

**CFD-Simulationen von Mischvorgängen und biotechnischen  
Stoffumsetzungen in begasten Rührkesselreaktoren**

Von der Fakultät Verfahrenstechnik und Technische Kybernetik  
der Universität Stuttgart  
zur Erlangung der Würde eines  
Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.) genehmigte Abhandlung

Vorgelegt von Sven Schmalzriedt aus Stuttgart

Hauptberichter: Prof. Dr.-Ing. M. Reuss  
Mitberichter: Prof. Dr.-Ing. M. Piesche  
Tag der mündlichen Prüfung: 20.06.2001

Institut für Bioverfahrenstechnik der Universität Stuttgart

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben,

Herrn Prof. Dr.-Ing. M. Reuss für die Möglichkeit, die Aufgabenstellung am Institut für Bioverfahrenstechnik zu bearbeiten, die dabei zugestandene wissenschaftliche Freiheit sowie für sein stets anhaltendes Interesse und diverse fachliche Anregungen,

Herrn Prof. Dr.-Ing. M. Piesche für die prompte Übernahme des Co-Referates und das meiner Arbeit entgegengebrachte Interesse,

Herrn Dr. rer. nat. Nicolas Neuss für sein großes Engagement und seine Hilfe bei der Realisierung der Rührkesselsimulation mit *UG*,

Herrn Dr.-Ing. Marc Jenne, ohne den ich überhaupt nicht die Chance zu dieser Arbeit gehabt hätte, für unsere sehr fruchtbare, für den Erfolg der Arbeit essentielle Zusammenarbeit und vor allem für seine Freundschaft,

Herrn Dipl.-Ing. Stefan Steigmajer und Herrn Dipl.-Ing. Harald Teves für wertvolle Beiträge im Rahmen ihrer Diplomarbeiten, Harald auch für zahlreiche konstruktive Diskussionen und viel mentale Unterstützung insbesondere während der Endphase der Arbeit,

Marc und Alex für Hilfe und Beistand während zahlreicher mehr oder weniger verzweifelter Stunden vor dem alten Server,

allen ehemaligen und gegenwärtigen Mitarbeitern des Instituts für Bioverfahrenstechnik, die durch fachliche und persönliche Kontakte zu positiven Erinnerungen an die dort verbrachten Jahre und zum Fortschritt der Arbeit beigetragen haben, ganz besonders aber den vielen verschiedenen „MPIlern“, die die Mittagspause immer wieder zu einem inspirierenden und erholsamen Teil des Tages gemacht haben,

und natürlich Elke, für ihr Verständnis, ihre liebevolle Unterstützung jeglicher Art und manch notwendigen Anstoß zur rechten Zeit.

# Inhaltsverzeichnis

<b>Symbolverzeichnis</b>	<b>8</b>
<b>Zusammenfassung</b>	<b>11</b>
<b>Abstract</b>	<b>13</b>
<b>1 Einführung und Zielsetzung der Arbeit</b>	<b>15</b>
<b>2 Stand des Wissens</b>	<b>19</b>
2.1 Strömungssimulation . . . . .	20
2.1.1 Experimentelle Beobachtungen in Mehrfachrührersystemen . . . . .	25
2.2 Berücksichtigung von Durchmischung oder Reaktion . . . . .	26
2.2.1 Kompartimentmodelle . . . . .	29
2.2.2 Experimentelle Untersuchungen zum Einfluss der nicht idealen Durchmischung . . . . .	30
2.3 Bewertung des Schrifttums . . . . .	31
<b>3 Fluidynamische Modellierung und Simulation</b>	<b>33</b>
3.1 Unbegaster Rührkesselreaktor . . . . .	33
3.2 Begaster Rührkesselreaktor . . . . .	35
3.2.1 <i>Two-fluid</i> -Modellierung . . . . .	36
3.2.2 <i>Algebraic-slip</i> -Ansatz . . . . .	37
<b>4 Modellierung von Durchmischung, Stoffübergang und Reaktion</b>	<b>43</b>
4.1 Pulsexperimente . . . . .	44
4.2 Stoffübergang Gas-/Flüssigphase . . . . .	46

4.3	Reaktionskinetische Modelle . . . . .	48
4.3.1	Aerobes Wachstum der Hefe <i>Saccharomyces cerevisiae</i> . . . . .	49
4.3.2	Metabolisch strukturiertes Modell des anaeroben Wachstums von <i>Saccharomyces cerevisiae</i> . . . . .	50
4.3.3	Sauerstoffabhängige Produktbildung bei <i>Bacillus subtilis</i> . . . . .	51
4.4	Verfolgung von Einzelpartikeln . . . . .	54
<b>5</b>	<b>Numerische Methoden und Simulationswerkzeuge</b>	<b>57</b>
5.1	Fluiddynamische Simulation . . . . .	57
5.2	Numerische Integration der Stoffbilanzen . . . . .	57
5.2.1	Simulationen auf der Basis axialsymmetrisch approximierter Strömungsfelder . . . . .	57
5.2.2	Ortdiskretisierung . . . . .	58
5.2.3	Simulationen auf der Basis dreidimensionaler Strömungsfelder . . . . .	66
5.2.4	Gitterreduktion . . . . .	68
<b>6</b>	<b>Simulation von Einfachrührersystemen</b>	<b>71</b>
6.1	Pulsexperimente im Standardrührkessel . . . . .	71
6.1.1	Gitterabhängigkeit der Lösung . . . . .	79
6.2	Pulsexperiment von Khang und Levenspiel . . . . .	80
6.2.1	Einfluss des Turbulenzmodells . . . . .	83
6.3	Mischzeitsimulation im „GVC-Rührwerk“ . . . . .	86
<b>7</b>	<b>Simulation von Mehrfachrührersystemen</b>	<b>91</b>
7.1	Rührkesselreaktoren mit Vierfachrührer . . . . .	91
7.1.1	Mischzeitexperimente . . . . .	94
7.1.2	Modellreduktion . . . . .	111

7.1.3	Substratgradienten während einer Fed-Batch Fermentation der Hefe <i>Saccharomyces cerevisiae</i> . . . . .	116
7.2	Rührkesselreaktoren mit Dreifachrührer . . . . .	123
7.2.1	Substratverteilung . . . . .	128
7.2.2	Optimierung der Zulaufbedingungen . . . . .	131
7.2.3	Stoffübergang und Sauerstoffversorgung . . . . .	135
7.2.4	Sauerstoffabhängige Produktbildung mit <i>Bacillus subtilis</i> . . . . .	143
7.2.5	Glucosepuls in einer kontinuierlichen Kultur von <i>Saccharomyces cerevisiae</i>	152
<b>8</b>	<b>Verfolgung von Partikelbahnen</b>	<b>159</b>
<b>9</b>	<b>Anhang</b>	<b>167</b>
9.1	Modellgleichungen zur Simulation der Sauerstoffverteilung . . . . .	167
9.2	Metabolisch strukturiertes Modell des anaeroben Wachstums von <i>Saccharomyces cerevisiae</i> . . . . .	167
9.3	Modell der sauerstoffabhängigen Produktbildung mit <i>Bacillus subtilis</i> . . . . .	170
	<b>Literatur</b>	<b>173</b>

# Symbolverzeichnis

## Lateinische Buchstaben

$a$	volumenbezogene Phasengrenzfläche	[1/m]
$A$	Fläche	[m <sup>2</sup> ]
$B$	Breite eines Strombrechers	[m]
$c_i$	Konzentration der Komponente $i$	[mol/m <sup>3</sup> ] bzw. [kg/m <sup>3</sup> ]
$c$	verschiedene Parameter in den $k$ - $\epsilon$ -Modellen	[-]
$c_d$	Widerstandskoeffizient einer Blase	[-]
$C$	Bodenabstand des Rührers	[m]
$d_{10}$	mittlerer Blasendurchmesser	[m]
$d_{32}$	Sauterdurchmesser	[m]
$d_b$	Blasendurchmesser	[m]
$D$	Rührerdurchmesser	[m]
$D$	Verdünnungsrate	[1/s]
$D_{eff}$	effektiver turbulenter Dispersionskoeffizient	[m <sup>2</sup> /s]
$D_L$	molekularer Diffusionskoeffizient in der Flüssigphase	[m <sup>2</sup> /s]
$D_n$	numerischer Dispersionskoeffizient	[m <sup>2</sup> /s]
$F$	Volumenstrom	[m <sup>3</sup> /s]
$F_E$	axialer Austauschvolumenstrom im Kompartimentmodell	[m <sup>3</sup> /s]
$g$	Erdbeschleunigung	[m]
$H$	Füllstandshöhe	[m]
$H$	Henry-Koeffizient	[bar]
$H_i$	Höhe einer Rührerstufe in Mehrfachrührersystemen	[m]
$i_\varphi, i_r, i_z$	Index der finiten Volumen in $\varphi$ -, $r$ -, $z$ -Richtung	[-]
$k$	turbulente kinetische Energie	[m <sup>2</sup> /s <sup>2</sup> ]
$k_L$	Stoffübergangskoeffizient	[m/s]
$k_{La}$	volumenbezogener Stoffübergangskoeffizient	[1/s]
$K$	Dämpfungskonstante	[1/s]
$K_i$	Halbsättigungskonstante in der Monod-Kinetik	[mol/m <sup>3</sup> ] bzw. [kg/m <sup>3</sup> ]
$K_E$	Parameter im Kompartimentmodell	[-]
$l_k$	Kolmogorofflänge	[m]
$I$	Inhomogenität	[-]
$n$	Rührerdrehzahl	[1/s]
$\dot{n}$	Stoffstrom	[mol/s] bzw. [kg/s]
$n_\varphi, n_r, n_z$	Anzahl finite Volumen in $\varphi$ -, $r$ -, $z$ -Richtung	[-]
$n_k$	Anzahl Blasenklassen	[-]
$n_K$	Anzahl finite Volumen	[-]

$n_R$	Anzahl Rührer	[-]
$N$	Kesselzahl in der Rührkesselkaskade	[-]
$p$	Druck	[Pa]
$P$	Rührleistung	[W]
$P_k$	Produktionsrate der turbulenten kinetischen Energie	[m <sup>2</sup> /s <sup>3</sup> ]
$q$	relative Anzahlhäufigkeit	[-]
$q_i$	spezifische Reaktionsrate der Komponente $i$	[1/s]
$Q_i$	Reaktionsrate der Komponente $i$	[mol/(m <sup>3</sup> s)], [kg/(m <sup>3</sup> s)]
$Q_G$	Belüftungsrate	[m <sup>3</sup> /s]
$Q_L$	Flüssigkeitspumpkapazität des Rührers	[m <sup>3</sup> /s]
$r$	radiale Koordinate	[m]
$R$	allgemeine Gaskonstante	[J/(mol K)]
$s$	Rührerblatthöhe	[m]
$S$	Rührerabstand	[m]
$Sc$	Schmidt-Zahl	[-]
$Sc_t$	turbulente Schmidt-Zahl	[-]
$t$	Zeit	[s]
$t_c$	Zirkulationszeit	[s]
$t_m$	Mischzeit	[s]
$T$	Temperatur	[K]
$T$	Reaktordurchmesser	[m]
$u_G^0$	Gasleerrohrgeschwindigkeit	[m/s]
$u_i$	Hauptgeschwindigkeitskomponente	[m/s]
$u_k$	charakteristische Geschwindigkeit	[m/s]
$u_{tip}$	Rührerumfangsgeschwindigkeit	[m/s]
$V$	Volumen	[m <sup>3</sup> ]
$V_m$	Molvolumen	[m <sup>3</sup> mol <sup>-1</sup> ]
$V_T$	Flüssigkeitsvolumen im Reaktor	[m <sup>3</sup> ]
$x$	Ortskoordinate	[m]
$y$	Molenbruch in der Gasphase	[-]
$Y$	Ausbeutekoeffizient	[-]
$z$	axiale Koordinate	[m]

### Griechische Buchstaben

$\delta$	Kronecker-Symbol	
$ \Delta u $	Relativgeschwindigkeit Gas-/Flüssigphase	[m/s]
$\epsilon$	Energiedissipationsrate	[m <sup>2</sup> /s <sup>3</sup> ]
$\epsilon_G$	Volumenanteil der Gasphase	[-]

$\mu$	spezifische Wachstumsrate	[1/s]
$\mu$	dynamische Viskosität	[Pa s]
$\nu_{eff}$	effektive Wirbelviskosität = $\nu_L + \nu_t$	[m <sup>2</sup> /s]
$\nu_L$	kinematische Zähigkeit	[m <sup>2</sup> /s]
$\nu_t$	Wirbelviskosität	[m <sup>2</sup> /s]
$\varphi$	Umfangskoordinate	[rad]
$\rho$	Dichte	[kg/m <sup>3</sup> ]
$\sigma$	Oberflächenspannung	[N/m]
$\theta$	mittlere Verweilzeit	[s]
$\tau$	Zeitskala	[s]
$\tau_{ij}$	laminarer Spannungstensor	

## Indizes

$\infty$	im vollständig vermischten Zustand
0	zum Zeitpunkt $t = 0$ , im unbegasteten Zustand
$Ac$	Acetoin
$Bu$	Butandiol
$F$	im Zulauf
$G$	in der Gasphase, im begasteten Zustand
$i$	Index der Ortskoordinate $i = r, z, \varphi$
$L$	in der Flüssigphase
$O_2$	Sauerstoff
$P$	Produkt (Äthanol)
$S$	Substrat
$T$	Spurstoff
$X$	Biomasse

## Dimensionslose Kennzahlen

$Fl$	Belüftungskennzahl, $Fl = Q_G / (n D^3)$
$Ne$	Leistungskennzahl, Newton-Zahl, $Ne = P / (\rho n^3 D^5)$
$N_{QL}$	Pumpkennzahl, $N_{QL} = Q_L / (n D^3)$
$Re$	Reynolds-Zahl einer Blase, $Re = (\rho_L  \Delta u  d_b) / \mu_L$
$Sc$	Schmidt-Zahl $Sc = \nu_L / D_L$
$Sc_t$	turbulente Schmidt-Zahl, $Sc_t = \nu_{eff} / D_{eff}$
$We$	Weber-Zahl, $We = (\rho_L  \Delta u ^2 d_b) / \sigma$



## Zusammenfassung

Rührkesselreaktoren werden in chemischen und biotechnischen Produktionsprozessen vielfältig eingesetzt. Für biotechnische Stoffumwandlungen sind sie neben Schlaufen- und Blasensäulenreaktoren der wichtigste Standardapparat. Trotz der komplexen Strömungsverhältnisse und der mit zunehmendem Reaktionsvolumen immer ausgeprägteren Gradienten in den Konzentrationen der Reaktionskomponenten basieren quantitative Analysen bisher häufig auf der Annahme idealer Durchmischung. Diese Annahme ist jedoch insbesondere dann unzulässig, wenn die charakteristischen Zeiten der Stoffumsetzung kleiner oder nicht wesentlich größer als die Mischzeit sind.

Erste Versuche, den Einfluss der nicht idealen Durchmischung auf Stoffumsetzungen zu erfassen, blieben auf die Abbildung der großräumigen Strömungsstrukturen in einfachen, aus der Reaktionstechnik bekannten Ersatzmodellen wie Rezirkulationszeit- und Kompartimentmodellen beschränkt. Im Laufe der vergangenen zwanzig Jahre haben jedoch die rasante Zunahme der verfügbaren Rechenleistung und die Entwicklung effizienter numerischer Methoden die Voraussetzungen für die detaillierte Simulation der turbulenten Zweiphasenströmung und der darin ablaufenden Stoffumsetzungen geschaffen. Die Integration der Werkzeuge zur Gittergenerierung, Modellierung und Simulation sowie Nachbearbeitung und Darstellung der Ergebnisse in kommerziellen Programmpaketen unter dem Oberbegriff Computational Fluid Dynamics (CFD) hat zu einer zunehmenden Verbreitung dieser Vorgehensweise auch im industriellen Umfeld geführt. Während sich zahlreiche Arbeiten mit der Simulation der einphasigen Strömungsverhältnisse in verschiedenen Rührkesselkonfigurationen befassen, sind Untersuchungen der zweiphasigen Strömung, insbesondere in Verbindung mit der Betrachtung von Stoffumsetzungen, noch relativ selten. Dabei kann die Simulation der während einer Stoffumsetzung auftretenden Konzentrationsverteilungen einen wichtigen Beitrag zur Auslegung und Optimierung von Prozessen in Rührkesselreaktoren liefern.

Für die Simulation der Stoffumsetzungen wird in der vorliegenden Arbeit ein Mittelweg zwischen Komplexität und praktischer Anwendbarkeit gewählt. Dieser besteht zunächst in der Entkopplung der Simulation von Fluiddynamik und Stoffumsetzung, was neben einem deutlich reduzierten Berechnungsaufwand den Vorteil hat, dass zum Teil auf bereits vorhandene stationäre Strömungsfelder zurückgegriffen werden kann. Diese ergeben sich aus der Lösung von Kontinuitätsgleichung und Impulsbilanzen (Reynolds-Gleichungen) zusammen mit einem modifizierten Chen-Kim- $k-\epsilon$ -Turbulenzmodell. Die Strömung im Rührer wird nicht räumlich aufgelöst, sondern mit Hilfe von umfangs- und zeitgemittelten Hauptgeschwindigkeiten modelliert. Es wird eine Euler'sche Beschreibung beider Phasen vorgenommen. Simulationen der Gas-/Flüssigkeitsströmung in Mehrfachrührersystemen werden vereinfachend mit einem *algebraic-slip*-Ansatz durchgeführt.

Im Zentrum der Arbeit stehen Simulationen von biotechnischen Stoffumsetzungen in unbegasteten und begasteten Rührkesselreaktoren. Zunächst wird jedoch das Durchmischungsverhalten in Standardrührkesselreaktoren und Mehrfachrührersystemen mit radial bzw. axial fördernden Rührern

anhand der Simulation von Pulsexperimenten untersucht. Die Ergebnisse im Einfachrührersystem unterstreichen die Notwendigkeit von Simulationen mit dreidimensionaler Ortsdiskretisierung wegen des entscheidenden Einflusses der Vermischung in Umfangsrichtung. Aus den Vergleichen zwischen Simulationen und experimentellen Beobachtungen aus dem Schrifttum lässt sich eine bemerkenswerte Sensitivität der Mischvorgänge bezüglich der gewählten Turbulenzmodelle erkennen. In Mehrfachrührersystemen wird der Mischprozess durch die Intensität der axialen Durchmischung dominiert, weshalb der Auswahl geeigneter Rührertypen besondere Bedeutung zukommt. Die Hauptschwierigkeit bei der Simulation besteht hier in der quantitativ richtigen Beschreibung des Stoffaustauschs zwischen den sich ausbildenden Strömungskompartimenten.

Anhand der Simulation quasistationärer Substratverteilungen während einer Fermentation der Hefe *Saccharomyces cerevisiae* im Zulaufverfahren wird beispielhaft der Einfluss verschiedener Rührerkombinationen und Betriebsparameter auf die entstehenden Konzentrationsgradienten und die Bildung eines unerwünschten Nebenprodukts in Mehrfachrührersystemen untersucht. Wird die in der Regel hochkonzentrierte Kohlenstoff- und Energiequelle dem Reaktor an nur einem Zulaufort zugeführt, ist nur bei Verwendung von Axialrührern eine mehr oder weniger gleichmäßige Substratverteilung möglich. Die für die Sauerstoffversorgung der Mikroorganismen notwendige intensive Dispergierung der Gasphase erfordert jedoch die Verwendung zumindest einer Rushton-Turbine oder eines vergleichbaren Rührers. Die zusätzliche Betrachtung der Sauerstoffkonzentrationsverteilungen auf der Basis zweiphasiger Strömungsfelder zeigt, dass die verbesserte axiale Vermischung mit einer größeren Gefahr von Sauerstofflimitierungen erkauft wird. Mit Hilfe der Simulationen können kritische Prozesssituationen erkannt werden, um für diese bei sehr vielen biotechnischen Produktionsprozessen relevanten Fragestellungen Verbesserungsvorschläge zu erarbeiten. Ein Beispiel hierfür ist die Bestimmung eines optimalen Zulaufortes bzw. einer verteilten Zugabe des Substrats.

Es ist bekannt, dass lokale Sauerstofflimitierungen das Produktspektrum einer biotechnischen Stoffumsetzung beeinflussen können. Dies wird am Beispiel des Produktverhältnisses von Acetoin und Butandiol in einem absatzweisen Prozess mit *Bacillus subtilis* dargestellt. Als Ausblick auf zukünftige Anwendungen von CFD in der Bioreaktionstechnik wird schliesslich die Kopplung eines komplexen metabolisch strukturierten Modells von *Saccharomyces cerevisiae* mit der Fluidodynamik vorgenommen.

Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Untersuchungen zeigen Möglichkeiten auf, wie CFD-Simulationen auch unter Berücksichtigung einiger vereinfachender Annahmen zur Analyse und Vorausberechnung biotechnischer Stoffumsetzungen in Rührkesselreaktoren eingesetzt werden können. Verbesserungen auf dem Gebiet der Strömungssimulation (detaillierte, auch zweiphasige Simulation der Rührwerksströmung, verbesserte Modelle für die Zweiphasenströmung) und der eingesetzten reaktionskinetischen Modelle werden den prädiktiven Charakter der Simulationen zukünftig weiter vergrößern.

## Abstract

Stirred tank reactors (STR) are widely used in chemical and biotechnical industries to carry out a variety of process operations. Examples are the suspension of solids, blending of immiscible liquids, and dispersion of gases in a liquid phase, all in the presence of (bio)chemical reactions. For biotechnical conversion processes, the STR is the most important type of reactor. It is a well known fact, that gradients of involved reactants occurring in the complex flow field of a stirred tank reactor increase with increasing reaction volume. Despite this knowledge, quantitative analysis of conversion has usually been based on empirical correlations only, with neither including nor providing any localized information. The underlying assumption of an ideally mixed tank volume fails, if the characteristic conversion times are smaller than or in the same order of magnitude as the mixing time.

First attempts to consider the influence of incomplete mixing on conversion have been limited to simple reactor flow models known from reaction engineering, like e.g. recirculation time models and compartment models. However, due to their necessity to rely on experimentally determined, scale-dependent parameters, these models were not able to gain much importance in practical use. During the last two decades, the immense increase of available computing power and the advances made in the development of efficient numerical methods have substantially improved the conditions for more detailed simulations of turbulent flow and conversion based on solving the balance equations in a three-dimensional framework. The availability of efficient tools for preprocessing (grid generation), simulation, and postprocessing in commercial software packages has led to the wide-spread use of Computational Fluid Dynamics (CFD) also in the process industries.

