

Christian Bradtmöller

# **Einfluss erhöhter Viskosität auf die Trennleistung von strukturierten Packungen in der Rektifikation**



# Einfluss erhöhter Viskosität auf die Trennleistung von strukturierten Packungen in der Rektifikation

Von der Fakultät für Maschinenbau  
der Technischen Universität Carolo-Wilhelmina zu Braunschweig

zur Erlangung der Würde

eines Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.)

genehmigte Dissertation

von: Christian Bradtmöller  
aus: Minden

eingereicht am: 17.12.2015  
mündliche Prüfung am: 27.04.2016

Gutachter: Prof. Dr.-Ing. Stephan Scholl  
Prof. Dr.-Ing. Eugeny Kenig

2017





## Vorwort und Danksagung

Diese Arbeit ist das Ergebnis von fünf Jahren Forschung am Institut für Chemische und Thermische Verfahrenstechnik und begann genau gesagt noch etwas früher mit der Ausschreibung einer Diplomarbeit zum Thema Rektifikation durch Prof. Dr.-Ing. Stephan Scholl. In dieser Zeit hatte ich viel Spaß auf der Suche nach Antworten und „der Wahrheit“ was die Rektifikation viskoser Stoffsysteme angeht. Die Wahrheit ist aber manchmal wie die Mitte eines im Nebel liegenden Flusses. Eigentlich klar definiert, mit umherziehenden Nebelschwaden und ohne Wissen wie weit das gegenüberliegende Ufer wirklich weg ist wäre es aber doch eine Anmaßung zu sagen man wüsste die ganze Wahrheit. Ebenso verhüllte der isolierende Mantel der Kolonne den direkten Blick auf den Ort der Erkenntnis. Kurzum, manchmal war der Weg steinig. Für die mentale Unterstützung, die gemeinsame Zeit auf dem Weg bis hierher und das Erdulden manchmal verquerer Gedankengänge danke ich meiner Freundin Linda von Herzen. Vielen Dank auch an meine Eltern und Familie, die meinen Drang Neues zu suchen und zu verstehen geweckt und geprägt haben. Dabei sind meine Gedanken gerade auch bei denen, die nicht mehr bei mir sein können, wenn mein Weg zur Promotion nun zu Ende geht.

Weiterhin gilt mein Dank allen Freunden und Kollegen, die zu dieser Arbeit beigetragen haben. Dies waren zu Beginn Jochen, Stefanie und Niels, die mir mit ihrer Erfahrung halfen und Robert mein langjähriger „Anlagennachbar“. Das ist Stephan Scholl, dem mein Dank für seine bei Diskussionsbedarf immer offene Tür gilt. Das sind weiterhin Georg Garnweitner, dem ich für die Übernahme des Prüfungsvorsitzes und den Start als Mitarbeiter am iPAT danken möchte, und Eugeny Kenig als Zweitprüfer und seine Mitarbeiter Anna Janzen und Tim Wolf, von denen Impulse aus der Zusammenarbeit im gemeinsamen Projekt kamen. Vor allem gilt mein Dank aber auch dem Team der Werkstatt, das viele Teile gefertigt hat, die meine Messungen erst möglich machten. Im Speziellen denke ich hier immer wieder an Arthur, der während meiner Zeit am Institut leider viel zu früh von uns gegangen ist. Mein Dank geht auch an Marion im Sekretariat, die von immer neuen Doktoranden und unserem Umgang mit sich ständig ändernden Formularen zur Weißglut getrieben wird. Ich wünsche dir Gleichmut, wir wissen es einfach nicht besser.

Vor allem möchte ich auch allen Studierenden danken, mit denen ich in den letzten Jahren gearbeitet habe. Das sind Florian Schlüter, der als wissenschaftliche Hilfskraft und in seiner Studienarbeit einen Teil der Trennleistungsmessungen durchgeführt hat, Julia Krüger, Eike Häusler und René Jagau, die im Rahmen ihrer Arbeit an der Rektifikationskolonne und bei der Messung von Phasengleichgewichten geholfen haben. Mein Dank gilt auch Janina und Frederic, die im vergangenen Jahr ihren Forschungsdrang in ihren Abschlussarbeiten mit mir geteilt haben. Danke auch an alle anderen Studierenden, durch deren Arbeiten ich fachlich und in vielen Gesprächen auch persönlich wachsen konnte.

Nicht zuletzt ein großes Danke an alle anderen Kollegen, insbesondere Maneli, Karl und Paul, für die Diskussionen in der heißen Phase der Dissertation und eine gute Zeit am Institut.



# Inhaltsverzeichnis

<b>Kurzfassung</b> .....	<b>IV</b>
<b>Abstract</b> .....	<b>V</b>
<b>Symbol und Abkürzungsverzeichnis</b> .....	<b>VI</b>
<b>1 Einleitung</b> .....	<b>1</b>
<b>2 Stand des Wissens</b> .....	<b>3</b>
2.1 Stofftrennung mittels Rektifikation .....	4
2.1.1 Strömungswege und Stofftrennung in strukturierten Packungen .....	6
2.1.2 Einfluss thermophysikalischer Stoffeigenschaften, geometrischer und betrieblicher Parameter auf die Stofftrennung in Packungen .....	8
2.2 Testgemische zur Bewertung von Trennleistung und fluiddynamischem Verhalten .....	9
2.2.1 Testgemische zur Bestimmung der Trennleistung von Rektifikationskolonnen .....	9
2.2.2 Einfluss thermophysikalischer Stoffeigenschaften bei der Trennleistungsmessung .....	10
2.2.3 Überblick über Reinstoffe und Gemische zur Untersuchung von Trennleistung, Benetzungseigenschaften und Fluiddynamik .....	12
2.3 Trennleistung von Packungskolonnen .....	13
2.3.1 Quellen für Literaturdaten der Trennleistung von Packungskolonnen .....	13
2.3.2 Diskussion ausgewählter Literaturdaten der Trennleistung .....	16
2.3.3 Einfluss erhöhter Viskosität .....	18
2.3.4 Einfluss von Kolonnendurchmesser und Packungshöhe auf Trennleistung und Druckverlust .....	19
2.4 Fluiddynamik in Packungskolonnen .....	21
2.4.1 Anteil der benetzten Oberfläche .....	21
2.4.2 Filmdicke der Flüssigkeit .....	24
2.4.3 Fließwinkel der Flüssigkeit .....	24
2.4.4 Strömungsformen .....	25
2.4.5 Druckverlust und Kapazität .....	28
2.5 Verweilzeit in Packungskolonnen .....	29
2.6 Stofftransportmodelle zur Berechnung der Trennleistung .....	32
2.6.1 Berechnung der Stoffübergangskoeffizienten .....	33
2.6.2 Berechnung des HETP-Wertes .....	35
2.6.3 Delft-Modell .....	36
2.6.4 SRP-Modell .....	39
2.6.5 Hanley-Modell .....	40
2.7 Zusammenfassung und Zielsetzung .....	41
<b>3 Material und Methoden</b> .....	<b>43</b>
3.1 Rektifikationskolonne DN50 und Geometrie der Packungen .....	43
3.1.1 Beschreibung der Rektifikationskolonne .....	43
3.1.2 Geometrie der verwendeten strukturierten Packungen .....	46
3.2 Bestimmung der Trennleistung .....	48
3.2.1 Anfahren der Kolonne und Entnahme von Proben .....	48
3.2.2 Bestimmung der HETP-Werte .....	49
3.3 Berechnung von Gas- und Flüssigkeitsbelastungen .....	51
3.4 Bestimmung der Fluiddynamik der Kolonne .....	52



