

Institut für  
Chemische und Thermische  
Verfahrenstechnik

**ICTV**

**ICTV - Schriftenreihe Band 5**

Hrsg. Stephan Scholl und Wolfgang Augustin

# **Institut für Chemische und Thermische Verfahrenstechnik**

## **Institutsbericht 2007 - 2008**



TECHNISCHE UNIVERSITÄT  
**CAROLO-WILHELMINA**  
ZU BRAUNSCHWEIG



**Mitarbeiter des Instituts im November 2008**



<b>Inhaltsverzeichnis</b>		<b>Seite</b>
<b>1</b>	<b>Vorbemerkung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Mitarbeiter</b>	<b>7</b>
2.1	Neue wissenschaftliche MitarbeiterInnen	8
<b>3</b>	<b>Lehre</b>	<b>12</b>
3.1	Vorlesungen	12
3.2	Gemeinsame Vorlesungen der EVT-Institute	17
3.3	Verfahrenstechnisches Praktikum	17
3.4	Seminar für Energie- und Verfahrenstechnik	17
3.5	Studienarbeiten	18
3.6	Diplomarbeiten	19
3.7	Dissertationen	20
3.8	Kolloquium für Energie- und Verfahrenstechnik	20
<b>4</b>	<b>Aktuelle Forschung</b>	<b>22</b>
4.1	Wärme- und Stoffübertragung	22
4.1.1	Untersuchung von dispersen Stoffsystemen in Mikrokomponenten	22
4.1.2	Wärmeübertragung an hochviskose Medien	28
4.1.3	Erweiterte Einsatzmöglichkeiten von Naturumlauf- verdampfern durch Turbulenzpromotoren und strukturierte Rohre	33
4.1.4	Fallfilmverdampfung von Reinstoffen bei hohen Prandtl-Zahlen	38
4.2	Fouling von Wärmeübertragern	44
4.2.1	Verbesserung des Fouling- und Reinigungsverhaltens wärmeübertragender Flächen durch optimierte Oberflächenbeschichtung	44
4.2.2	Aufklärung der Induktionsphase beim Kristallisationsfouling	50
4.2.3	Fouling bei der Wärmebehandlung von Milch	56
4.2.4	Steigerung der Reinigungseffizienz in geschlossenen Fluidsystemen durch pulsierende Strömungen	62
4.2.5	Untersuchung des Fouling- und Reinigungsverhaltens von Biodiesel und modifizierten Fritierfetten	66

4.3	Bioprozesstechnik	69
4.3.1	Integrierte Produktaufarbeitung in einem Mehrphasenbioreaktor durch selektive Adsorption	69
4.4	Prozessintensivierung durch Grundoperationen und integrierte Verfahren	
4.4.1	Einsatz Ionischer Flüssigkeiten in der Reaktivdestillation	
4.4.2	Vom Batch zur Kontinfertigung - Neue Prozessfenster und Fertigungsstrategien durch Mikroproduktionstechnologie	80
4.4.3	Kristallisation von Lipidnanopartikeln in Mikrowärmeübertragern	86
4.4.4	Mikro-Consortium: Entwicklung einer mikroverfahrenstechnischen Multipurpose-Anlage	93
<b>5</b>	<b>Dissertationen</b>	<b>96</b>
5.1	Experimentelle Untersuchungen zur Strömung und Wärmeübertragung von Reinstoff-Fallfilmen mit hohen Prandtl-Zahlen	96
<b>6</b>	<b>Vorträge und Veröffentlichungen</b>	<b>110</b>
6.1	Veröffentlichungen	110
6.2	Vorträge	111
<b>7</b>	<b>Gastwissenschaftler und Forschungsaufenthalte im Ausland</b>	<b>114</b>
7.1	Auslandsaufenthalte	114
7.2	Gastwissenschaftler	114
<b>8</b>	<b>Mitarbeit in Gremien</b>	<b>114</b>

## 1 Vorbemerkung

Dieser dritte Institutsbericht des Institut für Chemische und Thermische Verfahrenstechnik der Technischen Universität Carolo-Wilhelmina zu Braunschweig soll die Entwicklungen am ICTV in den Jahren 2007 und 2008 vorstellen. Darüber hinaus möchte ich wesentliche Ereignisse und Veränderungen in der Fakultät für Maschinenbau und unserer Universität berichten.

Beginnen möchte ich wie stets mit den personellen Veränderungen am ICTV. Einen sicherlich markanten Meilenstein konnten wir am 20.08.2007 mit der mündlichen Promotionsprüfung von Herrn Dr.-Ing. Felix Weise feiern. Herr Dr. Weise ist der erste Absolvent des neuen ICTV und hat seine Promotion zum Thema „Fallfilmverdampfung von Reinstoffen mit hohen Prandtl-Zahlen“ erfolgreich abgeschlossen. Seit dem 01.09.2007 ist er bei der Germanischer Lloyd Industrial Services GmbH in Hamburg tätig. Zum 01.01.2007 schon startete Frau Dipl.-Ing. Stefanie Arndt als wissenschaftliche Mitarbeiterin. Sie befasst sich in Fortführung der Arbeiten von Herrn Dr. Weise mit der Fallfilmverdampfung von Medien mit hohen Prandtl-Zahlen und wird diese Untersuchungen auch auf Gemische ausdehnen. Am 01.11.2007 nahm Herr Dipl.-Ing. Jochen Hammerschmidt seine Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter auf. Sein Thema ist die Erweiterung der Einsatzmöglichkeiten von Naturumlaufverdampfern durch Turbulenzpromotoren und strukturierte Einbauten. Dieses von der AIF über die GVT geförderte Projekt hat eine besonders wechselvolle Genese und wurde nach über fünf Jahren Vorlauf genehmigt. Ebenfalls im November 2007 startete Herr Dipl.-Chem. Jan Christopher Kuschnerow am ICTV. Bereits im Rahmen seiner Diplomarbeit hatte er sich mit dem Einsatz ionischer Flüssigkeiten in der homogenen Reaktivdestillation befasst und führt dieses Thema in seiner Promotion fort. Herr Kuschnerow hat an der TU Braunschweig Chemie mit dem Schwerpunkt Technische Chemie studiert. Er hat dies besonders schnell und dabei noch mit einer sehr guten Gesamtnote getan. In Anerkennung für diese herausragende Leistung wurde ihm der diesjährige DECHEMA-Studentenpreis für das Fachgebiet Chemische Verfahrenstechnik/Chemieingenieurwesen zuerkannt. Die Verleihung fand im Rahmen der Auftakt-Festveranstaltung der ProcessNet Jahrestagung am 07.11.2008 in Karlsruhe statt. Am 01.01.2008 startete Herr Dipl.-Biotechnol. Thomas Waluga. Herr Waluga ist als Studiengangskoordinator für den Studiengang Bioingenieurwesen intensiv in die Vorbereitung der neuen Bachelor/Master-Studiengänge eingebunden. Wissenschaftlich wird er sich mit der organischen Nanofiltration befassen. Frau Dipl.-Ing. Tatjana Fuchs ist seit dem 01.02.2008 am ICTV tätig. Im Rahmen eines mit dem Institut für Verarbeitungsmaschinen, Landmaschinen und Verarbeitungstechnik der TU Dresden gemeinsam bearbeiteten AIF-Projektes untersucht sie die Steigerung der Reinigungseffizienz in geschlossenen Fluidsystemen durch pulsierende Strömungen. Zum 01.05.2008 nahm Frau Dipl.-Ing. Laura Grundemann ihre Tätigkeit als wissenschaftliche Mitarbeiterin auf. Die Deutsche Bundesstiftung Umwelt in Osnabrück fördert ihr Projekt zur Mikrokontiproduktion von Schreibfarben. Dieses in Zusammenarbeit mit der Fa. Pelikan in Peine

bearbeitete Projekt soll die Einsatzmöglichkeiten der Mikroverfahrenstechnik zur Umstellung heute batchweise betriebener Prozesse auf eine kontinuierliche Fahrweise erforschen. Und zum 01.11.2008 begann Herr Dipl.-Ing. Niels Wellner seine Promotion auf dem Gebiet der Fallfilmverdampfung zur Entwässerung Ionischer Flüssigkeiten. Die Wirtschaftlichkeit des Einsatzes dieser neuen Stoffklasse in technischen Prozessen hängt wesentlich davon ab, dass es gelingt, geschlossene Stoffkreisläufe dafür aufzubauen. Und dabei stellt eine schonende und zugleich kostengünstige Entwässerung ein besonders kritisches Problem dar. Das Projekt wird in Zusammenarbeit mit dem Lehrstuhl für Chemische Reaktionstechnik der Universität Erlangen-Nürnberg, Prof. Wasserscheid, bearbeitet. Damit sind per 31.12.2008 insgesamt zwölf wissenschaftliche Mitarbeiterinnen und Mitarbeiter als Doktoranden am ICTV tätig, ein Ausdruck des engagierten und auch von Erfolg gekrönten Einwerbens von Drittmitteln. Alle daran Beteiligten leisten damit auch einen Beitrag zur Schaffung neuer, hochwertiger Arbeitsplätze in Braunschweig.

Beim Lesen der Mitarbeiteraufstellung des ICTV werden Ihnen möglicherweise neue Namen begegnen, ohne dass ich Ihnen neuen Mitarbeiter vorgestellt hatte. Herr Dipl.-Biotechnol. Manuel Holtkamp, geb. Herrmann, heiratete am 30.08.2007. Frau Dipl.-Ing. Katharina Jasch, geb. Bode, trat am 06.09.2008 in den Stand der Ehe und Frau Marion Harms-Linke tat dies am 02.02.2007. Einzig Herrn Dipl.-Ing. Timo Geddert kennen Sie auch nach seiner Hochzeit am 17.08.2007 mit gleichen Namen.

Neben den internen Doktoranden sind in den letzten Jahren auch eine Reihe von extern betreuten Promotionsvorhaben dazu gekommen. Bereits erfolgreich abgeschlossen hat dies Herr Dr.-Ing. Matthias Wiendahl, geb. Bensch. Herr Wiendahl hat an der TU Braunschweig Biotechnologie studiert und anschließend in der Arbeitsgruppe von Herrn Dr. Hubbuch am Forschungszentrum Jülich eine Arbeit zum Einsatz des High Throughput Screening in der Verfahrensentwicklung angefertigt. Im Rahmen einer breit angelegten Zusammenarbeit mit der Volkswagen AG werden zwei Themen auf dem Gebiet der Hochtemperaturbrennstoffzellen bearbeitet. Herr Ashish Kamat, MSc, befasst sich mit dem Medientransport in einer HTPEM-Zelle, während Herr Dipl.-Ing. Feras Al Saleh die Systemintegration einer Brennstoffzelle in einer Gesamtsimulation erfassen und optimieren soll. An der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt schließlich befasst sich Frau Dipl.-Ing. Sonja Pratzler mit einem neuen Standard-Messverfahren zur Bestimmung des Alkoholwertes im Blut.

Auch im Bereich der technischen Mitarbeiter sind eine Reihe von Veränderungen zu vermelden. Frau CTA Stefanie Arndt verließ uns nach Auslaufen der Projektmittel zum 30.09.2007. Bereits zum 01.07.2007 wechselte Herr Cord Hullmann vom ICTV ins Institut für Bioverfahrenstechnik. Herr Frank Zucker verließ das

ICTV zum 31.12.2007, um zum 01.01.2008 am Institut für Strömungsmechanik eine neue Stelle anzutreten. Auf dieser konnte er später in ein unbefristetes Arbeitsverhältnis übernommen werden, eine Perspektive, die ihm am ICTV leider nicht geboten werden konnte. Schließlich ist Herr Karl-Heinz Pfeil seit 15.03.2007 je zu 50 % am ICTV und am Institut für Strömungsmechanik tätig. Diese Maßnahme ist auf zwei Jahre befristet und Herr Pfeil wird ab April 2009 wieder zu 100 % am ICTV tätig sein. Unser Auszubildender Herr Artur Ermisch konnte am 27.04.2007 erfolgreich den 1. Teil seiner Gesellenprüfung als Feinwerkmechaniker ablegen, die Abschlussprüfung steht im Januar 2009 an.

Am 12. und 13. Oktober 2007 konnten wir ein weiteres Mal unser Ehemaligentreffen durchführen. Beiträge zum wissenschaftlichen Kolloquium leisteten Herr Dr.-Ing. Eckart Heint, Herr Dr.-Ing. Matthias Potthoff, Herr Prof. Dr.-Ing. Uwe Klausmeyer, Herr Dipl.-Biotechnol. Manuel Holtkamp sowie Herr Dipl.-Ing. Timo Geddert. Für die Organisation zeichnete Frau Dipl.-Ing. Stefanie Arndt verantwortlich. Ich danke allen, die durch ihren Beitrag oder ihre Teilnahme zum Gelingen des Ehemaligentreffens beigetragen haben.

Am 22. und 23. September 2008 führten wir in Kooperation mit der Forschungsgesellschaft Verfahrenstechnik e.V. GVT erstmals den neuen Hochschulkurs „Fouling in Wärmeübertragern“ durch. Zusammen mit zwei externen Referenten, Herrn Dr.-Ing. B. Rumpf von der BASF SE, Ludwigshafen, sowie Dr. D. I. Wilson von der University of Cambridge, konnten zwölf Vorträge sowie eine Besichtigung unserer Versuchseinrichtungen angeboten werden. 21 Teilnehmer aus unterschiedlichen Bereichen der Prozessindustrie zeugen von einer guten Resonanz auf dieses Angebot. Die Rückmeldungen der Teilnehmer waren durchweg sehr positiv, so dass wir den Kurs auch 2009 wieder anbieten werden, dann voraussichtlich am 21. und 22.09.2009.

Der diesjährige Betriebsausflug führte uns paddelnd auf der Oker vom Kennelbad zum Rüniger Wehr und zurück. Da alle ohne zu Kentern die Strecke gut überstanden, stand auch einem gut gelaunten Abschlussgrillen nichts im Wege.

Die Studierendenzahlen der Studiengänge in der Fakultät für Maschinenbau sprangen zum Wintersemester 2007/2008 in bisher unerreichte Höhen. Erstmals konnten mehr als 700 Erstsemester für die Studiengänge Maschinenbau, Bioingenieurwesen, Wirtschaftsingenieurwesen/Maschinenbau sowie Mobilität und Verkehr begrüßt werden. Allein die Bioingenieure haben mit 73 Anfängern fast das Dreifache ihrer ursprünglichen Stärke erreicht. Dies wird insbesondere in der Durchführung der Labore einige Herausforderungen aufwerfen, denen wir uns aber gerne stellen. Zum Wintersemester 2008/2009 konnte diese sehr positive Entwicklung gehalten werden: In allen Studiengängen der Fakultät für Maschinenbau zusammen schrieben sich 694 Studierende neu ein, darunter 451 Maschinenbauer und 48 Bioingenieure.

Zum Wintersemester 2008/2009 beginnt nun auch in unserer Fakultät das Zeitalter der Bachelor/Master-Studiengänge. Der Bachelor wird sechs, der Master vier

Semester umfassen. Maschinenbau sowie Bioingenieurwesen werden als Bachelorstudiengänge angeboten. Als Masterstudiengänge werden Maschinenbau, Luft- und Raumfahrttechnik, Kraftfahrzeugtechnik sowie Bioingenieurwesen folgen. Wir nutzen hier also die Chance zur Differenzierung und Profilbildung in den Stärken unserer Fakultät. Die Einschreibezahlen bleiben derzeit noch hinter den Spitzenwerten des letzten Jahres zurück, sind aber mit 625 für die gesamte Fakultät, davon 38 Bioingenieure auf einem akzeptablen Niveau. Am 30.09. und 01.10. bzw. 07.10.2008 erfolgte die Begehung unserer Fakultät im Rahmen der Akkreditierung der neuen Studiengänge durch die Akkreditierungsagentur ASIIN. Nach ersten Signalen scheinen wir auch diese Hürde erfolgreich genommen zu haben, so dass wir unsere Studierenden in qualitativ hochwertigen und akkreditierten Studiengängen wissen.

Ab diesem Wintersemester hat unsere Fakultät das sog. Strukturierte Doktorat eingeführt. Es soll als Instrument der Qualitätssicherung in der Promotion dienen und gleichzeitig Vorgaben des Niedersächsischen Hochschulgesetzes zur Promotion in die Fachkultur der Ingenieurpromotion übersetzen. Ein wesentliches Element darin ist die förmliche Vereinbarung eines Betreuungsverhältnisses zwischen Doktorvater und Doktorand auf dem beabsichtigten Promotionsgebiet. Weitere Elemente sind die Einschreibepflicht für Doktoranden, regelmäßige (mind. 1x jährlich) Mitarbeitergespräche, die Teilnahme an vier überfachlichen Weiterbildungskursen sowie die Dokumentation eines Tätigkeitskataloges der Doktoranden während der Promotionsphase.

Schon im Sommer 2008 konnte unsere Fakultät eine besondere Auszeichnung gewinnen: Uns wurde das Gütesiegel des Fakultätentag Maschinenbau und Verfahrenstechnik e.V. verliehen. Das Gütesiegel ist ein Kennzahlen-basiertes Instrument zur Selbstevaluation, Qualitätssicherung und Weiterentwicklung von Fakultäten und umfasst die Bereiche Forschung, Lehre und Organisation. Es wird durch den Fakultätentag für drei Jahre verliehen.

Unserer Universität wurde Ende März 2007 das Grundzertifikat „Familiengerechte Hochschule“ durch die Hertie-Stiftung verliehen. Im Rahmen eines Audits wurden dazu die an der TU gegebenen Voraussetzungen für eine bessere Vereinbarkeit von Studium, Elternschaft, Familienarbeit und Beruf evaluiert und Maßnahmen zur weiteren Förderung vereinbart. Das beherrschende Thema auf universitärer Ebene ist sicherlich die Bildung der Niedersächsischen Technischen Hochschule NTH aus den Universitäten bzw. Technischen Universitäten Braunschweig, Clausthal und Hannover. Was zunächst als eine Universität mit drei Standorten geplant war, stellt sich heute eher als eine Holding mit drei Universitäten dar. Die NTH soll das Recht zur eigenständigen Antragstellung bei der DFG erhalten sowie zur Berufung von Professoren. Das dafür erforderliche NTH-Gesetz soll in diesen Tagen im Landtag beraten werden und bereits zum 01.01.2009 in Kraft treten. Wie immer bei solchen Projekten treten die Differenzen zwischen den beteiligten Partnern dann zu Tage, wenn es um konkrete Regelungen, wie z. B. den Sitz der NTH, geht. Lassen wir uns überraschen, wie sich das Alles in zwei Jahren dar-

stellt. Gleichwohl wird die NTH kommen und unsere Carolo-Wilhelmina ist darin und dafür sehr gut aufgestellt. Es ist an uns, diesen Rahmen mit Leben zu füllen. Ein erstes Beispiel dafür ist das Projekt „µConsortium“. Darin sind zwei Institute aus Clausthal, zwei Institute aus Braunschweig (Partikeltechnik und ICTV) sowie ein Institut aus Hannover beteiligt. Ziel ist die Bereitstellung eines mobilen Versuchsstandes zur Durchführung verschiedener studentischer Laborversuche zur Mikroverfahrenstechnik.

Für den Forschungsflughafen ist eine deutliche Erweiterung und Aufwertung geplant. Er stellt für die TU ein Alleinstellungsmerkmal in Europa dar und soll zum Campus Forschungsflughafen ausgebaut werden. Dort werden alle Institute der Luft- und Raumfahrttechnik angesiedelt sein. Die TU Braunschweig hat zusammen mit der Volkswagen AG das Niedersächsische Forschungszentrum für Fahrzeugtechnik NFF gegründet. Dies wird zwei Standorte haben: Wolfsburg und den Campus Forschungsflughafen in Braunschweig. Dort sollen alle fahrzeugtechnischen Institute der Fakultät gesammelt werden. Insbesondere betrifft dies auch das Institut für Fahrzeugtechnik, Prof. Eilts als Nachfolger von Prof. Müller, sowie das Pfeleiderer-Institut für Strömungsmaschinen, Prof. Kosyna. Dieses Institut wurde der Fachrichtung Luft- und Raumfahrttechnik zugeordnet und soll in Richtung Strahltriebwerke umgewidmet werden.

Bezüglich der vor zwei Jahren scheinbar unmittelbar vor der Tür stehenden Umbau- und Umzugsmaßnahmen hat sich nichts getan. Da werden die Entwicklungen mit der Nachfolge von Prof. Leithner abgewartet, welche für das Frühjahr 2010 angestrebt wird. Erfreulich ist jedoch, dass wir im Rahmen einer kleineren Baumaßnahme das ehemalige Analytiklabor im 1. OG mit einer Trennwand ausgerüstet und damit Raum für zwei neue Nutzungen geschaffen haben: Ein Labor für Mikroverfahrenstechnik sowie einen studentischen Rechnerraum.

Zu guter Letzt möchte ich Ihre Aufmerksamkeit wieder auf unseren Freundes- und Förderkreis des Instituts für Chemische und Thermische Verfahrenstechnik der TU Braunschweig e.V. lenken. Die letzte Mitgliederversammlung fand am 12. Oktober 2007 im Rahmen des Ehemaligentreffens statt. Aus Mitteln des Förderkreises konnte in 2007 Ausstattung für die von Herrn Holtkamp ins Leben gerufene Obstwein-AG beschafft werden. Diese soll interessierten Studierenden praktische Erfahrung mit der Gewinnung und Herstellung verschiedener Obstweine und -destillate vermitteln und so vermehrt Interesse für unser Fachgebiet wecken. Sollten Sie einen Beitrag zur Förderung von Forschung, Studium und Lehre auf dem Gebiet der Verfahrenstechnik leisten wollen, empfehle ich Ihnen eine Mitgliedschaft im Freundes- und Förderkreis wärmstens.

Ich darf Sie nun herzlich zur Lektüre der Ausführungen zu den Forschungs- und Lehraktivitäten am Institut für Chemische und Thermische Verfahrenstechnik einladen. Sollten Sie Kommentare oder Anregungen dazu oder auch zu Form und Themen des Institutsberichtes insgesamt haben, freue ich mich über Ihre Rückmeldung.

Ich danke allen Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern des ICTV, allen Studierenden als Studien- oder Diplomarbeiter bzw. studentischen Hilfskräften sowie allen universitären und industriellen Partnern für ihr großes Engagement und konstruktive Mitwirkung in den zurückliegenden Jahren. Die sehr erfreuliche Entwicklung unseres Instituts wird durch sie alle mitgetragen und gestaltet.

Braunschweig, im November 2008

*Stephan Scholl*

## 2 Mitarbeiter

Geschäftsführender Leiter:	Prof. Dr.-Ing. Stephan Scholl	
Emeritus:	Prof. Dr.-Ing. Matthias Bohnet	
Sekretariat:	Marion Harms-Linke	
Akademischer Direktor:	Dr.-Ing. Wolfgang Augustin	
Wissenschaftliche Mitarbeiter:	Dipl.-Ing. Florian Albert	
	Dipl.-Ing. Stefanie Arndt	(seit 01.01.2007)
	Dipl.-Ing. Katharina Jasch	
	Cristiane Boxler, MSc	
	Dipl.-Ing. Tatjana Fuchs	(seit 01.02.2008)
	Dipl.-Ing. Timo Geddert	
	Dipl.-Ing. Laura Grundemann	(seit 01.05.2008)
	Dipl.-Ing. Jochen Hammerschmidt	(seit 01.11.2007)
	Dipl.-Biotechnol. Manuel Holtkamp	
	Dipl.-Chem. Jan C. Kuschnerow	(seit 01.11.2007)
	Dipl.-Biotechnol. Thomas Waluga	(seit 01.01.2008)
	Dipl.-Ing. Niels Wellner	(seit 01.11.2008)
	Dr.-Ing. Felix Weise	(bis 31.08.2007)
Labor:	Stefanie Arndt	(bis 30.09.2007)
	Cord Hullmann	(bis 30.06.2007)
	Sabine Knoblauch	
	Simone Schulze	
Elektronikwerkstatt:	Karl-Heinz Pfeil	
Werkstatt:	Karl Karrenführer	
	Frank Zucker	(bis 31.12.2007)
Auszubildende:	Artur Ermisch	
	Kevin Laboch	
Wissenschaftliche Hilfskräfte:	34	

## 2.1 Neue wissenschaftliche MitarbeiterInnen

### **Persönliche Daten:** Stefanie Arndt

Geburtsdatum: 13.06.1979  
Geburtsort: Mainz  
Nationalität: Deutsch  
Familienstand: ledig



### **Schule/Ausbildung**

1989 - 1995 Gerhardt-Hauptmann Gymnasium Wiesbaden  
1995 - 1998 Carl-von Ossietzky Gymnasium Wiesbaden

### **Studium/Beruf**

08/1998 - 07/2002 Europa-Fachhochschule Fresenius, Chemieingenieurwesen  
Abschluss: Dipl.-Ingenieur (FH)  
Studiengang: Chemieingenieurwesen  
09/2002 - 09/2004 Technische Mitarbeiterin am Fraunhofer Institut für Schicht- und Oberflächentechnik; Arbeitsgruppe Diamanttechnologie  
10/2004 - 11/2006 Technische Universität Braunschweig, Maschinenbau  
Abschluss als **Dipl.-Ingenieurin**  
Studiengang: **Maschinenbau**  
**Vertiefung: Bioverfahrenstechnik**  
seit 01/2007 **Wissenschaftliche Mitarbeiterin am ICTV**

### **Bisherige Forschungsarbeiten**

02/2004 - 06/2004 Fraunhofer Institut für Schicht- und Oberflächentechnik; Diplomarbeit: „Charakterisierung von Diamantelektroden mittels Widerstandsmessung und Cyclovoltammetrischer Untersuchung“  
01/2006 - 03/2006 Studienarbeit, IBVT, TU Braunschweig: „Messung lokaler Phasengehalte in einem praxisrelevanten Blasensäulenreaktor unter Einsatz von Druckdifferenz-, und Leitfähigkeitsmesssonde“  
05/2006 - 11/2006 Diplomarbeit, ICTV, TU Braunschweig: „Einfluss der Tropfengrößenverteilung auf das Verdampfungsverhalten von Emulsionen“

### **Persönliche Daten:** Tatjana Fuchs

Geburtsdatum: 15.01.1981  
Geburtsort: Berlin  
Nationalität: Deutsch  
Familienstand: ledig



### **Schule/Ausbildung**

07/1997 – 06/1998

Western High School (Parma, Michigan, USA)

07/1998 – 06/2001

Fachgymnasium Technik/BBS Nienburg (Weser)

### **Studium/Beruf**

10/2001 – 09/2002

TU Hamburg-Harburg Chemieingenieurwesen

10/2002 – 01/2008

TU Clausthal

Abschluss als **Dipl.-Ingenieurin**

Studiengang: **Verfahrenstechnik**

01/2006 – 07/2006

Linköpings Universitet, Schweden

Maschinenbauliche Fächer: z. B. Manufacturing Technology, Production Technology; Vorlesungssprache: Englisch

07/2007 – 08/2007

The Hong Kong Polytechnic University, Hongkong, China, Praktikum: Projektarbeit, Planung/Durchführung/Auswertung von Versuchen

seit 02/2008

**Wissenschaftliche Mitarbeiterin** am ICTV

### **Bisherige Forschungsarbeiten**

07/2005 – 09/2005

Studienarbeit, Cutec GmbH, Clausthal: „Weiterreichende Erprobung einer neuartigen Konditionierungsanlage im kommunalen Klärschlammereich“

09/2007 – 01/2008

Diplomarbeit, TVT, TU Clausthal: „Experimentelle Untersuchung und Modellierung des Desorptionsprozesses von Pflanzenmaterial bei verschiedenen Prozessvarianten“

### **Persönliche Daten:**

Geburtsdatum:

Laura Grundemann  
10.09.1983

Geburtsort:

Meerbusch

Nationalität:

Deutsch

Familienstand:

ledig

### **Schule/Ausbildung:**

07/1994 – 06/2002

Städt. Meerbusch Gymnasium

### **Studium/Beruf**

10/2002 – 04/2008

Technische Universität Braunschweig

Abschluss: **Dipl.-Ingenieurin**

Studiengang: **Maschinenbau**

seit 05/2008

**Wissenschaftliche Mitarbeiterin** am ICTV



### **Bisherige Forschungsarbeiten**

06/2007 – 09/2007 Studienarbeit, Linde- KCA-Dresden GmbH, Dresden:  
Rechnerische Festlegung der Ausdehnung von explosionsgefährdeten Zonen

11/2007 – 04/2008 Diplomarbeit, ICTV, TU Braunschweig: Kontinuierliche  
Herstellung dispersionsbasierter Schreibfarben mittels  
Mikroverfahrenstechnik

### **Persönliche Daten:**

Geburtsdatum: 18.10.1980  
Geburtsort: Paderborn  
Nationalität: Deutsch  
Familienstand: ledig

### **Jochen Hammerschmidt**



### **Schule/Ausbildung**

1991 - 2000 Städtisches Gymnasium Marsberg

### **Studium/Beruf**

10/2001 - 09/2007 Technische Universität Braunschweig, Maschinenbau  
Abschluss als **Dipl.-Ingenieur**

Studiengang: **Bioingenieurwesen**

seit 11/2007

**Wissenschaftlicher Mitarbeiter** am ICTV

### **Bisherige Forschungsarbeiten**

08/2005 - 12/2005 Studienarbeit, ICTV, TU Braunschweig: „Erstinbe-  
triebnahme eines Fallfilmverdampfers und experimen-  
telle Untersuchung der thermischen Behandlung ioni-  
scher Flüssigkeiten“

02/2007 - 09/2007 Diplomarbeit, ICTV, TU Braunschweig:  
„Charakterisierung der Hydrodynamik von Flüssigkeits-  
strömungen in rauen Mikrokanälen“

### **Persönliche Daten:**

Geburtsdatum: 26.01.1984  
Geburtsort: Soltau  
Nationalität: Deutsch  
Familienstand: ledig

### **Jan Christopher Kuschnerow**



### **Schule/Ausbildung**

1983 – 1987 Grundschule Hasede  
01/1997 – 06/2000 Realschule Lannstedt  
08/2000 – 05/2003 Gymnasium Warstude-Hemmnar

### **Studium/Beruf**

10/2003 – 09/2007 TU BS, Chemie

**Diplom-Chemiker**

seit 11/2007

**Wissenschaftlicher Mitarbeiter** am ICTV

## **Bisherige Forschungsarbeiten**

02/2006 – 07/2006	Fortgeschrittenenpraktikum, IOC TU Braunschweig; „Synthese und Analytik von Polychlorierten Terphenylen (PCT)“, „Synthese und Analytik von Kohlenhydratrezeptorvorstufen.“
08/2006 – 10/2006	Fortgeschrittenenpraktikum, IAAC, TU Braunschweig; „Synthese und Analytik organometallischer Verbindungen“
10/2006 – 01/2007	Vertiefungspraktikum, ICT, TU Braunschweig; „Einfluss von Tensiden auf den Stoffübergang in wässrigen Suspensionen mit Aluminiumoxidpartikeln
04/2007 – 09/2007	Diplomarbeit, ICTV, TU Braunschweig; „Einsatz ionischer Fluide als Katalysator in der homogenen Reaktivdestillation unter Berücksichtigung reaktionskinetischer Aspekte“

## **Persönliche Daten:**

Geburtsdatum:	23.03.1981
Geburtsort:	Hamburg
Nationalität:	Deutsch
Familienstand:	ledig

## **Thomas Waluga**



## **Schule/Ausbildung**

1991 – 1994	Leibnizgymnasium, Dortmund
1994 – 2000	Gymnasium Osterode, Osterode am Harz

## **Studium/Beruf**

10/2001 – 04/2007	Technische Universität Braunschweig, Maschinenbau Abschluss als <b>Dipl.-Biotechnologe</b> , Studiengang: <b>Biotechnologie</b>
09/2004 – 01/2005	Auslandsaufenthalt, Studium bei der Universität in Lund/Schweden
seit 12/2007	<b>Wissenschaftlicher Mitarbeiter</b> am ICTV

## **Bisherige Forschungsarbeiten**

03/2006	Studienarbeit, Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft, Institut für Technologie und Biosystemtechnik, Braunschweig; „Untersuchungen zum Einfluss von Stickstoff auf die Performance von Biogasprozessen“
04/2007	Diplomarbeit, IBVT, TU Braunschweig; „Untersuchungen zum biologischen Abbau des Komplexbildners 1,3-Propylendiamin-tetraacetat (PDTA)“

**Persönliche Daten:** Niels Wellner

Geburtsdatum: 19.09.1979

Geburtsort: Goslar

Nationalität: Deutsch

Familienstand: ledig



**Schule/Ausbildung**

1993 – 2000 Ratsgymnasium Goslar

09/2000 – 06/2001 Wehrdienst

**Studium/Beruf**

10/2001 – 10/2008 Technische Universität Braunschweig, Maschinenbau  
Abschluss als **Dipl.-Ingenieur**,

Studiengang: **Bioingenieurwesen**

seit 11/2008 **Wissenschaftlicher Mitarbeiter** am ICTV

**Bisherige Forschungsarbeiten**

10/2005 – 01/2006 Studienarbeit, IBVT, TU Braunschweig: „Produktadsorption an einer Biomassematrix“

04/2008 – 10/2008 Diplomarbeit, ICTV, TU Braunschweig:  
„Analysis und Reduction of Waste on a Manufacturing Line for Baked Products“

### 3 Lehre

#### 3.1 Vorlesungen

*Prof. Dr.-Ing. Stephan Scholl*

Einführung in Stoffwandlungsprozesse (SS, VL 02, UE 01)

Thermische Verfahrenstechnik I (WS, VL 02, UE 01)

Thermische Verfahrenstechnik II (SS, VL 02, UE 01)

Chemische Verfahrenstechnik (SS, VL 02, UE 01)

Introduction to Computer Aided Process Engineering (SS, VL 02, UE 01)

Thermische Verfahrenstechnik für Biotechnologen (WS, VL 03)

*Prof. Dr.-Ing. Stephan Scholl, Dr.-Ing. Wolfgang Augustin*

Design verfahrenstechnischer Anlagen (WS, VL 02, UE 01)

*Prof. Dr.-Ing. Matthias Bohnet*

Mehrphasenströmungen I (bis SS 2007) (SS, VL 02, UE 01)

Mehrphasenströmungen II (bis WS 07/08) (WS, VL 02, UE 01)

Prof. Dr.-Ing. Uwe Klausmeyer, PTB

Prozess- und Anlagensicherheit

(SS, VL 01)

Prof. Dr.-Ing. habil. Peter Ulbig, PTB

Messtechnik in der Energie- und Verfahrenstechnik

(WS, VL 01)

## Inhalte der Vorlesungen

### **Einführung in Stoffwandlungsprozesse**

Die Vorlesung wird als Wahlpflichtfach im Vordiplom der Studiengänge für Maschinenbau und Bioingenieurwesen angeboten. Wesentliche Vorlesungsinhalte sind:

- Der stoffwandelnde Produktionsprozess im Zusammenhang: Rohstoffe, Hilfsstoffe, Edukte und Produkte, Wertschöpfungsketten, Verbund.
- Die Grundelemente eines Produktionsprozesses: Hauptprozessfunktionen, die Verfahrensfunktion und ihre apparative Umsetzung.
- Reaktionen und Reaktoren: Stöchiometrie, Umsatz, Selektivität, Ausbeute, Gleichgewicht und Kinetik.
- Produktaufarbeitung und -darstellung: Das Konzept der Grundoperationen, Überlagerung Reaktion und Stofftrennung, Produktdarstellung, Product Design, Prozessintegration.

### **Thermische Verfahrenstechnik I, II**

In den Vorlesungen Thermische Verfahrenstechnik I & II werden die verschiedenen Grundoperationen der thermischen Stofftrennung mit ihren theoretischen Grundlagen, apparativen Umsetzungen und verfahrenstechnischen Anwendungen vorgestellt. Charakteristisch für diese Trennverfahren ist die Anwesenheit von mindestens zwei Phasen, die nicht im Gleichgewicht stehen bzw. bei denen die Einstellung des Gleichgewichtes permanent gestört wird. Es werden dadurch Austauschvorgänge für Impuls, Wärme und Stoffe ausgelöst, die zu einer Stofftrennung führen.

Die Vorlesung **Thermische Verfahrenstechnik I** umfasst die Kapitel:

- Stoffdaten von Reinstoffen und Gemischen
- Phasengleichgewichte: Dampf-flüssig, flüssig-flüssig, flüssig-fest
- Verdampfung und Kondensation: Wärmeübergang, Betriebsverhalten, Fouling
- Kristallisation: Eindampfung von Lösungen, Mehrstufenverdampfung, Wärmeintegration
- Rektifikation: Verstärkungs- und Abtriebssäule, minimales Rücklaufverhältnis, McCabe-Thiele-Diagramm, h-x-Diagramm
- Absorption: Ab- und Desorption, minimale Waschmittelmenge, Kreislauffahrweise, Stoffübergang, HTU-NTU-Konzept

In der **Thermischen Verfahrenstechnik II** werden behandelt:

- Extraktion: Flüssig-flüssig- und Fest-flüssig-Extraktion, Polstrahlverfahren, Mixer-Settler, Extraktionskolonne
- Adsorption und Chromatographie: Gleichgewicht und Kinetik, Durchbruchverhalten, Einzelkorn, Festbett, Adsorbentien, Simulated Moving Bed, Transport in porösen Feststoffen
- Trocknung: 1. und 2. Trocknungsabschnitt, Wärme- und Stoffübergang bei der Trocknung, Trocknungsverfahren
- Membranverfahren: Umkehrosmose, Mikrofiltration, Nanofiltration, Pervaporation

### **Chemische Verfahrenstechnik**

In der Vorlesung werden die wesentlichen Aspekte zur Realisierung von Reaktionsschritten in chemischen Produktionsverfahren sowie zur Integration von Reaktion und Stofftrennung vermittelt:

- Grundlagen
  - Gleichgewicht: Physikalisch, chemisch
  - Kinetik: Wärme- und Stoffübergang, Reaktionskinetik
  - Reaktionstypen, homogene und heterogene Katalyse
  - Stoff- und Energiebilanzierung
- Reaktionsprozesse und Reaktoren
  - Laborreaktoren: Rührzelle, Laminarstrahlkammer, Differenzialkreislaufreaktor
  - Technische Reaktortypen: Einsatzgebiete, Grundlagen der Berechnung
  - Isotherme vs. nicht-isotherme Reaktoren
- Kombination von Reaktion und Stofftrennung
  - Chemisorption, Reaktivrektifikation, Reaktivextraktion

### **Introduction to Computer Aided Process Engineering**

Based on the theory for thermal separation processes as presented in Thermische Verfahrenstechnik I the typical workflow for process design and optimization is demonstrated. Commercial software products are employed for modelling and simulation of the following tasks:

- Physical properties and phase equilibria: Data retrieval, regression of experimental data, parameter estimation
- Two phase flash: Single stage separation, integral vs. differential operation mode
- Rigorous modelling of a rectification column: Binary mixture, multicomponent mixture, design specifications, sensitivity analysis
- Flow sheet simulation for multistage separation: Feed forward, recycles
- Equipment design: Selection and sizing for distillation columns, heat exchangers, reboilers, condensers
- Costing, process optimization

The lecture is presented in English language at the Institutes Electronic Classroom.

## **Thermische Verfahrenstechnik für Biotechnologen**

Grundlage für die Auslegung von Apparaten in der thermischen Verfahrenstechnik ist die Berechnung des Wärme- und Stoffaustausches zwischen mindestens zwei Phasen unterschiedlicher Zusammensetzung. Die für die Transportvorgänge notwendigen treibenden Kräfte ergeben sich aus dem Ungleichgewicht bezüglich Temperatur und Konzentrationen zwischen den in Kontakt stehenden Phasen. Nach einer kurzen Darstellung der Grundlagen zu Wärme- und Stoffübertragung sowie zur Ähnlichkeitstheorie werden die thermischen Grundoperationen der Verfahrenstechnik behandelt, die am häufigsten in der Bioverfahrenstechnik Anwendung finden: Verdampfung und Kondensation, Kristallisation, Rektifikation, Adsorption; Extraktion; Adsorption und Chromatographie, Trocknung, Membranverfahren.

## **Design verfahrenstechnischer Anlagen**

Die Vorlesung vermittelt die Grundlagen der Anlagenplanung und wird durch eine Projektarbeit zum Design eines vollständigen verfahrenstechnischen Prozesses begleitet. Dabei wird eine kommerzielle Software für die Fließbildsimulation verwendet. Hauptthemen der Vorlesung sind:

- Prozessdatenbeschaffung (z.B. physikalische Eigenschaften, Sicherheitsdaten, Kapazitätsdaten)
- Prozessentwicklung anhand von Reaktionsgleichungen
- Wärme- und Massenbilanzen, Fließbildsimulation
- Dimensionslose Kennzahlen für die überschlägige Dimensionierung von Apparaten
- Auswahl und genaue Dimensionierung geeigneter Apparate (z.B. Kolonnen, Wärmeübertrager)
- Computer Aided Process Engineering
- Kostenschätzung
- Rechtliche Aspekte (z.B. Umweltauflagen, Genehmigungsverfahren)

## **Mehrphasenströmungen in der Verfahrenstechnik I, II**

Neben den einphasigen Strömungen sind in der Verfahrenstechnik die zwei- und dreiphasigen Strömungen von großer Bedeutung. Diese treten nicht nur beim Transport der Stoffe zwischen den einzelnen Apparaten der thermischen Trenntechnik und den Reaktoren auf, sondern bestimmen auch die Konstruktion der Apparate selbst, z. B. Wirbelschicht- und Rührreaktoren. Weitere Anwendungsgebiete der Mehrphasenströmungen sind die pneumatische und hydraulische Förderung, sowie die damit verbundenen Aufgabe- und Abscheidevorrichtungen, z. B. Injektoren und Zyklone. In der chemischen Reaktionstechnik, der Biotechnologie und anderen Gebieten der Verfahrenstechnik findet man in zunehmendem Maße auch Dreiphasenströmungen aus Gas, Feststoff und Flüssigkeit, z. B. in Dreiphasen-Wirbelschicht-Reaktoren.

Nach einer Darstellung der strömungstechnischen Grundlagen (Rohrströmung, Ähnlichkeitstheorie, Partikelumströmung, Bildung von Blasen und Tropfen) er-

folgt eine Beschreibung der wichtigsten Verfahren und Apparate der Mehrphasenströmungen (z. B. Rühren, statische Mischer, Blasensäulen, Strömungen durch Blenden, Austauschböden und Füllkörpersäulen, Wirbelschicht, Abscheiden mit Filtern und Zyklonen, pneumatische und hydraulische Förderung).

### **Prozess- und Anlagensicherheit**

Planung und Betrieb der Prozessführung in verfahrenstechnischen Anlagen sowie der Anlagenkomponenten selbst sind oft begleitet von umfangreichen sicherheitstechnischen Fragestellungen. Das Engineering der Prozesse und Massenströme kann in Zwischenstufen Risiken ergeben, die durch eine sorgfältige Gefahrenanalyse zu bewerten sind.

Die Vorlesung vermittelt die wichtigsten Grundlagen verfahrenstechnischer Sicherheitstechnik in den beiden Fachgebieten

- Analyse der Sicherheit des Prozesses und der Prozessführung und
- Sicherheit der Anlagen und ihrer Komponenten.

Vorlesungsschwerpunkte:

1. Beispiel: eine Lösemittelrückgewinnungsanlage (z.B. Aceton/Wasser)
2. Auslegung des Trennverfahrens (Destillation, Rektifikation)
3. Beschaffung der sicherheitstechnischen Kenngrößen (Dampfdrücke, untere und obere Explosionsgrenze, Lagerungskenngrößen, Zündenergie, elektrostatische Zündgefahren, Explosionsgasgruppe des Dampf-/Luftgemisches etc.)
4. Risikoanalyse der Gesamtanlage inklusive der verfahrenstechnischen Einzelschritte (z. B. Ausfall der Kondensation, Aufzeigen von Sicherheitsmaßnahmen)
5. Auslegung der zu- und abgeführten Stoffströme (Lagerung, Transport, Förderung), staatliche Transport- und Lagerungsvorschriften
6. Auslegung der Prozessleittechnik (MSR) mit Blick auf die abzuwehrenden Sicherheitsrisiken
7. Dokumentation der sicherheitstechnischen Auslegung.

### **Messtechnik für die Energie- und Verfahrenstechnik**

Die Vorlesung gibt einen Überblick über die für die Verfahrenstechnik relevanten Messtechniken mit Hinweisen zum Aufbau einer leistungsfähigen Messdatenerfassung für Laborzwecke. Des Weiteren werden Beispiele zu industriellen Prozessleittechniken erläutert.

Die Kapitel der Vorlesung gliedern sich in folgender Weise:

1. Temperatur
2. Druck und Druckdifferenzen
3. Feuchte
4. elektrische Größen
5. Masse
6. Dichte (Flüssigkeiten und Gase)
7. Durchfluss (Flüssigkeiten, Gase, heterogene Phasen)

8. Massenstrom (Flüssigkeiten, Gase, heterogene Phasen)
9. Füllstand (Flüssigkeiten, Schüttungen)
10. On-line Analytik für Gaszusammensetzung
11. On-line Analytik für flüssige Gemische
12. Partikelmesstechnik
13. Messtechnik für Ex-geschützte Zonen
14. Messtechnik zur Reinraumüberwachung
15. Grundlagen von RI-Fließbildern (normative Grundlagen, Beispiele)
16. Aufbau einer leistungsfähigen Labordatenerfassung
17. Prozessleittechnik (Bussysteme, graphische Benutzeroberflächen, Datenspeicherung)

### **3.2 Gemeinsame Vorlesungen der EVT-Institute**

*Prof. Hempel, Köbler, Kosyna, Kwade, Leibner, Scholl*

Umweltschutztechnik I	(WS, VL 02)
Umweltschutztechnik II	(SS, VL 02)
Numerische Simulation (CFD)	(WS, VL 02, UE 01)
Regelungstechnik und dynamische Modellbildung	(SS, VL 02, UE 01)

### **3.3 Verfahrenstechnisches Praktikum**

Verfahrenstechnisches Labor für Bioingenieure	(SS, UE 01)
Verfahrenstechnisches Labor	(WS, UE 04)
Verfahrenstechnisches Labor für Bioverfahrenstechniker	(WS, UE 06)
Verfahrenstechnisches Labor für Biotechnologen	(WS, UE 04)

### **3.4 Seminar für Energie- und Verfahrenstechnik**

#### **Wintersemester 2006/2007**

Thomas Gothsch	„Cleaning in Place“ (CIP) in der Lebensmittelindustrie
Felix Precht	„Ein alter Hut mit neuen Köpfen“ - Nachwachsende Rohstoffe – Die Perspektive der chemischen Industrie

#### **Sommersemester 2007**

Niels Wellner	Foulingprozesse bei jeder Leckerei
---------------	------------------------------------

## Sommersemester 2008

Stefan Strege	Kristallisation von Nanopartikeln in Mikrokomponenten: Anwendungen, Herausforderungen, Design und Prozessführung
Vera Gonschorowski	Rippen und Poren: Einfluss von Strukturierungen auf die Wärmeübertragung
Moriz Mayer	Methoden der Ökobilanzierung von mikroverfahrenstechnischen Prozessen
Karl Heinz Siebeneck	Festhalten gilt nicht: Adhäsion und Reinigung in der Lebensmittelindustrie

## 3.5 Studienarbeiten

### 2007

29	Christoph Otreba	Kinetische Betrachtungen zum Adsorptions-/Desorptionsverhalten von dealuminierten Beta-Zeolithen und Einsatzmöglichkeit von Zeolith-Extrudaten im Festbettadsorber
30	Katharina Klinzing	Einfluss von Oberflächenmodifizierungen auf die Kristallbildung an Wärmeübertragerflächen
31	Meike Dietrich	Einfluss der Strömungsgeschwindigkeit auf das Foulingverhalten beschichteter Wärmeübertragerflächen
32	Derek Li	Visualization of a Viscous Falling Film in a Vertical Tube
33	Thomas Gothsch	Einfluss der Strömungsgeschwindigkeit auf das Foulingverhalten beschichteter strukturierter Oberflächen
34	Laura Grundemann	Erstellung von Grundlagen zur rechnerischen Festlegung der vertikalen und horizontalen Ausdehnung von explosionsgefährdeten Zonen
35	Moriz Mayer	Untersuchung der Stofftransporteigenschaften von Flachmembranen mittels Diffusionsmesszelle

## 2008

- 36 Elke von Buchholz Numerische Simulation zum Einfluss der Oberflächenrauheit auf den konvektiven Wärmeübergang einphasiger und mehrphasiger Fluide in einem Mikrokanal
- 37 Steffi Köhler Einfluss von Oberflächenmodifizierungen auf die heterogene Keimbildung
- 38 René Sass Wirtschaftliche Bewertung von Oberflächenmodifikationen bezüglich deren Auswirkung auf die Belagbildung bei Wärmeübertragern
- 39 Claudia Kühne Anwendung von elektrisch gepulsten Feldern zur Haltbarmachung von Milch - Inaktivierung von *Listeria monocytogenes* und *Listeria innocua*
- 40 Petra Henke Produktion von Algen als CO<sub>2</sub>-Senke in einem Airlift-Reaktor
- 41 Isaline Fermaud Untersuchungen zum Einfluss von Oberflächenrauigkeiten auf den einphasigen, konvektiven Wärmeübergang in Mikrokanälen

## 3.6 Diplomarbeiten

### 2007

- 25 Ursula Mücke Einfluss der Lecithinzusammensetzung auf den Prozess der Rapsölherstellung
- 26 Said Nahlé Untersuchungen zum Monitoring von Foulingvorgängen mittels Mikrowellentechnik
- 27 Maria Escorza Influence of the film distribution on the fluid dynamics of viscous falling films
- 28 Luis Ignatio Gil Membrado Evaluation of new technology routes towards low temperature cure anticorrosive epoxy coatings
- 29 Matthias Katte Start-Up and Optimisation of a Pilot Plant Mixer-Settler System for Lecithin Extraction
- 30 Christiane Döll Extraktion polarer Wirkstoffe mit kritischen und nahekritischen Kohlendioxid am Beispiel Rotklee
- 31 Jan-Christopher Kuschnerow Einsatz ionischer Fluide als Katalysator in der homogenen Reaktivdestillation unter Berücksichtigung reaktionskinetischer Aspekte

- 32 Jochen Hammerschmidt Fluid Flow Characteristics in Microchannels with Roughness
- 33 Angelika Hartmann Kontinuierliche Farbenherstellung mittels Mikroverfahrenstechnik
- 2008**
- 34 Laura Grundemann Kontinuierliche Herstellung dispersionsbasierter Schreibfarben mittels Mikroverfahrenstechnik
- 35 Julia Hornig Strömungsdiagnostik zu nichtreaktiven instationären Freistrahlen
- 36 Claudia Elster Betrieb, Bewertung und Optimierung einer Monoethanolamin-Wäsche im Pilotmaßstab zur Aufreinigung von Biogas auf Erdgasqualität
- 37 Pilar Molla Ferrando Experimental Investigation of the Influence of Roughness and Fluid Properties on Fluid Flow Characteristics in Microchannels
- 38 Ivan Lozano Escuria Influence of the film distribution on the minimum wetting rate of falling films
- 39 Felix Herlan Kontinuierlicher Biomasseaufschluss und Produktausschleusung mit Ionischen Flüssigkeiten
- 40 Niels Wellner Analysis and Reduction of Waste on a Manufacturing Line for Baked Products
- 41 Sebastian Buhlmann Eignung unterschiedlicher Mischprinzipien zur mikroverfahrenstechnischen Herstellung von Tinten

### **3.7 Promotionen**

#### **2007**

- Felix Weise Experimentelle Untersuchungen zur Strömung und Wärmeübertragung von Reinstoff-Fallfilmen mit hohen Prandtl-Zahlen

#### **2008**

- Matthias Wiendahl High Throughput Screening in Downstream Processing of Biotechnological Products

### 3.8 Kolloquium für Energie- und Verfahrenstechnik

#### Wintersemester 2006/2007

Prof. Dr. Arno Läsecke  
NIST Boulder/Colorado USA

100 Jahre 3. Hauptsatz der Thermodynamik – von Bedeutung für das Verständnis der Temperatur

Fritz Crotagino  
KBB Underground Technologies GmbH

Moderne Druckluftspeicherkraftwerke

Dr. Norbert Kockmann  
IMTEK Universität Freiburg

Convective Mixing in Microchannels with Reactive Particle Precipitation

#### Sommersemester 2007

Prof. Karl Strauss,  
Universität Dortmund

Simulation von Wirbelschichten

Dr. Rudolf Diersch  
GNS, Gesellschaft für Nuklear-Service mbH, Essen

Sicherheit von Verpackungen für Lagerung und Transport von bestrahlten Kernbrennstoffen

Dr.-Ing. Thomas Haas  
Degussa AG

Science to Business Center Bio der Degussa

Prof. Dr.-Ing. Birgit Glasmacher  
Universität Hannover

Medizinverfahrenstechnik an der Gottfried-Wilhelm-Leibniz-Universität Hannover

Prof. Dr.-Ing. Roland Span  
Ruhruniversität Bochum

Rückhaltung von Kohlendioxid aus Kraftwerksprozessen

#### Wintersemester 2007/2008

Dr. Walter Tromm  
Forschungszentrum Karlsruhe  
Programm Nukleare Sicherheitsforschung (NUKLEAR)

Reduzierung der Radiotoxizität hochradioaktiver Abfälle durch Partitioning und Transmutation, eine Alternative zur Endlagerung?

