

MESSUNG HYDRODYNAMISCHER PARAMETER IN MEHRPHASENSTRÖMUNGEN BEI HOHEN DISPERSPHASENGEHALTEN MIT HILFE DER ELEKTRODIFFUSIONSMESSTECHNIK

Dipl.-Ing. S. John; Dipl.-Ing. R. Wilfer; Prof. Dr.-Ing. N. Rübiger

Institut für Umweltverfahrenstechnik, Universität Bremen

1. Einleitung

Die Kenntnis der Hydrodynamik von Dreiphasenströmungen ist eine wesentliche Grundlage zur Auslegung und Berechnung von Suspensionsreaktoren. Hierzu sind Messungen der lokalen Strömungsparameter in mehrphasig betriebenen Reaktoren unerlässlich. Dabei wird in der Praxis bei relativ hohen Dispersphasengehalten gearbeitet, wodurch optische Meßverfahren – insbesondere bei Dreiphasensystemen – wegen der hohen Streuungen und der mangelnden Strahlungsdurchlässigkeit meist versagen. In diesem Einsatzgebiet bieten sich elektrochemische Meßverfahren an, die allein von den Eigenschaften der zu vermessenden kontinuierlichen Phase abhängig sind. Zu diesen Meßverfahren zählt die Elektrodifusionsmeßtechnik (EDM), die auf den Grundlagen der Polarographie an der Universität Dortmund entwickelt wurde und heute am Institut für Umweltverfahrenstechnik der Universität Bremen im Einsatz ist.

2. Meßprinzip

Wird in einer polarographischen Meßzelle zwischen der Kathode und der Anode das anliegende Potential erhöht, stellt sich nach Überschreiten einer Grenzspannung ein Stromfluß ein. Ab einer bestimmten Spannung, wie dem als ΔE_D in **Bild 1** dargestellten Bereich im Polarogramm zu entnehmen ist, wird jedoch keine weitere

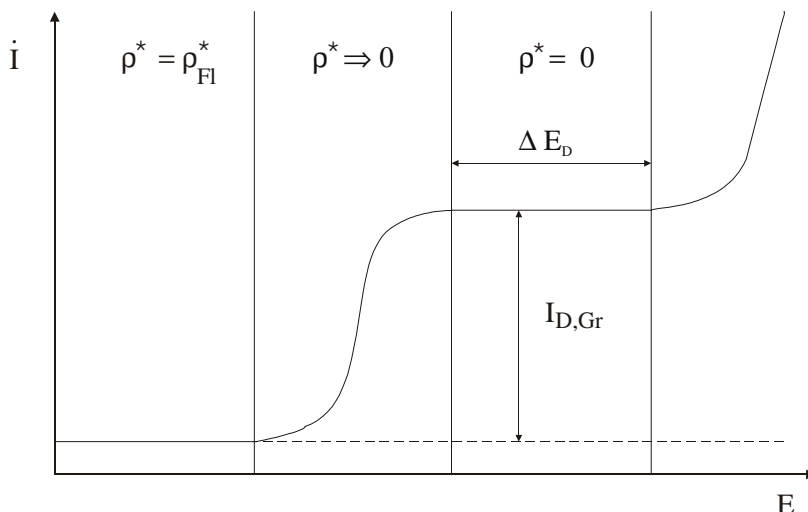


Bild 1: Polarogramm

Zunahme der Stromstärke verzeichnet, da alle an die Elektrodenoberfläche transportierten Ionen direkt reagieren, wodurch die Diffusion die Reaktionsgeschwindigkeit und damit die Stromdichte limitiert. Erst wenn ein wesentlich höheres Potential anliegt, nimmt die Stromdichte aufgrund einer nachgelagerten Reaktion wieder zu.

Die Stromdichte im Bereich der diffusionslimitierten Elektrodenreaktion wird jedoch nicht allein durch die Konzentration von Ionen begrenzt, sondern hängt vor allem von der Dicke der Diffusionsgrenzschicht ab. Nimmt die Dicke der Diffusionsgrenzschicht bei angeströmter

Elektrodenoberfläche und damit konvektiven Stofftransport infolger verringerter Strömungsgrenzschicht ab, so erhöht sich die Stromdichte des Grenzstromplateaus.