Over the last years, a lot of work has been published on CFD simulations of single-phase flow in different stirred tank configurations. Only a few authors treated systems of two phase flow with or without reaction, although the simulation of the concentration gradients during conversion processes in stirred tank reactors can make an important contribution to process analysis, design, and optimization. For this reason, the present work focussed on development and application of methods for simulations of bioconversion in gassed and ungassed stirred tank reactors.

A trade-off between maximum complexity and practical applicability was chosen. Fluid flow (momentum balance equations) and conversion (material balance equations) were simulated separately under the assumption that effects of mass transfer and reaction on the flow field are negligible. In addition to a significant reduction of computational effort, this approach allows the use of stationary flow fields for dynamic simulations of conversion. Thus, single-phase flow fields result from simultaneously solving the continuity equations and Reynolds-averaged Navier-Stokes equations together with a modified Chen-Kim  $k-\epsilon$  turbulence model. Circumferentially-averaged and time-averaged experimental data were used as stirrer boundary conditions. Two-phase flow was modelled in an Eulerian way. For the simulations of multiple impeller systems, an algebraic slip

approach was used.

Mixing properties of single and multiple impeller systems with different combinations of radially and axially pumping impellers were analyzed with simulations of tracer pulse experiments. Simulation results stressed a significant influence of circumferential concentration gradients on mixing times in single impeller systems. A comparison of simulated and measured tracer pulse responses exhibited a strong sensitivity of mixing simulations to turbulence modelling. In multiple impeller systems, the axial material transport showed a decisive influence on mixing time. This finding indicates that much care should be taken in the choice of a most suitable impeller combination. Numerical simulations also showed some difficulties in the exact quantitative description of exchange flows between stirrer compartments.

To study the influence of different stirrer combinations and operating conditions on concentration gradients and undesired byproduct formation in multiple impeller systems, simulations of substrate distributions during fed batch fermentations of the yeast *Saccharomyces cerevisiae* were performed. If the highly concentrated carbon and energy source was introduced into the tank at a single position, its approximate equidistribution in the reactor could be achieved only when using axially pumping impellers. However, a sufficient oxygen supply to the suspended microorganisms requires an intensive dispersion of the gas phase introduced at the sparger with at least one Rushton turbine (or a similar impeller with comparable gas dispersing capabilities). Better macromixing with axial flow impellers resulted in a more pronounced risk of oxygen limitation, especially in the rather stagnant region between the liquid surface and the uppermost impeller. This finding was concluded from simulations of oxygen distribution in two-phase flow fields. The application of the simulations to process optimization was demonstrated with the example of the minimization of byproduct formation with an optimal feeding position of the substrate.

It is well-known that oxygen limitation may influence the product spectrum of a bioconversion. In this study, experimental results of different product ratios of acetoin and butanediol as a consequence of oxygen limitations during batch fermentations of *Bacillus subtilis* could be reproduced with simulations of the process under different operating conditions. The feasibility of coupling CFD with complex metabolically structured models was shown exemplarily with the example of a glucose pulse experiment in a continuous culture of *Saccharomyces cerevisiae* under anaerobic conditions.

The primary purpose of this work was to develop methods for applying CFD simulations to the analysis, design, and scale-up of biotechnical conversion processes in stirred tank reactors taking into account reasonable simplifying model assumptions. Future improvement of the models and numerical methods used in CFD (more detailed simulations of single and two phase impeller flow, improved modelling of interphase coupling, bubble size distribution and turbulence, improved kinetic models of conversion), will further increase the predictive character of conversion process simulations in stirred tank reactors.

# 1 Einführung und Zielsetzung der Arbeit

Das Mischen von Stoffen ist eine der wichtigsten verfahrenstechnischen Grundoperationen. Sehr oft liegen die beteiligten Stoffe dabei in unterschiedlichen Phasen vor und es ist darüber hinaus eine reaktionstechnische Umsetzung beteiligt. Zur Realisierung des Mischvorgangs wurden unterschiedlichste Apparate entwickelt, unter denen der Rührkesselreaktor einer der in der gesamten Prozessindustrie am weitesten verbreiteten ist. Typische Anwendungsgebiete von Rührkesselreaktoren sind das Suspendieren von Feststoffen, das Mischen zweier flüssiger Komponenten oder das Dispergieren einer Gasphase in Flüssigkeiten. Insbesondere im Bereich der biotechnischen Produktion ist der Rührkesselreaktor neben Blasensäulen- und Schlaufenreaktoren der wichtigste Standardapparat. Beispiele für industriell bedeutende biotechnische Produktionsprozesse in Rührkesselreaktoren sind die Herstellung von Antibiotika, Aminosäuren, Enzymen und Vitaminen sowie auch die tierische Zellkulturtechnik. Die dabei eingesetzten Rührkesselreaktoren erreichen Volumina von mehreren hundert Kubikmetern. Die zum Mischen erforderliche Energie wird über einen oder mehrere Rührer eingetragen. Entsprechend der vom Rührer erzeugten Hauptströmungsrichtung wird zwischen Axial- und Radialrührern unterschieden. Die wichtigsten Vertreter dieser beiden Klassen sind der Schrägblattrührer als Axialrührer und der häufig auch als Rushton-Turbine bezeichnete Standardscheibenrührer als Radialrührer (s. Abb. 33). Ausgehend von diesen beiden Grundtypen steht eine Vielzahl von Weiterentwicklungen zur Verfügung, die sich unter anderem hinsichtlich ihrer Eignung für Flüssigkeiten unterschiedlicher Viskositäten und ihres Verhaltens bei Begasung unterscheiden (s. z.B. [95]).

Trotz der offensichtlich komplexen Strömungsverhältnisse wird bei der quantitativen Beschreibung der Prozesse in Rührkesselreaktoren häufig idealisierend vom Zustand der vollständigen Vermischung ausgegangen, obwohl diese stark vereinfachende Annahme aufgrund der komplexen Interaktionen von Strömung, Stofftransport und Reaktion sicher nur in den wenigsten Fällen gerechtfertigt ist. Gründe für diese Vorgehensweise sind unter anderem in den lange Zeit fehlenden Möglichkeiten zur experimentellen Untersuchung und detaillierten Modellierung und Simulation der realen Strömungsverhältnisse zu suchen. Erste Versuche, den Einfluss der nicht idealen Durchmischung auf Stoffumsetzungen zu erfassen, beruhen auf der Abbildung der großräumigen Strömungsstrukturen in einfachen, aus der Reaktionstechnik bekannten Ersatzmodellen. Diese Modellstrukturen lassen sich im Wesentlichen den beiden Gruppen der Rezirkulationsmodelle und der Kompartimentmodelle zuordnen.

Rezirkulationsmodelle [56], [137], [66], [80], [5] fassen die Frequenzen, mit denen das Fluid durch den Rührer zirkuliert, in einer Rezirkulationszeitverteilung zusammen. Da der nach einer Passage des Rührers vergangene Zeitraum nicht einem konkreten Ort zugeordnet werden kann, ist im zweiphasigen Fall keine Kopplung mit dem aufgrund der ebenfalls partiell rezirkulierten Gasphase ortsabhängigen Stofftransport möglich.

Ein Kompartimentmodell [121], [99], [4], [122], [102], [84] beruht auf der Einteilung des Rührkessels in durch Austauschströme miteinander verbundene Volumenbereiche. Auch hier bereitet die Kopplung unterschiedlicher Kompartimentstrukturen für Gas- und Flüssigphase erhebliche Schwierigkeiten. Durchaus tauglich sind derartige Modellstrukturen aber beispielsweise für die Mischzeitsimulation in Mehrfachrührersystemen [31], [135].

In den zusammenfassenden Darstellungen [108] und [109] wird die bioreaktionstechnische Anwendung der genannten Modellstrukturen ausführlich diskutiert. Ein gemeinsamer Nachteil aller Ersatzmodelle ist ihre Abhängigkeit von experimentell zu ermittelnden, in vielen Fällen zusätzlich von Betriebsbedingungen, Reaktortyp und -maßstab beeinflussten Parametern. Wegen der daraus resultierenden stark eingeschränkten Tauglichkeit für prädiktive Aufgabenstellungen haben Ersatzmodelle in der industriellen Anwendung keine weite Verbreitung gefunden.

Die konsequente Weiterführung der Kompartimentierung führt auf die Ortsdiskretisierung des gesamten Rührkesselreaktors und die detaillierte Simulation der Strömungsverhältnisse basierend auf der Lösung der Impulsbilanzen zusammen mit einem Turbulenzmodell. Werden zusätzlich die Transportgleichungen der an der Stoffumsetzung beteiligten Komponenten gelöst, so erhält man als Ergebnis neben den Strömungsfeldern zeit- und ortsabhängige Konzentrationsverteilungen, aus denen sich alle zur Vorausberechnung eines Prozesses erforderlichen Informationen extrahieren lassen. Diese, mit dem Oberbegriff Computational Fluid Dynamics (CFD) bezeichnete Vorgehensweise, ist im Laufe der vergangenen zwanzig Jahre durch die rasante Zunahme der verfügbaren Rechenleistung sowie die Weiterentwicklung der numerischen Methoden ermöglicht worden. Gleichzeitig erlauben moderne experimentelle Methoden einen immer detaillierteren Abgleich der Simulationsergebnisse mit den realen Verhältnissen im Rührkessel. Die Integration von numerischen Algorithmen, Gittergenerierung und zahlreichen Ansätzen, beispielsweise für Turbulenzmodellierung und Mehrphasenströmung, in kommerziellen Programmpaketen macht CFD auch in der verfahrenstechnischen Industrie zu einem in zunehmendem Maße bei der Prozessauslegung und -optimierung eingesetzten Werkzeug [40], [18]. Der Rührkesselreaktor ist dabei eine der Standardanwendungen zur Entwicklung und Erprobung neuer Methoden und Werkzeuge. Eine Herausforderung ist in diesem Zusammenhang insbesondere die Handhabung der gegeneinander rotierenden Bezugssysteme des Rührers und des mit Strombrechern bewehrten Rührkesselmantels bzw. -bodens. Während die klassische Vorgehensweise in der Behandlung des Rührers als *black box* und der Vorgabe gemessener umfangs- und zeitgemittelter Geschwindigkeiten und/oder Turbulenzgrößen an deren Oberfläche besteht, erlauben verfeinerte Methoden die geometrische Auflösung der Strömung im und um den Rührer. Dabei muss zwischen stationären (*snapshot*-, *multiple-reference-frames*-, *inner-outer*-Methode) und instationären Berechnungen (*sliding-mesh*-, *clicking-grid*-, *moving-grid*-Methode) unterschieden werden. Eine weitere wichtige Fragestellung betrifft die Turbulenzmodellierung. Während in den meisten Fällen Reynoldsmittelung der Navier-Stokes-Gleichungen und verschiedene Varianten der  $k$ - $\epsilon$ -Turbulenzmodelle zur Anwendung kommen, wird in einigen neueren Arbeiten versucht, die Strömungsvorgänge bis auf die Größenord-

nung des turbulenten Makromaßstabs hinab aufzulösen (*large-eddy-Simulation*).

Wegen des erheblich größeren Modellierungs- und Berechnungsaufwands gibt es auf dem Gebiet des begasten Rührkesselreaktors und der Kopplung der Fluidodynamik mit Stofftransport und Reaktion vergleichsweise wenige Arbeiten. Hier stellt sich zunächst die Frage, wie detailliert die Modellierung auf Seiten von Strömung bzw. Reaktionskinetik überhaupt erfolgen muss, um eine konkrete Aufgabenstellung bei der Prozessauslegung zu bearbeiten. So sind beispielsweise die instationären periodischen Vorgänge im relativ eng begrenzten Rührerbereich für eine im Wesentlichen von der großräumigen Makrovermischung beeinflussten Stoffumsetzung von untergeordneter Bedeutung. Eine weitere wesentliche Reduktion des Berechnungsaufwands kann durch die Entkopplung der Simulation von Fluidodynamik und Stoffumsetzung erreicht werden. Voraussetzung dafür ist, dass die Stoffumsetzung keine oder nur vernachlässigbare Rückwirkungen auf die Strömungsverhältnisse hat und der Strömungszustand daher näherungsweise als stationär betrachtet werden kann. Die gekoppelte Lösung von Impuls- und Stoffbilanzen würde in einem solchen Fall einen unsinnigen Berechnungsaufwand bedeuten. Für den überwiegenden Teil der bedeutsamen biotechnischen Stoffumsetzungen sind die Voraussetzungen für eine entkoppelte Betrachtung von Strömung und Stoffumsetzung erfüllt. Bei der Beurteilung der Ergebnisse ist auch zu beachten, dass deren Fehler vom schlechtesten der verwendeten Modelle dominiert wird, so dass eine ausgeglichene Komplexität auf allen Modellierungsebenen erstrebenswert ist.

Auch auf Seiten der Stoffumsetzung existieren Modelle ganz unterschiedlichen Detaillierungsgrads. Im Bereich der Bioreaktionstechnik stehen hier sehr detaillierte metabolisch strukturierte Modelle einfachen unstrukturierten Ansätzen gegenüber, die lediglich das makroskopische Verhalten einer Gesamtpopulation von Mikroorganismen quantitativ beschreiben.

Gegenüber der bei der Prozessauslegung und bei der Maßstabsvergrößerung in vielen Fällen immer noch üblichen Vorgehensweise unter Beibehaltung verschiedener scale-up-Kriterien wie dem spezifischen Leistungseintrag, der Rührerumfangsgeschwindigkeit, dem integralen  $k_L a$ -Wert oder der Mischzeit, stellt jede Einbeziehung realer fluiddynamischer Gegebenheiten einen Fortschritt dar. Die Zielsetzung der vorliegenden Arbeit besteht daher in der Entwicklung und Untersuchung von Methoden zur Simulation von Stoffumsetzungen in Rührkesselreaktoren, die hinsichtlich ihrer Komplexität einen Kompromiss zwischen dem aktuell möglichen maximalen Detaillierungsgrad und einer mit vertretbarem Berechnungsaufwand praktischen Anwendbarkeit darstellen. Die untersuchten Stoffumsetzungen betreffen biotechnisch bedeutsame Fragestellungen wie die Verteilung von Substraten bei Prozessen im Zulaufverfahren, die Sauerstoffversorgung während eines aeroben Prozesses sowie den Einfluss der Konzentrationsgradienten auf das Produktspektrum. Ein steigender Bedarf an detaillierten, quantitativen Methoden zur Vorausberechnung der Konzentrationsverteilungen im Rührkesselreaktor ergibt sich aus den erhöhten Anforderungen an Produktqualität (z.B. Pharmaproteine, Aminosäuren), Selektivitäten und Raum-Zeit-Ausbeute (z.B. Hochzelldichtefermentationen). Die Simulationen können hier durch die Untersuchung von Geometrie- und Pro-

zessführungsvarianten am Computer einen wichtigen Beitrag zur Prozessauslegung liefern. Beispiele sind die Simulation verschiedener Rührergeometrien oder -anordnungen, Rührerdrehzahlen, Belüftungsraten oder Zufütterungsstrategien und ihrer Auswirkungen auf das Gesamtergebnis, also beispielsweise die gebildete Produktmenge, einer Stoffumsetzung. Notwendige experimentelle Untersuchungen können gezielter geplant und ihre Anzahl reduziert werden. Die anschauliche Darstellung der Vorgänge im Rührkessel führt darüber hinaus zu einem vertieften Prozessverständnis.

Die im Rahmen dieser Arbeit verfolgte Modellierung beruht auf der getrennten Simulation von Fluiddynamik und Stoffumsetzung. Modellierung und Simulation der Fluiddynamik folgen der von Jenne [59] vorgeschlagenen Vorgehensweise und sind in Kap. 3 beschrieben. Es werden experimentelle, umfangs- und zeitgemittelte Hauptgeschwindigkeiten als Rührerrandbedingung vorgegeben. Die Turbulenzmodellierung erfolgt mit einem modifizierten Chen-Kim- $k$ - $\epsilon$ -Modell. Zur Beschreibung der Bewegung der dispergierten Gasphase wird die Euler'sche Darstellung gewählt. Wegen der sehr grossen Rechenzeiten bei der Simulation der zweiphasigen Strömung in Mehrfachrührersystemen wird zusätzlich ein vereinfachter *algebraic-slip*-Ansatz untersucht. Die bei der Simulation der Stoffumsetzungen zum Einsatz kommenden Modelle werden in Kap. 4 dargestellt.

Die für die verschiedenen stationären und instationären, räumlich zwei- und dreidimensionalen Simulationen verwendeten Werkzeuge und numerischen Methoden sind in Kap. 5 zusammengefasst und bewertet.

Als Testfall und einfachste Form der Simulation von Stoffbilanzen werden in Kap. 6 Pulsexperimente in Rührkesselreaktoren in Standardkonfiguration, d.h. mit nur einer Rushton-Turbine, untersucht. Der Hauptteil der Arbeit konzentriert sich jedoch auf die Simulation der in der biotechnischen Produktion üblicherweise eingesetzten Mehrfachrührersysteme (Kap. 7). Auch hier erfolgt zunächst die Charakterisierung des Durchmischungsverhaltens anhand von Pulsexperimenten. Besonders die Simulation der Reaktoren mit mehrfachen Rushton-Turbinen stellt wegen der starken Kompartimentierung der Strömung bereits erhöhte Anforderungen an die Simulation (s. Kap. 7.1.1). In Kap. 7.1.3 folgt eine Darstellung der Auswirkungen der von unterschiedlichen Kombinationen radial bzw. axial fördernder Rührer induzierten großräumigen Strömungsstrukturen auf eine Fermentation der Hefe *Saccharomyces cerevisiae*. Die dabei gewonnenen Erkenntnisse können als repräsentativ für eine Vielzahl von biotechnischen Prozessen im Zulaufverfahren angesehen werden.

In Kap. 7.2 wird basierend auf zweiphasigen Strömungsfeldern zusätzlich der Einfluss der Durchmischung auf die Sauerstoffversorgung im begasten Rührkesselreaktor untersucht. Die Abhängigkeit des Produktspektrums und damit der Selektivität der Stoffumsetzung von lokalen Sauerstoffkonzentrationen wird anhand eines absatzweisen Prozesses mit *Bacillus subtilis* beispielhaft dargestellt (Kap. 7.2.4). Als Ausblick auf zukünftige Anwendungen ist schliesslich die Kopplung eines komplexen metabolisch strukturierten Modells mit der Fluiddynamik in Kap. 7.2.5 zu betrachten.



## 2 Stand des Wissens

Im Zentrum der vorliegenden Arbeit steht die CFD-Simulation biotechnischer Stoffumsetzungen in ein- und zweiphasig durchströmten Rührkesselreaktoren und somit die Lösung der aus den reaktionskinetischen Modellen der untersuchten Stoffumsetzungen gebildeten Stoffbilanzen. Da diese ihre fluiddynamischen Parameter jedoch direkt aus Ergebnissen der detaillierten Simulation der ein- und zweiphasigen Strömungsverhältnisse beziehen, berücksichtigt der folgende Überblick über den Stand des Wissens auch aktuelle Arbeiten auf diesem Gebiet. Neben den fluiddynamischen Simulationen beruht das Gesamtmodell der Stoffumsetzungen zusätzlich auf Ansätzen für den Stoffübergang von der Gas- in die Flüssigphase sowie den reaktionskinetischen Modellen selbst. Da jedoch im Rahmen dieser Arbeit auf den beiden genannten Gebieten keine eigene Modellbildung durchgeführt, sondern auf aus der Literatur bekannte Modelle zurück gegriffen wird, sei für eine genauere Diskussion dieser Themenbereiche auf die zitierten Originalpublikationen verwiesen.

Einen ausführlichen Überblick über die für die Simulation der Strömungsverhältnisse in Rührkesselreaktoren relevanten Arbeiten bis 1995 liefert Jenne [59]. Im Folgenden werden daher nur neuere Arbeiten auf diesem Gebiet kurz diskutiert. Zusätzlich berücksichtigt sind insbesondere auch diejenigen Arbeiten, die sich mit von der Rushton-Turbine abweichenden Rührergeometrien befassen. In den letzten Jahren wurden zahlreiche Veröffentlichungen bekannt, die sich mit der detaillierten Simulation der Strömung im Rührer befassen, wobei zur Verifizierung der Ergebnisse auf immer detailliertere, die Rührwerksströmung zeitlich und räumlich auflösende Messergebnisse zurückgegriffen werden kann. In diesem Zusammenhang sind die Arbeiten von Zhou und Kresta [144] (Rushton-Turbine, Schrägblattrührer und Lightnin A 310), Schäfer et al. (Rushton-Turbine [118] und Schrägblattrührer [119]), Derksen et al. [32] (Rushton-Turbine) und Lee und Yianneskis [73] (Rushton-Turbine) zu nennen. In den Simulationen kommen sowohl stationäre (*snapshot*-Methode, *multiple-reference-frames*-Methode, *inner-outer*-Methode) als auch instationäre (*sliding-mesh*-, *moving-grid*- oder *clicking-grid*-Methode) Methoden zur Anwendung. Für eine genauere Beschreibung sei auf die im Folgenden zitierten Publikationen verwiesen.

Verschiedene Autoren führen einen direkten Vergleich der verschiedenen Methoden zur Modellierung des Rührers anhand eines Anwendungsfalls durch [23], [38], [141]. Zwei Arbeiten befassen sich mit *large-eddy*-Simulationen der turbulenten Strömung im Rührkessel und können daher auf die sonst übliche Reynoldsmittelung der Navier-Stokes-Gleichungen verzichten. Die Methoden mit geometrischer Auflösung des Rührers und ohne die Verwendung experimenteller Randbedingungen erlauben die Simulation beliebiger Rührergeometrien, was einen weiteren Schwerpunkt der neueren Arbeiten darstellt. Zunehmend werden auch Rührkesselreaktoren mit den praxisrelevanten Mehrfachrührersystemen untersucht. Aber auch die lange Zeit übliche Vorgehensweise unter Verwendung experimentell ermittelter, umfangs- und zeitgemittelter Randbedingungen am Rührer (*black-box*-Methode) liegt weiterhin zahlreichen Simulationen der Strömungsverhältnisse

in Rührkesselreaktoren zugrunde. Einen Überblick liefert Tab. 1, in die zusätzlich einige ältere Arbeiten aufgenommen sind, die die Simulation von Durchmischung oder Reaktion zum Inhalt haben.

## 2.1 Strömungssimulation

Ranade und Van den Akker [107] stellen eine Simulation der zweiphasigen Strömungsverhältnisse im Rührkesselreaktor unter Verwendung des *two-fluid*-Modells vor. Als Turbulenzmodell kommt das Standard- $k$ - $\epsilon$ -Modell zum Einsatz. Zur Rührermodellierung wird die stationäre *snapshot*-Methode auf das zweiphasige System übertragen.