Dr. Jürgen J. Brandner  
Forschungszentrum Karlsruhe  
IMVT Institut für Mikroverfahrenstechnik

Mikroverfahrenstechnik – Ein Überblick über Apparate und Prozesse mit Mikrostrukturen

Prof. Dr.-Ing. Georg Fieg  
TU Hamburg-Harburg  
Prozess- und Anlagentechnik

Theoretische und experimentelle Untersuchungen des instationären Verhaltens von thermischen Trennprozessen

## Sommersemester 2008

Dipl.-Ing. Konstantin Jonas  
Fraunhofer Institut für Verkehrs- und  
Infrastruktursysteme IVI, Dresden

In-situ Alterungsdiagnose und belastungsunabhängige Lebensdauerprognose von Polymer-Elektrolyt-Brennstoffzellensystemen

Werner Baierlein  
LINDE-KCA-DRESDEN GmbH,  
Dresden

CO<sub>2</sub> – Entfernung aus Rauchgasen  
- Ein Beitrag des Anlagenbaus zum Umweltschutz -

## 4 Aktuelle Forschung

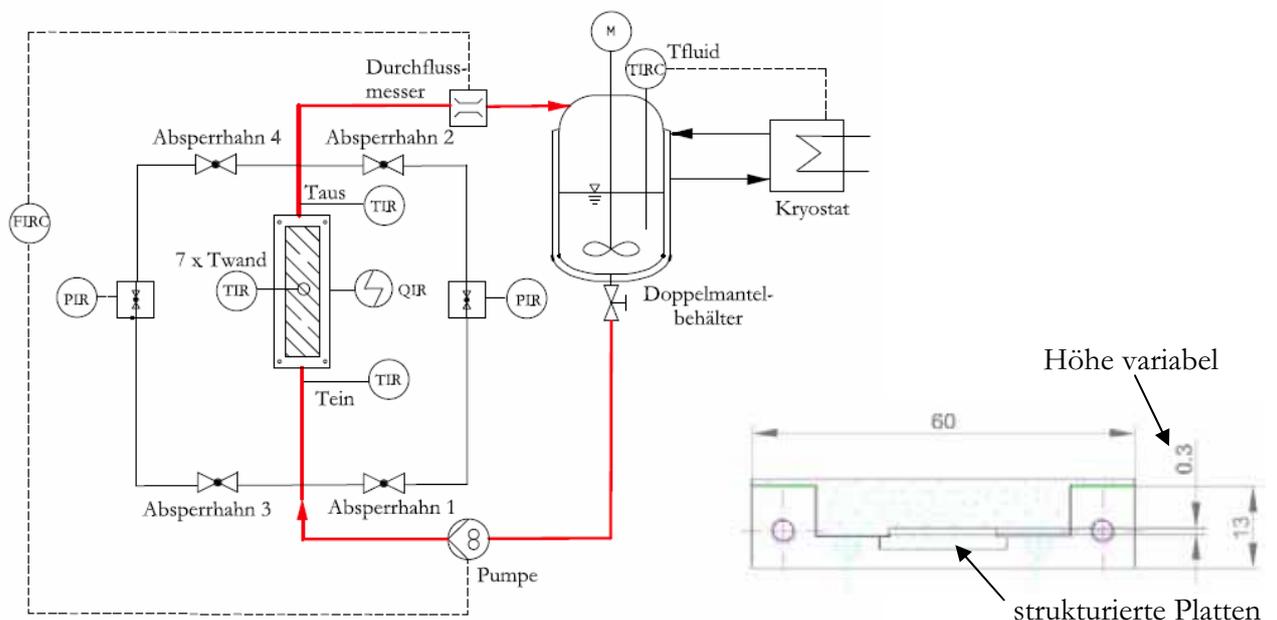
### 4.1 Wärme- und Stoffübertragung

#### 4.1.1 Untersuchung von dispersen Stoffsystemen in Mikrokomponenten (Dipl.-Ing. Katharina Jasch)

Wärmeübergang und Fluidodynamik in Mikrokanälen sind im letzten Jahrzehnt bereits sehr intensiv im Hinblick auf neue bzw. erweiterte Modelle sowohl experimentell als auch theoretisch untersucht worden. Nichtsdestotrotz herrscht gegenwärtig keine Übereinstimmung über Modellvorstellungen zur eindeutigen Beschreibung und Vorhersage des fluidodynamischen und thermodynamischen Verhaltens in Mikrokanälen. Es besteht lediglich Einigkeit darüber, dass die sog. Skaleneffekte, wie Einlaufeffekte, Temperaturabhängigkeit der Stoffwerte, Wärmeleitungseffekte, Dissipation oder Effekte bedingt durch Oberflächenbeschaffenheiten in Mikrosystemen berücksichtigt werden müssen, anders als in Makrokanälen, wo diese Eigenschaften meist vernachlässigt werden können. Viele Studien auf dem Gebiet der Mikrofluidik befassen sich mit einphasigen flüssigen und gasförmigen Stoffsystemen, aber auch mit mehrphasigen, hier insbesondere zweiphasigen Gas/flüssig- oder flüssig/flüssig-Systemen. Strömungen mit partikulären Bestandteilen wurden dahingegen aufgrund der erhöhten Verblockungs- bzw. Verstopfungsgefahr der mikroskaligen Prozesskomponenten bislang kaum untersucht. In diesem Forschungsprojekt wird deshalb der Einfluss von Oberflächenstrukturierungen auf die Fluidodynamik und den Wärmeübergang in ein- und schwerpunktmäßig in zweiphasigen partikulären Stoffsystemen experimentell und mittels numerischer Strömungssimulation untersucht.

Bei dem mehrphasigen Stoffsystem handelt es sich um eine Suspension bestehend aus einer wässrigen kontinuierlichen Phase und darin dispergierten Lipidnanopartikeln. Diese Lipidpartikel fungieren als Wirkstoffträgersysteme in pharmazeutischen Produkten und können selbst Agglomerate bestehend aus Primärpartikeln, wie z.B. Pigmente oder Proteine, enthalten oder an der Oberfläche adsorbiert haben. Von makroskopischen Kanälen mit aufgerauten Oberflächen ist bekannt, dass die Rauheiten in turbulenten Strömungen eine Verbesserung des konvektiven Wärmeübergangs durch die Störung der viskosen Unterschicht bewirken können. Bei laminarer Strömung hingegen konnten diese Effekte nicht festgestellt werden. Da in Kanälen mit sehr kleinen oder flachen Querschnitten nur schwer voll turbulente Strömungen erzeugt werden können, entsteht die Frage, ob trotz laminarer Strömungsverhältnisse in Mikrokanälen ebenfalls ein solcher Effekt, wie er in Makrokanälen mit Rauheiten zu beobachten ist, auftritt und messtechnisch erfasst werden kann.

Zu diesem Zweck wurde eine Versuchsapparatur mit einem Strömungskanal aufgebaut, der in der Höhe lediglich wenige hundert Mikrometer groß und dessen beheizbare Unterseite variabel austauschbar ist, damit verschiedene Oberflächenstrukturierungen untersucht werden können. Die folgende Abbildung zeigt den schematischen Versuchsaufbau:



**Abb. 4.1:** Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus

Das im Vorlagebehälter temperierte Fluid wird über eine Mikrozahnringpumpe durch den Testkanal im Kreis gefördert. Zur globalen Bilanzierung werden die Fluidtemperaturen am Ein- und Ausgang des Kanals sowie die Wandtemperaturen in der Mitte des Kanals direkt unterhalb der beheizten strukturierten Platte in Strömungsrichtung gemessen. Die Beheizung des Kanals erfolgt über eine im unteren Teil der Mikrokanalkonstruktion installierte elektrische Heizpatrone. Zur

Quantifizierung des Strömungsverlusts bedingt durch die Strukturierungen der Oberfläche wird der Druckverlust über der Messstrecke erfasst. Dazu sind auf jeder Seite des Kanals zwei Druckverlusttransmitter mit unterschiedlichen Messbereichen angeschlossen, die je nach Strömungsgeschwindigkeit über Absperrhähne vom System entkoppelt werden können. Ein zwischen Durchflussmesser und

**Tab. 4.1:** Versuchsbedingungen für den strukturierten Mikrokanal

Prozessbedingungen	
$d_h$	200, 300, 500 $\mu\text{m}$
$w$	$\leq 0,6$ m/s
$Re$	$\leq 600$
$\dot{q}$	$\approx 33.000$ W/m <sup>2</sup>
$T_{fl.,ein}$	20°C

Pumpe geschalteter Regler soll bei potentiellen Partikelablagerungen aus der Kolloidsuspension einen konstanten Durchfluss während der Messwertaufnahme gewährleisten. Die gegenwärtig realisierbaren Prozessparameter und Betriebsbedingungen sind in Tab. 4.1 zusammengefasst.

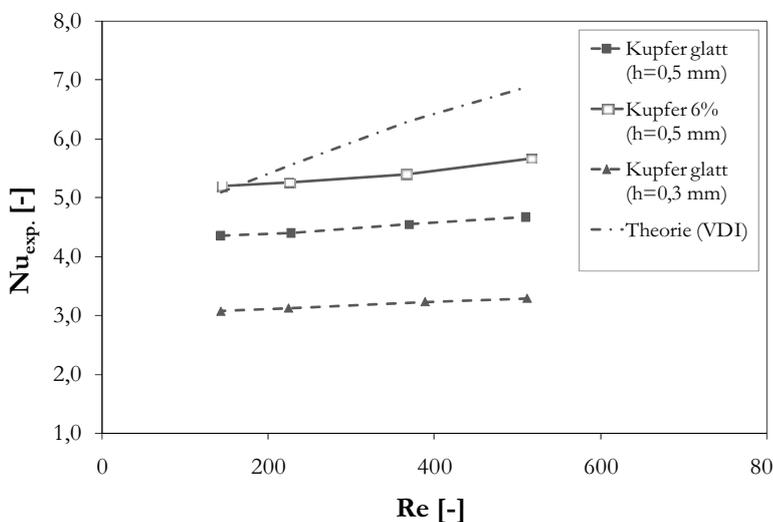
Als Strukturierungen werden u.a. Würfel mit Kantenlängen von ca. 100  $\mu\text{m}$  untersucht. Dabei sind die

Oberflächen unterschiedlich mit Strukturen belegt und die Würfel zudem noch unterschiedlich angeordnet. Die folgende Abbildung zeigt zwei verschiedene Varianten und eine vergrößerte Würfelstruktur auf einer Siliziumoberfläche.



**Abb. 4.2:** Beispiele von Strukturierungen unterschiedlicher Belegung

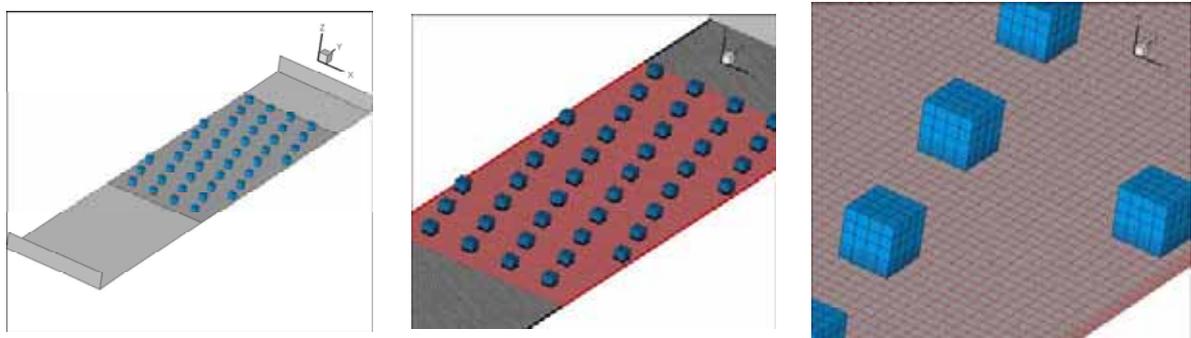
Die ersten Versuche mit deionisiertem Wasser für eine technisch glatte Oberfläche und für eine strukturierte Oberfläche (6% Belegung) sind in Abb. 4.3 dargestellt.



**Abb. 4.3:** Vergleich Wärmeübergang strukturierte und glatte Oberfläche

Aus Abb. 4.3 wird ersichtlich, dass trotz laminarer Strömungsverhältnisse mit der strukturierten Oberfläche eine Wärmeübergangsverbesserung von ca. 20% erzielt werden kann. Ein Vergleich mit theoretischen Werten für einen glatten Kanal, berechnet nach dem Ansatz einer hydrodynamisch ausgebildeten Laminarströmung und einer konstanten Wärmestromdichte nach dem VDI-Wärmeatlas, zeigt, dass anhand der Theorie der Verlauf der experimentellen Werte sowohl quantitativ als auch qualitativ nicht abgebildet werden kann. Von einer hydrodynamisch ausgebildeten Strömung kann in diesem Fall ausgegangen werden, da die theoretische Einlaufstrecke bei den vorherrschenden Reynolds-Zahlen lediglich 10 mm beträgt und der untersuchte Kanal einen Einlauf von 60 mm aufweist. Bei dem Vergleich mit theoretischen Ansätzen muss darauf geachtet werden, dass derartige Ansätze z. B. Randbedingungen voraussetzen, die in Mikrokanälen möglicherweise durch weitere Randeffekte ergänzt werden müssen. Ein Beispiel dafür ist die in Strömungsrichtung auftretende Temperaturdifferenz im Fluid, die im Mikrokanal wesentlich deutlicher ausgeprägt ist als in Makrokanälen. Aufgrund der laminaren Strömung ist außerdem davon auszugehen, dass in Strömungsrichtung eine nicht vernachlässigbare Wärmeleitung im Fluid aber auch in den Kanalwänden stattfindet, die bei der Berechnung des Wärmeübergangs neben dem konvektiven Anteil berücksichtigt werden muss.

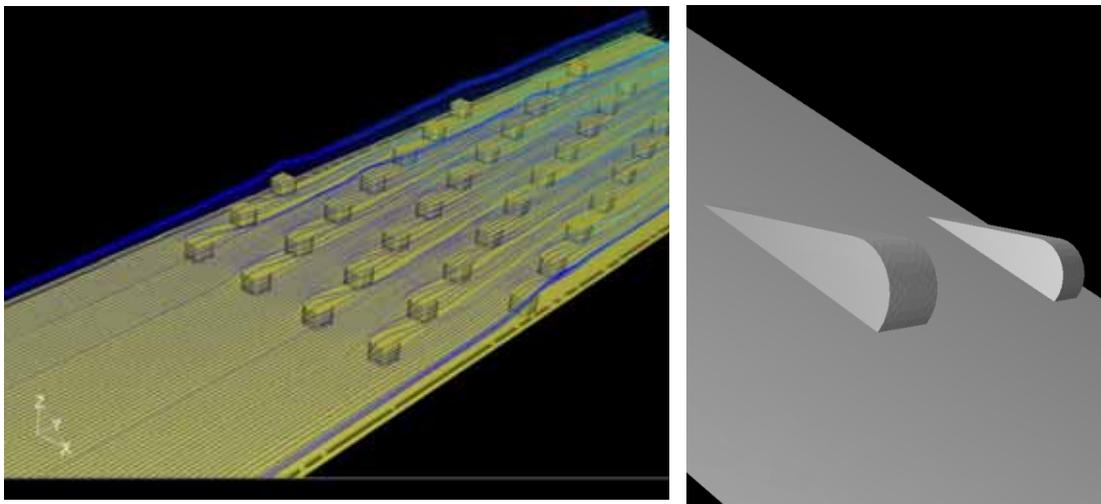
Neben den experimentellen Versuchen sollen die Fluid- und Thermodynamik auch mittels numerischer Simulation nachgebildet werden. Die Simulation ist dabei zum einen ein Werkzeug, mit dem ohne großen experimentellen Aufwand zahlreiche verschiedene Strukturen getestet werden können und letztendlich eine Vorauswahl an Strukturierungen getroffen werden kann, bevor sie aufwendig produziert und in Experimenten eingesetzt werden. Die in Abb. 4.2 gezeigten Würfelstrukturen wurden daraufhin mit dem kommerziellen Softwaretool Gambit erstellt und vergittert und ihre Auswirkung auf eine ein- und mehrphasige Fluidströmung mit dem CFD-Code Fluent berechnet. Da die Rechendauer und –leistung einer CFD-Simulation durch die Gitterzellenanzahl und die Gitterqualität begrenzt sind, ist es nicht möglich, den in den Experimenten verwendeten Mikrokanal in seinem



**Abb. 4.4:** Gesamte Geometrie Modellsystem (links); Vergitterung des Modells und der Würfelstrukturen

realen Längen-zu-Breiten-Verhältnis abzubilden. Dennoch kann anhand des Modellsystems die Fluid- und Thermodynamik qualitativ nachgebildet werden. In den Grafiken in Abb. 4.4 ist ein Beispiel einer Geometrie und des dazugehörigen Rechengitters gezeigt.

Die numerische Berechnung dieses Modells liefert nicht nur globale Ergebnisse für den Wärmeübergang, wie er zur Zeit experimentell bestimmt wird, sondern auch lokale Werte für die Nusselt-Zahl oder andere Parameter. Darüber hinaus ist es möglich, den Verlauf von Strömungslinien über den Strukturen anzeigen zu lassen, so dass daraus bereits eine erste Einschätzung bezüglich der Effektivität der Strukturen gewonnen werden kann. Eine solche Lösung, für die die Strömungslinien über einer strukturierten Oberfläche berechnet wurden, ist in Abb. 4.5 gezeigt.



**Abb. 4.5:** Darstellung von Ribletstrukturen (rechts) und Strömungslinien über Würfelstrukturen (links)

Die numerischen Berechnungen von vier verschiedenen Strukturen mit unterschiedlichen Oberflächenbelegungen (6%, 25%), aber auch verschiedenen Geometrien (Würfel, Riblets) und Anordnungen (6%: um 45° gedrehte Würfel; 25%: in Reihe angeordnete Würfel) haben gezeigt, dass für Reynolds-Zahlen bis  $Re = 2600$  mit einer 6%igen Belegung im Vergleich zu den 25%igen Belegungen ein höherer Wärmeübergangskoeffizient erzielt wird. Ein direkter Vergleich der Würfelstrukturen mit den Ribletstrukturen, die in Abb. 4.5 rechts gezeigt sind, ergab über den gesamten Reynolds-Zahlenbereich für die Riblets eine um ca. 4% höhere Nusselt-Zahl. Wie auch bereits bei den experimentellen Ergebnissen festgestellt werden musste, liegen die numerisch ermittelten Werte für die Nusselt-Zahl unterhalb der Theorie, berechnet nach dem VDI-Wärmeatlas. Zudem ergaben die numerischen Berechnungen der strukturierten Oberflächen verglichen mit den Ergebnissen eines glatten Kanals ohne Strukturen, dass lediglich mit den Riblets eine Verbesserung des Wärmeübergangs erzielt werden kann. Während mit den Würfelstrukturen einer 6 %igen Belegung weder eine Verbesserung noch eine Verschlechterung festgestellt werden konnte, bewirkten die Strukturen mit einer

25% igen Belegung nach den numerischen Berechnungen eine deutliche Verschlechterung des Wärmeübergangs.

Bei der Betrachtung der numerischen Ergebnisse muss allerdings erwähnt werden, dass das zunächst verwendete Gitter keine optimale Qualität aufwies, welche jedoch bei neuen gegenwärtigen Berechnungen, deren Ergebnisse noch nicht vollständig vorliegen, stark verbessert werden konnte.

Berechnungen des Mehrphasenmodells wurden bislang lediglich mit dem Euler-Euler Modell durchgeführt, welches die größte Rechenkapazität und den höchsten Zeitaufwand erfordert. Die Ergebnisse unter Verwendung des Mehrphasenmodells bei der Berechnung einer wässrigen Suspension mit festen Nanopartikeln ergab im Vergleich zu der einphasigen Simulation im Hinblick auf den Wärmeübergang keine erfassbaren Unterschiede. Inwieweit das verwendete Modell im Vergleich zu dem Discrete-Phase-Modell, bei dem im Gegensatz zum Euler-Euler Modell eine reale feste Phase berechnet wird, für das untersuchte Stoffsystem geeignet ist, müssen weitere Berechnungen mit dem neuen Gitter zeigen.

Gegenwärtige und zukünftige Arbeiten des Forschungsvorhabens:

a) Experimentell:

- Erweiterung des Strömungsbereichs bis hin zu Reynoldzahlen von  $Re = 3000$
- Untersuchungen der lokalen Strömungsbedingungen mittels Mikro Particle Image Velocimetry ( $\mu$ PIV) in Zusammenarbeit mit der DFG-Forschergruppe „mikroPART“
- Untersuchungen lokaler Temperaturfelder mittels Laser Induzierter Fluoreszenz (LIF) in Zusammenarbeit mit der DFG-Forschergruppe „mikroPART“
- Untersuchungen zum gezielten Abkühlen von Kolloidemulsionen zur Herstellung von Lipidnanopartikeln in strukturierten Mikrokanälen als Alternative zu herkömmlichen Mikrowärmeübertragern (siehe auch Kap. 4.4.3)

b) Numerische Strömungssimulation:

- Überprüfung der Wärmebilanzen und Auswertemethoden
- Validierung der Ergebnisse mit experimentellen Untersuchungen
- Erweiterung und Anpassung der Mehrphasensimulation; Verwendung des Discrete-Phase-Modells
- Vergleich und Validierung der  $\mu$ PIV Aufnahmen mit Strömungssimulation
- Vorauswahl weiterer Strukturen anhand von einphasigen Berechnungen

#### 4.1.2 Wärmeübertragung an hochviskose Medien

(Dipl.-Ing. Florian Albert)

Die Wärmeübertragung an hochviskose Medien zeigt in der Praxis häufig Abweichungen von dem mit theoretischen Modellen ermittelten Wärmeübertragungsverhalten. Stoffströme mit hohen Prandtl-Zahlen und/oder deutlich ausgeprägten Viskositätsgradienten in Abhängigkeit von der Temperatur treten an vielen Stellen der technischen Praxis auf, in der Erdöl- und Kunststoff- speziell Polymerverarbeitung ebenso wie in biotechnologischen Prozessen. Die einphasige Wärmeübertragung, d.h. Abkühlung oder Aufheizung eines solchen Stromes, stellt dabei ein besonderes Problem dar, da ein starker Viskositätsanstieg mit sinkender Temperatur zu einer Minderung des Wärmetransports führt. In kritischen Fällen kann dies zur Ausbildung einer isolierenden, hochviskosen bis festen Randschicht führen, die eine weitere Wärmeübertragung nahezu vollständig unterbindet. Ziel in diesem Forschungsvorhaben war die Bewertung der existierenden, in ihren Berechnungsergebnissen mitunter stark differierenden Wärmeübergangskorrelationen sowie die Verbesserung bei der Vorausberechnung des Wärmeübergangs.

In der Literatur finden sich verschiedene Ansätze, die bestehenden Berechnungsgrundlagen für den einphasigen Wärmeübergang für niederviskose Stoffsysteme mit konstanten Stoffwerten auf temperaturabhängige Stoffeigenschaften erweitern, siehe Tab. 4.2. *Sieder und Tate* führten hierzu bereits 1936 einen Korrekturterm ein, bestehend aus dem Viskositätsverhältnis zwischen Kern- (bulk) und Wandviskosität und einem empirisch ermittelten Exponenten  $p$ . Die Literaturangaben zum Exponenten  $p$  variieren je nach Autor und Spektrum der Versuchsfluide jedoch deutlich.

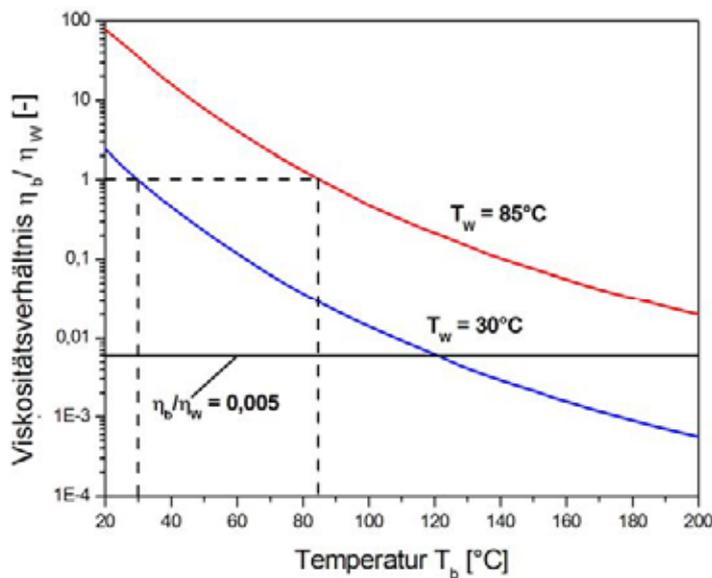
**Tab. 4.2** Korrekturansätze zur Berücksichtigung temperaturabhängiger Stoffwerte

$Nu = C^p \cdot Nu_0$	
$C = \frac{\eta_b}{\eta_w}$	
<i>Sieder und Tate</i> (1936)	$p = 0,14$
<i>Hausen</i> (1959)	$p = 0,14$
$C = \frac{Pr_b}{Pr_w}$	
<i>Yakovlev</i> (1957)	$p = 0,11$
<i>Kutateladse</i> (1968)	$p = 0,25$
<i>Hufschmidt und Burck</i> (1968)	$p = 0,11$

Die Methode nach *Sieder und Tate* sowie von *Hausen* findet unter Berücksichtigung neuerer Messdaten aktuell Eingang in die von der *Engineering Science Data Unit* (ESDU) publizierte Berechnungsmethode zum konvektiven Wärmeübergang. Mitte des 20. Jahrhunderts etablierten *Yakovlev, Kutateladse* sowie *Hufschmidt und Burck* einen Korrekturfaktor, basierend auf dem Verhältnis der Prandtl-Zahlen von Kern- und Wandströmung, ein Vorteil aus Ähnlichkeitstheoretischer Sicht

aufgrund des zusätzlichen Einflusses von Dichte, Wärmeleitfähigkeit und Wärmekapazität. Die im VDI-Wärmeatlas dokumentierte Berechnungsmethode zum einphasigen Wärmeübergang bei Rohrströmungen basiert auf dem Ansatz von *Hufschmidt und Burck*. Wandeffekte werden bei den heute einschlägigen Berechnungsansätzen durch einen Korrekturterm berücksichtigt. Wichtig ist hierbei die Frage nach den Gültigkeitsgrenzen der Methoden und damit nach dem Messbereich der hinterlegten experimentellen Daten.

Abb. 4.6 zeigt das Viskositätsverhältnis  $\eta_b/\eta_w$  abhängig von der Temperatur der Kernströmung für eine hochviskose Polymerschmelze mit starker Temperaturabhängigkeit der Prandtl-Zahl.



**Abb. 4.6:** Viskositätsverhältnis vs. Temperatur der Kernströmung

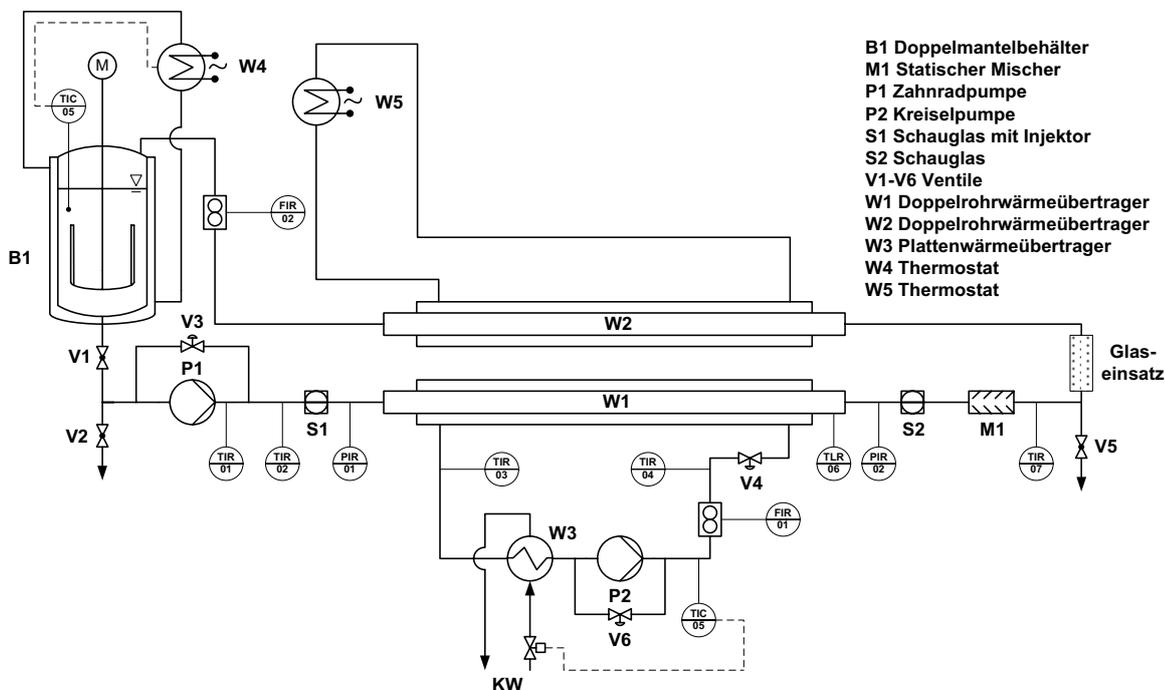
Die üblicherweise eingesetzten Wärmeübergangskorrelationen sind für Viskositätsverhältnisse  $\eta_b/\eta_w \geq 0,005$  validiert. Das Diagramm verdeutlicht die Verletzung dieser Gültigkeitsgrenze mit höheren Temperaturen der Kernströmung bei gleichzeitig geringer Wandtemperatur. Diese Situation tritt insbesondere bei der Abkühlung von Polymerschmelzen auf und war Anlass für die vorliegenden Untersuchungen.

Zur Untersuchung des konvektiven Wärmeübergangs an Medien mit einem Viskositätsverhältnis  $\eta_b/\eta_w \ll 0,005$  wurden entsprechende experimentelle Untersuchungen durchgeführt. Als zweites Stoffsystem wurde ein Polymer eingesetzt, das zwar newtonsches Verhalten aufweist, bei einer hohen Absolutviskosität jedoch das Verhältnis von  $\eta_b/\eta_w$  außerhalb der Gültigkeitsgrenzen der etablierten Rechenmethoden liegt.

Zur Beurteilung des Wärmeübergangs viskoser Fluide mit stark temperaturabhängiger Prandtl-Zahl wurde die im folgenden beschriebene und in Abb. 4.7 dargestellte Versuchsanlage eingesetzt. Die experimentellen Arbeiten beschränkten sich zunächst auf den Fall der Rohrströmung.

Das Versuchsmedium befindet sich im doppelwandigen Behälter B1, der durch im Thermostaten W4 erwärmtes Öl beheizt wird. Mittels Zahnrادpumpe P1 wird das Versuchsmedium durch die Messstrecke, den Doppelrohrwärmeübertrager W1, gefördert. Das Innenrohr der Messstrecke hat dabei die Geometrie  $d_a \times s \times L = 20 \times 2 \times 2000$  mm. Das Mantelrohr hat bei gleicher Länge einen Innendurchmesser von 36 mm. Der Wärmeübertrager W1 wird im Gegenstrom von Kühlwasser

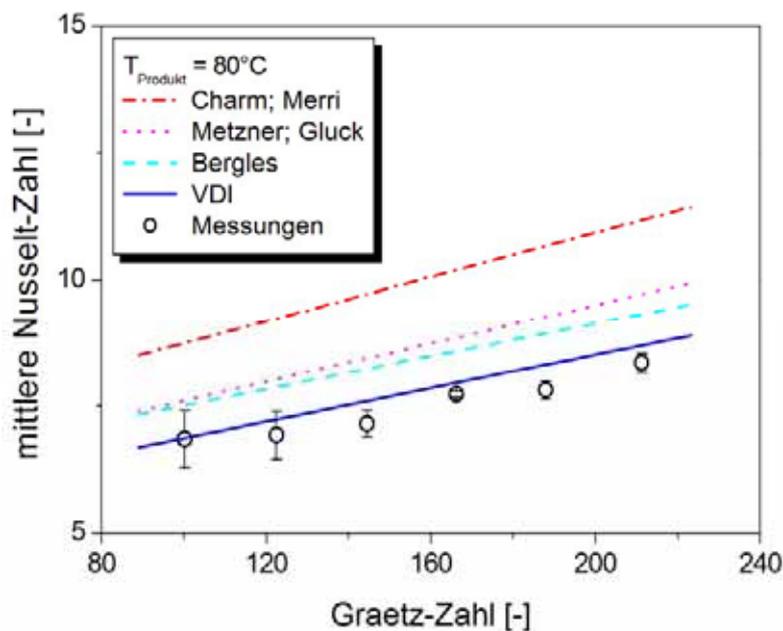
durchströmt. Das Kühlwasser wird in einem zweiten Kühlkreislauf temperiert und über den Plattenwärmeübertrager W3 in die Versuchsanlage geführt. Mit den Thermoelementen TIR 02 und TIR 07 des Produktstromes sowie durch die Thermoelemente TIR 03 und TIR 04 des Kühlwasserstromes kann die Wärmebilanz um den Doppelrohrwärmeübertrager W1 kühlwasser- wie produktseitig bestimmt werden. Um die mittlere Ausgangstemperatur an der Stelle TIR 07 des Produktstromes messen zu können, wird das Temperaturprofil zuvor mit einem statischen Mischer ausgeglichen. Unmittelbar hinter dem Wärmeübertrager W1 befindet sich ein verschiebbares Thermoelement TIR 06, um den radialen Temperaturgradienten im Rohrquerschnitt ermitteln zu können. Um eine zu starke Abkühlung des Mediums zu vermeiden, wird das Versuchsmedium, bevor es in den Behälter B1 zurück gelangt, durch den Wärmeübertrager W2 geführt. Der Doppelrohrwärmeübertrager W2 wird im Gegenstrom mit heißem Öl aus dem Thermostaten W5 betrieben.



**Abb. 4.7:** Versuchsanlage zur Messung der Wärmeübertragung an hochviskose Stoffe

Alle Rohre sind mit Steinwolle isoliert und teilweise begleitend durch Heizschnüre extern beheizt. Durch den in der Edelstahlleitung eingebrachten Glaseinsatz werden Verfälschungen der Messergebnisse am Thermoelement TIR 07 durch axiale Wärmeleitung seitens des Wärmeübertragers W2 vermieden. Schaugläser (S1, S2) vor und hinter dem Doppelrohrwärmeübertrager W1 ermöglichen die optische Beobachtung des Strömungsverhaltens des Mediums. Der Produktmassenstrom wird mit Hilfe eines Coriolis-Durchflussmengenmessers FIR 02 ermittelt, während im Kühlkreislauf der Volumenstrom induktiv gemessen wird (FIR 01). Alle Temperaturen sowie die Volumenströme werden online von einer Messdatenerfassung aufgezeichnet.

Das zunächst eingesetzte Stoffsystem Carboxymethylcellulose (CMC) weist im untersuchten Bereich strukturviskoses Verhalten auf. Die Berechnung des Wärmeübergangs nicht-newtonscher Fluide erfolgt unter Berücksichtigung der relativen Wandschergeschwindigkeit am Austritt und/oder des Fließindex in der Viskositätsfunktion. Damit findet die Abhängigkeit der Viskosität von der Scherrate bei nicht-newtonschen Medien Eingang in die Berechnung. Messungen des Wärmeübergangs bei Stoffsystemen geringerer Temperaturabhängigkeit der Prandtl-Zahl, wie hier bei der wässrigen CMC-Lösung, zeigen, dass die etablierten Rechenmethoden, dokumentiert z. B. im VDI-Wärmeatlas, die Praxis insbesondere unter

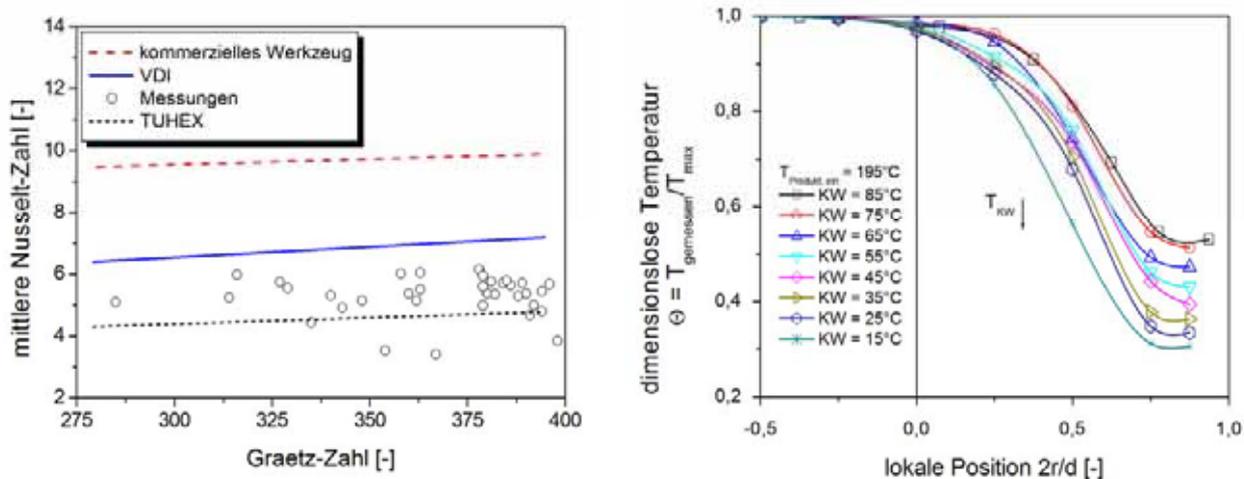


**Abb. 4.8:** Wärmeübergang einer wässrigen CMC-Lösung

zu 20 % überschätzt. Ältere Ansätze nach *Sieder und Tate* oder *Hausen* liegen mit bis zu 70 %, die Methoden verschiedener kommerzieller Berechnungswerkzeuge zur Wärmeübertragerauslegung sogar weit darüber hinaus auf der unsicheren Seite, was zu einem deutlich unterdimensionierten Apparat führen kann. Ein Näherungsansatz unter dem Namen TUHEX, der seitens der BASF SE entwickelt und mittels experimenteller Daten des ICTV validiert wurde, ermöglicht eine Vorausberechnung des Wärmeübergangs im Rahmen der Messungenauigkeiten. Das Berechnungswerkzeug basiert dabei auf einer approximativen numerischen Lösung der gekoppelten rigorosen Impuls- und Wärmetransportgleichungen.

Berücksichtigung der Messunsicherheit, hinreichend genau beschreiben, siehe Abb. 4.8. Das Verhältnis  $\eta_b/\eta_w$  liegt mit  $\eta_b/\eta_w = 0,05 - 0,1$  innerhalb der Gültigkeitsgrenzen üblicher Berechnungsmethoden.

Für das zweite Stoffsystem, eine viskose Polymerschmelze mit newtonschem Fließverhalten, zeigt Abb. 4.9 eine Gegenüberstellung experimenteller und berechneter Werte. Man erkennt, dass der konventionelle Berechnungsansatz nach VDI-Wärmeatlas den Wärmeübergang um bis



**Abb. 4.9:** Messung zum Wärmeübergang sowie radiale Temperaturverläufe einer Polymerschmelze

In Abb. 4.9 rechts sind die radialen Temperaturverteilungen über den Rohrquerschnitt der Polymerschmelze dargestellt. Gezeigt ist auf der Ordinate die gemessene lokale Temperatur bezogen auf die Maximaltemperatur der Bulkphase über der dimensionslosen radialen Ortskoordinate.  $2r/d = 0$  entspricht der Rohrachse,  $2r/d = 1$  der Wand. Man erkennt, dass alle gemessenen Profile eine deutlich ausgeprägte Randschicht anzeigen. Allerdings ist zu beachten, dass aufgrund der Anordnung der Temperaturprofilmessung Wärmeverluste über das verschiebbare Thermoelement nicht vollständig verhindert werden konnten, wodurch gewisse Messunsicherheiten zu berücksichtigen sind.

Da bei temperaturabhängigen Stoffwerten eine direkte Kopplung von Temperaturfeld und Strömungsfeld besteht, lässt sich qualitativ zeigen, dass die Temperaturmessungen eine Abweichung vom parabolischen Strömungsprofil nach Hagen-Poiseuille wiedergeben. Optische Messungen mit einer CCD-Kamera und injizierten Partikeln im Polymerstrom bestätigen dies. Mit abnehmender Kühlwassertemperatur und somit abnehmender Wandtemperatur schnürt sich die Strömung durch Erhöhung der Randschichtdicke zunehmend ein. Die gemessenen radialen Temperaturverläufe weisen noch eine deutlich ausgeprägtere Randzone aus. Die Asymmetrie des Profils resultiert aus der Nähe der Messstelle zum Kühlwasserzulauf auf der Mantelseite und der damit verbundenen Temperaturverteilung auf der Produktseite. Sie verdeutlicht zusätzlich die Sensibilität des Strömungsprofils bzgl. geringster Temperaturänderungen auf der Kühlwasserseite.

Weiterführende Arbeiten haben aufgrund der nachgewiesenen extrem geringen Nusselt-Zahlen zum Ziel, den Wärmeübergang im Hinblick auf einen minimalen apparativen Aufwand zu optimieren. Hierbei sollen unter anderem der Einfluss von Beschichtungen von Turbulenzpromotoren sowie statischen Mischern auf den Druckverlust betrachtet werden. Die CFD-Simulation soll als weiterer Ver-

gleich zu Messungen genutzt werden, gerade hinsichtlich einer möglichen Modellierung auf diesem Gebiet.

#### **4.1.3 Erweiterte Einsatzmöglichkeiten von Naturumlaufverdampfern durch Turbulenzpromotoren und strukturierte Rohre**

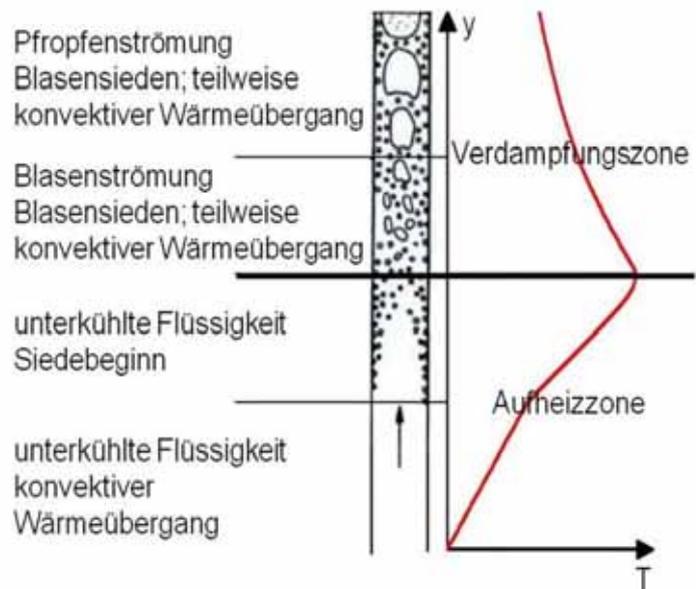
(Dipl.-Ing. Jochen Hammerschmidt)

Naturumlaufverdampfer (NUV) finden in der Industrie häufig Anwendung als Dampferzeuger für Rektifikationskolonnen oder bei der einstufigen Eindampfung. Der Selbstumlauf stellt sich aufgrund der hohen Dichte der unterkühlten Flüssigkeit im Zulaufrohr gegenüber der geringeren Dichte des zweiphasigen Flüssigkeits-/Dampfgemisches im Verdampferrohr ein. Durch diesen pumpenlosen Fluidumlauf erfährt das Produkt im Vergleich zu anderen Verdampfertypen eine sehr geringe Scherbelastung. Weitere Vorteile des Naturumlaufverdampfers sind ein guter Wärmeübergang, geringe Investitions- und Betriebskosten, eine einfache Bauweise bei freier Materialwahl und eine leichte Reinigbarkeit.

Die Nachteile des Verdampfers haben ihren Ursprung in der Kopplung von Fluidodynamik und Wärmeübergang. So ist eine minimale globale Temperaturdifferenz zwischen Heiz- und Produktseite und eine Mindestkonzentration an leicht siedender Komponente erforderlich, um einen stabilen Umlaufstrom zu gewährleisten. Die Reduzierung der thermischen Belastung durch Senken des Betriebsdrucks kann ebenso zu Störungen des Umlaufstroms führen, so dass Naturumlaufverdampfer in der Regel nur im Bereich des leichten Unterdrucks bis in den Überdruckbereich betrieben werden. Schließlich treten bei hochviskosen Flüssigkeiten große Druckverluste auf, was den Einsatz von Naturumlaufverdampfern für viskose Medien einschränkt.

Typische Einsatzgebiete von Naturumlaufverdampfern sind daher das Eindampfen wässriger Systeme, Kältemittel und kurzkettiger Kohlenwasserstoffe. Eine Erweiterung des Einsatzbereichs von Naturumlaufverdampfern zu geringen globalen Temperaturdifferenzen, niedrigen Betriebsdrucken und hohen Viskositäten bei geringen Leichtsiedergehalten ist wünschenswert, da einige scherempfindliche Produkte diese Anforderungen an den Verdampfer stellen, z.B. bei zur Ver crackung neigenden Polymeren.

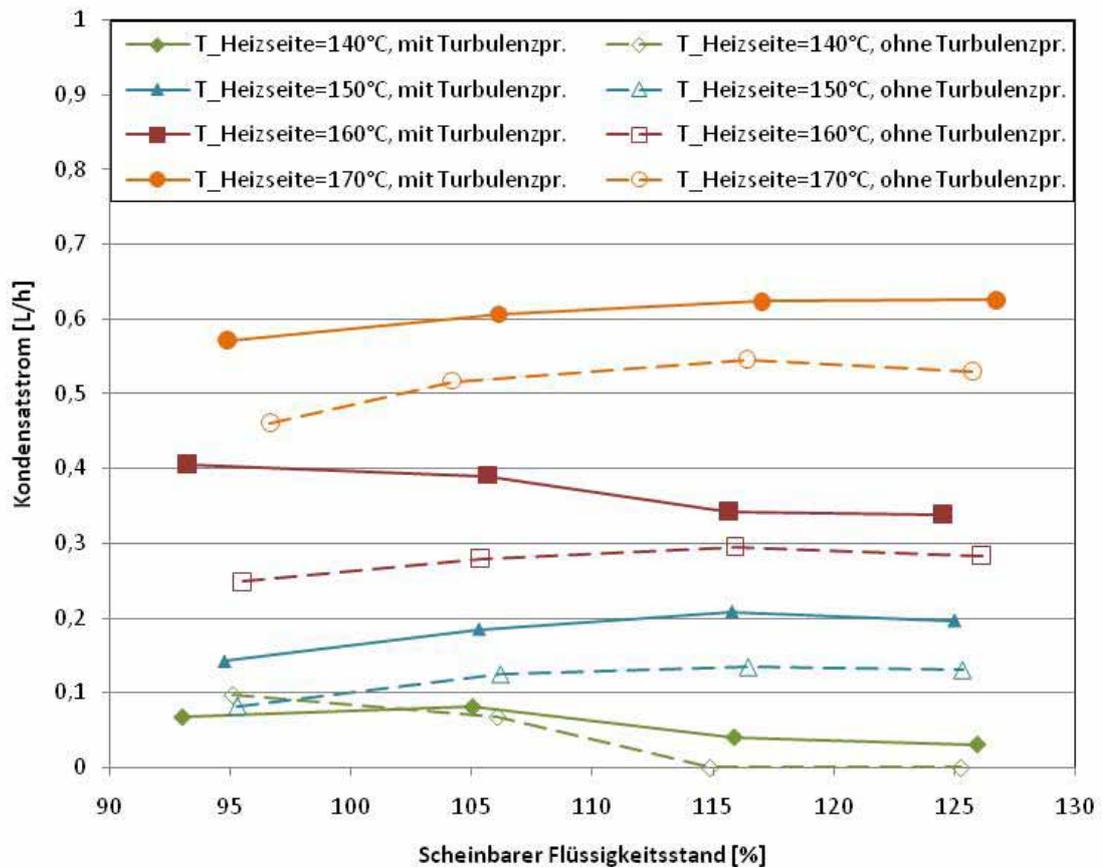
Um den Betriebsbereich von Naturumlaufverdampfern zu erweitern ist eine Stabilisierung des Umlaufstroms durch eine Erhöhung der verdampften Flüssigkeitsmenge erforderlich. Dies wird durch Einbauten und Strukturierungen im Verdampferrohr realisiert. Höhere Turbulenz und daraus resultierend ein besserer Wärmeübergang führen zu einer Verkürzung der Aufheizzone für die unterkühlte Flüssigkeit. Für die Verdampfung steht somit eine größere Verdampferrohrlänge zur Verfügung. In der Verdampfungszone bieten die Einbauten und Strukturierungen im Vergleich zum Leerrohr eine größere Fläche zur Keimstellenbildung von Dampfblasen an.