Der Zusammenhang zwischen Strömungsgrenzschicht und Diffusionsgrenzschicht an der Elektrodenoberfläche ist aus **Bild 2** schematisch zu ersehen. Über die nach Vielstich [1] geltende Beziehung

$$\delta_N = \delta_{PR} \left(\frac{v}{D} \right)^{-1/3}, \quad \text{Gl. 1}$$

zwischen Nernst'scher Diffusionsgrenzschicht und Prandtl'scher Strömungsgrenzschicht, und mit dem 1. Fickschen Gesetz

$$i_D = z \cdot F \cdot D \cdot \frac{\rho_{Fl}^* - \rho_0^*}{\delta_N} \quad \text{Gl. 2}$$

kann dann, im Bereich des Grenzstromplateaus, aus der Stromdichte auf die Anströmgeschwindigkeit geschlossen werden, sofern die Elektronenkonzentration in der Bulkströmung bekannt ist und die Diffusionsgrenzschicht innerhalb der Strömungsgrenzschicht liegt. Durch den Einsatz einer - im Verhältnis zur Gegenelektrode - kleinen Meßelektrode ist die Stromdichte an der Meßelektrode um ein Vielfaches höher als an der Gegenelektrode, so daß vereinfacht der gesamte Stromfluß auf die Elektrodenreaktion an der Meßelektrode zurückgeführt werden kann.

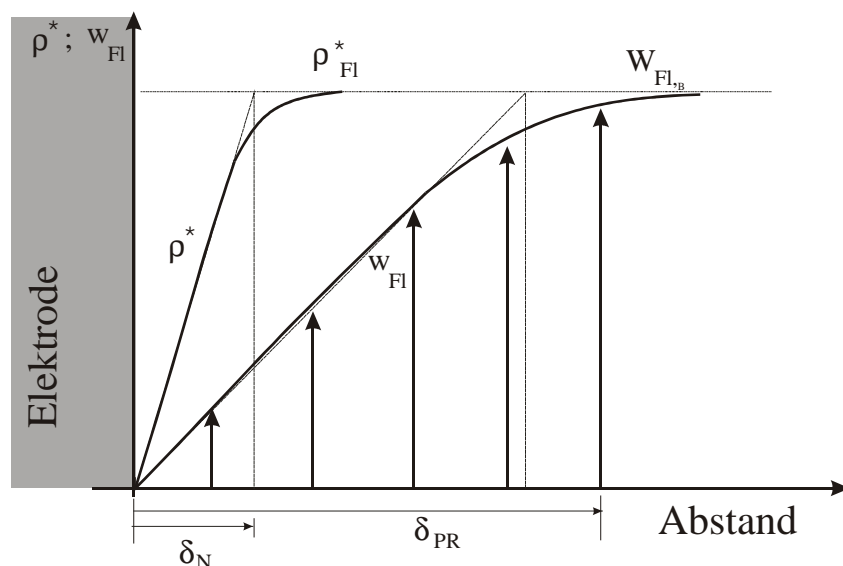


Bild 2: Grenzschichten an der Meßelektrode

Dieser Zusammenhang stellt die Grundlage der Elektrodiffusionsmeß-

technik dar, der anhand der Analogie zwischen Wärme- und Stofftransport über folgenden Zusammenhang von Strom und Anströmgeschwindigkeit [2]

$$I = a + b \cdot w^g \quad \text{Gl. 3}$$

beschrieben werden kann. Dabei müssen die Konstanten a, b und g durch Kalibrierung ermittelt werden [3]. Der Exponent g steht in der Theorie für den Wert 0,5, der jedoch in der Praxis leicht abweichen kann, weshalb hierfür eine nicht-lineare Regression durchgeführt wird.

Die Dreisegment-Sonden der Elektrodendiffusionsmeßtechnik sind zylindrische Körper, in denen sich drei Drähte (Silber, Gold oder Platin) von ca. 100 – 150 µm Durchmesser in einer 120°-Anordnung befinden und die durch Epoxydharz voneinander elektrisch getrennt sind. Der vordere, sensitive Sondenteil (vgl. **Bild 3**) ist zylindrisch abgeschliffen, wodurch die Drähte über eine Länge von 1-2 mm eine freie Oberfläche aufweisen, an der die Elektrodenreaktion stattfindet. Der hintere Teil der Sonden endet, mit den elektrischen Leitungen verknüpft, in einer Glaskapillare, die mit dem Sondenkörper verbunden ist. Die Steckverbindung am Sondenkörper leitet die einzelnen Signale (Segmentströme) an die im Sondenhalter befindlichen Signalleitungen weiter.