Fokema et al. [36] führen Simulationen eines Rührkesselreaktors mit einem Schrägblattrührer unter Verwendung experimenteller Rührerrandbedingungen und eines Standard- $k$ - $\epsilon$ -Modells durch. Bei Variation des Bodenabstands des Rührers führt die Simulation aber nur dann zu qualitativ richtigen Strömungsfeldern, wenn die Messung der Rührerrandbedingungen in einer entsprechenden Reaktorgeometrie durchgeführt wurde. Der Bodenabstand der Schrägblattrührer beeinflusst also das Ausflussprofil. Im Gegensatz zu den Ergebnissen von Jenne [59] betonen Fokema et al., dass unbedingt auch Randbedingungen für die Turbulenzgrößen erforderlich sind.

Bakker et al. [7] simulieren die laminare und turbulente Strömung in einem Standardrührkessel mit einem Schrägblattrührer. Die stationäre Simulation beruht auf der Vorgabe experimentell ermittelter Werte von Hauptgeschwindigkeiten und Turbulenzgrößen als Rührerrandbedingung sowie einem Vergleich von Standard- $k$ - $\epsilon$ -, RNG- $k$ - $\epsilon$ - und Reynoldsspannungs-Turbulenzmodell. Die Ergebnisse werden mit LDA- bzw. PIV-Messungen verglichen. Alle drei Turbulenzmodelle führen auf sehr ähnliche Ergebnisse. Abweichungen zwischen gemessenen und simulierten Geschwindigkeiten ergeben sich insbesondere im Bereich des großräumigen Wirbels unterhalb des Rührers. Die Aufsummierung der simulierten Energiedissipation ergibt nur zwischen 50 und 60 Prozent der gemessenen eingetragenen Leistung. Als einer der Gründe dafür werden die in den Momentaufnahmen des Strömungsfeldes mit PIV erkennbaren großräumigen Fluktuationen, die von der stationären Simulation nicht erfasst werden können, genannt. Als zweiter Grund wird die bei der verwendeten Rührermodellierung nicht auflösbare Strömungsstruktur im Rührerbereich angegeben.

Ranade und Dommeti [105] stellen Simulationen eines Rührkesselreaktors mit Schrägblattrührer nach der *snapshot*-Methode und unter Verwendung eines Standard- $k$ - $\epsilon$ -Modells vor. Die Ergebnisse dieser stationären Simulationen, die keine experimentellen Randbedingungen benötigen, weisen eine zufriedenstellende Übereinstimmung mit den von Ranade und Joshi [106] gemessenen Daten auf. Der integrale Leistungseintrag ist im Vergleich zum Experiment um ca. 22 % zu niedrig. Mit derselben Modellierung berechnet Ranade [103] auch die turbulente Strömung im Rührkessel mit

Autoren	Jahr	Rührerkonfiguration	Rührermodellierung	Bemerkung
<b>reine Strömungssimulation</b>				
Ranade und van den Akker [107]	1994	Rushton-Turbine	snapshot	zweiphasig
Fokema et al. [36]	1994	Schräglattrührer	experimentell	
Bakker et al. [7]	1996	Schräglattrührer	experimentell	
Ranade und Dommeti [105]	1996	Schräglattrührer	snapshot	laminare Strömung
Harvey und Rogers [52]	1996	Rushton-Turbine, Schräglattrührer	snapshot, moving grid	laminare Strömung
Harvey [53]	1997	4 Schräglattrührer	snapshot	
Götz et al. [41]	1997	Schräglattrührer	Impulsquelle	
Ranade [103]	1997	Rushton-Turbine	snapshot	
Jaworski et al. [58]	1997	Rushton-Turbine	sliding-mesh	
Jaworski et al. [57]	1998	3 APV-B2-Hydrofoil	experimentell	
Ng et al. [93]	1998	Rushton-Turbine	sliding-mesh	
Naude et al. [91]	1998	LUMPP LB-Propeller	multiple-reference-frames	
Brucato et al. [23]	1998	Rushton-Turbine	inner-outer, sliding-mesh	
Revstedt et al. [111]	1998	Rushton-Turbine	Impulsquelle	large eddy Simulation
Ranade et al. [104]	1999	Rushton-Turbine	snapshot	zweiphasig
Micale et al. [85]	1999	2 Rushton-Turbinen	inner-outer, sliding-mesh	
Wechsler et al. [141]	1999	Schräglattrührer	snapshot, clicking-grid	
Derksen und van den Akker [33]	1999	Rushton-Turbine	Impulsquelle	large eddy Simulation, lattice-Boltzmann-Formulierung
<b>auch Simulation von Durchmischung oder Reaktion</b>				
Middleton et al. [86]	1986	Rushton-Turbine	experimentell	mit chem. Reaktion
Trägårdh [132]	1988	3 Rushton-Turbinen	Impulsquelle	zweiphasig, axialsymmetrisch, mit Bioreaktion
Morud und Hjertager [90]	1993	Rushton-Turbine	Impulsquelle	zweiphasig, axialsymmetrisch, mit Bioreaktion
Lunden [77]	1995	Rushton-Turbine	experimentell	Pulseexperimente
Mann et al. [81]	1997	Schräglattrührer, A320	experimentell	Pulseexperiment und Farbreaktion
Smith [123]	1997	1 Radial u. 1 Axialrührer	experimentell	Durchmischung mit particle tracking
Lu et al. [76]	1997	Rushton-Turbine	experimentell	zweiphasig, Pulseexperimente
Friberg [38]	1998	1 und 4 Rushton-Turbinen	snapshot, sliding mesh	zweiphasig, mit Bioreaktion
Brucato et al. [24]	2000	Rushton-Turbine	experimentell	mit chem. Reaktion

Tabelle 1: Publikationen zur fluidynamischen Simulation von Strömung und/oder Stoffumsetzung in Rührkesselreaktoren.

einer Rushton-Turbine. Dabei können insbesondere auch Pumpkapazität und Leistungseintrag mit geringem Fehler vorhergesagt werden.

Harvey und Rogers [52] simulieren die laminare Strömung in einem Rührkesselreaktor mit Rushton-Turbine bzw. Schrägblattrührer mit einem *snapshot*-Ansatz. Es wird vorgeschlagen, die Ergebnisse der stationären Simulation bei Bedarf als Startwerte für instationäre Simulationen zu nutzen. Diese Vorgehensweise wird anhand einer *moving-grid*-Simulation des Rührkessels mit Rushton-Turbine vorgestellt. Die instationären Simulationen werden wegen der grossen Rechenzeiten allerdings nicht bis zum Erreichen des periodisch stationären Zustands durchgeführt. In einer weiteren Arbeit untersuchen Harvey et al. [53] mit der *snapshot*-Methode die wiederum laminare Strömung in einem mit Maissirup gefüllten Rührkessel mit vier Schrägblattrührern unterschiedlichen Durchmessers. Dabei wird für verschiedene Kombinationen von Rührerdurchmessern und Rührerabständen der Einfluss auf die grossräumige Strömungsstruktur untersucht und eine zufriedenstellende Übereinstimmung mit gemessenen Geschwindigkeiten erzielt.

Götz et al. [41] simulieren einen Rührkessel mit einem Schrägblattrührer. Der Rührer wird als umfangsgemittelte Impulsquelle abgebildet, die Turbulenzmodellierung erfolgt mit dem Standard- $k$ - $\epsilon$ -Modell.

Jaworski et al. [57] simulieren Rührkesselreaktoren mit ein, zwei und drei axial aufwärts bzw. abwärts fördernden APV-B2-Hydrofoil Rührern. Als Rührerandbedingung werden umfangsgemittelte LDA-Daten für Hauptgeschwindigkeiten und turbulente kinetische Energie verwendet, die Turbulenzmodellierung erfolgt mit einem RNG- $k$ - $\epsilon$ -Modell. Versuche, die komplexe Rührergeometrie in einer *sliding-mesh*-Simulation abzubilden, scheitern an Schwierigkeiten bei der Generierung eines brauchbaren strukturierten Gitters. Auch mit den Axialrührern ergeben Simulation sowie Mischexperimente mittels Entfärbetechnik eine relativ schlechte axiale Durchmischung. Jaworski et al. [57] empfehlen als Abhilfe eine Reduktion des Rührerabstands. Bereits in einer früheren Arbeit führen Jaworski et al. [58] *sliding-mesh*-Simulationen eines Rührkessels mit Rushton-Turbine durch.

Ng et al. [93] berichten über *sliding-mesh*-Simulationen der turbulenten Strömungsverhältnisse in einem Standardrührkesselreaktor. Unter Verwendung eines Standard- $k$ - $\epsilon$ -Modells wird nach zwanzig simulierten Rührerumdrehungen eine periodisch stationäre Lösung erreicht. Der Vergleich mit detaillierten, winkelaufgelösten LDA-Messungen zeigt nach Gitterverfeinerung im Bereich des Rührers eine recht gute Übereinstimmung der Hauptgeschwindigkeiten. Deutliche Abweichungen ergeben sich bei der turbulenten kinetischen Energie in der Nähe der Rührerblätter. Als mögliche Gründe für diese bisher bei allen *sliding-mesh*-Simulationen von Rushton-Turbinen auftretenden Fehler werden die Verwendung des Standard- $k$ - $\epsilon$ -Modells in der eigentlich anisotropen Strömung im Rührerausfluss und eine evtl. fehlerhafte Anwendung der logarithmischen Wandgesetze in Rührerblattnähe genannt.

Naude et al. [91] simulieren einen Rührkessel mit einem LUMPP LB-Propellerrührer. Dabei wird abweichend von der üblichen Vorgehensweise mit hexaedrischen Diskretisierungselementen ein unstrukturiertes Tetraedergitter verwendet. Die Simulationen werden mit der stationären *multiple-reference-frames*-Methode unter Verwendung eines RNG- $k$ - $\epsilon$ -Modells durchgeführt. Die simulierten Hauptgeschwindigkeiten weisen eine maximale Abweichung von 30 % von gemessenen Werten auf und der volumengemittelte Leistungseintrag aus der Simulation ist um ca. 25 % zu niedrig. Als vermutlicher Grund für diese Abweichungen wird eine starke Abhängigkeit der Ergebnisse von der Qualität des unstrukturierten Gitters genannt.

Brucato et al. [23] führen eine vergleichende Studie zur Simulation der Strömung im Standardrührkesselreaktor mit experimentellen Rührerrandbedingungen, der sog. *inner-outer*-Methode (iterative stationäre Simulation zweier sich überschneidender Gitterbereiche [22]) und der *sliding-mesh*-Methode durch. In allen Fällen wird das Standard- $k$ - $\epsilon$ -Modell verwendet. Mit der *sliding-mesh*-Methode wird die beste Übereinstimmung der Hauptgeschwindigkeiten mit gemessenen Werten erreicht, mit den experimentellen Randbedingungen die schlechteste. Allerdings werden diese aus einer Mittelung zwischen den Daten verschiedener Autoren gewonnen und es werden auch Werte für  $k$  und  $\epsilon$  vorgegeben, was die wesentliche Ursache für die Abweichungen darstellen dürfte. Auch Brucato et al. erhalten bei den *inner-outer*- und *sliding-mesh*-Simulationen deutlich zu niedrige Werte für die turbulente kinetische Energie im Rührerbereich. Die Wirbelschleppen können nicht richtig berechnet werden. Auf dem von Brucato et al. als ausreichend fein betrachteten Gitter werden mit der *inner-outer*-Methode eine Leistungskennzahl von 4,2 und eine Pumpkennziffer von 0,65 berechnet. Mit allen drei Methoden werden auch Simulationen des von Rutherford et al. [117] vermessenen Zweifachrührersystems durchgeführt [85]. Dabei werden die je nach Positionierung der Rührer verschiedenen experimentell beobachteten großräumigen Strömungsstrukturen mit der *inner-outer*- und der *sliding-mesh*-Methode qualitativ gut wiedergegeben. Bei Verwendung der experimentellen Randbedingungen von Wu und Patterson [142] werden neben den Turbulenzgrößen auch alle drei Geschwindigkeitskomponenten am Rührer fixiert, so dass eine axiale Ablenkung der Strömung im Rührerbereich natürlich nicht berechnet werden kann. Bei konvergierender und divergierender Strömung (s. Rutherford et al. [117]) wird die axiale Ablenkung des Rührerausflusses beider bzw. des unteren Rührers allerdings in jedem Fall überschätzt. Brucato et al. führen dies auf die bekannten Schwächen des verwendeten Standard- $k$ - $\epsilon$ -Modells zurück.

Ranade et al. [104] berichten über detaillierte Simulationen der zweiphasigen Umströmung eines einzelnen Rührerblatts. Wirbelschleppen und Gaspolster hinter dem Rührerblatt können mit den Euler/Euler-Simulationen unter Verwendung des Standard- $k$ - $\epsilon$ -Modells wiedergegeben werden. Bei der Simulation des gesamten Rührkesselreaktors mit der quasistationären *snapshot*-Methode reicht die Gitterauflösung allerdings nicht zur Berechnung der Wirbelschleppen aus und führt infolgedessen auch zu falschen Ergebnissen für den Gasgehalt im Rührerbereich.

Wechsler et al. [141] simulieren die Strömung in einem Rührkessel mit einem Schrägblattrührer

und vergleichen instationäre Berechnungen mit einer *clicking-grid*-Methode (Zeitschritte werden so gewählt, dass sich an der Grenzfläche zwischen rotierendem und festem Block immer zwei finite Volumen direkt gegenüber liegen) und stationäre Berechnungen mit einer *multiple-reference-frames*-Methode (Relativbewegung Rührer/Strombrecher wird vernachlässigt). Die Ergebnisse aus stationärer und instationärer Simulation stimmen sehr gut überein, so dass alle weiteren Betrachtungen anhand der stationären Methode erfolgen. Die Validierung der Simulationen wird anhand der detaillierten LDA-Messungen von Schäfer et al. [119] durchgeführt, wobei insbesondere auch die Gitterabhängigkeit der Lösungen betont wird. Abweichungen zwischen Experiment und Simulation ergeben sich im Rührerausfluss des Schrägblattrührers, wo eine insgesamt zu hohe Pumpkapazität berechnet wird. Ein Grund könnte die Annahme unendlich dünner Rührerblätter sein. Auch in den Simulationen von Wechsler et al. wird allerdings die turbulente kinetische Energie im Rührerbereich zu niedrig vorhergesagt. Die Wirbelschleppen an den Rührerblättern werden hingegen mit guter Übereinstimmung mit dem Experiment berechnet.

Derksen und van den Akker [33] stellen *large-eddy*-Simulationen eines Standardrührkessels mit Rushton-Turbinen vor. Die Navier-Stokes Gleichungen werden in einer *lattice-Boltzmann*-Formulierung diskretisiert. In den instationären Simulationen wird die Wirkung von Rührer, Wänden und Strombrechern durch Umrechnung vorgegebener Geschwindigkeiten in auf die Flüssigkeit wirkende Kräfte realisiert („*force-field*-Methode“). Einige Abweichungen der berechneten Hauptgeschwindigkeiten und turbulenten kinetischen Energie im Rührerausfluss von den Messwerten von Wu und Patterson [142] bzw. Derksen et al. [32] werden auf das Fehlen von Wandgesetzen an den Oberflächen der Rührerblätter im verwendeten *subgrid-scale*-Modell und auf noch nicht ausreichende Gitterauflösung zurückgeführt. Form und Lage der Wirbelschleppen an den Rührerblättern der Rushton-Turbine werden erstmals in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Befunden berechnet. Der Vergleich mit experimentellen Daten wird allerdings für alle Größen nur für den rührernahen Bereich durchgeführt.

Auch Revstedt et al. [111] und Revstedt [110] zeigen *large-eddy*-Simulationen von Rührkesselreaktoren. Dabei werden neben Rushton-Turbinen auch zwei verschiedene radial bzw. axial fördernde Rührer untersucht. Im Detail werden die Ergebnisse allerdings nur für die Rushton-Turbine dargestellt. Der Rührer wird ausgehend von der vorgegebenen Leistungskennzahl als Momentenquelle modelliert. Im Gegensatz zu Derksen und van den Akker [33] diskretisiert Revstedt die Bilanzgleichungen in üblicher Weise mit finiten Volumen.

Eine mögliche Fehlerquelle in den zweiphasigen Simulationen ist auch bei Verwendung der *two-fluid*-Modellierung die Annahme eines einzigen repräsentativen, die Widerstandscharakteristik der Gasphase bestimmenden Blasendurchmessers. In diesem Zusammenhang bietet die detaillierte zweiphasige Simulation der Rührwerksströmung das Potential zur Simulation der Blaszerteilung am dispergierenden Rührer. Derartige Simulationen erfordern dann aber zusätzlich die Berücksichtigung der Blasengrößenverteilung im gesamten Reaktor. Wegen des immensen Rechenaufwands,

aber auch wegen fehlender Ansätze für die Strömungswiderstandskraft der verschieden großen Blasen sowie für Koaleszenz und Redispergierung in Abhängigkeit vom Stoffsystem, sind solche populationsdynamischen Modellierungen in Verbindung mit fluiddynamischen Simulationen zunächst sicher nur in vereinfachter Form möglich. Eine Möglichkeit zur vereinfachten Berücksichtigung eines nicht konstanten Blasendurchmessers ist die von Bakker und van den Akker [8] vorgeschlagene Vorgehensweise. Basierend auf einer einphasigen Simulation mit reduzierter Pumpkapazität und einem *algebraic-slip*-Ansatz werden das Geschwindigkeitsfeld der Gasphase und der lokale Gasgehalt berechnet. Dabei wird mit einem auf einer Analogie zur kinetischen Gastheorie beruhenden Koaleszenzmodell ein ortsabhängiger mittlerer Blasendurchmesser berechnet. Eine vergleichbare Methode stellt die von Millies und Mewes [87] vorgestellte Berechnung des mittleren Blasenvolumens als eine vereinfachte Lösung der Blasenpopulationsbilanz dar.

Bei der Simulation einer Stoffumsetzung im zweiphasigen System ist zumindest bei der Berechnung des Stoffübergangs von der Gas- in die Flüssigphase die Berücksichtigung einer realen Blasengrößenverteilung wünschenswert. Die einfachste Methode, dies zu gewährleisten, ist die Unterscheidung zwischen dem für den Strömungswiderstand entscheidenden mittleren Blasendurchmesser  $d_{10}$  und dem für den Stoffübergang ausschlaggebenden Sauterdurchmesser  $d_{32}$ . Das Verhältnis der beiden Durchmesser kann aus gemessenen Blasengrößenverteilungen ermittelt werden (z.B. [12]).

### 2.1.1 Experimentelle Beobachtungen in Mehrfachrührersystemen

Bei der Simulation von Mehrfachrührersystemen besteht wegen der gegenseitigen Beeinflussung der Rührer eine gegenüber dem Einfachrührersystem noch erhöhte Sensitivität bezüglich der richtigen Modellierung von Rührwerksströmung und Turbulenz. Eine Simulation der Strömungsverhältnisse muss daher zunächst einmal in der Lage sein, die Form der großräumigen Strömungsstrukturen qualitativ richtig wiederzugeben. Dazu können unter anderem die folgenden, rein experimentellen Arbeiten wichtige Hinweise liefern.

Baudou et al. [17] führen LDA-Messungen zur großräumigen Strömungsstruktur in Rührkesselreaktoren mit zwei und drei axial fördernden TT Mixel Rührern und  $H = 2T$  durch. Ein Rührerabstand von  $2/3 T$  erweist sich dabei bei zwei Rührern als die Grenze zwischen einem großräumigen Wirbel und zwei unabhängigen Wirbelsystemen. Über dem oberen Rührer wird eine schlecht durchmischte Zone beobachtet. Auch Bittorf und Kresta [19] beobachten, dass in einem Standardrührkessel ( $H/T = 1$ ) mit ganz unterschiedlichen Axialrührern unter üblichen Betriebsbedingungen nur ca. zwei Drittel des Gesamtvolumens an der großräumigen Zirkulation teilnehmen. Die schlecht durchmischte Zone oberhalb des oberen Axialrührers kann insbesondere dann zum Problem werden, wenn dieser sich gegen Ende eines Fed-Batch-Prozess weit unterhalb der Flüssigkeitsoberfläche befindet.

Umfangreiche Messungen der Gasphasenströmung in einem dem in Kapitel 7.2 untersuchten Dreifachrührersystem ähnlichen Rührkessel werden von Manikowski et al. [79] mit einer Ultraschall-Doppler-Technik durchgeführt. Dabei wird neben einer Konfiguration mit drei Rushton-Turbinen auch eine Kombination einer Rushton-Turbine mit zwei A315-Hydrofoil Axialrührern betrachtet und der Einfluss von Rührerdrehzahl und Viskosität auf das Strömungsfeld und die Verweilzeitverteilung der Gasphase untersucht. Für beide Rührerkombinationen wird eine starke Kompartimentierung von Gas- und Flüssigphase beobachtet. Gasblasen werden in erheblichem Maße rezirkuliert, was zu einer relativ breiten Verweilzeitverteilung führt. Überraschenderweise ist auch bei Verwendung der Axialrührer eine starke Kompartimentierung zu verzeichnen und es werden unterhalb der Axialrührer in Reaktormitte aufsteigende Gasblasen beobachtet. Die A315-Rührer sind unter Begasung offensichtlich nicht in der Lage, eine rein axial-tangentiale Strömung zu induzieren.

Rutherford et al. [117] führen umfangreiche LDA-Messungen der einphasigen Strömungsverhältnisse in einem Rührkesselreaktor mit zwei Rushton-Turbinen durch und untersuchen dabei neben der detaillierten Strömung in Rührerblattnähe insbesondere den Einfluss des Abstands der beiden Rührer sowie des Bodenabstands des unteren Rührers auf die sich ausbildende großräumige Strömungsstruktur. Es werden drei mögliche Strukturen beobachtet: (1) Parallele Strömung bei ausreichend großem Boden- und Rührerabstand. Die Rührer arbeiten unabhängig voneinander mit streng radialem Rührerausfluss und Wirbeln ober- und unterhalb der Einzelrührer. (2) Konvergierende Strömung bei kleinerem Rührerabstand. Die Rührerausflüsse sind in axialer Richtung aufeinander zu abgelenkt und vereinigen sich in der Mitte, so dass sich je Rührer nur ein großer Wirbel ausbildet. Diese Strömungsstruktur bedingt eine verbesserte axiale Vermischung und einen reduzierten Leistungseintrag im Vergleich zur parallelen Strömung ( $Ne = 8,4$  bzw.  $10,0$ ). (3) Divergierende Strömung bei geringem Bodenabstand. Der Rührerausfluss des bodennahen Rührers ist nach unten abgelenkt und es bildet sich nur ein grosser Wirbel über und ein sehr kleiner Sekundärwirbel unter dem Rührerausfluss aus. Die von Rutherford et al. experimentell beobachteten Strömungsstrukturen können sehr gut zur qualitativen Kontrolle simulierter Strömungsfelder in Rührkesseln mit mehrfachen Rushton-Turbinen herangezogen werden.