3.4.1 Messung und Modellierung des spezifischen Druckverlustes .....	52
3.4.2 Bestimmung des Hold-up der Flüssigkeit .....	52
3.5 Modellierung der Trennleistung .....	54
3.6 Bestimmung der Verweilzeit und Berechnung des Hold-up der Flüssigkeit .....	56
3.7 Weitere Apparate und Messmethoden .....	59
3.7.1 Phasengleichgewichtsapparatur und Bestimmung von VLE-Daten .....	59
3.7.2 Gaschromatograph und Bestimmung der Gemischzusammensetzung von MB/MP .....	60
3.7.3 Messung von Flüssigkeitsdichten .....	61
3.7.4 Rheometer .....	62
3.8 Verwendete Chemikalien .....	62
<b>4 Auswahl und Charakterisierung eines viskosen Testgemisches.....</b>	<b>63</b>
4.1 Anforderungen an ein viskoses Testgemisch zur Messung der Trennleistung unter Rektifikationsbedingungen .....	63
4.2 Auswahl eines viskosen Testgemisches .....	64
4.2.1 Identifizierung viskoser Reinstoffe .....	64
4.2.2 Eliminierung von Kandidaten .....	65
4.2.3 Identifizierung von binären Paarungen .....	67
4.2.4 Auswahl einer binären Mischung .....	68
4.3 Vergleich und Bewertung der Stoffeigenschaften der Testgemische.....	68
4.3.1 Dampf-Flüssig-Gleichgewichtsdaten .....	69
4.3.2 Dichte der Flüssigkeit .....	71
4.3.3 Viskosität der Flüssigkeit.....	73
4.3.4 Oberflächenspannung.....	75
4.3.5 Diffusionskoeffizienten.....	76
4.3.6 Weitere physikalische Stoffeigenschaften .....	79
4.4 Abschließender Vergleich der Testgemische .....	79
<b>5 Bestimmung von Trennleistung, Druckverlust, Hold-up und Verweilzeit.....</b>	<b>83</b>
5.1 Einfluss der Viskosität auf Trennleistung und Druckverlust.....	84
5.2 Einfluss der Geometrie auf Trennleistung und Druckverlust.....	90
5.3 Einfluss betrieblicher Parameter, Stoffeigenschaften und Geometrie auf den Hold-up.....	93
5.3.1 Einfluss von Stoffeigenschaften und Geometrie auf den statischen Hold-up.....	94
5.3.2 Hold-up der Flüssigkeit bei den Trennleistungsmessungen für die Gemische CB/EB und MB/MP und die untersuchten Packungen.....	96
5.3.3 Vergleich des Hold-up unter totalem Rücklauf mit Messungen ohne Gasgegenstrom und Wasser als Arbeitsmedium.....	99
5.4 Untersuchung der Verweilzeit der Flüssigkeit .....	102
5.4.1 Einfluss der Flüssigkeitsbelastung auf die Verweilzeitverteilung .....	102
5.4.2 Einfluss der Gasbelastung auf die Verweilzeitverteilung .....	107
5.4.3 Messung der Verweilzeit mittels Flüssigkeitsimpulsen.....	109
5.4.4 Vergleich der Messmethoden.....	111
5.4.5 Vergleich des aus Verweilzeiten berechneten Hold-ups mit direkten Messwerten .....	112
5.4.6 Mögliche zukünftige Untersuchungen .....	116
5.5 Zusammenfassung der experimentellen Ergebnisse.....	117



<b>6 Evaluierung der Stofftransportmodelle und der berechneten Trennleistung .....</b>	<b>119</b>
6.1 Anwendung der Korrelation von O'Connell für Bodenkolonnen auf die Ergebnisse .....	119
6.2 Vergleich des experimentellen Hold-up mit Ergebnissen der Stofftransportmodelle .....	121
6.3 Vergleich der experimentellen Trennleistung mit den Stofftransportmodellen .....	123
6.3.1 Diskussion der berechneten HETP-Werte .....	123
6.3.2 Diskussion von benetzter Fläche und Stoffübergangskoeffizienten .....	126
6.3.3 Anteil des Stoffübergangswiderstandes der flüssigen Phase .....	130
6.4 Evaluierung der Modellierung .....	132
6.4.1 Einfluss der Packungsgeometrie .....	132
6.4.2 Auswirkung von Modifikationen der verwendeten Korrelationen .....	133
6.5 Zusammenfassung der Modellierung .....	135
<b>7 Zusammenfassung, kritische Würdigung und Ausblick .....</b>	<b>136</b>
7.1 Zusammenfassung .....	136
7.2 Kritische Würdigung und Ausblick .....	138
<b>8 Literaturverzeichnis .....</b>	<b>140</b>
<b>9 Anhang .....</b>	<b>149</b>
9.1 Bestimmung der Gemischzusammensetzungen .....	149
9.1.1 Chlorbenzol/Ethylbenzol .....	149
9.1.2 2-Methyl-2-butanol/2-Methyl-1-propanol .....	149
9.2 Daten zur Auswahl eines viskosen Stoffsystems .....	151
9.3 Korrelationen zur Berechnung der Reinstoff- und Gemischeigenschaften .....	152
9.3.1 Reinstoffdampfdrücke und VLE-Verhalten der binären Gemische .....	152
9.3.2 Verdampfungsenthalpien .....	153
9.3.3 Dichte der Flüssigkeiten .....	154
9.3.4 Dichte des Dampfes .....	155
9.3.5 Viskosität der Flüssigkeit .....	156
9.3.6 Viskosität des Dampfes .....	157
9.3.7 Oberflächenspannung .....	158
9.3.8 Wärmekapazitäten der Flüssigkeiten .....	159
9.4 Messunsicherheiten .....	159
9.4.1 Messunsicherheit der Sattdampfdrücke .....	161
9.4.2 Messunsicherheit Trennfaktoren $\alpha_{12}$ der Gemische CB/EB und MB/MP .....	162
9.4.3 Messunsicherheit des HETP-Wertes .....	163
9.4.4 Messunsicherheit der Messung der Dichte .....	164
9.4.5 Messunsicherheit der Messung der Viskosität .....	165
9.5 Bewertung der Messunsicherheit der VLE-Daten .....	166
9.5.1 Messunsicherheit der Sattdampfdrücke .....	166
9.5.2 Verhalten und Messunsicherheit der Trennfaktoren der binären Gemische .....	169
9.6 Rohdaten der Trennleistungsmessungen .....	172

## Kurzfassung

In der vorliegenden Arbeit wird der Einfluss der Viskosität der flüssigen Phase auf die Leistungsfähigkeit von Rektifikationskolonnen untersucht. Am Beispiel von zwei strukturierten Packungen mit unterschiedlicher Geometrie wurden Trennleistungsmessungen mit zwei binären Testgemischen mit niedriger und hoher Viskosität durchgeführt und für beide Gemische der Einfluss der Gasbelastung bei Drücken zwischen 20 mbar und 950 mbar gemessen. Die Bewertung der gefundenen Effekte bedarf dabei der ganzheitlichen Betrachtung aller Einflussfaktoren. Dies sind neben der Packungsgeometrie, der betrieblichen Variablen Gas- und Flüssigkeitsbelastung die stofflichen Eigenschaften Viskosität, Dichte, Oberflächenspannung und das Dampf-Flüssig-Gleichgewicht (VLE) der aufgetrennten Mischungen.