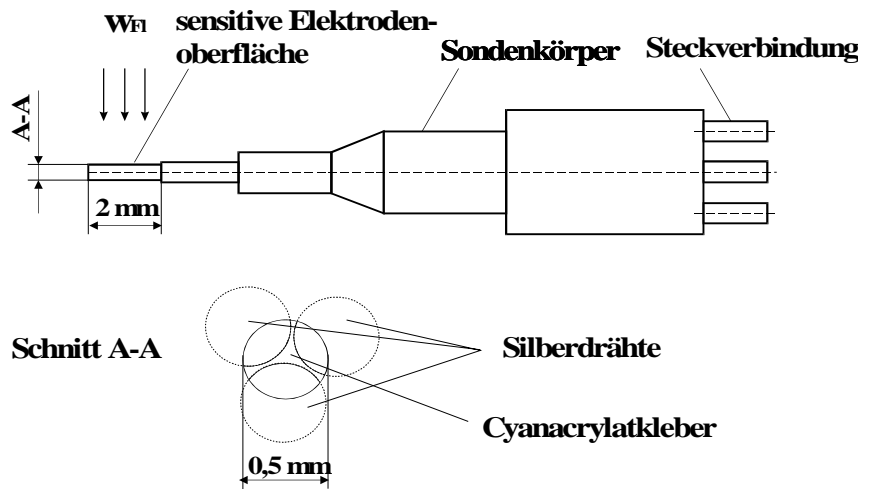


Bild 3: Dreisegment-Sonde

Das Material der Sondensegmente hängt im wesentlichen von den zu detektierenden Strömungsgeschwindigkeiten, dem zu messenden Fluid und dem zum Einsatz kommenden Redoxsystem ab (vgl. [2]).

Das Material der Sondensegmente hängt im wesentlichen von den zu detektierenden Strömungsgeschwindigkeiten, dem zu messenden Fluid und dem zum Einsatz kommenden Redoxsystem ab (vgl. [2]).

Die Kalibrierung von Dreisegment-Sonden erfolgt zur Bestimmung der in Gl. 3 angegebenen Konstanten und der Richtungsabhängigkeit der Segmentströme, um neben der generellen Aussage über die Gesamtströmungsgeschwindigkeit ebenfalls eine zweidimensionale Differenzierung über die Anströmungsrichtung zu ermöglichen.

Im Rahmen der Kalibrierung werden zur Bestimmung der Konstanten (Gl. 3) daher bis zu 13 verschiedene Anströmgeschwindigkeiten mit bis zu 120 cm/s eingestellt und der jeweilige Strom, als Summe der Einzelsegmentströme, aufgezeichnet. In **Bild 4** ist der lineare Zusammenhang zwischen Summenstrom und Anströmgeschwindigkeit dargestellt. Ebenfalls wird für jede Geschwindigkeit die Richtungscharakteristik der Sonden aufgenommen, in dem die Sonde in 40 Schritten um 360° gedreht wird und die einzelnen Segmentströme aufgenommen werden. Hierdurch wird nach entsprechender Auswertung ein für die jeweilige Sonde

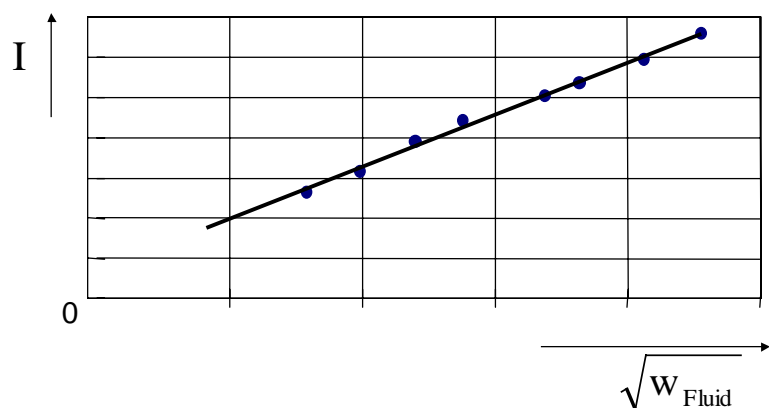


Bild 4: Summenstrom als Funktion der Geschwindigkeit

Hierdurch wird nach entsprechender Auswertung ein für die jeweilige Sonde

charakteristischer Kalibrierdatenfile erstellt, der bei der Auswertung von Meßergebnissen nicht allein die Bestimmung von der Strömungsgeschwindigkeit und Schwankungsgeschwindigkeit ermöglicht, sondern auch eine Differenzierung der Richtungsanteile der Geschwindigkeitskomponenten zulässt.