**Abb. 4.10:** Wärmeübergang und Verdampfung im NUV

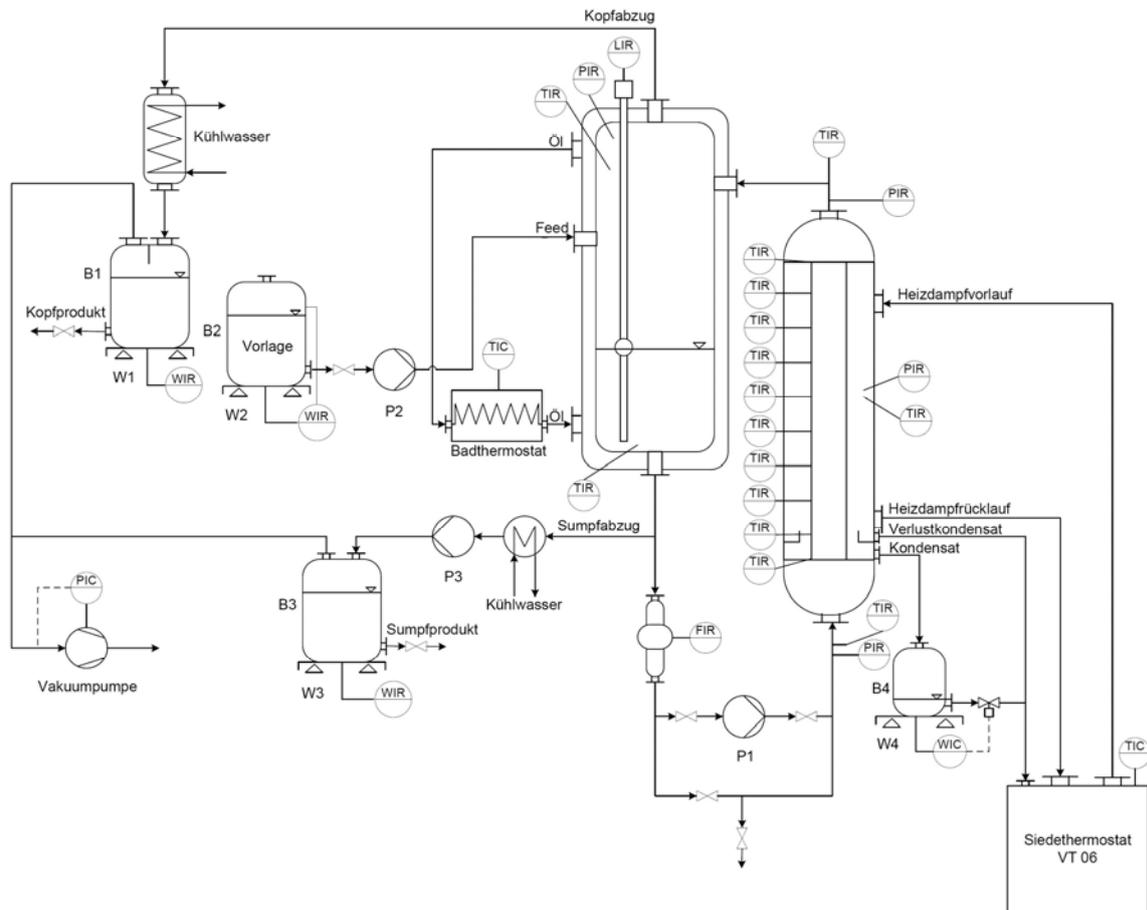
Um das Potential von Drahtgestrickeinbauten auf die Verdampfungsleistung abschätzen zu können, wurden Vorversuche an einem ölbeheizten Naturumlaufverdampfer mit einer Verdampferrohrgeometrie  $d_a \times s \times l = 25 \times 2 \times 800$  mm durchgeführt. Als Versuchsmedien dienten Wasser und ein 29 Mol-% Glycerin/Wasser-Gemisch. Neben Messungen im Glattrohr erfolgten Versuche mit hiTran®-Drahtgestrick-Einbauten der Firma Cal Gavin, GB. Diese wiesen das Rohrvolumen bezogene relative Schlaufenvolumina zwischen 0,6 und 3,5% auf.

Die Vorversuche zeigten vielversprechende Ergebnisse, siehe Abb. 4.11. Durch die Verwendung der Drahtgestrickeinbauten konnte der Wärmeübergang für kleine und mittlere treibende Temperaturdifferenzen von 20 - 40 K um bis zu 50% erhöht werden. Bedingt durch den besseren Wärmeübergang war eine deutliche Verkürzung der Aufheizzone festzustellen. Die Abhängigkeit des Produktumlaufs vom scheinbaren Flüssigkeitsstand wurde reduziert. Bei gleichzeitiger Stabilisierung des Umlaufstroms war durch den erhöhten Druckverlust der Einbauten eine Reduzierung um bis zu 30% festzustellen. Für  $T_{\text{Heiz}} = 140$  °C ist allerdings auch eine Erweiterung des Betriebsbereichs durch die Turbulenzpromotoren erkennbar. Während ohne Einbauten für 115% und 125% kein Kondensatstrom mehr anfiel, war mit Einbauten noch eine merkliche Verdampfung zu erreichen.



**Abb. 4.11:** Produktkondensat mit/ohne Turbulenzpromotoren bei variablen Heiztemperaturen bzw. scheinbaren Flüssigkeitsständen für ein 29 Mol-% Glycerin/Wasser-Gemisch

Aufgrund der Ölbeheizung liegt ein erheblicher Wärmeübergangswiderstand auf der Heizseite der Versuchsanlage vor. Um diesen zu verringern, wurde eine dampfbeheizte Versuchsanlage aufgebaut, dargestellt in Abb. 4.12. Durch die Beheizung mit Dampf organischer Lösungsmittel und Wasser können Versuche in einem großen Temperaturbereich durchgeführt werden. Mit den Maßen  $d_a \times s \times l = 20 \times 2 \times 1500$  mm entspricht das Länge/Durchmesser-Verhältnis der Verdampferrohrgeometrie der industriellen Praxis.



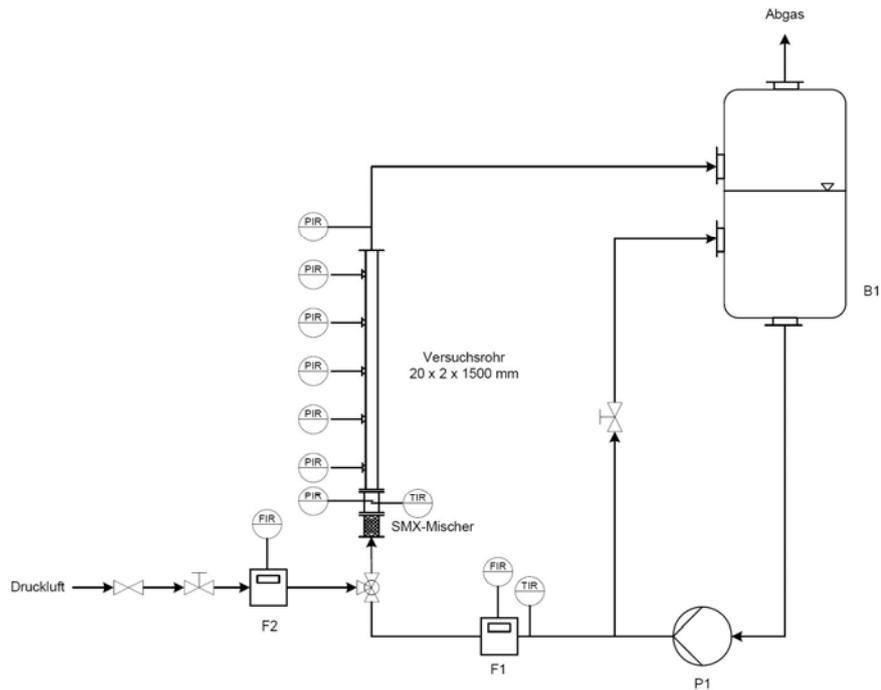
**Abb. 4.12:** Fließbild der dampfbeheizten Naturumlaufverdampferanlage

Um den Einfluss der Wärmeübertragungsvorgänge von der Fluidodynamik zu trennen und einzeln zu erfassen, sind drei unterschiedliche Experimente erforderlich:

- „kalte“ Messungen mit Zwangsumlauf und Luft als zweiter Phase zur Ermittlung des Druckverlusts und der Charakterisierung der Fluidodynamik
- Messungen zur einphasigen Wärmeübertragung mit Zwangsumlauf zur Ermittlung des Einflusses der Turbulenzpromotoren auf den einphasigen Wärmeübergang
- „heiße“ Messungen mit Naturumlauf und Verdampfung

Um sowohl die Messungen mit Zwangsumlauf und Naturumlauf durchführen zu können, lässt sich die Versuchsanlage zwischen diesen zwei Betriebsarten umschalten. Zur Erstellung der Stoff- und Energiebilanzen werden Temperaturen, Drücke und alle Massenströme (Umlaufstrom, Feed, Sumpfabzug, Leichtsieder-kondensat, Heizkondensat) erfasst.

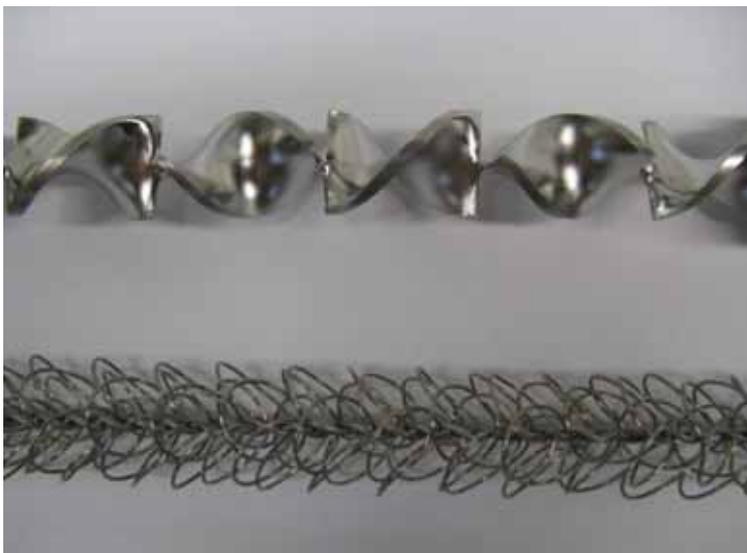
Die Ermittlung des Druckverlustes der Turbulenzpromotoren in einer Zweiphasenströmung erfolgt mit Hilfe einer Fluidodynamikanlage, entsprechend Abb. 4.13.



**Abb. 4.13:** Versuchsanlage zur Ermittlung der Fluidodynamik

Der Einfluss folgender Einbautentypen wird untersucht:

1. Glattrohr
2. Glattrohr mit hiTran® -Einbauten der Firma Cal Gavin, GB, bei ganzer und halber Rohrbestückung
3. Zwei strukturierte Rohre der Firma Wieland GmbH, Ulm
4. Ein innenbeschichtetes Rohr der Firma BASF SE, Ludwigshafen
5. Glattrohr mit Twisted-Tape Einbauten
6. Glattrohr mit Kenics-Mischer



**Abb. 4.14:** Untersuchte Turbulenzpromotoren: Twisted-Tape (oben), hiTran® -Element (unten)

Variiert werden hierbei die folgenden Parameter:

- Relativer Flüssigkeitsstand - zwischen 75 und 140 %
- Stoffsysteme - Wasser, Wasser/Glycerin  
- organisches Stoffsystem
- Druckbereich - atmosphärischer Druck  
- 500 mbar  
- 200 mbar
- Temperaturbereich fünf verschiedene globale Temperaturdifferenzen  
zwischen Heiz- und Produktseite

*Dieses Projekt wird aus Haushaltsmitteln des Bundesministeriums für Wirtschaft und Arbeit über die Arbeitsgemeinschaft industrieller Forschungsvereinigungen „Otto von Guericke“ e.V. (AiF) und der Forschungs-Gesellschaft Verfahrens-Technik e.V. (GVT) finanziell gefördert.*

#### **4.1.4 Fallfilmverdampfung von Reinstoffen bei hohen Prandtl-Zahlen**

(Dipl.-Ing. Stefanie Arndt)

Im Rahmen der Aufarbeitung nachwachsender Rohstoffe oder der Reinigung ionischer Fluide gewinnt die thermische Behandlung temperaturempfindlicher Flüssigkeiten verstärkt an Bedeutung. Der Einsatz der Fallfilmverdampfung ist hier, wie in den klassischen Bereichen der Fruchtsaftindampfung oder der Aufarbeitung von Polymeren, von Interesse. Diese Stoffgruppen weisen jedoch meist erhöhte Viskositäten und damit auch erhöhte Prandtl-Zahlen auf. Wie *Weise* (siehe Kap. 5.1) zeigen konnte, sind die bisherigen Berechnungsansätze jedoch nicht dazu geeignet, die Fluidodynamik und den Wärmeübergang von Reinstoffen wie auch von Gemischen zu beschreiben, bei denen eine erhöhte Viskosität und damit eine erhöhte Prandtl-Zahl vorliegt. Bzgl. der Fluidodynamik konnte gezeigt werden, dass die Reynolds-Zahl allein nicht ausreicht zur Quantifizierung der Übergangsbedingungen zwischen verschiedenen Strömungsregimen. Die Ergebnisse deuten darauf hin, dass es einen bisher nicht erfassten Stoffeinfluss gibt. Die Messungen im Bereich der Wärmeübertragung bei hohen Prandtl-Zahlen mit Wasser, Monoethylenglykol, Propylenglykol und Cyclohexanol weisen ebenfalls darauf hin, dass es weitere stoffdatenabhängige Einflussgrößen gibt, die bisher in den Modellierungen nicht korrekt erfasst werden.

Diese Einflussgrößen, sowohl auf die Fluidodynamik als auch auf den Wärmeübergang, sollen anhand einer deutlich breiteren Datenbasis herausgearbeitet werden. Insbesondere im Bereich der Prandtl-Zahlen  $> 40$  ist eine Erweiterung der Datenbasis unumgänglich, um eine Modellierung zu ermöglichen. Anhand von Untersuchungen mit Wasser, Hexanol, Propylenglykol, 2,3-Butandiol und Cyclohexanol sollen die Stoffdaten wie Dampfdruck, Viskosität, Wärmeleitfähigkeit, Dichte und Grenzflächenspannung, welche in den dimensionslosen Kennzahlen Prandtl und Kapitza zusammengefasst werden, gezielt variiert werden, um die Einflussgrößen auf Fluidodynamik und Wärmeübergang ermitteln zu können. Darüber hinaus

sollen auch apparative Einflussgrößen, wie z. B. Oberflächenqualität des beheizten Rohres sowie die Flüssigkeitsaufgabe, untersucht werden.

#### *Versuchsanlage und Messtechnik*

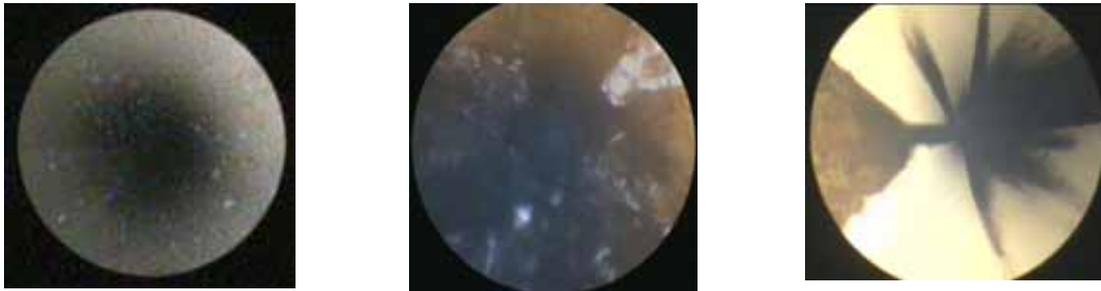
Für das Projekt wurde eine neue Fallfilmanlage gebaut. Ihr Kernstück ist ein innen berieseltes Einrohr-Fallfilmverdampfer aus Edelstahl. Das Rohr weist eine Geometrie von  $d_a \times s \times l = 36 \times 3 \times 2500$  mm auf. Obwohl messtechnisch schwer zugänglich, wird die Verdampfung an einem innen berieseltem Rohr und nicht z. B. an einer Platte oder einem außenberieseltem Rohr untersucht. Zum einen ist dies die technisch übliche Geometrie, zum anderen hängen gerade Strömungsregime und Filmstabilitäten, die einen Hauptteil der Untersuchungen bilden, wesentlich von der geometrischen Gestaltung der überströmten Fläche ab. Die Wandstärke wurde so gewählt, dass darin zwei Temperaturmessstellen mittels Thermoelementen über den Radius eingesenkt werden können. Der Innendurchmesser ergibt sich aus der in das Rohr einzuführenden Endoskopmesstechnik sowie einem hinreichend großen Ringraum zwischen Endoskop und Filmoberfläche. Die Rohrlänge folgt zum einen aus der Notwendigkeit der Integration in die vorhandene abgesaugte Kapelle sowie einer Minimierung von Einlaufeffekten. Folgt man dem Kriterium nach VDI-Wärmeatlas, so beansprucht der Einlauf maximal 12 % der Rohrlänge, d. h. über 88 % der Rohrlänge kann von ausgebildeten fluiddynamischen und thermischen Profilen ausgegangen werden.

Die Beheizung des Apparates wird über einen Siedethermostaten im geschlossenen Kreislauf gewährleistet. Die Heizdampf­temperatur liegt zwischen 60 °C und 200 °C. Das Gerät regelt die Temperatur intern oder extern über die Heizdampf- bzw. Kondensattemperatur. Durch die Verwendung hochreiner Beheizungsmedien (Wasser bzw. verschiedene Glykole) mit  $Pr < 10$  kann heizseitig der Wärmeübergang mit bekannten Berechnungsgleichungen bestimmt werden. Die getrennte, kontinuierliche Erfassung der Kondensatmengen auf der Rohraußenseite erlaubt eine energetische Bilanzierung. Neben Messstellen für den Durchfluss und den Druck wurden Temperatursensoren zur lokalen Bilanzierung integriert. Da die genaue Kenntnis der Stoffdaten bei den jeweils vorliegenden Verdampfungsbedingungen besonders kritisch ist, ist ein Massendurchflussmesser mit integrierter Dichtemessung vorgesehen.

#### *Untersuchungen zur Fluid­dynamik*

Um Aufschluss über die Vorgänge bei der Filmströmung zu erhalten, werden die über ein Videoendoskop gewonnenen Daten hinsichtlich des sich in Abhängigkeit der Stoff- und Betriebsdaten einstellenden Strömungszustandes erfasst. Zusätzlich werden die Wellengeschwindigkeiten und -frequenzen bestimmt. Die Voruntersuchungen haben belegt, dass mit einer Kombination aus visueller Beobachtung und quantitativer Auswertung der Wellengeschwindigkeiten der Strömungszustand, kritische Übergangsbereiche sowie quantitative Informationen zum Strömungsverhalten eindeutig und reproduzierbar ermittelt werden können. Die zum Endoskop mitgelieferte Software erlaubt die automatische Verfolgung und Quan-

tifizierung von Wellengeschwindigkeit und -frequenz (Tracking), so dass individuelle Messschwankungen weitgehend eliminiert werden können.



**Abb. 4.15:** Visualisierung mit einem Endoskop (Verdampfungsmedium Wasser, links ohne Verdampfung, Mitte mit ersten Blasen, rechts mit Entnetzung)

Mit dem Endoskop und einer Hochgeschwindigkeitskamera sollen drei Phänomene untersucht werden: Wellenbildung und -propagation, das Auftreten von Blasen sowie Filmaufreißen/Entnetzen. Priorität hat dabei das Erkennen erster Dampfblasen im Film sowie die Beobachtung und quantitative Auswertung von Wellenfrequenzen und -geschwindigkeiten. Abb. 4.15, Mitte, zeigt im rechten oberen Quadranten das Auftreten einer Blase. Diese ist durch die verstärkte Lichtreflexion gut zu erkennen.

Aus visuellen Beobachtungen und quantitativen Messungen zum Strömungsverhalten werden charakteristische Strömungsbereiche, wie laminar, laminar-wellig oder turbulent, identifiziert und die kritischen Übergangsbedingungen quantifiziert. Die Abgrenzung der Strömungsbereiche und Identifikation kritischer Kennzahlen soll auf Basis der Wellengeschwindigkeiten erfolgen. Für die so ermittelten kritischen Reynolds-Zahlen wird im ersten Ansatz in Anlehnung an *Ishigai et al.* der Strömungszustand als Funktion von Reynolds- und Kapitza-Zahl angesetzt. Daraus können allgemein gültige Beziehungen zur quantitativen Abgrenzung der Strömungsregime ermittelt werden. Die Ergebnisse werden sowohl mit eigenen Daten und in der Literatur vorhandenen Messungen abgeglichen. Zur Quantifizierung der Filmdicke abhängig von stofflichen und betrieblichen Parametern sollen die etablierten halbempirischen Ansätze, wie sie z. B. im VDI-Wärmeatlas und bei *Mitrovic* vorgeschlagen wurden, angewendet werden.

#### *Untersuchungen zur Wärmeübertragung*

Kernanliegen des Forschungsvorhabens ist die experimentelle Bestimmung von Wärmeübergangskoeffizienten  $\alpha$  bei der Fallfilmverdampfung von Reinstoffen bei hohen Prandtl-Zahlen abhängig von stofflichen, apparativen und betrieblichen Parametern. Dabei werden flächengemittelte Wert für  $\alpha$  bestimmt, da eine lokale Erfassung des übertragenen differentiellen Wärmestroms nur mit unverhältnismäßig großem Aufwand und zudem sehr fehlerbehaftet möglich wäre.

Die Bestimmung der filmseitigen Wärmeübergangskoeffizienten erfolgt in vier Schritten:

- a) Experimente mit kleinen Verdampfungsraten,
- b) Experimente mit erhöhten Verdampfungsraten, jedoch noch ohne erkennbare Blasenbildung,
- c) Experimente mit Entstehung erster Blasen,
- d) Experimente mit intensiver Blasenbildung, jedoch noch ohne Filmaufreißen.

*a) Experimente bei geringen Verdampfungsraten*

Bei gegebenen Bedingungen auf der Verdampfungsseite bzgl. Druck und Temperatur ist die Beheizungstemperatur so zu wählen, dass bei geringer Wärmestromdichte  $\dot{q}$  nur kleine Verdampfungsraten von ca. 5 % bezogen auf den in das Verdampferrohr eintretenden Strom erreicht werden. Damit ist die Änderung des Flüssigkeitsstroms und damit der Berieselungsdichte und der Reynolds-Zahl entlang des Rohres vernachlässigbar gering. Es kann mit einem über die Gesamtfläche gemittelten Wärmeübergangskoeffizienten  $\alpha_{VS}$  gerechnet werden.

Die heiz- und produktseitige Bilanzierung kann für alle Bereiche, wie bereits in der Arbeit von *Weise* durchgeführt, über die Masse des heiz- und produktseitigen Kondensates erfolgen. Die Bilanzen für Heiz- und Produktseite müssen dabei auf  $\pm 10\%$  übereinstimmen zur Verwendung des Datensatzes. Für die Wärmedurchgangsrechnung wird der so bestimmte bilanzielle Wärmestrom als Funktion der Einzelwiderstände dargestellt:

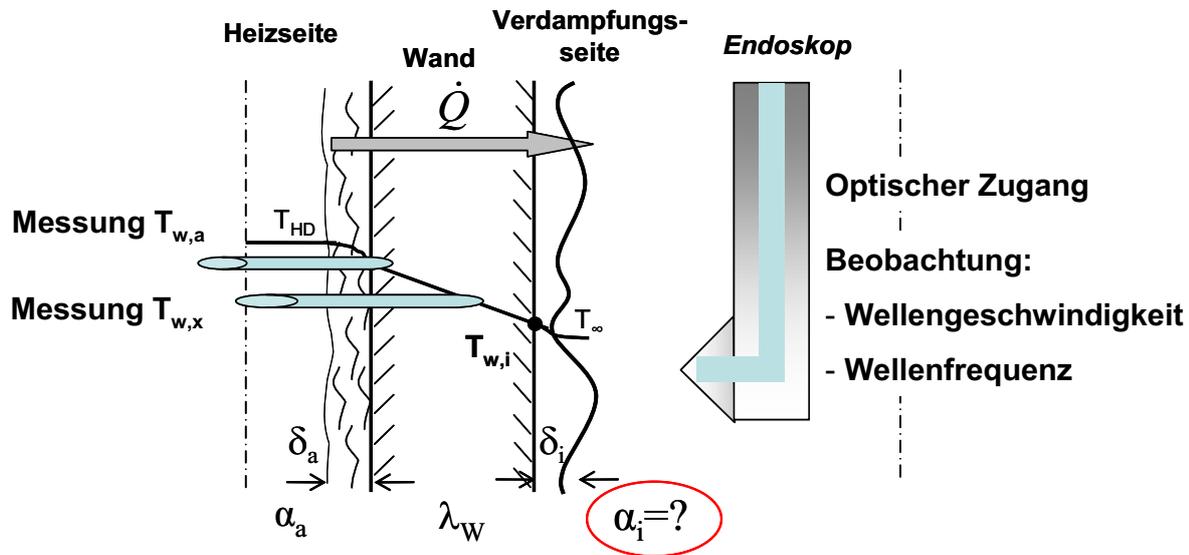
$$\dot{Q}_{Bilanz} = k \cdot A_a (T_{HS} - T_{VS}) \quad (4.1)$$

$T_{HS}$  und  $T_{VS}$  sind die Kerntemperaturen auf Heiz- bzw. Verdampfungsseite,  $A_a$  die auf den Rohraußendurchmesser bezogene Wärmeübertragungsfläche und  $k$  der Wärmedurchgangskoeffizient gemäß

$$\frac{1}{k} = \frac{1}{\alpha_{HS}} + \frac{d_a \ln(d_a/d_i)}{2 \cdot \lambda_w} + \frac{d_a}{d_i} \frac{1}{\alpha_{VS}} \quad (4.2)$$

Da auf beiden Seiten mit Reinstoffen gearbeitet wird, die in den fraglichen Temperaturbereichen nicht zur Belagbildung neigen, wird ein Foulingwiderstand nicht berücksichtigt. Der Wärmeübergangskoeffizient bei der Kondensation auf der Mantelseite kann mit etablierten Beziehungen nach dem VDI-Wärmeatlas berechnet werden. Für alle Beheizungsstoffe ist die Prandtl-Zahl bei Kondensationsbedingungen  $Pr \leq 12$ . Ebenso kann die Wärmeleitung durch die Rohrwand bei bekannter Wärmeleitfähigkeit ( $\lambda_{\text{Edelstahl}} = 14,7 \text{ W/m K}$ ) und Geometrie berechnet werden. Zusätzlich wird an fünf axialen Positionen im Verdampferrohr die Wandtemperatur an zwei verschiedenen radialen Positionen in der Rohrwand bestimmt. Abb. 4.16 skizziert die Positionierung in der Rohrwand. Diese Art der Tempera-

turmessung in der Wand wurde am ICTV bereits in mehreren Untersuchungen mit gutem Erfolg eingesetzt.



**Abb. 4.16:** Schematischer Messaufbau

Die Temperaturmessungen in der Wand dienen als Orientierungspunkte zu den berechneten Wandtemperaturen. Letztlich erhält man die Wandtemperatur auf der Verdampfungsseite  $T_{w,VS}$ . Damit und mit der Kerntemperatur auf der Verdampfungsseite kann dann der gesuchte Wärmeübergangskoeffizient  $\alpha_{VS}$  bestimmt werden:

$$\alpha_{VS} = \frac{\dot{Q}_{Bilanz}}{A_i (T_{w,VS} - T_{\infty,VS})} \quad (4.3)$$

$A_i$  ist die mit dem Rohrdurchmesser berechnete Fläche. Diese Vorgehensweise wird für die gesamten Parameterbereiche bzgl. Re, Pr und Ka in gleicher Weise angewendet.

*b) Experimente mit erhöhten Verdampfungsraten bzw. Wärmestromdichten ohne Blasenentstehung*

Mit Erhöhung der treibenden Temperaturdifferenzen zwischen Heiz- und Verdampfungsseite kann die Verdampfungsrate resp. Wärmestromdichte gesteigert werden. Durch die endoskopische Beobachtung des Fallfilms wird sichergestellt, dass keine Blasenbildung stattfindet. In dieser und allen folgenden Auswertungen wird das Rohr in max. 20 äquidistante Segmente unterteilt, um eine Änderung der fluiddynamischen und später wärmetechnischen Bedingungen entlang des Verdampfungsweges berücksichtigen zu können. Diese Experimentserie dient der Absicherung der zuvor ermittelten  $\alpha$ -Werte für Bedingungen, bei denen noch die gleichen Wärmeübertragungsmechanismen vorliegen sollten wie bei a).

*c) Experimente mit Entstehung erster Blasen*

Die Verdampfungsintensität resp. Wärmestromdichte wird weiter erhöht bis erste Blasen erkennbar sind. Mittels Endoskop kann festgestellt werden, in welchen

Abschnitten Blasen auftreten. Dort, wo blasenfreie Verdampfung vorliegt, kann segmentweise mit obigen Beziehungen für Oberflächenverdampfung gerechnet werden. Nach den Voruntersuchungen sollten Blasen allerdings entweder gar nicht oder über die gesamte Rohrlänge auftreten. Mit dem unter a) dargestellten Schema können dann Wärmeübergangskoeffizienten für den Zustand des beginnenden Blasensiedens ermittelt werden.

*d) Experimente mit intensiver Blasenbildung jedoch noch ohne Filmaufreißen*

Analog der Experimentserie b) sollen die unter c) bestimmten Wärmeübergangskoeffizienten für beginnendes Blasensieden auch bei gesteigerten Wärmestromdichten überprüft werden. Die Ergebnisse zum Wärmeübergang bei beginnendem Blasensieden sollten eine Abhängigkeit von der Wandüberhitzung aufweisen. Ein weiterer wesentlicher Einflussfaktor wird - neben den Stoffdaten - die Oberflächenqualität des Verdampfers sein. Daher werden alle Untersuchungen mit einem technisch glatten und in einem zweiten Durchgang mit einem elektropolierten Rohr durchgeführt. Dabei ist zu erwarten, dass bei identischen stofflichen und betrieblichen Bedingungen die Blasenbildung auf dem elektropolierten Rohr bei deutlich höheren Wärmestromdichten einsetzt als bei der technisch glatten Oberfläche.

Mit den endoskopischen Untersuchungen werden keine mikroskaligen Einblicke in Mechanismus und genauen Ort der Blasenentstehung erreicht. Vielmehr ist bei beginnender und weiter intensiver Blasenbildung ein Einfluss auf den verdampfungsseitigen Wärmeübergangskoeffizienten zu erwarten. Dieser Effekt auf den Wärmeübergangskoeffizienten soll verbunden werden mit visuellen Beobachtungen des Films, um so Wärmeübertragungsregime sicherer identifizieren und abgrenzen zu können.

*Modellbildung*

Aus den experimentell bestimmten Wärmeübergangskoeffizienten zur reinen Oberflächenverdampfung wird die Nusselt-Zahl berechnet.  $Nu_l$  kann als Grenzwert bei sehr kleinen Reynolds-Zahlen,  $Nu_t$  als Grenzwert bei sehr großen Reynolds-Zahlen bestimmt werden. Für die Nusseltzahl im laminaren Bereich wird angesetzt:

$$Nu_l = C_{1,l} \cdot Re^{a,l} \quad (4.4)$$

Für die Nusselt-Zahl bzw. den Wärmeübergangskoeffizienten im laminaren Bereich wird nur eine Abhängigkeit von der Reynolds-Zahl erwartet. Diese kann orientierend mit der berechneten mittleren Filmdicke  $\delta_F$  überprüft werden:

$$\alpha_{lam} \approx \frac{\lambda_F}{\delta_F} \quad (4.5)$$

Für die Nusselt-Zahl im turbulenten Bereich wird allgemein angesetzt:

$$Nu_t = C_{1,t} \cdot Re^{a,t} \cdot Pr^b \cdot Ka^c \quad (4.6)$$

Die Konstanten  $C_1$ ,  $a$ ,  $b$  und  $c$  werden durch simultane Regression aller Messpunkte ermittelt.

Auf Basis der Vorergebnisse soll eine Überlagerung von laminarem und turbulentem Beitrag zur integralen Nusselt-Zahl mit der fünften Potenz erprobt werden:

$$Nu = f_{\text{well}}(Nu_l^5 + Nu_t^5)^{1/5} \quad (4.7)$$

Der Welligkeitsparameter  $f_{\text{well}}$  erfasst den Einfluss des Übergangsbereichs wellig-laminar auf den Gesamtwärmeübergang. Die endoskopischen Beobachtungen unterstützen die Identifikation der einzelnen Strömungsregime und damit die korrekte Zuordnung der Modellgleichungen.

*Das Projekt wird gefördert von der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG).*

## 4.2 Fouling von Wärmeübertragern

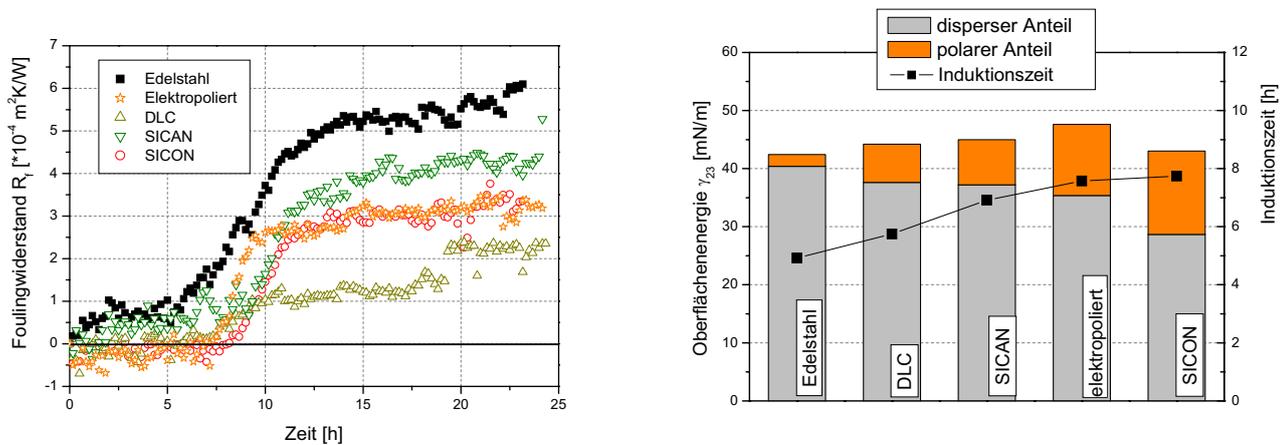
### 4.2.1 Verbesserung des Fouling- und Reinigungsverhaltens wärmeübertragender Flächen durch optimierte Oberflächenbeschichtung

(Dipl.-Ing. Florian Albert)

Die Verschmutzung bzw. Verkrustung von Wärmeübertragungsflächen wird im technischen Sprachgebrauch als Fouling bezeichnet und kann insbesondere in der petrochemischen, chemischen, lebensmittelverarbeitenden und pharmazeutischen Industrie große Probleme verursachen. Die Foulingschichten bewirken eine Zunahme des Wärmedurchgangswiderstandes und verringern dadurch die Leistung des Wärmeübertragers. Zudem führt eine Verringerung des Strömungsquerschnitts durch die ansteigende Belagbildung zu einem Anstieg des Druckverlustes. Dies führt in den meisten Fällen zu einer Erhöhung der Investitionen durch eine gezielte Überdimensionierung der Apparate. Ursache dieser Belagbildung können Kristallisation, Sedimentation, Korrosion sowie chemische Reaktion oder auch ein Bewuchs durch Mikroorganismen sein. Als mögliche Lösung des Problems wurde bereits der Einfluss mittels PACVD (Plasma Activated Chemical Vapour Deposition) abgeschiedener Kohlenstoffschichten untersucht. Dazu wurden Versuche mit dem Modellsystem  $\text{CaSO}_4$  in einem diskontinuierlichen Reaktor durchgeführt und die möglichen Einflussfaktoren, wie Oberflächenenergie und Rauheit, bestimmt. Es wurden sowohl die Topographie des Substrates verändert, als auch die Beschichtung modifiziert, um ein mögliches Optimum zu erreichen. Letzteres erfolgte in Zusammenarbeit mit dem Fraunhofer Institut für Schicht- und Oberflächentechnik (IST), Braunschweig.

Ziel dieses Forschungsprojektes ist es, die gewonnenen Erkenntnisse zur Foulingminderung von Modellsystemen auf industrielle Systeme zu überführen (scale-up). Hierzu kommt ein Doppelrohrwärmeübertrager mit innenbeschichteten Rohren zur Anwendung, der eine Übertragung auf reale Geometrien erlaubt. Neben dem kristallinen Modellstoff  $\text{CaSO}_4$  wird eine Molkeproteinlösung als

organisches Stoffsystem verwendet, um die Übertragbarkeit auf andere Stoffsysteme zu überprüfen.



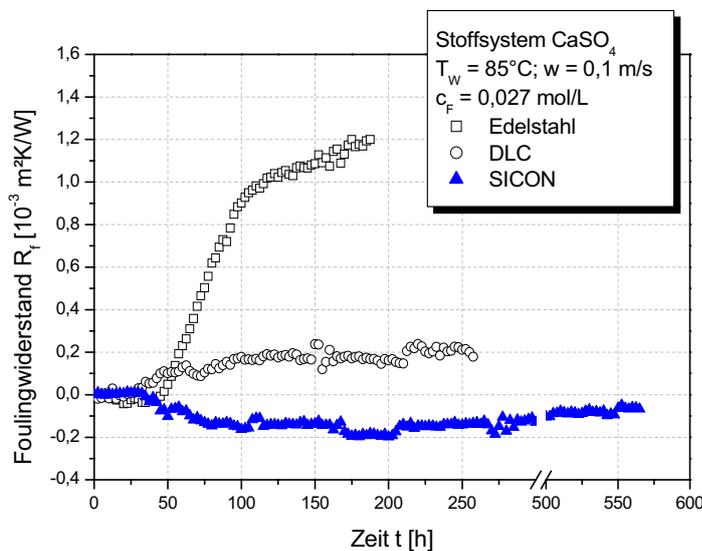
**Abb. 4.17:** Foulingversuche mit Variation der Oberflächentopographie

Abb. 4.17 gibt die Foulingwiderstände über der Zeit von unterschiedlichen Oberflächenbeschichtungen wieder. Das Versuchsstoffsystem ist Molkeproteinkonzentrat mit einem Proteinanteil von 3,5%. Alle Versuche wurden in einer diskontinuierlichen Screening-Apparatur durchgeführt. Hierbei wurde bewusst auf den Einfluss der Strömungsgeschwindigkeit verzichtet, um den Einfluss der Beschichtungen auf das Ablagerungsverhalten isoliert zu betrachten. Die Proteinlösung wird dabei über einen Doppelmantel des Vorlagebehälters auf konstante 50 °C gehalten. Ein gleichbleibender Wärmestrom von 175 W erzeugt eine durchschnittliche Wandtemperatur der wärmeübertragenden Fläche von 80,5 °C sowie eine Wärmestromdichte von  $q \approx 35 \text{ kW/m}^2$ . Bei allen Messungen zum Foulingwiderstand lässt sich ein sigmoidaler Verlauf erkennen. Wie schon bei dem in früheren Versuchen eingesetzten kristallinen Stoffsystem  $\text{CaSO}_4$  zeigt sich auch hier ein typischer Verlauf der Foulingkurven mit einer Aufteilung in Induktionsphase und Schichtwachstumsphase. Ebenso wie bei  $\text{CaSO}_4$  wird auch hier eine Verlängerung der Induktionszeit durch die verwendeten Beschichtungen, bzw. elektropolierten Proben sowie eine Verringerung des Foulingwiderstandes in der Schichtwachstumsphase erreicht. Trägt man die Oberflächenenergie gegen die Induktionszeit auf, siehe Abb. 4.17 rechts, so wird deutlich, dass mit steigendem polaren Anteil auch eine Steigerung der Induktionszeit zu erkennen ist. Auch hier kann man eine Analogie zu den Untersuchungen des kristallinen Fouling ziehen.

In weiterführenden Untersuchungen in einer Technikumsanlage wurde die Foulingneigung von unterschiedlichen Beschichtungen unter Einfluss der Strömungsgeschwindigkeit betrachtet. Abb. 4.18 zeigt die Ergebnisse verschiedener Beschichtungen im Vergleich zu Edelstahl im Stoffsystem  $\text{CaSO}_4$ . Die Resultate der Beschichtungen zeigen deutliche Unterschiede im Foulingverhalten im Vergleich zur unbeschichteten Referenzprobe Edelstahl. Im Fall der DLC-Beschichtung ist zwar eine kürzere Induktionsphase als bei Edelstahl zu erkennen,

jedoch fällt der Betrag des Foulingwiderstandes in der Schichtwachstumsphase deutlich geringer aus. Das beste Ergebnis konnte mit einer SICON<sup>®</sup> (a-C:H:Si:O) Beschichtung erreicht werden. Hier wurde auch nach einer Versuchszeit von knapp 600 Stunden die Induktionsphase noch nicht verlassen. Der negative Foulingverlauf resultiert hierbei aus der Bildung einzelner Kristalle an der Oberfläche. Es kommt dabei zu einer Erhöhung der Rauheit, was zu einer Steigerung der Turbulenz in der Strömungsgrenzschicht führt und somit zu einer Verbesserung des Wärmeübergangs.

Im Zuge des Projektes wurde die in Abb. 4.19 dargestellte Versuchsanlage aufgebaut und in Betrieb genommen. Die Miniplantanlage erlaubt Foulinguntersuchung in fluidisch beheizten Doppelrohrwärmeübertragern. Die Geometrie und Prozess-

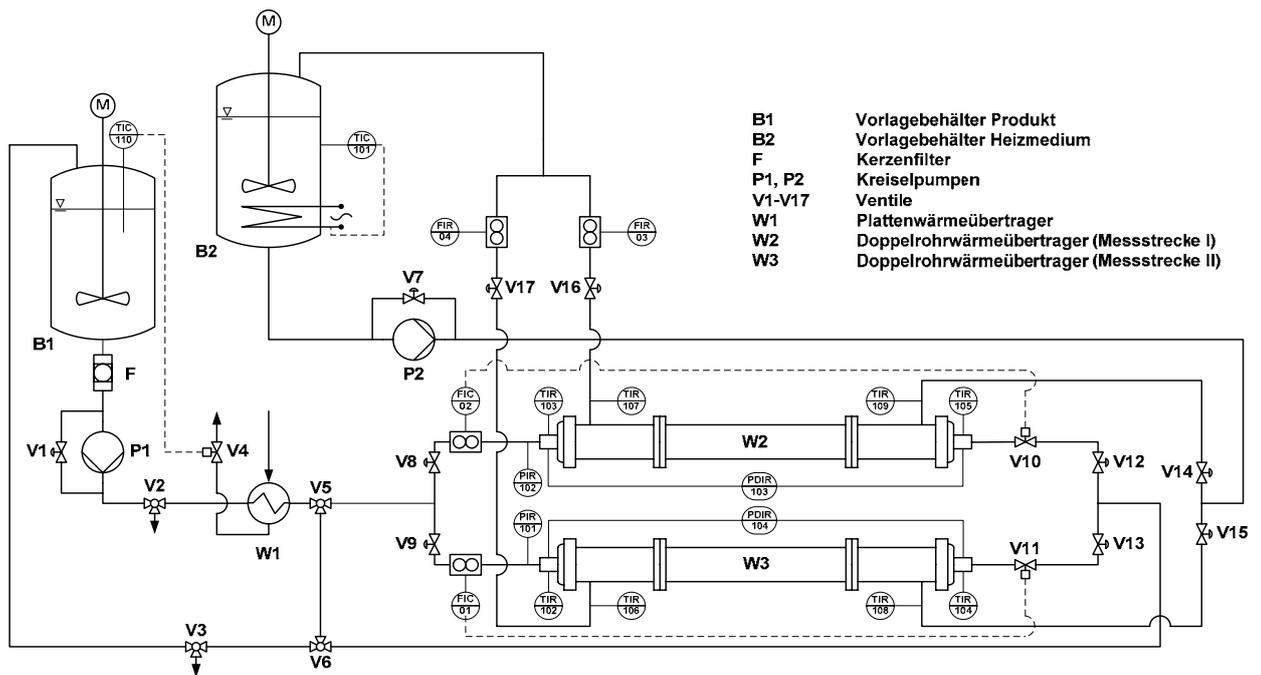


**Abb. 4.18:** Foulingkurven ausgesuchter Beschichtungen

bedingungen sind gezielt an industrielle Anwendungen angelehnt. Ziel ist es auch hier, unterschiedliche Innenbeschichtungen und Rohrrinnenstrukturen zu untersuchen. Die innenbeschichteten Rohre werden vom IST bereit gestellt. Dazu wurde eigens eine Demonstrationsanlage für die Innenbeschichtung von bis zu 2 Meter langen Rohren errichtet. Aufbauend auf den Ergebnissen des Vorgängerprojektes wurden zwei Ansätze zur Beschichtung ausgewählt, ein sogenannter Hohlkathoden- und ein PACVD-Ansatz. Beiden Ansätzen gemeinsam ist ein kathodisch geschaltetes Rohr, dass es zu beschichten gilt. Zurzeit befindet sich die Anlage in der Erprobungsphase. Die Abscheidung einer gleichmäßigen Schicht über die gesamte Rohrlänge stellt dabei die größte Herausforderung dar.

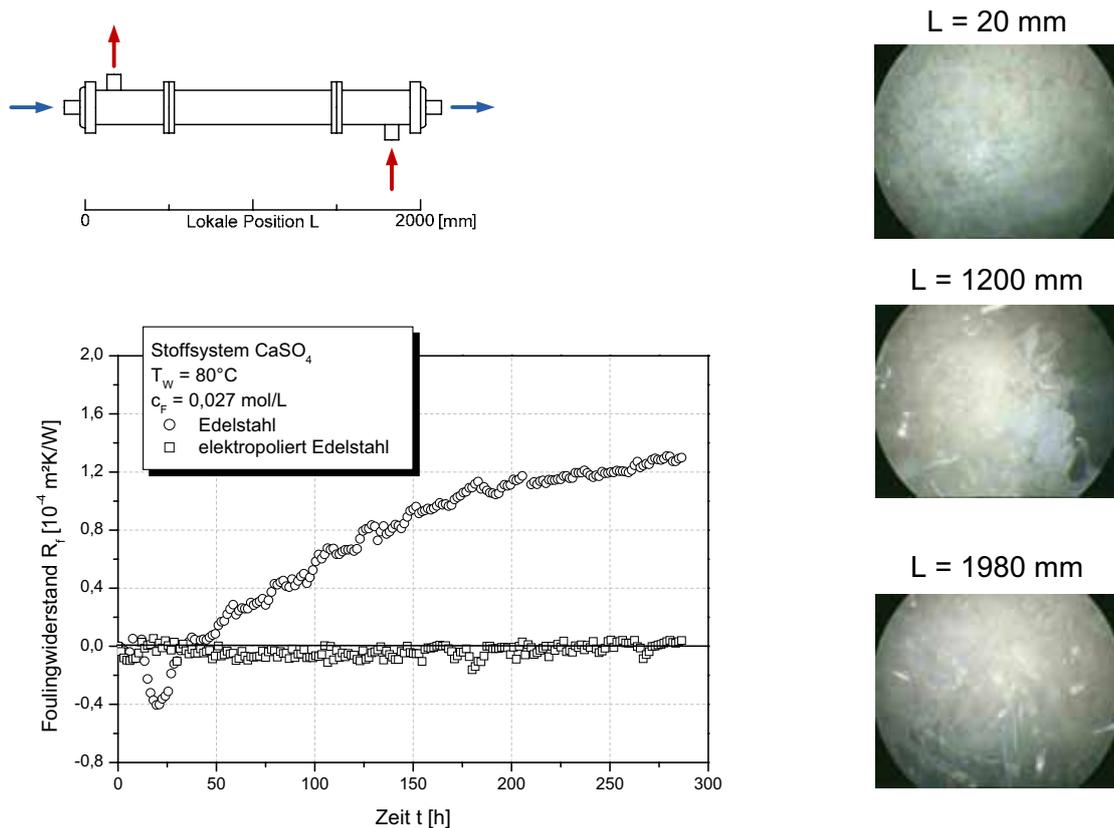
Der Versuchsstand Doppelrohrwärmeübertrager lässt sich in drei Bereiche aufteilen. Der erste Teilabschnitt setzt sich dabei aus zwei Vorlagebehältern zusammen. Der Behälter des mantelseitigen Heizmediums fasst 100 L und ist mit einem intern geregelten 14 kW Industrietauchsieder versehen. Im Vorlagebehälter der Versuchslösung (50 L) befindet sich ein Rührwerk, welches eine gleichmäßige Temperatur- sowie Konzentrationsverteilung einstellt.