Um den bisher nicht bzw. unzureichend untersuchten Einfluss der Viskosität auf die Trennleistung und die Fluidodynamik von Rektifikationskolonnen zu bestimmen, wurden zunächst Messungen mit dem niedrigviskosen Gemisch Chlorbenzol/Ethylbenzol (CB/EB) durchgeführt. Genauer wurden der Druckverlust, der Hold-up der Flüssigkeit und die Kapazität der Kolonne gemessen. Die Ergebnisse stimmen trotz der Versuchsdurchführung im Miniplantmaßstab gut mit Literaturwerten überein. Im zweiten Schritt wurde ein binäres Stoffsystem gesucht und ausgewählt, welches die Anforderungen an ein Testgemisch zur Trennleistungsbestimmung erfüllt und ohne Zugabe nicht verdampfbarer Komponenten eine erhöhte Viskosität aufweist. Die Eigenschaften des gewählten Gemisches 2-Methyl-2-butanol/2-Methyl-1-propanol (MB/MP) wurden bezüglich VLE, Viskosität und Dichte experimentell bestimmt und modelliert. Anschließend wurde die Trennleistung und Fluidodynamik der Kolonne mit den bereits zuvor verwendeten strukturierten Packungen vermessen. Um tiefergehende Erkenntnisse bezüglich der Wirkungszusammenhänge zwischen den Einflussfaktoren, der Fluidodynamik und Trennleistung zu ermöglichen, wurden weiterhin der statische und dynamische Hold-up der Kolonne und die Verteilung der Verweilzeit der flüssigen Phase bei verschiedenen Bedingungen bestimmt. Abschließend wurde eine Modellierung der Trennleistung unter Berücksichtigung des Maßstabs der Kolonne durchgeführt, um gefundene Effekte besser bewerten zu können.

Insgesamt konnte mit steigender Viskosität der flüssigen Phase eine signifikante Zunahme des HETP-Wertes um 50 % gegenüber dem für CB/EB erhaltenen Wert nachgewiesen werden. Dabei erlaubte die ausgeprägte Zunahme der Viskosität für niedrige Siedetemperaturen bei MB/MP bei gleichem Verhältnis der übrigen Stoffeigenschaften in Relation zu CB/EB eine eindeutige Zuordnung des Effektes. Durch vereinfachende Annahmen des Strömungsverhaltens von Gas- und Flüssigphase war eine teils gute Voraussage der Trennleistung mit Stofftransportmodellen für den Stoffübergang möglich. Von drei evaluierten Modellen zeigte ohne Modifikationen nur das Delft-Modell eine gute Vorausberechnung des Einflusses der Viskosität. Mit Hilfe der Modelle konnte gezeigt werden, dass für die richtige Bestimmung der Trennleistung bei hoher Viskosität die Berechnung des flüssigkeitsseitigen Stoffübergangskoeffizienten  $k_L$  entscheidend ist. Dessen Anteil steigt auf bis zu 50 % des gesamten Stofftransportwiderstandes.



## Abstract

In this thesis the influence of liquid viscosity on the performance of distillation columns is investigated. In detail, two structured packings with different geometry are applied in the measurement of separation efficiency, using binary test mixtures with low and increased viscosity. For both mixtures and packings the impact of gas load is determined at pressures from 20 mbar to 950 mbar. To evaluate the effects found in the experiments, an integral assessment of all variables is needed. These variables are the packing geometry, the operational variables gas and liquid load and the physical properties viscosity, density, surface tension and the vapor-liquid-equilibrium (VLE) of the mixtures under investigation.

To determine the impact of viscosity on separation efficiency and fluid dynamics, which has not or only insufficiently been investigated up to now, first experiments with a low viscous test mixture, chlorobenzene/ethylbenzene (CB/EB), were conducted. In detail, besides the HETP the pressure drop, the liquid hold-up and the capacity were determined. The results are in good agreement with literature values although experiments were conducted with a column in miniplant scale. In the next step, a screening for a binary mixture with increased liquid viscosity was conducted. The chosen mixture 2-Methyl-2-butanol/2-Methyl-1-propanol (MB/MP) meets the requirements of distillation test mixtures without using non-volatile components, such as polymers, to increase viscosity. For the pure substance and the mixture the viscosity, density and VLE were measured and modelled. Subsequently, the separation efficiency and fluid dynamics of the distillation column were determined for the structured packings used with CB/EB before. To enable more fundamental insights into the relations and interrelation between the variables, fluid dynamics, separation efficiency and further characteristic values have been measured. These are the static and the dynamic liquid hold-up of the packings and the residence time distribution of the liquid phase. Finally, the separation efficiency was modelled. Hereby, the geometrical characteristics of the miniplant scale were taken into account to improve the assessment of the experimentally found effects.

In conclusion, a significant decrease of separation efficiency was detected for increasing viscosity. This decrease corresponds to an increase of the HETP by 50 % in comparison to the results obtained for CB/EB. In this regard, the pronounced increase of viscosity of MB/MP for low boiling temperatures, accompanied with a rather constant ratio of the other physical properties, enables a reliable assignment of the results to the impact of viscosity. Adopting simplifications for the flow behaviour of the liquid and gas phase, the evaluated mass-transfer models gave varying results for the separation efficiency. Only one of the three applied models, the Delft-model, gave good estimations in comparison with the experimental results. However, the models could be used to show that the correct determination of separation efficiency depends on the calculation the liquid side mass transfer coefficient  $k_L$ . The contribution of  $k_L$  rises up to 50 % of the whole mass transfer resistance at increased viscosity.



## Symbol und Abkürzungsverzeichnis

### Lateinische Formelzeichen

$a_P$	spezifische Oberfläche der Packung	$\text{m}^2 \text{m}^{-3}$
$a_{\text{eff}}$	benetzte Oberfläche der Packung, Analogon zu Phasengrenzfläche	$\text{m}^2 \text{m}^{-3}$
$a_i$	Assoziationsfaktor der Komponente $i$ zur Berechnung von $D_{12,L}$	–
$b$	Basislänge der Wellung einer strukturierten Packung	$\text{m}$
$c_{\text{Tracer}}$	Tracerkonzentration	$\text{mol m}^{-3}$
$c_p$	Wärmekapazität	$\text{kJ kg}^{-1} \text{K}^{-1}$
$D_{12}$	Diffusionskoeffizient	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
$d$	Durchmesser	$\text{m}$
$E_{\text{OGM}}$	Bodenwirkungsgrad einer Bodenkolonie	%
$f(t)$	Verweilzeitdichtefunktion	$\text{s}^{-1}$
$F(t)$	Verweilzeitsummenfunktion	–
$F_G$	Gasbelastungsfaktor	$\text{Pa}^{0,5}$
$F'_s$	empirischer Faktor in SRP-Modell für statischen Hold-up	–
$F_{se}$	empirischer Faktor in SRP-Modell für benetzte Fläche	–
$F_t$	empirischer Faktor in SRP-Modell für gesamten Hold-up	–
$g$	Schwerebeschleunigung	$9,81 \text{ m s}^{-2}$
$\Delta g_{ij}$	Wechselwirkungsenergie, Parameter der NRTL-Gleichung	$\text{J mol}^{-1}$
$H_P$	Höhe des Packungsbettes	$\text{m}$
$h$	Höhe der Wellung einer strukturierten Packung	$\text{m}$
$h_L$	Hold-up der Flüssigkeit, volumetrisch	$\text{m}^3_{\text{L}} \text{m}^{-3}_{\text{P}}$
$h_{PE}$	Höhe eines Packungselementes	$\text{m}$
$\Delta h_{LG}$	Verdampfungsenthalpie	$\text{kJ kg}^{-1}$
$HTU_G$	Höhe einer gaseitigen Übergangseinheit	$\text{m}$
$HTU_{Go}$	Höhe einer Übergangseinheit, bezogen auf die Gasphase	$\text{m}$
$HTU_L$	Höhe einer flüssigkeitsseitigen Übergangseinheit	$\text{m}$
$K$	Gleichgewichtskonstante	–
$k$	Stoffübergangskoeffizient	$\text{m s}^{-1}$
$L$	Länge	$\text{m}$
$L_{G,PE}$	Länge des Strömungsweges der Gasphase durch die Packung	$\text{m}$
$L_P$	Linienlänge der Packung im Kolonnenquerschnitt	$\text{m}$
$M$	Stabilisierungsindex	$\text{mN m}^{-1}$
$M_i$	Molekulargewicht der Komponente $i$	$\text{kg kmol}^{-1}$
$n_{th}$	Anzahl theoretischer Stufen	–
$p$	Gesamtdruck, Betriebsdruck	$\text{bar}$
$p_i^0$	Sattdampfdruck der Komponente $i$ einer Mischung	$\text{bar}$
$\Delta p/\Delta z$	spezifischer Druckverlust für Korrelation zur Berechnung des Hold-up	$\text{Pa m}^{-1}$
$R$	Allgemeine Gaskonstante	$8,314 \text{ J mol}^{-1} \text{K}^{-1}$
$r$	Radius	$\text{m}$
$s$	Seitenlänge der Wellung einer strukturierten Packung	$\text{m}$
$s_0$	Seitenlänge der Wellung einer strukturierten Packung orthogonal zur Wellung	$\text{m}$



