Farbstoffe zu untersuchen, wird diese variiert. Dazu werden die Austrittsgeschwindigkeiten $w_n=4,29\text{m/s}$, $6,61\text{m/s}$ und $9,28\text{m/s}$ eingestellt. Die Düse ist exzentrisch und im Winkel von 20° zur Senkrechten eingebaut. Das eingestrahelte Flüssigkeitsvolumen beträgt $V_{ein}=1\%$ der Reaktorfüllmenge.

Für Einstrahlgeschwindigkeiten oberhalb $4,29\text{m/s}$ erreicht der Strahl die Oberfläche und verursacht hier eine Wellenbewegung. Dadurch sinkt die mit Farbstoff versehene Flüssigkeit rascher zum Behälterboden. Sie breitet sich dort aus, um danach wieder aufzusteigen.

Im Bild 6.17 sind Isoflächen für Konzentrationen größer als 1% der Anfangskonzentration dargestellt. Diese gelten für unterschiedliche Zeiten und die Austrittsgeschwindigkeit $w_n=6,61\text{m/s}$. Die eingestrahelte Flüssigkeit erreicht nach ca. $0,24\text{s}$ den Behälterboden, verteilt sich dort und steigt nach $1,3\text{s}$ wieder auf. In der Darstellung der Konzentrationsprofile des inerten Farbstoffs nach $1,2\text{s}$ und $2,4\text{s}$ befindet sich der größte Teil der Flüssigkeit sehr nah am Behälterboden und kann daher tomographisch nicht rekonstruiert werden. Am Ende der Beobachtungszeit hat die gefärbte Flüssigkeit die Mitte des Reaktors erreicht.

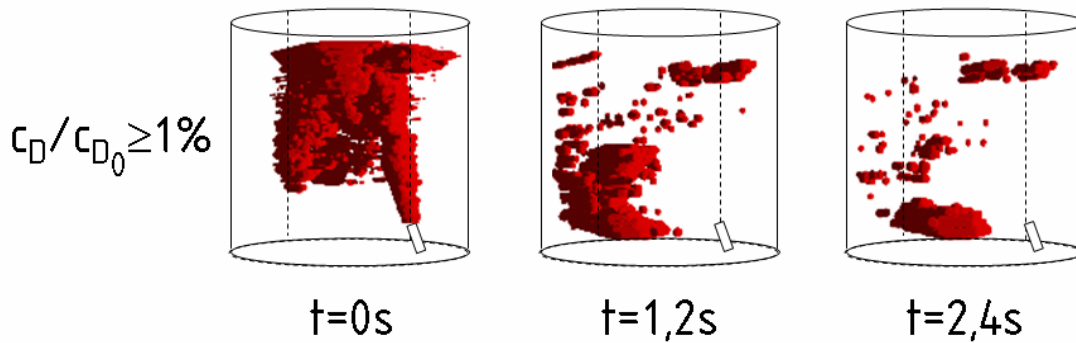


Bild 6.17: Darstellung der auf tomographischem Wege gemessenen lokalen Konzentrationen für die Austrittsgeschwindigkeit $w_n=6,61\text{m/s}$ in dimensionsloser Form

Für die Strahlaustrittsgeschwindigkeit von $w_n=9,28\text{m/s}$ erreicht die eingestrahlte Flüssigkeit nach $0,2\text{s}$ den Behälterboden und steigt nach $0,6\text{s}$ wieder auf. Der Impuls reicht in diesem Fall aus, damit die steigende Flüssigkeit eine Entfernung zur Flüssigkeitsoberfläche von zwei Drittel der Reaktorfüllhöhe erreicht. Die entsprechenden Isoflächen sind in Bild 6.18 räumlich dargestellt. Auch in diesem Fall verteilt sich der größte Teil der gefärbten Flüssigkeit nach $1,2\text{s}$ und $2,4\text{s}$ entlang des Behälterbodens im unsichtbaren Bereich.

Der zeitliche Verlauf der Intensität der Segregation ist in Bild 6.19 dargestellt. Rein visuell lässt sich keine Abhängigkeit des Konzentrationsfelds von der Austrittsgeschwindigkeit der eingestrahlten Flüssigkeit erkennen. Durch Vergleich der Varianz der Konzentrationsprofile des inerten Farbstoffs lässt sich jedoch eine Abhängigkeit feststellen. Die maximale eingestellte Austrittsgeschwindigkeit, die den maximalen Impuls in den Reaktor einträgt, führt zur Varianz, die 80% der entsprechenden für niedrigere Einstrahlgeschwindigkeiten erreichten Varianz beträgt.

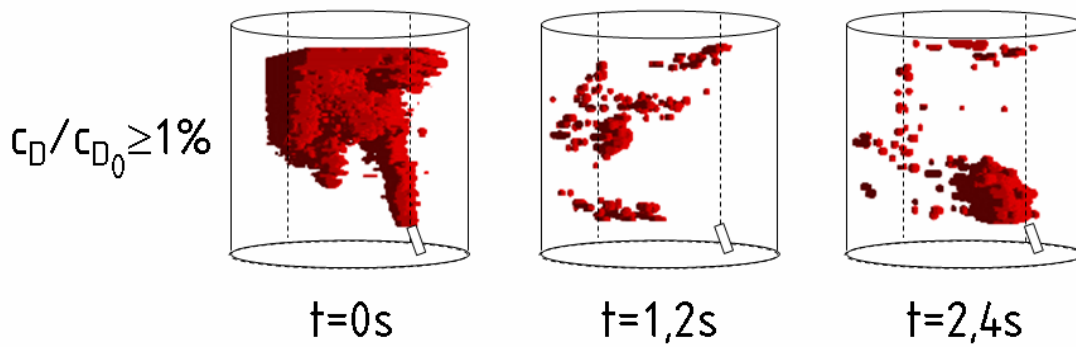


Bild 6.18: Darstellung der auf tomographischem Wege gemessenen lokalen Konzentrationen für die Austrittsgeschwindigkeit $w_n=9,28\text{m/s}$ in dimensionsloser Form

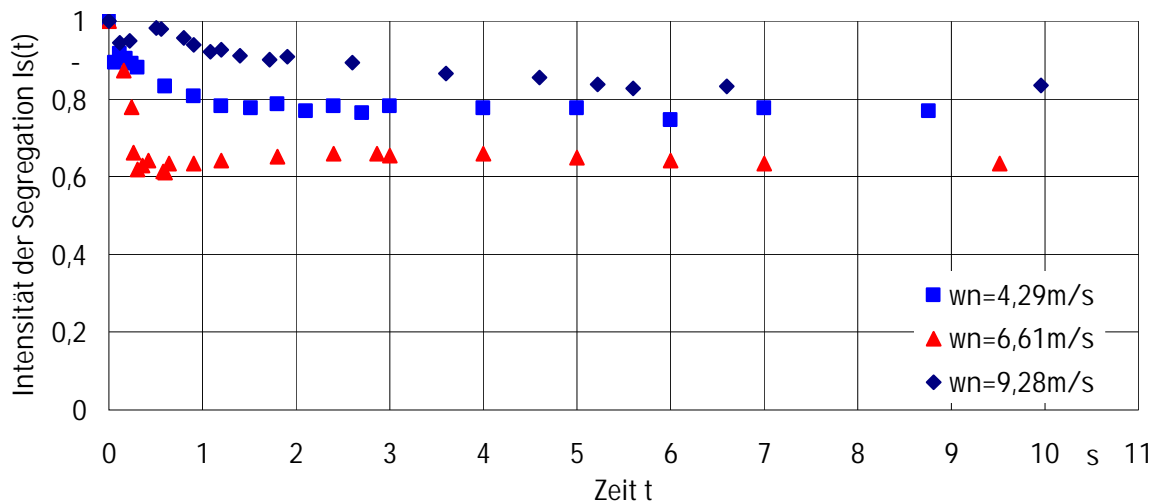


Bild 6.19: Intensität der Segregation als Maß des zeitlichen Verlaufs der Vermischung für unterschiedliche Austrittsgeschwindigkeiten

In Bild 6.20 und Bild 6.21 sind die Deviationsgrade in Form von Isoflächen für einzelne Querschnitte als Funktion der Zeit und der Einstrahlgeschwindigkeit dargestellt. Große Ähnlichkeiten lassen sich für unterschiedliche Einstrahlgeschwindigkeiten erkennen. Schon nach $0,12\text{s}$ ist der reagierende Farbstoff fast nur noch im oberen Teil des Reaktors vorhanden. Nach $0,6\text{s}$ ist er komplett verschwunden. Diese Beobachtungen sind im Bild 6.22 bestätigt. Hier ist der zeitliche Verlauf der Restjodmenge für die unterschiedlichen Einstrahlgeschwindigkeiten dargestellt. Schon zu Beginn bei $t=0\text{s}$ ist die Restjodmenge $N_f < 0,1$. Die Wellenbewegung entlang der Flüssigkeitsfreioberfläche ist für $w_n > 4,29\text{m/s}$ stärker ausgeprägt, so dass sich

entlang der Oberfläche besonders in den wandnahen Zonen höhere Farbstoffkonzentrationen einstellen. Die Restjodmenge sinkt rasch auf dem Wert $N_f=0,01$ ab, der die vollständig erfolgte Reaktion bedeutet.