## 2.2 Berücksichtigung von Durchmischung oder Reaktion

Bereits in der ersten Publikation zur dreidimensionalen Simulation der Strömung im Standardrührkesselreaktor mit einer Rushton-Turbine untersuchen Middleton et al. [86] den Einfluss der Makrovermischung auf die konkurrierende Folgereaktion



$$k_1 \gg k_2$$



Es wird gezeigt, dass die Abhängigkeit der Selektivität von der Rührerdrehzahl allein durch den Einfluss der Makrovermischung modelliert werden kann. Dagegen lässt sich die Selektivität weder mit Leistungseintrag, Rührerumfangsgeschwindigkeit noch Mischzeit korrelieren.

Brucato et al. [24] wählen eine der in der vorliegenden Arbeit verwendeten Methode sehr ähnliche Vorgehensweise zur Simulation der Parallelreaktion



$$k_1 \gg k_2$$

Die Simulation der Stoffumsetzung erfolgt entkoppelt auf einem stationären, dreidimensionalen Strömungsfeld. Experimentell ermittelte Selektivitäten von  $P_2$  weisen eine starke Abhängigkeit von der Rührerdrehzahl und damit von der Durchmischung im Rührkessel auf, die mit den Simulationen sehr gut vorausberechnet werden kann. Brucato et al. weisen darauf hin, dass dies allein anhand der Simulation der Makrovermischung und unter der Annahme ideal durchmischter finiter Volumen möglich sei, obwohl auch häufig versucht werde, die Selektivität des Reaktionspaars mit Phänomenen der Mikrovermischung zu erklären.

Trägårdh [132] berichtet von Simulationen einer Fed-Batch-Fermentation von Hefe in einem Bioreaktor mit drei Rushton-Turbinen. Die zweiphasige Strömung wird dabei axialsymmetrisch und mit einem *algebraic-slip*-Modell berechnet. Die Turbulenzmodellierung erfolgt mit dem Standard- $k$ - $\epsilon$ -Modell. Die Simulation der Stoffumsetzung wird entkoppelt von der Fluidodynamik durchgeführt.

Auch Morud und Hjertager [90] simulieren eine Hefe-Fermentation im Rührkesselreaktor entkoppelt von der Fluidodynamik. Die zweiphasige Strömung wird dabei in zweidimensionaler Auflösung mit dem *two-fluid*-Modell simuliert. Die Rushton-Turbine wird als Impulsquelle modelliert. Die berechneten lokalen Gasgehalte weichen erheblich von den experimentellen Befunden ab.

Lunden [77] führt unter Verwendung eines Standard- $k$ - $\epsilon$ -Modells und unter Vorgabe experimentell ermittelter, umfangs- und zeitgemittelter Rührerrandbedingungen (*swirling radial jet*-Modell von Kresta und Wood [69] bzw. Daten von Wu und Patterson [142]) für Hauptgeschwindigkeiten und Turbulenzgrößen Simulationen der Strömungsverhältnisse in einem Standard-Rührkesselreaktor mit einer Rushton-Turbine durch. Obwohl sich insbesondere für radiale und tangentielle Hauptgeschwindigkeiten signifikante Abweichungen zwischen experimentell ermittelten und simulierten Hauptgeschwindigkeiten ergeben, werden auf den stationären Strömungsfeldern auch umfangreiche Simulationen zum Durchmischungsverhalten durchgeführt [78]. Lunden et al. untersuchen dabei den Einfluss verschiedener Kombinationen von Puls- und Messorten auf die Simulation des Verlaufs der Inhomogenität (Landau und Prochazka [70], Gl. 29) in einem Pulsexperiment. Aus dem Vergleich mit realen Pulsexperimenten, in denen mit Leitfähigkeitssonden gearbeitet wird, werden Empfehlungen für die Platzierung der Messsonden für eine realistische Bestimmung der

Inhomogenität abgeleitet. Die Autoren heben insbesondere die Bedeutung des Pulsortes und der daraus resultierenden mehr oder weniger guten Vermischung in tangentialer Richtung auf den Verlauf der Inhomogenität und damit die Dauer des Mischvorgangs hervor. Aus einem Puls an einer Umfangsposition in die Rührzone bzw. auf die Oberfläche in Wandnähe ergeben sich drei mal größere Mischzeiten als für einen zentralen Puls unter dem Rührer.

Mann et al. [81] simulieren die Strömungsverhältnisse in einem Rührkessel mit einem Schrägblatt- und einem Lightnin A320-Rührer. Dabei kommen mit LDA gemessene experimentelle Rührer-randbedingungen und das Standard-k- $\epsilon$ -Modell zum Einsatz. Auf dem Strömungsfeld wird die Vermischung eines inerten Spurstoffs und eine Indikatorreaktion mit gleichzeitiger Zugabe der beiden Reaktanden an verschiedenen Orten simuliert. Der mit dieser Reaktion einhergehende Farbumschlag erlaubt auch die Visualisierung der Umsetzung. Es wird auf die schlechte Vermischung in Umfangsrichtung, insbesondere mit dem A320-Rührer, hingewiesen. Außerdem wird die Segregation von der CFD-Simulation überschätzt. Als mögliche Ursachen werden Fehler bei der Annahme von  $Sc_t = 0,7$  und eventuelle Micromixing-Effekte genannt.

Smith [123] schlägt zur Beschreibung der Durchmischung ein Lagrange'sches *particle-tracking*-Modell vor. Er stellt als Anwendungsbeispiel eine axialsymmetrische Simulation des Anfahrvorgangs in einem Rührkessel mit einem Axial- und einem Radialrührer (Standard-k- $\epsilon$ -Modell, aus der Pumpkapazität berechnete, vorgegebene Geschwindigkeiten an den Rührern) vor, die mit der Verfolgung von 4800 Partikeln gekoppelt wird. Die Partikel bewegen sich in radialer Richtung schlupffrei, in axialer Richtung mit einer überlagerten Sinkgeschwindigkeit im Strömungsfeld, auf das sie keine Rückwirkung haben.

Lu et al. [76] nutzen bei der Strömungssimulation eine Vereinfachung der Vorgehensweise von Bakker und van den Akker [8], um den Einfluss der Strombrechergeometrie auf die Mischzeit in einem begasten Rührkesselreaktor mit Rushton-Turbinen zu untersuchen. Die Strömungsgeschwindigkeiten der Flüssigphase werden einphasig simuliert, anschliessend aber global entsprechend

$$\frac{u_{i,L,begast}}{u_{i,L,0}} = \left( \frac{P_G}{P_0} \right)^\beta \quad (5)$$

reduziert. Die für die Mischzeitsimulationen benötigten Flüssig-Volumenströme unter begasten Bedingungen werden mit den  $u_{i,L,begast}$  und gemessenen lokalen Gasgehalten berechnet. Der Exponent  $\beta$  wird an gemessene Mischzeiten angepasst.

Friberg [38] führt in seiner Dissertation Simulationen einer aeroben Fermentation von *E. coli* in dem auch in dieser Arbeit (s. Kap. 7.1) untersuchten Vierfachrührersystem basierend auf dem unstrukturierten kinetischen Modell von Xu et al. [143] durch. Diese werden auf einem zeitgemittelten, stationären Strömungsfeld aus einer zweiphasigen Strömungssimulation durchgeführt. Leider sind die Angaben bezüglich der zugrunde liegenden Modellierung bei der Simulation der Fluidynamik ungenau. Im Vergleich mit den realen Fermentationen ergibt sich jedoch ein zu

sehr zur Überflutung des Rührers neigender Strömungszustand und ein zu niedriger Gasgehalt. Bei den ebenfalls dargestellten ein- und zweiphasigen Simulationen eines Standardrührkessels vergleicht Friberg experimentelle Rührerrandbedingungen, *snapshot*-Methode und *sliding-mesh*-Methode und erhält im einphasigen Fall mit der *sliding-mesh*-Methode die beste Übereinstimmung mit experimentellen Daten. Allerdings zeigen sich auch dabei noch erhebliche Abweichungen, die zum Teil sicher auch auf das verwendete relativ grobe Gitter (17680 finite Volumen) zurückzuführen sind. Es wird das Chen-Kim- $k$ - $\epsilon$ -Turbulenzmodell, im zweiphasigen Fall mit Berücksichtigung blaseninduzierter Turbulenz, verwendet. In den zweiphasigen Simulationen wird nur ein mittlerer, repräsentativer Blasendurchmesser in Abhängigkeit von der Energiedissipationsrate berechnet. Es ist nicht klar, ob dieser Blasendurchmesser mit den lokalen Werten der Energiedissipationsrate  $\epsilon$  oder deren Mittelwert über den gesamten Reaktor berechnet wird. Auch bei den Phasenwechselwirkungskräften ist nicht eindeutig zu entnehmen, welche in den Simulationen letztlich zur Anwendung kommen. Die simulierten Hauptgeschwindigkeiten in der Gasphase weisen jedoch eine bessere Übereinstimmung mit den experimentellen Werten als in der Flüssigphase auf. Die lokale Verteilung des insgesamt sehr niedrigen Gasgehalts (integraler Gasgehalt  $\bar{\epsilon} \approx 1\%$ ) wird nicht experimentell verifiziert.

Bei entsprechenden reaktionskinetischen Gegebenheiten kann ein Einfluss von Effekten der Mikrovermischung (s. [10]) auf den Verlauf der Reaktion in der turbulenten Strömung nicht ausgeschlossen werden. Bei der Simulation einer Stoffumsetzung im Rührkesselreaktor muss dann eine Kopplung der CFD-Simulation der Stoffbilanzen (Makrovermischung) mit einer Modellvorstellung für die lokale Mikrovermischung gekoppelt werden. Arbeiten zu diesem Thema sind von Bakker und van den Akker [9] und Fox [37] veröffentlicht worden. Beide koppeln eine Lagrange'sche Beschreibung der Mikrovermischung mit einer üblichen Euler'schen Simulation der Strömung.

### 2.2.1 Kompartimentmodelle

Simulationen der Strömungsverhältnisse in Mehrfachrührersystemen stellen im Vergleich zu Einfachrührersystemen erhöhte Anforderungen an Modellierung und Rechenzeit. Aus diesem Grund befassen sich verschiedene Autoren nach wie vor mit der Abbildung der realen Strömungsverhältnisse in Kompartimentmodellen. Um prädiktive Berechnungen zu ermöglichen, wird dabei eine möglichst weitgehende Unabhängigkeit von experimentell zu bestimmenden Parametern angestrebt. Vasconcelos et al. [134] schlagen für die Berechnung der Durchmischung in Rührkesselreaktoren mit mehrfachen Rushton-Turbinen ein aus drei axialen Kompartimenten je Rührer bestehendes Ersatzmodell vor. Als Parameter werden ein Zirkulationsstrom und ein Austauschstrom über die Trennfläche zwischen den Rührerstufen benötigt. Beide werden proportional zur Pumpkapazität des Rührers und in Abhängigkeit vom Durchmesser Verhältnis  $D/T$  berechnet. Im begasten Fall wird ein zusätzlicher, durch die Bewegung der Blasen induzierter axialer Austauschstrom postuliert. Der in den Berechnungen enthaltene Parameter  $k_{ax}$  wird aus der Anpassung an

gemessene Mischzeiten bestimmt. Der Vergleich unterschiedlicher axialer Kompartimentierungen zeigt, dass für die Brauchbarkeit der Modellstruktur entscheidend ist, ob die wesentlichen Stofftransporthindernisse auch in der Struktur des Kompartimentmodells vorhanden sind [2] (s. Kap. 7.1). Spätere Untersuchungen ergeben, dass auch  $k_{ax}$  nur eine sehr geringe Maßstabsabhängigkeit aufweist und in scale-up-Berechnungen in erster Näherung als Funktion von  $D/T$  ausreichend genau bestimmt werden kann [135]. Einfache Abschätzungen zur Maßstabsvergrößerung der axialen Durchmischung sind auf diese Weise also ohne experimentell zu bestimmende Modellparameter möglich.

Cui et al. schlagen eine ganz ähnliche Kompartimentstruktur vor, untersuchen jedoch zusätzlich den Einfluss einer variablen Kompartimentierung in radialer Richtung [31], [138]. Deren Einfluss nimmt mit zunehmender Rühreranzahl stark ab, da die Mischzeit dann beinahe ausschließlich vom axialen Stoffaustausch bestimmt wird (s. Kap. 7.1). Vrabel et al. erweitern den Modellansatz auch auf Kombinationen von Radial- und aufwärts pumpenden Axialrührern [139] und wenden ihn auf die Simulation einer Fermentation von *E. coli* an [140].

### 2.2.2 Experimentelle Untersuchungen zum Einfluss der nicht idealen Durchmischung

Simulationen von Stoffumsetzungen in Rührkesselreaktoren können in den meisten Fällen nur anhand integraler, vergleichsweise leicht messbarer Größen wie Selektivitäten, Produktverhältnissen oder Umsätzen beurteilt werden. Einige der Arbeiten, in denen die Auswirkungen der Durchmischung auf eine biotechnische Stoffumsetzung auch anhand lokal gemessener Konzentrationen diskutiert werden, sind im Anschluss aufgeführt.

Larsson et al. [71] messen die Glucosekonzentration während einer Fed-Batch Fermentation von *Saccharomyces cerevisiae* auf drei verschiedenen Höhen in einem Rührkesselreaktor mit vier Rushton-Turbinen und einem Volumen von bis zu 22 m<sup>3</sup> (entspricht weitgehend der auch in Kap. 7.1 untersuchten Geometrie) für zwei verschiedene Zufütterungsorte. Dabei werden starke axiale Konzentrationsgradienten beobachtet und deren mögliche Auswirkungen auf den Stoffwechsel der Hefezellen diskutiert. Da für die Messungen eine Technik zur schnellen Probenahme zur Verfügung steht (kleinstes Messintervall 0,15 s), werden auch kurzzeitige Fluktuationen der Glucosekonzentration an einem festen Ort festgestellt, die auf die turbulente Schwankungsgeschwindigkeit in der Strömung zurückzuführen sind. Zusätzlich werden Simulationen der Glucoseverteilung beruhend auf einer Monod-Kinetik für die Substrataufnahme und CFD-Simulationen nach der Modellierung von Trägårdh [132] durchgeführt. Die Simulationen ergeben ausgeprägtere axiale Konzentrationsgradienten als die Messungen, wobei nicht klar ist, ob diese Abweichungen auf Fehler bei der Strömungssimulation oder bei der Annahme der Parameter der verwendeten Monod-Kinetik zurückzuführen sind. Es wird jedoch vermutet, dass der axiale Austausch in den Simulationen unterschätzt wird.

Die Arbeiten von Bylund et al. [25] und George et al. [39] zählen zu den wenigen Beiträgen, die sich mit den Auswirkungen von Konzentrationsgradienten in Rührkesselreaktoren im Produktionsmaßstab auf Fermentationen befassen. Bylund et al. untersuchen die Züchtung eines rekombinanten *E. coli* im Zulaufverfahren. Dabei werden Versuche im Labormaßstab mit Fermentationen in einem Rührkesselreaktor mit drei Rushton-Turbinen und einem Volumen von 12 m<sup>3</sup> verglichen. Im großen Reaktor stehen zwei verschiedene Zulauforte (Bereich des unteren Rührers bzw. in der Nähe der Oberfläche) und drei Messpunkte in unterschiedlichen Höhen zur Verfügung. Im Produktionsmaßstab ergibt sich eine gegenüber dem Labormaßstab um 15-20 % verringerte Biomasseausbeute, die auf die erhebliche Acetatbildung im Bereich überkritischer Substratkonzentration in Zulaufnähe zurückzuführen ist. Die gemessenen Glucosekonzentrationen bewegen sich zwischen 5 und 2000 mg/l. Die Biomasseausbeuten mit den beiden untersuchten Zulaufpunkten unterscheiden sich um ca. 5 %, wobei der Zulauf in die vergleichsweise schlecht durchmischte Zone in der Nähe der Oberfläche den schlechteren Wert ergibt. Auswirkungen der Konzentrationsschwankungen im großen Reaktor auf die biomassespezifische Bildungsrate des gewünschten Produktes (ein Pharmaprotein) werden nicht festgestellt.

George et al. [39] untersuchen eine Backhefe-Fermentation in einer Blasensäule mit einem Volumen von 215 m<sup>3</sup>, deren Verhalten auch mit einem aus einem statischen Mischer als Reaktor mit Propfenströmung und einem Rührkessel bestehenden Scale-down-Reaktor untersucht wird. Im Produktionsmaßstab wird eine gegenüber dem Labormaßstab um ca. 7 % reduzierte Biomasseausbeute gefunden. Gleichzeitig wird eine vermehrte Äthanolbildung und eine Zunahme der spezifischen Sauerstoffaufnahme beobachtet.

## 2.3 Bewertung des Schrifttums

Bei der zusammenfassenden Bewertung der neueren Publikationen zur Simulation der Strömungsverhältnisse in Rührkesselreaktoren sind die folgenden Punkte hervorzuheben:

- Die zur Verfügung stehende Rechenleistung sowie die relativ einfache Verfügbarkeit der entsprechenden numerischen Techniken in kommerziellen Programmpaketen hat eine Vielzahl von Arbeiten mit detaillierter Simulation der Strömung im Rührwerk ermöglicht.
- Aufgrund der immer noch sehr großen Rechenzeiten für instationäre Simulationen mit der *sliding-mesh*- bzw. *clicking-grid*-Methode, bei der bis zum Erreichen einer periodisch stationären Lösung mehrere Rührerumdrehungen dynamisch simuliert werden müssen, ist diese Vorgehensweise hinsichtlich ihrer praktischen Anwendung relativ kritisch zu beurteilen.
- Mit stationären Methoden (*snapshot*-, *inner-outer*-, *multiple-reference-frames*-Methode) werden mit sehr viel geringerem Berechnungsaufwand vergleichbar gute Ergebnisse erzielt, so dass diese Art der Rührermodellierung sicher ein Erfolg versprechender Weg ist.

- Nahezu alle Autoren verwenden das Standard- $k$ - $\epsilon$ -Modell zur Turbulenzmodellierung, obwohl seine Anwendung häufig als mögliche Ursache für die falsche Berechnung der turbulenten kinetischen Energie in der Rührzone genannt wird.
- *Large-eddy*-Simulationen sind ein vielversprechender Ansatz zur Vermeidung zahlreicher Probleme bei der Anwendung klassischer Turbulenzmodelle im Rührkesselreaktor.
- Nach wie vor befassen sich nur wenige Arbeiten mit der Simulation der zweiphasigen Strömung.

Allen Arbeiten, die zusätzlich Stofftransport und Reaktion zum Inhalt haben, ist die Entkopplung der Simulation von Strömung und Stoffumsetzung gemein. In den Simulationen der verwendeten stationären Strömungsfelder wird mit Ausnahme der Arbeit von Friberg [38] keine detaillierte Rührwerksmodellierung vorgenommen. In den meisten Fällen sind für eine richtige Berechnung des Einflusses der nicht idealen Durchmischung auf die Stoffumsetzung eben nicht die auf ein relativ kleines Volumen beschränkten detaillierten Strömungsvorgänge im Rührerbereich, sondern die ausreichend genaue Abbildung der großräumigen Strömungsstruktur und der Verteilung der Turbulenzgrößen ausschlaggebend.

### 3 Fluiddynamische Modellierung und Simulation

Modellierung und Simulation der ein- und zweiphasigen Fluiddynamik sind die Grundlagen der im Zentrum dieser Arbeit stehenden Simulation von Stoffumsetzungen in Rührkesselreaktoren. Sie liefern die in den Stoffbilanzen erforderlichen fluiddynamischen Parameter. Im Anschluss sind daher die wesentlichen Merkmale der zugrunde liegenden fluiddynamischen Modellierung zusammengestellt. Die zugehörigen Arbeiten wurden ebenfalls am Institut für Bioverfahrenstechnik durchgeführt und von Jenne [59] umfassend dargestellt. Eine detaillierte Diskussion der die Turbulenzmodellierung betreffenden Aspekte erfolgt auch in [60]. Auch betreffs einer ausführlichen Darstellung der diesbezüglichen Literatur wird auf diese Arbeiten verwiesen. Die in der vorliegenden Arbeit dargestellten Simulationen von Stoffumsetzungen beruhen größtenteils auf den von Jenne [59] durchgeführten Strömungssimulationen. Die reaktionstechnischen Betrachtungen erfordern ergänzende fluiddynamische Simulationen der einphasigen Strömung in weiteren Reaktorgeometrien, die jedoch abgesehen von den notwendigen Gitteranpassungen vollständig auf der von Jenne [59] entwickelten und in Abschnitt 3.1 dargestellten Modellierung beruhen. Für die Simulation zweiphasiger Strömungen wird darüber hinaus eine vereinfachte, auf einem *algebraic-slip*-Ansatz beruhende Berechnungsmethode implementiert und angewendet. Sie wird in Abschnitt 3.2.2 erläutert.