Die Geometrie und Prozessbedingungen sind gezielt an industrielle Anwendungen angelehnt. Ziel ist es auch hier, unterschiedliche Innenbeschichtungen und Rohrrinnenstrukturen zu untersuchen. Die innenbeschichteten Rohre werden vom IST bereit gestellt. Dazu wurde eigens eine Demonstrationsanlage für die Innenbeschichtung von bis zu 2 Meter langen Rohren errichtet. Aufbauend auf den Ergebnissen des Vorgängerprojektes wurden zwei Ansätze zur Beschichtung ausgewählt, ein sogenannter Hohlkathoden-



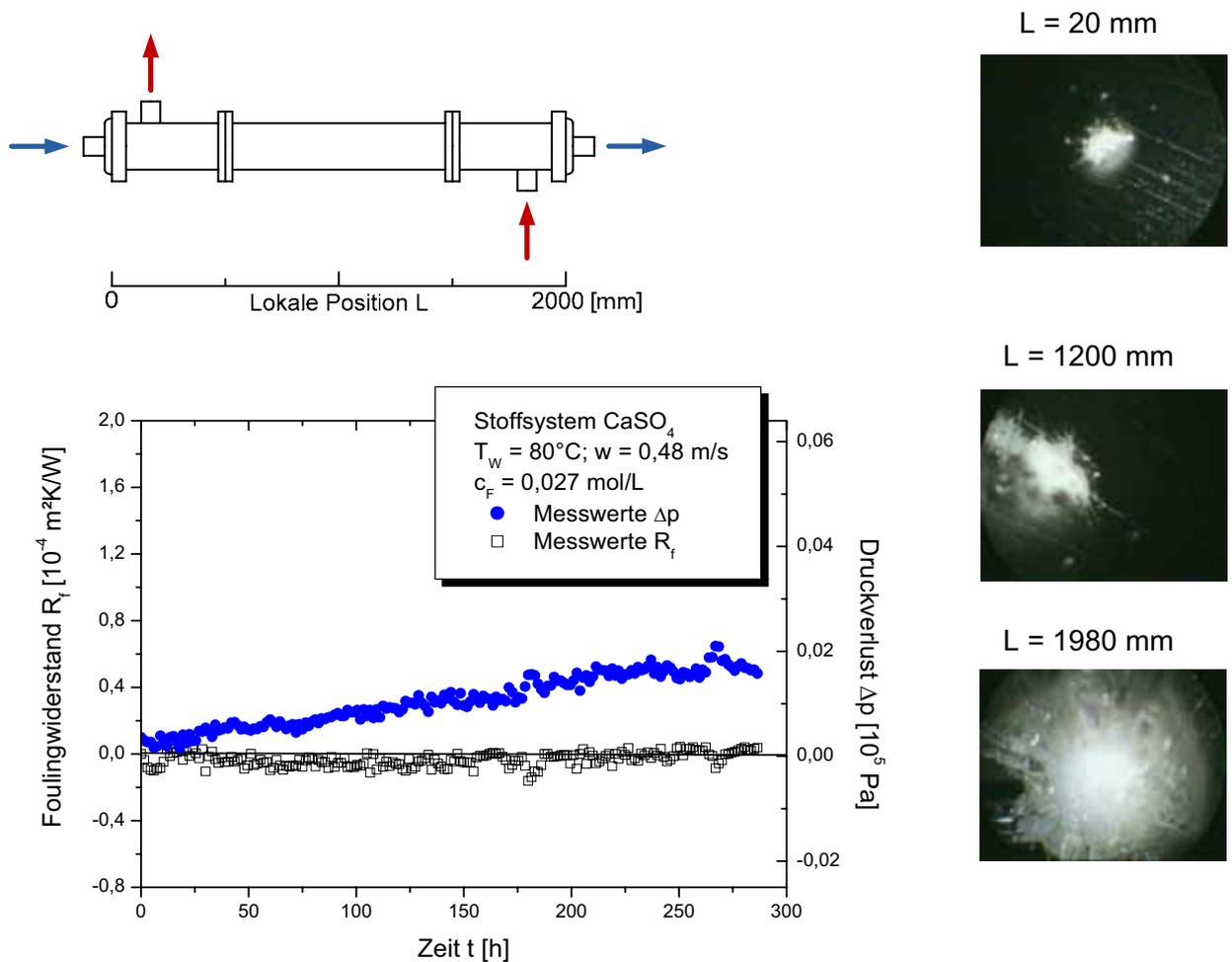
**Abb. 4.19:** Verfahrensfließbild der Versuchsanlage Doppelrohrwärmeübertrager

Der zweite Abschnitt umfasst zwei Hochdruckpumpen P1 und P2, einen Kerzenfilter und einen Plattenwärmeübertrager W 1. Der Filter hat die Aufgabe, das Einströmen von Fremd- und Eigenkeimen zu verhindern. Über einen Plattenwärmeübertrager wird eine konstante Fluidtemperatur der Versuchslösung gegeben. Der letzte Teilabschnitt umfasst zwei Messstrecken. Hierbei handelt es sich um zwei baugleiche Doppelrohrwärmeübertrager W2 und W3, wobei ein Wärmeübertrager als Referenz genutzt wird. Das Innenrohr des jeweiligen Wärmeübertragers ist das eigentliche Versuchsrohr, welches sich in seiner Struktur und Geometrie unterscheiden kann. Generell hat das Rohr die Geometrie  $d_a \times s \times L = 20 \times 2 \times 2000$  mm. Durch Klemmflansche lassen sich die zu untersuchenden Innenrohre problemlos auswechseln. Ebenso kann die Länge der Proberohre zwischen 800 mm und 2000 mm variiert werden, dazu wird lediglich ein Zwischenstück im Mantel ausgetauscht. Durch speziell angefertigte Adapterstücke lassen sich auch Rohre mit Außen- sowie Innenstrukturierung einsetzen. Mit den Thermoelementen im Produktstrom sowie im Mantelstrom kann die Wärmebilanz um den jeweiligen Doppelrohrwärmeübertrager heiz- wie produktseitig gebildet werden. Die Messung der Volumenströme erfolgt über induktive Durchflussmesser. Druckaufnehmer an den Messstrecken geben Aufschluss über die Veränderung des Druckverlustes über den Versuchszeitraum. Der belagbildende Produktstrom wird rohrseitig geführt. Während des Betriebes wächst im Innenrohr der Messstrecke eine Belagschicht auf, die eine Querschnittsverengung zur Folge hat. Auftretende Schwankungen oder Verringerungen im Volumenstrom werden durch automatisch betriebene Motorstellventile ausgeglichen. Um Wärmeverluste nach außen zu vermeiden, ist die gesamte Heizseite mit Steinwolle isoliert. Alle Temperaturen, Drücke und Volumenströme werden online von einer Messdatenerfassung aufgezeichnet.



**Abb. 4.20:** Foulingkurven von Edelstahl und elektroplierten Rohren sowie Endoskopaufnahmen an verschiedenen axialen Positionen

Abb. 4.20 zeigt die Foulinguntersuchung eines elektroplierten Rohres gegenüber einem Edelstahlrohr. Die Strömungsgeschwindigkeit auf der Seite des Prozessfluids lag bei 0,5 m/s, was einer Reynolds-Zahl von ungefähr 18.000 entspricht. Deutlich sind bei beiden Rohren die Unterschiede im Foulingverhalten zu erkennen. Das Edelstahlrohr weist eine Induktionzeit von ca. 35 Stunden auf, bevor es in die Schichtwachstumsphase übergeht. Die in Abb. 4.20 rechts dargestellten Endoskopaufnahmen zeigen die Belagbildung innerhalb des Edelstahlrohres. Im Laufe des Versuchs hat sich eine kompakte kristalline Foulingschicht über der gesamten Rohrlänge gebildet. Aufgrund des Temperaturgradienten entlang der Messstrecke und der Temperaturabhängigkeit des Lösungsgleichgewichtes von  $\text{CaSO}_4$  ergibt sich am Heizwassereintritt eine dickere Belagschicht als am Heizwasseraustritt. Das Rohr mit elektroplierter Oberfläche befindet sich im Vergleich zum Edelstahlrohr selbst nach einer Versuchszeit von über 250 Stunden noch in der Induktionsphase. Die Messungen zum Druckverlust, wie sie in Abb. 4.21 dargestellt sind, zeigen jedoch, dass sich bereits erste Kristalle gebildet haben und die Endoskopaufnahmen nach Ende des Versuches bestätigen dies. Auch hier kann eine verstärkte Kristallbildung in Richtung der höheren Wandtemperaturen beobachtet werden.



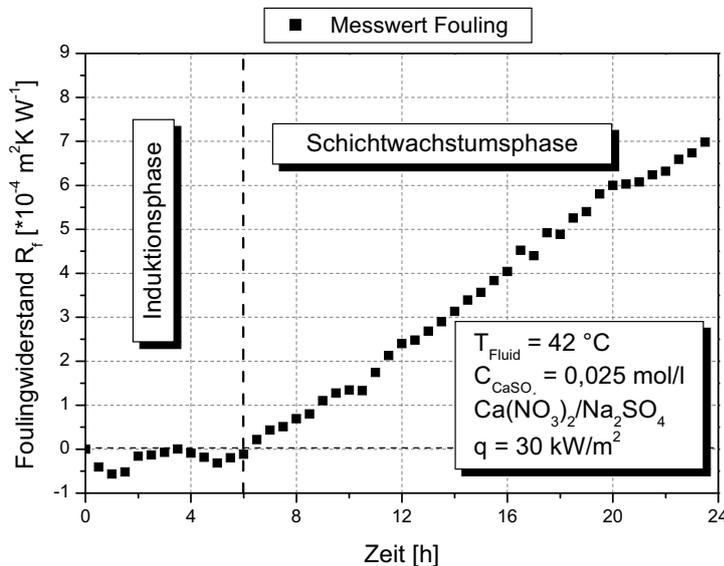
**Abb. 4.21:** Foulingkurve vs. Druckverlust für elektropolierten Edelstahl sowie Endoskopaufnahmen

Im weiteren Verlauf des Projektes steht die Realisierung der Rohrrinnenbeschichtung im Vordergrund, um anschließend erste Untersuchungen bezüglich einer foulingminimierenden Wirkung im Doppelrohrwärmeübertrager durchzuführen. Aus den gewonnenen Ergebnissen der unterschiedlichen Versuchsanlagen soll die Bildung spezieller Foulingkennzahlen vorangetrieben werden.

*Dieses Forschungsprojekt wird in Kooperation mit dem Fraunhofer Institut für Schicht- und Oberflächentechnik (IST) durchgeführt und aus Haushaltsmitteln des Bundesministerium für Wirtschaft und Arbeit über die Arbeitsgemeinschaft industrieller Forschungsvereinigungen „Otto von Guericke“ e.V. (AiF), der Europäischen Forschungsgesellschaft Dünne Schichten e.V. (EFDS) und der DECHEMA finanziell gefördert.*

## 4.2.2 Aufklärung der Induktionsphase beim Kristallisationsfouling (Dipl.-Ing. Timo Geddert)

Bei der Wärmeübertragung mit salzhaltigen Flüssigkeiten kann es zu kristallinen Ablagerungen auf den wärmeübertragenden Flächen kommen, dem sogenannten Kristallisationsfouling.



**Abb. 4.22:** Typischer Verlauf einer Foulingkurve bei der Kristallisation

Die Bildung dieser Foulingsschicht gliedert sich meist in zwei unterschiedliche Phasen, siehe Abb. 4.22. Während sich das in Kapitel 4.2.1 beschriebene Projekt vornehmlich mit den Einflüssen beschichteter Oberflächen befasst, sollen in diesem Projekt die wesentlichen Einflussgrößen auf Dauer und Verlauf der Induktionsphase beim Kristallisationsfouling identifiziert und ihre Wechselwirkungen untersucht werden. Hierbei sind Kristallisationszeitpunkt und -ort, Kinetik als auch mechanische und chemische Wechselwirkungen von Bedeutung.

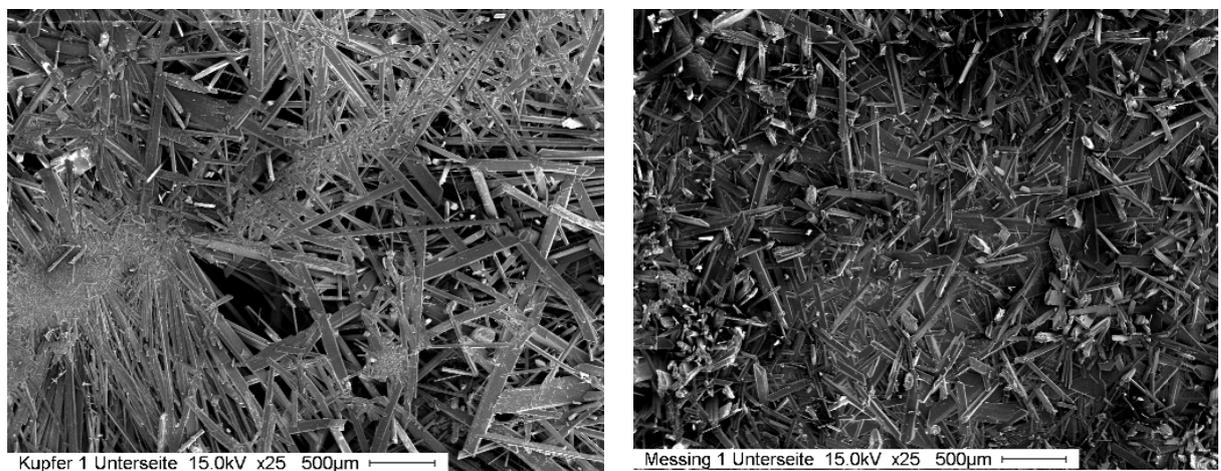
Obgleich schon viele Jahre an der Thematik Fouling geforscht wurde, sind nicht alle Mechanismen der frühen Kristallisationsschritte bekannt und oftmals beschränkten sich die Untersuchungen auf die nachgelagerte Schichtwachstumsphase. Im Rahmen dieses Forschungsvorhabens sollen die in der Induktionsphase ablaufenden Mechanismen und Vorgänge experimentell und theoretisch untersucht werden.

Als schichtbildende Komponente wurde Calciumsulfat gewählt. Die zu untersuchenden Oberflächen waren Edelstahl, Kupfer, Aluminium, Messing und Bronze, die unter anderem in ihrer Topographie modifiziert wurden.

### Visualisierung

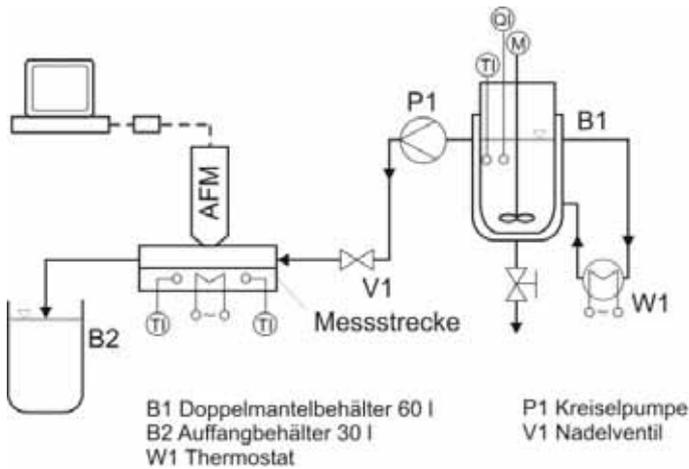
Innerhalb der Induktionsphase kann es zu negativen Foulingwiderständen kommen, verursacht durch aufwachsende Kristalle, die zu einer erhöhten Turbulenz in Wandnähe führen und somit zu einem verbesserten Wärmeübergang. Um das Wachstum der ersten Kristalle visualisieren zu können, stehen am Institut sowohl ein neues Digitalmikroskop als auch ein Rasterkraftmikroskop (Atomic Force Microscope, AFM) zur Verfügung. Außerdem ist es möglich, ein Rasterelektronenmikroskop (REM) der Universität zu nutzen.

Mittels REM können die sich innerhalb der Induktionsphase bildenden Kristalle ex-situ visualisiert und durch Verwendung der energiedispersiven Röntgenspektroskopie (EDX) analysiert werden. Ziel dieser Untersuchungen ist es, den Einfluss der unterschiedlichen Materialien respektive Topographien auf die Kristallisation zu untersuchen. Hierzu wurden im ersten Schritt Kristallschichten untersucht, die sich nach einer Versuchszeit von 24 h im diskontinuierlichen Kristallisator auf den unterschiedlichen Materialien gebildet hatten. Mittels REM wurde die Unterseite, also die Kontaktstelle zwischen Wärmeübertragerfläche und Kristallschicht, untersucht. Wie in Abb. 4.23 zu erkennen ist, kommt es zu Beginn der Schichtbildung zu unterschiedlichen Kristallformen. Während sich sowohl auf Kupfer wie auch auf Edelstahl typische längliche Calciumsulfatkristalle bilden, liegen bei der heterogenen Kristallisation auf den Oberflächen Messing und Bronze eher kleine, dünne Kristalle vor.

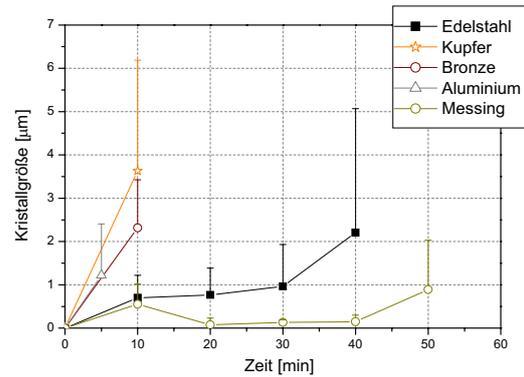


**Abb. 4.23:** REM-Aufnahmen der Unterseite der Kristallschicht (links Kupfer, rechts Messing)

Um den Einfluss der Oberflächen auf die Kristallbildung in der Induktionsphase genauer untersuchen zu können, wurde die Kristallisation ex-situ mittels AFM innerhalb der Induktionsphase untersucht. Durch die Nutzung des AFM's, dessen schematischer Aufbau in Abb. 4.24 dargestellt ist, konnte die Kristallisation hochaufgelöst dargestellt und im post processing das Wachstum der Kristalle ermittelt werden. Hierbei zeigte sich, dass die wärmeübertragende Fläche einen direkten Einfluss auf die Kristallisation und die Kristallbildung hat. Nicht nur der Habitus, auch die Wachstumsgeschwindigkeit der Kristalle, wie in Abb. 4.25 dargestellt, scheint abhängig vom verwendeten Material des Wärmeübertragers. Dies ist in so fern von Bedeutung, als der Einfluss des Kristallabtrages („removal rate“) aufgrund der gewählten Versuchsbedingungen vernachlässigbar ist.



**Abb. 4.24:** Schematischer Aufbau des Versuchsstandes zur Visualisierung der Kristallisation mittels AFM

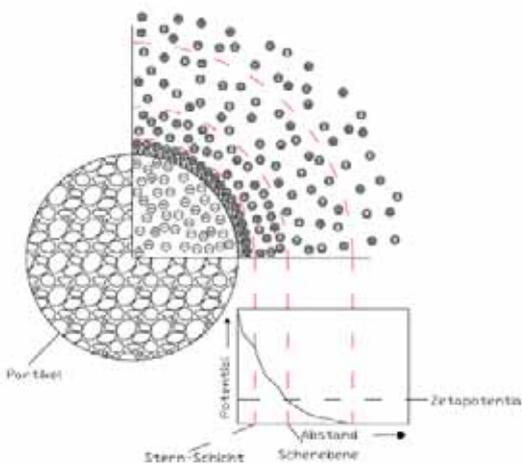


**Abb. 4.25:** Kristallgröße von  $\text{CaSO}_4$  auf dem jeweiligen Substrat als Funktion der Zeit

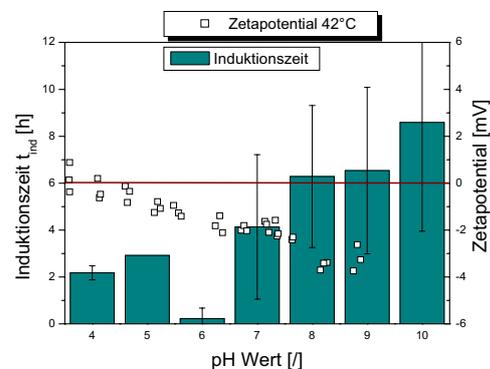
### Zetapotential

Als weiteres Maß zur Oberflächencharakterisierung wurde der Einfluss des Zetapotentials untersucht. Das Zetapotential wird aus der Wanderungsgeschwindigkeit eines geladenen Partikels in einer elektrolythaltigen Lösung berechnet (Messung der elektrophoretischen Mobilität). Aufgrund der Partikelbewegung kommt es zu einer Abscherung der diffusen Schicht und somit zu einer Ladung des ansonsten neutralen Partikels, siehe Abb. 4.26. Haupteinflussgrößen dieses Messwertes sind die Ionenladung des Fluides (Konzentration und Art des Salzes) und der pH-Wert der Lösung.

Die Übersättigung von Calciumsulfat ist im untersuchten Bereich unabhängig vom pH-Wert, jedoch folgen aus einer pH-Variation unterschiedliche Induktionszeiten, wie in Abb. 4.26, rechts, zu erkennen ist. Hierdurch konnte der Einfluss des Zetapotentials auf die Kristallisation eindeutig identifiziert werden.



**Abb. 4.26:** Potentialverlauf an einem geladenen Partikel (links) und Einfluss des pH-Wertes auf die Induktionszeit bei Edelstahl (rechts)

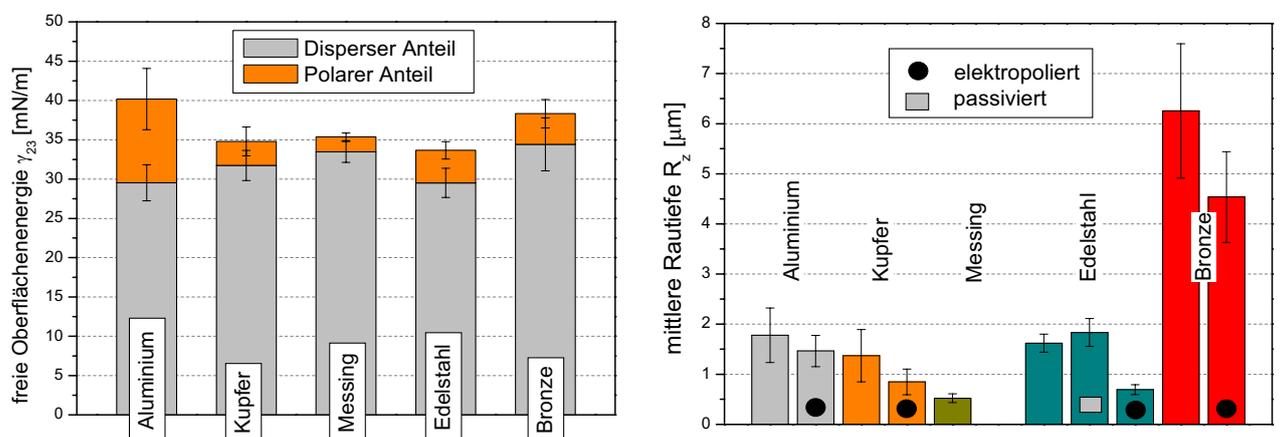


Auffällig ist der Anstieg der mittleren Induktionszeit mit dem pH-Wert, was gleichbedeutend mit dem Anstieg des Zetapotential wäre. Dies würde bedeuten, dass eine höhere Nettoladung der Oberfläche die Kristallisation behindert, wobei hier einseitig nur die Interaktion zwischen Oberfläche und Salzlösung betrachtet wird. Neben der Induktionszeit wird auch die Steigung der Foulingkurve von Ionenwechselwirkungen beeinflusst. Das erwartete Minimum der Induktionszeit und Maximum der Steigung wurde nicht am gemessenen isoelektrischen Punkt festgestellt (IEP bei pH 4,5), sondern bei pH 6. Am isoelektrischen Punkt wäre die Nettoladung null und damit keine Abstoßung zwischen sich bildenden Kristallen und Oberflächen gegeben, was zu einer Steigerung der Kristallisation führen sollte. Weitere Messungen an Edelstahl und anderen chemisch inerten Oberflächen sollen dieses Ergebnis untermauern.

#### *Oberflächeneinflüsse, Rauheit*

Zur Charakterisierung der Oberfläche stehen die Rauheitsmessung via Tastschnittverfahren, Mikroskopie und AFM zur Verfügung. Zur energetischen Beurteilung der Proben wird die Oberflächenenergie mittels der Methode des liegenden Tropfens berechnet sowie das Zetapotential dispergierter Partikel der Oberflächen und des Schichtbildners ermittelt.

Die untersuchten Substrate Aluminium, Kupfer, Messing, Edelstahl und Bronze unterscheiden sich sowohl topographisch, in der makroskopischen Rauheit, siehe Abb. 4.27, als auch energetisch voneinander.



**Abb. 4.27:** Oberflächenenergie (links) und Rauheit (rechts) der untersuchten Materialien

Wie in Abb. 4.27 links zu erkennen ist, unterscheiden sich die untersuchten Materialien energetisch nur geringfügig voneinander, topographisch jedoch unterscheiden sich die Proben abhängig von dem vorgelagerten Fertigungsprozess. In den am ICTV durchgeführten Versuchen wurde unter anderem die Rauheit gezielt va-

riert oder Proben durch elektrolieren auf eine einheitliche Grundrauigkeit gebracht.

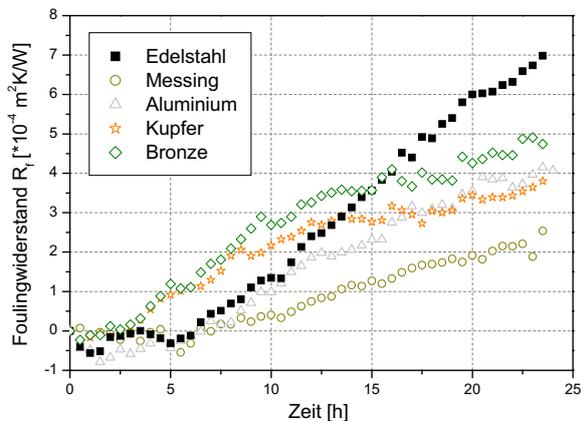
### **Fouling**

Durch Foulingversuche im diskontinuierlichen Kristallisor wurden die Einflüsse der unterschiedlichen Materialien auf die Schichtbildung bei geringen Scherraten (langsame Rührerdrehzahl) untersucht. Wie in Abb. 4.28 zu erkennen ist, können unterschiedliche Foulingneigungen der unbehandelten Oberflächen identifiziert werden. In Tab. 4.3 ist zu erkennen, dass selbst in dieser einfachen Versuchsumgebung ohne Berücksichtigung der „removal rate“ die Standardabweichung bei einer mittleren Anzahl von zehn identischen Versuchen erheblich sein können.

**Tab. 4.3:** Induktionszeiten und Steigung der Wachstumskurve in diskontinuierlichen Foulingversuchen

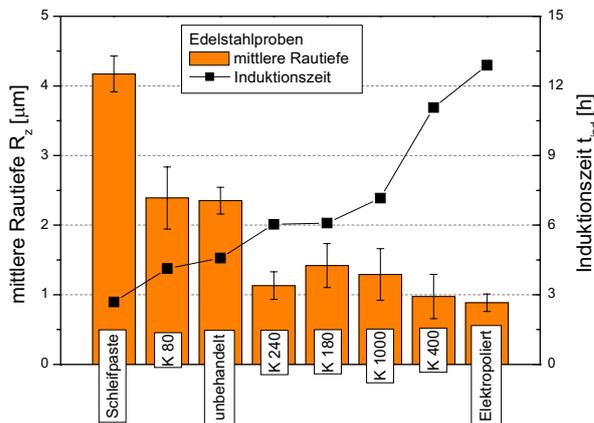
Material	Induktionszeit	Steigung $\Delta R_f / \Delta t$
Edelstahl	6,3±3	0,42±0,09
Messing	5,5±2,3	0,20±0,05
Aluminium	7,1±3,3	0,24±0,10
Kupfer	5±2,5	0,20±0,09
Bronze	2,1±0,8	0,34±0,03

Dies resultiert aus der Heterogenität bezüglich der Oberflächenkontur wie auch der Oberflächenenergie. Hierdurch kann die Induktionszeit nicht auf einen Einflussparameter reduziert werden. Dieses Verhalten kann durch die mikroskopische Visualisierung des Wachstums nur unzureichend wiedergegeben werden. Calciumsulfatkristalle wachsen auf Bronzoberflächen relativ schnell, siehe Abb. 4.25, vor allem im Vergleich zu einer Edelstahloberfläche. Für die Induktionszeit respektive die Foulingneigung spielen jedoch noch andere Faktoren eine maßgebliche Rolle. Daher wurden Versuche mit einer Variation von Rauheiten bei unterschiedlichen Materialien unternommen, um neben der energetischen Heterogenität auch den Einfluss unterschiedlicher Topographien auf das Kristallisationsfouling zu untersuchen. Hierbei konnten gravierende Unterschiede zwischen den Materialien Edelstahl und Kupfer festgestellt werden. Während die Induktionszeit bei den gewählten Versuchsbedingungen für Edelstahl maßgeblich von der Rauheit der Probe abhängt, siehe Abb. 4.29, ist der Einfluss der Topographie bei den gewählten Kupferproben wesentlich geringer. Neben einer unterschiedlichen Anzahl an bevorzugten Keimbildungsstellen, hervorgerufen durch die mechanische bzw. energetische Hetero-

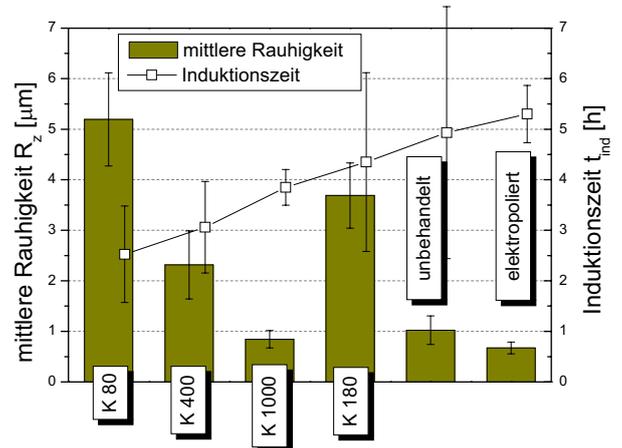


**Abb. 4.28:** Typische Foulingverläufe der untersuchten Materialien

genität der Oberfläche, kann hier ein direkter Zusammenhang zwischen Kristallwachstumsgeschwindigkeit und Fouling erkannt werden. Da Calciumsulfatkristalle auf Kupferoberflächen wesentlich schneller wachsen als auf Edelstahloberflächen, hat eine Erhöhung bzw. Reduktion möglicher Keimbildungsstellen einen geringeren Effekt als bei Oberflächen, auf denen Kristalle langsamer wachsen, vergleiche Abbn. 4.29 und 4.30.



**Abb. 4.29:** Induktionszeit als Funktion der Oberflächenbehandlung bei Edelstahl



**Abb. 4.30:** Induktionszeit als Funktion der Oberflächenbehandlung bei Kupfer

Auf Basis der experimentellen Arbeiten sollen Modelle entwickelt werden, die eine Abschätzung der Induktionszeit basierend auf den jeweiligen Versuchsparemern erlauben. Modelle der heterogenen Keimbildung, wie die von *Volmer*, haben sich aufgrund der bereits bekannten Einflussfaktoren ebenso wenig als geeignet erwiesen wie diverse Modifikationen (z.B. *Keysar*), die einen Einfluss der Topographie berücksichtigen sollen.

Ziele der weiteren Untersuchungen sind:

- Identifikation relevanter Kenngrößen für die Modellierung der Induktionsphase
- Validierung der Erkenntnisse für den Einfluss von Oberflächenmodifikationen für das Salzsystem  $\text{CaCO}_3$
- Vorausberechnung der Induktionszeit anhand von Versuchsparemern
- Implementierung des Kristallwachstums und der zeitabhängigen Belegung der Oberfläche in das entwickelte Modell

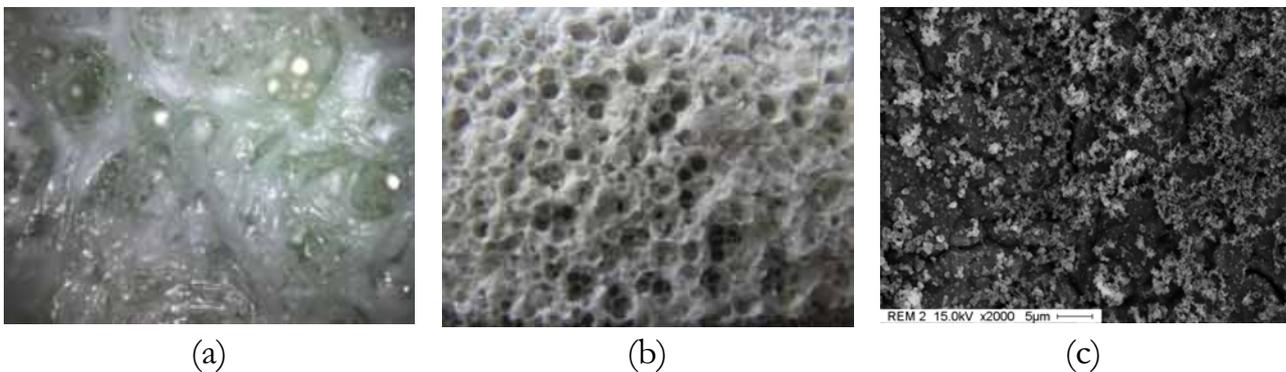
*Dieses Forschungsprojekt wird von der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) gefördert.*

### 4.2.3 Fouling bei der Wärmebehandlung von Milch

(Cristiane Boxler, M.Sc.)

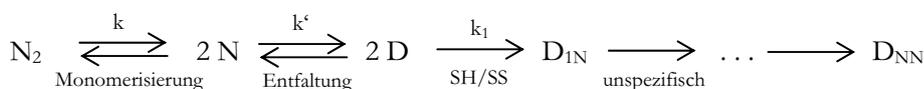
Die unerwünschte Ansatzbildung auf Wärmeübertragungsflächen ist ein wichtiges, noch nicht vollständig gelöstes Problem bei der Verarbeitung von Milch und Milchprodukten. Insbesondere die Wärmebehandlungen Pasteurisierung und Ultrahecherhitzung sind kritische Prozessschritte. Die damit verbundenen Gefahren einer Kontamination des Produktes durch Rückstände, wie gelöste Foulingbeläge, sowie die Unsicherheit bei der Reinigung und Sterilisation betreffen fast jeden Prozess in der Lebensmittelindustrie. Ein Verständnis der Anhaftungsmechanismen hilft sowohl bei der Betrachtung des Fouling- und als auch des Reinigungsprozesses. Hier spielt die Oberflächenbeschaffenheit eine entscheidende Rolle, da der Beginn der Ansatzbildung bis zur geschlossenen Belegung der Oberfläche von der Wechselwirkung zwischen Produkt und Oberfläche beeinflusst wird. Das weitere Anwachsen des Belages beruht dann auf der Reaktion zwischen den Inhaltsstoffen.

Generell werden bei der Milcherhitzung zwei Ablagerungstypen unterschieden. Bei Wandtemperaturen von 70 – 90 °C findet eine Belagbildung des Typs A, hauptsächlich bestehend aus Proteinen, statt, siehe Abb. 4.31a, bei 110 – 140 °C eine Belagbildung vom Typ B. Dieser besteht primär aus Calciumphosphat, siehe Abb. 4.31b.



**Abb. 4.31:** Beläge von Molkeprotein gelöst in SMUF (simulated milk ultra filtrate) bei einer Anfangstemperatur der wärmeübertragenden Oberfläche von (a) 80 °C und (b) 120 °C; (c) REM-Aufnahme eines SMUF-Belages bei einer Anfangstemperatur von 80 °C.

Schlüsselkomponente für die Ablagerungsbildung von Milch ist wegen seiner Hitzeempfindlichkeit das Molkeprotein  $\beta$ -Lactoglobulin ( $\beta$ -Lg).  $\beta$ -Lg zeigt einen für viele Proteine typischen zweistufigen Denaturierungsverlauf. Der Gesamtvorgang ist für beide genetischen Varianten über das folgende Schema darstellbar.



Oberhalb etwa 70 °C kommt es zur irreversiblen Thiol-Disulfid-Reaktion zwischen entfalteten Proteinen und es bilden sich Aggregate. Neben dem pH-Wert

beeinflusst der Salzgehalt die Stabilität des  $\beta$ -Lg gegenüber Aggregationserscheinungen. Eine Erhöhung des Calciumgehalts hat eine Destabilisierung des Proteins zur

Folge. Beim Erhitzen wird das Gleichgewicht des in der Milch vorliegenden Stoffsystems Calcium, Phosphat und Citrat in Abhängigkeit vom pH-Wert zum unlöslichen Calciumphosphat und -citrat hin verschoben. Dies führt zum Ausfällen auf den Proteinaggregaten und zum Anlagern an wärmeübertragende Flächen als Salz oder als Konglomerat gemeinsam mit den Proteinen. Die gleichzeitig mit dem Aufbau des Proteinaggregatnetzwerks stattfindende Salzkristallisation ist für eine Verfestigung und Stabilisierung der Proteinmatrix verantwortlich.

Die Untersuchungen wurden mit drei Versuchsstoffen durchgeführt: Molkeproteinisolat (WPI), Milchsäure (SMUF) oder beide kombiniert als Modellstoff für Milch. Variiert wurden die Wandtemperatur sowie die Oberflächenstruktur (elektropoliert). Der schematische Versuchsaufbau ist in Abb. 4.32 gezeigt. In Tab. 4.4 sind die Prozessbedingungen zusammengefasst. Ziel ist es, einen Beitrag zum Verständnis der Foulingmechanismen bei der Milcherhitzung zu leisten.

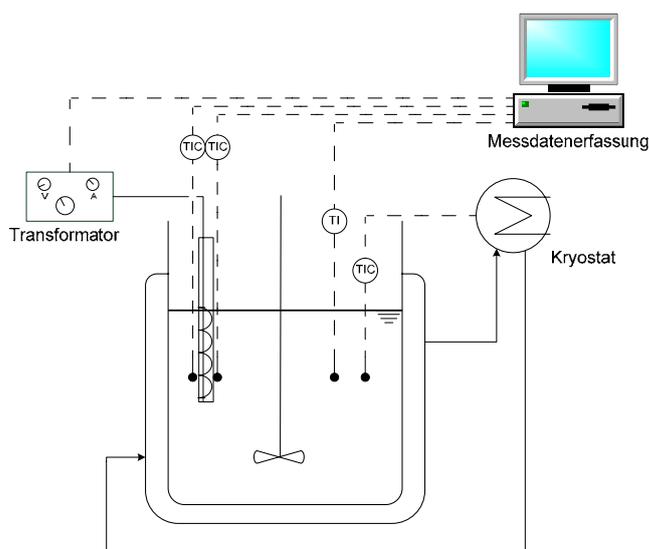


Abb. 4.32: Diskontinuierlicher Rührbehälter

Tab. 4.4: Prozessbedingungen

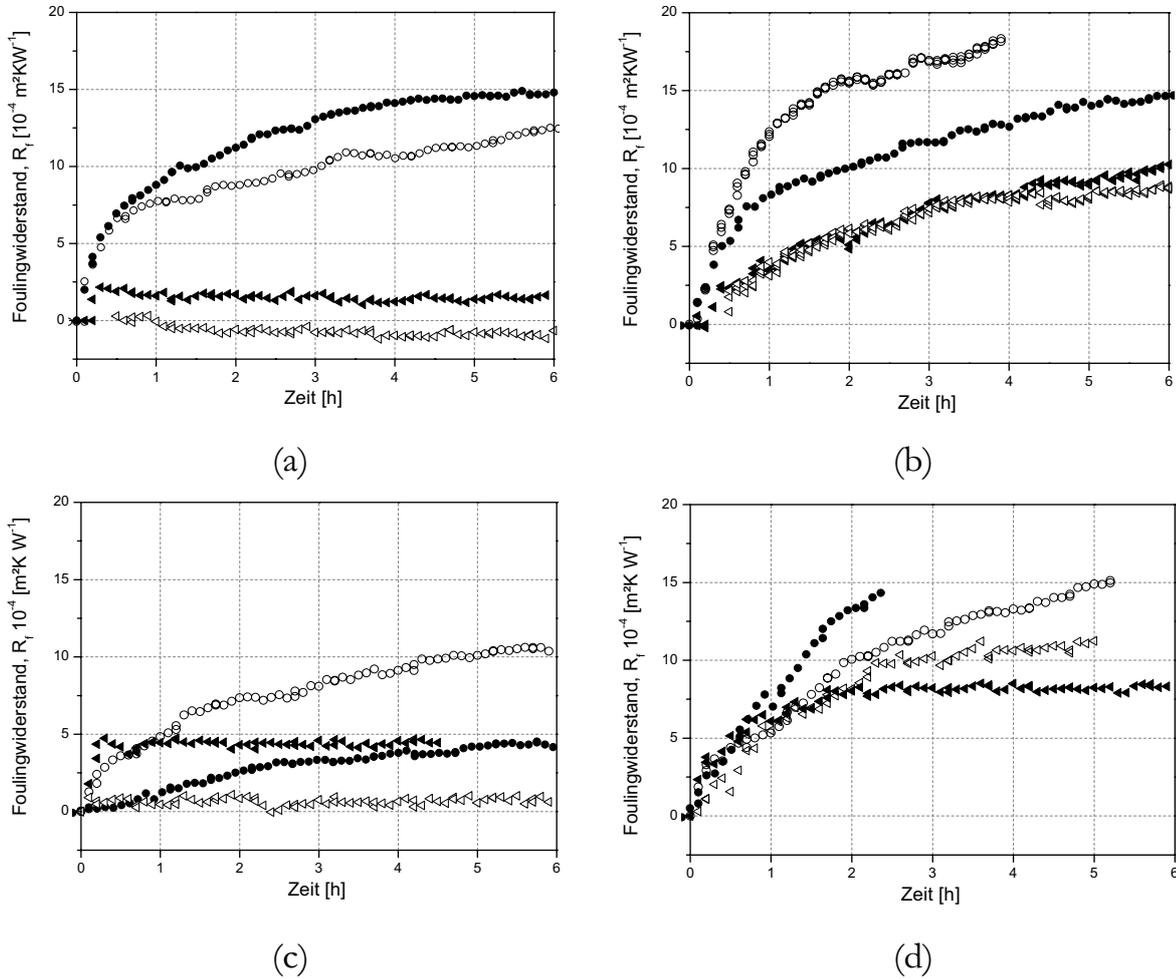
Parameter	Werte
Temperatur Bulklösung	50°C bzw. 40°C bei SMUF* (konstant)
Proteinkonzentration (WPI**)	3 g/L an $\beta$ - Lactoglobulin
Initialer pH-Wert	6,7
Initiale Wandtempe- ratur	80°C; 120°C
Reinigungsprozedur	0,5 Gew% NaOH bei 50°C für 30 min;  0,5 Gew% HNO <sub>3</sub> bei 50°C für 30 min;

\*SMUF: Simulated Milk Ultra Filtrate

\*\* WPI: Whey Protein Isolate

Produktberührende Anlagenteile werden in der Lebensmittelindustrie fast ausschließlich aus nichtrostendem Chromnickelstahl gefertigt. Aufgrund seiner Bedeutung werden die experimentellen Untersuchungen daher an Edelstahl 1.4301 durchgeführt.

Abb. 4.33 zeigt die zeitlichen Verläufe des Foulingwiderstandes für in Wasser oder in SMUF gelöstes WPI auf sauberen Edelstahloberflächen und auf einer Edelstahloberfläche nach 30 Minuten Versuchsdauer im Milchsäure (SMUF).



**Abb. 4.33:** Foulingkurven für WPI und WPI+SMUF bei unterschiedlichen Oberflächentemperaturen und Verschmutzungen:  
 a) 80 °C, saubere Oberfläche, b) 120 °C, saubere Oberfläche,  
 c) 80 °C, SMUF-verschmutzte Oberfläche, d) 120 °C, SMUF-verschmutzte Oberfläche

- ▲ WPI, Edelstahl
- △ WPI, Edelstahl elektropoliert
- WPI+SMUF, Edelstahl
- WPI+SMUF, Edelstahl elektropoliert

Wenn nur WPI in der Lösung vorhanden ist, gibt es bei niedriger Temperatur (80 °C) keine messbare Belagbildung von Protein auf die Oberfläche, siehe Abb. 4.33a. Die Proteinanhaftung findet erst statt, wenn eine Basis-Foulingschicht aus Salzen besteht, siehe Abb. 4.33c, oder wenn die Milchsäure in der Lösung vorhanden sind (WPI+SMUF). Es bilden sich dann Calciumionenbrücken zwischen den angelagerten Proteinen und den aufgefalteten bzw. denaturierten Proteinen, siehe Abb. 4.33a und 4.33b. Bei höherer Temperatur (120 °C) bildet sich eine kompakte Foulingschicht auf den Oberflächen und das Fouling ist deutlich größer, was durch die Steigung des Foulingswiderstandes wiedergegeben wird. Bei dieser Temperatur kann das Protein erst auf der Oberfläche denaturieren und anhaften und dann mit den entfalteten Proteinen oder Aggregaten aus der Bulklösung weiter reagieren und somit auf dem Belag zusammenwachsen. Die Ergebnisse der Abb. 4.33c und 4.33d zeigen, dass die erste Foulingschicht die Steigung des Foulingswiderstandes bestimmt. Wenn die erste Schicht aus Salz besteht, zeigt die WPI+SMUF-Lösung ein anderes Foulingverhalten. Bei einer Anfangstemperatur von 80 °C ist die Ansatzbildung auf unbehandeltem Edelstahl geringer, siehe Abb. 4.33c. Bei Temperaturen von 120 °C gibt es keinen Unterschied bei den anfänglichen Foulingraten, siehe Abb. 4.33d. Sie unterscheiden sich erst nach ca. einer Stunde.

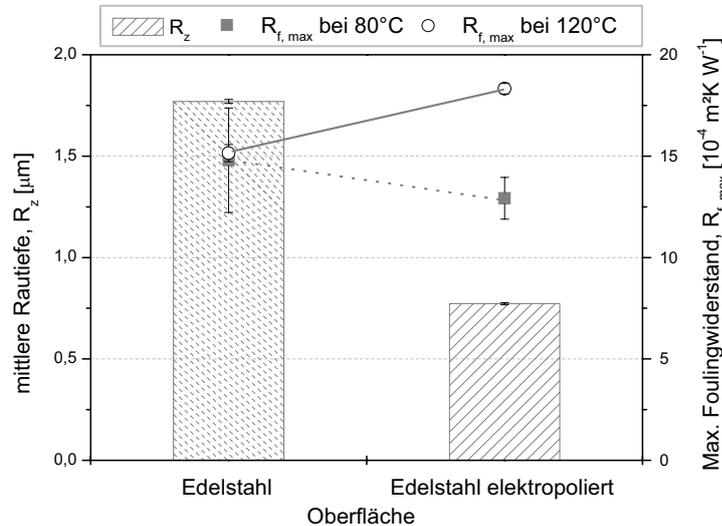
In der Literatur finden sich kontroverse Ansätze zur Bildung der ersten Schicht beim Milchfouling und über ihre Zusammensetzung. Allgemein lässt sich sagen, dass vor allem die elektrostatischen Wechselwirkungen verantwortlich sind für die Anlagerung von Salzen in der Induktionsphase. Die Adhäsion von denaturierten Proteinen mittels hydrophober Kräfte spielt hier eine nachgeordnete Rolle. Native Molkeproteine können sich dagegen auch über elektrostatische Anziehungskräfte an die noch unbelegte Metalloberfläche anlagern und dort denaturieren. Die erste Schicht besteht dann aus Salz und Protein.

REM-Aufnahmen des Belags bei Versuchen mit ausschließlich Milchsäure (SMUF) zeigen sphärische Calciumphosphatkristalle, siehe Abb. 4.31c, welche typisch für die Kristallform Hydroxylapatit sind. Die Röntgendiffraktometrie bestätigt die Zusammensetzung dieses Belages aus Ca, O und P.

Die topographischen und energetischen Eigenschaften der zu untersuchenden Oberflächen wurden charakterisiert. Der Edelstahl zeigt einen  $R_a$ -Wert (arithmetischer Mittenrauwert) von  $0,19 \pm 0,01 \mu\text{m}$  und einem  $R_z$ -Wert (gemittelte Rautiefe) von  $1,77 \pm 0,09 \mu\text{m}$ . Der electropolierte Edelstahl zeigt einen  $R_a$ -Wert von  $0,13 \pm 0,01 \mu\text{m}$  und einem  $R_z$ -Wert von  $0,86 \pm 0,06 \mu\text{m}$ . Die Frage, wie glatt eine Oberfläche sein muss, steht immer wieder zur Diskussion zwischen Anlagenherstellern und -betreibern. In der DIN-Norm 1672-2 ist festgelegt, dass produktberührende Oberflächen in der Nahrungsmittelindustrie eine Rauheit  $R_a$  kleiner als  $0,8 \mu\text{m}$  haben müssen.

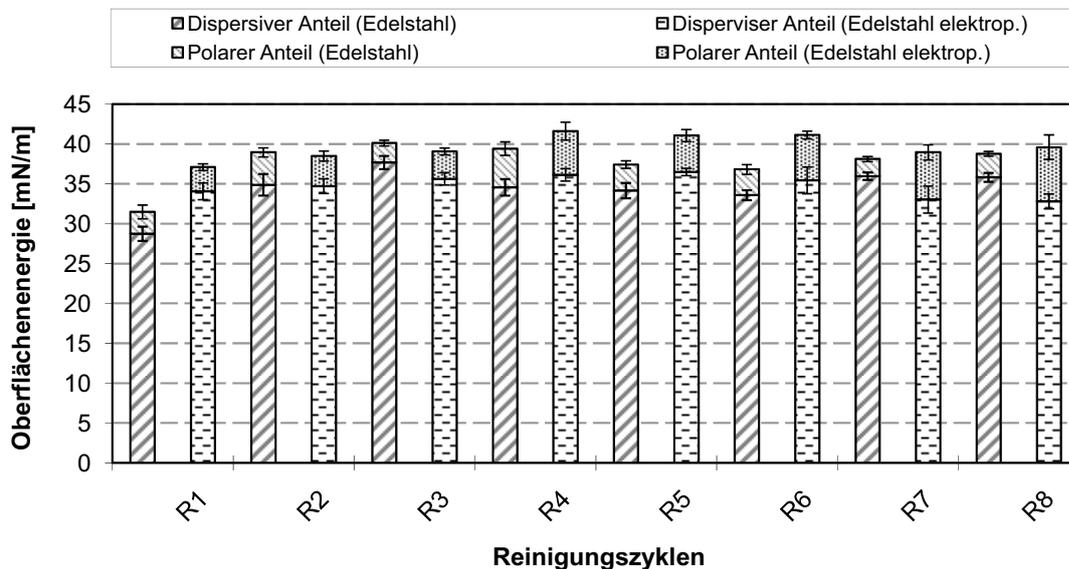
Der Vorteil einer Behandlung der Oberfläche durch Electropolieren konnte hier für die untersuchte Oberfläche bei niedriger Temperatur nicht nachgewiesen wer-

den. Abb. 4.34 zeigt keinen statistisch signifikanten Einfluss der Rauheit auf das Fouling. Bei höherer Temperatur aber sind der maximale Foulingwiderstand und die anfängliche Steigung des Foulingwiderstandes höher für die Oberfläche mit niedriger Rauheit.