$T$	Temperatur	K
$T_k$	kritische Temperatur	K
$t$	Zeit	s
$t_i$	charakteristischer Punkt der Verweilzeitverteilung	s
$t_m$	mittlere Verweilzeit	s
$U$	Spannung	V
$u$	Geschwindigkeit der Gas- / Flüssig-Phase	$\text{m s}^{-1}$
$u_c$	Kombinierte Standardmessunsicherheit	entspr. Messgröße
$V$	Volumen	$\text{m}^3$
$\dot{V}$	Volumenstrom	$\text{m}^3 \text{s}^{-1}$
$V_i$	molares Volumen der Komponente $i$ am Normalsiedepunkt	$\text{cm}^3 \text{mol}^{-1}$
$w_L$	Flüssigkeitsbelastung	$\text{m}^3 \text{m}^{-2} \text{h}^{-1}$
$x_i$	Molanteil der Komponente $i$ in der flüssigen Phase	$\text{mol}_i \text{mol}^{-1}_{\text{ges}}$
$y_i$	Molanteil der Komponente $i$ in der dampfförmigen Phase	$\text{mol}_i \text{mol}^{-1}_{\text{ges}}$
$z$	Laufhöhe in Kolonnenachse, beginnend am Kopf	m

### Griechische Formelzeichen

$\alpha_{12}$	Trennfaktor, relative Flüchtigkeit	—
$\bar{\alpha}_{12}$	geometrisch gemittelter Trennfaktor	—
$\alpha_{ij}$	Nonrandomness-Parameter der NRTL-Gleichung	—
$\alpha$	Neigungswinkel der Wellung einer strukturierten Packung	$^\circ$
$\alpha_{\text{eff}}$	Fließwinkel der Flüssigkeit entsprechend der Falllinie	$^\circ$
$\gamma_i$	Aktivitätskoeffizient	—
$\delta_L$	Filmdicke der Flüssigkeit	m
$\varepsilon$	Porosität	$\text{m}^3 \text{m}_p^{-3}$
$\eta$	Dynamische Viskosität	mPas
$\Theta$	Kontaktwinkel zwischen Flüssigkeit und Oberfläche	$^\circ$
$\Theta_t$	Dimensionslose Verweilzeit	—
$\vartheta$	Temperatur	$^\circ\text{C}$
$\lambda$	Strippingfaktor	—
$\zeta_{GL}$	Reibungskoeffizient der Gasphase	—
$\rho$	Dichte	$\text{kg m}^{-3}$
$\sigma$	Oberflächenspannung	$\text{mN m}^{-1}$
$\tau_{ij}$	Dimensionsloser Wechselwirkungsparameter im NRTL-Modell	—
$\Phi_{ij}$	Faktor zur Berechnung der Viskosität von Gasgemischen	—
$\varphi$	Flüssigkeitsbenetzter Anteil des Querschnittes in Strömungskanal	—
$\Omega$	Flächenanteil der Lochung der strukturierten Packung	—

### Allgemeine Indices

1	tiefer siedende Komponente in binärem Gemisch
2	höher siedende Komponente in binärem Gemisch
$b$	Siedezustand (boiling point)
$\text{dyn}$	dynamischer Anteil des Hold-up



<i>e</i>	effektive Geschwindigkeit von Flüssig- und Dampfphase
<i>G</i>	Bezug auf Gas / Dampf
<i>g</i>	gravimetrisch, Massenanteil
<i>h</i>	hydraulisch
<i>i</i>	Nummer der Komponente eines Gemisches
<i>K</i>	Kolonne
<i>k</i>	kritische Temperatur
<i>L</i>	Bezug auf Liquid, Flüssigkeit
<i>lam</i>	laminar
<i>o</i>	oberes Ende eines Kolonnensegmentes
<i>P</i>	Packung
<i>PE</i>	Packungselement
<i>s</i>	Leerrohrgeschwindigkeit (superficial)
<i>stat</i>	statischer Teil des Hold-up
<i>turb</i>	turbulent
<i>u</i>	unteres Ende eines Kolonnensegmentes
<i>V</i>	Bezug auf Dampf

**Dimensionslose Kennzahlen**

Bo	Bodensteinzahl	$u L D_{ax}^{-1}$
Ca	Kapillarzahl	$\eta u \sigma^{-1}$
Eo	Eötvös-Zahl	$\rho g r^2 \sigma^{-1}$
Fr	Froude-Zahl	$u^2 g^{-1} L^{-1}$
Re	Reynolds-Zahl	$\rho u L \eta^{-1}$
We	Weber-Zahl	$\rho u^2 L \sigma^{-1}$
Sc	Schmidt-Zahl	$\eta \rho^{-1} D_{12}^{-1}$
Sh	Sherwood-Zahl	$k L D_{12}^{-1}$

**Abkürzungen**

CB	Chlorbenzol
C6/C7	Testgemisch Cyclohexan/n-Heptan
EB	Ethylbenzol
FRI	Fractionation Research Inc.
GC	Gaschromatograph
HETP	Height equivalent of one theoretical plate, Höhe einer theoretischen Trennstufe
LRF	Liquid resistance fraction, Anteil des Stofftransportwiderstandes am ges. Widerstand
MB	2-Methyl-2-butanol
MP	2-Methyl-1-propanol
PE	Packungselement
PEG	Polyethylenglykol
RL	Rücklauf der Rektifikationskolonne
SRP	Separations Research Program (Austin)
VLE	Vapor-Liquid-Equilibrium, Dampf-Flüssig-Gleichgewicht



# 1 Einleitung

Die Rektifikation ist in der Prozessindustrie die wichtigste Methode für viele Stofftrennungen (Kister, 1992). Das „Arbeitspferd“ der Trennapparate (Fair, 1990) ist jedoch auch eine energieintensive Methode, die aber aufgrund eines sehr hohen volumenspezifischen Stofftransports geringe Apparatekosten verursacht und daher für Trennaufgaben in großskaligen Anwendungen prädestiniert ist (Fair, 1983). In Folge steigender Anforderungen an die Energieeffizienz von Produktionsprozessen auf der einen und dem Druck, bei sinkenden Produktlebenszykluszeiten Investitionen und Betriebskosten zu minimieren auf der anderen Seite, kommt der Auslegung einer Kolonne eine besondere Wichtigkeit zu. Strukturierte Packungen, die seit den 1960er Jahren erfolgreich in Rektifikation und Absorption eingesetzt werden (Spiegel und Meier, 2003), bieten in diesem Kontext eine hohe Trennleistung bei gleichzeitig geringem Druckverlust. Letzterer bestimmt unter anderem die Spreizung der Siedetemperaturen in Sumpf und Kopf der Kolonne und damit die verwendbaren Wärmequellen und Senken in einem Prozess. Daher wird im Rahmen dieser Arbeit für strukturierte Packungen untersucht, welchen Einfluss die Packungsgeometrie, die Betriebsbedingungen und die physikalischen Stoffeigenschaften des zu trennenden Gemisches auf die für eine Auslegung relevanten Parameter haben.