#### 3.1 Unbegaster Rührkesselreaktor

Die einphasigen Strömungsverhältnisse können grundsätzlich aus der exakten Lösung von Kontinuitätsgleichung und Impulsgleichungen (*Navier-Stokes*-Gleichungen) bestimmt werden. Die heute zur Verfügung stehende Rechnerleistung erlaubt jedoch noch keine direkte numerische Simulation komplexerer turbulenter Strömungen auf der Basis eines solchen Systems partieller Differentialgleichungen. Eine Zwischenstellung nehmen die sogenannten *large-eddy*-Simulationen ein. Dabei werden die turbulenten Makrowirbel in Ort und Zeit aufgelöst. Die im Gegensatz zur direkten numerischen Simulation noch notwendigen Modellansätze für die kleinsten Wirbel enthalten dann keine von Geometrie und Strömungsbedingungen abhängigen Parameter mehr. Auch ein solcher Ansatz, den Revstedt [110] auf die Simulation der Strömung und Durchmischung in Rührkesselreaktoren anwendet, erfordert immer noch erhebliche Rechenzeiten. Daher werden die Navier-Stokes-Gleichungen im Rahmen dieser Arbeit entsprechend der momentan in der angewandten numerischen Strömungssimulation üblichen Vorgehensweise durch Einführung einer turbulenten Schwankungsgeschwindigkeit, Zeitmittelung und die Hinzunahme eines geeigneten Turbulenzmodells vereinfacht. Als zeitgemittelte Kontinuitätsgleichung ergibt sich:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i) = 0 \quad (6)$$

Für die zeitgemittelten Impulsbilanzen, häufig auch als *Reynolds*-Gleichungen bezeichnet, bleibt:

$$\frac{\partial(\rho u_i)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u_i u_j)}{\partial x_j} = -\frac{\partial}{\partial x_j} (\tau_{ij} + \rho u'_i u'_j) - \frac{\partial p}{\partial x_i} + \rho g_i \quad (7)$$

Die in Gl. 7 enthaltenen Reynolds-Spannungsterme  $-\rho u'_i u'_j$  werden mit einem Turbulenzmodell approximiert, wobei die Reynolds-Spannungen entsprechend dem Wirbelviskositätsprinzip proportional zu den Deformationsgeschwindigkeiten berechnet werden:

$$-\rho u'_i u'_j = \rho \nu_t \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) - \frac{2}{3} \rho \delta_{ij} k \quad (8)$$

Darin ist die turbulente Wirbelviskosität:

$$\nu_t = c_\mu \frac{k^2}{\epsilon} \quad (9)$$

Diese Vorgehensweise führt auf die Klasse der  $k$ - $\epsilon$ -Turbulenzmodelle. Obwohl für das *Standard*- $k$ - $\epsilon$ -Modell [48] bekannt ist, dass es für Strömungssituationen mit Stromlinienkrümmung oder Wirbelbildung keine zufriedenstellenden Ergebnisse liefert, wird es in Rührkesselsimulationen am häufigsten eingesetzt. Jenne [59] zeigt im Unterschied dazu, dass mit der *Chen-Kim*-Modifikation des Standard- $k$ - $\epsilon$ -Modells [27] eine deutlich bessere Übereinstimmung von Experiment und Simulation erzielt werden kann. Die Modifikation von Chen und Kim trägt dem Nichtgleichgewicht zwischen Erzeugung und Vernichtung von Turbulenz in komplexen turbulenten Strömungssituationen mit starker Krümmung der Stromlinien oder interner Rezirkulation Rechnung. Die Bilanzgleichungen für die turbulente kinetische Energie  $k$  und ihre Dissipationsrate  $\epsilon$  lauten:

$$\frac{\partial(\rho k)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i k) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \rho \frac{\nu_{eff}}{\sigma_{k,S}} \frac{\partial k}{\partial x_i} \right) + \rho (P_k - \epsilon) \quad (10)$$

$$\frac{\partial(\rho \epsilon)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i \epsilon) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \rho \frac{\nu_{eff}}{\sigma_{\epsilon,CK}} \frac{\partial \epsilon}{\partial x_i} \right) + \rho \left( c_{1,CK} \frac{P_k}{\tau_d} + c_{3,CK} \frac{P_k}{\tau_p} - c_{2,CK} \frac{\epsilon}{\tau_d} \right) \quad (11)$$

Die Produktionsrate  $P_k$  der turbulenten kinetischen Energie wird nach dem Wirbelviskositätsprinzip berechnet:

$$P_k = \nu_t \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \quad (12)$$

Auch das *Chen-Kim*- $k$ - $\epsilon$ -Modell liefert letztlich ohne Parameteroptimierung noch keine befriedigenden Ergebnisse. Die beiden Parameter  $c_{1,CK}$  und  $c_{2,CK}$  wurden daher anhand von gemessenen Verteilungen des skalierten Euler'schen Makromaßstabs im Rührerausfluss hinsichtlich des



Parameter	Wert
$c_{\mu,CK}$	0,09
$c_{1,CK}$	1,36
$c_{2,CK}$	1,90
$c_{3,CK}$	0,04
$\sigma_{k,CK}$	0,75
$\sigma_{\epsilon,CK}$	1,15

Tabelle 2: Parameter des optimierten *Chen-Kim-k- $\epsilon$* -Modells

Verhältnisses zwischen Erzeugung und Vernichtung von Turbulenz optimiert [60]. Für Simulationen der turbulenten Strömung im Rührkesselreaktor ergibt sich der in Tabelle 2 angegebene Parametersatz.

Die Modellierung des Rührers erfolgt im Falle der Rushton-Turbine als *radial-tangential-jet*. Dazu werden im vom Rührerblatt überstrichenen Bereich tangentielle, an der radialen Rühreraußenkante radiale umfangsgemittelte Hauptgeschwindigkeiten fest vorgegeben. Die dafür benötigten Geschwindigkeitsprofile werden experimentellen Arbeiten entnommen. Für einen Axialrührer wird anstatt der radialen Hauptgeschwindigkeiten ein radiales Hauptgeschwindigkeitsprofil an der Rührerunterkante vorgegeben. Für die turbulenten Größen  $k$  und  $\epsilon$  werden keine Rührerrandbedingungen benötigt.

Alternative Berechnungsmethoden für die Rührwerksströmung, wie die *sliding-mesh*- oder *multiple-reference-frames*-Methode kommen für die Berechnung der in dieser Arbeit verwendeten fluidynamischen Daten nicht zum Einsatz.

Zur Beschreibung der Reibungseffekte an Behälterwänden und Strombrechern wird das logarithmische Nichtgleichgewichts-Wandgesetz nach Launder und Spalding [72] verwendet. Die in der Realität freie Oberfläche wird vereinfachend als ebene, undurchlässige Platte betrachtet [59].

## 3.2 Begaster Rührkesselreaktor

Die Berechnung der Gas-Flüssigkeitsströmung folgt der Euler'schen Betrachtungsweise mit einer quasikontinuierlichen Gasphase. In dieser Arbeit werden zweiphasige Strömungsfelder aus zwei unterschiedlichen Quellen verwendet:

1. Ergebnisse aus Simulationen des vollständigen Gleichungssystems nach dem *two-fluid*-Ansatz aus der Arbeit von Jenne [59].
2. Ergebnisse der Berechnung der Gasphasenströmung mit einem vereinfachten *algebraic-slip*-

Ansatz (Kap. 3.2.2).

### 3.2.1 Two-fluid-Modellierung

Bei der two fluid-Modellierung wird für beide Phasen ein kompletter Satz vollständiger Impulsbilanzen gelöst. Die Kontinuitätsgleichungen der beiden Phasen lauten:

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_k \epsilon_k) + \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \rho_k \epsilon_k u_{k,i} - \rho_k \frac{\nu_t}{S_{c_t}} \frac{\partial \epsilon_k}{\partial x_i} \right) = 0 \quad k = L, G \quad (13)$$

Für die turbulente Schmidt-Zahl wird  $S_{c_t} = 1,0$  angenommen. Die Impulsbilanz in der Flüssigphase lautet:

$$\begin{aligned} \frac{\partial (\rho_L \epsilon_L u_{L,i})}{\partial t} + \frac{\partial (\rho_L \epsilon_L u_{L,i} u_{L,j})}{\partial x_j} &= -\epsilon_L \frac{\partial}{\partial x_j} (\tau_{L,ij} + \rho_L u'_{L,i} u'_{L,j}) \\ &\quad -\epsilon_L \frac{\partial p}{\partial x_i} + \rho_L \epsilon_L g_i + S_i \end{aligned} \quad (14)$$

Gas- und Flüssigphase werden dabei als inkompressibel betrachtet. Sämtliche Phasenwechselwirkungskräfte sind in  $S_i$  enthalten, von denen allerdings nur die Strömungswiderstandskraft und die virtuelle Trägheitskraft berücksichtigt werden. In der Impulsbilanz der Gasphase fehlen die Reynoldsspannungen, da sich zwischen den selten in direktem Kontakt stehenden Gasblasen keine Spannungen aufbauen können:

$$\frac{\partial (\rho_G \epsilon_G u_{G,i})}{\partial t} + \frac{\partial (\rho_G \epsilon_G u_{G,i} u_{G,j})}{\partial x_j} = -\epsilon_G \frac{\partial p}{\partial x_i} + \rho_G \epsilon_G g_i - S_i \quad (15)$$

Den dominierenden Anteil an der Phasenwechselwirkungskraft  $S_i$  in den Gl. 14 und 15 hat die volumenbezogene Strömungswiderstandskraft  $S_{W,i}$ :

$$S_{W,i} = \epsilon_G \frac{3}{4} c_d \frac{\rho_L}{d_b} |\Delta u| \Delta u_i \quad (16)$$

Von entscheidender Bedeutung sind darin die zur Berechnung von  $c_d$  in Abhängigkeit von Reynolds-, Morton- und Weberzahl sowie vom betrachteten Stoffsystem verwendeten Widerstandsgesetze. Diesbezügliche Details sind ebenfalls [59] zu entnehmen. In den Simulationen wird von einem repräsentativen fluiddynamischen Blasendurchmesser ausgegangen. Die Zunahme des Strömungswiderstands eines Blasenschwarms im Vergleich zur Einzelblase wird durch einen Korrekturfaktor berücksichtigt. Die Modellierung der Turbulenz erfolgt analog zum einphasigen Fall, wobei der effektiven Viskosität ein Term zur Berechnung blaseninduzierter Turbulenz additiv überlagert wird.

Bereich von $Re$ bzw. $We$	$c_d = f(Re, We)$
$Re < 0,49$	$c_d = \frac{24}{Re}$
$0,49 < Re < 100$	$c_d = \frac{20,68}{Re^{0,643}}$
$100 < Re < 717$	$c_d = \frac{6,3}{Re^{0,385}}$
$Re > 717$ und $We < 8$	$c_d = \frac{We}{3}$

Tabelle 3: Modellierung des Widerstandskoeffizienten  $c_d$  im Stoffsystem Leitungswasser/Luft bei 20 °C (aus [59]).

### 3.2.2 Algebraic-slip-Ansatz

Die numerische Lösung des aus dem vollständigen *two-fluid*-Ansatz resultierenden Systems von partiellen Differentialgleichungen erfordert einen im Vergleich zur einphasigen Simulation um ein vielfaches erhöhten Aufwand. Zusätzlich muss eine weitere Verfeinerung des Berechnungsgitters, insbesondere in axialer Richtung, in Kauf genommen werden. Insbesondere bei der Simulation der praxisrelevanten Mehrfachrührersysteme ergeben sich daraus extrem große Rechenzeiten. Als Alternative bietet sich die Lösung einer stark vereinfachten Form der Impulsbilanz der Gasphase an. Werden in der Impulsbilanz der Gasphase (Gl. 15) nur Druckkraft und Strömungswiderstandskraft berücksichtigt, so bleibt mit Gl. 16:

$$0 = \frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{3}{4} c_d \frac{\rho_L}{d_b} |\Delta u| \Delta u_i \quad (17)$$

Entscheidende Bedeutung kommt der Berechnung des Widerstandskoeffizienten  $c_d$  zu. Für die Simulation biotechnischer Stoffumsetzungen müssen Ansätze für elektrolythaltige wässrige Lösungen verwendet werden. In Tab. 3 sind die verwendeten Korrelationen als Funktion von Reynolds- und Weber-Zahl zusammengestellt.

Für den Blasendurchmesser liegt in der Realität an jedem Ort eine Verteilung vor, die in den Simulationen allerdings nur als mittlerer fluiddynamischer Blasendurchmesser  $d_{10}$  berücksichtigt wird. Wenn keine gemessene Blasengrößenverteilung bekannt ist, muss  $d_{10}$  abgeschätzt werden. Calderbank [26] gibt eine Korrelation für den Sauterdurchmesser  $d_{32}$  an:

$$d_{32} = 4,15 \left( \frac{\sigma^{0,6}}{(P_G/V)^{0,4} \rho_L^{0,2}} \right) (\overline{\epsilon}_G)^{0,5} + 0,09 \text{ cm} \quad (18)$$

Aus einer in Form von Blasenklassen gegebenen Blasengrößenverteilung (Anzahl der Blasenklassen =  $n_k$ , relative Anzahlhäufigkeit der Klasse  $i = q_i$ , Blasendurchmesser der Klasse  $i = d_{b,i}$ ) berechnen sich mittlerer Blasendurchmesser  $d_{10}$  und Sauterdurchmesser  $d_{32}$  folgendermaßen:

$$d_{10} = \sum_{i=1}^{n_k} q_i d_{b,i} \quad (19)$$

$$d_{32} = \frac{\sum_{i=1}^{n_k} q_i d_{b,i}^3}{\sum_{i=1}^{n_k} q_i d_{b,i}^2} \quad (20)$$

Da in Gl. 18 auch der mittlere Gasgehalt  $\bar{\epsilon}_G$  eingeht, muss mit dem simulierten mittleren Gasgehalt (Lösung von Gl. 26) iteriert werden. Aus den von Barigou [11] gemessenen Blasengrößenverteilungen lässt sich abschätzen, dass im koaleszenzgehemmten Stoffsystem  $d_{10} \approx 0,59 d_{32}$  ist.

Eine alternative Vorgehensweise geht davon aus, dass die kleinsten Blasen in einem Rührkesselreaktor im starken Scherfeld im Bereich des Wirbelsystems des direkt begasten Rührers erzeugt werden. Auch in einem Mehrfachrührersystem tragen alle weiteren Rührer aufgrund ihrer geringen Gasbelastung sehr wenig zur Dispergierung der Gasphase bei. In einem stark koaleszenzbehindernden Medium kann daher davon ausgegangen werden, dass der am dispergierenden Rührer erzeugte Blasendurchmesser  $d_{b,R}$  im gesamten Reaktorvolumen vorliegt. Dieser Blasendurchmesser kann dann mit einer Beziehung für den maximalen stabilen Blasendurchmesser als Funktion des spezifischen Leistungseintrags  $\bar{\epsilon}_R$  im von den Rührerblättern überstrichenen Bereich abgeschätzt werden. Auch Kresta bzw. Zhou und Kresta [68], [145] schlagen als Resultat ihrer Untersuchungen eine Berechnung des mittleren Blasendurchmessers in Abhängigkeit vom maximalen, und nicht vom mittleren spezifischen Leistungseintrag vor. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird für die Simulationen mit dem *algebraic-slip*-Ansatz der Blasendurchmesser daher nach Gl. 21 berechnet. Diese, ursprünglich von Hinze [55] angegebene Korrelation wird u.a. auch von Bakker und van den Akker [8] in ihren Simulationen der zweiphasigen Strömung in Rührkesselreaktoren verwendet:

$$d_{b,R} = C_b \left( 12 \frac{\sigma}{\rho_L} \right)^{0,6} \bar{\epsilon}_R^{-0,4} \quad (21)$$

Für den Parameter  $C_b$  wird von Bakker [6] anhand des Vergleichs mit den von Greaves und Barigou [42] experimentell ermittelten Blasendurchmessern ein Wert von 0,4 bestimmt.

Nach Einsetzen der Widerstandsgesetze aus Tab. 3 und der Druckgradienten in Gl. 17 ergibt sich ein algebraisches Gleichungssystem zur Berechnung der Relativgeschwindigkeiten zwischen Gas- und Flüssigphase. Aus diesem Grund wird diese Art der Modellierung als *algebraic-slip*-Methode bezeichnet. Mit den Relativgeschwindigkeiten und dem Geschwindigkeitsfeld der Flüssigphase erhält man die Geschwindigkeitsverteilung in der Gasphase:

$$u_i^G = u_i^L + \Delta u_i \quad (22)$$

Bei der Berechnung der Geschwindigkeiten in der Flüssigphase muss die Reduktion der Flüssigpumpkapazität der Rührer aufgrund von Begasung berücksichtigt werden. Sie lässt sich aus der Reduktion des Leistungseintrags abschätzen:

$$\frac{Q_{L,G}}{Q_{L,0}} = \left( \frac{P_G}{P_0} \right)^\alpha \quad (23)$$

Der Exponent  $\alpha$  hängt von der Belüftungskennziffer  $Fl = Q_G/nD^3$  ab. Für Standardscheibenrührer geben Rousar und von den Akker [116] einen Wert von  $\alpha = 0,341$  an, während Joshi [63], Bakker und van den Akker [8] sowie Trägårdh [132]  $\alpha = 1,0$  verwenden. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird ein Wert von  $\alpha = 0,65$  angenommen. Das Verhältnis von begastem zu unbegastem Leistungseintrag der Rührer wird anhand der folgenden, von Cui et al. [30] vorgeschlagenen Korrelation berechnet, die für Standardscheibenrührer als Einzelrührer bzw. als unterem Rührer in Mehrfachrührersystemen gilt, und auf der Auswertung der Messungen verschiedener Autoren basiert:

$$\frac{P_G}{P_0} = 1,0 - 9,9 \left( \frac{Q_G n^{0,25}}{D^2} \right) \quad \text{für} \quad \frac{Q_G n^{0,25}}{D^2} \leq 0,055 \quad (24)$$

$$\frac{P_G}{P_0} = 0,48 - 0,62 \left( \frac{Q_G n^{0,25}}{D^2} \right) \quad \text{für} \quad \frac{Q_G n^{0,25}}{D^2} > 0,055 \quad (25)$$

Der lokale Gasgehalt ergibt sich dann aus folgender Bilanzgleichung, in der der Gasgehalt formal wie ein in der Flüssigphase gelöster Stoff behandelt wird:

$$\frac{\partial \epsilon_G}{\partial t} + u_i^G \frac{\partial \epsilon_G}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left( D_{eff} \frac{\partial \epsilon_G}{\partial x_i} \right) + \frac{Q_G}{V} \Big|_{x_i}^{Begaserring} \quad (26)$$

Der Quellterm ( $Q_G/V$ ) ist nur in den finiten Volumen an den Koordinaten  $x_i$  des Begaserrings zu berücksichtigen.

Abb. 1 fasst die Vorgehensweise bei der Simulation einer zweiphasigen Strömung mit der *algebraic-slip*-Methode zusammen.

Eine Berechnung der Strömungsverhältnisse mit diesem einfachen *algebraic-slip*-Ansatz unterliegt im Vergleich zur *two-fluid*-Modellierung gravierenden Einschränkungen:

- Die Gasphase nimmt keinen Raum ein, d.h. das rechnerische Gesamtvolumen ändert sich nicht, da der lokale Gasgehalt in Gl. (26) formal wie ein in der Flüssigphase gelöster Stoff behandelt wird. Der diesbezügliche Berechnungsfehler nimmt mit steigendem Gasgehalt zu.
- Es werden einige Beiträge zur Phasenwechselwirkungskraft (Zusammenstellung siehe z.B. [38]) vernachlässigt. Jenne [59] zeigt, dass insbesondere die virtuelle Trägheitskraft (engl. „*added mass force*“), die die scheinbare Zunahme der Trägheit der Gasblasen aufgrund der mitgeschleppten Flüssigkeit beschreibt, einen wesentlichen Einfluss auf die Simulation der Gasgehaltsverteilung hat.

Eine Verbesserung der *algebraic-slip*-Modellierung kann erreicht werden, wenn in der Simulation der Flüssigphase basierend auf einem geschätzten integralen Gasgehalt eine reduzierte Gemisch-

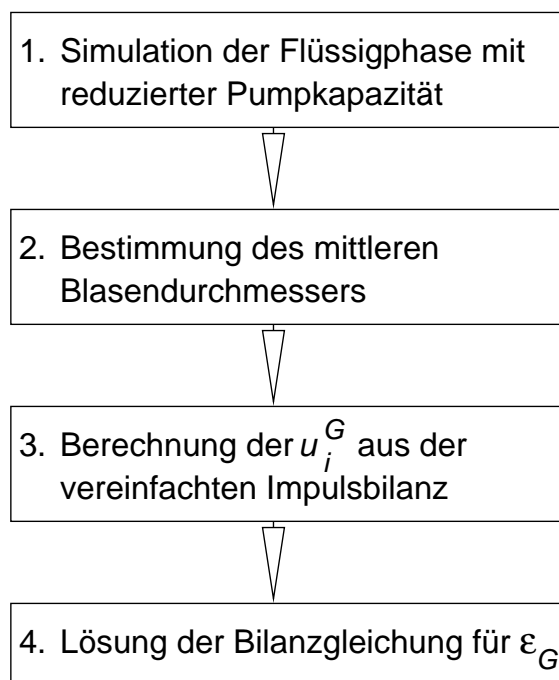


Abbildung 1: Schema der Simulation einer Gas-/Flüssigkeitsströmung mit der *algebraic-slip*-Methode

dichte und eine Zunahme des Gesamtvolumens berücksichtigt wird. Bei iterativer Vorgehensweise ist diese Methode jedoch bereits deutlich rechenzeitintensiver.

Wegen der genannten Einschränkungen muss die aufgrund der erheblichen Reduktion des Rechenaufwands attraktive Anwendung der *algebraic-slip*-Methode immer mit einer Beurteilung des dabei im Vergleich zur *two-fluid*-Modellierung zu erwartenden Fehlers einhergehen. Dabei sollte allerdings berücksichtigt werden, dass bei der *two-fluid*-Modellierung genauso wie mit der *algebraic-slip*-Methode nur ein mittlerer, repräsentativer Blasendurchmesser in die Berechnungen eingeht. Der dadurch verursachte Fehler kann folglich auch durch eine ansonsten detailliertere Modellierung nicht wieder ausgeglichen werden. Jenne [59] zeigt Ergebnisse von Simulationen begaster Rührkesselreaktoren bei unterschiedlichen Betriebsbedingungen und für Medien mit unterschiedlichen Koaleszenzeigenschaften. In der Rührkesselgeometrie von Bombáč [21] ergibt sich für einen mittleren Blasendurchmesser von  $d_{10} = 3,4$  mm ein mittlerer Gasgehalt von  $\epsilon_G = 5,3$  %. Eine Simulation mit einem auf  $d_{10} = 1,55$  mm verkleinerten Blasendurchmesser und ansonsten identischer Modellierung resultiert aufgrund der verminderten Aufstiegsgeschwindigkeit der Gasblasen bereits in einem um 28 % auf  $\epsilon_G = 6,8$  % vergrößerten mittleren Gasgehalt. Da die Abschätzung des repräsentativen Blasendurchmessers bei Fehlen detaillierter experimenteller Ergebnisse nur auf der Basis von Korrelationen wie z.B. Gl. 18 und 21 erfolgen kann, ist sie eine wesentliche Fehlerquelle bei der Simulation der zweiphasigen Strömung im Rührkesselreaktor.

Abb. 2 zeigt einen Vergleich der mit *algebraic-slip* bzw. *two-fluid*-Modellierung berechneten Verteilung des lokalen Gasgehalts in der von Bombáč [21] und Jenne [59] untersuchten Reaktorgeometrie. Die Belüftungsrate beträgt  $Q_G = 1,67 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3/\text{s}$ , die Rührerdrehzahl  $n = 376 \text{ 1/min}$ , die Widerstandscharakteristik entspricht den Angaben in Tab. 3. Der mittlere Blasendurchmesser für die *two-fluid*-Simulation ist nach Gl. 18 bestimmt, im Falle der *algebraic-slip*-Modellierung wird der Blasendurchmesser nach Gl. 21 mit  $C_b = 0,6$  berechnet. Die *algebraic-slip*-Simulationen werden auf axialsymmetrisch approximierten Strömungsfeldern durchgeführt. Für die Betrachtung der Gasphase ist der mit dieser Vereinfachung verbundene Fehler vergleichsweise gering, da ja die Gasphase am Begaser tatsächlich gleichmäßig über den Umfang verteilt zugeführt wird. Bei der Simulation mit *algebraic-slip* sind zwei Fälle zu unterscheiden:

1. Vorgehensweise genau wie oben beschrieben, d.h. in der Simulation der einphasigen Strömung wird der Einfluss der Gasphase lediglich durch eine Reduktion der Pumpkapazität berücksichtigt.
2. Berechnung der Gasphase auf dem Flüssigkeitsgeschwindigkeitsfeld aus der *two-fluid*-Simulation. Diese Methode ist hinsichtlich der Rechenzeiterparnis natürlich sinnlos, liefert jedoch Hinweise auf die entscheidenden Fehlerquellen bei der vereinfachten Modellierung. Das in Abb. 2 dargestellte Ergebnis beruht auf dieser Vorgehensweise.