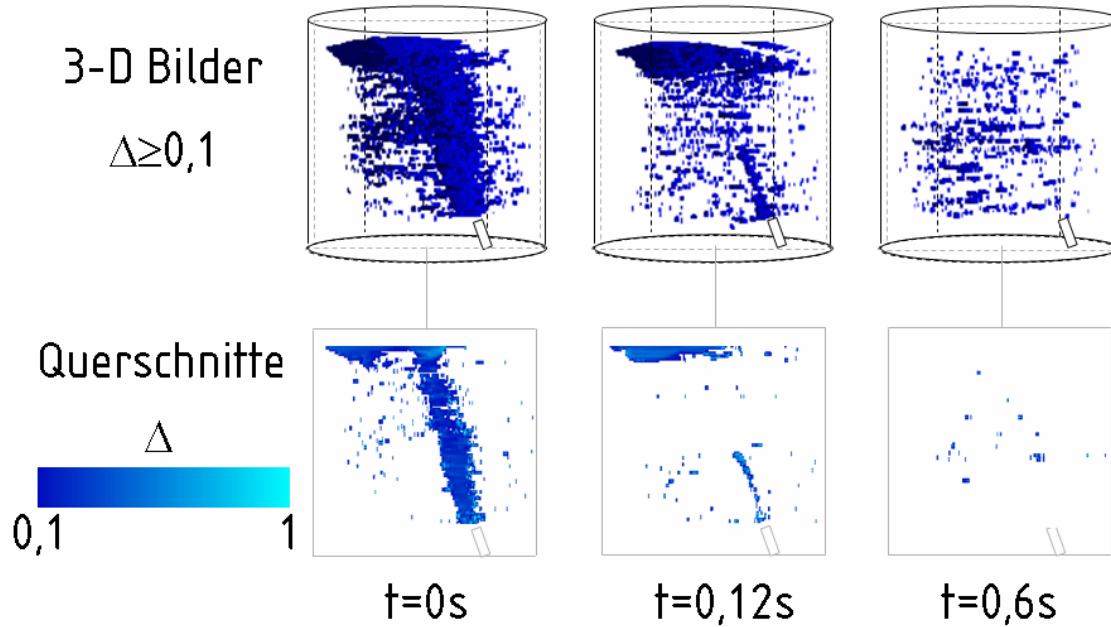


Bild 6.20: Berechnete lokale Deviationsgrade für die Austrittsgeschwindigkeit $w_n=6,61\text{m/s}$

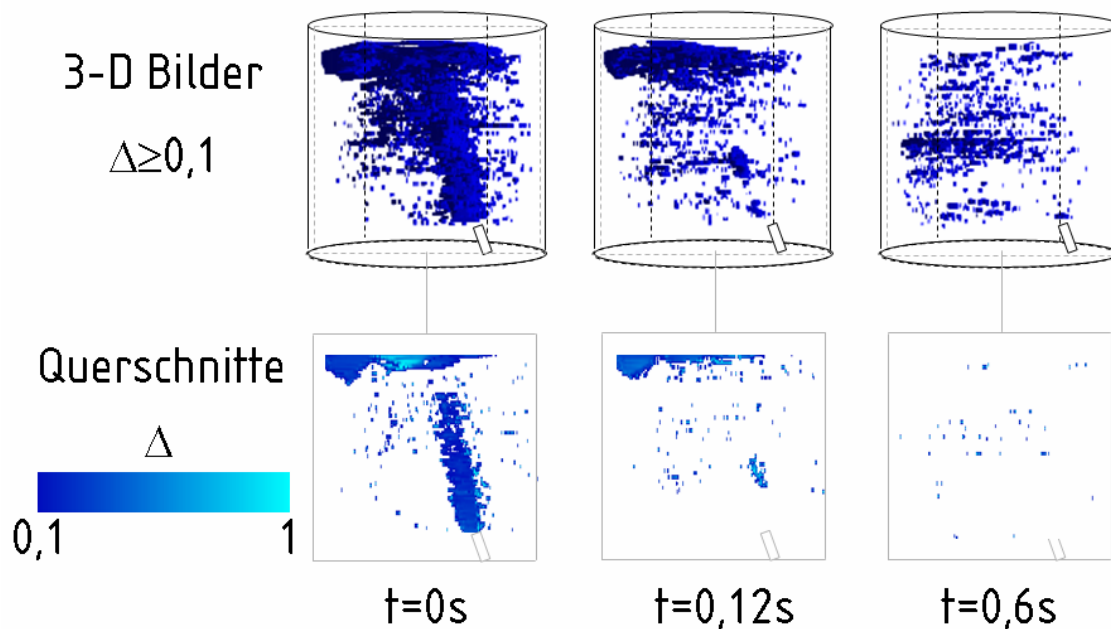


Bild 6.21: Berechnete lokale Deviationsgrade für die Austrittsgeschwindigkeit $w_n=8,28\text{m/s}$

Mit Kenntnis der zeitabhängigen Konzentrationsfelder beider Farbstoffe kann der Einfluss der Austrittsgeschwindigkeit der Farbstoffmischung an der Düse

auf das Strömungsfeld abgeschätzt werden. Der konvektive Transport wird durch Erhöhen des zur Vermischung eingesetzten Strahlimpulses positiv beeinflusst. Die Varianz des Konzentrationsfeldes am Ende der Beobachtungszeit ist für hohe Austrittsgeschwindigkeiten geringer und führt zur um 20% verbesserten Vermischung. Die Diffusion verläuft rascher für geringere Austrittsgeschwindigkeiten. Verbesserter konvektiver Transport bedeutet kürzere Kontaktzeiten zwischen der eingestrahnten und der im Reaktor befindlichen Flüssigkeit. Wird die eingestrahlte Farbstoffmischung außerhalb des Strahlrandes rezykliert, so findet die Diffusion und in der Folge die chemische Reaktion statt. Nach 0,5s wird trotzdem in allen drei Messreihen der Endwert von $N_f=0,01$ erreicht, der der vollständigen Vermischung entspricht.

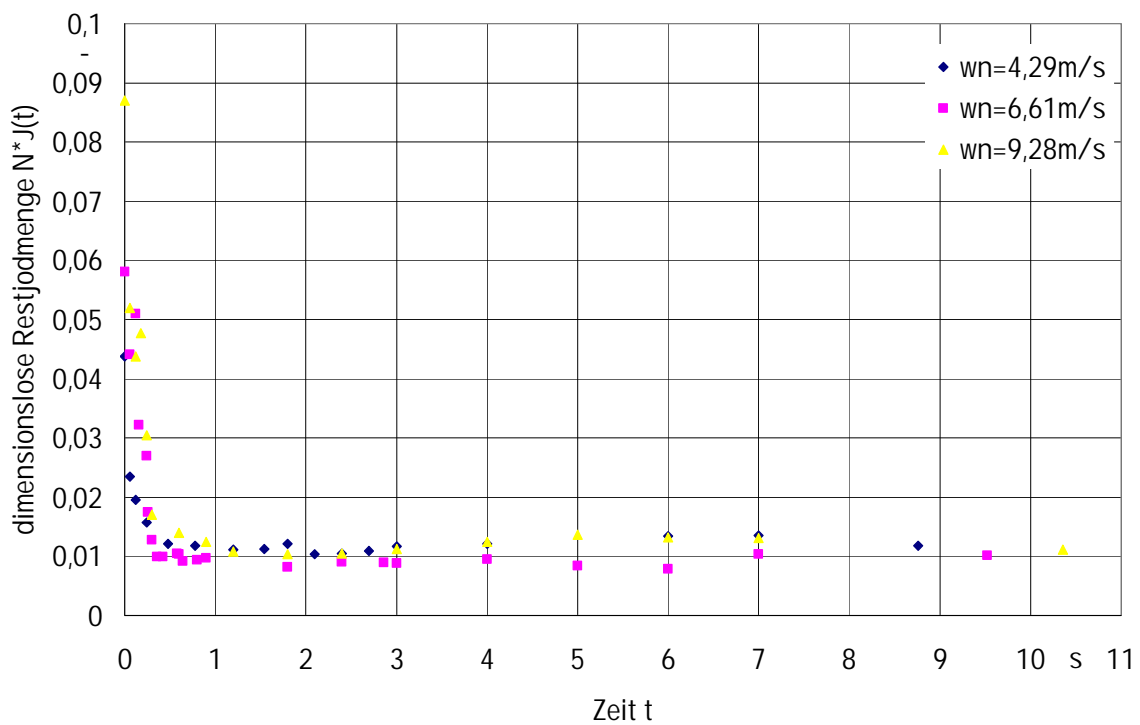


Bild 6.22: Zeitlicher Verlauf der durch volumetrische Mittelung berechneten Menge an nicht reagiertem Jod für unterschiedliche Einstrahlgeschwindigkeiten

6.2.3 Variation des eingestrahnten Flüssigkeitsvolumens

In dieser Messreihe wird das Volumen der eingestrahnten Flüssigkeit zwischen 1% und 3% des im Reaktor befindlichen Volumens variiert. Die Strahlaustrittsgeschwindigkeit beträgt 4,29m/s und die Düse ist exzentrisch im Winkel von 20° zur Senkrechten am Behälterboden eingebaut. Die Konzentration des Farbstoffs wird im Vorlagebehälter für jede Messungsreihe unterschiedlich gewählt. Sie ist in Tabelle 6.1 und Tabelle 6.2 angegeben. Der Grund hierfür ist, dass die Farbstoffdichte im Reaktor die Sensitivitätsgrenze des Messsystems nicht überschreiten soll. Während des Einstrahlens und kurz danach ist der Farbstoff sehr konzentriert und absorbiert daher das Laserlicht sehr stark. Dadurch kann die Lichtabsorption nicht mehr mit gewünschter Genauigkeit gemessen werden. Die Bildtiefe der Kameras ist dann vollständig gesättigt und das Lambert-Beersche Gesetz verliert seine Gültigkeit. Daher wird die Farbstoffkonzentration der eingestrahnten Flüssigkeit umso geringer gewählt, desto größer das eingestrahlte Flüssigkeitsvolumen ist.

inert Farbstoff	$V_{\text{ein}}=1\%$	$V_{\text{ein}}=2\%$	$V_{\text{ein}}=3\%$
Konzentration im Druckbehälter	$2,80 \cdot 10^{-5}$	$1,49 \cdot 10^{-5}$	$1,08 \cdot 10^{-5}$
Konzentration im Reaktor	$2,77 \cdot 10^{-7}$	$2,92 \cdot 10^{-7}$	$3,13 \cdot 10^{-7}$

Tabelle 6.1: Konzentration des inerten Farbstoffs im Vorlagebehälter und im Reaktor nach seiner Zugabe

reagierender Farbstoff	$V_{\text{ein}}=1\%$	$V_{\text{ein}}=2\%$	$V_{\text{ein}}=3\%$
Konzentration im Druckbehälter	$7,00 \cdot 10^{-4}$	$3,50 \cdot 10^{-4}$	$1,75 \cdot 10^{-4}$
Konzentration im Reaktor	$5,56 \cdot 10^{-6}$	$5,51 \cdot 10^{-6}$	$4,10 \cdot 10^{-6}$

Tabelle 6.2: Konzentration des reagierenden Farbstoffs im Vorlagebehälter und im Reaktor nach seiner Zugabe

In Bild 6.23 und Bild 6.24 sind Isoflächen für Konzentrationsfelder, die größer als 1% der Anfangskonzentration betragen, für unterschiedliche Zeiten dargestellt. Das eingestrahlte Flüssigkeitsvolumen beträgt jeweils 2% und 3% des Reaktorsvolumens. Ähnlichkeiten in den Konzentrationsfeldern beider Bildreihen sind festzustellen. Unmittelbar nach dem Einstrahlen hat die Flüssigkeit bereits den Behälterboden erreicht, da in diesen beiden Fällen Einstrahlzeiten länger als für $V_{ein}=1\%$ sind. Der Grund hierfür ist, dass eine größere Flüssigkeitsmenge mit gleicher Austrittsgeschwindigkeit eingestrahlt wird. Die mit Farbstoff versehene Flüssigkeit steigt schnell vom Boden bis zur Behältermitte auf. Ein davon abweichendes Verhalten zeigen Konzentrationsfelder für $V_{ein}=1\%$. Die Flüssigkeit beginnt nach 2,4s zu steigen und kommt auf Grund der viskosen Reibung zum Stillstand.