3. Technischer Einsatz

Die Dreisegment-Sonden der Elektrodifusionsmeßtechnik sind in weiten Bereichen der Ein- und Mehrphasenströmung einsetzbar. Sehr gute praktische Ergebnisse mit dieser Meßtechnik wurden vor allem in Dreiphasenströmungen mit Sauerstoff als Depolarisator erreicht [2,3,4]. Im Gegensatz zu den meisten optischen oder akustooptischen Meßverfahren kann die Elektrodifusionsmeßtechnik auch bei sehr hohen Dispersphasengehalten zuverlässige Meßergebnisse erzielen. Gerade bei einer feststoffbeladenen Strömung, die im Bereich hoher Dispersphasengehalte mit üblichen Meßverfahren schwer oder gar nicht zu erfassen ist, sind für die Elektrodifusionsmeßtechnik durch den ständigen Abrieb Bedingungen gegeben, die dem Fouling und der Alterung an der Sondenoberfläche entgegenwirken, und damit zu einer Erhöhung der Standzeiten führen.

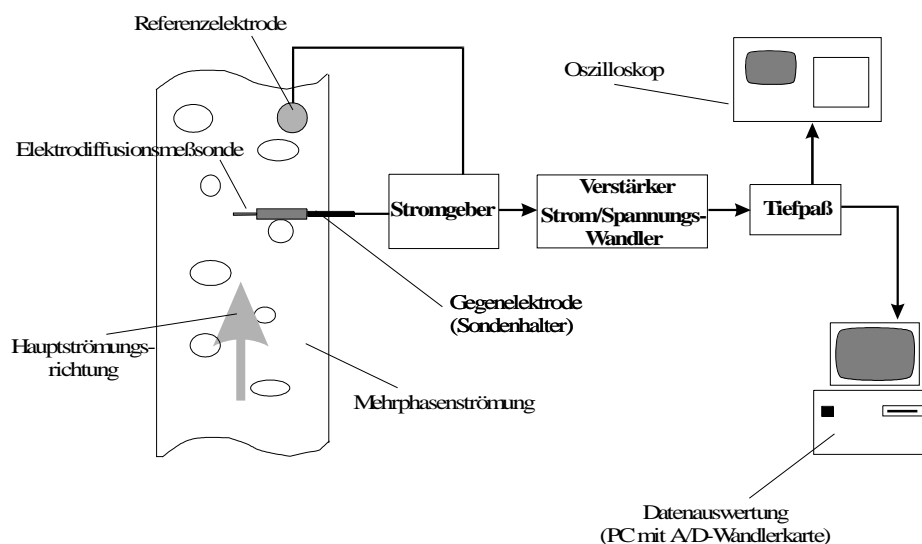


Bild 5: Technischer Einsatz

Die für den praktischen Einsatz übliche Signalerfassung, -leitung und Verarbeitung ist in **Bild 5** dargestellt. Zusätzlich zu dem im Meßschema bereits vorgestellten Elektroden befindet sich hier eine Referenzelektrode im System, die Potentialverschiebungen zwischen Meß- und Gegen-

elektrode entgegen wirken soll. Das Signal wird vor der Auswertung über einen Tiefpassfilter geleitet, wo durch hochfrequente Störungen hervorgerufene Signalanteile herausgefiltert werden können.