Die mit den beiden Modellierungsmethoden berechneten integralen Gasgehalte unterscheiden sich kaum (*two-fluid*:  $\bar{\epsilon}_G = 6,8 \%$ , *algebraic-slip*:  $\bar{\epsilon}_G = 6,7 \%$ ). In der Verteilung des lokalen Gasgehalts zeigen sich allerdings Unterschiede zwischen den beiden Ergebnissen: Der hohe Gasgehalt im Bereich des großräumigen Wirbels oberhalb des Rührers hat eine etwas andere Form der örtlichen Verteilung und insbesondere der Gasgehalt im Wirbel unter der Rührerebene ist im Falle der *algebraic-slip*-Modellierung deutlich geringer. Dies ist eine Folge der nicht berücksichtigten virtuellen Trägheitskraft, die eine verstärkte Kopplung der Gasphase an die Strömung der Flüssigphase zur Folge hat und somit zu einem verstärkten Mitreißen der Blasen im Rührerausfluss und von dort in den Bereich unterhalb der Rührerebene führt.

Eine vereinfachte, weniger rechenzeitintensive Berechnung der Gasphase ist insbesondere für die aufwändige Simulation der praxisrelevanten Mehrfachrührersysteme wünschenswert. Für die in Kap. 7 ausführlich untersuchten Mehrfachrührersysteme werden die Simulationen der Gasgehaltsverteilung daher mit der *algebraic-slip*-Methode durchgeführt. Bei einer Konfiguration mit vier Scheibenrührern (Reaktorgeometrie s. Abb. 37 und Tab. 9), einem Gasvolumenstrom von  $Q_G = 0,09 \text{ m}^3/\text{s}$  und einer Rührerdrehzahl von  $n = 115 \text{ 1/min}$  ergibt die Simulation einen mittleren Gasgehalt von 11,6 %, während Noorman [97] einen Messwert von 13,0 % angibt. In Anbetracht der gravierenden Vereinfachungen bei der Modellierung der zweiphasigen Strömung kann dies als eine gute Übereinstimmung gelten.

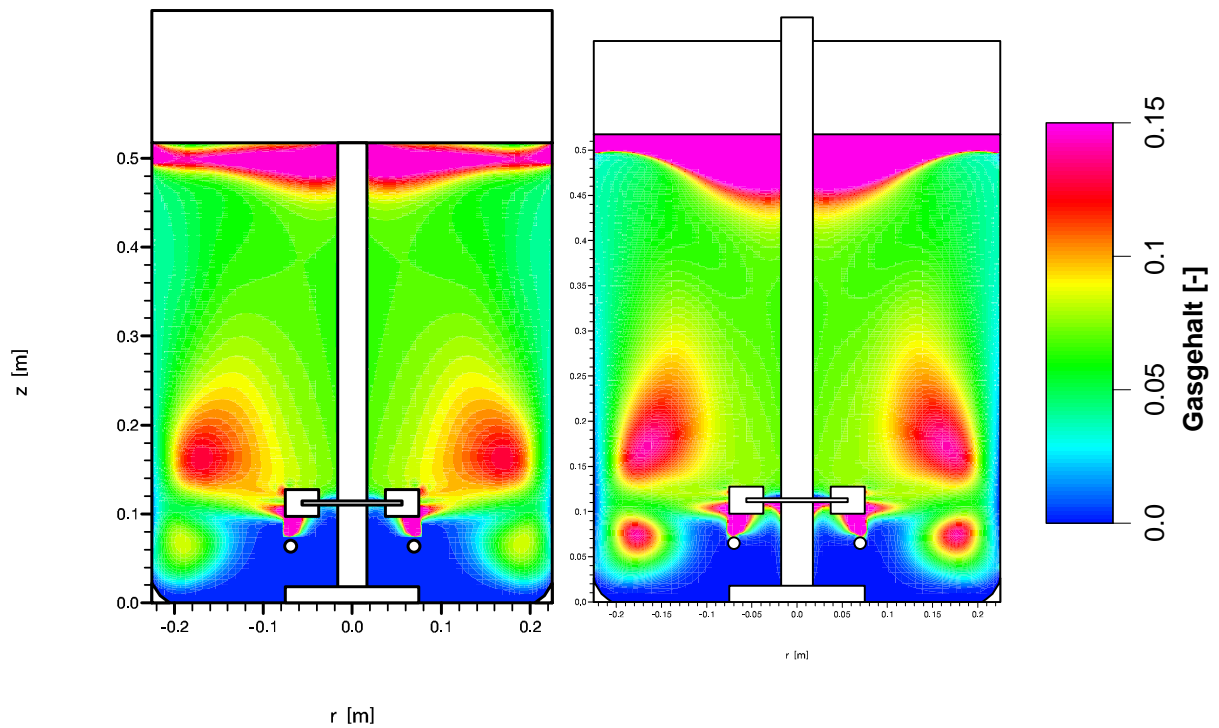


Abbildung 2: Einfluss der Modellierung auf die Verteilung des lokalen Gasgehalts. Reaktor-geometrie von Bombač [21],  $Q_G = 1,67 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3/\text{s}$ ,  $n = 376 \text{ 1/min}$ . Links *algebraic-slip* mit dem Geschwindigkeitsfeld der Flüssigphase aus der *two-fluid*-Simulation, rechts *two-fluid*-Simulation (aus Jenne [59]).



## 4 Modellierung von Durchmischung, Stoffübergang und Reaktion

Die korrekte Simulation von Reaktionen in der turbulenten Strömung in Rührkesselreaktoren erfordert die simultane Lösung des gekoppelten Systems von Impuls- und Stoffbilanzen. Derartige Berechnungen sind, abgesehen von einigen Sonderfällen, zum gegenwärtigen Zeitpunkt jedoch mit einem nicht vertretbaren Aufwand verbunden, insbesondere wenn sich die Dynamik von Impuls- und Stoffbilanzen in unterschiedlichen Zeitskalen bewegt. Eine wesentliche Reduktion der Rechenzeiten ist durch eine getrennte Simulation von Fluidodynamik und Stoffumsetzung möglich. Wenn Stoffübergang und Reaktion keinen oder nur einen vernachlässigbaren Einfluss auf die Strömungsverhältnisse haben, kann die instationäre Simulation der Stoffumsetzung auf einem stationären Strömungsfeld erfolgen. Mögliche Rückwirkungen der Reaktion auf die Strömungsverhältnisse sind Folgen der Veränderung von Temperatur und von ihr abhängiger Stoffeigenschaften, der Viskosität oder des Gesamtvolumens. Im zweiphasigen Fall besteht zusätzlich die Möglichkeit der An- oder Abreicherung des Volumens der Gasphase. Im Bereich der biotechnischen Stoffumsetzungen in Rührkesselreaktoren wird aber üblicherweise mit geregelter, konstanter Temperatur gearbeitet. Aufgrund der schlechten Sauerstofflöslichkeit kann außerdem von einer vernachlässigbaren Abreicherung der Gasphase ausgegangen werden, zumal der verbrauchte Sauerstoff nahezu quantitativ durch Kohlendioxid ersetzt wird. Den Veränderungen des Gesamtvolumens in einem Fed-Batch Prozess kann durch die Verwendung verschiedener stationärer Strömungsfelder Rechnung getragen werden. Viskositätsänderungen werden erst dann relevant, wenn die laminare Viskosität in die Größenordnung der turbulenten Viskosität kommt. Im Falle einer wässrigen Lösung liegen zwischen beiden ca. drei Größenordnungen. Die Voraussetzungen für eine entkoppelte Simulation sind also in den meisten Fällen erfüllt. Die Ergebnisse der fluiddynamischen Simulation (Hauptgeschwindigkeiten in Gas- und Flüssigphase  $u_i^{L,G}$ , effektive turbulente Dispersionskoeffizienten  $D_{eff}$ , lokaler Gasgehalt  $\epsilon_G$ ), können dann, wie in Abb. 3 verdeutlicht, als zeitlich konstante Koeffizienten in die skalaren Stoffbilanzen (Gl. 27) eingesetzt werden:

$$\frac{\partial c_j}{\partial t} + u_i \frac{\partial c_j}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left( D_{eff} \frac{\partial c_j}{\partial x_i} \right) + Q_j \quad (27)$$

Darin ist  $c_j$  der Zustandsvektor des simulierten kinetischen Modells. Der effektive turbulente Dispersionskoeffizient berechnet sich mit der turbulenten Schmidt-Zahl aus der effektiven turbulenten Viskosität:

$$D_{eff} = \frac{\nu_{eff}}{Sc_t} = \frac{c_\mu}{Sc_t} \frac{k^2}{\epsilon} \quad (28)$$

Über den Zusammenhang zwischen turbulentem Impuls- und Stofftransport liegen nur wenige experimentelle Befunde vor,  $Sc_t$  ist jedoch eine Funktion von Reynoldszahl und molekularer Schmidt-Zahl. Wesentliche Abweichungen der turbulenten Schmidt-Zahl von  $Sc_t = 1$  ergeben sich

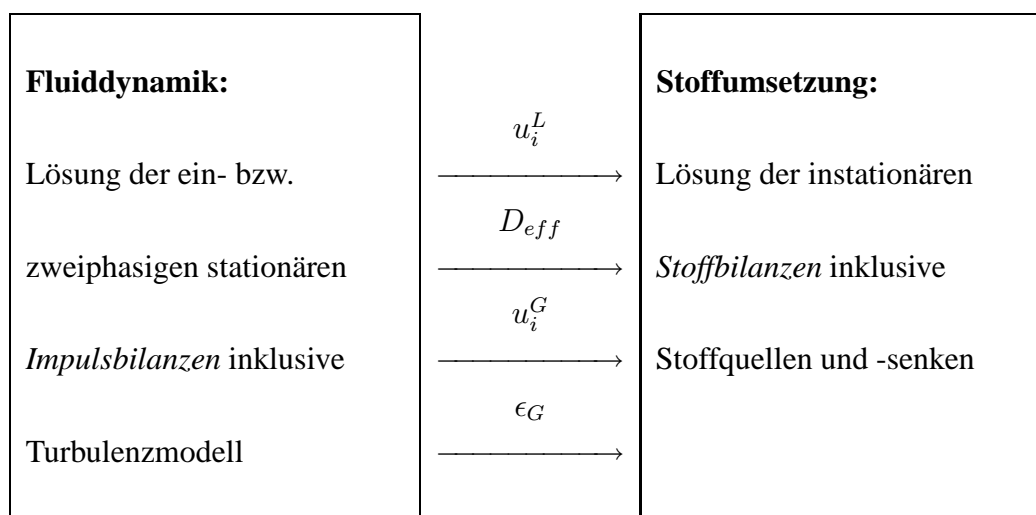


Abbildung 3: Entkopplung von Impuls- und Stoffbilanzen

allerdings nur, wenn  $Sc \ll 1$  ist [62] [47]. Die molekulare Schmidt-Zahl von Sauerstoff in Wasser beträgt beispielsweise ca. 400, die von Saccharose in Wasser sogar ca. 2400. Im Rahmen dieser Arbeit wird daher von  $Sc_t = 1$  ausgegangen.

Der Quellterm  $Q_j$  umfasst die Beiträge für Reaktion, Stoffübergang zwischen den Phasen sowie für Zu- und Abläufe.

## 4.1 Pulsexperimente

Mischzeitexperimente werden häufig zur experimentellen Charakterisierung des Durchmischungsverhaltens von Einzelapparaten oder der Verweilzeitverteilung ganzer Apparateschaltungen durchgeführt. Dabei wird das Antwortsignal auf die pulsformige Zugabe eines Spurstoffes aufgezeichnet (Abb. 4). In einem kontinuierlich durchströmten System entspricht das auf diese Weise ermittelte und anschließend normierte Antwortsignal der Verweilzeitverteilung für die untersuchte Kombination von Pulsort (Zulauf) und Messort (Ablauf). Übliche Spurstoffe sind Elektrolytlösungen, Farbstoffe oder Heisswasser, die zugehörigen Messgrößen Leitfähigkeit, Fluoreszenz bzw. Temperatur. Die Intensität der Durchmischung im untersuchten Apparat wird durch eine sogenannte terminale Mischzeit beschrieben, zu der nur noch eine bestimmte Abweichung des Antwortsignals, häufig 5 % oder 2,5 %, vom seinem Endwert vorliegt (s. Abb. 4). Dabei wird angenommen, dass ein einzelnes Antwortsignal die im gesamten Apparat erreichte Homogenität repräsentiert. Die Form des ermittelten Antwortsignals und auch die daraus ermittelte Mischzeit hängen stark von der Kombination von Puls- und Messort ab, durch deren Wahl das Ergebnis des Experiments daher entscheidend beeinflusst werden kann (s. Kap. 6.3). Erst bei zunehmender Reduktion der für die Bestimmung der Mischzeit zugelassenen Abweichung vom Endwert ergibt sich, unabhängig vom

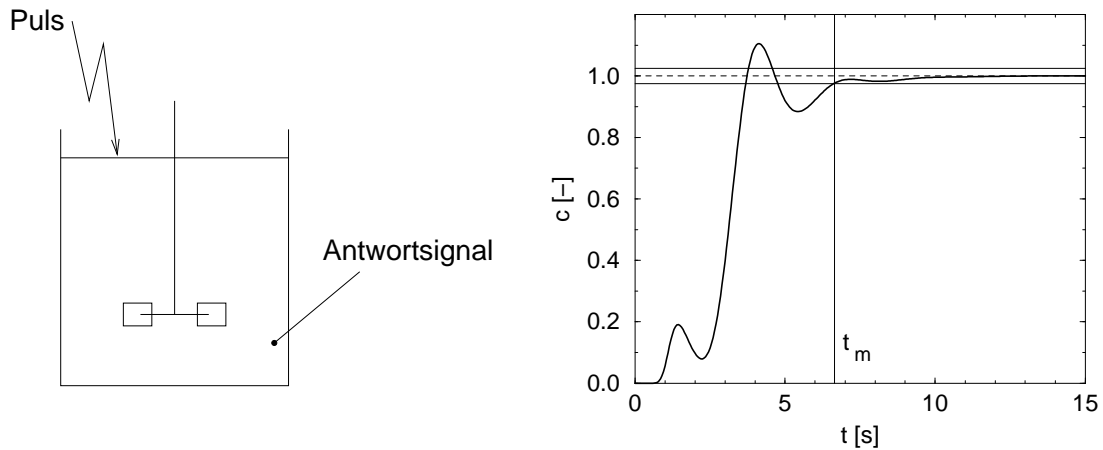


Abbildung 4: Beispiel für ein Pulsexperiment zur Bestimmung der Mischzeit.

zeitlichen Verlauf des Antwortsignals, derselbe Grenzwert der terminalen Mischzeit .

Eine verbesserte Berechnung der im Reaktor vorliegenden Homogenität bzw. Inhomogenität  $I$ , die nicht nur die Konzentration an einem einzigen Ort berücksichtigt, wurde von Landau und Prochazka [70] vorgeschlagen. Sie beruht auf der gewichteten Aufsummierung der Abweichung möglichst vieler lokaler Konzentrationen von der Endkonzentration  $c^\infty$  ( $V_T$  = Gesamtvolumen,  $V_i$  = Teilvolumen mit der Konzentration  $c_i$ ,  $c^0$  = mittlere Konzentration zum Zeitpunkt  $t = 0$ ):

$$I(t) = \frac{1}{V_T(c^\infty - c^0)} \sum_i^n V_i |c_i(t) - c^\infty| \quad (29)$$

Da bei einer Simulation der räumlich dreidimensional diskretisierten Spurstoffbilanz die Konzentrationen an allen Orten im Reaktor bekannt sind, kann die Inhomogenität leicht berechnet werden. Wegen des hohen messtechnischen Aufwands liegen jedoch nur wenige experimentelle Ergebnisse für Inhomogenitätsverläufe bei Pulsexperimenten vor (z.B. [78] [84]).

Die Simulation eines Pulsexperiments erfordert die Lösung der instationären Stoffbilanz Gl. 27 für den Spurstoff  $T$ :

$$\frac{\partial c_T}{\partial t} + u_i \frac{\partial c_T}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left( D_{eff} \frac{\partial c_T}{\partial x_i} \right) + \frac{F c_T^F}{V} \Big|_{x_i^{Puls}} \quad (30)$$

Der Quellterm  $F c_T^F / V$  wird nur während des kurzen Zeitraums der Spurstoffzugabe in den finiten Volumen mit den Koordinaten des Pulsortes berücksichtigt. Dabei ist  $F$  der Zulaufvolumenstrom und  $c_T^F$  die Spurstoffkonzentration im Zulauf.

## 4.2 Stoffübergang Gas-/Flüssigphase

Die Simulation von Stoffumsetzungen im zweiphasigen System erfordert die Modellierung des Stofftransports von der Gas- in die Flüssigphase. Wenn ein rein physikalischer Lösungsvorgang in Kombination mit einer relativ geringen Löslichkeit der betrachteten Gasphasenkomponente vorliegt, kann davon ausgegangen werden, dass der dominierende Stoffübergangswiderstand auf der Seite der Flüssigphase liegt. In diesem, für die Lösung von Sauerstoff in Wasser zutreffenden Fall, kann der Stoffstrom der Komponente  $i$  über die Phasengrenze mit Hilfe des flüssigkeitsseitigen Stoffübergangskoeffizienten  $k_L$ , der spezifischen Phasengrenzfläche  $a$  und dem flüssigkeitsseitigen treibenden Konzentrationsgefälle  $c_i^* - c_i^L$  beschrieben werden:

$$Q_i^L = k_L a (c_i^* - c_i^L) \quad (31)$$

Die entsprechende Stoffsenke in der Bilanz der Komponente  $i$  in der Gasphase lautet:

$$Q_i^G = \frac{(1 - \epsilon_G)}{\epsilon_G} k_L a (c_i^* - c_i^L) \quad (32)$$

Der volumenbezogene Stoffstrom  $Q_i$  über die Phasengrenze wird also von drei Größen beeinflusst:

1. Stoffübergangskoeffizient  $k_L$ : In der turbulenten Strömung findet ein ständiger Austausch der Fluidelemente an der flüssigkeitsseitigen Phasengrenze statt. Die Berechnung des Stoffübergangskoeffizienten beruht daher auf Kolmogoroffs Theorie der isotropen Turbulenz und der Highbie'schen Penetrationstheorie. Diese liefert:

$$k_L = \left( \frac{4 D_L}{\pi \Delta t} \right)^{1/2} \quad (33)$$

Die charakteristische Austauschzeit  $\Delta t$  kann aus Kolmogorofflänge  $l_k$  und charakteristischer Geschwindigkeit  $u_k$  bestimmt werden, die beide von der lokalen Energiedissipationsrate  $\epsilon$  abhängen:

$$\Delta t = \frac{l_k}{u_k} = \frac{(\nu_L^3 / \epsilon)^{1/4}}{(\nu_L \epsilon)^{1/4}} = \left( \frac{\nu_L}{\epsilon} \right)^{1/2} \quad (34)$$

Für  $k_L$  ergibt sich damit:

$$k_L \sim \frac{D_L^{1/2} \epsilon^{1/4}}{\nu_L^{1/4}} \sim (\epsilon \nu_L)^{1/4} S_C^{-1/2} \quad (35)$$

Kawase und Moo-Young [65] ermitteln eine Proportionalitätskonstante von 0,301:

$$k_L = 0,301 (\epsilon \nu_L)^{1/4} S_C^{-1/2} \quad (36)$$

2. Spezifische Phasengrenzfläche  $a$ : Sie wird unter der Annahme kugelförmiger Gasblasen und  $\epsilon_G \ll 1$  aus dem lokalen Gasgehalt  $\epsilon_G$  berechnet:

$$a = \frac{6 \epsilon_G}{d_b} \quad (37)$$

In der Realität liegt eine Verteilung des Blasendurchmessers vor, die zusätzlich auch noch ortsabhängig ist. Im Rahmen dieser Arbeit wird jedoch vereinfachend mit einem nicht ortsabhängigen, die Blasengrößenverteilung repräsentierenden Sauterdurchmesser  $d_{32}$  gerechnet. Von einer aufwändigeren Modellierung des Blasendurchmessers wird wegen des damit verbundenen zusätzlichen Berechnungsaufwands und den großen Unsicherheiten hinsichtlich der Modellierung von Koaleszenz und Redispergierung in realen Fermentationsmedien abgesehen. In koaleszenzgehemmten Medien, wie sie bei biotechnischen Stoffumsetzungen üblicherweise vorliegen, liegt ohnehin eine vergleichsweise enge Verteilung des Blasendurchmessers vor.

3. Flüssigkeitsseitiges treibendes Konzentrationsgefälle  $c_i^* - c_i^L$ . Die Konzentration  $c_i^*$  an der Phasengrenzfläche kann über den Partialdruck in der Gasphase beeinflusst werden. Sie wird nach dem Henry'schen Gesetz berechnet:

$$c_i^* = \frac{y_i p \sum_{j=1}^M c_j}{H} \quad (38)$$

$\sum_{j=1}^M c_j$  ist die Summe der Konzentrationen aller  $M$  Komponenten in der Flüssigphase, in einer stark verdünnten wässrigen Lösung also näherungsweise die Konzentration von Wasser.