Der Viskosität der flüssigen Phase kommt eine besondere Rolle zu, denn sie beeinflusst Fluidodynamik und Stofftransport und somit Druckverluste, die Kapazität und die Trennleistung einer Kolonne. Dieser Einfluss ist aber im Gegensatz zur Verdampfung wenig untersucht und in der freien Literatur sind vorrangig Daten für die Trennung niedrigviskoser Gemische vorhanden (Böcker und Ronge, 2005). Für die optimale Auslegung einer Kolonne muss aber die Leistung der trennwirksamen Einbauten für das jeweilige Stoffsystem und die Betriebsbedingungen bekannt sein. Insbesondere für Anwendungen wie die Reaktivdestillation müssen der Flüssigkeitsinhalt der Kolonne und die Trennleistung genau berechnet werden können. Dabei kann eine erhöhte Viskosität auftreten, wenn zum Beispiel (Bio-) polymerhaltige Gemische getrennt werden, Partikel enthalten sind oder ionische Flüssigkeiten als homogener Katalysator oder Entrainer eingesetzt werden.

Grundsätzlich erfolgt die Auslegung von Kolonnen durch experimentelle Messwerte oder die Berechnung mit Stofftransport- und Druckverlustmodellen. Letztere liefern nach (Schultes, 2013) jedoch nur für solche Einbauten und Bedingungen verlässliche Ergebnisse, für die sie entwickelt wurden und wenn die Stoffeigenschaften im industriellen Einsatz nicht zu stark von denen der Testgemische abweichen, die zur Modellvalidierung genutzt wurden. Weichen die Prozessbedingungen von denen der Validierung ab, sind Technikumsversuche notwendig. Ziel dieser Arbeit ist es daher, den Einfluss erhöhter Viskosität auf die Trennleistung von strukturierten Packungen zu bestimmen und damit eine Datengrundlage für die Überprüfung und ggf. für die Verbesserung von Stofftransportmodellen zu liefern.

Da die Wirkungszusammenhänge von Stoffeigenschaften, Packungsgeometrie, Betriebsbedingungen, fluidodynamischen Phänomenen und Stofftransport vielfältig sind, ist ein breiter Betrachtungsansatz notwendig. Ein wichtiger Aspekt ist die für den Stofftransport zur Verfügung stehende Phasengrenzfläche. Viele Untersuchungen hierzu wurden für regellose Schüttungen (Onda et al., 1968; Shi und Mersmann, 1985) mit wässrigen System durchgeführt. Es ist zu hinterfragen, ob die für wässrige Systeme entwickelten Korrelationen die Benetzung mit



organischen Lösungsmitteln bei der Rektifikation richtig abbilden. Ein weiterer Punkt ist das Auftreten verschiedener Strömungsformen in den Packungen. Wie in (Janzen et al., 2013) mittels Computertomographie gezeigt wurde, beeinflussen Viskosität und Flüssigkeitsbelastung den Anteil dieser Strömungsformen, die unterschiedliche Beiträge zum Stoffübergang leisten. In den etablierten Stofftransportmodellen für Packungen (Billet und Schultes, 1995; Olujić et al., 2004; Rocha et al., 1993, 1996) wird von der Benetzung der Oberfläche durch eine kontinuierliche Filmströmung mit gleichmäßiger Dicke ausgegangen. Dies entspricht aber zumindest für geringe Flüssigkeitsbelastungen nicht den realen Vorgängen (Bradt Müller et al., 2015). Weiterhin wird der gasseitige Stoffübergang vielfach durch Korrelationen in Analogie zur Strömung durch gerade Kanäle wie in „wetted wall column“ Experimenten modelliert. Die von (Rejl et al., 2015) gefundenen Abhängigkeiten von der Gasgeschwindigkeit zeigen jedoch Abweichungen von der zu Grunde liegenden Modellvorstellung.

Die Validierung von Stofftransportmodellen (Fair et al., 2000; Olujić et al., 2013, 2015; Olujić und Seibert, 2014) erfolgt vorzugsweise in Rektifikationskolonnen mit großem Durchmesser und mit wenigen, niedrigviskosen Standardtestgemischen (Onken und Arlt, 1990; Ottenbacher et al., 2011). Die in der Literatur für erhöhte Viskosität vorliegenden Daten lassen nur bedingt Rückschlüsse zu, da diese in Absorptionsversuchen mit wässrigen Gemischen (Hu et al., 2013; Song et al., 2014) bzw. für Bodenkolonnen (Mahiout und Vogelpohl, 1985, 1986, 1987) gemessen wurden. Böcker und Ronge (2005) untersuchten das Gemisch Chlorbenzol/Ethylbenzol (CB/EB) unter Zugabe eines Polymeres zur Erhöhung der Viskosität und stellten eine starke Abnahme der Trennleistung fest. Die Messung der Trennleistung unter totalem Rücklauf ist so aber nicht mehr möglich und es müssen große Mengen Chemikalien eingesetzt werden. Ein binäres Testgemisch mit erhöhter Viskosität der flüssigen Phase zur Untersuchung der Vorgänge bei der Rektifikation lag zu Beginn dieser Arbeit jedoch nicht vor.

Eine zentrale Aufgabe ist es daher, ein solches Gemisch zu finden und zu charakterisieren. Weiterhin ist es das Ziel den Einfluss der Viskosität auf die Trennleistung und Kapazität von strukturierten Packungen zu quantifizieren und Zusammenhänge herauszuarbeiten. Hierzu wird zunächst in Kapitel 2 der Stand des Wissens bezüglich Trennleistungsmessungen, dem Einfluss von Stoffeigenschaften, Packungsgeometrie, Gas- und Flüssigkeitsbelastung und weiteren Faktoren dargestellt. Weiterhin werden etablierte Stofftransportmodelle zur Berechnung der Trennleistung vorgestellt. Nach der Beschreibung der Versuchsanlage und der verwendeten Methoden in Kapitel 3 wird der Auswahlprozess eines viskosen Testgemisches zur Bestimmung der Trennleistung in Kapitel 4 dargestellt. Die Eigenschaften des ausgewählten Gemisches, wie das Dampf-Flüssig-Gleichgewicht, wurden experimentell bestimmt und werden im Vergleich zum Referenztestgemisch CB/EB diskutiert. Die bereitgestellten Daten ermöglichen Trennleistungsmessungen bei erhöhter Viskosität. Die Ergebnisse der Messung der Trennleistung bei niedriger und erhöhter Viskosität für zwei Packungsgeometrien werden in Kapitel 5 vorgestellt. Weiterhin wird der Einfluss der Viskosität auf den Hold-up der Flüssigkeit und die Verweilzeit untersucht. Nachfolgend werden in Kapitel 6 verschiedene Stofftransportmodelle auf ihre Fähigkeit überprüft die gefundene Änderung des HETP-Wertes bei erhöhter Viskosität vorauszurechnen. In der abschließenden Zusammenfassung werden die einzelnen Erkenntnisse im Kontext betrachtet. In der kritischen Würdigung und dem Fazit werden Verbesserungspotentiale und Handlungsempfehlungen für weiterführende Forschungsaktivitäten abgeleitet.