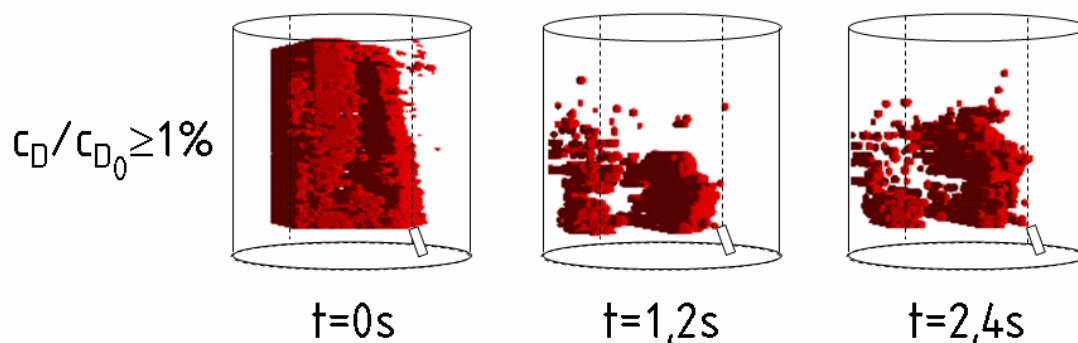


Bild 6.23: Darstellung der auf tomographischem Wege gemessenen lokalen Konzentrationen für das eingestrahkte Flüssigkeitsvolumen $V_{ein}=2\%$ des Reaktorsinhalts in dimensionsloser Form

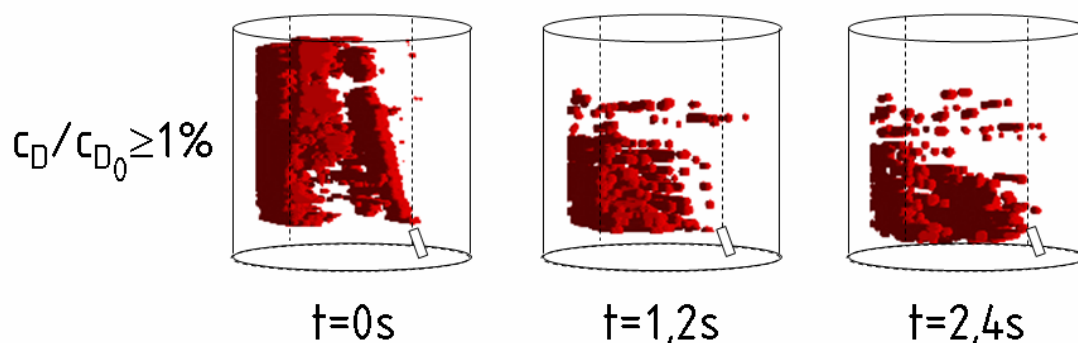


Bild 6.24: Darstellung der auf tomographischem Wege gemessenen lokalen Konzentrationen für das eingestrahkte Flüssigkeitsvolumen $V_{ein}=3\%$ des Reaktorsinhalts in dimensionsloser Form

Die Intensität der Segregation ist in Bild 6.25 dargestellt. Sie ändert sich für $V_{ein}=2\%$ und 3% gegenüber dem Wert für $t=0s$ und $V_{ein}=1\%$ wenig. Grund dafür ist, dass in den ersten zwei Messreihen das Einstrahlen länger dauert, damit für die gleiche Austrittsgeschwindigkeit des Strahls das doppelte und das dreifache der für $V_{ein}=1\%$ eingestrahlt Flüssigkeit eingespeist werden kann. Die Flüssigkeit hat dadurch mehr Zeit, um sich im Reaktor zu vermischen. Dadurch hat auch die Varianz einen geringeren Wert als für $V_{ein}=1\%$. Für die Varianz wird nach $t=9s$ der geringste Wert bei $V_{ein}=2\%$ erreicht. Der durch das Einstrahlen erzeugte Impuls ist für dieses Flüssigkeitsvolumen größer als für $V_{ein}=1\%$. Dadurch verteilt sich die Flüssigkeit schneller. Das Gleiche gilt nicht für $V_{ein}=3\%$. In diesem Fall ist die zugegebene Flüssigkeitsmenge zu groß, um sich nur mit Hilfe des Eintrittsimpulses im Reaktor zu verteilen.

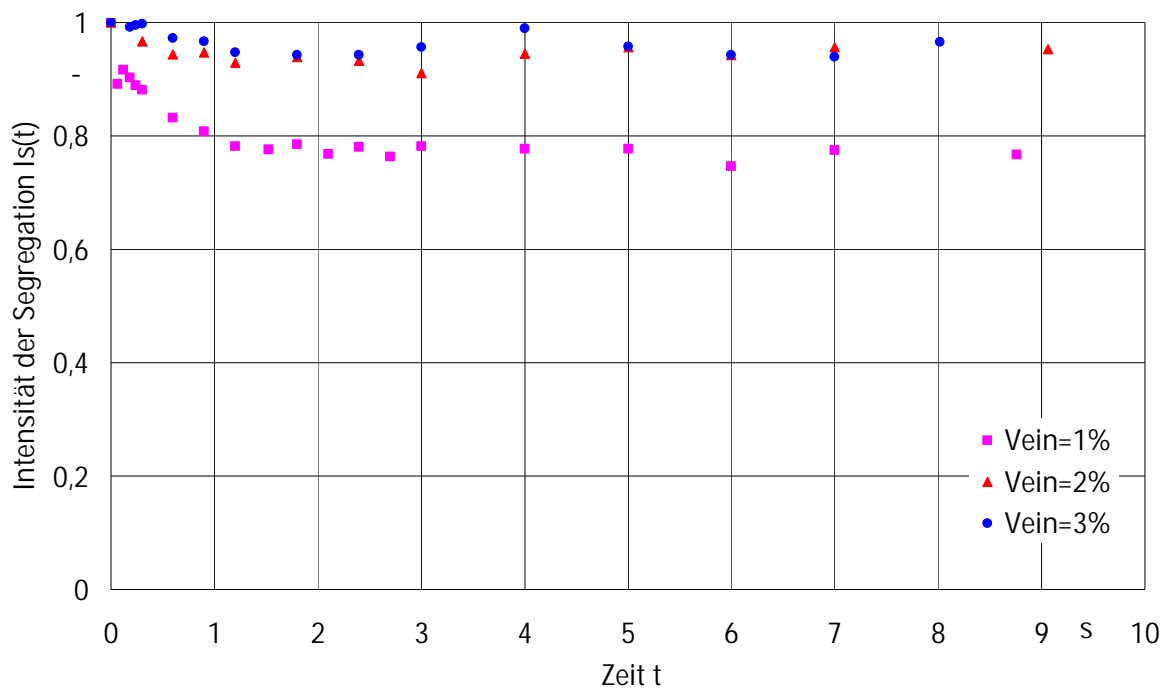


Bild 6.25: Intensität der Segregation als Maß des zeitlichen Verlaufs der Vermischung für unterschiedlich eingestrahlt Flüssigkeitsvolumen

In Bild 6.27 und Bild 6.28 sind die Deviationsgrade in Form von Isoflächen und für Querschnitte als Funktion der Zeit und des eingestrahlt Volumens dargestellt. Die Menge an reagierendem Farbstoff ist für $V_{ein} = 3\%$ deutlich

geringer als für $V_{ein} = 2\%$. Einerseits ist die Konzentration im Strahl für $V_{ein} = 3\%$ halb so groß wie für $V_{ein} = 2\%$. Dadurch erfolgt die Entfärbung schneller. Andererseits reagiert das Jod in der Umgebung des Strahls fast komplett ab, denn es befindet sich länger im Reaktor. Die Diffusion führt zur molekularen Vermischung der reagierenden Stoffe im Reaktor und damit zur Entfärbung. Dies folgt auch durch Vergleich von Bild 6.23 und Bild 6.24. Für $V_{ein} = 2\%$ verläuft das Konzentrationsprofil des reagierenden Farbstoffs zur Zeit $t=0s$ ähnlich den Profilen des inerten Farbstoffs. Diese Beobachtung gilt nicht für die Messreihe mit $V_{ein} = 3\%$, in der das Jod, das sich nach Bild 6.24 in der Rückströmung befinden sollte, schon reagiert hat.

In Bild 6.28 ist die zeitabhängige Restjodmenge dargestellt. Der Endwert liegt für alle Messreihen unter 1%. Der reagierende Stoff hat vollständig reagiert. Bereits der Wert der Restjodmenge ist für $t=0s$ sehr gering. Er wird geringer für größere eingestrahelte Flüssigkeitsmengen. Nach 0,5s ist das Jod in allen drei Messreihen vollständig umgesetzt.