**Abb. 4.34:** Einfluss der Rauheit auf das Molkeprotein-Fouling (WPI+SMUF) bei Wandtemperaturen von 80 °C und 120 °C

Die Auswertung der Messergebnisse bzgl. der Oberflächenenergie erfolgte nach dem Verfahren von Owens, Wendt, Rabel & Kaelble und ist in Abb. 4.35 dargestellt. Ziel war es, die Änderung an Oberflächenenergie nach den Fouling- und Reinigungszyklen zu untersuchen.



**Abb. 4.35:** Einfluss von Fouling- und Reinigungszyklen auf die Oberflächenenergie

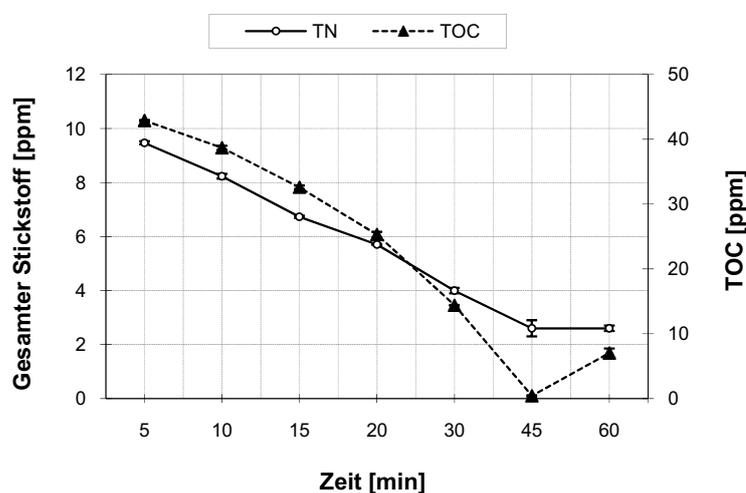
Beim elektrolytierten Edelstahl nimmt der polare Anteil der Oberflächenenergie nach mehreren Reinigungszyklen zu, wobei gleichzeitig der disperse Anteil steigt.

Für die beiden Edelstähle ergibt sich in Summe ein leichter Anstieg der gesamten Oberflächenenergie auf etwa 38 – 40 mN/m.

### *Reinigungsvalidierung*

Die Reinigung von Maschinen und Anlagen in der Lebensmittelindustrie erfolgt meist durch Cleaning in Place, CIP. Häufige Reinigungsereignisse sowie eine lange Reinigungsdauer, damit die Fähigkeit und Effizienz der Produktion sowie die Hygienevorschriften eingehalten werden, reduzieren die Anlagenverfügbarkeit. Die Reinigungskontrolle der Anlage erfolgt durch mikrobiologische Untersuchung der Oberfläche oder des letzten Spülwassers. Mit Hilfe von Schnelltests (Limulus- und Swab-Test) lässt sich das Reinigungsergebnis überprüfen.

In der Pharmaindustrie und Wasseraufarbeitung ist der Parameter TOC (gesamter organischer Kohlenstoff) die normierte Standardgröße zur Reinigungsvalidierung oder zur Beurteilung der Wasserqualität. Diese gibt Aufschluss über die Konzentration an organischen Molekülen, die aus Verunreinigungen wie z.B. Biofilmen im Wasser stammen können. Dabei ist vor allem von Bedeutung, dass die gewählte Analysemethode auch im unteren Konzentrationsbereich (< 0,5 ppm) verlässliche Ergebnisse liefert. Hierzu steht am ICTV ein neues Analysegerät zur Verfügung, dass zusätzlich zu dem organischen Kohlenstoff auch den gesamten anorganischen Kohlenstoff (TIC) sowie den gesamten Stickstoff bestimmen kann. Dies erfolgt mittels katalytischer Oxidation bei Temperaturen bis 1200 °C, gekoppelt an zwei NDIR-Detektoren. Der Reinigungserfolg kann somit im relevanten Bereich ermittelt werden, siehe Abb. 4.36.



**Abb. 4.36:** Verlauf der diskontinuierlichen Reinigung einer mit WPI-verschmutzten Oberfläche

*Dieses Forschungsprojekt wird von der Friedrich-Ebert-Stiftung und von der Max-Buchner-Forschungstiftung gefördert.*

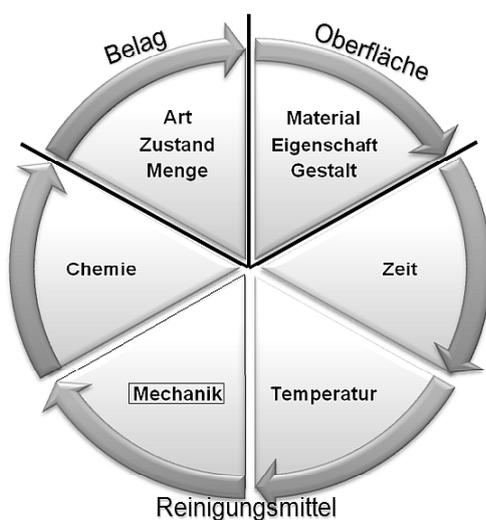
## 4.2.4 Steigerung der Reinigungseffizienz in geschlossenen Fluidsystemen durch pulsierende Strömungen

(Dipl.-Ing. Tatjana Fuchs)

In der Lebensmittelindustrie ist die Herstellung hochwertiger und hygienisch einwandfreier Produkte von essenzieller Bedeutung. Daher hat der Gesetzgeber weitgehende Normen, wie z. B. die Lebensmittelhygiene-Verordnung, für die Herstellung von Lebensmitteln erlassen, welche die Qualität hauptsächlich für den Verbraucher sichern sollen. Auf der Seite der Lebensmittelproduzenten können mangelnde Hygiene- und Qualitätsstandards zu Umsatzeinbrüchen und Prestigeverlust führen. Außerdem sind Stillstandzeiten aufgrund aufwendiger Reinigungsprozesse mit einem Produktionsausfall gleichzusetzten und stellen somit einen großen Kostenfaktor da. Vor diesem Hintergrund ist der Reinheit von Produktionsanlagen in der Lebensmittelindustrie sowohl von Verbraucher- wie auch von Produzentenseite höchste Priorität zuzuweisen. Die Reinigungsvorgänge an produktberührenden Oberflächen sind noch nicht hinreichend untersucht und Gegenstand aktueller Forschung. Hierbei kommt der Steigerung der Reinigungseffizienz eine Schlüsselrolle zu. Eine höhere Effizienz führt sowohl zu verbesserten Hygienebedingungen wie auch zu geringeren Stillstandszeiten und daher niedrigeren Produktionskosten. Aktuelle Forschungsansätze lassen vermuten, dass eine Steigerung der Reinigungseffizienz durch den Einsatz pulsierender Strömungen zu erzielen ist.

Im vorliegenden Forschungsprojekt sollen Kenntnisse über die Einflussgrößen der Reinigung unter Einsatz pulsierender Strömungen gewonnen und Wirkungsgrad sowie Reichweite der Pulsation bestimmt werden. Eine ganzheitliche Betrachtung des Effekts soll unter wirtschaftlichen wie auch unter konstruktiven Gesichtspunkten stattfinden, um Methoden zur optimalen Anlagengestaltung zu entwickeln.

Anlagen zur Lebensmittelverarbeitung sind größtenteils als geschlossene Fluidsysteme ausgeführt, ihre Reinigung findet meist automatisch durch „Cleaning in Place“, dem sogenannte CIP-Verfahren, statt. Hierbei werden ganze Linien und/oder einzelne schwerzugängliche Anlagenteile in festgelegten Sequenzen mit Reinigungsmittel und Wasser gespült. Eine pulsierende Strömung führt hierbei offensichtlich zu einer Erhöhung des Energieeintrags in das Reinigungssystem. Dies sollte zum tieferen Verständnis der Reinigungsprozesse genauer betrachtet und parametrisiert werden. Wie im erweiterten *Sinnerschen* Kreis,



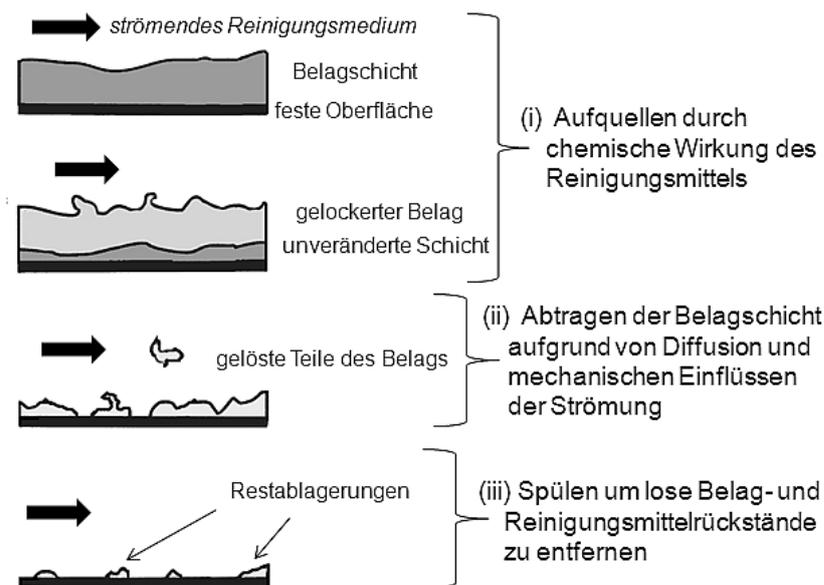
**Abb. 4.37:** Erweiterter *Sinnerscher* Kreis

siehe Abb. 4.37, zu sehen, ist der Reinigungsprozess ein von sechs Einflussgrößen

ausgeführt, ihre Reinigung findet meist automatisch durch „Cleaning in Place“, dem sogenannte CIP-Verfahren, statt. Hierbei werden ganze Linien und/oder einzelne schwerzugängliche Anlagenteile in festgelegten Sequenzen mit Reinigungsmittel und Wasser gespült. Eine pulsierende Strömung führt hierbei offensichtlich zu einer Erhöhung des Energieeintrags in das Reinigungssystem. Dies sollte zum tieferen Verständnis der Reinigungsprozesse genauer betrachtet und parametrisiert werden. Wie im erweiterten *Sinnerschen* Kreis,

abhängiges System mit den Hauptparametern Belag, Oberfläche und Reinigungsmittel, wobei für Letzteres Zeit, Temperatur, Mechanik und Chemie separat betrachtet werden. Mit der Pulsation wird separat von den anderen Parametern die Mechanik des Systems adressiert, wobei indirekt auch die übrigen Parameter mit beeinflusst werden. Eine Veränderung der Einflussgrößen Zeit, Chemie oder Temperatur erscheint meist allein aus wirtschaftlichen und ökologischen Gesichtspunkten als nicht sinnvoll, da z. B. die Verwendung von größeren Mengen oder aggressiveren Reinigungsmitteln zu höheren Anschaffungs- und Entsorgungskosten führen würde.

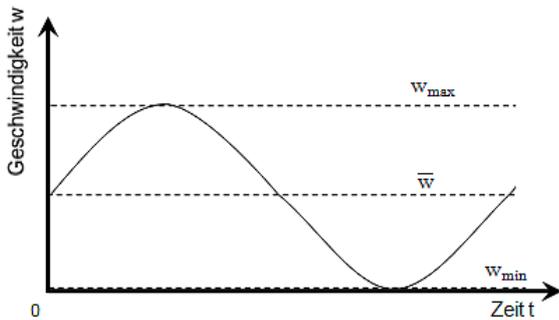
Desweiteren lässt sich die Abreinigung einer Belagschicht mit einem strömenden Reinigungsmedium in drei Phasen unterteilen: (i) dem Aufquellen des Belags, (ii) dem Abtrag der gelockerten Teile und (iii) dem Spülen zum Entfernen von losen Rückständen und Reinigungsmittel, siehe Abb. 4.38. Im Zusammenhang mit pulsierenden Strömungen sind die mechanisch wirkenden Strömungseinflüsse auf die Ablagerungsschicht und daher die (ii) Phase von besonderer Bedeutung. Zusätzlich werden Impuls- und Stofftransportvorgänge in den Phasen (i) und (iii) beeinflusst.



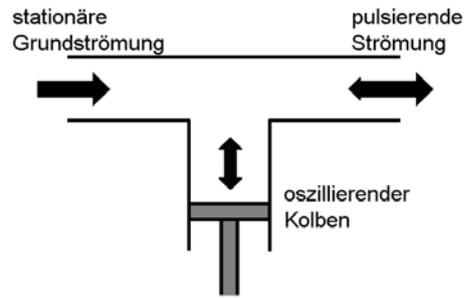
**Abb. 4.38:** Reinigungsphasen beim CIP-Verfahren

Eine pulsierende Strömung wird durch eine stationäre Grundströmung, welche durch eine oszillierende Fluidbewegung überlagert ist, charakterisiert, siehe Abb. 4.39. Zur Beschreibung der Intensität der Pulsation wird in der Regel die dimensionslose Welligkeit als der Quotient der maximalen oszillierenden und der statischen Geschwindigkeit  $W$  herangezogen.

$$W = \frac{w_{os,max}}{w_{stat}} \quad (4.8)$$



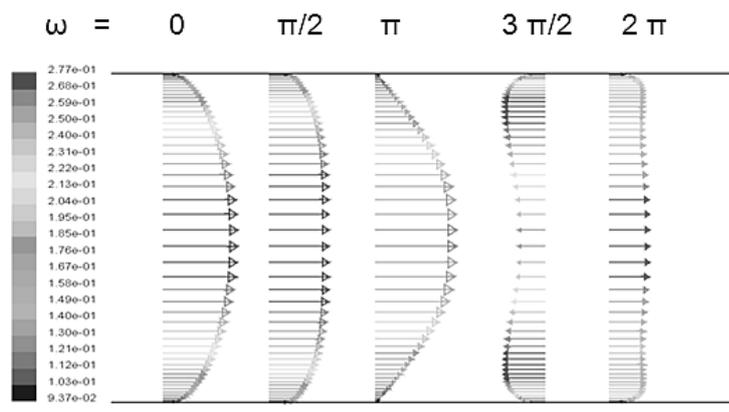
**Abb. 4.39:** Schematische Darstellung einer pulsierenden Strömung mit  $W = 1$



**Abb. 4.40:** Pulsationsanregung mit Kolbenhub

Die auf die Belagflächen wirkenden Scherkräfte werden aufgrund des Anstiegs der wandnahen Geschwindigkeit und der daraufhin erzeugten transienten Rückströmung in der laminaren Grenzschicht stark erhöht und begünstigen damit die Abtragung der Belagschicht. Die Pulsationsanregung mittels eines Kolbenhubs ist in Abb. 4.40 dargestellt.

Die Untersuchungen der Pulsation am ICVT konzentrieren sich zunächst auf die CFD-Simulation der Strömungsregime in verschiedenen Bauteilen bei unterschiedlichen Pulsationsbedingungen. Hierfür steht das Simulationsprogramm FLUENT™ der Firma ANSYS zur Verfügung. Abb. 4.41 zeigt exemplarisch die Simulation des Strömungsprofils einer Pulsation mit der Welligkeit von  $W = 2$ . Ziel dieses Forschungsansatzes ist die Modellierung und numerische Simulation des Reinigungsverhaltens in der Grenzschicht einer turbulenten pulsierenden Strömung auch für komplexe Geometrien. Daraus können Vorschläge für die optimale Gestaltung von Anlagen und Bauteilen sowie für den effizienten Einsatz einer Pulsation zur Unterstützung der Reinigung abgeleitet werden.



**Abb. 4.41:** Numerische Simulation des Strömungsprofils einer pulsierenden Strömung im Rohr mit einer Welligkeit von  $W = 2$

Es wird versucht, eine Standardvorgehensweise für spätere Anwendungen der Simulation im Anlagenbau zu entwickeln. Derzeit beginnt der angedachte Ablauf mit der Identifikation möglicher reinigungstechnischer Problemstellen in Anlagen

und/oder Anlagenteilen, siehe Abb. 4.43. Nach der Spezifikation der Geometrie wird dann ein Rohmodell erstellt und mit dem Programm GAMBIT™ die Gittergenerierung durchgeführt, siehe Abb. 4.42. Ist das Gitter in ausreichender Feinheit und Qualität erstellt, kann die eigentliche Simulation mit dem Datentransfer nach FLUENT™ beginnen.

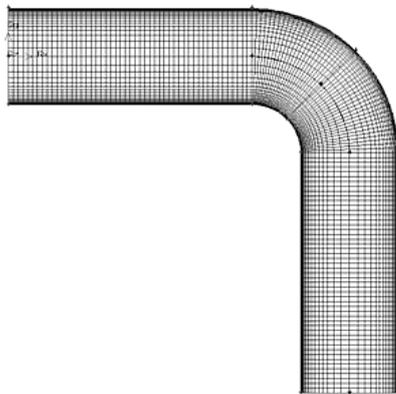


Abb. 4.42: Gittermodell in Gambit

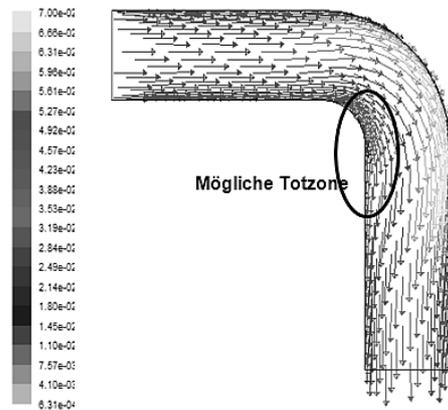


Abb. 4.43: Identifikation möglicher Totzonen

Zunächst sind die Randbedingungen und Strömungsparameter festzulegen, dann wird das passende Solver-Modell ausgewählt. Die Simulation wird immer erst für den statischen und dann erst für den oszillierenden Fall durchgeführt, um Fehler schon frühzeitig zu erkennen und Referenzdaten zu erhalten. Zum Vergleich der unterschiedlichen Einstellungen werden Strömungsparameter wie Wandschubspannungen, siehe Abb. 4.44, Turbulenzgrad und/oder lokale Reynolds-Zahl verglichen. In Zukunft ist geplant, die Ergebnisse mit Hilfe einer Versuchsanlage zu verifizieren.

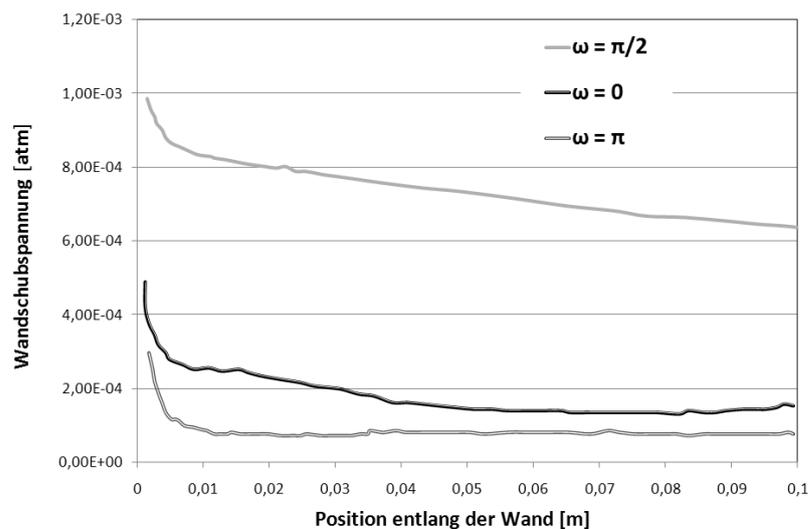


Abb. 4.44: Wandschubspannung über die Länge einer Wand bei Pulsation mit  $W = 2$

*Dieses Forschungsprojekt wird in Kooperation mit dem Institut für Verarbeitungsmaschinen und Mobile Arbeitsmaschinen der TU Dresden durchgeführt und aus Haushaltsmitteln des Bundesministerium für Wirtschaft und Arbeit über die Arbeitsgemeinschaft industrieller Forschungsvereinigungen „Otto von Guericke“ e.V. (AiF) und der Industrievereinigung für Lebensmitteltechnologie und Verpackung e.V. (IVLV) finanziell gefördert.*

#### **4.2.5 Untersuchung des Fouling- und Reinigungsverhaltens von Biodiesel und modifizierten Frittierfetten**

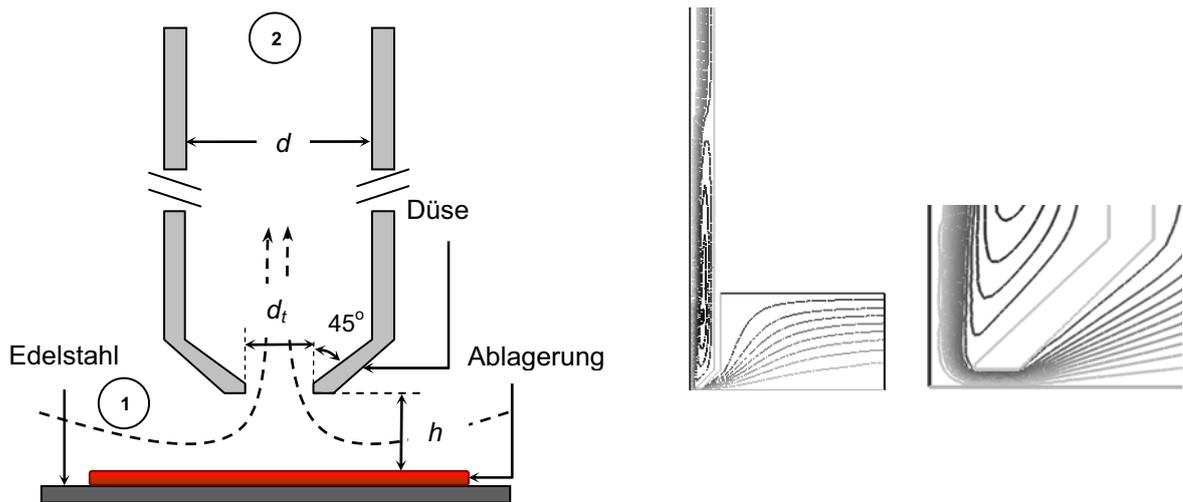
(Dr.-Ing. Wolfgang Augustin)

Durch den gestiegenen Bedarf an Biokraftstoffen sowie das Verwenden von gesundheitlich besser verträglichen Frittierfetten kommt es zu neuen Problemen und Formen der Belagbildung. Besonders die Reinigung dieser Beläge stellt dabei ein großes Problem dar. In diesem Projekt wird das Fouling- und Reinigungsverhalten dieser Öle bzw. Frittierfette näher untersucht. Die Arbeitsgruppe der University of Cambridge hat im Zuge ihrer Forschung die Messmethode des Fluid Dynamic Gauging entwickelt, die es erlaubt, die Ablagerung und Abtragung sowie die Deformation von belagbildenden Schichten in immersierten Systemen in-situ wie ex-situ zu untersuchen. Dieses Projekt hat das Ziel, die in Braunschweig vorhandenen und genutzten experimentellen Anlagen mit den Entwicklungen der University of Cambridge zu erweitern und weiter zu entwickeln.

Fouling und Reinigung sind kritische Aspekte bei der Produktion aufgrund ihres Einflusses auf die Sicherheit und Hygiene sowie auf den Anlagenbetrieb und die Produktqualität. Die Auswahl eines geeigneten Reinigungsverfahrens wird unter anderem durch die Eigenschaften und das Verhalten der Ablagerung bestimmt. Diese sind bei vielen organischen Ablagerungen nicht bekannt. Die Festigkeit einer Foulingschicht ist eine entscheidende Größe für die Reinigung und Abtragung. Sie ist nur schwer zu quantifizieren, da sie auch durch Alterungsprozesse beeinflusst wird, was der bislang am wenigsten verstandene Foulingaspekt ist. Die Alterung bewirkt vor allem eine Verfestigung aufgrund einer fortlaufenden Reaktion oder der Verringerung der Porosität. Die Kenntnis der Scherfestigkeit einer Ablagerung ermöglicht es dem Apparateentwickler, Strömungsbedingungen zu wählen, die durch die Erosion der wachsenden Schicht eine Verringerung des Foulings bewirken.

Die mechanischen Eigenschaften von weichen Foulingschichten werden häufig aufgrund der Schwierigkeiten bei der messtechnischen Bestimmung nicht betrachtet oder sie werden indirekt ermittelt. Ein Ansatz ist die Beaufschlagung einer Oberfläche mit einem Flüssigkeitsstrahl. Die hier vorliegende Arbeit beschreibt einen ähnlichen Ansatz, der die „Fluid Dynamic Gauging (FDG)“-Technik verwendet. Diese in-situ-Technik wurde für die Messung der Dicke von weichen Ablagerungen in flüssigen Medien entwickelt und verwendet einen konvergent-divergenten Strahl.

Das Messprinzip ist in Abb. 4.45 dargestellt. Eine Druckdifferenz zwischen der Flüssigkeit in der Nähe der Düsenöffnung und dem Flüssigkeitsaustritt bewirkt eine Strömung in die Düse hinein. Wenn der Abstand  $h$  zwischen der Oberfläche und der Düse so klein ist, dass das Verhältnis  $h/d_t < 0,25$  ist, dann reagiert der Massenstrom  $\dot{m}$  sehr sensibel auf den Wert von  $h$  und die Messung von  $\dot{m}$  kann verwendet werden, um den Abstand zur Oberfläche zu bestimmen. Diese Technik wurde erfolgreich eingesetzt zur Untersuchung des Aufquellens und der Abtragung von weichen Foulingschichten aus denaturierten Molkeprotein-Gelen von Edelstahloberflächen beim Spülen mit Natriumhydroxid, was das „Cleaning in Place“ von Ablagerungen im Molkereiprozess simulieren soll. Dabei ergaben Beobachtungen, dass die Schubspannung aufgrund der Strömung zu einer signifikanten Deformation der schwächsten Foulingschichten führte. Dieses ist zwar unerwünscht bei der Dickenmessung nach der FDG-Methode, die Abnahme der Schichtdicke, die mit der Methode erfasst wird, steht jedoch in Beziehung zur Kraft, die zur Deformation aufgebracht werden muss. Die Kenntnis der auf die Oberfläche wirkenden Kräfte schafft damit eine Methode sowohl zur in-situ Messung der Scher- bzw. Haftfestigkeit als auch der Dicke von Foulingschichten in Echtzeit.

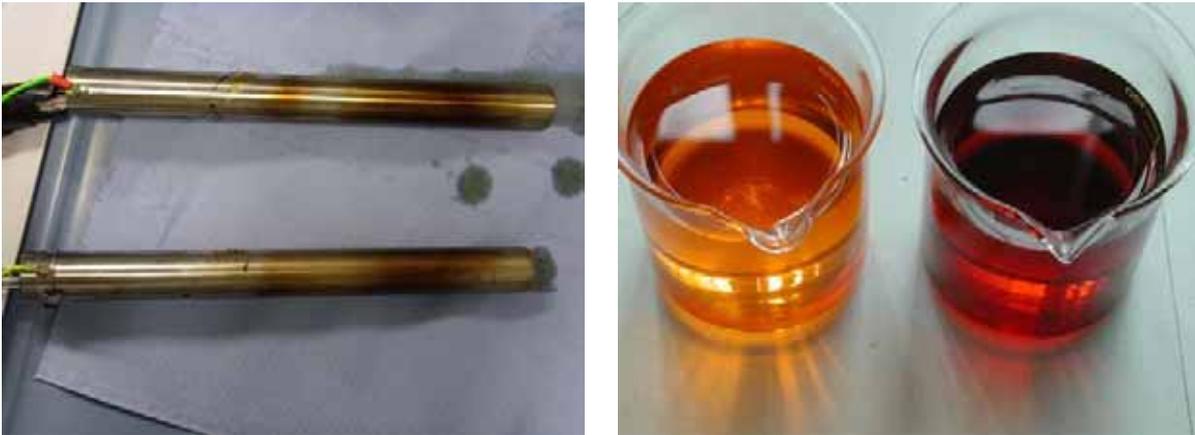


**Abb. 4.45:** Messprinzip und CFD-Simulation

Die FDG-Technik wurde mit Hilfe von CFD-Simulationen erweitert, um Festigkeiten von weichen Ablagerungen zu messen. Die Anwendung wurde getestet durch die Untersuchung des Abtragungsverhaltens der Modellsubstanz Tomatenmark auf Edelstahloberflächen. Die Scherfestigkeit der Foulingschicht hängt stark von der Trocknungszeit bzw. der Alterung ab und erreicht einen asymptotischen Endwert, wenn sich das Material von einer weichen, plastischen in eine spröde, halb feste Paste umwandelt. Der Einfluss der Oberflächenrauheit ist offensichtlich und zeigt bei gealterten Ablagerungen, dass adhäsive Wechselwirkungen das Abreißen bestimmen. Ergebnisse von unabhängigen Laboruntersuchungen an identischen Anlagen in Cambridge und Braunschweig bestätigen die Reproduzierbarkeit

der Ergebnisse und zeigen, dass diese Technik eine günstige und zuverlässige Methode zur Untersuchung des Reinigungsverhaltens von weichen Ablagerungen, wie es auch bei der Reinigung im Prozess auftritt, darstellt.

Biokraftstoffe und „gesunde“ Speisefettgemische, z.B. mit Sonnenblumenöl, enthalten mehr ungesättigte Komponenten (Alkene) als die Mischungen, die sie ersetzen. Alkene können bei Temperaturen oxidieren, wie sie beim Frittieren oder bei der Kraftstoffeinspritzung im Prozess entstehen. Sie bilden dabei Harze, die sich auf Oberflächen ablagern oder an Messaufnehmern haften. Abb. 4.46 zeigt Heizstäbe und Frittieröl nach der Erhitzung. Auf den Heizstäben hat sich ein klebriger und sehr stark haftender Belag gebildet und das Öl hat sich deutlich verfärbt.



**Abb. 4.46:** Heizstäbe mit Ablagerung aus Frittierfett (links) und Frittieröl vor und nach der Erhitzung (rechts)

Im Rahmen des gemeinsamen Projektes wird an einer Versuchsanlage des ICTV mit einem elektrisch innenbeheizten Ringspalt eine FDG-Messeinrichtung installiert. Da bisherige Untersuchungen mit dem FDG ausschließlich bei stationären Betriebsbedingungen und isotherm durchgeführt wurden, sind zuerst grundsätzliche Untersuchungen zum Einfluss von Strömung und Temperaturfeld durchzuführen und anschließend ist der Messaufbau zu kalibrieren. In der zweiten Projektphase werden dann die Belagbildung und der Reinigungsprozess der realen Stoffsysteme untersucht.

*Dieses Forschungsprojekt wird in Kooperation mit den Drs. John Chew und Ian Wilson, Department of Chemical Engineering and Biotechnology der University of Cambridge, Großbritannien, durchgeführt und vom Deutschen Akademischen Austauschdienst (DAAD) und dem British Council finanziell gefördert.*

## 4.3 Bioprozesstechnik

### 4.3.1 Integrierte Produktaufarbeitung in einem Mehrphasenbioreaktor durch selektive Ad- und Desorption

(Dipl.-Biotechnol. Manuel Holtkamp)

In biotechnologischen Prozessen entstehen die größten Kosten durch die Aufarbeitung. Produkte liegen meist nur in sehr geringen Konzentrationen in einem Gemisch vor. Häufig sind interessante Stoffe nur als Intermediate vorhanden oder aufgrund von enzymatischen Gleichgewichten von einem Abbau betroffen. Für diese Fälle stellt die Integration von Verfahrensstufen zur Produktauscheidung eine Möglichkeit zur Erhöhung der Wertproduktausbeute und damit Steigerung der Wirtschaftlichkeit des Prozesses dar. So kann z.B. durch kontinuierliches Entfernen des Produkts die Triebkraft für eine Gleichgewichtsreaktion aufrecht erhalten werden. Für Intermediate ermöglicht eine reaktionsintegrierte Produktabtrennung eine höhere Ausbeute und gleichzeitig einen Produktschutz.

Reaktivdestillation und –extraktion zeigen, dass die Zusammenlegung von Verfahrensstufen Vorteile bringt und wurden deshalb auch bereits erfolgreich eingesetzt. Die reaktionsintegrierte Adsorption hingegen erfordert die Anwesenheit eines zusätzlichen Feststoffes im Reaktionsraum, was zu weiteren Problemen führen kann und bisher nur wenig untersucht wurde.

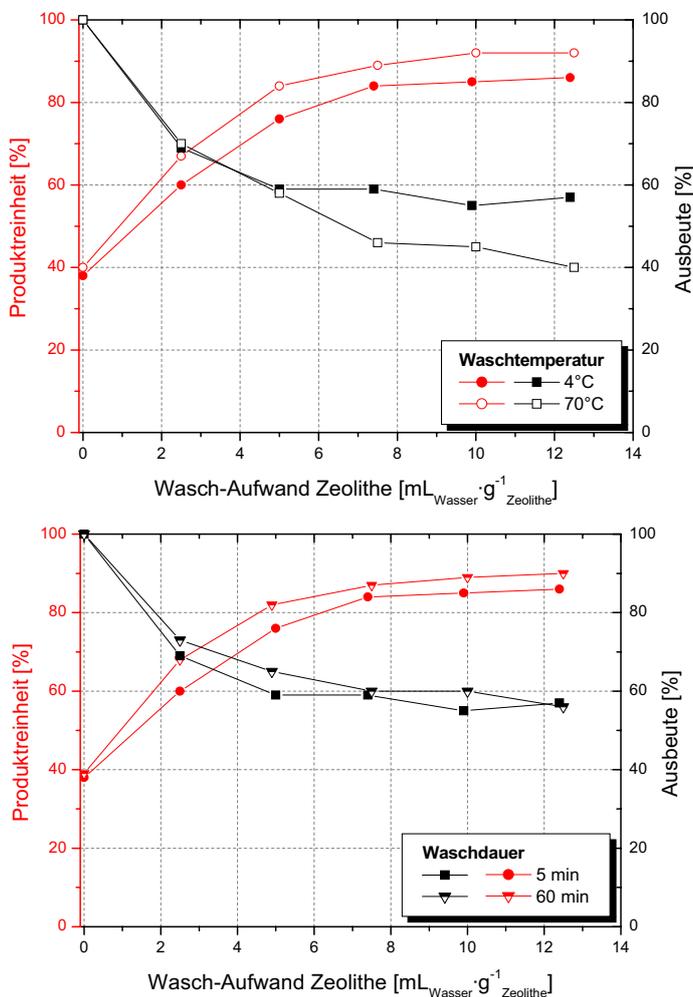
Im Rahmen des vorliegenden Projekts wurde die reaktionsintegrierte Adsorption eines Wertstoffes an Zeolithen untersucht. Dafür stand ein etabliertes Produktionssystem, ein so genannter MehrphasenBioReaktionsAdsorber (MBRA), zur Verfügung. Als Modellsystem wurde die Herstellung von Isomaltose, einem präbiotischen Disaccharid mit Potential für eine medizinische und lebensmitteltechnische Anwendung, gewählt. Bei einer Enzymreaktion wird aus den kostengünstigen Edukten Saccharose und Glukose der Wertstoff Isomaltose durch einen Glucosyltransfer produziert. Dabei ist der Biokatalysator in Alginatperlen immobilisiert und wird durch Siebe in einer Wirbelschicht gehalten. Zeolithe, als Adsorbens eingesetzt, können die Siebe passieren und sorgen so für eine kontinuierliche Produktabtrennung.

Die Adsorption bietet zwar eine selektive Methode zur Produktentfernung, die adsorbierten Komponenten müssen aber auch wieder freigesetzt werden. Dabei kommt der Desorption eine besondere Bedeutung zu. Diese Aufarbeitung wurde bisher noch nicht detailliert betrachtet. Die Desorption muss so erfolgen, dass der durch die Adsorption erreichte Aufreinigungserfolg nicht wieder verloren geht und letztendlich hohe Produktreinheiten und Ausbeuten erzielt werden. Somit lag der Schwerpunkt der Untersuchungen auf den Parametern, welche die Desorption beeinflussen. Hier wurde vor allem der Einfluss des Eluenten (Desorptionsmittel) und der Temperatur auf die Desorptionskinetik untersucht.

Zum Beginn des Projekts stand ein Enzymsystem zur Verfügung, das hohe Konzentrationen an Glukose benötigte, um entsprechende Produktkonzentrationen an Isomaltose zu erzielen. Bei 500 g/L Glukose kam es aber sowohl zu Problemen

bei der zur Desorption nötigen Fest-Flüssig-Trennung, als auch zur vermehrten Co-Adsorption von Glukose, was den Aufreinigungserfolg zunichte machte.

Als Verfahrensalternative zur derzeitigen Wirbelbettadsorption wurde ein zum Produktionsreaktor im externen Umlauf geschaltetes Adsorberfestbett in Erwägung gezogen. Damit könnte die aufwändige Fest-Flüssig-Trennung der feinen Zeolithe aus der viskosen Produktlösung vermieden werden. Durch Aluminiumoxid als Bindemittel wurden die pulverförmigen Beta-Zeolithe (Si/Al=75) extrudiert. Die so vergrößerten Partikel sollten einen Betrieb im Festbett ermöglichen und zu einer leichteren Entfernung der Zwickelflüssigkeit, welche ebenfalls hohe Glukosekonzentrationen enthielt, ermöglichen. Die Kapazität dieser Extrudate wurde durch den Bindemittelanteil von 25% jedoch deutlich reduziert, so dass ein Einsatz nicht mehr sinnvoll erschien. Zudem wirkte sich der permanente Wasserkontakt der Zeolithe negativ auf deren Adsorptionskapazität aus, mehr dazu s. u..



**Abb. 4.47:** Produktreinheit und Ausbeute in Abhängigkeit der Wascht Temperatur und –dauer. Links: Wascht Temperatur bei 5 min Waschdauer, rechts: Einfluss der Zeit bei einer Wascht Temperatur von 4°C

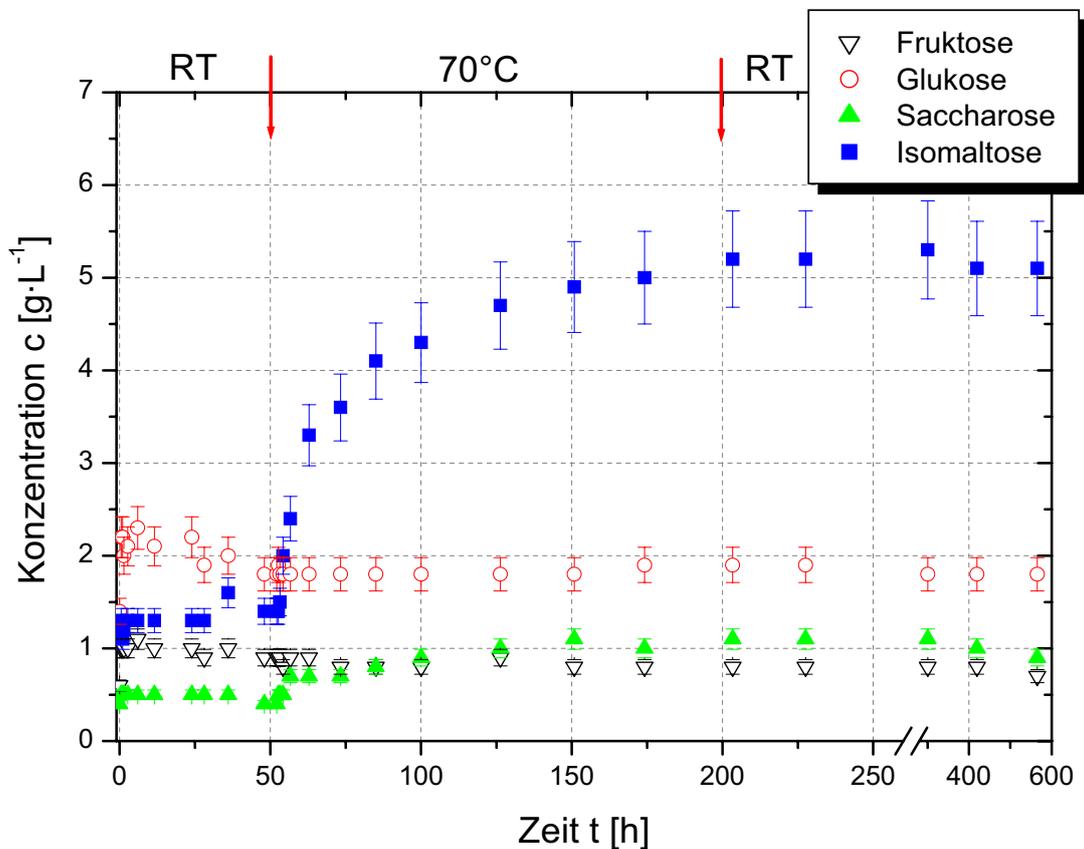
Durch einen verbesserten Bio-katalysator konnte die nötige Glukosekonzentration auf 120 g/L gesenkt werden, was zusammen mit einer neu etablierten Fest/flüssig-Trennung, durch Einsatz einer Siebmantelzentrifuge, eine ausreichend effiziente Abtrennung der beladenen Zeolithe ermöglichte. Diese Zeolithe wurden dann Desorptionsuntersuchungen unterzogen, um eine möglichst effiziente Verfahrensweise zur Desorption zu finden.

Um die den Zeolithen anhaftende Zwickelflüssigkeit so zu entfernen, dass möglichst wenig Produkt verloren geht, wurde der Einfluss der Waschdauer und der Wascht Temperatur untersucht. Dazu wurden die Zeolithe in einen Rührkessel gewaschen, noch einmal zentrifugiert und anschließend desorbiert.

Nach Abb. 4.47 zeigte sich, dass eine hohe Temperatur zu größeren Produktverlusten führte. Hohe Temperaturen beim Aus-

waschen der Zwickelflüssigkeit begünstigen eine - unerwünschte - gleichzeitige Desorption. Durch die Waschmitteltemperatur von 70°C können zwar höhere Reinheiten als bei niedrigen Temperaturen erzielt werden, dafür sinkt jedoch die Ausbeute auf 40% statt 60% bei 4°C. Somit sollte für das Entfernen der Zwickelflüssigkeit eine möglichst niedrige Temperatur gewählt werden. Die Waschdauer hat bei niedrigen Temperaturen nur eine untergeordnete Bedeutung.

Die gewaschenen Zeolithe wurden in einem Rührkessel bei Raumtemperatur durch Zugabe von Wasser desorbiert. Zunächst wurde als Eluent zur Desorption ein 50% Ethanol-Wasser-Gemisch eingesetzt. Dies zeigte eine etwas stärkere Desorptionswirkung mit größerer nutzbarer Beladungsdifferenz zwischen Ad- und Desorption als reines Wasser. Da aber Ethanol später wieder durch eine Destillation vom Produkt getrennt werden müsste und dieses den Aufwand für die Aufarbeitung vergrößert, wurde auf die Zugabe von Ethanol verzichtet.



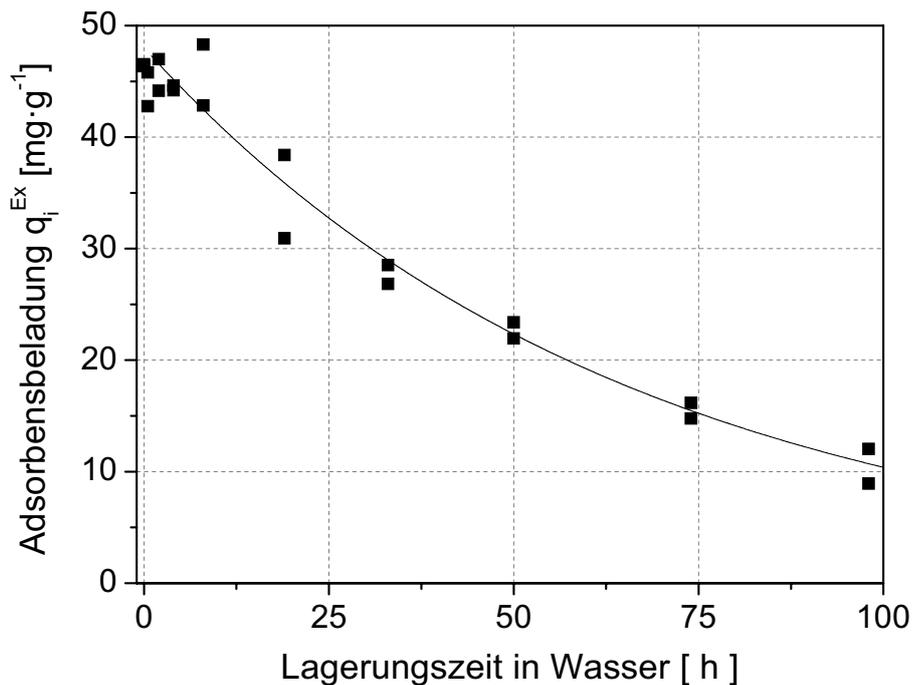
**Abb. 4.48:** Konzentrationsverlauf der beteiligten Saccharide während einer Desorption mit Wasser in einen beheizbaren Rührkessel (RT: Raumtemperatur)

Wie in Abb. 4.48 zu erkennen, kommt es bei Raumtemperatur zu einer Freisetzung der adsorbierten Komponenten. Dabei kann allerdings nicht unterschieden werden, welcher Anteil noch auf die im Zwickel enthaltenen Saccharide zurückzuführen ist. Es zeigt sich jedoch, dass auch nach einer Betriebsdauer von 50 Stunden kein deutlicher Anstieg einer Komponente zu erkennen ist. Mit der Erhöhung der Temperatur auf 70°C kommt es jedoch zur Desorption von Isomal-

tose. Die Konzentrationen der anderen Saccharide bleiben nahezu unverändert. Dies zeigt, dass bereits eine vollständige Desorption der Komponenten Glukose und Fruktose stattgefunden hat.

Bis zur vollständigen Desorption der Isomaltose vergehen allerdings mehrere Tage, ein Zeichen, dass es sich hier um eine überaus starke adsorptive Bindung handelt. Nach mehr als 200 Stunden wird die Temperatur wieder auf Raumtemperatur abgesenkt. Die Konzentrationen im Überstand bleiben davon jedoch unbeeinflusst, d.h. es kommt nicht zu einer erneuten Adsorption des Produkts. Dieses zunächst überraschende Phänomen ist von Vorteil für die weitere Prozessführung, denn zur endgültigen Produktgewinnung muss der Überstand erneut durch Fest-Flüssig-Trennung von den Zeolithen getrennt werden. Dies kann nunmehr bei einer beliebigen Temperatur geschehen.

Dass keine erneute Adsorption beim Absenken der Temperatur auftrat, ließ vermuten, dass die Zeolithe durch die längere Lagerung in Wasser an Adsorptionskapazität verlieren. Immerhin werden die Zeolithe vor dem ersten Einsatz im MBRA bei 400°C aktiviert und in der Literatur ist die Reduzierung der Adsorptionskapazität durch Restfeuchte in vielen Fällen beschrieben.

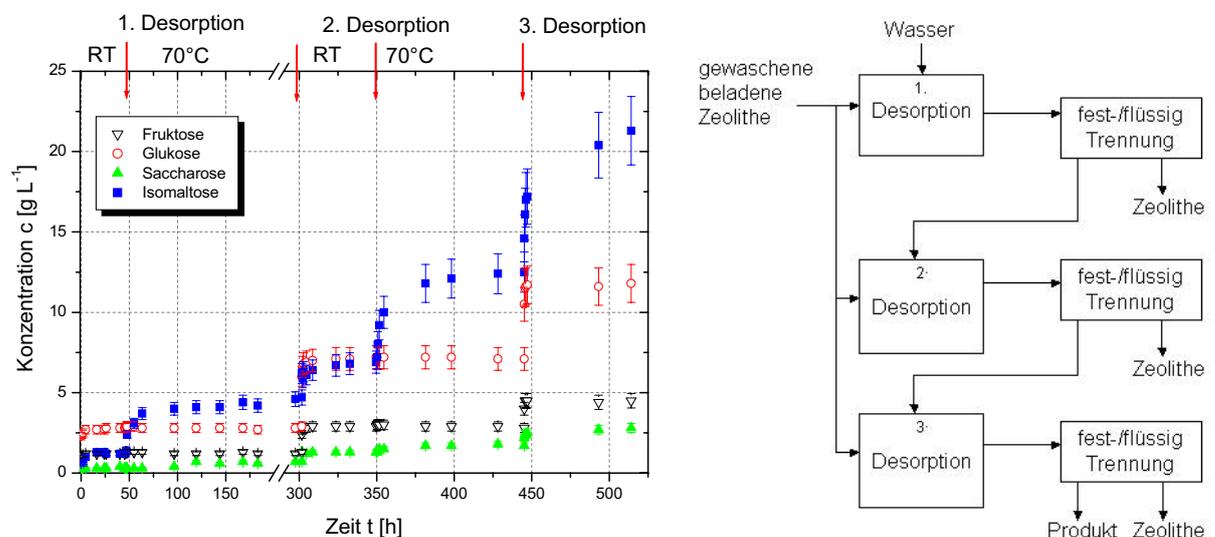


**Abb. 4.49:** Abnahme der Gleichgewichtsbeladung für Isomaltose in Abhängigkeit der vorherigen Lagerungszeit in Wasser

Abb. 4.49 zeigt die Abnahme der Adsorbensbeladung in Abhängigkeit einer vorherigen Lagerung der Zeolithe in Wasser. Nach einer Dauer von 50 Stunden haben die Zeolithe schon die Hälfte ihrer Adsorptionskapazität für Isomaltose verloren. Dies scheint auch der Grund dafür zu sein, dass keine erneute Adsorption nach Absenken der Temperatur bei der Desorption auftritt. Für die Prozessführung ist dieses Ergebnis aber von entscheidender Bedeutung. So sollten die

Zeolithe so lange wie möglich trocken gelagert und dem Feedstrom erst kurz vor Eintritt in den MBRA beigemischt werden.