## 2 Stand des Wissens

Rektifikation ist die Trennung von Stoffgemischen im Gegenstrom von Dampf und Flüssigkeit. Ein Verdampfer am Kolonnensumpf sorgt für die Erzeugung der aufwärts strömenden Dampfphase, ein Kondensator am Kopf der Kolonne kondensiert diesen Dampf. Ein Teil des Destillates wird als sogenanntes Kopfprodukt abgezogen, der Rest wird der Kolonne als Rücklauf wieder zugeführt und strömt schwerkraftgetrieben zum Sumpf. Die Rektifikationskolonne hat dabei die Aufgabe Phasengrenzfläche für den Stoffübergang bereitzustellen. Diese Bereitstellung kann durch verschiedene trennwirksame Einbauten erreicht werden. Zum einen kann auf den Sieb-, Glocken-, oder Ventilböden einer Bodenkolonne Flüssigkeit im Kreuzstrom zum aufwärts strömenden Dampf geführt werden, wobei sich eine Zweiphasenschicht ausbildet. Die Phasengrenzfläche ist durch die Anzahl und Größe der Dampfblasen und Flüssigkeitstropfen gegeben. Alternativ werden in Packungskolonnen regellose Schüttungen aus Füllkörpern oder strukturierte Packungen von Flüssigkeit überströmt und benetzt. Die Dampfphase strömt durch den freien Querschnitt, der nicht von den Füllkörpern und der sie benetzenden Flüssigkeit belegt ist. Der im letzteren Fall auftretende Druckverlust ist gegenüber Bodenkolonnen geringer bzw. können höhere Gasbelastungen eingestellt werden, bevor ein Mitreißen von Tropfen durch die Dampfphase zum Fluten und der sprunghaften Abnahme der Trennleistung führt. Im Rahmen dieser Arbeit werden strukturierte Packungen untersucht. Sie weisen im Vergleich zu Packungen aus Füllkörpern niedrigere Druckverluste bei einer hohen Trennleistung auf.

Für Bodenkolonnen gab O'Connell bereits 1946 eine einfache Korrelation zur Berechnung des Einflusses der Viskosität auf den Bodenwirkungsgrad an, bei der dieser mit dem zunehmenden Produkt aus Trennfaktor und dynamischer Viskosität  $\alpha_{12} \cdot \eta_L$  abnimmt (Schweitzer, 1988). Für Siebbodenkolonnen gibt es ausführliche Untersuchungen von Mahiout und Vogelpohl (Mahiout und Vogelpohl, 1987) im Bereich  $10 < \eta_L < 100$  mPas. Durch Zugabe eines Polymers zu dem Testgemisch Chlorbenzol/Ethylbenzol konnten (Böcker und Ronge, 2005) für eine Packungskolonne eine starke Abnahme der Trennleistung mit steigender Viskosität zeigen. Öffentlich ist aber nur die prozentuale Änderung zugänglich. In anderen Arbeiten wie z.B. von (Hu et al., 2013; Song et al., 2014) wurde mit strukturierten Packungen in Absorptionsversuchen und wässrigen Lösungen gearbeitet. Diese unterscheiden sich jedoch stark in ihren Benetzungseigenschaften vom Verhalten organischer Lösungsmittel bei der Rektifikation. Außerdem wurde mit den sich ändernden Anteilen von Glycerin bzw. Aminen nicht nur die Viskosität, sondern auch die Sorptionseigenschaften der Fluide verändert. Für Packungskolonnen liegt für rektifizierende Systeme zum Einfluss erhöhter Viskosität auf die Trennleistung keine systematische Untersuchung vor.

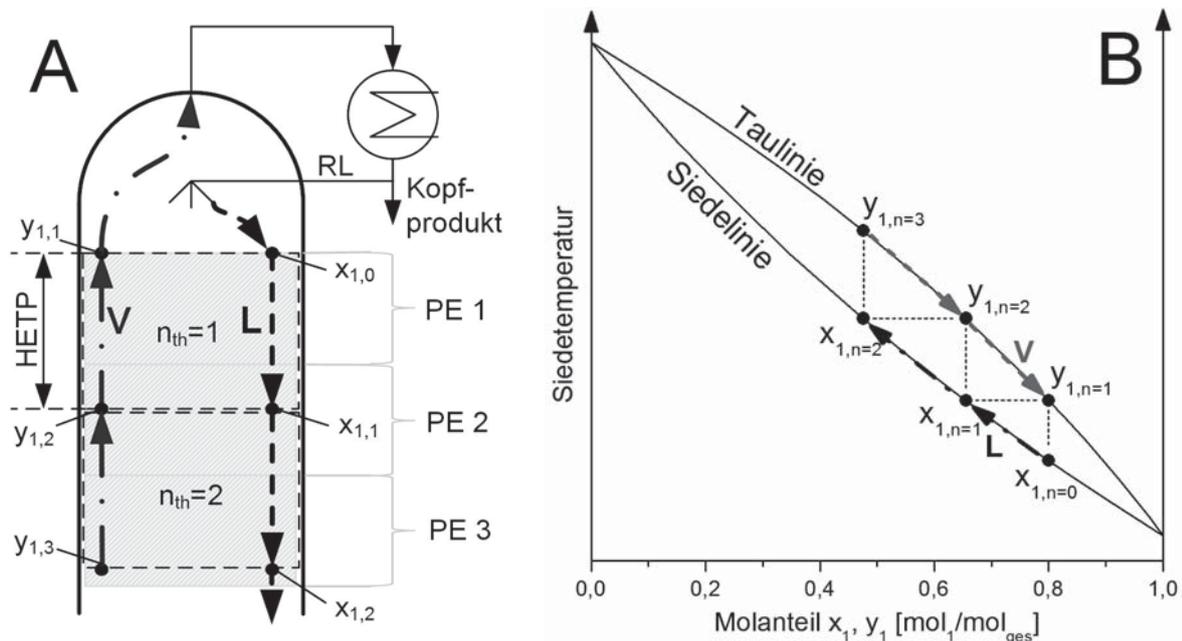
Im Rahmen von Experimenten ist es durch Variation der Gemischkomponenten kaum möglich, ausschließlich die Viskosität der Flüssigkeit zu ändern. Die sich ebenfalls ändernden übrigen stofflichen Eigenschaften wie Dichte und Oberflächenspannung stellen wichtige Einflussfaktoren dar. Des Weiteren hat die Viskosität über den flüssigkeitsseitigen Diffusionskoeffizienten direkt und durch das Verhalten der Flüssigkeitsströmung indirekt Einfluss auf die Trennleistung. Weiterhin beeinflussen die Dichte und die Oberflächenspannung die Fluiddynamik. Die Bewertung des Einflusses der Viskosität bedarf deshalb einer ganzheitlichen Betrachtung vieler Vorgänge. Daher werden zunächst die Vorgänge in einer Kolonne im Allgemeinen



und in strukturierten Packungen im Speziellen betrachtet. Anschließend werden die Stoffe und Testgemische diskutiert, die zur Bewertung von trennwirksamen Kolonneneinbauten verwendet werden. Daraufhin werden der Stand des Wissens bezüglich der Messung von Trennleistung und Fluidodynamik in Packungen sowie relevante Einflussgrößen betrachtet. Ein weiterer Zugang für die Analyse und das Verständnis der Vorgänge ist die Bestimmung der Verweilzeit in Kolonnen. Abschließend werden mehrere etablierte Stofftransportmodelle vorgestellt und verglichen, die später auf die experimentellen Ergebnisse für ein niedrig und ein viskoses Testgemisch angewendet werden.