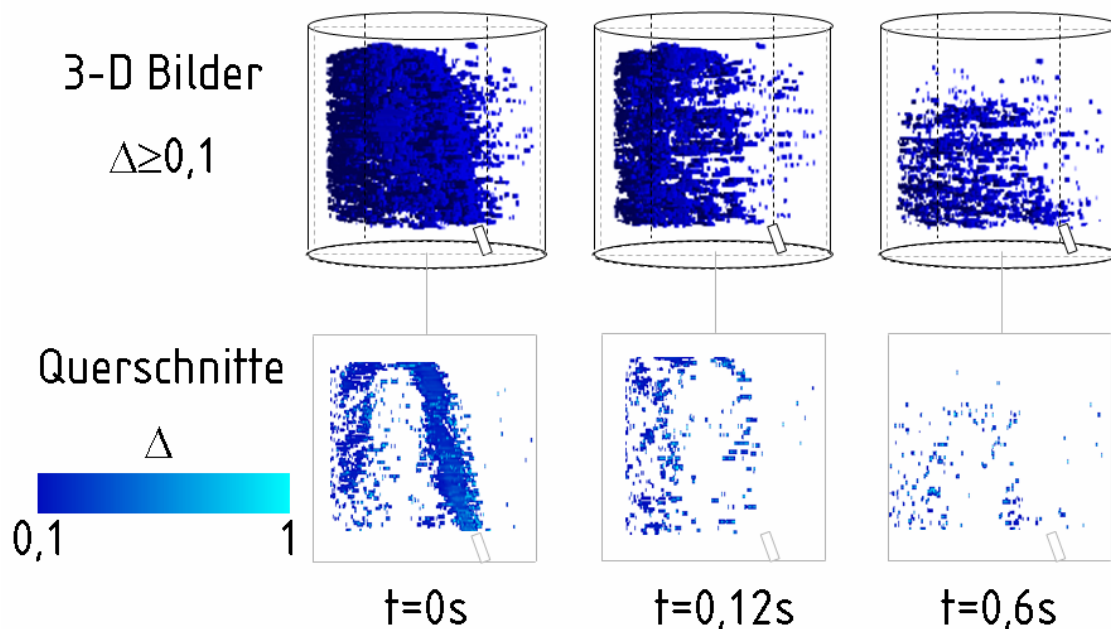


Bild 6.26: Berechnete lokale Deviationsgrade für das eingestrahelte Flüssigkeitsvolumen $V_{ein} = 2\%$ des Reaktorinhalts

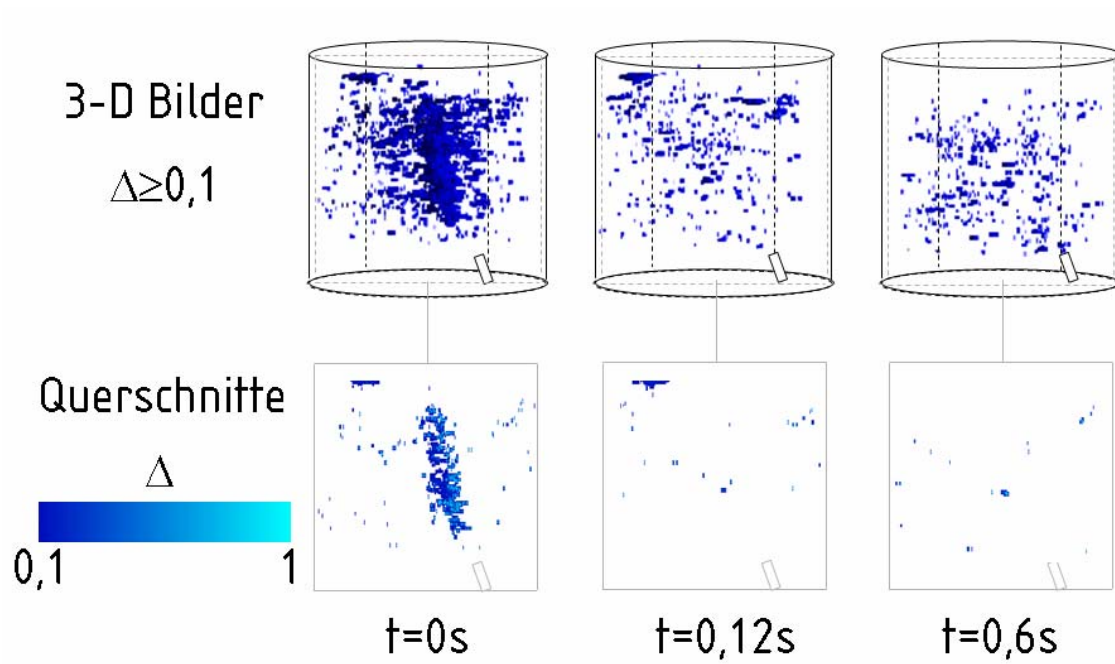


Bild 6.27: Berechnete lokale Deviationsgrade für das eingestrahelte Flüssigkeitsvolumen $V_{ein} = 3\%$ des Reaktorinhalts

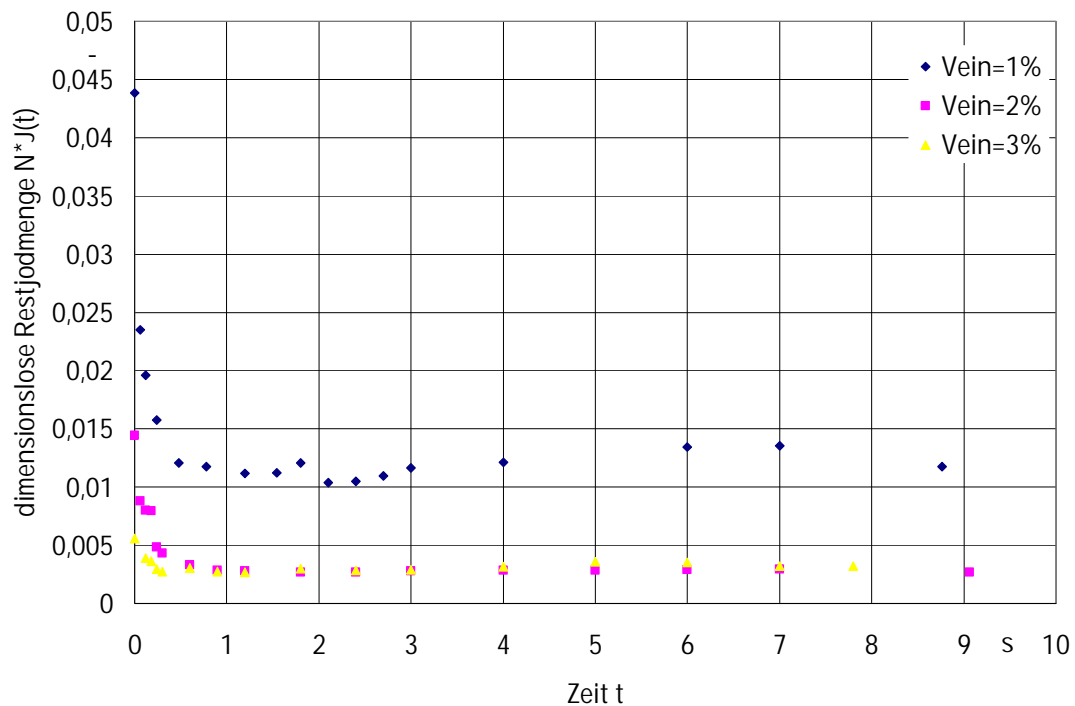


Bild 6.28: Verlauf der durch volumetrische Mittelung berechneten Menge an nicht reagiertem Jod für unterschiedlich eingestrahelte Flüssigkeitsvolumen

Mit Kenntnis der zeitabhängigen Konzentrationsfelder beider Farbstoffe kann der Einfluss des eingestrahelten Flüssigkeitsvolumens auf das Strömungsfeld

festgestellt werden. Das Flüssigkeitsvolumen beeinflusst den konvektiven Transport im Reaktor nur wenig. Für $V_{ein} > 1\%$ verteilt sich die Flüssigkeit in Bereichen des Reaktors, in die sie für $V_{ein} = 1\%$ nicht gelangt. Der Wert der Varianz verändert sich aber wenig, d.h. der konvektive Transport reicht nicht aus, um den Konzentrationsausgleich zu erreichen. Der diffusive Transport verläuft für alle eingestrahnten Volumina sehr rasch. Für längere Einstrahlzeiten hat die reagierende Komponente der Farbstoffe die Möglichkeit, sich bereits während des Einstrahlens im Behälter umzusetzen. Für kürzere Einstrahlzeiten ist der molekulare Transport nicht zu vernachlässigen.

6.2.4 Variation des Viskositätsverhältnisses

Um das Verhältnis der Viskositäten der im Reaktor befindlichen Flüssigkeiten zu der eingestrahnten zu variieren, wird die Viskosität der Flüssigkeit im Reaktor von 1 bis 70mPa geändert. Dabei wird der Einfluss der Strahlausbreitung auf das Konzentrationsfeld der Farbstoffe beobachtet. Die Düse wird für diese Messreihen exzentrisch und im Winkel von 20° zur Senkrechten am Behälterboden eingebaut. Die Austrittsgeschwindigkeit der eingestrahnten Flüssigkeit beträgt 4,29m/s.

In Bild 6.29 sind Isoflächen der Konzentrationen für unterschiedliche Zeiten dargestellt, die größer sind als 1% der Konzentration. Das Viskositätsverhältnis beträgt $\eta_w/\eta=1$. Bereits vor Beenden des Einstrahlens hat die mit dem inerten Farbstoff versehene Flüssigkeit den Behälterboden erreicht und sich auf der der Düse abgewandten Seite gut verteilt. Nach 1,2s besitzen nur wenige Orte ein Konzentrationsverhältnis $c_D/c_{D0} > 1\%$. Nach 2,4s hat die Strahlflüssigkeit auch die Düsenseite des Reaktors erreicht.

Die Konzentrationsfelder des inerten Farbstoffs sind für die Viskositätsverhältnisse $\eta_w/\eta=13$ und $\eta_w/\eta=50$, in Bild 6.29 und Bild 6.30 als Isoflächen dargestellt. Die zeitlich veränderlichen Farbstoffprofile verlaufen ähnlich dem Viskositätsverhältnis $\eta_w/\eta=70$ in Bild 6.31. Durch die eingestrahlte

Flüssigkeit entsteht eine Welle auf der Oberfläche des befüllten Reaktors. Von hier sinkt die eingestrahelte Flüssigkeit zum Boden und steigt wieder auf. Infolge der viskosen Reibung lässt sich die Flüssigkeit nicht gleichmäßig im Reaktor verteilen.