Ein speziell in Blasenströmungen auftretendes Problem sind die Signalanteile, die durch das Durchtreten der sensitiven Sondenspitze durch eine Blase hervorgerufen werden. Ein solch charakteristisches Blasensignal ist in **Bild 6** dargestellt, und kennzeichnet den Sondenstrom im Verlauf der Zeit bei dem Durchtreten der Sonde durch eine Blase. Zum Zeitpunkt t_2 taucht die Sonde in die Gasphase ein, der Stromfluß ist unterbrochen bis, zum Zeitpunkt t_3 , die Sonde wieder mit der umgebenden Flüssigkeit in Kontakt kommt. Hier stellt sich nun sprunghaft ein starker Sondenstrom ein, da zur Zeit t_3 die Konzentration von Ionen an der Elektrodenoberfläche der im Medium entspricht bzw. zum Zeitpunkt t_4 abnimmt, da die Nernstsche Diffusionsgrenzschicht wieder aufgebaut wird und zum Zeitpunkt t_5 wieder voll aus-

gebildet ist. Mittels verschiedener Kriterien kann dieses Blasensignal aus den Meßdaten gefiltert werden, um nur die charakteristischen Größen für die flüssige Phase in die Auswertung einzubeziehen.

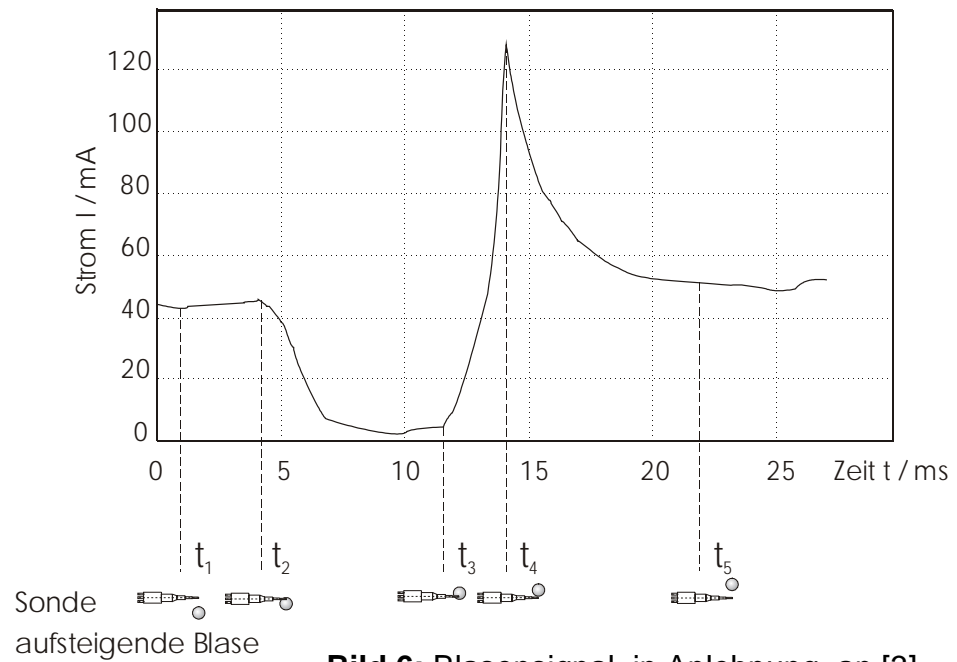


Bild 6: Blasensignal in Anlehnung an [3]

4. Exemplarische Meßergebnisse

Die aus den mit der Elektrodifusionsmeßtechnik gemessenen Daten hervorgehenden Meßgrößen sind im wesentlichen die mittlere Flüssigkeitgeschwindigkeit und die Turbulenzintensität bzw. Schwankungsgeschwindigkeit. Dabei können aufgrund der Richtungsabhängigkeit der Segmentströme die Meßwerte, welche mit Dreisegment-Sonden ermittelt wurden, in zwei Raumrichtungen senkrecht zur Sondenachse differenziert werden.

In **Bild 7** sind Meßwerte für die Flüssigkeitgeschwindigkeit in einer linksseitig begasten Flachapparatur im Vergleich mit optischen Meßtechniken dargestellt.