## 2.1 Stofftrennung mittels Rektifikation

Wie bereits dargelegt wurde, beruht die Stofftrennung mittels Rektifikation auf dem Gegenstrom von Dampf- und Flüssigphase eines Gemisches aus Komponenten mit unterschiedlicher Flüchtigkeit. Dieser Vorgang ist in Abbildung 2.1 schematisch dargestellt. Unabhängig von der Art der verwendeten Kolonneneinbauten ist zwischen den physisch vorhandenen Baueinheiten, wie einem Boden oder einem Packungselement (PE), und den theoretischen Gleichgewichtsstufen zu unterscheiden. Abbildung 2.1 A zeigt den Kopf einer mit strukturierten Packungen ausgerüsteten Kolonne. Bei totaler Kondensation entspricht die Zusammensetzung des Kondensates (L)  $x_{1,0}$  der des Dampfes (V)  $y_{1,1}$ . Dabei referenziert der erste Index die niedrigsiedende Komponente 1 eines binären Gemisches und der zweite Index die theoretische Stufe. Der Dampfstrom  $y_{1,1}$  und der Flüssigkeitsstrom  $x_{1,1}$  stehen zueinander im stofflichen Gleichgewicht und verlassen die erste theoretische Stufe  $n_{th} = 1$ .



**Abbildung 2.1:** A: Schematische Darstellung des Gegenstroms von Dampf und Flüssigkeit in einer Rektifikationskolonne; B: Darstellung der resultierenden Molanteile an den Übergängen der theoretischen Stufen im T-xy-Diagramm

Wie Abbildung 2.1 B zeigt, weisen nach dieser idealisierten Vorstellung die sich in einem Querschnitt begegnenden Stoffströme die gleichen Molanteile auf. Die Triebkraft für den Stofftransport über die Phasengrenze ist durch das Dampf-Flüssig-Gleichgewicht (VLE) bedingt,



welche im Diagramm optisch durch den vertikalen Abstand von Tau- und Siedelinie beschrieben wird. Die Höhe einer theoretischen Stufe bzw. der HETP-Wert (Height equivalent to one theoretical plate) ist an der Position erreicht, an der die flüssige Phase die Zusammensetzung  $x_{1,1}$  hat, die mit  $y_{1,1}$  im thermodynamischen Gleichgewicht steht. In einem Querschnitt hat der Dampf somit eine höhere Temperatur als die Flüssigkeit. Es kommt daher zu Wärme- und Stofftransport. Die flüssige Phase nimmt Wärme vom heißeren Dampf auf, wobei eine gewisse Menge Dampf kondensiert. Das Kondensat enthält einen größeren Anteil der hochsiedenden Komponente, wodurch der Niedersieder im weiter aufsteigenden Dampf aufkonzentriert wird. Analog führt der Wärmeübergang im Falle der Flüssigkeit zu einer Temperaturzunahme und zu einer Verdampfung. Dieser Dampf enthält mehr Niedersieder als die verbleibende Flüssigkeit. Dieser Vorgang wird in Abbildung 2.1 B durch die auf den Gleichgewichtslinien verlaufenden gestrichelten und strichpunktierten Pfeile dargestellt.

Der in der Kolonne herrschende Absolutdruck  $p_{ges}$  kann für Versuche im Vakuum durch Kombination der Gesetze von Dalton und Raoult berechnet werden ( $p_i = p_{ges} \cdot y_i$ ). Gl. 2.1 zeigt die um die Aktivitätskoeffizienten  $\gamma_1$  und  $\gamma_2$  erweiterte Form zur Berücksichtigung von Nichtidealitäten der flüssigen Phase.

$$p_{ges} = p_1 + p_2 = \gamma_1(x_1, T_b) \cdot x_1 \cdot p_1^0(T_b) + \gamma_2(x_1, T_b) \cdot x_2 \cdot p_2^0(T_b) \quad \text{Gl. 2.1}$$

Es sei darauf hingewiesen, dass im weiteren Verlauf im Zusammenhang mit VLE-Daten von Dampf gesprochen wird. In Bezug auf die Strömung des Dampfes durch die Packung, die dabei auftretenden Druckverluste, die Turbulenz in der Phase etc. werden jedoch, im Einklang mit dem üblichen Sprachgebrauch, die Begriffe Gasphase und Gasbelastung verwendet.

Der Aufwand zur Trennung eines Gemisches wird durch den Unterschied der Zusammensetzung der im Gleichgewicht stehenden Phasen bestimmt (Triebkraft für Stofftransport). Er wird durch den Trennfaktor  $\alpha_{12}$  quantifiziert. Dieser lässt sich allgemein aus dem Quotienten der Gleichgewichtskonstanten  $K_1$  und  $K_2$  bzw. den Molanteilen in Dampf- und Flüssigphase nach Gl. 2.2 berechnen.

$$\alpha_{12} = \frac{K_1}{K_2} = \frac{y_1/x_1}{y_2/x_2} = \frac{\gamma_1(x_1, T_b) \cdot p_1^0(T_b)}{\gamma_2(x_1, T_b) \cdot p_2^0(T_b)} \quad \text{Gl. 2.2}$$

Werden die Molanteile in Dampf- und Flüssigphase entsprechend  $p_i = p_{ges} \cdot y_i$  und Gl. 2.1 ausgedrückt und in Gl. 2.2 eingesetzt, wird die alternative Formulierung des Trennfaktors durch die Satttdampfdrücke und Aktivitätskoeffizienten erhalten. Diese können mit geeigneten Modellen berechnet werden, um somit den Trennfaktor für beliebige Bedingungen zu erhalten. Die Aktivitätskoeffizienten können mit verschiedenen Modellen wie Margules, Wilson, NRTL und UNIQUAC nach Anpassung von Parametern berechnet werden oder mit Gruppenbeitragsmethoden wie UNIFAC abgeschätzt werden (Lüdecke und Lüdecke, 2000).

Durch den Trennfaktor kann mit Hilfe der Fenske-Gleichung (Fenske et al., 1934) für binäre Gemische bestimmt werden, welche Molanteile in der flüssigen Phase  $n$  theoretische Gleichgewichtsstufen oberhalb (Index  $o$ ) der unteren Ebene (Index  $u$ ) in einer Kolonne herrschen.



$$\frac{x_{1,o}}{x_{2,o}} = \alpha^{n_{th}} \frac{x_{1,u}}{x_{2,u}} \quad \text{Gl. 2.3}$$

Umgekehrt kann durch Umstellen von Gleichung Gl. 2.3 nach  $n_{th}$  aus den Molanteilen, die bei einem Versuch gemessen werden, die Zahl der theoretischen Stufen und damit der HETP-Wert von Einbauten bestimmt werden (siehe hierzu Kapitel 3.2.2). Streng genommen ist ein über der Kolonnenhöhe konstanter Trennfaktor die Voraussetzung hierfür.

Die Trennleistung einer Kolonne bzw. ihrer trennwirksamen Einbauten, quantifiziert durch den HETP-Wert, ist die Fähigkeit bei gegebener Bauhöhe möglichst viele theoretische Trennstufen bereitzustellen. Der HETP-Wert ist gering, wenn viel Stofftransport zwischen den Phasen stattfindet. Der Stoffdurchgang nimmt mit der für diesen Vorgang zur Verfügung stehenden Phasengrenzfläche zu. Außerdem bestimmen die Stoffübergangswiderstände auf Dampf- und Flüssigseite den gesamten Stoffdurchgang. Ziel einer Optimierung von Packungen ist es somit möglichst viel benetzte Oberfläche als Phasengrenzfläche zur Verfügung zu stellen und durch geeignete Strömungsführung für eine hohe Durchmischung in den Phasen zu sorgen, um den Stofftransport zu verbessern. Dies stellt ein Optimierungsproblem dar, weil durch feinere Packungsstrukturen mit stärkerer Umlenkung der Gasphase der Druckverlust zunimmt und die maximale Belastung mit Dampf und Flüssigkeit abnimmt.