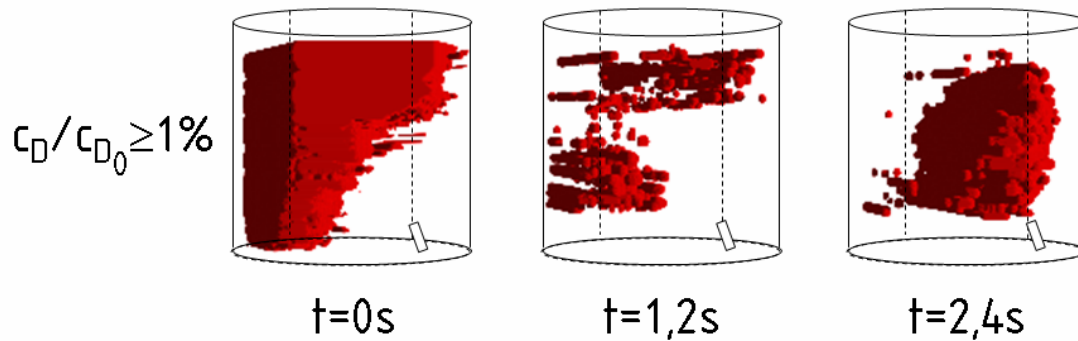


Bild 6.29: Darstellung der auf tomographischem Wege gemessenen lokalen Konzentrationen für das Viskositätsverhältnis $\eta_u/\eta=1$ in dimensionsloser Form

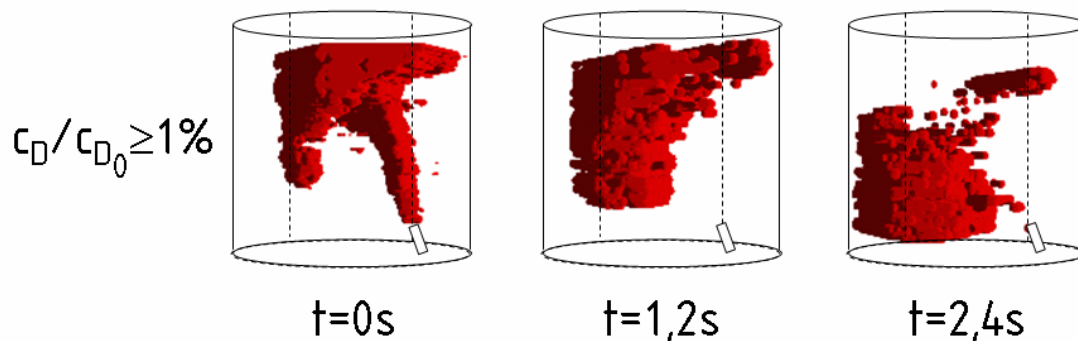


Bild 6.30: Darstellung der Verhältnisse von auf tomographischem Wege gemessenen lokalen Konzentrationen zu den im Strahl eingestellten für das Viskositätsverhältnis $\eta_u/\eta=13$ in dimensionsloser Form

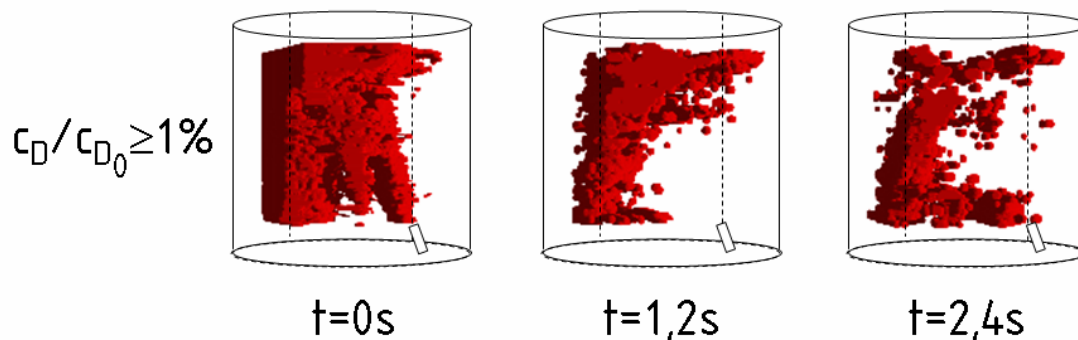


Bild 6.31: Darstellung der Verhältnisse von auf tomographischem Wege gemessenen lokalen Konzentrationen zu den im Strahl eingestellten für das Viskositätsverhältnis $\eta_u/\eta=50$ in dimensionsloser Form

In Bild 6.32 ist der zeitliche Ablauf der Intensität der Segregation für die unterschiedlichen Viskositätsverhältnisse dargestellt. Für keine der Messungsreihen erreicht die Intensität der Segregation den Wert $I_s=0$, sondern verbleibt bei Werten zwischen 0,5 und 0,9. Gemäß der Darstellung lässt sich keine Abhängigkeit des Konzentrationsfeldes von der Viskosität der im Reaktor befindlichen Flüssigkeit feststellen.

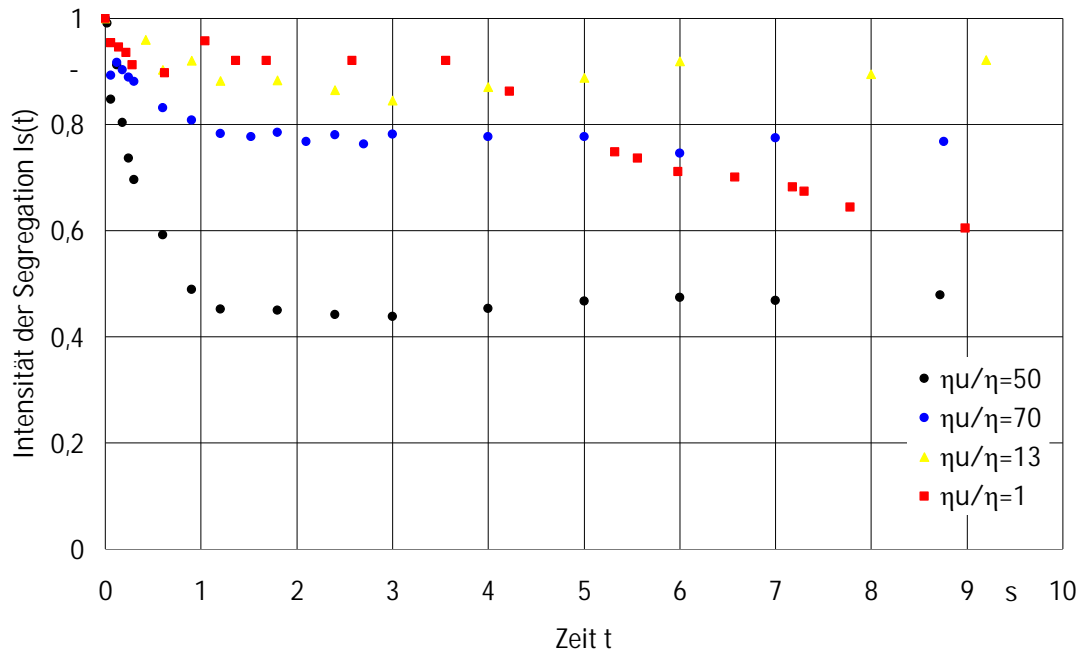
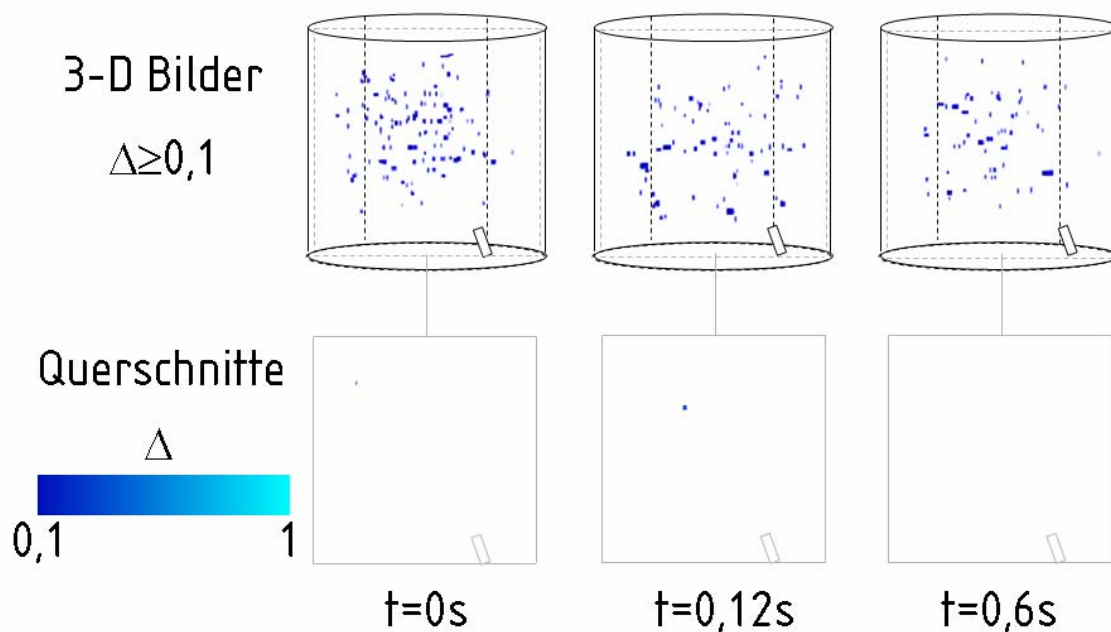


Bild 6.32: Intensität der Segregation als Maß des zeitlichen Verlaufs der Vermischung für unterschiedliche Viskositätsverhältnisse

Durch den direkten Vergleich der Varianz der Farbstoffprofile unmittelbar nach dem Einstrahlen und 9s nach Beenden des Einstrahlens, lässt sich jedoch eine Abhängigkeit feststellen. Die Werte der Varianz sinken für $t=0s$ und $t=9s$ für abnehmende Werte des Viskositätsverhältnisses. Je kleiner der Unterschied zwischen den Viskositäten der zu mischenden Flüssigkeiten ist, desto rascher verläuft die Vermischung unmittelbar nach dem Einstrahlen. Da auch die Reibung geringer ist, ist die Varianz am Ende der Beobachtung des Mischprozesses entsprechend geringer und die daraus resultierenden Konzentrationsprofile verlaufen im Reaktor gleichmäßiger. Als Beispiel beträgt die Varianz für $\eta_u/\eta=70$ das 2,4-fache der Varianz für $\eta_u/\eta=1$.