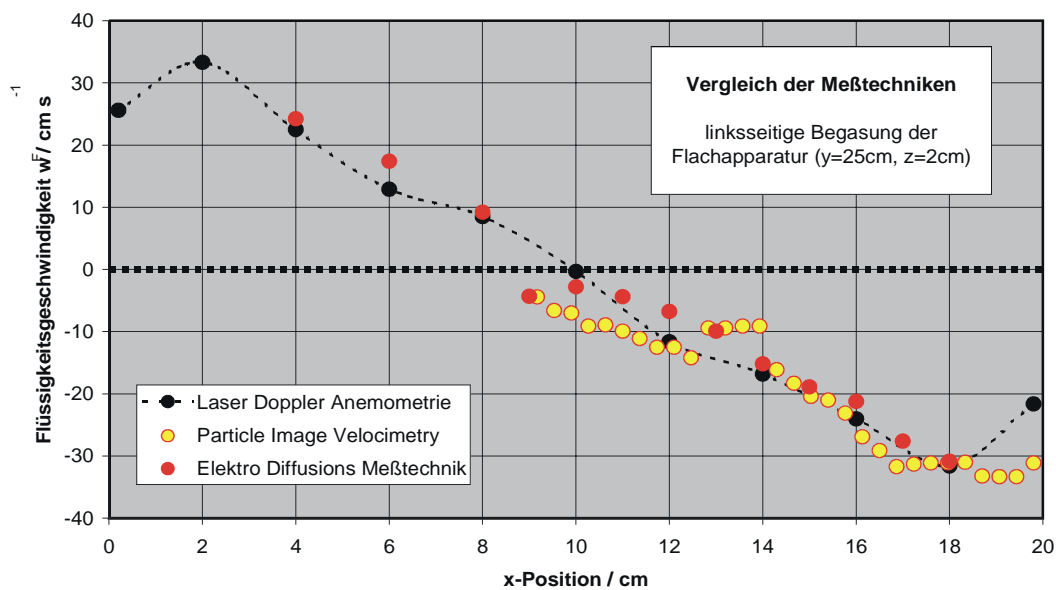
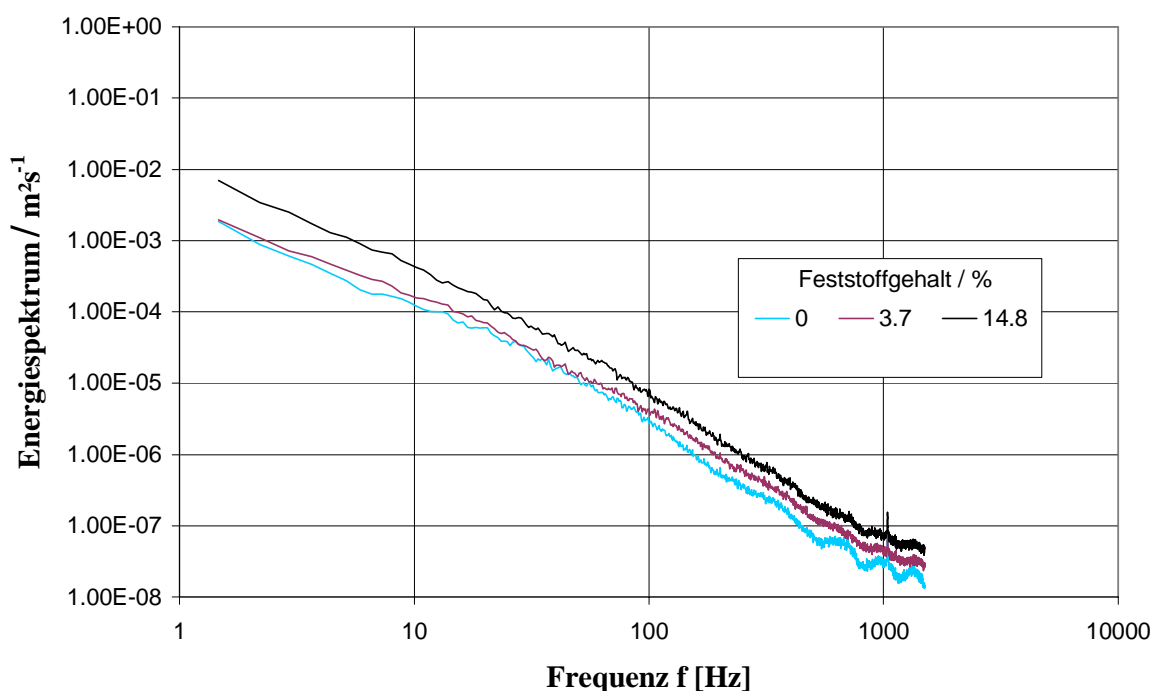