Wie in Abb. 4.48 zu sehen, kann nach einer Desorption mit vorangegangener Wäsche auch bei hohen Zeolithkonzentrationen während der Desorption keine Isomaltosekonzentration über 10 g/L erzielt werden. Weiter ist die Desorption unvollständig, je mehr Zeolith pro Eluentvolumen eingesetzt wird. Um eine weitere Aufkonzentrierung des Produktes Isomaltose in dem bereits beladenen Eluenten zu untersuchen, wurde eine mehrstufige Desorption durchgeführt. Das bereits benutzte Eluentvolumen wurde erneut mit gewaschenen Zeolithen zur Desorption verwendet.

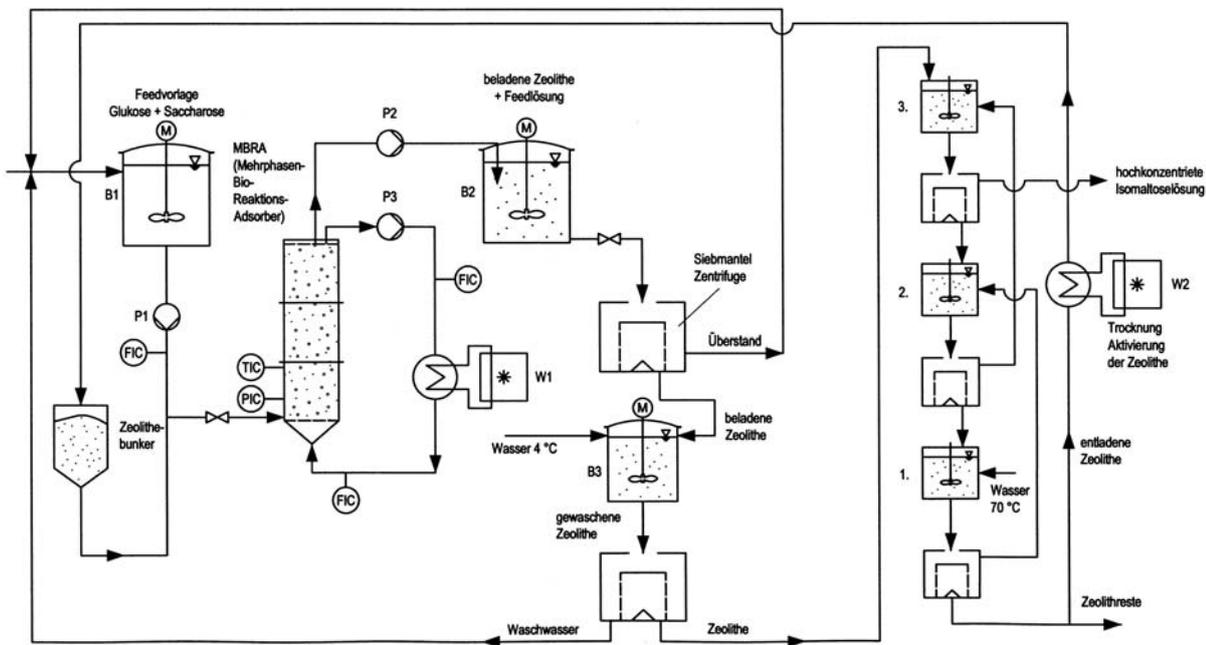


**Abb. 4.50:** Mehrstufige Desorption. Links: Konzentrationsverlauf bei mehrfacher Verwendung des Eluenten, rechts: Fließbild der mehrstufigen Desorption

Abb. 4.50 zeigt links die Saccharidkonzentrationen im Eluenten während einer mehrstufigen Desorption, rechts ist das Fließbild der mehrstufigen Desorption skizziert. Dieses Ergebnis zeigt, dass es möglich ist, mit einem bereits beladenen Eluenten eine genügend große Triebkraft für die Desorption zu erzeugen. Somit kann eine mehrstufige Gegenstromdesorption genutzt werden, um eine Aufkonzentrierung des Produktes und gleichzeitig eine vollständige Entladung des Adsorbens zu erzielen.

Alle gewonnenen Erkenntnisse resultieren somit in einem kontinuierlichen Prozessschema, das auch einen Lösungsweg für die Aufarbeitung enthält und in Abb. 4.51 dargestellt ist. Im linken Teil der Abbildung ist der MBRA dargestellt, rechts der Waschprozess und eine mehrstufige Gegenstromdesorption in einer Kaskade aus Rührkesseln und Zentrifugen. Durch den Kapazitätsverlust der Zeolithe bei Wasserlagerung wird ein Zeolithbunker erforderlich, in dem das Adsorbens trocken gelagert und dem Feedstrom erst kurz vor Eintritt in den MBRA

beigemischt wird. Im Fall einer diskontinuierlichen Fahrweise wären für die mehrmalige Desorption und Fest/flüssig-Trennung nur ein Rührbehälter und eine Zentrifuge erforderlich, dafür aber eine Reihe von Pufferbehältern. Welche Fahrweise den letztlich wirtschaftlicheren Prozess ergäbe, müsste im Einzelfall geprüft werden.



**Abb. 5:** Prozessfließbild für den gesamten Produktions- und Aufarbeitungsprozess

Zur abschließenden Beurteilung ist noch die Reaktivierung und somit Wiederverwendung der Zeolithe zu untersuchen, um eine Kreislaufführung zu ermöglichen. Weitere Isothermenmessungen sollen außerdem die Abschätzung der Adsorptionswärme ermöglichen und somit eine physikalische Grundlage liefern, mit der die Betriebsweise der Temperatur-Wechsel-Desorption untermauert werden kann.

*Dieses Projekt wurde durch die Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) im Rahmen des Sonderforschungsbereichs 578 „Vom Gen zum Produkt“ und durch die Max-Buchner-Forschungstiftung finanziell unterstützt.*

#### 4.4 Prozessintensivierung durch Grundoperationen und integrierte Verfahren

##### 4.4.1 Einsatz Ionischer Flüssigkeiten in der Reaktivdestillation

(Dipl.-Chem. Jan Kuschnerow)

Ionische Flüssigkeiten („ionic liquids“ „IL“) sind eine neuartige Gruppe chemischer Verbindungen mit besonderen Eigenschaften, die sie für zahlreiche Anwendungen interessant machen. Sie finden vor allem als Katalysatoren, in der Elektrochemie und als Lösungsmittel Anwendung. Aufgrund des sehr geringen Dampfdruckes sind die Ionischen Flüssigkeiten eine umweltschonende Alternative zu herkömmlichen flüchtigen organischen Lösungsmitteln. Durch destillative Ab-

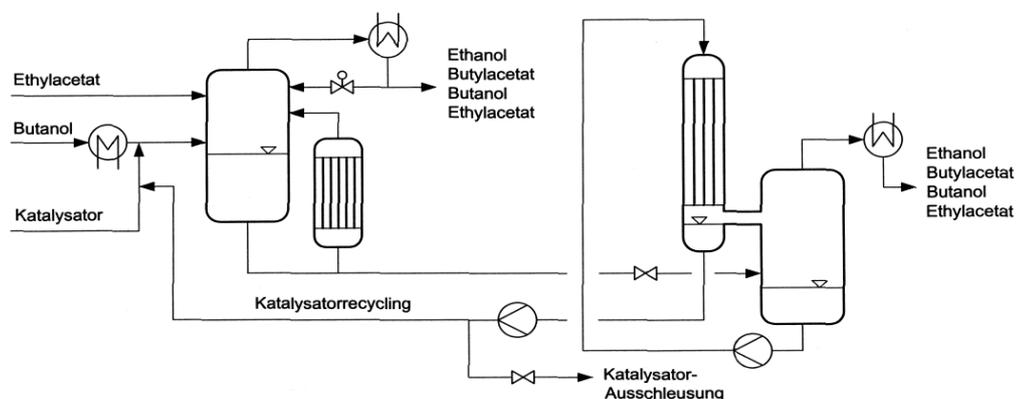
trennung von Verunreinigungen lassen sich ILS relativ einfach reinigen und z. B. als Katalysator wiedergewinnen. Die breite Anwendungspalette lässt sich darauf zurückführen, dass die chemischen und physikalischen Eigenschaften der IL durch geeignete Anion/Kation-Paarungen in weiten Bereichen frei eingestellt werden können.

Die Reaktivdestillation vereint die Prozessstufen Reaktion und Stofftrennung in Einer, was unter mehreren Gesichtspunkten zu wünschenswerten Effekten führt. Durch den Ersatz zweier Apparaturen durch Eine werden Investitionskosten, sowie während des Betriebes Prozesswärme eingespart. Durch die Abtrennung der Produkte im Moment deren Entstehung wird das thermodynamische Gleichgewicht zugunsten der Produkte verschoben und die Bildung von Nebenprodukten minimiert. In Kombination mit dem Einsatz Ionischer Flüssigkeiten als Katalysator ist die Katalysatorabtrennung ebenfalls ein synchron ablaufender Bestandteil der Prozessstufe. Dadurch gelingt es, die Vorteile homogener Katalyse (Aktivität, Selektivität) mit dem fundamentalen Vorteil heterogener Katalyse (einfache Abtrennbarkeit des Katalysators) zu verbinden.

Die säurekatalysierte Umesterung ist eine industriell angewandte Standardreaktion, z. B. bei der Herstellung von Biodiesel und Polyethylenterephthalat (PET). Aufgrund ihrer chemischen und physikalischen Eigenschaften ist diese Reaktion ein idealer Untersuchungsgegenstand für die Reaktivdestillation mit Ionischen Flüssigkeiten als Katalysator.

Ziel der hier durchgeführten Untersuchungen ist ein kontinuierlicher Umesterungsprozess, in dem der Katalysator kontinuierlich aus der Reaktion ausgetragen, zurückgewonnen, rezykliert und wiederverwendet wird, siehe Abb. 4.52. Dabei stehen drei Problemstellungen im Vordergrund:

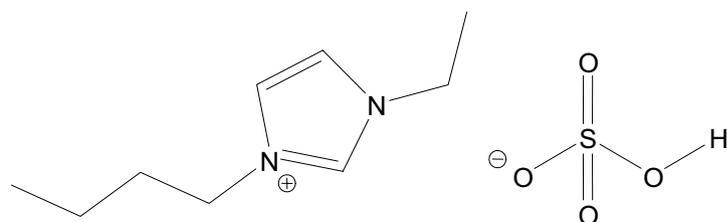
- Auswahl, Synthese und Charakterisierung des Katalysators.
- Auswahl und Optimierung des Reaktionssystems.
- Entwicklung der Trenntechnik bezüglich der Produktausschleusung und des Katalysatorrecyclings.



**Abb. 4.52:** Fließbild des Zielverfahrens.

Das Vorhaben wird in Kooperation mit dem Arbeitskreis von Prof. Dr. Wasserscheid, Lehrstuhl für Chemische Reaktionstechnik, FAU Erlangen-Nürnberg durchgeführt.

Zur Untersuchung wurde die Umesterung von Ethylacetat mit Butanol gewählt, als Katalysator dienten mehrere Ionische Flüssigkeiten, sowohl imidazoliumbasierte Systeme als auch quartäre Ammoniumsalze. Bei den imidazoliumbasierten Systemen handelt es sich um 1-Ethyl-3-Methylimidazoliumhydrogensulfat (EMIM- $\text{HSO}_4$ ) und 1-Butyl-3-Ethylimidazoliumhydrogensulfat (BEIM- $\text{HSO}_4$ ).



**Abb. 4.53:** 1-Butyl-3-Ethylimidazoliumhydrogensulfat.

Als Ammoniumsalz ist vor allem Tributylammoniumhydrogensulfat ( $\text{Bu}_3\text{NH-}\text{HSO}_4$ ) zu nennen, ferner solche mit längeren Alkylketten, deren katalytische Aktivität jedoch deutlich geringer ist. Die ILs werden in Erlangen synthetisiert und die Umesterungen am ICTV durchgeführt. Dazu dient im Labormaßstab ein gerührter und thermostatisierter Rundkolben. Im technischen Maßstab wird die Reaktion in einem scale up fähigen Naturumlaufverdampfer mit 3,5 L Reaktionsblase durchgeführt, siehe Abb. 4.54.



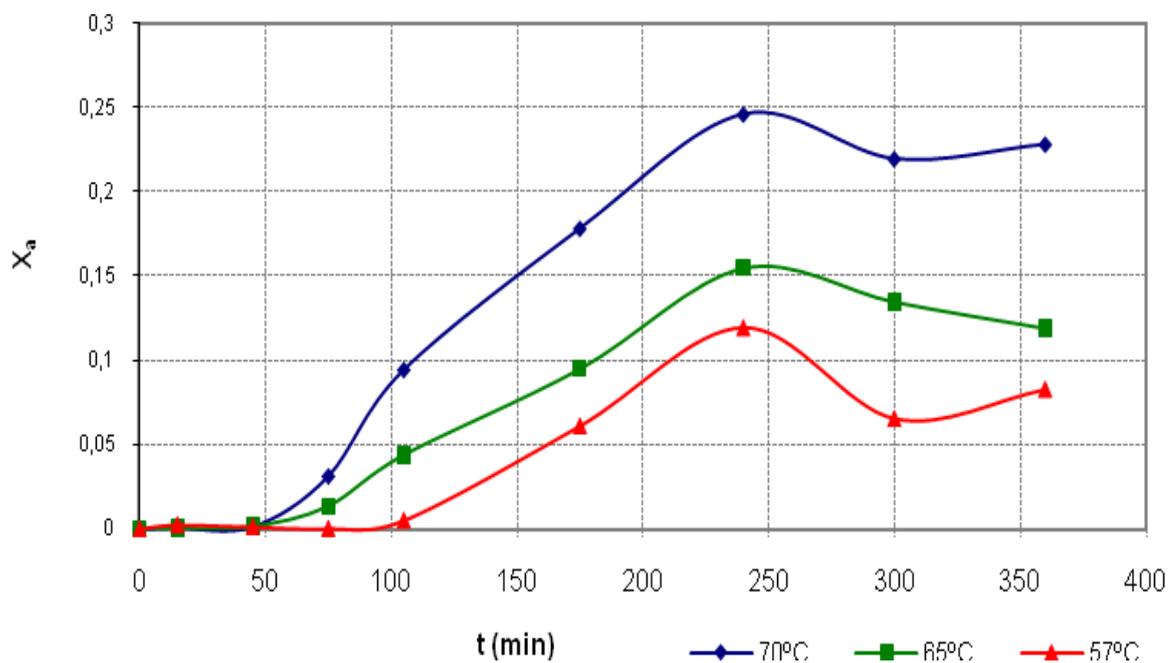
**Abb 4.54:** Naturumlaufverdampfer

In den einzelnen Versuchen werden zahlreiche Parameter variiert, darunter die Temperatur, das Stoffmengenverhältnis der Edukte, die Katalysatorkonzentration und die Katalysator-IL. Ferner wurde die Reaktion im Labor- und im technischen Maßstab, sowie satzweise und kontinuierlich gefahren. Daneben wurden zahlreiche Versuche durchgeführt, die der weiteren Charakterisierung von Reaktion und Katalysator dienen, z.B. auf Korrosivität und hygroskopische Eigenschaften der IL.

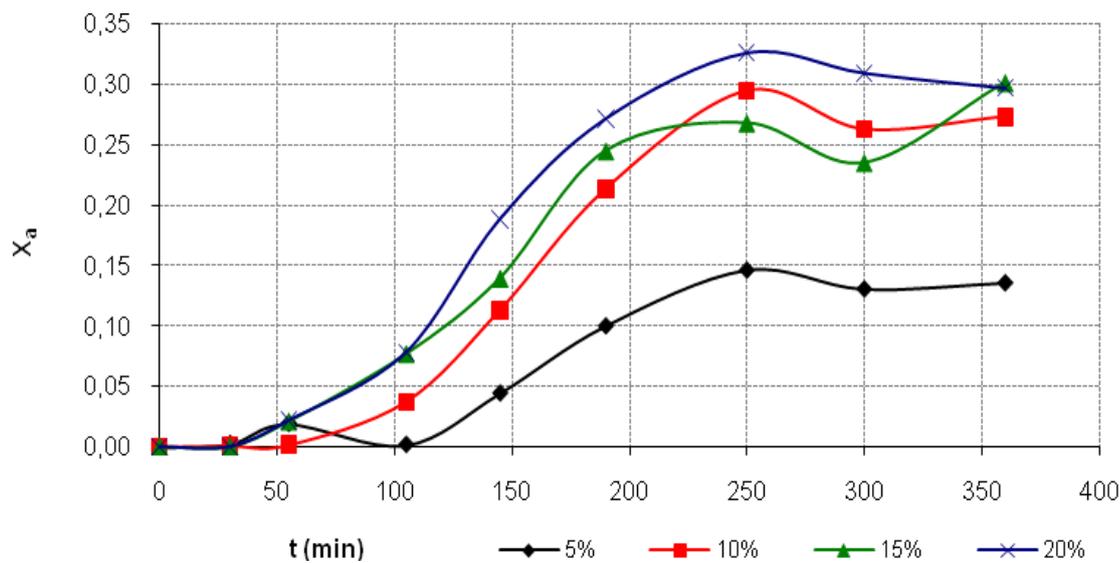
Bei der hier durchgeführten Umesterung handelt es sich um eine reversible Reaktion mit geringer Reaktionsenthalpie, deren Gleichgewichtskonstante bei Eins liegt. Weder Produkte noch Edukte sind demnach thermodynamisch bevorzugt. Im Zuge der

Untersuchungen wurden auch kinetische Daten, wie Geschwindigkeitskonstanten und die Aktivierungsenergie, bestimmt. Dazu werden Batch-Versuche im Labormaßstab durchgeführt und jeweils die Umsätze, siehe Abbn. 4.55, 4.56 und 4.59, bzw. die Konzentrationen des Produktes Butylacetat, siehe Abbn. 4.57 und 4.58, über der Zeit aufgetragen.

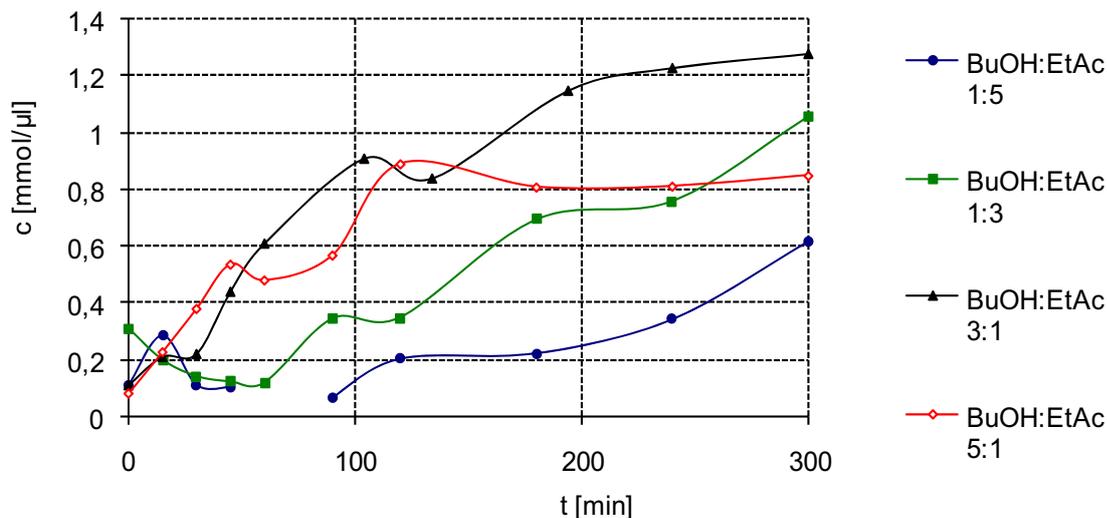
Für die Analytik werden je nach Anwendung verschiedene Methoden herangezogen. Der Reaktionskontrolle bei der Katalysatorsynthese dient die  $^1\text{H-NMR}$  und  $^{13}\text{C-NMR}$  Spektroskopie; die Zusammensetzung der Reaktionsgemische der Umesterungen wird durch Gaschromatographie ermittelt. Erwartungsgemäß steigen die Reaktionsgeschwindigkeiten mit der Temperatur und der Katalysatorkonzentration, wobei bei letzterer ab etwa 10-20% nur noch eine unterproportionale Zunahme der Reaktionsgeschwindigkeit festzustellen ist.  $\text{BEIM-HSO}_4$  ist als Katalysator deutlich besser geeignet als  $\text{EMIM-HSO}_4$ , was in besserer Löslichkeit im System begründet ist. Das optimale Moleinsatzverhältnis der Edukte liegt bei etwa 1:3 zugunsten des Butanols, was ebenfalls mit dem Löslichkeitsverhalten des Katalysators begründet werden kann, da die IL sich besser in Butanol als in Ethylacetat löst.



**Abb. 4.55:** Einfluss der Temperatur auf den Reaktionsumsatz.

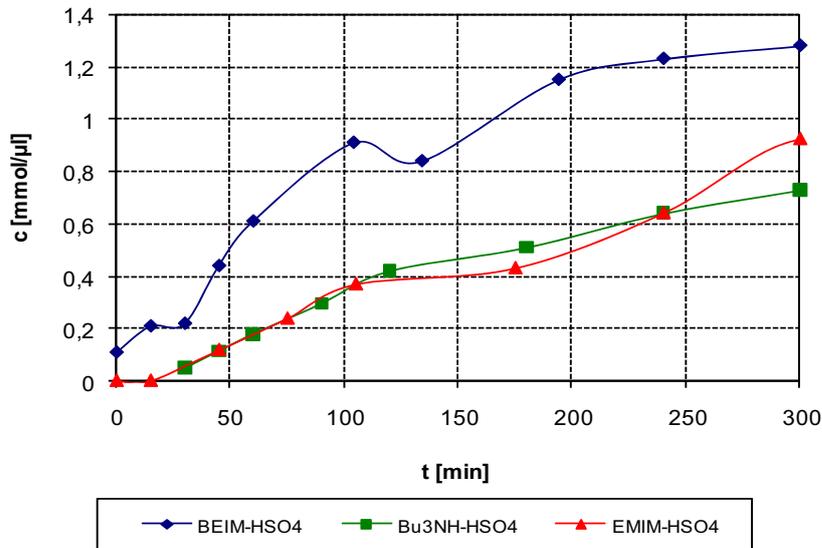


**Abb 4.56:** Einfluss der Katalysatorkonzentration auf den Reaktionsumsatz.



**Abb 4.57:** Einfluss des Eduktverhältnisses auf den Reaktionsumsatz.

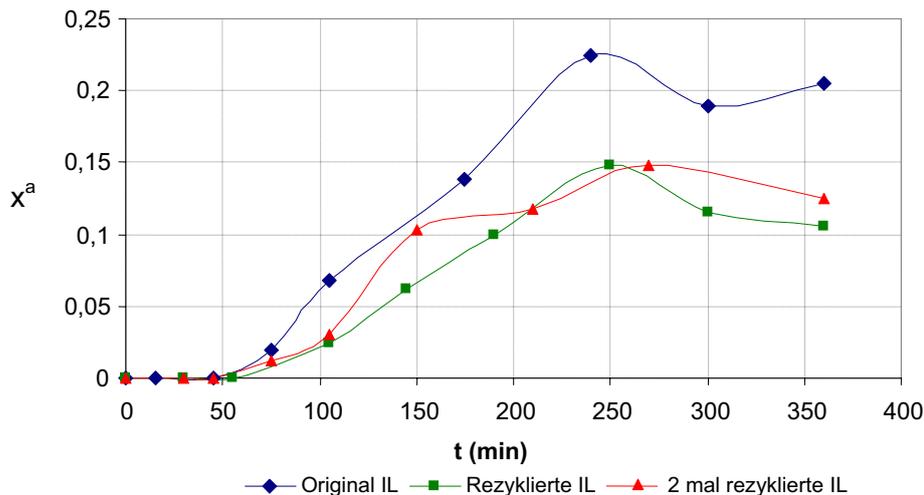
Tributylammoniumhydrogensulfat wurde als weitere interessante Katalysator-IL untersucht. Sie ist bezüglich der katalytischen Aktivität mit EMIM- $\text{HSO}_4$  vergleichbar, liegt bei Raumtemperatur jedoch in fester Phase vor und ist deswegen kaum hygroskopisch, im Gegensatz zu den meisten ILs. Zudem ist sie sehr einfach aus preisgünstigen Edukten herzustellen.



**Abb. 4.58:** Einfluss des Katalysators auf den Reaktionsumsatz.

Die Korrosivität Ionischer Flüssigkeiten wurde am Beispiel EMIM-HSO<sub>4</sub> untersucht und mit dem Standardkatalysator der Umesterung Schwefelsäure verglichen. Als Messgröße diente der flächenspezifische Abtrag von Stahl in einem Bad der zu testenden Substanz. Hieraus resultierend erwies sich eine um 90% geringere Korrosivität der IL, was sowohl Apparate als auch Reaktanden schont. In ersten Versuchen der Biodieselsynthese hat sich gezeigt, dass Schwefelsäure, auch verdünnt, den Ausgangsstoff Rapsöl angreift.

Durch Destillation der Reaktionsgemische wurden Katalysator-ILs wiedergewonnen und die Rezyklate erneut für Umesterungen verwendet bzw. acidimetrisch titriert. Dabei ergab sich, dass der einfach rezyklierte Katalysator 30% weniger Aktivität aufweist als der frische, nach der zweiten Wiedergewinnung gibt es jedoch keinen Aktivitätsverlust mehr. Die Titrationen haben ergeben, dass sich der „Aktivitätsverlust“ vollständig auf eine Verdünnung der IL durch restliche Reaktionsmischung zurückführen lässt. Dies liegt daran, dass die IL nach der Synthese mehrere Tage unter Hochvakuum getrocknet wurde und der Recyclingprozess lediglich bei 100 mbar fünf Stunden ablief. An dieser Stelle gilt es den optimalen Kompromiss zwischen Katalysatorleistungseinbuße und Reinigungsaufwand zu finden und das Reinigungsverfahren der IL im Fallfilmverdampfer zu besseren Ergebnissen zu führen.



**Abb 4.59:** Vergleich von frischem mit rezykliertem Katalysator.

All diese Betrachtungen zeigen aus verschiedenen Perspektiven die Umweltrelevanz des Themas.

- Abfallstoffe werden gleich an mehreren Stellen eingespart. Die Reaktivdestillation erhöht die Produktausbeuten nach dem Prinzip von Le Chatelier und minimiert gleichzeitig die Folge- und Nebenproduktbildung und somit die Abfallbelastung durch Chemikalien. Durch die Vereinigung mehrerer Apparate in einem werden Materialien sowie am Ende der Lebensdauer eines Apparates Abfälle eingespart. Ionische Flüssigkeiten weisen eine deutlich geringere Korrosivität auf als Schwefelsäure, was die Apparate schont und deren Lebensdauer erhöht.
- Analog zu den Abfallstoffen wird Energie gespart, da bei der Reaktivdestillation die eventuell anfallende Prozesswärme direkt für die Destillation genutzt werden kann und nicht über lange Wege unter Verlusten transportiert werden muss. Der Bau und die Entsorgung nur eines Apparates erfordert weniger Energie als der Bau mehrerer, der Synergieeffekt entspricht der Abfallersparnis.
- Sowohl die Reaktivdestillation als Verfahren selbst als auch der Einsatz Ionischer Flüssigkeiten hat das Potential, Azeotrope zu umgehen bzw. zu trennen. Dadurch können Wasserdampf- oder Überdruckdestillationen umgangen werden, was zum einen die Anlagensicherheit erhöht und zu anderen belastete Abwässer vermeidet.

#### 4.4.2 Von Batch zur Kontifertigung: Neue Prozessfenster und Fertigungsstrategien durch Mikroproduktionstechnologie (Dipl.-Ing. Laura Grundemann)

In der Spezialchemie-, Lebensmittel- und Pharmaindustrie werden die meisten Produkte in Batchverfahren hergestellt. Dies liegt in den geringen Produktionsmengen von 10 kg/a bis 1000 t/a, dem vielfach hohen Anteil an Reinigungsschrit-

ten und den kurzen Produktlebenszyklen in diesen Sparten begründet. Oftmals wird die Produktion in einem einzigen Batchreaktor durchgeführt, in dem sich auch Edukte mit kritischen Eigenschaften, wie einem hohen Feststoffanteil, hoher Viskosität oder der Neigung zum Schäumen und zur Belagbildung, handhaben lassen. Zudem gestaltet sich der Reinigungszyklus durch die frei zugängliche Geometrie eines Rührkessels als sehr einfach. Außerdem weisen absatzweise arbeitende Produktionsapparate eine hohe Flexibilität sowohl hinsichtlich der häufig wechselnden Produkte als auch den unterschiedlich großen Produktionsmengen auf, so dass sie oftmals als Mehrproduktanlagen dienen. Auf diese Weise kann der Hersteller flexibel auf Nachfrageschwankungen des Marktes reagieren.

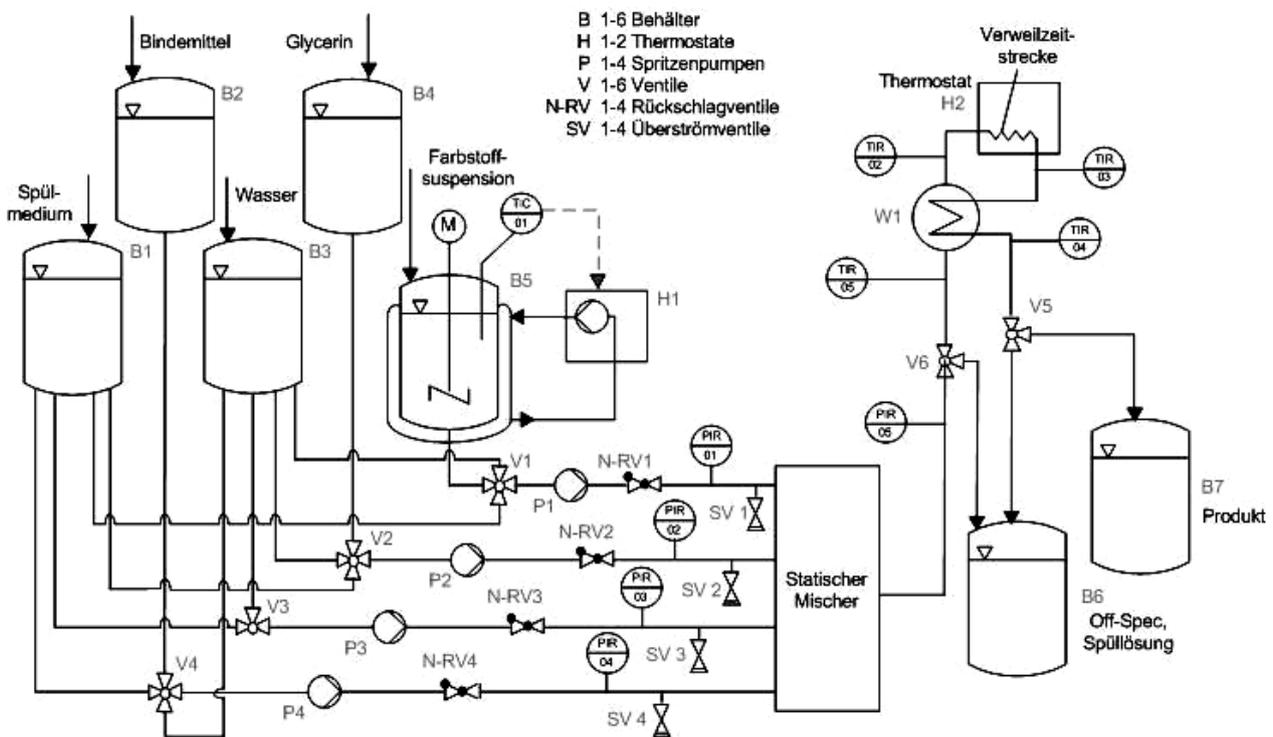
Zur Erhaltung der internationalen Wettbewerbsfähigkeit der Produkte wird zugleich versucht, die Herstellkosten u.a. durch eine weitestgehende Prozessautomatisierung zu verringern. Aufgrund der vermehrten Forderungen nach umweltfreundlichen sowie energie- und ressourcenschonenden Herstellungsverfahren müssen die Prozesse ebenfalls im Bezug auf die verwendeten Reinigungsmittel, Energieverbrauch und –integration weiter optimiert werden. Darüber hinaus stehen Firmen verstärkt unter Druck, ihre Produkte jederzeit liefern zu können, ohne dass sich dies auf die Lagerkosten niederschlägt. Durch eine reine Verbesserung der klassischen Batchverfahrensweise lassen sich diese gestiegenen Anforderungen an die Herstellung jedoch nicht erfüllen. Vielmehr muss eine Umstellung von der diskontinuierlichen auf eine kontinuierliche Produktion erfolgen.

Bei der klassischen kontinuierlichen Produktion führt ein hoher Automatisierungsgrad zu einem geringen Personaleinsatz. Die bisher vom Personal bewältigten Aufgaben der Produktionssteuerung werden ersetzt durch die reine Überwachung und Bestückung der Anlage mit Edukten. In den meisten Fällen werden Mono-Anlagen eingesetzt, mit denen große Produktmengen mit einer gleichbleibenden Qualität hergestellt werden können, die jedoch gleichzeitig sehr unflexibel im Hinblick auf wechselnde Produkte und Produktionsmengen sind.

Die Vorteile beider Betriebsweisen werden bei der Kampagnenfahrweise kombiniert, bei der innerhalb einer Kampagne das Produkt kontinuierlich auf einer weitestgehend automatisierten Anlage mit einer konstanten Produktqualität produziert wird. Nach Ablauf der definierten Kampagnenlänge wird die Anlage gespült und für den Beginn der nächsten Kampagne mit einem weiteren Produkt vorbereitet. Bei der Kampagnenfahrweise hat die Dauer einer einzelnen Kampagne bzw. die Stillstandzeit aufgrund der erforderlichen Spülzyklen zwischen den Produktionskampagnen einen entscheidenden Einfluss auf die Wirtschaftlichkeit aber auch die Flexibilität dieser Betriebsart und muss daher optimal gewählt werden. Für die oben genannten kleinen Produktmengen wird eine Kampagnenfahrweise durch den Einsatz von mikroverfahrenstechnischen Komponenten rentabel. Deren geringer Hold-up führt zu einer Verringerung der benötigten Reinigungsmittel- und infolgedessen ebenfalls der anfallenden Abwassermenge. Gleichzeitig kann bei der während einer Kampagne vorliegenden kontinuierlichen Produktion eine Wärmeintegration erfolgen und somit der Energieeintrag verringert werden.

Am ICTV wird die prinzipielle Machbarkeit einer solchen Verfahrensumstellung am Beispiel einer Tintenherstellung untersucht. Bislang werden die Tinten in einem Batchreaktor in einem circa 4 - 5 Stunden dauernden Prozess hergestellt, wobei die Ansätze typischerweise ca. 50 bis 1000 L umfassen. Bei der diskontinuierlichen Produktion werden zuerst die Edukte wie Wasser, Glycerin, Bindemittel, Pigmente, Stabilisatoren und Zusatzstoffe im Reaktor miteinander vermischt und danach auf 50 bis 120 °C erhitzt. Nach einer Haltezeit von ca. 30 min ist die Farb-reaktion abgeschlossen. Danach wird die Mischung wieder auf Umgebungstemperatur abgekühlt und aufgearbeitet, bevor sie schließlich in Zwischengebinde abgefüllt wird.

Bei der kontinuierlichen mikroverfahrenstechnischen Produktion finden die einzelnen Prozessschritte in hintereinander geschalteten Komponenten statt. Das entsprechende Verfahrensfließbild ist in Abb. 4.60 dargestellt.



**Abb. 4.60:** Fließbild der Laboranlage zur kontinuierlichen Herstellung von Tinten

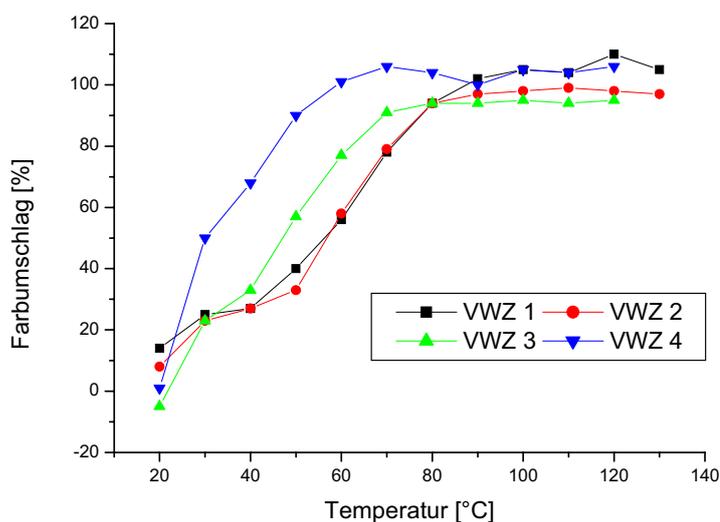
Die Edukte werden dem Mikromischer kontinuierlich zugeführt, darin gemischt und durchlaufen anschließend eine Verweilzeitstrecke. Dabei diffundieren die Farbpartikeln zum Bindemittel und reagieren mit diesem, wodurch ein Farbumschlag des Fluids bewirkt wird. In dem nachfolgenden Mikrowärmeübertrager wird durch Vorheizung des Mischstroms eine Wärmeintegration realisiert. Die Laboranlage wurde für einen Gesamtvolumenstrom von 1 bis 5 L/h ausgelegt, wobei der spätere Produktionsdurchsatz bei 25 bis 60 L/h liegt.

Bei der Tintenherstellung werden Edukte mit unterschiedlichen Eigenschaften wie Fluide und Feststoffe (Pigmente), hochviskose Medien (Glycerin) und Stoffe mit

der Neigung zum Schäumen (Bindemittel) eingesetzt. Bislang können in mikroverfahrenstechnischen Komponenten keine reinen Feststoffe gehandhabt werden, so dass die Pigmente in einem Lösungsmittel gelöst und zudosiert werden müssen. Zur Bestimmung der Zusammensetzung der Vormischung und ihrer optimalen Bereitstellung für den Prozess wurden Versuche mit unterschiedlichen Lösungsmitteln und Feststoffgehalten durchgeführt. Dabei konnte das in der Rezeptur enthaltene Wasser sowohl zur Erstellung der Vormischung als auch zur Verdünnung des viskosen Glycerins eingesetzt werden. Für die kontinuierliche Produktion ist es insbesondere wichtig, dass die Farbstofflösung ohne Qualitätseinbußen für eine Zeit von mindestens 12 h als Vorlage eingesetzt werden kann.

Die Farbreaktion findet entlang der Verweilzeitstrecke in der Reaktionskammer statt. Unterschiedliche Kombinationen aus Temperatur und Verweilzeit wurden hinsichtlich des erzielten Farbumschlags untersucht, siehe Abb. 4.61.

Darüber hinaus wurde das Agglomerationsverhalten der eingesetzten Bindemittel bei unterschiedlichen pH-Werten untersucht. Ziel dabei ist es, die Anzahl der be-



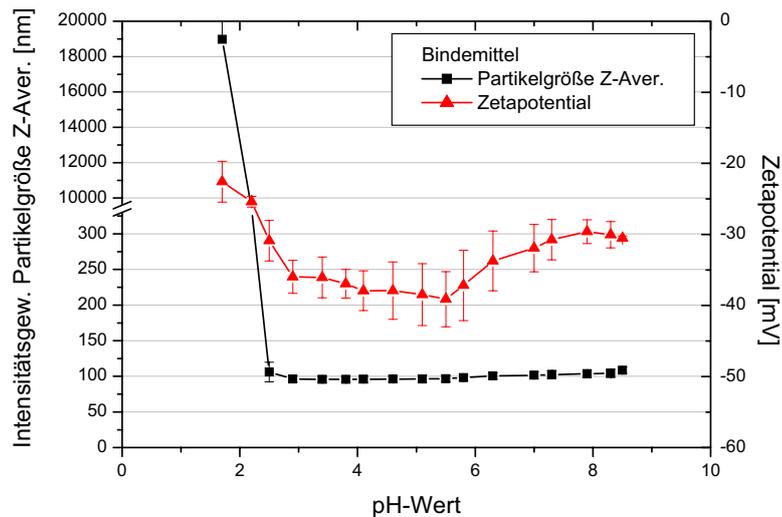
**Abb. 4.61:** Einfluss von Temperatur und Verweilzeit auf den Farbumschlag

untersuchte Medium als stabil, wobei das Zetapotential darauf hindeutet, dass die höchste Stabilität bei einem pH-Wert von 3,5 erzielt wird, siehe Abb. 4.62. Erst bei einem pH-Wert von unter 2 konnte eine Agglomeration der Partikeln festgestellt werden. Daher eignen sich insbesondere basische Lösungen zum Reinigen der Laboranlage. Außerdem konnte gezeigt werden, dass auch Bindemittel ohne zusätzliche Hilfsstoffe in dem für den Prozess interessanten pH-Wert Bereich ohne erhöhte Agglomerationsgefahr eingesetzt werden können.

nötigten Stabilisatoren und Hilfsstoffe zu reduzieren sowie Hinweise zur Auswahl eines Reinigungsmittels zu erhalten. Als Maß für die Stabilität des Bindemittels dient sein Zetapotential, welches aus der Wanderungsgeschwindigkeit der im Bindemittel enthaltenen geladenen Partikeln berechnet wird. Je größer der Betrag des Zetapotentials, desto geringer ist die Agglomerationsneigung des Bindemittels.

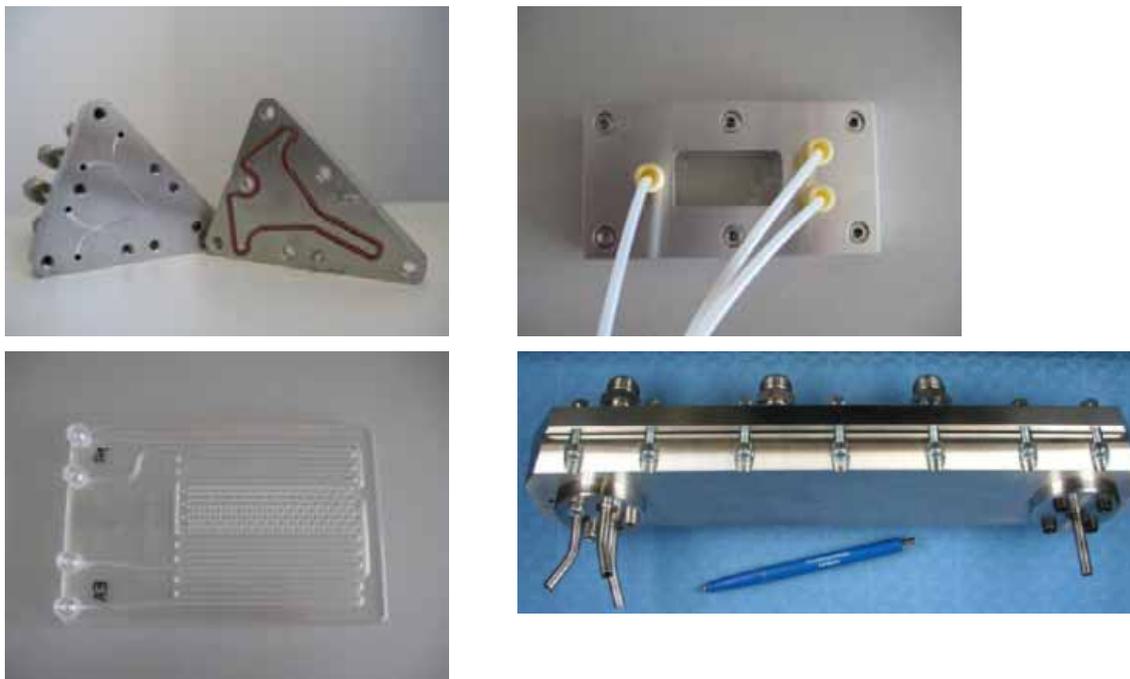
Im pH-Wert Bereich von 2 bis 10 erwies sich das un-

Die Grundoperation Mischen wird bei dem Prozess in einem statischen Mikromischer durchgeführt. Bei der Auswahl des geeigneten Mischprinzips sowie beim Design der Kanäle und internen Dimensionen ist auf den durch die vorliegenden viskosen und feststoffbeladenen Ströme hervorgerufenen Druckabfall



**Abb. 4.62:** Einfluss des pH-Wertes auf die Partikelgröße und das Zetapotential

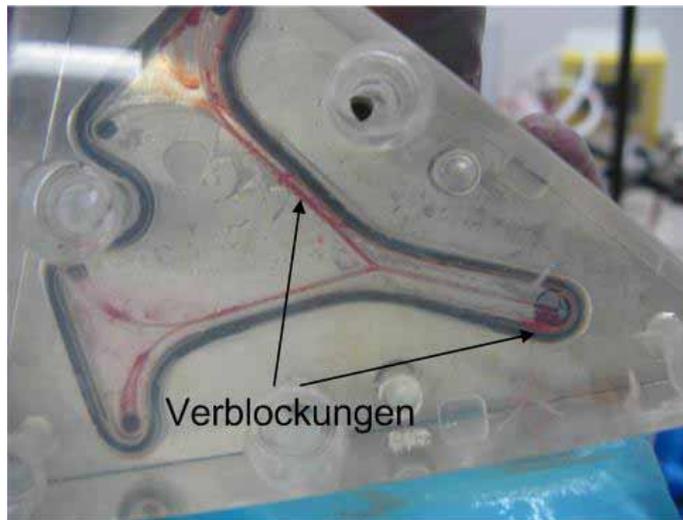
sowie die gewünschte Durchflussmenge zu achten. Vier verschiedene Mischer mit unterschiedlichen Mischprinzipien werden hinsichtlich ihrer Eignung für den Einsatz bei dem oben beschriebenen Prozess untersucht, siehe Abb. 4.63.



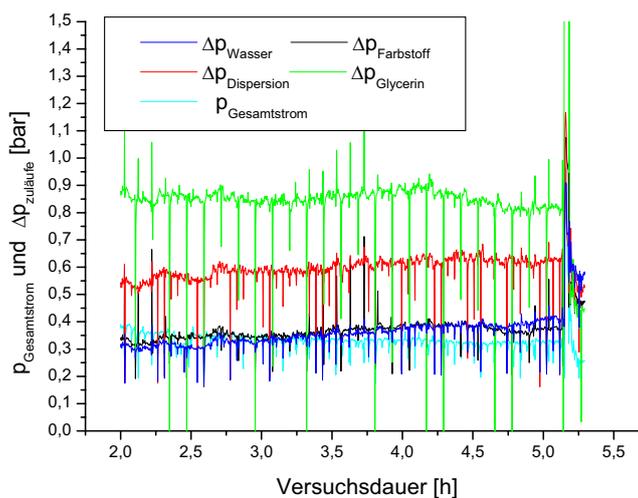
**Abb. 4.63:** Raupenmischer vom IMM (oben links), Interdigitalmischer von Mikroglas (oben rechts), Stegmischer von LTF (unten links) und Zyklonmischer vom FZK (unten rechts)

Der Raupenmischer vom Institut für Mikrotechnik Mainz IMM arbeitet nach dem Split-and-Recombine Prinzip, wohingegen die Mischwirkung des Interdigitalmischers auf dem Prinzip der Multilamination beruht. Im Stegmischer werden die Ströme durch die internen Geometrien wiederholt umgelenkt und verwirbelt, wäh-

rend sich die Edukte im Zyklonmischer aufgrund der beim tangentialen Einlauf entstehenden Wirbelströmung vermischen.



**Abb. 4.64:** Verblockungen in einem Split-and-Recombine Mischer



**Abb 4.65:** Gesamtdruck des Mischstroms und Druckabfall über dem Mischer

sierten Anlage mit definierten An- und Abfahrprozeduren sowie Reinigungszyklen ausgebaut werden. Um bei einer kontinuierlichen Produktion die Einhaltung eines spezifikationsgerechten Produktes zu gewährleisten, ist es außerdem notwendig, die Anlage um eine in-line Qualitätskontrolle zu erweitern. Zusammen mit einem im Prozessleitsystem hinterlegten Aktionsplan bei Betriebsstörungen können auf diese Weise Produktionsausfälle minimiert werden.

Der Einsatz von hochviskosen und feststoffbeladenen Fluiden in mikrostrukturierten Komponenten birgt jedoch ebenfalls Probleme wie Verblockungen oder Fouling. In Abb. 4.64 ist der Split-and-Recombine Mischer nach einem Versuchstag gezeigt.

Die Verblockungen resultieren aus den sich bei unzureichender Mischung bildenden Agglomeraten und Ausfällungen. Diese lagern sich an den Kanten und Toträumen des Mixers an und führen mit zunehmender Betriebszeit zu einer Verblockung der Kanäle und schließlich des gesamten Mixers. Zurzeit wird untersucht, welcher Mischer am wenigsten anfällig für Verstopfungen ist und durch welche Maßnahmen die Ausfällungen minimiert werden können, um die Betriebszeit weiter zu erhöhen. Darüber hinaus wird getestet, ob diese Betriebsprobleme durch die Überwachung des Parameters Druck frühzeitig erkannt und durch Spülvorgänge verhindert werden können, siehe Abb. 4.65.

Im weiteren Verlauf der Forschungsarbeit soll die Produktionsanlage zu einer vollautomatisierten Anlage mit definierten An- und Abfahrprozeduren sowie Reinigungszyklen ausgebaut werden.

Zudem soll eine Visualisierung der Durchmischung die Charakterisierung der einzelnen Mikromischer im Hinblick auf die benötigte Mischzeit und Mischeffizienz ermöglichen. Diese Daten sollen mit CFD-basierten Simulationen verglichen werden, um Hinweise zur Gestaltung von mikroverfahrenstechnischen Komponenten bzw. zu deren Auswahl bei definierten Mischaufgaben zu erlangen. Dabei sollen insbesondere die Parameter Feststoffgehalt, Partikelgröße, Viskosität, Kanalgeometrien sowie –dimensionen untersucht werden.