Insgesamt wird der Stoffstrom über die Phasengrenze gemäß Gl. 31 also als eine Funktion der lokalen Werte von Energiedissipation, Gasgehalt, Molanteil in der Gasphase und Druck berechnet:

$$Q_i^{L/G}(x_i) = f(\epsilon(x_i), \epsilon_G(x_i), y_i(x_i), p(x_i)) \quad (39)$$

Diese Berechnung lokaler Stoffströme vermeidet die sonst bei der Auslegung von Prozessen in begasteten Rührkesselreaktoren übliche Vorgehensweise unter Verwendung empirischer Korrelationen für den integralen  $k_L a$ -Wert. In diesen wird der  $k_L a$ -Wert meistens als Funktion von spezifischem Leistungseintrag und Gasleerrohrgeschwindigkeit angegeben (s. auch [129]):

$$k_L a = c \left( \frac{P_G}{V} \right)^\alpha (u_G^0)^\beta \quad (40)$$

Die Exponenten  $\alpha$  und  $\beta$  sowie die Konstante  $c$  müssen dabei aus der Korrelation experimenteller Ergebnisse ermittelt werden. Die  $k_L a$ -Korrelationen nach Gl. 40 berücksichtigen keinen Einfluss der verwendeten Rühreranordnung oder der Reaktorgeometrie und sind abgesehen davon

auch abhängig vom Maßstab des Rührkessels und dem Medium bei der Durchführung der betreffenden Experimente. Bei der experimentellen Bestimmung der Parameter müssen darüber hinaus Annahmen bezüglich der Vermischung in Gas- bzw. Flüssigphase getroffen werden. Wenn keine Messeinrichtung für die eingetragene Rührleistung zur Verfügung steht, muss eine Abschätzung vorgenommen werden:

$$P_G = \left( \frac{P_G}{P_0} \right) Ne \rho n^3 D^5 \quad (41)$$

Van't Riet [112] gibt eine im Volumenbereich von 2–4400 l und für  $P/V = 0,5–10 \text{ kW/m}^3$  gültige Korrelation für Wasser mit Elektrolyten (koaleszenzbehindertes System) an:

$$k_L a = 0,002 \left( \frac{P_G}{V} \right)^{0,7} (u_G^0)^{0,2} \quad (42)$$

Diese Korrelation wird in Kap. 7.2.3 zum Vergleich mit den Ergebnissen der lokalen Berechnung des Stoffübergangs herangezogen.

### 4.3 Reaktionskinetische Modelle

Wenn Simulationen von Strömungsverhältnissen und Stoffumsetzungen in Rührkesselreaktoren als Werkzeug zu Auslegung und Verbesserung der Betriebsbedingungen eingesetzt werden sollen, muss ein entsprechendes reaktionskinetisches Modell des betrachteten Prozesses vorliegen. In der hier angewandten Vorgehensweise wird davon ausgegangen, dass die Reaktionen an jedem Ort im Reaktor spontan mit Reaktionsgeschwindigkeiten ablaufen, die den dort vorliegenden Konzentrationen entsprechen. Die Einbeziehung der Vorgeschichte einzelner Partikel (oder Zellen) ist nicht möglich. Weiterhin wird vorausgesetzt, dass die jeweiligen finiten Volumen ideal durchmischt sind, ein Einfluss der Mikrovermischung auf die Reaktionsgeschwindigkeit wird nicht berücksichtigt, kann aber je nachdem, wie die kinetischen Parameter bestimmt werden, bereits in diesen enthalten sein. Zu beachten ist, dass reaktionskinetische Modelle häufig unter ganz bestimmten, eng definierten Bedingungen abgeleitet werden. Bei der Anwendung auf detaillierte Simulationen von Stoffumsetzungen in Rührkesselreaktoren muss deshalb darauf geachtet werden, dass einzelne Konzentrationen nicht den Gültigkeitsbereich des der Simulation zugrundeliegenden kinetischen Modells verletzen.

Die Betrachtungen im Rahmen dieser Arbeit beschränken sich auf wenige, repräsentative kinetische Modelle biotechnischer Stoffumsetzungen, anhand derer aber die prinzipiellen Effekte aufgezeigt werden können.

### 4.3.1 Aerobes Wachstum der Hefe *Saccharomyces cerevisiae*

Bajpai und Reuss [5] geben ein einfaches, empirisches und unstrukturiertes Wachstumsmodell für die Hefe *Saccharomyces cerevisiae* unter aeroben Bedingungen an. Grundlage des Modells sind experimentelle Daten aus kontinuierlichen Kulturen. Es berücksichtigt Bilanzgleichungen für das Substrat  $S$  (Glucose) sowie die daraus gebildete Biomasse  $X$ . Bei Überschreiten der kritischen Substratkonzentration  $\tilde{c}_S$  wird in Folge des sogenannten *Crabtree*- bzw. *Glucose*-Effekts zusätzlich das Nebenprodukt  $P$  (Äthanol) gebildet. Die Bilanzgleichungen für verbrauchtes Substrat, gebildete Biomasse und Alkohol lauten:

$$Q_S = - \left( \frac{\mu_{max}}{Y_{X/S}} \frac{c_S}{c_S + K_S} + \frac{\nu_{max}}{Y_{P/S}} \frac{\tilde{c}_S}{\tilde{c}_S + K_P} \right) c_X \quad (43)$$

$$Q_X = \mu_{max} \frac{c_S}{c_S + K_S} c_X \quad (44)$$

$$Q_P = \nu_{max} \frac{\tilde{c}_S}{\tilde{c}_S + K_P} c_X \quad \text{mit} \quad \tilde{c}_S = \max((c_S - c_{S,krit}), 0) \quad (45)$$

Modellparameter						
$\mu_{max}$	$\nu_{max}$	$K_S$	$K_P$	$Y_{P/S}$	$Y_{X/S}$	$c_{S,krit}$
0,42 h <sup>-1</sup>	0,89 h <sup>-1</sup>	0,025 g/l	0,15 g/l	0,51	0,54	0,03 g/l

Abb. 5 verdeutlicht die Abhängigkeit der Bildungsraten von der Substratkonzentration. Ein ganz ähnliches Verhalten zeigt auch das Bakterium *E. coli* mit der Bildung von Acetat unter Substratüberschuss. Wegen der sehr niedrigen kritischen Konzentrationen müssen die Fermentationen in beiden Fällen im Zulaufverfahren mit kontinuierlicher Substratzugabe durchgeführt werden, um die unerwünschte Nebenproduktbildung zu vermeiden. Um eine möglichst hohe Produktivität (Raum-Zeit-Ausbeute) zu erzielen, soll die Substratkonzentration jedoch gleichzeitig im gesamten Reaktionsvolumen möglichst nahe an der kritischen Konzentration liegen.

Obwohl das kinetische Modell weder Substratverbrauch für den Erhaltungsstoffwechsel noch Wiederverbrauch des gebildeten Produktes oder Rückwirkungen der Produktkonzentration auf die Biomassebildung berücksichtigt, können mit ihm doch bereits wichtige Effekte der endlichen Vermischung im Rührkesselreaktor untersucht werden. Wenn im Reaktionsvolumen Bereiche mit  $c_S > c_{S,krit}$  auftreten, kommt es zur Bildung von unerwünschtem Nebenprodukt und die Selektivität der Biomasse bezüglich des eingesetzten Substrates sinkt. Zusätzlich leidet die Produktqualität unter der Verunreinigung mit dem Nebenprodukt. Bei zu geringer Substratkonzentration verringert sich hingegen die Produktivität des Reaktors, das zur Verfügung stehende Reaktionsvolumen wird nicht vollständig genutzt. Es sei darauf hingewiesen, dass bei der Anwendung von obigem kinetischen Modell vorausgesetzt werden muss, dass keinerlei Sauerstofflimitierungen vorliegen.

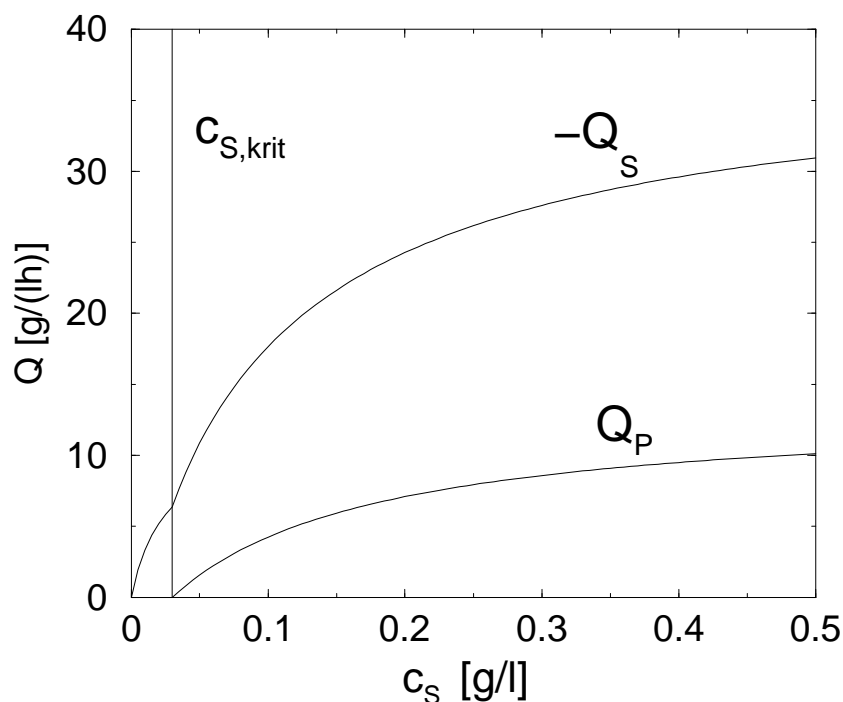


Abbildung 5: Substratverbrauchs- und Produktbildungskinetik im Modell von Bajpai und Reuss [5] bei einer Biomassekonzentration von  $c_X = 15$  g/l.

#### 4.3.2 Metabolisch strukturiertes Modell des anaeroben Wachstums von *Saccharomyces cerevisiae*

Unstrukturierte kinetische Modelle erlauben keine detaillierte Betrachtung der realen Vorgänge in den Zellen. Alle mechanistischen Effekte werden nur mittels weniger makroskopischer Parameter abgebildet. Einen vertieften Einblick in die komplexen reaktionskinetischen und regulatorischen Zusammenhänge, die in der Zelle in Folge der dynamischen Anregung mit wechselnden externen Konzentrationen ausgelöst werden, erlauben nur metabolisch strukturierte Modelle. Besonders wichtig für eine Simulation der Vorgänge im Rührkesselreaktor ist dabei die Gültigkeit des kinetischen Modells unter dynamischen Bedingungen. Die Entwicklung der experimentellen (s. [114] [131]) und mathematischen Werkzeuge (s. [113] [83]) zur Aufstellung und Parametrierung derartiger Modelle ist seit vielen Jahren ein wichtiges Arbeitsgebiet des Instituts für Bioverfahrenstechnik. Das im Folgenden vorgestellte metabolisch strukturierte Modell ist auf der Basis von Glucosepulsexperimenten in kontinuierlichen, anaeroben Kulturen der Hefe *Saccharomyces cerevisiae* aufgestellt und parametrierung worden [82]. Es beschreibt das dynamische Verhalten der an der Glycolyse beteiligten Stoffe ausgehend von der extrazellulär vorliegenden Glucosekonzentration. Unter anaeroben Bedingungen decken die Hefezellen ihren Energiebedarf aus der Umsetzung von Glucose zu Äthanol, das von den Zellen ausgeschieden wird. Alle anderen bilanzierten Stoffe liegen intrazellulär vor. Abb. 6 zeigt das dem Modell zugrunde liegende Reaktionsschema. Da die



Modellparameter aus Glucosepulsexperimenten identifiziert werden, ist die Gültigkeit des Modells streng genommen auf genau diese Situation beschränkt. Allerdings ist die Anregung der Zellen mit den schwankenden Glucosekonzentrationen in einem nicht ideal vermischten Rührkessel ähnlich wie in einem Pulsexperiment (s. Kap. 8).

Das Modell beschreibt alle Zwischenschritte der Glycolyse, wobei die aus der Oxidation gewonnene Energie in Form in ATP gebunden wird. Der Zustandsvektor umfasst die extrazellulären Konzentrationen von Glucose und Ethanol sowie fünfzehn intrazellulärer Metabolite und Nucleotide (Abkürzungen s. Tab. 4):

$$c_i = [c_{GLC}^{ex}, c_{GLC}, c_{G6P}, c_{F6P}, c_{FBP}, c_{GAP}, c_{DHAP}, c_{PEP}, c_{PYR}, c_{Ald}, c_{ETOH}^{ex}, c_{ATP}, c_{ADP}, c_{AMP}, c_{NADH}, c_{NAD}, c_{P_i}]$$

Die Gleichungen zur Berechnung der Reaktionsraten sowie weitere Details zur Herleitung des Modells sind im Anhang (Kap. 9.2) aufgeführt bzw. der Dissertation von Mauch [82] zu entnehmen.

### 4.3.3 Sauerstoffabhängige Produktbildung bei *Bacillus subtilis*

Aerobe mikrobielle Kulturen sind auf eine ausreichende Versorgung mit dem nur schwer löslichen Sauerstoff angewiesen. Unterschreitet die Gelöstsauerstoffkonzentration eine kritische Grenze, so hat das starke Auswirkungen auf Zellwachstum und Produktbildung. Im realen Bioreaktor mit nicht idealer Durchmischung liegen jedoch abhängig von der Verteilung der Gasphase und der Intensität des Stoffübergangs von der Gas- in die Flüssigphase immer Gradienten der Sauerstoffkonzentration vor, so dass lokale Einflüsse der Sauerstoffkonzentration auf die biologischen Reaktionen nicht auszuschließen sind. Wenn umgekehrt der Zusammenhang zwischen Produktbildung und Sauerstoffversorgung bekannt ist, dann können aus dem Produktspektrum Rückschlüsse auf die Bedingungen während des interessierenden Prozesses gezogen werden. Genau diese Zielsetzung wurde bei der Aufstellung des in diesem Abschnitt vorgestellten kinetischen Modells verfolgt. Die entsprechenden Arbeiten wurden in den achtziger Jahren an der ETH Zürich von Moes [88] und Griot [44] durchgeführt. Das Modell und seine Parameter wurden anhand von Versuchen in Kulturen mit unterschiedlichen, geregelten und konstanten Gelöstsauerstoffkonzentration abgeleitet. Für detailliertere Betrachtungen zur Modellbildung und den zugrunde liegenden experimentellen Arbeiten sei auf die genannten Dissertationen sowie die Veröffentlichungen von Griot et al. [43] und Moes et al. [89] verwiesen.

*Bacillus subtilis* weist einen stark sauerstoffabhängigen Metabolismus auf. Acetoin und Butandiol werden in einem von der Gelöstsauerstoffkonzentration abhängigen Verhältnis ausgeschieden, insbesondere wenn die Sauerstoffkonzentration im mikroaeroben Bereich bei wenigen Prozent der Sättigungskonzentration liegt. Aus dem Produktverhältnis am Ende einer Batch-Fermentation lassen sich somit Rückschlüsse auf während des Prozesses aufgetretene Sauerstofflimitierungen als Folge von ungenügender Durchmischung oder Begasung des Rührkesselreaktors ziehen.

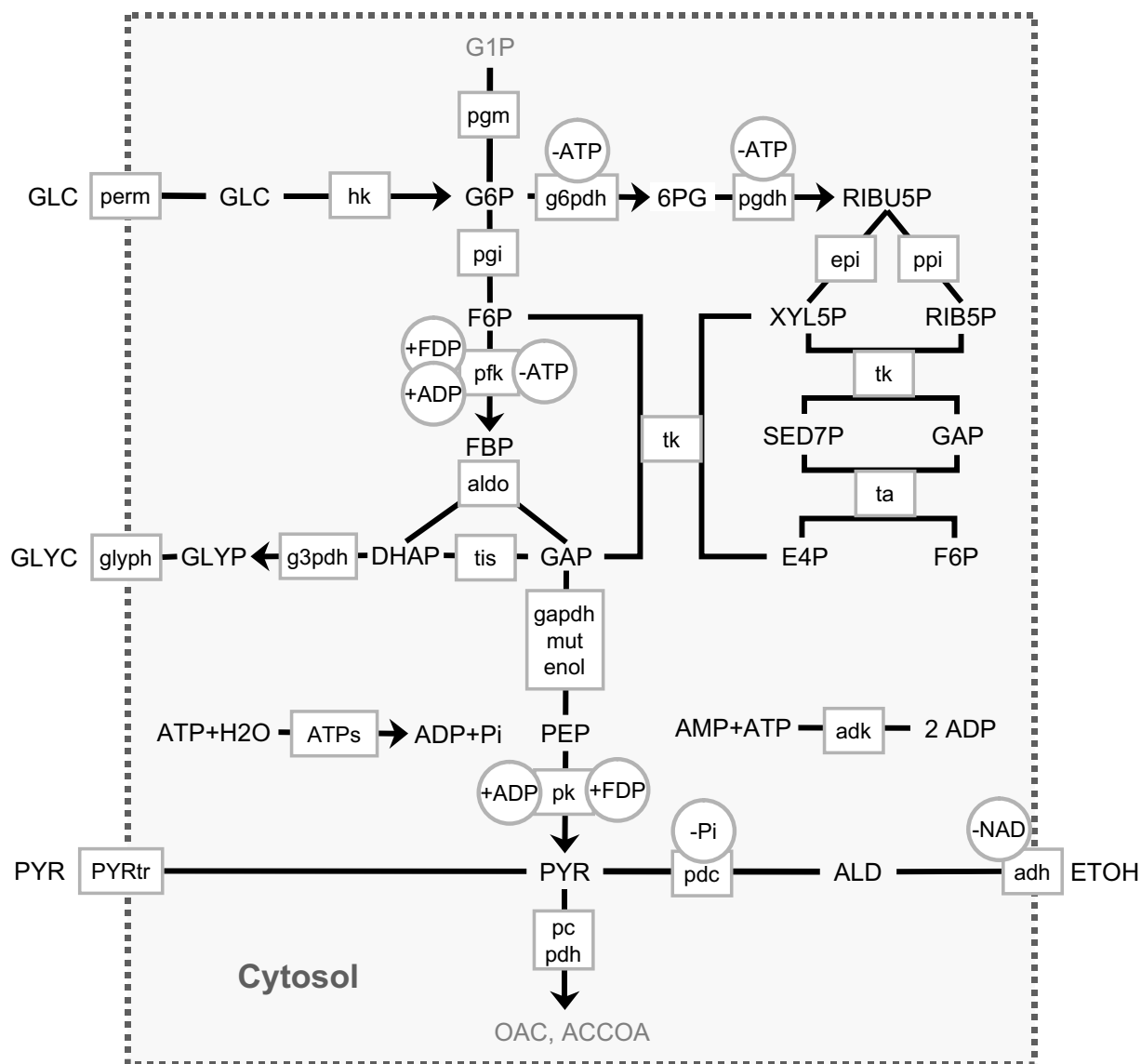


Abbildung 6: Reaktionsschema des Hefe-Modells unter anaeroben Bedingungen (aus Mauch [82]).  
Abkürzungen s. Tab. 4.

<b>Metabolite</b>		<b>Enzyme</b>	
6PG	6-Phosphogluconat	adh	Alkohol-Dehydrogenase
ACCOA	Acetyl-CoenzymA	adk	Aldenylatkinase
ADP	Adenosindiphosphat	aldo	Aldolase
ALD	Aldehyd	ATPs	ATP-Synthetase
AMP	Adenosinmonophosphat	enol	Enolase
ATP	Adenosintriphosphat	epi	Epimerase
DHAP	Dihydroxy-Acetonphosphat	gapdh	Glyceraldehyd-3-Phosphat-Dehydrogenase
E4P	Erythrose-4-Phosphat	g3pdh	Glycerin-3-Phospho-Dehydrogenase
ETOH	Ethanol (extrazellulär)	g6pdh	Glucose-6-Phospho-Dehydrogenase
F6P	Fructose-6-Phosphat	glyph	Glyceraldehyd-Phospho-Hydrogenase
FBP/FDP	Fructose-Bisphosphat	hk	Hexokinase
G1P	Glucose-1-Phosphat	mut	Mutase
G6P	Glucose-6-Phosphat	pc	Pyruvat-Carboxylase
GAP	Glyceraldehyd-3-Phosphat	pdc	Pyruvat-Decarboxylase
GLC	Glucose	pdh	Pyruvat-Dehydrogenase
GLYC	Glycerin	perm	Permease
GLYP	Glycerinphosphat	pfk	Phosphofruktokinase
NAD/NADH	Nicotinamid-Adenin-Dinucleotid	pgdh	Phosphogluconat-Dehydrogenase
OAC	Oxalacetat	pgi	Phosphoglucose-Isomerase
Pi	Phosphat	pgm	Phosphoglucomutase
PEP	Phosphoenolpyruvat	pk	Pyruvatkinase
PYR	Pyruvat	ppi	Ribose-5-Phosphat-Isomerase
RIB5P	Ribose-5-Phosphat	PYRtr	Pyruvat-Transport
RIB5P	Ribulose-5-Phosphat	ta	Transaldolase
SED7P	Sedoheptulose-7-Phosphat	tis	Triose-Isomerase
XYL5P	Xylulose-5-Phosphat	tk	Transketolase

Tabelle 4: Abkürzungen in Abb. 6.

Der Zustandsvektor des kinetischen Modells umfasst die Stoffbilanzen der Biomasse, des Substrates Glucose, der beiden Produkte Acetoin und Butandiol sowie des Sauerstoffs in Gas- und Flüssigphase:

$$c_i = [c_X, c_S, c_{Ac}, c_{Bu}, c_{O_2}^L, y_{O_2}]$$

Weitere Details zur Berechnung der Reaktionsraten des Modells sind im Anhang (Kap. 9.3) aufgeführt bzw. den oben genannten Arbeiten zu entnehmen. Abb. 7 zeigt typische zeitliche Konzentrationsverläufe während einer Batch-Fermentation von *Bacillus subtilis*.

Die Biomasse wächst exponentiell, entsprechend wird das Substrat verbraucht. Acetoin wird der Zunahme der Biomasse folgend gebildet. Die Bildung von Butandiol setzt erst dann in relevantem Maße ein, wenn zumindest lokal eine kritische Gelöstsauerstoffkonzentration unterschritten wird. Im hier gezeigten Beispiel sinkt die mittlere Sauerstoffkonzentration nicht unter die kritische Konzentration, so dass am Ende der Fermentation ein hoher Anteil an Acetoin vorliegt. Da es sich um Konzentrationsverläufe in einem realen Rührkessel handelt, haben aber auch bereits lokal unterkritische Sauerstoffkonzentrationen eine verstärkte Bildung von Butandiol zur Folge. Am Knick im Verlauf der Butandiolkonzentration nach ca. 9 Stunden ist gut zu erkennen, dass ab diesem Zeitpunkt lokal Sauerstoffkonzentrationen nahe Null vorliegen.

#### 4.4 Verfolgung von Einzelpartikeln

In vielen Arbeiten werden zweiphasige Strömungen mit einem Lagrange'schen Ansatz modelliert. Dieser beruht auf der Verfolgung von Einzelpartikeln der dispersen Phase (Gasblasen, Feststoffpartikel) in der üblicherweise auf finiten Volumen berechneten Strömung der kontinuierlichen Phase. Im allgemeinen Fall erfordert diese Art der Modellierung die Berücksichtigung der gegenseitigen Wechselwirkungen in beiden Phasen und die Verfolgung einer großen Anzahl von Partikeln, um deren Wirkung auf die Strömung der kontinuierlichen Phase in den einzelnen finiten Volumen statistisch abgesichert zu berechnen. Häufig wird allerdings auch von Rückwirkungsfreiheit ausgegangen. Im Rahmen dieser Arbeit wird die Verfolgung von Einzelpartikeln lediglich für die Veranschaulichung der Bahnen einzelner Partikel in Strömungs- und Konzentrationsfeldern eingesetzt, die basierend auf Euler'scher Modellierung simuliert werden. Da es sich bei den verfolgten Partikeln um einzellige Mikroorganismen handelt, die nahezu die gleiche Dichte wie die kontinuierliche Phase aufweisen, kann ohne Weiteres davon ausgegangen werden, dass sie sich schlupffrei mit der umgebenden Flüssigkeit bewegen.