Bild 7: Meßergebnisse in der Flachapparatur

Durch die einseitige Begasung in der Apparatur bildet sich ein großräumiger Wirbel aus, so daß für die linke Hälfte, in der eine Blasenauftriebströmung vorliegt, positive Flüssigkeitsgeschwindigkeiten und in der rechten Hälfte negative Flüssigkeitsgeschwindigkeiten entsprechend der abwärtsgerichteten Strömung vorliegen. Für den hier beschriebenen Anwendungsfall kann der Vergleich die recht gute Übereinstimmung der verschiedenen Meßtechniken sowohl in quantitativer als auch qualitativer Hinsicht deutlich machen. Dabei muß erwähnt werden, daß die hier vorliegende Strömung keine hohen Dispersphasengehalte aufweist.

In **Bild 8** sind die aus den Ergebnissen der Elektrodifusionsmeßtechnik für Dreiphasenströmungen mit verschiedenen Feststoffgehalten ermittelten Energiespektren dargestellt. Diese Energiespektren (turbulente Energiedissipation) wurden



aus den ermittelten Schwankungsgeschwindigkeiten und deren zeitlichen Ableitungen generiert. Qualitativ stimmen die Kurven für die verschiedenen Feststoffgehalte über der Frequenz sehr gut überein. Der jeweilige Anstieg der Energiedissipation mit steigendem Feststoffgehalt ist auf die durch die Suspendierung der Partikeln erhöhte, lokale Energiedissipation zurückzuführen.

5. Zusammenfassung

Neben den verbreiteten optischen Meßtechniken und der Heißfilmanemometrie stellt die Elektrodifusionsmeßtechnik gerade bei hohen Dispersphasenkonzentrationen und/oder bei feststoffbeladenen Strömungen ein überaus geeignetes Meßinstrument zur Ermittlung der interessierenden Parameter wie Fluidgeschwindigkeit, Schwankungsgeschwindigkeit und den daraus generierbaren Größen dar. Die Meßwerte spiegeln jedoch nicht die integralen Parameter, sondern vielmehr die

lokale Hydrodynamik wieder, wodurch Beobachtungen der lokal ablaufenden Wechselwirkungsmechanismen erst möglich werden.

Die Elektrodifusionsmeßtechnik bietet darüber hinaus nicht nur die Grundlagen zur Ermittlung der hydrodynamischen Parameter, sondern kann natürlich auch zur Bestimmung der Depolarisatorkonzentration eingesetzt werden. Gerade in Hinblick auf biologische Systeme konnten hier bereits gute Ergebnisse erzielt werden [4].

6.Literatur

- [1] C. H. Hamann; W. Vielstich
„Elektrochemie“
Wiley-VCH, Weinheim 1998
- [2] J. Pauli
„Einsatz der Elektrodifusionsmeßtechnik in Gas-Flüssigkeits-Strömungen mit Sauerstoff als Depolarisator“
Diss. Universität Dortmund, VDI-Verlag, Düsseldorf 1992
- [3] S. Pannek
„Untersuchung der Elektrodifusionsmeßtechnik mit Sauerstoff als Depolarisator für den Einsatz in Mehrphasenströmungen“
Diss. Universität Dortmund, Shaker Verlag, Aachen 1997
- [4] M. Hainke, K. Ammon, U. Onken
„Simultane Messung von Gelöstsauerstoffkonzentration und Hydrodynamik in aeroben Submersfermentationen“
Chem.-Ing.-Tech.(70) 3 (1998) 299 – 301

7. Zeichen und Indizes

Zeichen

a	Konstante
b	Konstante
D	Diffusionskoeffizient, m ² /s
E	Potential, V
F	Faraday-Konstante, C/mol
F	Frequenz, Hz
g	Konstante
\dot{I}	Stromdichte, A/m ²
I	Strom, A
t	Zeit, s
w	Geschwindigkeit, m/s
z	Anzahl übergehender Elektro- nen
δ	Grenzschichtdicke, m
ν	kin. Zähigkeit, m ² /s
ρ^*	Konzentration, mol/m ³

Indizes

0	An der Elektrodenoberfläche
D	Die Diffusion betreffend
Fl	Das Fluid betreffend
Gr	Den Grenzstrom betreffend
N	Nernst
PR	Prandtl