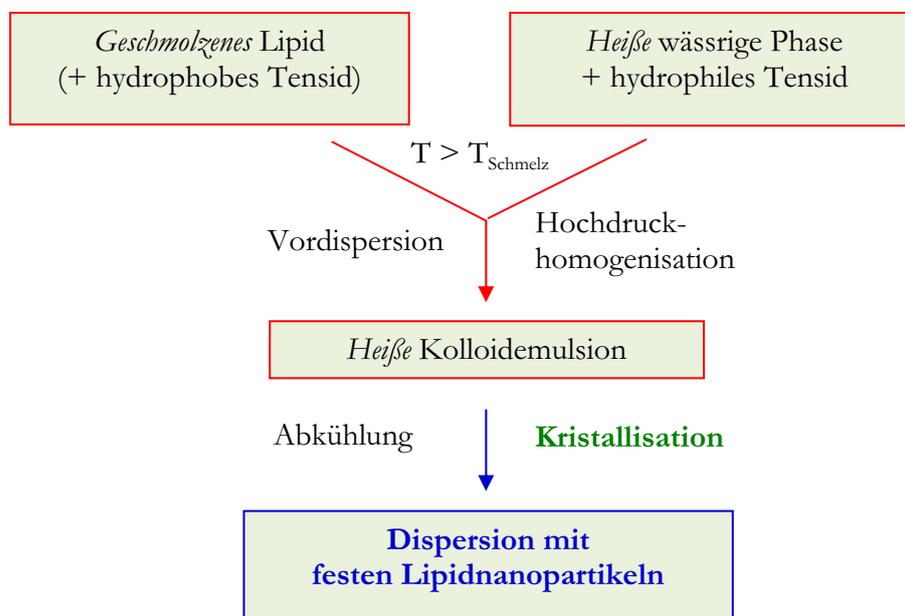
Darüber hinaus sollen sowohl ein Werkzeug zur Planung der Kampagnenlänge bei der Mehrproduktfertigung von Farben als auch eine Bilanz der bei der Verfahrensumstellung erzielten Umweltentlastung erstellt werden.

*Das Projekt wird gefördert von der Deutschen Bundesstiftung Umwelt (DBU) und in Zusammenarbeit mit der Firma Pelikan GmbH & Co. KG durchgeführt.*

#### 4.4.3 Kristallisation von Lipidnanopartikeln in Mikrowärmeübertragern

(Dipl.-Ing. Katharina Jasch)

Als Träger für pharmazeutische Wirkstoffe werden vorwiegend sog. feste Lipidnanopartikel (engl.: solid lipid nanoparticles/SLN) eingesetzt, an denen die Wirkstoffe, wie z.B. Proteine oder Pigmente, anhaften bzw. eingebettet sind. Die Herstellung dieser Partikel kann beispielsweise mittels Hochdruckhomogenisation des geschmolzenen Lipids in einer heißen wässrigen Phase mit anschließender Abkühlung und Kristallisation zu einer Kolloidsuspension erfolgen, siehe Abb. 4.66.



**Abb. 4.66:** Schema zur Herstellung von festen Lipidnanopartikeln

Als Fettmatrix können verschiedene Stoffe abhängig von der pharmazeutischen Anwendung verwendet werden. In diesem Fall handelt es sich bei dem gewählten Lipid um ein Triglycerid, welches verschiedene polymorphe Formen ausbildet und

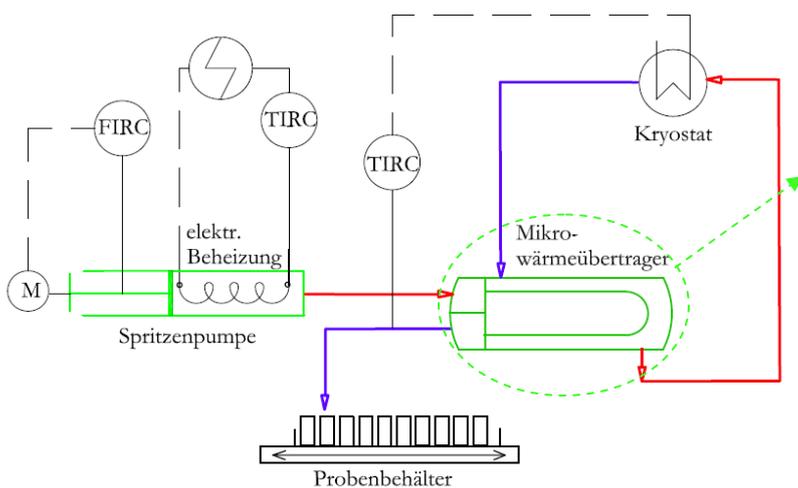
folglich unterschiedliche polymorphe Übergänge bei der Kristallisation der Partikel aus der Schmelze beobachtet werden können. Beim Abkühlvorgang der Kolloid-emulsion wird zunächst die meta-stabile  $\alpha$ -Modifikation gebildet, die bei anschließender Lagerung bedingt durch äußere Temperatureinflüsse über die meta-stabile  $\beta'$  in die stabile  $\beta$ -Modifikation umgelagert wird. Für einen Einsatz in pharmazeutischen Produkten ist eine lange Lagerstabilität erforderlich. Das heißt auch, dass die physikalisch-chemische Struktur und somit die qualitative als auch quantitative Wirkstoffbeladung während der Lagerung unverändert bleiben muss. Um einer unzureichenden Wirkstofffreigabe infolge einer unvorhergesehenen Kristallumlagerung vorzubeugen, ist es daher besonders erstrebenswert, eine von vornherein langzeitstabile Modifikation zu erzeugen. Die gezielte Herstellung der stabilen  $\beta$ -Modifikation durch eine geeignete Temperierung im Anschluss an die Kristallisation könnte dies ermöglichen. Der Nachteil der stabilen  $\beta$ -Modifikation gegenüber der meta-stabilen  $\alpha$ -Modifikation besteht jedoch darin, dass mit zunehmender Kristallordnung, d.h. Stabilität, die Beladungskapazität an Wirkstoff deutlich abnimmt. Aus diesem Grund könnte es ebenso von Bedeutung sein, eine gezielte Herstellung meta-stabiler Modifikationen oder besonders strukturierter Partikel zu realisieren, die sowohl eine angemessene Lagerstabilität als auch eine sehr gute Beladungskapazität für Wirkstoffe aufweisen. Untersuchungen zur gezielten Beeinflussung der Ausbildung der verschiedenen polymorphen Formen haben gezeigt, dass der zeitliche Verlauf der polymorphen Umwandlungen von der Wahl des Emulgators abhängt. So kann z.B. durch die Verwendung von Gallensalzen und gesättigten Phospholipiden die Transformation von Nanopartikeln von der  $\alpha$ -Modifikation zur stabilen  $\beta$ -Form gehemmt werden. Bei Nanopartikeln mit einer langsamen Kristallisationskinetik konnte desweiteren ein deutlicher Einfluss der Abkühlrate auf die Kristallstruktur des meta-stabilen  $\alpha$ -Polymorphs festgestellt werden, wobei eine Erhöhung der Abkühlrate die Formation zu einer weniger geordneten  $\alpha$ -Modifikation, der sog. „unstrukturierten“ Form, begünstigt.

Bislang erfolgt die Abkühlung der Lipidemulsion über einen längeren Zeitraum weitestgehend unkontrolliert mit Abkühlgeschwindigkeiten von zumeist etwa 0,3 K/min (langsame Kühlung) bis 5 K/min (schnelle Kühlung). Zur genaueren Betrachtung des Einflusses der Abkühlrate auf die Kristallstruktur der meta-stabilen  $\alpha$ -Modifikation und deren Lagerstabilität ist eine Vorrichtung zur Kristallisation der Partikeln bei verschiedenen, genau definierten Abkühlraten erforderlich. Zudem sollte dies in einem Maßstab erfolgen, welcher lediglich kleine und somit kostengünstige Rohstoffmengen benötigt. Zu diesem Zweck wurde ein Versuchsstand mit einer mikrostrukturierten Systemkomponente als Kristallisator errichtet. Aufgrund der kleinen Dimensionen einer solchen Mikrokomponente können Prozesse aber auch deutlich mehr Screeningexperimente realisiert werden. Ein weiteres Vorteil, der sich aufgrund der kleinen Größenabmessungen ergibt, sind die vergleichsweise hohen Wärme- und Stofftransportkoeffizienten, wodurch

geringe Verweilzeiten und folglich schonende Prozessbedingungen für z.B. thermisch empfindliche Substanzen ermöglicht werden.

Diese Vorteile durch den Einsatz von Mikrokomponenten werden in den folgenden Untersuchungen genutzt, um eine kontrollierte Kristallisation von Lipidtropfen aus einer wässrigen Kolloidemulsion zu festen Lipidnanopartikeln zu realisieren. Als Mikrokomponente wurde ein vom Forschungszentrum Karlsruhe hergestellter Mikrowärmeübertrager verwendet, welcher im Falle einer Verblockung durch Nanopartikel geöffnet, gereinigt und wieder verwendet werden kann. Der Wärmeübertrager besteht aus zwei Halbschalen aus PMMA, die mittels Schrauben zu einem geschlossenen System miteinander verbunden werden. Die Mikrokanäle mit unterschiedlicher Breite und Anzahl wurden beidseitig in Metallfolien gefräst, die zwischen die beiden Kunststoffhalbschalen geklemmt werden.

Der schematische Versuchsaufbau und der verwendete Mikrowärmeübertrager im zusammengebauten Zustand sind in Abb. 4.67 mit den dazugehörigen Dimensionen gezeigt. Die homogenisierte Emulsion befindet sich zu Versuchsbeginn bei einer Temperatur von ca. 66°C in einer beheizbaren Spritzenpumpe mit einem Vorlagevolumen von max. 100 mL. Über die Pumpensoftware kann eine genaue Dosierung des Produktstroms eingestellt werden. Die Emulsion wird dabei direkt in den Wärmeübertrager gepumpt und darin bis auf eine Temperatur von 5°C durch das im Gegenstrom geförderte Ethylenglycol-Wasser-Gemisch auf der Kühlseite des Wärmeübertragers abgekühlt. Über einen Kryostaten auf der Kühlseite wird die Temperatur der Suspension am Austritt des Wärmeübertragers erfasst und die Kühlleistung des Gerätes entsprechend geregelt, um die gewünschten 5°C des Produktes zu realisieren.



Kanaltiefe/-breite	200 – 400 µm
Kanallänge	19 cm
Kanalanzahl pro Folienseite	8 - 34

**Abb. 4.67:** Versuchsanordnung (links); Mikrowärmeübertrager (rechts)

**Tab. 4.5:** Einstellbare Prozessbedingungen zur Kristallisation

Temperatur Emulsion,ein	≈ 66°C
Temperatur Suspension,aus	≈ 5°C
Volumenstrom Suspension	0,01 – 1 L/h
Volumenstrom Kühlmedium	1,2 - 6 L/h
Verweilzeit Suspension	0,1 – 10 s
Abkühlrate	5,57 – 557 K/s

In der nebenstehenden Tabelle sind die einstellbaren Prozessbedingungen sowohl auf der Produkt- als auch auf der Kühlseite zusammengefasst. Die als Vorlage dienende Suspension wurde auf konventionelle Art in einem Hochdruckhomogenisator hergestellt und bei einer Temperatur von 5°C in einem Kühlschrank bis zum Versuchsbeginn aufbewahrt. In der Ausgangssuspension konnte eine durchschnittliche Partikelgröße von ca. 300 nm festgestellt werden. Vor Versuchsstart wurde die Suspension mit deionisiertem Wasser 1:1 verdünnt, auf 80°C aufgeschmolzen und mind. 1h auf diesem Niveau temperiert. Nach dem Aufschmelzen der Suspension liegt somit eine heiße Lipidemulsion vor. Die Temperatur dieser Lösung wird dann von 80°C auf ca. 66°C eingestellt. Bei dieser Temperatur, welche ungefähr 6 K oberhalb der Schmelztemperatur der Lipidphase liegt, ist gewährleistet, dass die Lipidtropfen in der Emulsion noch nicht kristallisieren. Letztendlich wird diese auf 66°C temperierte Vorlage über die Spritzenpumpe durch den Wärmeübertrager gefördert.

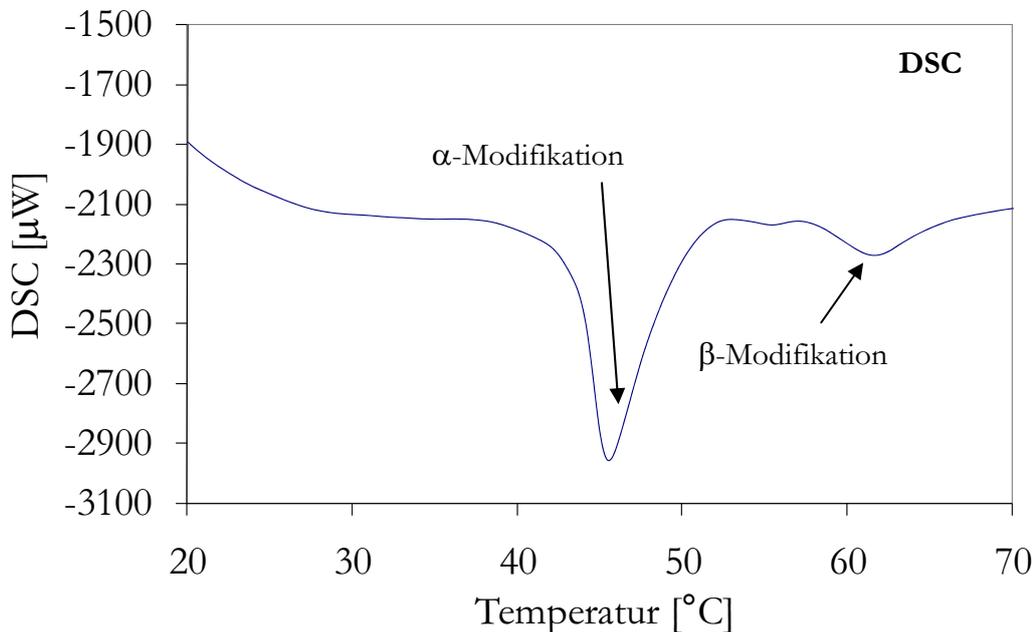
Ein hohes Risiko beim Betrieb eines Mikrowärmeübertragers mit einer partikulären Lösung besteht darin, dass es infolge von Agglomeration oder Partikelanhaftung an den Innenwänden zu einer Verblockung oder gar Verstopfung der Mikrokanäle kommen kann.



**Abb. 4.68:** Durchströmte Produktseite des Mikrowärmeübertragers

Entgegen den Erwartungen traten bei der Durchströmung der Mikrokanäle mit der Emulsion bzw. Suspension keine Probleme auf, so dass die Experimente ohne Störung des stationären Zustands erfolgen konnten. Abb. 4.68 zeigt die mit Emulsion durchströmten Mikrokanäle innerhalb des Wärmeübertragers. Eine weitere Schwierigkeit stellt die große Solltemperaturdifferenz von 60 K auf einer Verweilzeitstrecke von 19 cm zwischen Produktein- und -austritt dar. Die ersten Vorversuche zeigten jedoch, dass das Einstellen des stationären Zustands und der Solltemperatur der Produktlösung am Ausgang bei entsprechender Volumenstromerhöhung auf der Kühlseite mit dem vorhandenen Kryostat zu realisieren ist. Desweiteren wurde vorgegeben, möglichst wenig Suspension

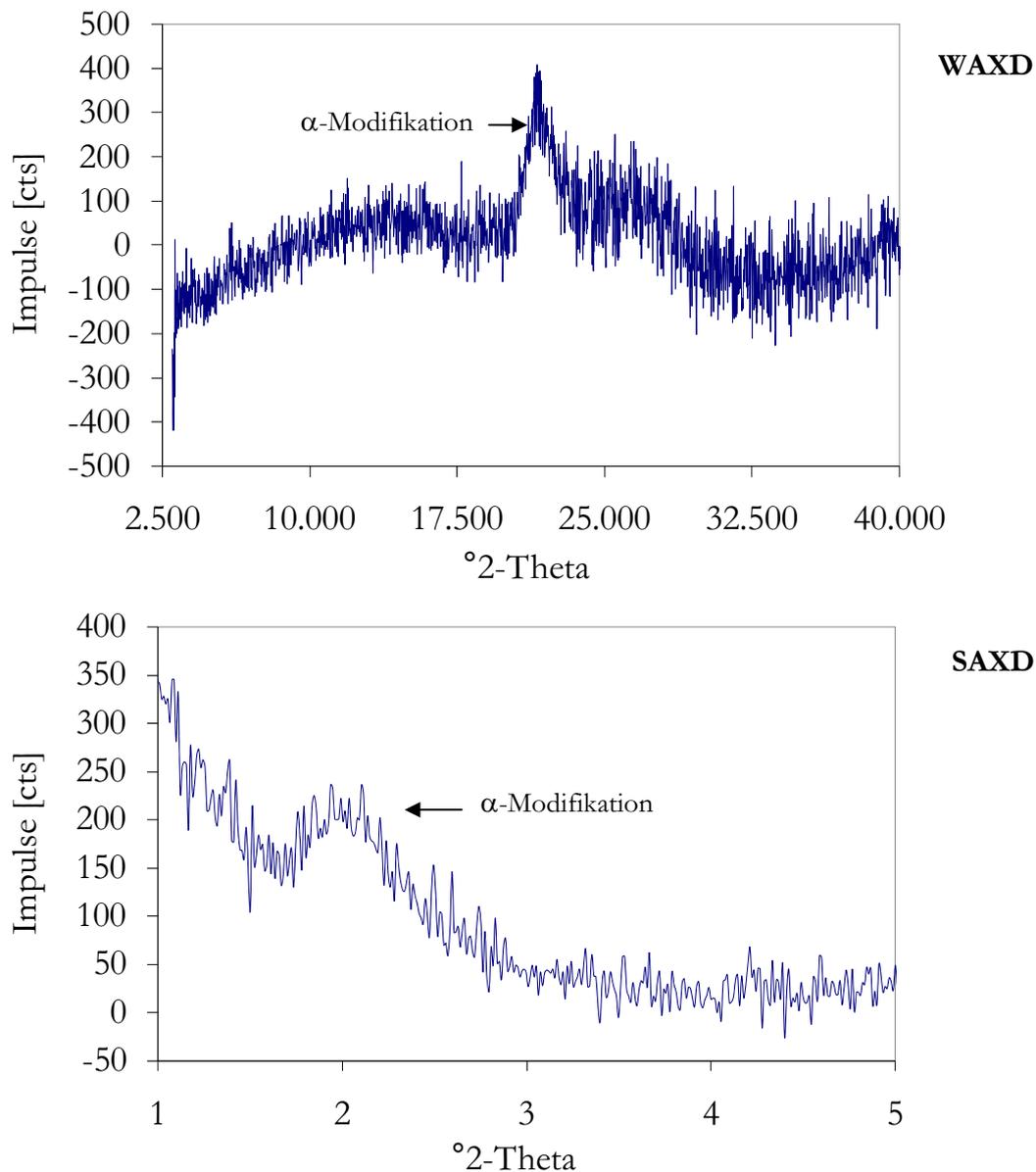
für einen Versuchsdurchlauf bereitstellen zu müssen, da in dem späteren realen Stoffsystem sehr wertvolle und teure Wirkstoffe enthalten sind.



**Abb. 4.69:** DSC-Aufheizkurve der produzierten Lipidnanopartikelsuspension

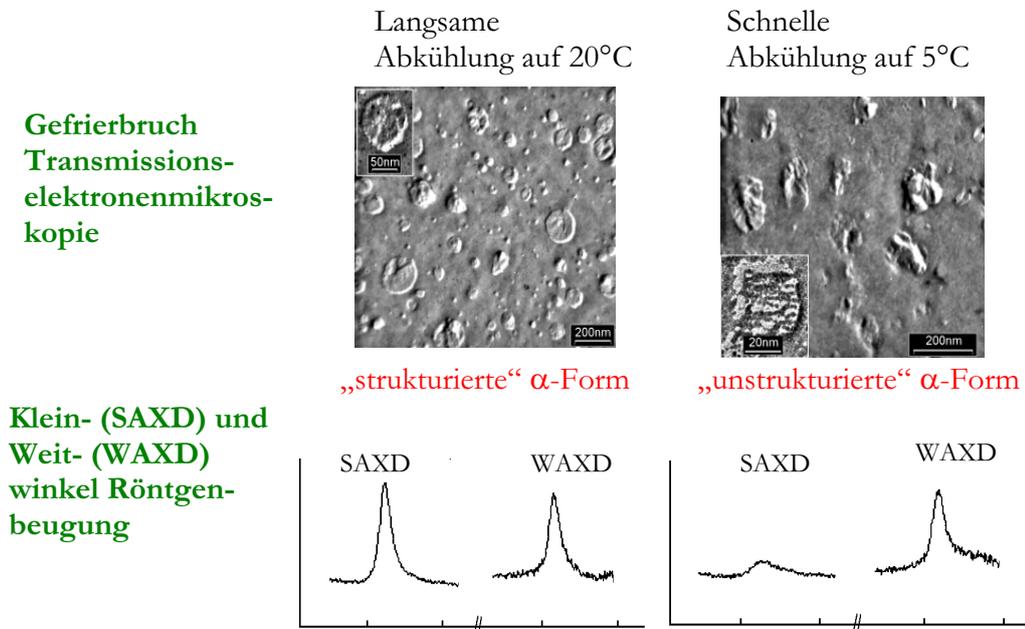
Die Analyse der durch Abkühlung im Mikrowärmeübertrager erzeugten Nanopartikel ergab eine Partikelgröße zwischen 124 - 133 nm. Zur Untersuchung der Kristallstruktur wurden Differential Scanning Calorimetry (DSC) Messungen und Röntgenbeugungsanalysen durchgeführt, siehe Abb. 4.69.

Die Aufheizkurve der DSC-Messung zeigt einen starken Schmelzpeak der Tripalmitin  $\alpha$ -Modifikation bei 47  $^{\circ}\text{C}$  und einen deutlich kleineren Peak bei ungefähr 62  $^{\circ}\text{C}$ , welches den Aufschmelzvorgang der  $\beta$ -Modifikation wiedergibt. Es ist zu klären, warum laut DSC-Messung in der Produktlösung  $\beta$ -Polymorphe enthalten sind, obwohl die Analyse der Ursprungssuspension - hergestellt über die konventionelle Hochdruckhomogenisation und unkontrollierte Abkühlung im Kühlschrank - lediglich  $\alpha$ -Modifikationen enthalten hat. Es muss demnach zunächst ausgeschlossen werden, ob die  $\beta$ -Modifikation durch unbekannte Umformungen bedingt durch unvorhergesehene Temperaturschwankungen während der Lagerung im Kühlschrank entstanden ist oder ob die Starttemperatur von 66  $^{\circ}\text{C}$  nicht ausreichend genug ist, um zu gewährleisten, dass alle festen Lipidformationen vor Versuchsbeginn komplett aufgeschmolzen sind. Die Weitwinkelröntgenstrukturanalyse WAXD, siehe Abb. 4.70, bestätigt die Bildung der  $\alpha$ -Modifikation. Sie zeigt allerdings entgegen der DSC-Ergebnisse keinerlei Spuren, welche auf eine Entstehung von  $\beta$ -Polymorphen schließen lassen.



**Abb. 4.70:** Weitwinkelröntgenaufnahme WAXD (oben) und Kleinwinkelröntgenaufnahme SAXD (unten) der produzierten Lipidnanopartikelsuspension

Da die Kleinwinkelanalyse, in Abb. 4.71 dargestellt, lediglich einen flachen Peak entsprechend der  $\alpha$ -Modifikation ergeben hat, kann davon ausgegangen werden, dass es sich bei der gebildeten Kristallstruktur um die „ungeordnete“ Form der  $\alpha$ -Modifikation handelt. Diese Form erscheint bei der SAXD Analyse als flacher Peak, während mit der WAXD Messung der Unterschied zwischen der „ungeordneten“ und „geordneten“  $\alpha$ -Form nicht detektiert werden kann.



**Abb. 4.71:** Analytische Unterscheidung der „strukturierten“ und „unstrukturierten“  $\alpha$ -Modifikation

Da die mit den Experimenten realisierten Abkühlraten mit 502 K/s deutlich über denen der herkömmlichen Abkühlvorgänge liegen und es sich demnach um eine sehr schnelle Abkühlung der Lipidemulsion handelt, ist eine Entstehung der „unstrukturierten“  $\alpha$ -Form erwartungsgemäß aufgetreten.

Geplante weitere Arbeiten im Forschungsprojekt sind:

- Variation der Abkühlrate zur genauen Feststellung der Kristallisationskinetik
- Reihenschaltung von Mikrowärmeübertragern mit unterschiedlichen Kühlraten zur gezielten Kristallisation und Nachbehandlung der Suspension
- Verwendung alternativer Mikrowärmeübertrager (z.B. Mehrkanalwärmeübertrager)
- Untersuchung des Kristallisationsverhaltens in strukturierten Kanälen. Möglicherweise können strukturierte Oberflächen die Wirkstoffeinbettung und somit die Wirkstoffbeladung von bekannten  $\beta$ -Modifikationen verbessern oder eine bislang unbekannte Modifikation mit verbesserten Eigenschaften durch die Scherung und Dehnung der Lipidtropfen während des Abkühlens schaffen.

*Das Projekt ist Teil der DFG-Forschergruppe 856 "mikroPART - Mikrosysteme für partikuläre Life-Science-Produkte" und wird in Kooperation mit dem Institut für Pharmazeutische Technologie der TU Braunschweig durchgeführt.*

#### **4.4.4 Mikro-Consortium: Entwicklung einer mikroverfahrenstechnischen Multipurpose-Anlage** (Dipl.-Ing. Stefanie Arndt)

Mikroverfahrenstechnische Bauteile sind Gegenstand zahlreicher Forschungsprojekte und auch in der industriellen Anwendung stoßen sie vermehrt auf Interesse. Dennoch ist die Mikroverfahrenstechnik in der Lehre bisher wenig vertreten.

In Zusammenarbeit mit dem Institut für Partikeltechnik (TU Braunschweig), dem Institut für Chemische Verfahrenstechnik (TU Clausthal) und dem Institut für Organische Chemie (Leibniz Universität Hannover) im Rahmen des Mikro-Consortiums wird daher derzeit eine mikroverfahrenstechnische Multi-Purpose-Anlage aufgebaut. In dieser Anlage sollen insgesamt vier verschiedene Versuche durchgeführt werden können, die die Anwendungsgebiete, Vorteile und Grenzen der Mikroverfahrenstechnik vermitteln. Die Versuche im Einzelnen sind:

- Landolt'sche Zeitreaktion (TU Clausthal, Institut für Chemische Verfahrenstechnik)
- Wärmeübertragung in einer Zwangsumlauf-Entspannungsverdampfung (TU Braunschweig, Institut für Chemische und Thermische Verfahrenstechnik)
- Nanopartikelerzeugung durch Fällung (TU Braunschweig, Institut für Partikeltechnik) und
- Suzuki-Miyaura-Reaktion (LU Hannover, Institut für Organische Chemie)

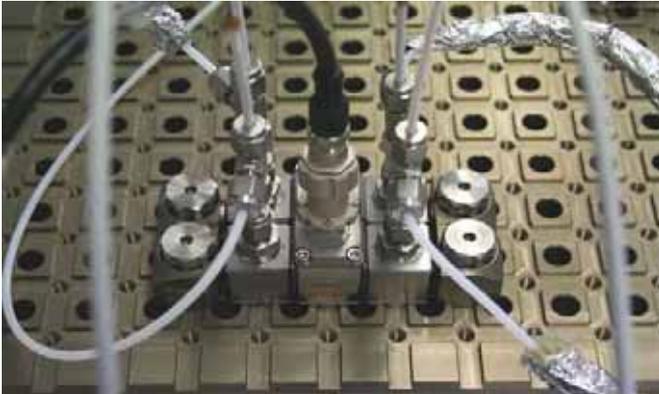
Die Versuche sollen nach Ablauf des Projektes in studentischen Praktika den Einzug der Mikroverfahrenstechnik in die Lehre unterstützen. Da die Anlage portabel gebaut wird, ist ein Einsatz an allen drei Universitäten möglich. Darüber hinaus soll die Anlage nach Projektende für die weitere Erprobung der mikroverfahrenstechnischen Bauteile zu Verfügung stehen, was insbesondere in Studien- und Diplomarbeiten durchgeführt werden soll.

Für den Versuch des ICTV zur Wärmeübertragung soll ein Mikroverdampfer im Prinzip der Zwangsumlaufverdampfung eingesetzt werden. Ziel ist es hier, die Vorgehensweise bei der stofflichen und energetischen Bilanzierung von verfahrenstechnischen Bauteilen insbesondere im Mikromaßstab zu verdeutlichen.

In einem Zwangsumlauf-Entspannungsverdampfer wird das Medium zuerst rein einphasig flüssig erhitzt. Es wird dem System ein Druck aufgeprägt, wodurch eine Verdampfung im Wärmeübertrager unterbunden wird. Hinter dem Wärmeübertrager wird das Medium in einen Phasentrennraum hinein entspannt, so dass eine spontane Verdampfung eintritt. Der verdampfte Teil des Medium kann nun abgetrennt und kondensiert werden. Einflüsse der Strömungsgeschwindigkeiten auf der Produkt- und der Heizseite, der Ventilstellung hinter dem Wärmeübertrager sowie der Eintrittstemperaturen auf der Produkt- und Heizseite auf den Wärmedurchgangskoeffizienten, den Wirkungsgrad der Wärmeübertragung und den Zustand des Produktstromes hinter dem Wärmeübertragers sollen in den Versuchen untersucht werden. Ein Vergleich mit der Literatur soll insbesondere für die ermittelten

Werte für den Wärmedurchgangskoeffizienten erfolgen, welche über Ähnlichkeitstheorien für die Mikro- und Makrowärmeübertragung berechnet werden.

Die mikroverfahrenstechnischen Bauteile der Anlage wurden von einem kommerziellen Hersteller bezogen, der für die Mikroverfahrenstechnik einen modularen Aufbau vorsieht.



**Abb. 4.72:** Mikroverfahrenstechnische Bauteile zum Versuch Wärmeübertragung

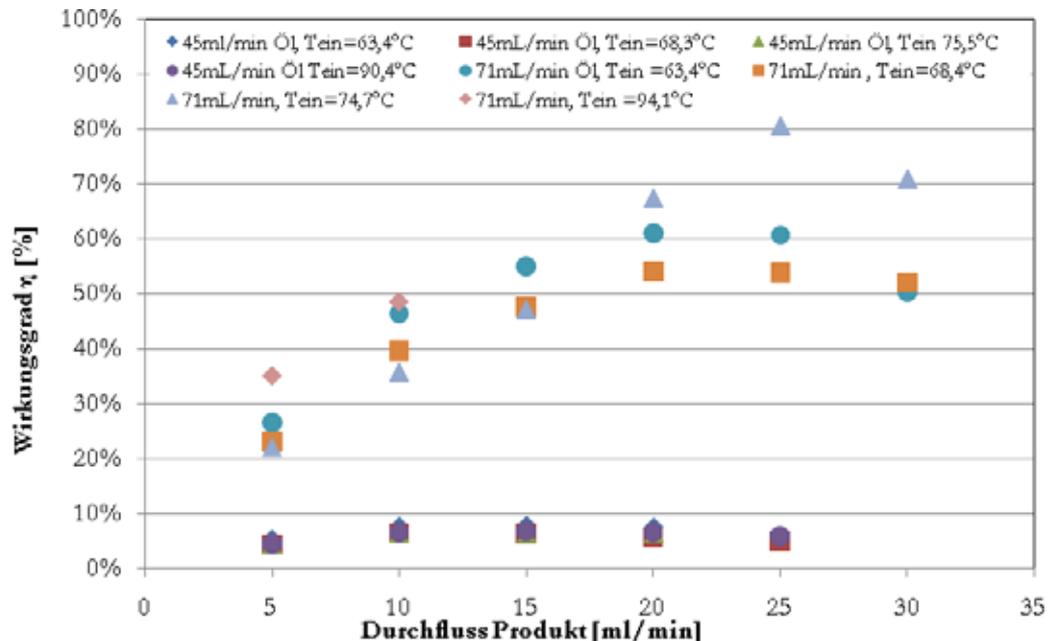
Für den Versuch der Wärmeübertragung wird ein Gegenstromplattenwärmeübertrager, siehe Abb. 4.72, Mitte, eingesetzt. Dieser besteht aus insgesamt 30 mikrostrukturierten Platten mit einer Kanallänge von 20 mm und einem Kanalquerschnitt von  $600 \times 80 \mu\text{m}^2$ . Der Phasentrennraum ist bisher nicht kommerziell erhältlich. Es wurde daher für die Anlage ein Scherkraftabscheider nach makroskopischen Auslegungskriterien gebaut, welcher im Verlauf des Projektes und auch darüber hinaus getestet und an die mikroverfahrenstechnischen Anforderungen angepasst werden soll.

In einem ersten Abschnitt der Versuche wurde der Wärmeübertrager bilanziert. Dazu wurden insgesamt vier Temperaturmessstellen (PT100) im Kanal über den Ein- und Auslässen der Anlage angebracht. Dies gewährleistet eine vergleichbare Messung für die Heiz- und Produktseite. Messungen wurden durchgeführt bei unterschiedlichen Produkt- und Heizmittelvorlauftemperaturen sowie Produkt- und Heizmittelströmen. Es zeigte sich, dass die Wärmeverluste der Anlage erheblich waren, es traten bei allen diesen Messungen Bilanzabweichungen von bis zu 95 % zwischen Heiz- und Produktseite auf. Aufgrund des großen Verhältnisses von Oberfläche zu Volumen bei mikroverfahrenstechnischen Bauteilen ist dies ein besonderes Problem. Durch die Bauweise der Anlage wird dies jedoch weiter verstärkt. Es zeigte sich insbesondere, dass die Bilanzabweichungen umso größer sind, je kleiner die Ströme an Heizmittel und Produkt sind, vgl. Abb. 4.73. Durch eine Verdopplung des Heizmittelvolumenstromes konnte der Wirkungsgrad des Wärmeübertragers, berechnet mit

$$\eta = \frac{\dot{Q}_{\text{Produkt}}}{\dot{Q}_{\text{Heiz}}} = \frac{(k \cdot A \cdot \Delta T)_{\text{Produkt}}}{((k \cdot A \cdot \Delta T)_{\text{Heiz}})}, \quad (4.9)$$

von unter 10 % auf 25-60 %, je nach Produktvolumenstrom, gesteigert werden. Die Abhängigkeit des Wirkungsgrades vom Produktvolumenstrom wird dabei bei hohem Heizmittelvolumenstrom wesentlich deutlicher. Eine weitere Steigerung

des Wirkungsgrades über die bisher optimalen 80 % ist bei Erhöhung des Heizmittelstroms zu erwarten.

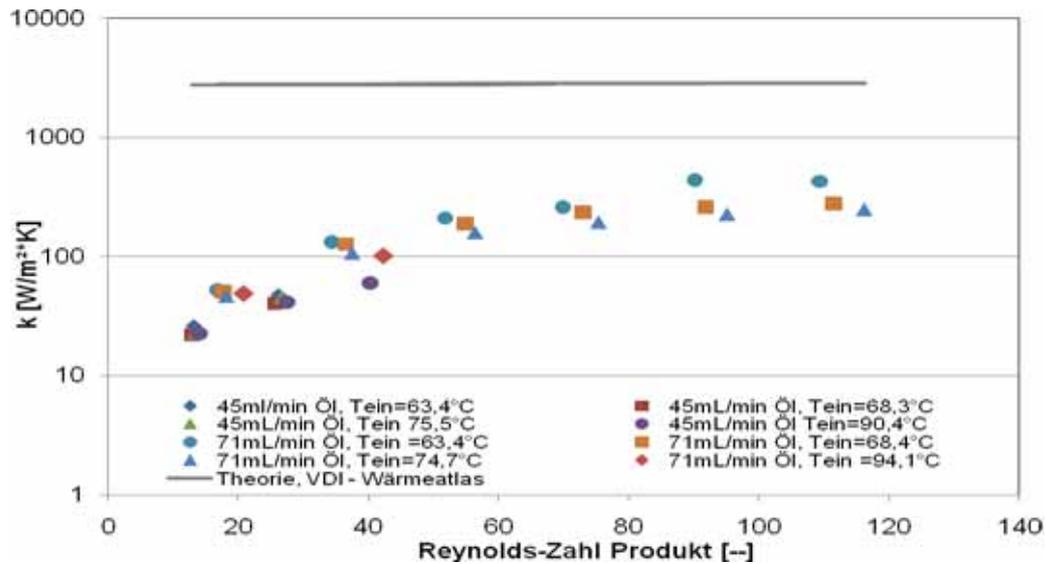


**Abb. 4.73:** Wirkungsgrad der Wärmeübertragung über dem Produktstrom

Der Einfluss der Parameter Volumenstrom an Heizmedium und Produktmedium wird in Abb. 4.74 verdeutlicht. Analog zum Verlauf des Wirkungsgrades über dem Produktvolumenstrom ist hier die in der Literatur beschriebene Abhängigkeit des Wärmedurchgangskoeffizienten  $k$  von der Strömungsgeschwindigkeit zu erkennen. Die ermittelten Werte liegen dabei deutlich unter denen, die nach VDI-Wärmeatlas über Ähnlichkeitstheorien für den makroskopischen Bereich ermittelt werden. Es lässt sich so gut verdeutlichen, dass für den Mikrowärmeübertrager andere Berechnungsmodelle herangezogen werden müssen als für einen makroskopischen Wärmeübertrager.

In einem weiteren Teil der Versuche konnte der Einfluss der Ventilstellung hinter dem Wärmeübertrager und damit auch des Druckes im Wärmeübertrager auf die Verdampfung untersucht werden. Durch einen Anstieg der Temperatur am Austritt des Wärmeübertragers auf der Produktseite von  $99,8^{\circ}\text{C}$  auf  $120^{\circ}\text{C}$  konnte eine Unterdrückung der Verdampfung durch den erhöhten Druck bei geschlossenem Ventil beobachtet werden. Da jedoch die Wärmeverluste zwischen dem Wärmeübertrager und dem Ventil bzw. dem Phasenabscheider deutlich zu groß waren, kam es bisher noch nicht zu einer Phasentrennung im Abscheider.

In weiteren Versuchen sollen nun die Daten abgesichert und mit bestehenden Theorien zum Wärmeübergang in Mikrowärmeübertragern verglichen werden. Zu diesem Zweck wird insbesondere der Volumenstrom an Produkt weiter erhöht. Auch soll der Wärmeverlust vor dem Phasenabscheider minimiert werden, so dass eine Anpassung des Abscheiders an die Anlage vorgenommen werden kann.



**Abb. 4.74:** Wärmedurchgangskoeffizient als Funktion des Produktstroms

In den Versuchen der anderen beteiligten Institute sollen zum einen an der TU Clausthal anhand der Landolt'schen Zeitreaktion Themengebiete wie Kinetik, Reaktionsgeschwindigkeit, Reaktionsordnung, Verweilzeitverteilung, Mikromischung, Makromischung und Segregationsgrad vermittelt werden. Weiterhin sollen am Institut für Partikeltechnik der TU Braunschweig die Vorteile der Mikrosysteme für die Bildung von nanoskaligen Partikeln erarbeitet werden, welches durch einen Vergleich eines Makroversuches mit der Nanopartikelherstellung im Mikromischer erfolgen soll. Als vierter Versuch soll eine Suzuki-Miyaura-Kupplung die Kinetik heterogener Reaktionen, die Katalyse sowie Stofftransporteinflüsse bei diesen Reaktionen verdeutlichen.

*Das Projekt wird gefördert durch den Projektträger VDI|VDE|IT im Rahmenprogramm „Mikrosysteme 2004-2009“ des Bundesministeriums für Bildung und Forschung.*

## 5 Dissertationen

### 5.1 Experimentelle Untersuchungen zur Strömung und Wärmeübertragung von Reinstoff-Fallfilmen mit hohen Prandtl-Zahlen

(Dissertation von Dr.-Ing. Felix Weise)

1. Bericht: Prof. Dr.-Ing. Stephan Scholl
2. Bericht: Prof. Dr. techn. Reinhard Leithner

### Problemstellung

Besonders bei der Behandlung von temperaturempfindlichen Flüssigkeiten kommen Fallfilmverdampfer häufig zum Einsatz. Dabei werden nicht selten Stoffe höherer Viskosität in den Verdampfern erhitzt. Die in der Literatur beschriebenen Berechnungsgrundlagen für den Wärmeübergang und die Strömung basieren jedoch zum großen Teil auf Experimenten mit Reinstoffen und Gemischen bei ver-

gleichsweise niedrigen Viskositäten. Die Berechnungen für den Wärmeübergang sind in ihrer Gültigkeit begrenzt auf Prandtl-Zahlen kleiner 50, mit einer nur geringen experimentellen Absicherung bei Prandtl-Zahlen größer als 7. Der Einfluss stofflicher, apparativer und betrieblicher Parameter auf die sich ausbildenden Strömungsformen, das Temperaturprofil im Film, den Wärmeübergang sowie den Siedezustand wurde für die Behandlung viskoser Produkte in Fallfilmverdampfern kaum veröffentlicht. Dies führt dazu, dass in der Praxis Sicherheitszuschläge bei der Auslegung von Fallfilmverdampfern in den Berechnungsvorschriften mit einkalkuliert werden, die den Preis der Anlage in die Höhe treiben und unter Umständen die Verwendung von anderen Verdampfertypen günstiger erscheinen lassen.

## Stand des Wissens

### *Strömung von Fallfilmen*

Es wird bei der Beschreibung von Filmströmungen im Allgemeinen unterschieden zwischen laminarer, wellig laminarer und turbulenter Filmstruktur. Dabei kann je nach Wellenbildung der wellig-laminare Bereich weiter unterteilt werden. Die Reynolds-Zahl eines Filmes kann bei frei fallenden Flüssigkeitsfilmen in Abhängigkeit von der Flüssigkeitsbelastung der Rieselfläche definiert werden:

$$\text{Re}_F = \frac{\dot{\Gamma}}{\eta_F} \quad (5.1)$$

Die Berieselungsdichte  $\dot{\Gamma}$  [ $\text{m}^3 \text{m}^{-1} \text{s}^{-1}$ ] des Filmes ist definiert als der auf den benetzten Rohrumfang bezogene Massenstrom:

$$\dot{\Gamma} = \frac{\dot{m}_F}{U} \quad (5.2)$$

Eine erste Einteilung der Filmströmung anhand der Reynolds-Zahl wurde von *Brauer* für wässrige Fallfilme ohne Beheizung vorgestellt:

- $\text{Re}_F < 4$                       laminare Strömung
- $4 \leq \text{Re}_F \leq 400$               Übergangsbereich
- $\text{Re}_F > 400$                       turbulenter Bereich

Dabei spielen nach *Brauer* auch die Lauflänge des Fallfilmes sowie die Aufgabevorrichtung des Apparates eine Rolle. Andere Parameter auf apparativer, betrieblicher und auch stofflicher Seite werden jedoch nicht berücksichtigt.

Auf eine Abhängigkeit des Strömungsprofils von weiteren stoffdatenabhängigen Kennzahlen weisen insbesondere *Ishigai et al.* hin:

- $Re_F \leq 0,47 \cdot Ka^{0,1}$       laminare Strömung      (5.3)

- $2,2 \cdot Ka^{0,1} \leq Re_F \leq 75$       stabil welliger Film      (5.4)

- $Re_F > 75$       instabil wellig bis turbulenter Bereich      (5.5)

Für die Kapitza-Zahl gilt:

$$Ka = \frac{\sigma^3 \cdot \rho}{\eta^4 \cdot g} \quad (5.6)$$

Der Beginn und die sich über die Lauflänge ausbildende Welligkeit haben grundsätzlich einen großen Einfluss auf das Strömungsprofil im Film und dadurch auch auf den Wärmeübergang.

### *Wärmeübertragung an Fallfilme*

Basierend auf den Betrachtungen von *Nusselt*, *Brauer* und *Wilke* wurden erste Modellvorstellungen zum Wärmeübergang bei der Verdampfung entwickelt. Eine Vielzahl von Berechnungsvorschriften bestehen für die Ermittlung des Wärmeübergangskoeffizienten. Diese liegen für Prandtl-Zahlen  $< 7$  im gesicherten Bereich. Nur wenige Forschungsergebnisse liegen jedoch für größere Prandtl-Zahlen vor, siehe Tab. 5.1. Diese Arbeiten beschäftigen sich ausschließlich mit der Verdampfung von Rieselfilmen bei Oberflächenverdampfung und im beginnenden Blasensieden.

**Tab. 5.1:** Übersicht ausgewählter Arbeiten im Forschungsgebiet

Autor	<i>Chun und Seban</i>	<i>Schnabel</i>	<i>Müller</i>	<i>Alhusseini et al.</i>	<i>Maun</i>
Me-dien	Wasser	R 113	Wasser, Methanol, Isopropanol, Amylalkohol	Wasser, Propylenglykol	Wasser, Ethylenglykol
Re <sub>F</sub> [-]	80-5300	661 - 1075	21-8400	9-4000	40-1200
Pr [-]	1,77-5,7	7	2,56-51,7	1,73-46,6	1,8-44
Film	Laminar, turbulent	Turbulent	Laminar, turbulent	Laminar, turbulent	Laminar, turbulent

Bei der Beschreibung des Wärmeüberganges in der dimensionslosen Form wird im Allgemeinen die Nusselt-Zahl verwendet:

$$Nu = \frac{\alpha}{\lambda} \cdot \left( \frac{v^2}{g} \right)^{1/3} \quad (5.7)$$

Da die Filmdicke eines Rieselfilmes nicht konstant und selbst abhängig von der Reynolds-Zahl ist, wird anstelle der Filmdicke der Term  $(v^2/g)^{1/3}$  als charakteristische Länge verwendet. Für  $Pr < 50$  sind folgende Korrelationen im VDI-Wärmeatlas hinterlegt:

$$Nu = \sqrt{Nu_{lam}^2 + Nu_{turb}^2} \quad \text{mit} \quad (5.8)$$

$$Nu_{lam} = 0,9 \cdot Re^{-1/3} \quad \text{und} \quad (5.9)$$

$$Nu_{turb} = 0,00622 \cdot Re^{0,4} \cdot Pr^{0,65} \quad (5.10)$$

Im Gegensatz dazu führen *Albusseini et al.* eine Überlagerung von laminarer und turbulenter Nusselt-Zahl mit der fünften Potenz ein:

$$Nu = (Nu_{wl}^5 + Nu_{turb}^5)^{1/5} \quad \text{mit} \quad (5.11)$$

$$Nu_{wl} = 2,65 \cdot (4 \cdot Re_F)^{-0,158} \cdot (1/Ka)^{0,0563} \quad \text{und} \quad (5.12)$$

$$Nu_{turb} = \frac{Pr \cdot \delta^{+3/5}}{\left( A_1 \cdot Pr^{3/4} + A_2 \cdot Pr^{1/2} + A_3 \cdot Pr^{1/4} + C_1 \right) + \left( B \cdot (1/Ka)^{1/2} \cdot Pr^{1/2} \right)} \quad (5.13)$$

und  $A_1 = 9,17$

$$A_2 = 0,328 \pi (130 + \delta^+) / \delta^+$$

$$A_3 = 0,0289(152100 + 2340 \delta^+ + 7 \delta^{+2}) / \delta^{+2}$$

$$B = 2,51 \times 10^6 \delta^{+0,333} (1/Ka)^{-0,173} / (4 \cdot Re_F)^{(3,49 (1/Ka)^{0,0675})}$$

$$C_1 = 8,82 + 0,003 (4 \cdot Re_F)$$

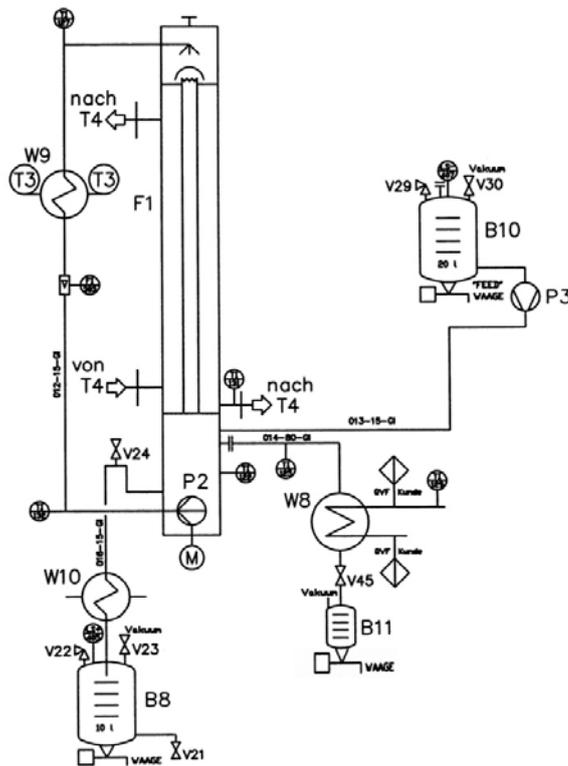
$$\delta^+ = 0,2868 Re^{0,8}$$

Weiterhin wird hier die Kapitza-Zahl und somit die Oberflächenspannung auf der Basis von Versuchen mit Propylenglykol und Wasser für Prandtl-Zahlen  $> 10$  berücksichtigt.

## Versuchsaufbau und Messprinzip

Die experimentellen Untersuchungen der vorliegenden Arbeit wurden an einer gläsernen Fallfilmanlage mit einem Einzelrohr der Dimension  $43 \times 2,3 \times 1255$  mm durchgeführt, siehe Abb. 5.1. Die Anlage wurde in Gleichstromfahrweise betrieben und ermöglichte eine optische Kontrolle des Fallfilms mittels Hochgeschwindigkeitskamera. Als Heizmedium dienten verschiedene organische Dämpfe, die über einen regelbaren Siedethermostat zugeführt wurden. Über die Erfassung des auf der Rohraußenseite anfallenden Kondensatstroms wird die heizseitige Wärmebilanz ermöglicht. Aus dem Vorlagegefäß B10 wurde das Produkt mittels Pumpe P3 kontinuierlich zugeführt und am Kopf des Verdampfers über ein Turmwehr auf der Rohrrinnenseite aufgegeben. Der Umlaufstrom wurde mit einem Massen-

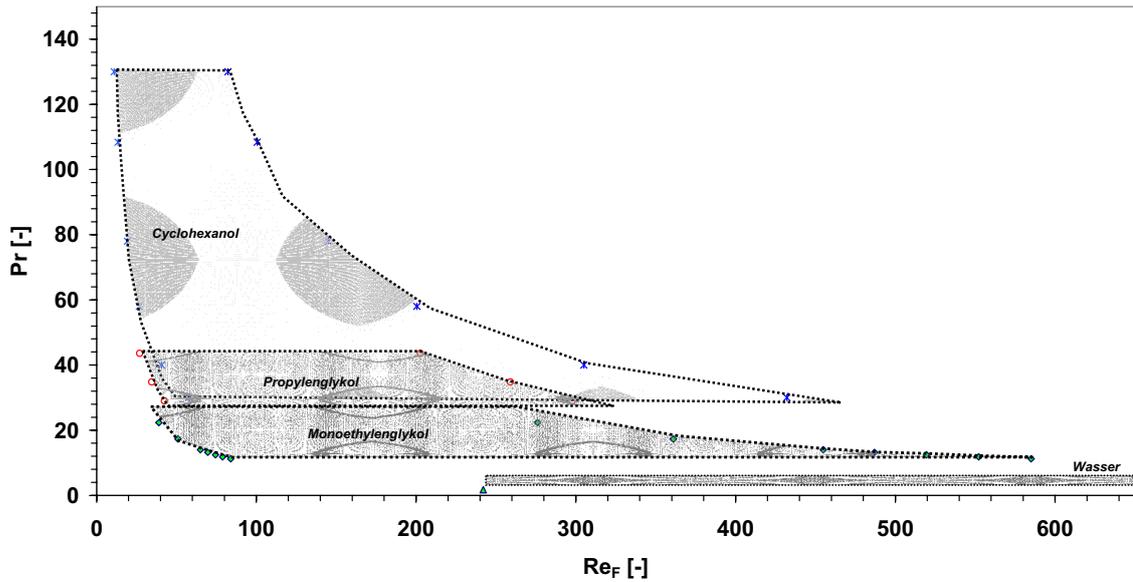
durchflussmesser nach dem Coriolis-Prinzip erfasst. Der Wärmeüberträger W9 kurz vor dem Einlauf zum Verdampferkopf diente zur Temperierung des Umlaufstromes bis ca. 0,5 – 1 K unterhalb der Siedetemperatur. Die gläserne Ausführung der Anlage erlaubt insbesondere Versuche im Vakuum, wobei bis ca. 10 mbar abs. stabil gearbeitet werden konnte. Der entstehende Produktdampf wurde oberhalb des Flüssigkeitsstandes im Sumpfbehälter ausgeschleust, im Wärmeüberträger W8 kondensiert, im Behälter B11 gesammelt und gravimetrisch erfasst. Die installierten Thermoelemente erlaubten eine integrale Bilanzierung. Durch die Anbindung aller Messstellen an ein Prozessleitsystem konnte die Anlage nahezu vollständig automatisiert werden.