In [Bild 6.33](#) bis [Bild 6.35](#) sind die Deviationsgrade in Form von Isoflächen für unterschiedliche Querschnitte als Funktionen der Zeit und des Viskositätsverhältnisses dargestellt. Für das Viskositätsverhältnis $\eta_w/\eta=1$ ist der reagierende Farbstoff schon nach Beenden des Einstrahlens nicht mehr vorhanden. Die Diffusion findet noch während des Einstrahlens statt und das Jod wird durch die chemische Reaktion gebunden. Sowohl die räumlichen Profile als auch die Querschnittsbilder sind für Viskositätsverhältnisse $\eta_w/\eta>1$ zueinander ähnlich. Unmittelbar nach Beenden des Einstrahlens ist der reagierende Farbstoff noch im Strahl vorhanden. Seine Konzentration ist in der Mitte des Strahls maximal und nimmt zum Strahlrand ab. Nach 0,12s befindet sich der reagierende Farbstoff im oberen Teil des Reaktors sowie am Rand gegenüber der Düse. Nach 0,6s ist das Jod gebunden und daher nicht mehr sichtbar. Diese Beobachtungen werden von der zeitabhängigen Darstellung der Restjodmenge in [Bild 6.36](#) bestätigt. Auf Grund der Diffusion liegt der Wert der Restjodmenge in der Größenordnung von 10^{-2} für $t=0s$. Schon nach ca. 0,5s erreicht die Restjodmenge ihren Endwert. Für $\eta_w/\eta>1$ ist dieser $N_J=0,01$ und für $\eta_w/\eta=1$ beträgt er $N_J=0$.



[Bild 6.33](#): Lokale berechnete Deviationsgrade für das Viskositätsverhältnis $\eta_w/\eta=1$

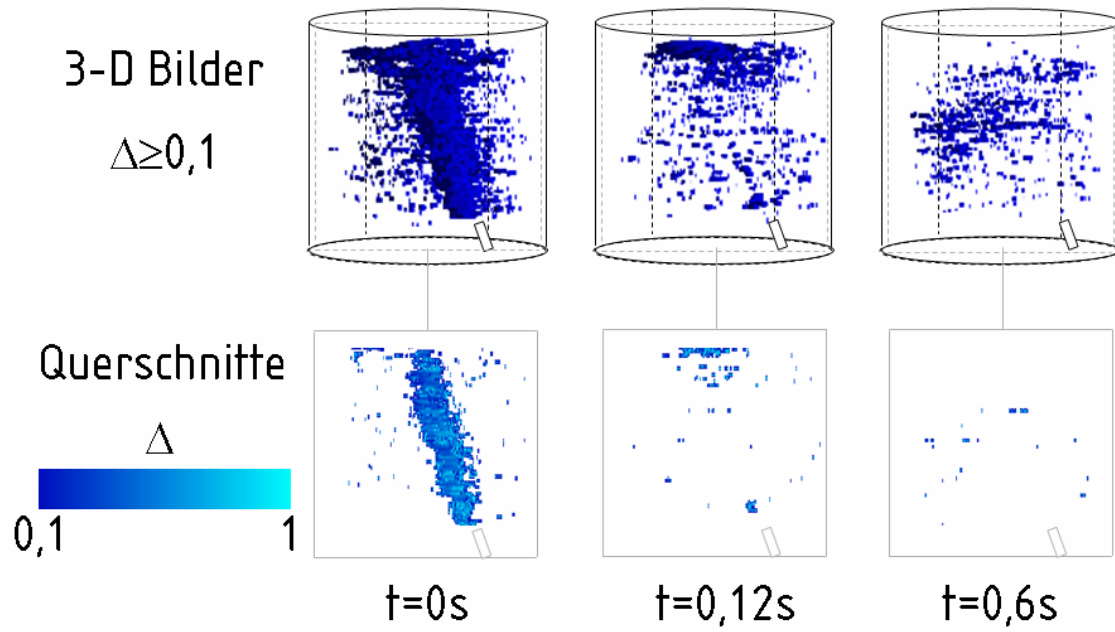


Bild 6.34: Lokale berechnete Deviationsgrade für das Viskositätsverhältnis $\eta_w/\eta=13$

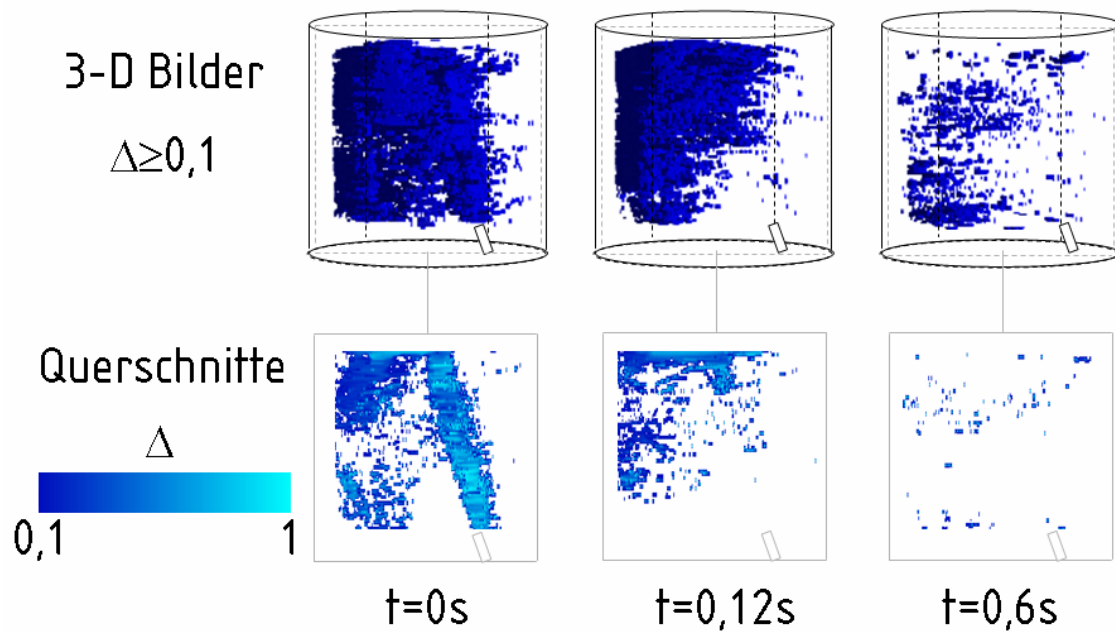


Bild 6.35: Lokale berechnete Deviationsgrade für das Viskositätsverhältnis $\eta_w/\eta=50$

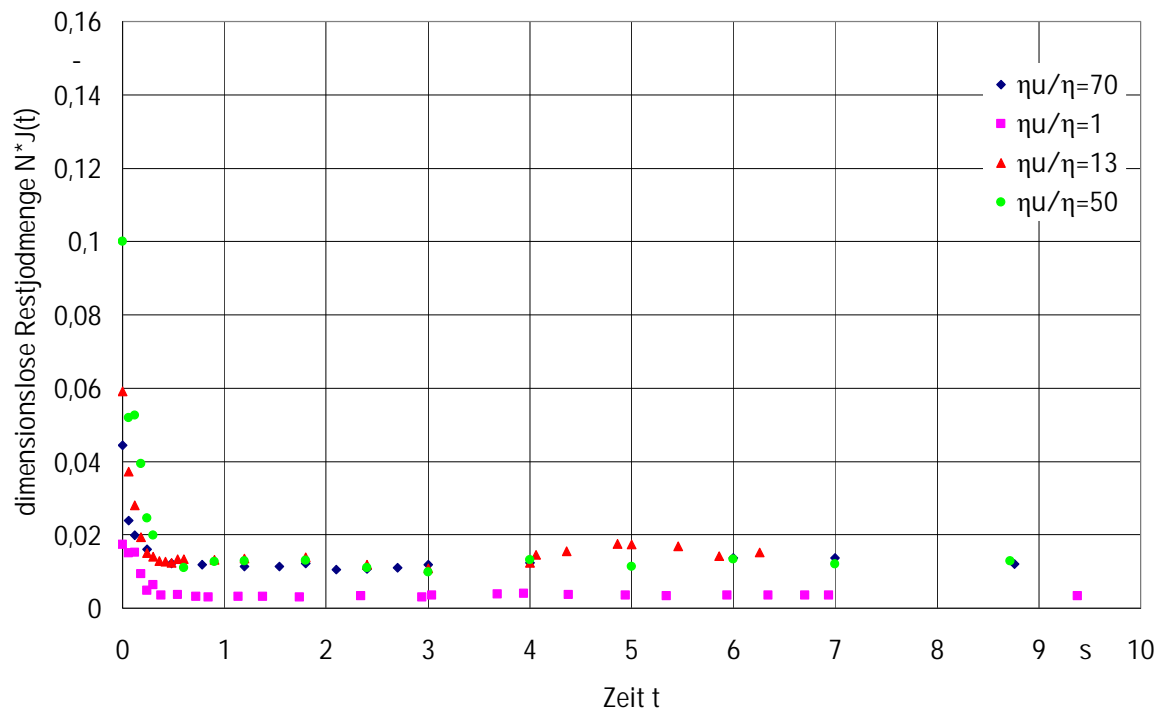


Bild 6.36: Zeitlicher Verlauf der durch volumetrische Mittelung berechneten Menge an nicht reagiertem Jod für unterschiedliche Viskositätsverhältnisse

Mit Kenntnis der zeitabhängigen Konzentrationsfelder beider Farbstoffe kann der Einfluss des Viskositätsverhältnisses der zu vermischenden Flüssigkeiten auf das Strömungsfeld abgeschätzt werden. Das Viskositätsverhältnis beeinflusst den konvektiven Stofftransport im Behälter. Für $\eta_w/\eta > 1$ werden ähnliche Strömungsfelder erzeugt. Die eingestrahelte Flüssigkeit erreicht die freie Oberfläche, bildet dort einen Wirbel und sinkt bis zum Behälterboden ab, um später wieder aufzusteigen. Der Strahlimpuls reicht nicht aus, um eine gleichmäßige Verteilung beider Flüssigkeiten zu erreichen. Der anfängliche Impuls wird durch viskose Reibung aufgezehrt. Ein verbesserter konvektiver Transport wird für das Verhältnis $\eta_w/\eta=1$ erreicht. In diesem Fall werden die größeren Mengen der eingestrahelten Flüssigkeit im Reaktor aufwärts transportiert. Die Varianz der Farbstoffprofile ist gegen Ende der Beobachtungszeit am geringsten, was der besseren Makrovermischung entspricht. Auch der molekulare Transport ist für $\eta_w/\eta=1$ am größten. Schon während des Einstrahlens entfärbt sich das Jod als reagierender Farbstoff

fast vollständig, so dass er unmittelbar nach Beenden des Einstrahlens kaum visualisierbar ist. Zwischen den drei eingestellten größeren Viskositätsverhältnissen lassen sich kaum Unterschiede feststellen. Unmittelbar nach dem Einstrahlen befindet sich das Jod in der Strahlmitte und die Diffusion erfolgt entlang der Strahlränder. Erreicht der reagierende Farbstoff die freie Oberfläche des Reaktorsvolumens, so sind keine weiteren Geschwindigkeitsgradienten zu beobachten.