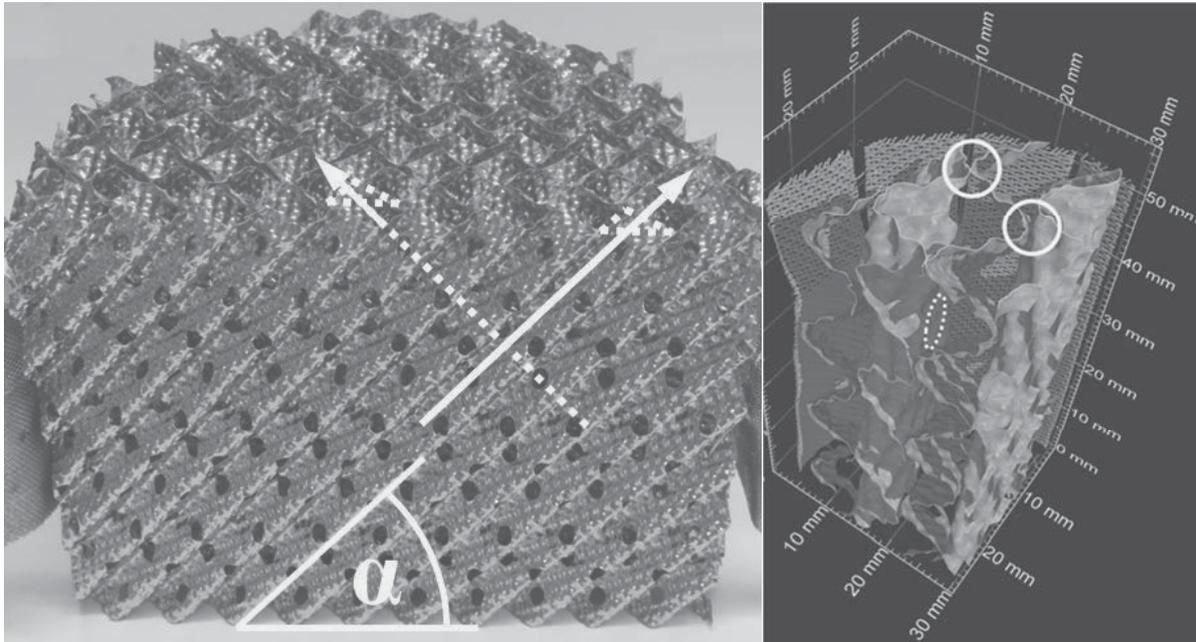
### 2.1.1 Strömungswege und Stofftrennung in strukturierten Packungen

Strukturierte Packungen unterscheiden sich gegenüber aus Füllkörpern bestehenden Schüttungen durch ihre regelmäßige Geometrie. Von Flüssigkeit benetzbare Oberfläche wird zumeist durch eine Faltblattstruktur erzeugt. Wie Abbildung 2.2 zeigt, ist ein Packungselement dabei aus mehreren Lagen gefalteter Bleche aufgebaut. Hersteller dieser Packungen sind Firmen wie Montz, Sulzer, Koch-Glitsch, RVT PE und viele mehr. Charakteristisch für eine Packung ist der Winkel  $\alpha$  zwischen der Wellung und der Vertikalen, dabei sind Werte von  $45^\circ$  und  $60^\circ$  üblich. Eine Packung mit abweichendem Aufbau und guten Stofftransporteigenschaften bei geringem Druckverlust zeigen (Schultes und Chambers, 2007).

Die ersten verfügbaren strukturierten Packungen waren aus Drahtgewebe gefertigt. Später kamen solche aus dünnen Blechen (Mellapak, Montz Pak) hinzu. Etwa seit dem Jahr 2000 sind sogenannte Hochleistungspackungen auf dem Markt, die bei gleicher Trennleistung geringere Druckverluste aufweisen und somit höhere Gasbelastungen und die Erhöhung der Kapazität einer Kolonne bei gleichem Durchmesser ermöglichen (Spiegel und Meier, 2003). Dies wird durch eine lokale Erhöhung des Winkels der Wellung  $\alpha$  an den Übergängen der Packungselemente erreicht. Hierdurch wird der Hold-up der Flüssigkeit in diesem Bereich reduziert und die Umlenkung der Gasphase verringert. In Folge dessen wird der Flutpunkt, das heißt die Gasbelastung, bei der Flüssigkeit aufgestaut wird, zu höheren Werten verschoben. Den strukturierten Packungen ist gemein, dass die Gasphase, wie in Abbildung 2.2 links dargestellt, durch die Dreieckskanäle strömt, die sich durch die Wellung bilden. Damit bestimmt der Winkel  $\alpha$  den Strömungsweg. Dieser wird, wie Abbildung 2.1 zeigt, gegenüber der Strömung vertikal durch einen leeren Kolonnenmantel verlängert. Bei gleicher Leerrohrgeschwindigkeit nimmt dadurch die Strömungsgeschwindigkeit der Gasphase zu. In Folge dessen steigt mit geringeren Winkeln  $\alpha$  die Turbulenz, und der Stoffübergang wird verbessert. In perforierten Packungen, wie der in



Abbildung 2.2 gezeigten Mellapak 500.Y (M500.Y), können Gas- und Flüssigphase aber auch durch die Lochung in einem im Mittel steileren Winkel zur Vertikalen strömen.



**Abbildung 2.2:** Links: Hälfte eines DN 150 Packungselementes (Mellapak 500.Y); Rechts: Schnitt durch ein computertomographisches Bild eines Packungselementes DN50 (Mellapak 500.Y, eigene Messung), Kreise: Kontaktpunkte der Packungslagen, gestricheltes Oval: Berührungsebene der Gasströmung durch Kanäle der Wellung

Unter Vernachlässigung der Perforation entspricht die Gasströmung weitgehend der durch ein Rohr, mit dem hydraulischen Durchmesser als charakteristische Länge. In der Modellierung des Stoffübergangs werden daher die Abhängigkeiten häufig entsprechend den Vorgängen in einer „wettered wall column“ beschrieben (Rejl et al., 2015). Allerdings ist zu beachten, dass jeweils eine Seite der Kanäle offen gegenüber der Strömung durch die Kanäle der benachbarten Lage ist und daher nicht mit Flüssigkeit benetzt ist. Die Strömungsrichtung des Gases im Nachbarkanal verläuft, wie in Abbildung 2.2 für die zweite Lage angedeutet, für  $\alpha = 45^\circ$  mit einem Winkel von  $90^\circ$  gegenüber der ersten Lage. An diesen Kontaktstellen kann von einer Interaktion beider Gasströmungen, einer Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeiten gegenüber einem geschlossenem Rohr und somit einer Erhöhung der Turbulenz ausgegangen werden. Für den Stoffübergang und seine Modellierung stellt sich die Frage, wie der offene, nicht benetzte Teil eines Dreieckskanals gegenüber der Modellvorstellung der wetted wall column zu berücksichtigen ist. Laut Olujić et al. (2012) wird die Übereinstimmung des Modelles mit experimentellen Ergebnissen verbessert, wenn die fehlende Grenzfläche bei der Berechnung der Sherwood-Zahl vernachlässigt wird. Die zu Grunde liegende These ist, dass durch den Gas/Gas-Kontakt zwischen den Kanälen den Stoffübergang entsprechend dem Anteil der offenen Seite eines Kanals am gesamten Umfang verbessert wird.

Wird die flüssige Phase betrachtet, strömt diese in der idealen Vorstellung als Film auf der Packungsoberfläche. Ihr Strömungsweg ist zwar laut Zogg steiler, folgt aber im Wesentlichen dem durch die Geometrie gegebenen Weg (Zogg, 1973). Eine Betrachtung der Strömungsformen der Flüssigkeit erfolgt in Kapitel 2.4. Der durch die Schwerkraft getriebene ablaufende Flüssig-