**Abb. 5.1:** Eingesetzte Fallfilmverdampferanlage

## Ergebnisse

Um den Einfluss der Prandtl-Zahl auf das Verdampfungsverhalten unabhängig von Mischungseffekten untersuchen zu können, wurden Reinstoffexperimente durchgeführt. Die Versuchsstoffe wurden so gewählt, dass ein möglichst weiter Bereich bzgl. Reynolds- und Prandtl-Zahl überstrichen werden konnte. Da hohe Prandtl-Zahlen allein durch hohe Viskositäten und damit niedrige Temperaturen eingestellt wurden, ergab sich die max. Prandtl-Zahl bei den Verdampfungsexperimenten aus dem minimal möglichen Verdampfungsdruck. Abb. 5.2 zeigt den entsprechenden Versuchsbereich. Als viskose Testflüssigkeiten in den fluiddynamischen Untersuchungen dienen Propylenglykol (PG) und Cyclohexanol (CHEX) mit Viskositäten im Bereich von 5 bis 41 mPa s.



**Abb. 5.2:** Versuchsbereich zur Reinstoffverdampfung

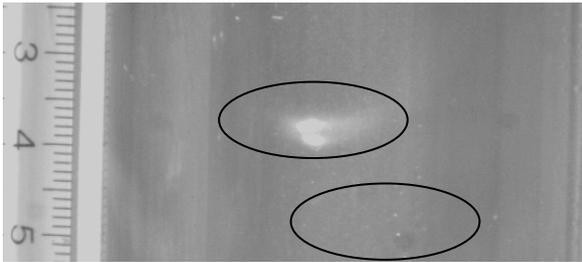
*Fluiddynamik*

Aufnahmen mit einer Hochgeschwindigkeitskamera dienten zur Untersuchung der Fluiddynamik bei der Filmbildung im Verdampferrohr. So konnte der Flüssigkeitsfilm auf der gesamten Länge von der Aufgabenvorrichtung bis zum Rohraustritt beobachtet werden. Tab. 5.2 fasst den experimentellen Arbeitsbereich zusammen.

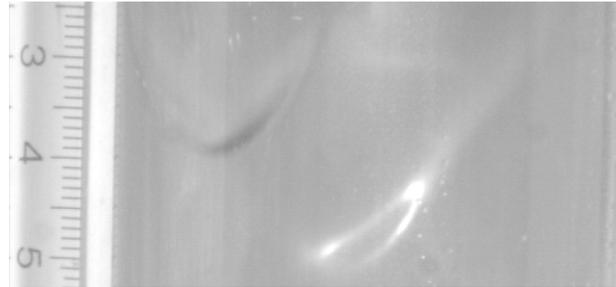
**Tab. 5.2:** Arbeitsbereich und Stoffdaten

Medium	Prandtl [-]	Viskosität [mPas]	Temp. [°C]	Umlauf [l/h]	Re <sub>min</sub> [-]	Re <sub>max</sub> [-]
Propylen- glykol	29	1,8	130	40...300	42,5	319
	35	2,3	110	40...300	34,5	259
	44	3	95	40...300	27	203
	48	3,3	90	40...160	24,4	98
	107	7,8	60	40...160	10,5	42
	396	31,2	30	10...60	0,7	4
Cyclo- hexanol	29	1,22	120	40...300	57,6	432
	40	1,8	105	40...300	40,7	305
	78	3,8	80	10...180	4,8	87
	108	5,5	70	10...180	3,4	60,3
	158	8,4	60	10...130	2,2	28,9
	241	13,4	50	14...130	2	18,3
	388	22,6	40	20...120	1,7	10,1
	663	40,5	30	20...80	0,9	3,8

Durch den Einsatz der Hochgeschwindigkeitskamera konnten mittlere Wellengeschwindigkeiten und –frequenzen ermittelt werden. Die Wellenbildung im Film sowie im weiteren Verlauf die Filmstabilität sollte durch die spezielle Ausführung der Filmaufgabe verbessert werden. Stabile Wellenfronten zeigten sich bereits im Bereich sehr kleiner Reynolds-Zahlen. Diese Wellenfronten konnten bis zum Ende der Lauflänge verfolgt werden. Abb. 5.3 zeigt beispielhaft die verstärkte Wellenbildung.



**Abb. 5.3:** Cyclohexanol,  $Re_F=0,9$ ,  
 $Pr=663$

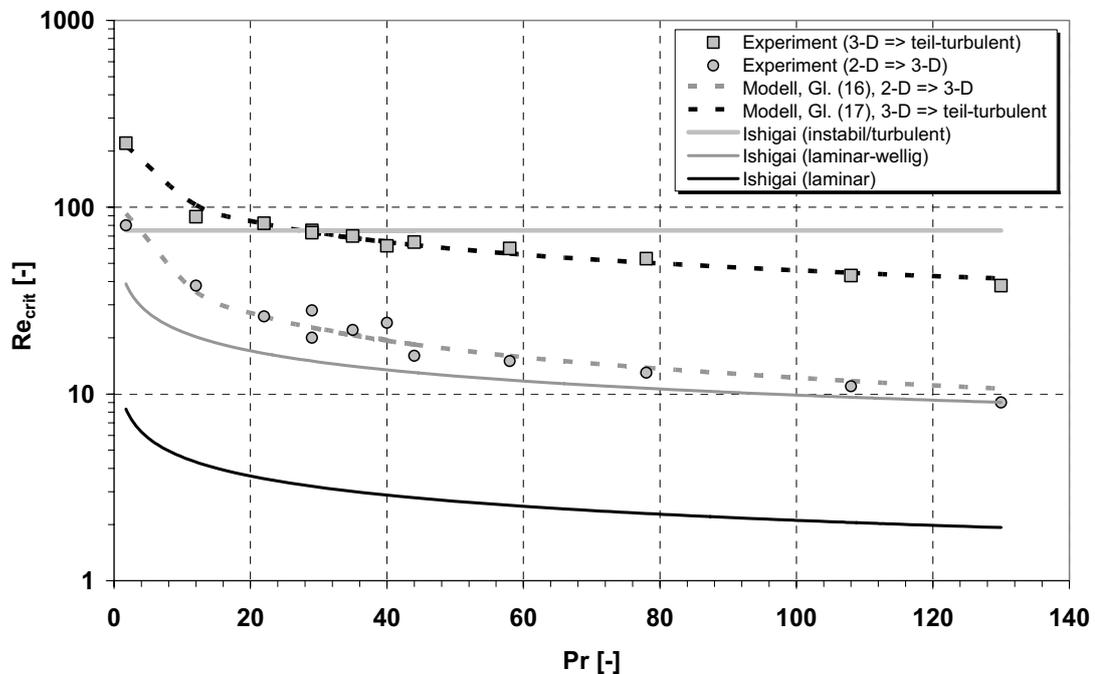


**Abb. 5.4:** Cyclohexanol,  $Re_F=3,8$ ,  $Pr=663$

Auftretende Rollwellen wiesen deutlich höhere Geschwindigkeiten auf als der Hauptfilm. Zusätzlich konnten mit der gewählten Technik unterschiedliche Rollwellengeschwindigkeiten ermittelt werden. Bei steigenden Reynolds-Zahlen entwickelte sich das bis dahin zweidimensionale Filmprofil zu einem dreidimensionalen. Im Verhältnis zur berechneten mittleren Filmgeschwindigkeit ergab die Auswertung der Wellengeschwindigkeiten eine 1,5- bis 3-fache Geschwindigkeit der Rollwellen. Die Berechnung der mittleren Filmgeschwindigkeit erfolgte dabei unter Zugrundelegung der Gleichung gemäß dem VDI-Wärmeatlas. Über den gesamten Viskositätsbereich der Untersuchungen betrachtet zeigen die aus den visuellen Beobachtungen ermittelten Rollwellengeschwindigkeiten in Abhängigkeit von der Reynolds-Zahl einen charakteristischen Knick beim Übergang vom zweidimensionalen zum dreidimensionalen Strömungsmuster bzw. beim Übergang von dreidimensionalem zu vollturbulentem Verhalten. Aus dem Schnittpunkt der Anpassungen der Rollwellengeschwindigkeit in den jeweiligen Strömungsbereichen wurden kritische Reynolds-Zahlen ermittelt.

Abb. 5.5 zeigt Ergebnisse für die Abhängigkeit der kritischen Reynolds-Zahl von der Prandtl-Zahl im Vergleich mit den Modellen nach *Ishigai et al.*. Es wurden hierfür die in den Experimenten geltenden Kapitza-Zahlen  $Re_{crit} = f(Ka)$  nach *Ishigai et al.* berechnet, über der Prandtl-Zahl aufgetragen und durch eine Ausgleichskurve der berechneten Werte dargestellt. Weiterhin ist in Abb. 5.5 der nach *Ishigai et al.* konstante Wert von  $Re_{crit} = 75$  für den Übergangsbereich zu turbulenter Strömung eingetragen. Zu erkennen ist, dass die experimentellen Daten die gleiche qualitative Abhängigkeit  $Re_{crit} = f(Pr)$  zeigen, wie das Modell nach *Ishigai et al.*. Im Bereich kleiner Prandtl-Zahlen steigt die kritische Reynolds-Zahl deutlich, bei großen Prandtl-Zahlen hingegen ist nur eine schwache Abhängigkeit zu sehen. In den

Absolutwerten ist jedoch eine deutliche Abweichung zwischen Theorie und Experiment zu erkennen. Markante Streuungen bzw. eine „Parallelverschiebung“ der experimentell bestimmten Werte sind zudem im Bereich von  $20 < Pr < 40$  zu sehen. Dies könnte auf einen über die Prandtl-Zahl hinausgehenden und noch nicht erfassten zusätzlichen Stoffeinfluss hindeuten.



**Abb. 5.5:** Kritische Reynolds-Zahlen am Übergang von Strömungszuständen: Eigene Messungen im Vergleich zu Modellen von *Ishigai et al.*

Die quantitative Beschreibung der Abhängigkeit der kritischen Reynolds-Zahl von der Prandtl-Zahl gelingt mit den Gln. (5.14) und (5.15):

$$Re_F \approx 122 \cdot Pr^{-0,5} \quad \text{Übergang 2-D zu 3-D Strömungsprofil} \quad (5.14)$$

$$Re_F \approx 264 \cdot Pr^{-0,38} \quad \text{Übergang 3-D zu teil-turbulentem Strömungsprofil} \quad (5.15)$$

Auf Basis der verfügbaren Messdaten ist jedoch nicht eindeutig zu klären, ob die Streuung der experimentellen Daten im Bereich  $20 < Pr < 40$  allein durch Berücksichtigung der Oberflächenspannung, resp. Kapitza-Zahl, erklärt werden kann. Weitere systematische Untersuchungen sind erforderlich, um den Einfluss von Stoffdaten, konstruktiver Gestaltung sowie Betriebsbedingungen auf den Übergang zwischen den verschiedenen Strömungsregimen aufzuklären.

### Wärmeübertragung bei Verdampfung

Aufgrund der Materialwahl war eine lokale Temperaturmessung nicht möglich. Daher wurde als Bezugsgröße die globale Temperaturdifferenz verwendet:

$$\Delta T_{\text{ges}} = T_{\text{Heizdampf}} - T_{\text{Siedetemperatur}} \quad (5.16)$$

Es konnte jeweils unter Vernachlässigung von Druckverlusten mit konstanten Kerntemperaturen gerechnet werden, da sowohl auf der Beheizungsseite als auch auf der Verdampfungsseite mit Reinstoffen gearbeitet wurde. Der Wärmestrom wurde aus einem Abgleich der Wärmebilanzen auf der Heiz- und Verdampfungsseite ermittelt. Unter Verwendung der Gesamttemperaturdifferenz gemäß Gl. (5.16) und der Verdampferfläche erhält man mit

$$\dot{Q} = k \cdot A \cdot \Delta T_{\text{ges}} \quad (5.17)$$

den auf die Rohrrinnenfläche bezogenen Wärmedurchgangskoeffizienten  $k$ .

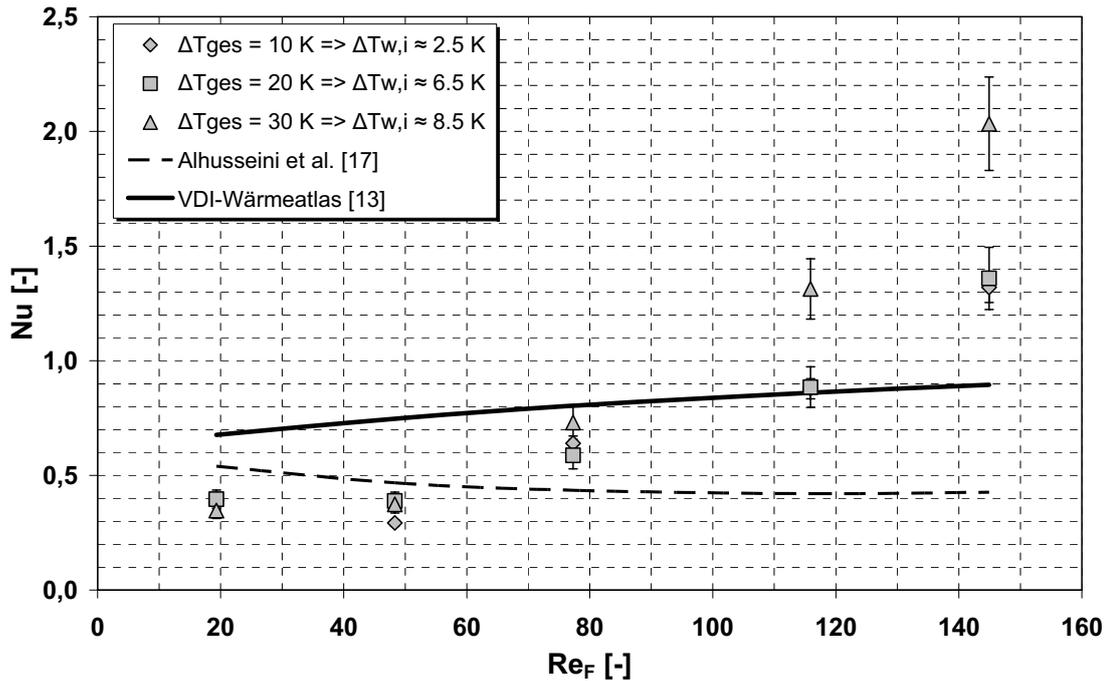
Berechnet man den kondensatseitigen Wärmeübergangskoeffizienten nach VDI-Wärmeatlas, so kann, unter Vernachlässigung von Fouling, der verdampfungsseitige Wärmeübergangskoeffizient ermittelt werden durch die übliche Beziehung

$$\alpha_i = \left( \frac{1}{k} - \frac{d_a \cdot \ln\left(\frac{d_a}{d_i}\right)}{2 \cdot \lambda_w} - \frac{d_a}{d_i \cdot \alpha_a} \right)^{-1} \quad (5.18)$$

und daraus folgend die experimentelle Nusselt-Zahl gemäß Gl. (5.7).

Aufgrund der niedrigen Wärmeleitfähigkeit von Borosilikatglas ( $\lambda = 1,2 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ) wurden relativ große Temperaturdifferenzen von  $\Delta T_{\text{ges}} = 10, 20, 30$  und  $40 \text{ K}$  eingestellt. Die Versuche wurden bei stets vollständig benetzter Verdampfungsfläche durchgeführt. Auf Basis von Untersuchungen mit Wasser und Monoethylenglykol konnte gezeigt werden, dass die experimentell ermittelten Wärmeübergangskoeffizienten auf der Verdampfungsseite bis  $\text{Pr} \leq 10$  gut mit Literaturmodellen, z. B. nach VDI-Wärmeatlas, *Chun und Seban* oder *Alhusseini et al.*, übereinstimmen.

Deutliche Abweichungen sind jedoch bei steigenden Prandtl-Zahlen zu erkennen. Abb. 5.6 zeigt eine Gegenüberstellung experimentell ermittelter Nusselt-Zahlen mit den Berechnungsvorschriften gemäß VDI-Wärmeatlas und Alhusseini et al. Dargestellt sind Messungen für drei verschiedene Gesamttemperaturdifferenzen mit den daraus resultierend unterschiedlichen Differenzen zwischen Rohrwand- und Verdampfungstemperatur  $\Delta T_{\text{w,i}}$ .



**Abb. 5.6:** Experimentell bestimmte Nusselt-Zahlen für Cyclohexanol bei  $Pr = 78$

Qualitative wie auch quantitative Unterschiede von Experiment und Theorie sind zu erkennen. Insbesondere gilt diese für Reynolds-Zahlen über ca. 40 - 60. Wird aus den Experimenten die minimale Nusselt-Zahl mit der dazugehörigen Reynolds-Zahl bestimmt, so ist zu sehen, dass diese gut mit den aus der Wellengeschwindigkeit in den fluiddynamischen Untersuchungen ermittelten Werten übereinstimmen.

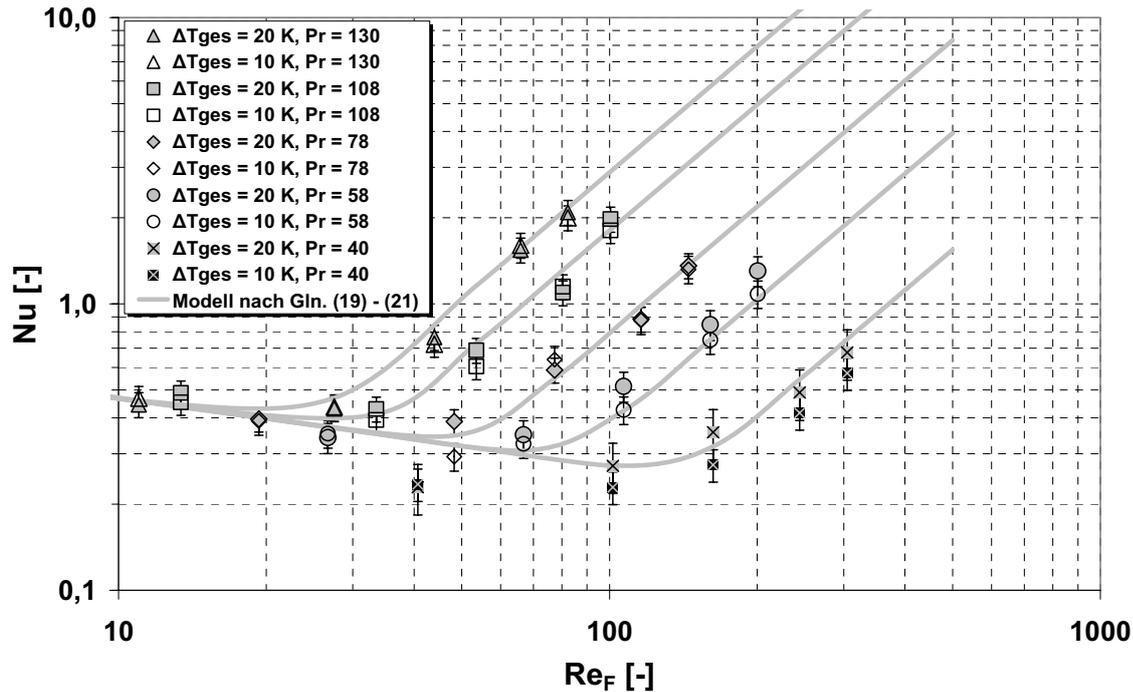
In einem ersten Modellierungsansatz konnten die aus den Experimenten bestimmten Nusselt-Zahlen wie folgt beschrieben werden:

$$Nu_{lam} = 0,38 \cdot Re_F^{-0,24} \quad (5.19)$$

$$Nu_{turb} = 7,58 \cdot 10^{-9} \cdot Re_F^{1,46} \cdot Pr^{2,52} \quad (5.20)$$

$$Nu = f_{well} \sqrt[5]{Nu_{lam}^5 + Nu_{turb}^5} \quad \text{mit} \quad f_{well} = 2,15 \quad (5.21)$$

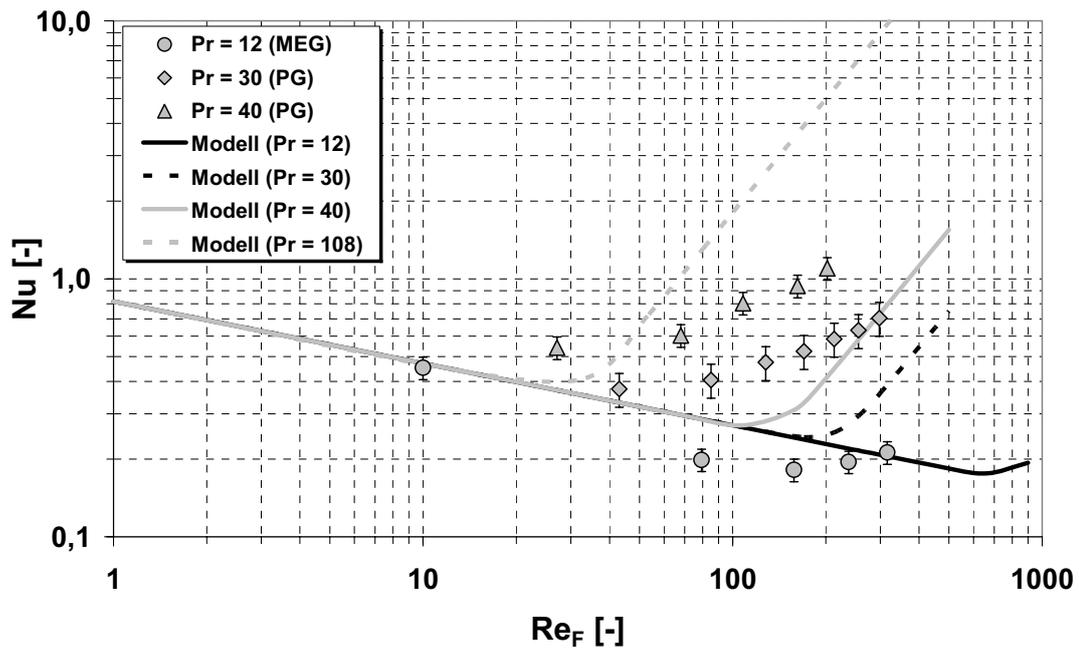
Es hat sich in Anlehnung an *Albusseini et al.* eine Überlagerung von laminarem und turbulentem Anteil zur fünften Potenz als praktikabel erwiesen. Abb. 5.7 zeigt einen Vergleich experimenteller und nach diesen Beziehungen berechneter Werte für Cyclohexanol bei Prandtl-Zahlen von 40 bis 130.



**Abb. 5.7:** Experimente und Modellierung für Cyclohexanol bei  $Pr = 40 - 130$  und  $\Delta T_{ges} = 10 \text{ K}$  bzw.  $20 \text{ K}$

Überprüft man jedoch diese Modellgleichungen für Monoethylenglykol bei  $Pr = 12$  und Propylenglykol bei  $Pr = 30$  und  $Pr = 40$ , so ist zu erkennen, dass es zu keinem zufriedenstellenden Ergebnis kommt, siehe Abb. 5.8.

Bezüglich des Einflusses der Prandtl-Zahlen im turbulenten Bereich stimmen die experimentellen Ergebnisse mit den vorherigen Befunden überein. Die quantitative Beschreibung mit dem für Cyclohexanol entwickelten Modell gelingt jedoch nicht. Eine deutlich schwächere Abhängigkeit von der Reynolds-Zahl im turbulenten Bereich ist insbesondere für Propylenglykol zu sehen. Dies könnte durch einen bisher nicht berücksichtigten weiteren Stoffdateneinfluss, insbesondere der Oberflächenspannung – ausgedrückt über die Kapitza-Zahl – bedingt sein. Auch das Modell nach *Albusseini et al.*, welches die Kapitza-Zahl berücksichtigt, ist nicht in der Lage, die experimentellen Daten zu beschreiben. Die weitere Aufklärung dieses möglichen Einflusses erfordert eine systematisch erweiterte Datenbasis zur Verdampfung von Reinstoffen mit hohen Prandtl-Zahlen, die in zukünftigen Arbeiten erfolgen soll.



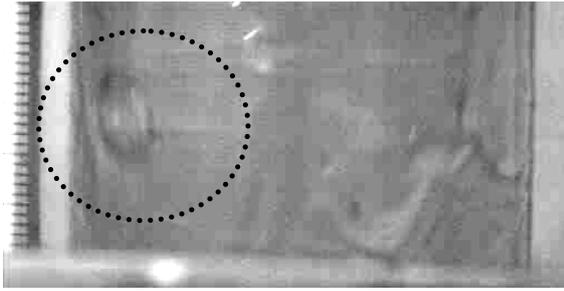
**Abb. 5.8:** Experimente und Modellierung von Gln. (5.19) bis (5.21) für Propylenglykol und Monoethylglykol,  $\Delta T_{\text{ges}} = 10 \text{ K}$

#### *Ergebnisse zum Siedezustand*

Über die Messung des Wärmeübergangs bei der Verdampfung und der Fluidodynamik hinaus war es bei den durchgeführten Experimenten möglich, den Verdampfungszustand zu charakterisieren. Insbesondere konnte das Auftreten erster Blasen im Film mittels Videotechnik identifiziert werden. Die Untersuchungen zeigten, dass der Beginn der Blasenbildung für viskose Flüssigkeiten nicht im Bereich der für Wasser bekannten Daten liegt. Für eine Temperaturdifferenz von  $\Delta T_{\text{ges}} \leq 20 \text{ K}$ , entsprechend einer berechneten Wandüberhitzung auf der Verdampfungsseite von  $\Delta T_{\text{w,i}} = T_{\text{w,i}} - T_{\infty, i} \leq 6,5 \text{ K}$ , war keinerlei Blasenbildung erkennbar. Bei Werten von  $\Delta T_{\text{ges}} > 20 \text{ K}$  zeigten sich erste Blasen, die folgender Einteilung genügten:

- $Pr < 30$ : Auftreten erster Blasen im Hauptfilm,
- $Pr \geq 30$ : Blasenbildung an den Wellenfronten und zusätzlich einzelne große Blasen im Hauptfilm,
- $Pr > 78$ : Blasenbildung ausschließlich im Bereich der Rollwellenfronten.

Abbn. 5.9 und 5.10 zeigen zwei Beispiele aus der Videoauswertung.

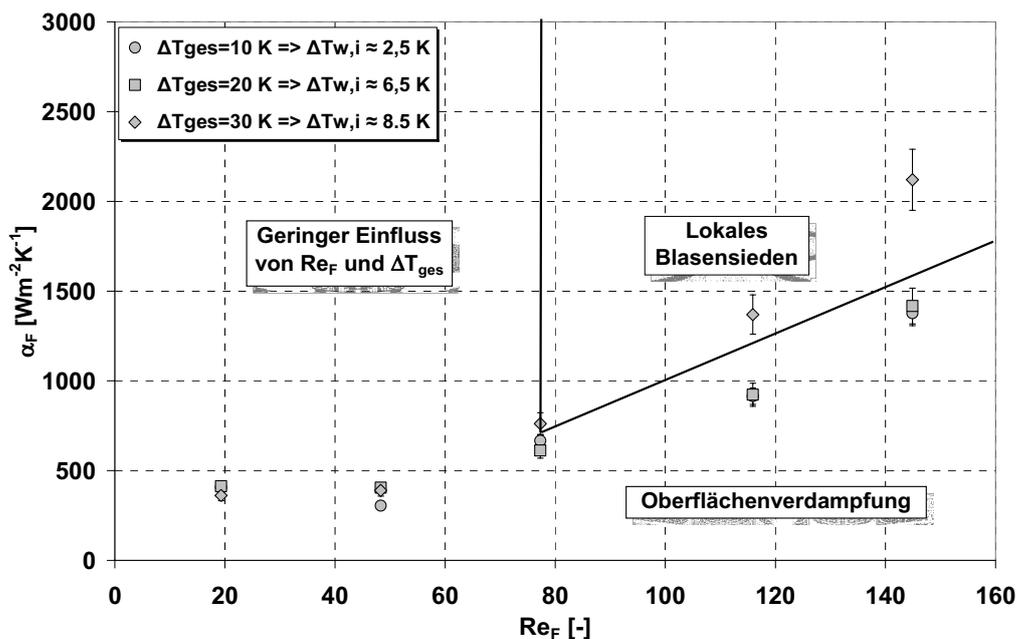


**Abb. 5.9:** PEG,  $Re_F=102$ ,  $Pr=40$ ,  
 $\Delta T_{ges}=40$  K



**Abb. 5.10:** CHEX,  $Re_F=67$ ,  $Pr=58$ ,  
 $\Delta T_{ges}=40$  K

Bei der Erhöhung der globalen Temperaturdifferenz stellte sich ein weiterer Effekt ein. In Abb. 5.11 sind für verschiedene Gesamttemperaturdifferenzen die ermittelten verdampfungsseitigen Wärmeübergangskoeffizienten dargestellt. Es ist zu erkennen, dass für Gesamttemperaturdifferenzen von  $\Delta T_{ges} \leq 20$  K die experimentell ermittelten verdampfungsseitigen Wärmeübergangskoeffizienten denselben Verlauf  $\alpha = f(Re_F)$  aufweisen. Für eine Gesamttemperaturdifferenz von  $\Delta T_{ges} = 30$  K, d. h.  $\Delta T_{w,i} \approx 8,5$  K, ist jedoch bei Reynolds-Zahlen größer 80 ein stärkerer Anstieg des Wärmeübergangs mit der Reynolds-Zahl zu erkennen. Dies kann durch die Aktivierung eines weiteren Wärmeübertragungsmechanismus oberhalb einer bestimmten Schwellentemperaturdifferenz erklärt werden. Das Auftreten erster Blasen im Film, wie sie mittels CCD-Kamera über die gesamte Rohrlänge verfolgt werden konnte, fällt mit dieser Beobachtung zusammen. Auch ist die Reynolds-Zahl, bei der die beiden Verläufe  $\alpha = f(Re_F)$  auseinanderlaufen, identisch mit der Reynolds-Zahl, die auf Basis der Untersuchungen zum Strömungszustand als Trennung zwischen verschiedenen Strömungsregimen identifiziert wurde.



**Abb. 5.11:** Unterschiedliche Siedezustände für Cyclohexanol bei  $Pr = 78$

## Schlussfolgerung und Ausblick

Experimentelle und theoretische Untersuchungen zu Fluidodynamik und Wärmeübergang bei der Fallfilmverdampfung von Reinstoffen wurden in einem Einrohr-Glasapparat an Fluiden mit erhöhten Prandtl-Zahlen durchgeführt. Es konnten bereits bei Reynolds-Zahlen  $< 1$  stabile Wellen sowie das Abweichen von der rein laminaren Strömung beobachtet werden. Der charakteristische Übergang von laminar-welliger zu lokal turbulenter Strömung konnte bei einer Erhöhung der Berieselungsdichte und damit der Reynolds-Zahl aus einer quantitativen Auswertung von Wellengeschwindigkeiten bei  $Re_{crit} \approx 50 - 70$  ermittelt werden. Jedoch ist diese kritische Reynolds-Zahl abhängig von der Prandtl-Zahl und nimmt mit steigender Prandtl-Zahl ab. Dies ist analog für den Übergang von teilturbulenter zu vollturbulenter Strömung zu beobachten. Beide Verläufe stimmen qualitativ gut mit berechneten Verläufen nach *Isbigai et al.* überein, liegen quantitativ aber bei um den Faktor zwei höheren Werten.

Wärmeübergangskoeffizienten auf der Verdampfungsseite konnten aus integralen Wärmedurchgangsmessungen bestimmt werden. Eine Beschreibung des Verlaufs der Wärmeübergangskoeffizienten gelingt für den Versuchsstoff Cyclohexanol durch eine Überlagerung von laminarem und turbulentem Anteil mit der fünften Potenz. Eine Übertragung auch für andere Stoffe ist allerdings nicht möglich. Zu vermuten ist hier ein bisher noch nicht erfasster zusätzlicher Einfluss der Oberflächenspannung resp. Kapitza-Zahl. Dies kann allerdings nur auf Basis einer systematisch verbreiterten Stoffdatenbasis erfasst und quantifiziert werden und soll im Rahmen weiterer Untersuchungen erfolgen.

Bezüglich des Verdampfungsmechanismus ist festzustellen, dass bereits bei Wandüberhitzungen von  $\Delta T_{w,i} \geq 7 - 9$  K Blasen im Film auftreten, ohne dass dies zu einem Filmaufreißen führt. Durch die Aktivierung eines weiteren Wärmeübertragungsmechanismus steigt der Wärmeübergangskoeffizient oberhalb dieses Schwellenwertes und einer kritischen Reynolds-Zahl stärker mit derselben an als für geringe Wandüberhitzungen. Diese Effekte können allerdings mit den derzeit etablierten Modellen noch nicht beschrieben werden und bilden den Gegenstand zukünftiger Untersuchungen. Diese haben eine Erweiterung des abgesicherten und quantitativ beschreibbaren Einsatzbereichs für Fallfilmverdampfer hin zu höheren Prandtl-Zahlen zum Ziel.

## 6 Vorträge und Veröffentlichungen

### 6.1 Veröffentlichungen

- [19] **Weise, F., Scholl, S.:** *Falling film evaporator of pure liquids at high Prandtl numbers*, IHTC Intern. Heat Transfer Conference, Sydney, Australien, 13.-18.08.2006, Proceeding, Begell House Inc., ISBN 1-56700-226-9
- [20] **Weise, F., Scholl, S.:** *Fluiddynamik und Wärmeübergang bei der Fallfilmverdampfung von Reinstoffen mit hohen Prandtl-Zahlen*, Chem.-Ing.-Tech. 79, (8), 2007, pp. 1145-1153
- [21] **Bode, K., Hooper R.J., Paterson W.R, Wilson, D.I., Augustin, W., Scholl, S.:** *Pulsed Flow Cleaning of Whey Protein Fouling Layers*, Heat Transfer Eng., 28 (3), 2007, pp. 202-209
- [22] **Augustin, W., Bode, K., Scholl, S., Lucas, N., Büttgenbach, S.:** *Influence of Microstructures on convective Heat Transfer under Laminar and Turbulent Flow Conditions*, Nanoscale and Microscale Thermophysical Eng. 11, 2007, pp. 43-55
- [23] **Möhle, R.B., Langemann, T., Haesner, M., Augustin, W., Scholl, S., Neu, T.R., Hempel, D.C., Horn, H.:** *Structure and Shear Strength of Microbial Biofilms as Determined With Confocal Laser Scanning Microscopy and Fluid Dynamic Gauging Using a Novel Rotating Disc Biofilm Reactor*, Biotechn. and Bioeng., Vol. 9 (4), 2007, pp. 747-755
- [24] **Walther, G., Schatka, A., Bode, K., Spengler, T., Scholl, S.:** *Designing Sustainable Supply Chains by Integrating Logistical and Process Engineering Aspects – A Material Flow Based Approach for 2<sup>nd</sup> Generation Synthetic Bio-Fuels*. In: Operations Research Proceedings 2007, Eds. J. Kalcsis, S. Nickel, Springer-Verlag Berlin 2008
- [25] **Geddert, T., Bialuch, I., Augustin, W., Scholl, S.:** *Tailored surfaces for the mitigation of fouling in heat exchanger*, Proceedings, 17th. Intern. Congress of Chemical and Process Engineering CHISA, Prag, Czech Republic, 27.-31.08.2007.
- [26] **Augustin, W., Geddert, T., Scholl, S.:** *Surface Treatment for the Mitigation of Whey Protein Fouling*, Proceedings, Engin. Conference Intern. “Heat Exchanger Fouling and Cleaning VII”, 01.-06.07.2007, Tomar, Portugal, P
- [27] **Augustin, W., Geddert, T., Albert, A., Scholl, S.:** *Oberflächenmodifizierung zur Verringerung der Belagbildung in Wärmeübertragern*, Proceedings, 8. Wörlitzer Workshop Funktionelle Schichten „Adhäsion und Oberflächenfunktionalisierung“, 13.06.2007, Wörlitz
- [28] **Jördening, H.-J., Erhardt, F.A., Holtkamp, M., Buchholz, K., Scholl, S.:** *Verfahrens- und Katalysatordesign als Aufarbeitungsstrategie für die enzymatische Darstellung von Isomaltose*, Chem.-Ing.-Tech., 80 (6), 2008, pp. 867-874
- [29] **Augustin, W., Albert, F., Boxler, C., Geddert, T., Scholl, S.:** *Verfahrenstechnische Ansätze zur Foulingminderung*, Deutsche Milchwirtschaft, 59, (2), 2008, pp. 43-45

- [30] Albert, F., Augustin, W., Förster, M., Wassmer, K.-H. und Scholl, S.: *Abkühlung von Medien mit hohen Prandtl-Zahlen und stark temperaturabhängigen Viskositäten*, Chem.-Ing.-Tech. 80 (2008) 7, pp. 997-1006
- [32] Augustin, W., Boxler, C. und Scholl, S.: *Strömungstechnische Ansätze zur Foulingminderung*, DMZ 6 (2008), pp. 26-29
- [33] Augustin, W., Geddert, T., Scholl, S.: *Surface treatment for the mitigation of whey protein fouling*”, in H. Müller-Steinhagen et al.: “Heat Exchanger Fouling and Cleaning – VII”, Berkeley Electronic Press, Berkeley 2008, pp. 206-214
- [34] Geddert, T., Bialuch, I., Augustin, W., Scholl S.: *Extending the induction period of crystallization fouling through surface coating*, in H. Müller-Steinhagen et al.: “Heat Exchanger Fouling and Cleaning – VII”, Berkeley Electronic Press, Berkeley 2008, pp. 221-228
- [35] Geddert, T., Kipp S., Augustin W., Scholl, S.: *Influence of different surface materials on nucleation and crystal growth in heat exchangers*, in H. Müller-Steinhagen et al.: “Heat Exchanger Fouling and Cleaning – VII”, Berkeley Electronic Press, Berkeley 2008, pp. 229-236
- [36] Kuschnerow, J.C., Wasserscheid, P., Scholl, S.: *Einsatz Ionischer Flüssigkeiten in der Reaktivdestillation am Beispiel der säurekatalysierten Umesterung*, Chem.-Ing.-Tech 80, 9 (2008) pp. 1388-1389
- [37] Geddert, T., Augustin, W., Scholl, S.: *Modifizierte Oberflächen zur Foulingminderung bei der Wärmeübertragung*, Chem.-Ing.-Tech 80, 9 (2008) pp. 1349-1350
- [38] Hornig, J., Markus, D., Klausmeyer, U., Scholl, S.: *Mischungsbruchbestimmung in nichtreaktiven Freistrahlen*, Chem.-Ing. Tech 80, 9 (2008) pp. 1321-1322
- [39] Albert, F., Bialuch, I., Augustin, W., Scholl, S.: *Tailored surfaces for the mitigation of fouling in industrial heat exchanger*, Proceedings 18<sup>th</sup> International Congress of Chemical and Process Engineering CHISA, 24.08.-28.08.2008, Prag, Czech Republic, pp. 1034

## 6.2 Vorträge

- [V44] Geddert, T., Augustin, W., Scholl, S.: *Einflussfaktoren unterschiedlicher Wärmeübertragermaterialien auf die Belagbildung in der Induktionsphase*, ProcessNet Fachausschuss „Wärme- und Stoffübertragung“, 07.-09.03.2007, Stuttgart
- [V45] Bode, K., Augustin, W., Scholl, S.: *Einfluss mikrostrukturierter Oberflächen auf den einphasigen, konvektiven Wärmeübergang unter laminaren und turbulenten Strömungsbedingungen*, ProcessNet Fachausschuss „Wärme- und Stoffübertragung“, 07.-09.03.2007, Stuttgart
- [V46] Augustin, W., Geddert, T., Scholl, S.: *Oberflächenmodifizierung zur Verringerung von Molkeprotein-fouling*, ProcessNet Fachausschuss „Lebensmittelverfahrenstechnik“, 15.-16.03.2007, Zürich

- [V47] **Augustin, W.:** *Oberflächenmodifizierung zur Verringerung der Belagbildung in Wärmeübertragern*, 8. Wörlitzer Workshop Funktionelle Schichten „Adhäsion und Oberflächenfunktionalisierung“, 13.06.2007, Wörlitz
- [V48] **Augustin, W., Geddert, T., Scholl, S.:** *Surface Treatment for the Mitigation of Whey Protein Fouling*, Engin. Conference Intern. “Heat Exchanger Fouling and Cleaning VII”, 01.-06.07.2007, Tomar, Portugal
- [V49] **Geddert, T., Bialuch, I., Augustin, W., Scholl, S.:** *Extending the induction period of crystallization fouling through surface coating*, Engin. Conference Intern. “Heat Exchanger Fouling and Cleaning VII”, 01.-06.07.2007, Tomar, Portugal
- [V50] **Geddert, T., Kipp, S., Augustin, W., Scholl, S.:** *Influence of different surface materials on nucleation and crystal growth in heat exchangers*, Engin. Conference Intern. “Heat Exchanger Fouling and Cleaning VII”, 01.-06.07.2007, Tomar, Portugal
- [V51] **Geddert, T., Kipp, S., Augustin, W., Scholl, S.:** *„Microscopic examination of crystal growth on heat transfer surfaces“*, Faraday Discussion 136, Crystal Growth and Nucleation, 02.04. – 04.04.2007, London, UK
- [V52] **Augustin, W., Boxler, C., Scholl, S.:** *Verfahrenstechnische Ansätze zur Foulingminderung bei der Milchverarbeitung*, 11. Ahlemer UHT-Seminar, 09.10.-10.10.2007, Göttingen
- [V53] **Augustin, W.:** *Belagbildung (Fouling) in Wärmeübertragern*, MCI Management Center, 07.10.2007, Innsbruck, Österreich
- [V54] **Geddert, T., Augustin, W., Kipp, S., Scholl, S.:** *Mikroskopische Untersuchungen zum Kristallisationsfouling auf wärmeübertragenden Flächen*, ProcessNet-Fachausschuss „Kristallisation“, 05.03.- 07.03.2008, Halle/Saale
- [V55] **Augustin, W., Bode, K., Geddert, T., Scholl, S.:** *Improvement of fouling and cleaning behavior in milk processing by surface modifications and discontinuous flow conditions*, 10<sup>th</sup> International Congress of Engineering and Food, 20.04.- 24.04.2008, Vina del Mar, Chile
- [V56] **Boxler, C., Augustin, W., Scholl, S.:** *Fouling from milk components on stainless steel surfaces at low and high temperatures*, 10<sup>th</sup> International Congress of Engineering and Food, 20.04. – 24.04.2008, Vina del Mar, Chile
- [V57] **Bialuch, I., Augustin, W., Albert, F., Geddert, T., Scholl, S.:** *Modified DLC coatings with anti-fouling properties*, 11<sup>th</sup> International Conference on Plasma Surface Engineering PSE, 15.09. – 19.09.2008, Garmisch-Partenkirchen
- [V58] **Arndt, S., Weise, F., Scholl, S.:** *Fluidynamische Untersuchungen viskoser Flüssigkeiten in Fallfilmverdampfern*. ProcessNet Fachausschuss „Wärme- und Stoffübertragung“, 25.-26.02.2008, Magdeburg
- [V59] **Wassmer, K. H., Daiss, A., Förster, M., Albert, F., Augustin, W., Scholl, S.:** *Wärmeübergang an hochviskosen Fluiden in Rohrströmungen und in Rührkesseln*. Proceeding 11. Köthener Rührer-Kolloquium, 19.06.2008, Köthen

- [V60] **Scholl, S.:** *From Batch to Continuous Production Through Micro Process Technology: Chances and Challenges.* 6<sup>th</sup> International Conference on Nanochannels and Minichannels, Juni 23-25, 2008, Darmstadt
- [V61] **Scholl, S.:** *Aspekte einer sicherheitsgerechten Prozessgestaltung: Verfahrens- und Apparatedesign.* Sicherheitstechnisches Kolloquium Physikalisch-Technische Bundesanstalt, 29.02.2008, Braunschweig
- [V62] **Augustin, W, Benezech, T., Bialuch, I., Melo, L., Scholl, S.:** *Coating of sensors in food and bio processing for the mitigation of fouling,* ECI-Conference: Sensors and Sensing in Biology and Engineering, Oktober 12-16, 2008, Cetraro, Italien
- [V63] **Jördering, H.-J., Erhardt, F., Herrmann, M., Scholl, S., Buchholz, K.:** *A multiphase fluidized bed reactor for the production of isomaltose,* 7<sup>th</sup> Carbohydrate Bioeng. Meeting, April 22-25, 2007, Braunschweig
- [V64] **Kuschnerow, J.C., Wasserscheid, P., Scholl, S.:** *Einsatz Ionischer Flüssigkeiten in der Reaktivdestillation am Beispiel der säurekatalysierten Umesterung,* Process-Net Jahrestagung 2008, Oktober 07-09, 2008, Karlsruhe
- [V65] **Bode, K, Bunjes H., Fehr, S., Augustin, W., Scholl, S.:** *A microfluidic approach to study cooling rate dependent crystallisation properties of triglyceride-based drug carrier nanoparticles,* British Association of Crystal Growth Conference, September 07-09, 2008 Loughborough, GB
- [V66] **Kamat, A., Huth, A., Klein O., Scholl, S.:** *Characterization of the MEA: Experimental Analysis,* First Carisma International Conference, Progress MEA 2008, September 21-24, 2008, La Grand Motte, France
- [V69] **Albert, F., Bialuch, I., Augustin, W., Scholl, S.:** *Tailored surfaces for the mitigation of fouling in industrial heat exchangers,* Proceeding, 18<sup>th</sup> Intern. Congress of Chemical and Process Engineering CHISA, August 24-28, 2008, Prag
- [V70] **Geddert, T., Augustin, W., Scholl, S.:** *Modifizierte Oberflächen zur Foulingminderung bei der Wärmeübertragung,* ProcessNet-Jahrestagung, 07.10.-09.10.2008, Karlsruhe
- [V71] **Bode, K., Hammerschmidt, J., Demming, S., Gregory, O., Büttgenbach, S., Scholl, S.:** *Influence of roughness and fluid properties on fluid flow characteristics in silicon microchannels,* 1<sup>st</sup> European Conference on Microfluidics, 10.12.-12.12.2008, Bologna, Italy

## **7 Gastwissenschaftler und Forschungsaufenthalte im Ausland**

### **7.1 Auslandsaufenthalte**

University of Cambridge, GB:

- Dipl.-Ing. Florian Albert,
- Dr.-Ing. Wolfgang Augustin,
- Dipl.-Ing. Timo Geddert
- Prof. Dr.-Ing. Stephan Scholl

Nowegian University of Science and Technologie, Trondheim

- Prof. Dr.-Ing. Stephan Scholl
- Dipl.-Ing. Stefanie Arndt

University of Purdue, USA

- Prof. Dr.-Ing. Stephan Scholl

University of Rhode Island, USA:

- Dipl.-Ing. Katharina Bode
- Dipl.-Ing. Jochen Hammerschmidt

### **7.2 Gastwissenschaftler**

Dr. Ian Wilson, University of Cambridge, Großbritannien

Dr. John Chew, University of Cambridge, Großbritannien

## **8 Mitarbeit in Gremien**

Prof. Dr.-Ing. Stephan Scholl

- |                         |   |
|-------------------------|---|
| seit 01.04.2006         | stellv. Mitglied im Fakultätsrat Maschinenbau   |
| März 2005 bis März 2008 | Leiter des Arbeitskreises für Internationale Studienangelegenheiten der Fakultät für Maschinenbau               |
| seit 01.07.2003         | Vertreter des Fachbereichs Maschinenbau der TU Braunschweig im Fakultätentag Maschinenbau und Verfahrenstechnik |

seit 20.06.2005	berufenes Mitglied im ProcessNet-Fachausschuss „Adsorption“
seit 01.07.2006	berufenes Mitglied im ProcessNet Fachausschuss „Wärme- und Stoffübertragung“
seit 24.07.2007	berufenes Mitglied im ProcessNet Fachausschuss „Fluidverfahrenstechnik“
seit 16.06.2008	berufenes Mitglied im ProcessNet Fachausschuss „Aus- und Fortbildung in der Verfahrenstechnik“

Dr.-Ing. Wolfgang Augustin

01.04.1991 – 31.03.2007	Mitglied der Präsidialkommission für das Sportzentrum
01.04.1999 – 31.03.2007	Mitglied der Präsidialkommission für den Haushalt
seit 01.04.2005	Mitglied der Präsidialkommission “Grundsätze zur Sicherung guter wissenschaftlicher Praxis“
seit 01.04.2007	Mitglied der Strategiekommission der TU Braunschweig

Dipl.-Ing. Timo Geddert

11/2005 – 12/2007	Mitglied der Arbeitsgemeinschaft zur Umstellung des Diplomstudiengangs Bioingenieurwesen zum Bachelor/Master-Studiengang
-------------------	--

Dipl.-Biotechnol. Thomas Waluga

seit 01/2008	Mitglied der Arbeitsgemeinschaft zur Umstellung des Diplomstudiengangs Bioingenieurwesen zum Bachelor/Master-Studiengang
--------------	--