7. Zusammenfassung

Das Einstrahlen von flüssigen Inhibitoren in Form von sog. Reaktionsstoppnern dient der Sicherheit des Betriebs chemischer Reaktoren. Es kann gegen das nicht betriebsgemäße Verhalten exotherm ablaufender chemischer Reaktionen eingesetzt werden. Ein Grund für den bisher zögerlichen Einsatz in der betrieblichen Praxis ist, dass über den Ablauf der damit verbundenen Strömungs- und Vermischungsprozesse bisher nur wenige experimentell erprobte Betriebserfahrungen vorliegen. Reaktionsstopper können mit Hilfe von Flüssigkeitsstrahlen in Reaktoren und Lagertanks dosiert werden. Der über ein zeitbegrenztes Intervall dosierte Strahl des Reaktionsstoppers wird von einer turbulenten Grenzschicht umgeben, welche sich infolge der Relativgeschwindigkeit zwischen ihm und der zunächst in Ruhe befindlichen umgebenden Flüssigkeit einstellt. In ihr werden Teilvolumen aus der ruhenden Umgebung des Strahls beschleunigt. Dazu besteht sie aus sich instationär bewegenden Wirbeln mit dreidimensionalem Charakter. Die großen Wirbel verlieren ihre Energie dadurch, dass sie sich in kleinere Wirbel teilen. Die Energieübertragung verläuft solange, bis die Wirbel so klein sind, dass ihre Energie nur noch in Wärme dissipiert werden kann. Der weitere Konzentrationsausgleich findet auf Grund der Diffusion statt. Sie bewirkt das Vermischen beider Flüssigkeiten im Bereich der molekularen Ortsskalen und ist Voraussetzung für den Ablauf chemischer Reaktionen.

In der vorliegenden Arbeit werden Flüssigkeitsstrahlen eingesetzt, um zwei Flüssigkeiten zu vermischen. Die dabei auftretenden räumlichen Konzentrationsfelder werden gemessen. Um die Transportphänomene im Makro- und Mikrobereich der Ortsskalen simultan und getrennt voneinander zu messen, werden ein inerter und ein reagierender Farbstoff eingesetzt, die als Gemisch in den Reaktor dosiert werden. Das Konzentrationsfeld des inerten Farbstoffs kennzeichnet das Makromischen im Reaktor, welches mit dem konvektiven Transport verbunden ist. Der zweite Farbstoff reagiert

chemisch mit dem im Reaktor befindlichen Reaktanden, der im Überschuss vorhanden ist und entfärbt sich dadurch. Die Entfärbung dient als Maß für den Ablauf der chemischen Reaktion, die nur infolge der Diffusion möglich ist.

Zum Definieren der Makromischgüte dient die Intensität der Segregation, welche die Unterschiede zwischen den Konzentrationen des inerten Farbstoffs in einzelnen Fluidelementen beschreibt. Der Ablauf des Mikromischens wird durch das Konzentrationsverhältnis des noch vorhandenen reagierenden und sich dabei entfärbenden Farbstoffs zum ursprünglich in den Reaktor eingebrachten Farbstoff berechnet. Beide Mischgütemaße werden simultan mit Hilfe der tomographischen Zweiwellenlängenphotometrie ermittelt. Diese Messtechnik ermöglicht das räumliche Visualisieren der Konzentrationsfelder beider Farbstoffe. Zusätzlich zur volumengemittelten Mischgüte wird auch die lokale Mikromischgüte, der sog. Deviationsgrad, berechnet. Dieser wird aus dem Anteil des reagierenden Farbstoffs erhalten, der lokal noch nicht umgesetzt ist. Im Fall eines vollständig segregierten Fluids nimmt der Deviationsgrad den Wert Eins an. Während der Vermischung fällt dieser auf Null, wenn ein vollständig mikrovermishtes Fluid vorliegt.

In den experimentellen Arbeiten werden die Einbaupositionen der Düsen, die Einstrahlwinkel, die Flüssigkeitgeschwindigkeiten am Düsenaustritt und die eingestrahlt Volumen variiert. Dabei wird der Reaktor mit einer 0,5G % Zelluloselösung befüllt. Das Einstrahlen des Reaktionsstoppers von einer exzentrischen Position des Reaktorbodens bei $2/3$ des Radius unter dem Einstrahlwinkel 20° zur Senkrechten begünstigt das Makromischen. Die Vergrößerung der Reynolds-Zahl der eingestrahlt Flüssigkeit verbessert die Konvektion im Strömungsfeld. Eingestrahlt Flüssigkeitsvolumen, welche zwischen 1% und 3% der Reaktorfüllmenge betragen, führen zu einem rascheren Konzentrationsausgleich im Reaktor.

Darüber hinaus wird der Einfluss der Viskosität der sich im Reaktor befindlichen Flüssigkeit auf den Ablauf des Mikro- und Makromischens

gemessen. Dazu wird der Mengenanteil der Zellulose zwischen 0G % und 0,5G % variiert. Für steigende Viskositäten in der umgebenden Flüssigkeit nimmt die Homogenität des Gemisches ab.

Häufig wird der Endwert für die Intensität der Segregation zwei Sekunden nach Beenden des Einstrahlens erreicht. Dieser Wert entspricht aber noch nicht der vollständigen Makrovermischung weil der durch das Einstrahlen zugeführte Impuls nicht ausreicht, um die Homogenität herzustellen.

Andererseits wird das Mikromischen bereits innerhalb von 0,6s der Einstrahlzeit beobachtet, da der reagierende Farbstoff während des Einstrahlens auf den Reaktanden im Reaktor trifft.

Literaturverzeichnis

- [1] S. G. Balasubramanian, D. Dakshinamoorthy, J. F. Louvar: *Shortstopping Runaway Reactions*; Process Safety Progress 22 (2003) 4, 245–251
- [2] D. Hoffmann: *Fluid modeling system provides safety benefits*; Chemical Processing (1998), 72–75
- [3] R. Schimetzek, A. Steiff, P. M. Weinspach: *Examination of discontinuous jet mixing for designing emergency cooling systems of chemical reactors*; ICheme Symposium Series 136 (1995), 391–398
- [4] D. Dakshinamoorthy, A. R. Khopkar, J. F. Louvar, V. V. Ranade: *CFD simulation of shortstopping runaway reactions in vessels agitated with impellers and jets*; Journal of Loss Prevention in the Process Industries 19 (2006), 570–581
- [5] S. Jayanti: *Hydrodynamics of jet mixing in vessels*; Chem.Eng.Sci. 56 (2001), 193–210
- [6] R. Grenville, J. Tilton: *Turbulence or flow as a predictor of blend time in turbulent jet mixed vessels*; Recents Progres en Genie des Procedes 11 (1997), 67–74
- [7] K. J. Mc Naughton, C. G. Sinclair: *Submerged jets in short cylindrical flow vessels*; J.Fluid.Mech. 25 (1966) 2, 367–375
- [8] R. Renz: *Das diskontinuierliche Vermischen von Flüssigkeitsstrahlen in zylindrischen Behältern*; Dissertation, Universität Hannover, 1992
- [9] W. Haarde: *Das Vermischen mit Hilfe von Flüssigkeitsstrahlen*; Dissertation, Universität Hannover, 1989
- [10] R. K. Grenville, J. N. Tilton: *A new theory improves the correlation of blend time data from turbulent jet mixed vessels*; Institution of Chemical Engineers 74 (1996), 390–396
- [11] R. Grenville, J. Tilton: *Turbulence or flow as a predictor of blend time in turbulent jet mixed vessels*; Recents Progres en Genie des Procedes 11 (1997), 67–74
- [12] A. W. Patwardhan, S. G. Gaikwad: *Mixing in tanks agitated by jets*; Institution of Chemical Engineers 81 (2003), 211–220
- [13] A. W. Patwardhan: *CFD modelling of jet mixed tanks*; Chem.Eng.Sci. 57 (2002), 1307–1318

- [14] H. D. Zughbi, I. Ahmad: *Mixing in liquid-jet-agitated tanks: effects of jet asymmetry*; Ind.Eng.Chem.Res. 44 (2005), 1052-1066
- [15] A. Orfaniotis, C. Fonade, M. Lalane, N. Doubrovine: *Experimental Study of the Fluidic Mixing in a Cylindrical Reactor*; Can.J.Eng. 74 (1996), 203-212
- [16] M. Simon, C. Fonade: *Experimental study of mixing performances using steady and unsteady jets*; Can.J.Eng. 71 (1993), 507-513
- [17] U. Kammel, S. Schlüter, A. Steiff, P. M. Weinspach: *Control of runaway polymerization reactions by injection of inhibiting agents - a contribution to the safety of chemical reactors*; Chem.Eng.Sci. 51 (1996) 10, 2253-2259
- [18] J. Baldyga, J. R. Bourne, B. Zimmermann: *Investigation of mixing in jet reactors using fast, competitive-consecutive reactions*; Chem.Eng.Sci. 49 (1994) 12, 1937-1946
- [19] J. Baldyga, J. R. Bourne, R. V. Gholap: *The influence of viscosity on mixing in jet reactors*; Chem.Eng.Sci. 50 (1995) 12, 1877-1880
- [20] J. Baldyga, J. R. Bourne, B. Dubuis, A. W. Etchells, R. V. Gholap, B. Zimmermann: *Jet reactor scale-up for mixing-controlled reactions*; Trans IChemE 73, Part A (1995) July, 497-502
- [21] A. W. Patwardhan, A. R. Thatte: *Process Design Aspects of Jet Mixers*; Can.J.Eng. 82 (2004), 198-205
- [22] J. J. Perona, T. D. Hylton, E. L. Youngblood, R. L. Cummins: *Jet mixing of liquids in long horizontal cylindrical tanks*; Ind.Eng.Chem.Res. 37 (1998), 1478-1482
- [23] P. Walzel, H. Bode: *Einmischen von Notabstoppnern in chemische Reaktoren*; Chem.Eng.Tech. 65 (1993), 447-449
- [24] I. H. Campbell, J. S. Turner: *Turbulent mixing between fluids with different viscosities*; Nature 313 (1985) 3, 39-42
- [25] I. H. Campbell, J. S. Turner: *The influence of viscosity on fountains in magma chambers*; Journal of Petrology 27 (1986) 1, 1-30
- [26] J. A. Bellerose, C. B. Rogers: *Measuring mixing and local pH through laser induced fluorescence*; Laser Anemometry 191 (1994), 217-220
- [27] J. R. Coppeta, C. B. Rogers: *Dual emission laser induced fluorescence for direct planar behaviour measurements*; Experiments in Fluids 25 (1998) 1, 15

- [28] J. R. Coppeta, C. B. Rogers: *A quantitative mixing analysis using fluorescent dyes*; AIAA 96-0539 (1995), 1-8
- [29] S. D. Hong, Y. Sugii, K. Okamoto, H. Madarame: *Evaluation on the chemically reacting liquid round jet by LIF technique*; 10th International Symposium on Flow Visualization, Kyoto, Japan (2002), F0275
- [30] G. J. Merkel, T. Dracos, P. Rys: *Two-Dimensional and Three-Dimensional Imaging of Passive Scalar Fields in a Turbulent Jet*; Atlas of Visualisation, CRC Press, 1996, 67-78
- [31] B. K. Reville: *Jet Mixing*; Mixing in the process industries, Butterworth-Heinemann Ltd. 2nd, 1992, 159-186
- [32] R. Grenville, J. Tilton: *Turbulence or flow as a predictor of blend time in turbulent jet mixed vessels*; Recents Progres en Genie des Procedes 11 (1997), 67-74
- [33] A. Orfanotis, C. Fonade, M. Lalane, N. Doubrovine: *Experimental Study of the Fluidic Mixing in a Cylindrical Reactor*; Can.J.Eng. 74 (1996), 203-212
- [34] R. Renz, D. Mewes: *Experimentelle Untersuchungen zur Ausbreitung von Reaktionsstoppnern in Lagertanks*; Chem.Ing.Tech. 64 (1992), 565-567
- [35] R. Scharf: *Die Wirkung von Polymerzusätzen auf die Turbulenzstruktur in der ebenen Mischungsschicht zweier Ströme*; Rheologica Acta 24 (1985), 272-295
- [36] J. C. Rotta: *Turbulenten Strömungen*; B.G. Teubner, Stuttgart, 1972
- [37] K. Kling: *Visualisieren des Mikro- und Makromischens mit Hilfe zweier fluoreszierender und chemisch reagierender Farbstoffe*; Dissertation, Universität Hannover, 2004
- [38] M. Käppel: *Entwicklung und Anwendung einer Methode zur Messung des Mischungsverlaufs bei Flüssigkeiten*; Dissertation, TU München, 1976
- [39] J. W. Hiby: *Decolouring of chemical indicators: application and limitations*; 6th European Conference on Mixing, Pavia, Italien (1988), 123-128
- [40] D. J. Lamberto, M. M. Alvarez, F. J. Muzzio: *Experimental and computational investigation of the laminar flow structure in a stirred tank*; Chem.Eng.Sci. 54 (1999), 919-942

- [41] D. J. Lamberto, F. J. Muzzio, P. D. Swanson, A. L. Tonkovich: *Using time-dependent RPM to enhance mixing in stirred vessels*; Chem.Eng.Sci. 51 (1996) 5, 733-741
- [42] G. Ascanio, S. Foucault, P. A. Tanguy: *New chaotic approach for mixing shearthinning fluids in stirred tanks*; 4th ASME-JSME Joint Fluids Engineering Conference, Honolulu, HI, USA (2003), 1-5
- [43] H. Henzler: *Untersuchungen zum Homogenisieren von Gasen und Flüssigkeiten*; VDI-Forschungsheft, 1978
- [44] M. C. Fournier, L. Falk, J. Villiermaux: *A new parallel competing reaction system for assessing micromixing efficiency -experimental approach*; Chem.Eng.Sci. 51 (1996) 22, 5053-5064
- [45] P. Guichardon, L. Falk: *Characterisation of micromixing efficiency by the iodide-iodate reaction system. Part I: experimental procedure*; Chem.Eng.Sci. 55 (2000), 4233-4243
- [46] S. Ferrouillat, P. Tochon, H. Peerhossaini: *Micromixing enhancement by turbulence: Application to multifunctional heat exchangers*; Chem.Eng.Proc. 45 (2006), 633-640
- [47] M. Assirelli, W. Bujalski, A. Eaglesham, A. W. Nienow: *Intensifying micromixing in a semi-batch reactor using a Rushton turbine*; Chem.Eng.Sci. 60 (2005), 2333-2339
- [48] O. Akiti, A. Yeboah, G. Bai, P. M. Armenante: *Hydrodynamic effects on mixing and competitive reactions in laboratory reactors*; Chem.Eng.Sci. 60 (2005), 2341-2354
- [49] S. Yu: *Micromixing and parallel reactions*; Dissertation,ETH Zürich, 1993
- [50] F. Mayinger; O. Feldmann: *Optical measurements techniques and applications*; Springer-Verlag, Berlin, 2001
- [51] K. Sato, N. Kasagi, Y. Suzuki: *Combined velocity and scalar field measurements with the simultaneous use of PIV and scanning LIF*; Transport Phenomena in Thermal Science and Process Engineering (1997), 541-546
- [52] S. Deutsch, T. Dracos: *Time resolved 3D passive scalar concentration-field imaging by laser induced fluorescence (LIF) in moving liquids*; Meas.Sci.Technol. 12 (2001) 2, 188-200
- [53] X. Tian, P. J. W. Roberts: *A 3D LIF system for turbulent buoyant jet flows*; Experiments in Fluids 35 (2003) 6, 636-647

- [54] P. J. Holden, M. Wang, R. Mann, F. J. Dickin, R. B. Edwards: *Imaging stirred-vessel macromixing using electrical resistance tomography*; AIChE Journal 44 (1998) 4, 780–790
- [55] W. Haarde, D. Mewes: *Das Vermischen geringer Stoffmengen in grossvolumigen Lagertanks und chemischen Reaktoren*; Chem.Eng.Tech. 62 (1990) 1, 52–53
- [56] M. Buchmann, D. Mewes: *Measurement of the local intensities of segregation with the tomographical Dual Wavelength Photometry*; Can.J.Eng. 76 (1998) 3, 626–630
- [57] M. Buchmann: *Simultanes Messen des laminaren Mikro- und Makromischens mit Hilfe der tomographischen Zweiwellenlängenphotometrie*; VDI-Fortschritt-Berichte, VDI-Verlag, Düsseldorf, 1999
- [58] M. Kraume: *Mischen und Rühren: Grundlagen und moderne Verfahren*; Wiley-VCH, Weinheim, 2003
- [59] J. Villiermaux, R. David: *Recent advances in the understanding of micromixing phenomena in stirred reactors*; Chem.Eng.Commun. 21 (1083) 1–3, 105–122
- [60] A. Mersmann, R. Geisler, H. Voit: *Makro- und Mikromischen im Rührkessel*; Chem.Eng.Tech. 60 (1988) 12, 947–955
- [61] R. S. Brodkey: *Fundamentals of turbulent motion, mixing and kinetics*; Chem.Eng.Commun. 8 (1981), 1
- [62] J. Baldyga, J. R. Bourne: *Principles of micromixing*; Encyclopedia of Fluid Mechanics 1 (1986), 148
- [63] J. Villiermaux: *Micromixing phenomena in stirred reactors*; Encyclopedia of Fluid Mechanics 2 (1986), 708
- [64] J. Baldyga, J. R. Bourne: *A fluid mechanical approach to turbulent mixing and chemical reaction Part II Micromixing in the light of turbulence theory*; Chem.Eng.Commun. 28 (1984), 243
- [65] H. Giesekus: *Phänomenologische Rheologie: Einführung*; Springer-Verlag, Berlin, 1994
- [66] J. Carreau: *Rheology of polymer systems: principles and applications*; Carl Hanser Verlag, München, 1997
- [67] H. von Halban, H. Eisner: *Zur Kinetik schnellverlaufender Reaktionen. II. Iodstärke*; Helv.Chem.Acta. 19 (1936), 915–927

- [68] T. S. Rao, S. I. Mali: *Kinetics of the reaction between $S_2O_3^{2-}$ and I_3^- in aqueous Solution*; Z.Nat.forsch. 29a (1974)
- [69] J. D. Newson, A. C. Riddiford: *Limiting currents for the Reduction of the Tri-iodide Ion at a rotating platinum disk cathode*; J.El.chem.Soc. (1961), 695
- [70] A. M. Sullivan, P. A. Kohl: *Electrochemical study of the gold thiosulfate reduction*; J.El.chem.Soc. 144 (1997), 5
- [71] A. P. G. Nikolova: *On the existence of an anomalously high dissolution rate in films of non-newtonian liquids with short contact times*; J.Non-Newtonian Fl.Mech. 8 (1981), 319-326
- [72] D. Mewes, R. Renz: *Meß- und Rekonstruktionsmethoden für tomographische Messungen*; Chem.Eng.Tech. 63 (1991) 7, 699-715
- [73] N. Reinecke, D. Mewes: *Recent Developments and Industrial Research Application of Capacitance Tomography*; Meas.Sci.Technol. 7 (1996) 3, 233-246
- [74] N. Reinecke, D. Mewes: *Tomographic Imaging of Trickle-bed Reactors*; Chem.Eng.Sci. 51 (1996) 10, 2131-2138
- [75] N. Reinecke, G. Petritsch, D. Mewes: *Reconstruction of limited view problems using adaptative coordinates*; Conference Proceedings ASME, FEDSM 97, Vancouver, Kanada (1997)