Die Partikel werden mit der lokalen Konvektionsgeschwindigkeit  $u_i$  transportiert, der die turbulente Schwankungsgeschwindigkeit  $u'_i$  mit zufälliger Richtung überlagert ist. Bei Anwendung eines expliziten Berechnungsschemas für den Zeitschritt wird der Aufenthaltsort des Partikels zum Zeit-

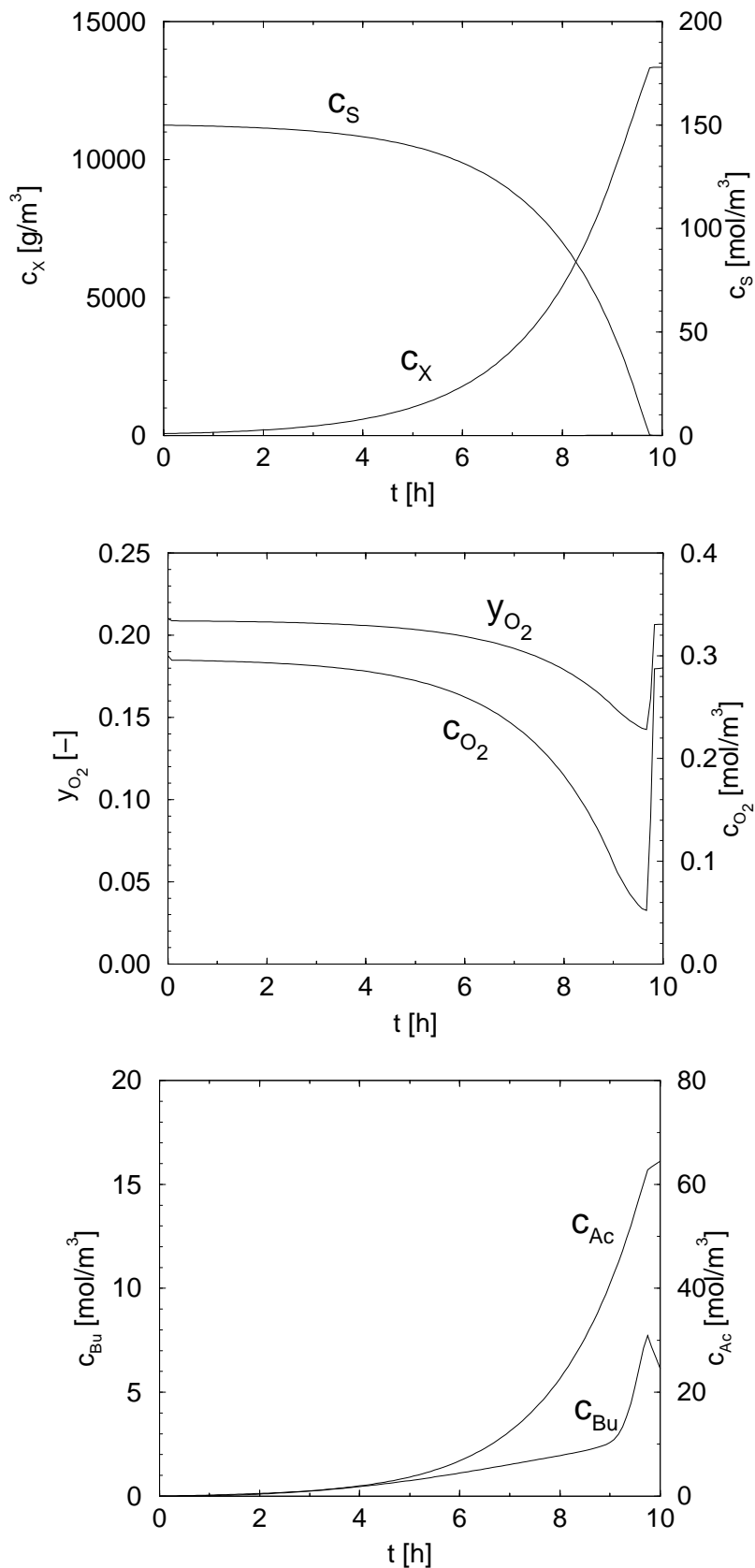
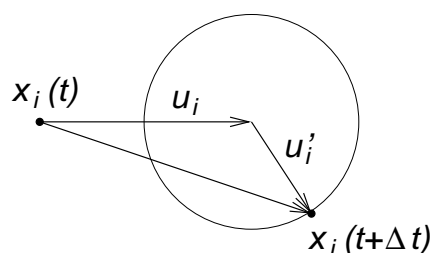


Abbildung 7: Typische Verläufe der volumengemittelten Konzentrationen während einer Batch-Fermentation von *Bacillus subtilis*. Rührkesselreaktor mit drei Rushton-Turbinen,  $V_T = 53,7 \text{ m}^3$ ,  $Q_G = 0,23 \text{ m}^3\text{s}^{-1}$ ,  $n = 100 \text{ min}^{-1}$ . Ergebnis einer Simulation mit dem kinetischen Modell von Moes [88].

punkt  $t + \Delta t$  mit den bekannten Geschwindigkeitskomponenten am alten Ort  $x_i(t)$  berechnet:



$$x_i(t + \Delta t) = (u_i(t) \pm u'_i(t))\Delta t \quad (46)$$

Dieses explizite Berechnungsschema erfordert sehr kleine Zeitschritte für eine ausreichende Genauigkeit der Lösung. Trotzdem wird ein auf diese Weise verfolgter Partikel eine geschlossene Kreisbahn, wie sie beispielsweise im großräumigen Wirbel innerhalb des Rührkesselreaktors auftritt, mit der Zeit tangential nach aussen verlassen. Wenn der Zeitschritt  $\Delta t$  jedoch ausreichend klein im Verhältnis zum betrachteten Verfolgungszeitraum ist, kann die Partikelbewegung mit Gl. 46 ausreichend genau beschrieben werden.

Die turbulente Schwankungsgeschwindigkeit  $u'_i$  wird aus der turbulenten kinetischen Energie  $k$  berechnet:

$$k = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^3 u_i'^2 \quad (47)$$

Bei isotroper Turbulenz ergibt sich daraus:

$$u'_i = \sqrt{\frac{2}{3} k} \quad (48)$$

Die Richtung der Schwankungsgeschwindigkeit wird mit einem Zufallsgenerator bestimmt. Die Hauptgeschwindigkeiten, die an beliebigen Orten in den finiten Volumens benötigt werden, werden mittels linearer Interpolation zwischen den aus der Simulation der Fluidynamik bekannten Werten berechnet.

Die mit der momentanen Geschwindigkeit zur Durchquerung des aktuellen finiten Volumens benötigte Zeit setzt dem Zeitschritt eine zusätzliche obere Grenze:

$$\Delta t \ll \Delta x_i / |u_i| \quad (49)$$

Gleichzeitig muss auch gewährleistet sein, dass innerhalb eines Zeitschritts maximal der Durchmesser eines turbulenten Makrowirbels zurückgelegt wird. Unter den im Rührkesselreaktor vorliegenden Bedingungen bestimmt jedoch die für das explizite Berechnungsschema erforderliche Genauigkeit den Zeitschritt  $\Delta t$ .

## 5 Numerische Methoden und Simulationswerkzeuge

### 5.1 Fluiddynamische Simulation

Für die ergänzenden fluiddynamischen Simulationen im Rahmen dieser Arbeit kommt das kommerzielle Softwarepaket PHOENICS in den Versionen 2.1 und 2.2 zum Einsatz. In PHOENICS werden die Reynolds-Gleichungen sowie die Bilanzgleichungen für die Turbulenzgrößen  $k$  und  $\epsilon$  entsprechend der von Patankar [100] beschriebenen Vorgehensweise mittels finiter Volumen auf versetzten, regulären Gittern diskretisiert. Es wird das ebenfalls bei Patankar beschriebene *Hybrid*-Schema (s. Kap. 5.2.2) verwendet. Die Kontinuitätsgleichung wird dabei in eine Druckkorrekturgleichung umgewandelt. Die stationäre Lösung wird mittels einer sog. *false-time-step*-Relaxation ermittelt, bei der intern möglichst große Zeitschritte nach dem impliziten Euler-Verfahren berechnet werden. Die Kopplung von Reynolds-Gleichungen und Druckkorrekturgleichung erfolgt nach dem SIMPELST-Algorithmis [100].

### 5.2 Numerische Integration der Stoffbilanzen

#### 5.2.1 Simulationen auf der Basis axialsymmetrisch approximierter Strömungsfelder

Wegen der erforderlichen Flexibilität bei der Erprobung neuer Modelle und Programmmodule kommt für Simulationen mit zweidimensionaler Ortsdiskretisierung sowie Berechnungen auf stark reduzierten Modellstrukturen die selbstentwickelte Programmumgebung *rksim* zur Konfigurierung, Diskretisierung und Integration der Stoffbilanzen zum Einsatz. Die Ortsdiskretisierung wird in Abschnitt 5.2.2 ausführlich beschrieben. Der modulare Aufbau von *rksim* beruht auf dem Programmpaket *IDAInt* (Institut für Chemische Verfahrenstechnik, Universität Stuttgart), das wiederum vom dynamischen Anlagensimulationsprogramm DIVA [54] abgeleitet ist. In *rksim* werden die fluiddynamischen Daten aus der Strömungssimulation zu den in den Stoffbilanzen benötigten Koeffizienten verarbeitet. Schlussendlich wird ein Differential-Algebra-System der Form

$$B_{ij} \dot{x}_i = f_i(x_j) \quad (50)$$

aufgebaut, dessen rechte Seite alle Beiträge aus Konvektion, Dispersion, Stoffübergang und Reaktion beinhaltet. Die Zeitintegration des gewöhnlichen Differentialgleichungssystems Gl. 50 erfolgt mit dem semiimpliziten Extrapolationsintegrator LIMEX [34]. In LIMEX wird das resultierende lineare Gleichungssystem direkt gelöst. Für die aus der Ortsdiskretisierung der Stoffbilanzen entstehende Matrix mit nur wenigen besetzten Diagonalen ist diese Vorgehensweise gegenüber den speziell für die Strömungssimulation entwickelten iterativen Algorithmen weit unterlegen. Da LIMEX aber sehr effektiv die wegen der Verknüpfung durch die Reaktionsterme teilweise sehr

steifen Differentialgleichungssysteme löst und über eine gute Zeitschrittsteuerung verfügt, ist der Einsatz von *rksim* für maximal zweidimensionale Problemstellungen hinsichtlich der Rechenzeiten unproblematisch.

Für die Zeitintegration kommen neben LIMEX zum Teil auch ein implizites Eulerverfahren sowie ein iteratives konjugiertes Gradientenverfahren (Bi-CGSTAB [133] [13]) zum Einsatz.

### 5.2.2 Ortdiskretisierung

Die Stoffbilanzen Gl. 27 werden durch Integration über finite Volumen diskretisiert. Die über die Begrenzungsflächen des Kontrollvolumens integrierte Stoffbilanz einer Komponente mit der Konzentration  $c$  lautet damit bei Vernachlässigung von Quellen:

$$V \frac{dc}{dt} = \sum (a_i c_i) - a_P c \quad (51)$$

$\sum (a_i c_i)$  sind die aus den verschiedenen Raumrichtungen mit den entsprechenden Umgebungskonzentrationen  $c_i$  in das finite Volumen eintretenden Stoffströme,  $a_P c$  ist die Summe der mit der Konzentration  $c$  aus dem finiten Volumen austretenden Stoffströme. Darin enthalten die  $a_i$  die Koeffizienten mit den Parametern  $u_i$  und  $D_{eff}$  aus dem Ergebnis der fluiddynamischen Simulation, die die konvektiven bzw. dispersiven Volumenströme beschreiben.  $A_i$  ist die durchströmte Begrenzungsfläche in der jeweiligen Raumrichtung:

$$a_i = \left( u_i + \frac{D_{eff}}{\Delta x_i} \right) A_i \quad (52)$$

Während für die Diskretisierung des dispersiven Stofftransports grundsätzlich auf Zentraldifferenzen zurückgegriffen wird, kommen für die Diskretisierung der konvektiven Terme unterschiedliche Methoden zur Anwendung, die sich in der Berechnung des Wertes der transportierten Größe auf der Grenze des Kontrollvolumens unterscheiden. Abb. 8 zeigt das Schema der Diskretisierung vereinfachend in nur einer Raumrichtung. Die Diskretisierung der weiteren Dimensionen verläuft jedoch analog. Bei Verwendung des weit verbreiteten *Upwind*-Schemas wird, wie in Abb. 8 dargestellt, ein sprunghafter Verlauf von  $c$  mit einem konstanten Wert im Kontrollvolumen angenommen, in der Bilanzierung wird der stromaufwärts gelegene Wert verwendet. Für die Stoffbilanz im skizzierten Kontrollvolumen ergibt sich aus Gl. 51 mit den Bezeichnungen aus Abb. 8 in allgemeiner Darstellung:

$$V \frac{dc}{dt} = a_W c_W + a_{EC} c_E - a_P c \quad (53)$$

Darin lauten die Koeffizienten ( $\llbracket \dots \rrbracket$  liefert das Maximum der in den Klammern eingeschlossenen Werte):

$$a_W = \left( \llbracket 0, u_W \rrbracket + \frac{D_{eff}}{\Delta x_W} \right) A_W \quad (54)$$



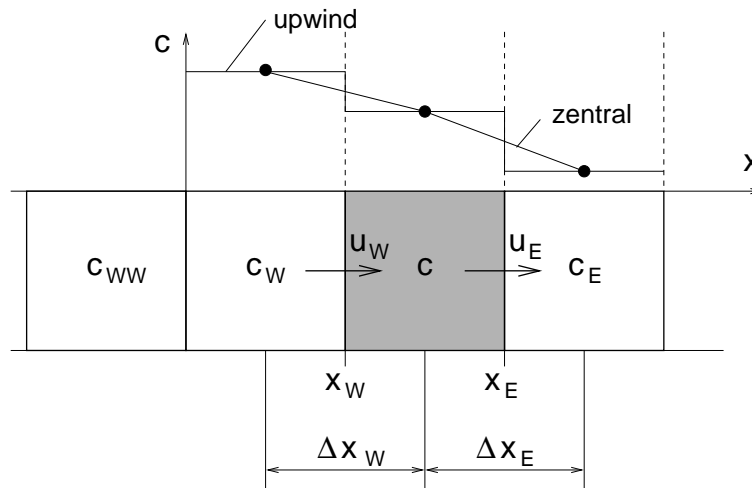


Abbildung 8: Schema der Ortsdiskretisierung.

$$a_E = \left( \llbracket 0, -u_E \rrbracket + \frac{D_{eff}}{\Delta x_E} \right) A_E \quad (55)$$

$$a_P = a_W + a_E + (u_E A_E - u_W A_W) \quad (56)$$

Für die in Abb. 8 dargestellte Richtung der Konvektion bleibt von Gl. 53:

$$V \frac{dc}{dt} = \left( u_W c_W + \frac{D_{eff}}{\Delta x_W} (c_W - c) \right) A_W - \left( u_E c_E + \frac{D_{eff}}{\Delta x_E} (c - c_E) \right) A_E \quad (57)$$

Die Diskretisierung mit dem Upwind-Schema weist formal nur eine Genauigkeit erster Ordnung auf. Es tritt also ein Fehler in der Ordnung des Dispersionsterms, die sogenannte numerische Dispersion, mit dem Dispersionskoeffizienten  $D_n$  auf:

$$D_n = \frac{u \Delta x}{2} \quad (58)$$

Der aufgrund von numerischer Dispersion fälschlicherweise berechnete zusätzliche Stoffstrom ist damit:

$$\dot{n} = -D_n \frac{\partial c}{\partial x} A = -\frac{u \Delta x}{2} \frac{\partial c}{\partial x} A = -\frac{D_{eff} Pe}{2} \frac{\partial c}{\partial x} A \quad (59)$$

Die Gitter-Peclet-Zahl  $Pe$  ist ein Maß dafür, wie stark konvektions- bzw. dispersionsdominiert die Strömung auf dem verwendeten Rechengitter ist:

$$Pe = \frac{u \Delta x}{D_{eff}} \quad (60)$$

Der Fehler aufgrund numerischer Dispersion ist also insbesondere dann von Bedeutung, wenn eine hohe Gitter-Peclet-Zahl in Verbindung mit einem großen Gradienten der transportierten Größe in Koordinatenrichtung zusammentrifft. Dies ist beispielsweise der Fall, wenn sich eine Konzentrationsfront in Strömungsrichtung durch das Rechengebiet bewegt. Entscheidend ist außerdem die Orientierung des Rechengitters in Bezug auf den zu berechnenden Konzentrationsgradienten.

Aus Gl. 59 ist ersichtlich, dass die numerische Dispersion durch Verkleinerung des Gitterabstands  $\Delta x$  verringert werden kann. Eine effektivere Maßnahme zur Steigerung der Diskretisierungsgenauigkeit ist die Verwendung einer Ortsdiskretisierung höherer Ordnung. Als einfachste Variante ist hier die Zentralkdifferenz mit einem angenommenen stückweise linearen Verlauf von  $c$  (s. Abb. 8) zu nennen. Der Wert auf der Volumengrenze wird linear zwischen den Nachbarwerten interpoliert. Wenn die Volumengrenzen genau zwischen den Rechenpunkten liegen, ergeben sich für den Fall aus Abb. 8 die folgenden Koeffizienten in Gl. 53:

$$a_W = \left( \frac{u_W}{2} + \frac{D_{eff}}{\Delta x_W} \right) A_W \quad (61)$$

$$a_E = \left( -\frac{u_E}{2} + \frac{D_{eff}}{\Delta x_E} \right) A_E \quad (62)$$

$$a_P = \left( -\frac{u_W}{2} + \frac{D_{eff}}{\Delta x_W} \right) A_W + \left( \frac{u_E}{2} + \frac{D_{eff}}{\Delta x_E} \right) A_E \quad (63)$$

Die Diskretisierung mit Zentralkdifferenzen weist eine formale Genauigkeit zweiter Ordnung und somit keine numerische Dispersion in der Größenordnung der turbulenten Dispersion auf. Allerdings neigen Diskretisierungen höherer Ordnung bei der Berechnung steiler Fronten und bei hohen Peclet-Zahlen zur Ausbildung von physikalisch unsinnigen Oszillationen (ausführliche Darstellung z.B. bei Noll [96]). Dies kann zu negativen Koeffizienten in Gl. 51 und damit zu Problemen bei der Lösung des resultierenden Gleichungssystems mit iterativen Methoden führen. Auch weitere Ansätze höherer Ordnung wie beispielsweise der von Leonhard [74] vorgeschlagene *Quick*-Ansatz, bei dem die Werte auf den Volumengrenzen aus der Interpolation mit einer Parabel gewonnen werden, vermeiden diese Schwierigkeit trotz formal höherer Diskretisierungsgenauigkeit nicht. Eine sinnvolle Vermeidung der Oszillationen in Verbindung mit einer möglichst hohen Diskretisierungsgenauigkeit lässt sich dagegen mit kombinierten Methoden, sogenannten hochauflösenden Diskretisierungsansätzen, erreichen. Dabei wird die Ordnung des Diskretisierungsansatzes in Abhängigkeit vom lokalen Gradienten der Lösung variiert. Bei lokalem Auftreten großer Gradienten der Lösung wird mit dem Upwind-Schema diskretisiert, ansonsten mit einem Ansatz höherer Ordnung. Eine sehr einfache Variante einer kombinierten Methode ist der sogenannte Hybrid-Ansatz von Spalding [127]. Dabei wird als Kriterium zum Umschalten zwischen Upwind-Ansatz und Zentralkdifferenz allerdings nicht der lokale Verlauf der Lösung, sondern die Gitter-Peclet-Zahl herangezogen. Bei Strömungsverhältnissen mit  $-2 < |Pe| < 2$  wird mit Zentralkdifferenzen diskretisiert, ansonsten mit dem Upwind-Schema. Für das eindimensionale Beispiel aus

Abb. 8 ergeben sich die Koeffizienten in Gl. 53 nach den Hybrid-Ansatz zu:

$$a_W = \left[ \left[ u_W, \frac{D_{eff}}{\Delta x_W} + \frac{u_W}{2}, 0 \right] \right] A_W \quad (64)$$

$$a_E = \left[ \left[ -u_E, \frac{D_{eff}}{\Delta x_E} - \frac{u_E}{2}, 0 \right] \right] A_E \quad (65)$$

$$a_P = a_W + a_E + (u_E A_E - u_W A_W) \quad (66)$$

Im Gegensatz zum reinen Upwind-Schema wird beim Hybrid-Schema bei  $|Pe| > 2$  die Dispersion gleich Null gesetzt. In diesen Bereichen tritt auch diesselbe numerische Dispersion gemäß Gl. 59 wie beim reinen Upwind-Schema auf, so dass mit der Anwendung des Hybrid-Schemas bei stark konvektionsdominierten Strömungen kein Genauigkeitsgewinn erzielt werden kann.

Die analytische Lösung der stationären, eindimensionalen Konvektions-Diffusionsgleichung

$$u \frac{dc}{dx} = \frac{d}{dx} \left( D \frac{dc}{dx} \right) \quad (67)$$

lautet bei konstantem Diffusionskoeffizienten zwischen zwei Punkten  $x_0$  und  $x_1$  mit  $\Delta x = x_1 - x_0$ :

$$\frac{c - c_0}{c_1 - c_0} = \frac{e^{(x Pe/\Delta x)} - 1}{e^{Pe} - 1} \quad (68)$$

Auch aus dieser Lösung lässt sich, wenn auch mit erheblich vergrößertem Berechnungsaufwand, der bei der Diskretisierung gesuchte Wert auf der Kontrollvolumengrenze bestimmen. Das Hybrid-Schema kann auch als Versuch angesehen werden, diesen Verlauf durch einen Linienzug zu approximieren (s. Patankar [100]). In einer mehrdimensionalen Situation kann jedoch nicht davon ausgegangen werden, dass mit der Anwendung von Gl. 68 immer eine gute Näherung für den Wert auf der Kontrollvolumengrenze gefunden wird.

Im engeren Sinne kann das Hybrid-Schema allerdings nicht als hochauflösende Diskretisierungsmethode bezeichnet werden. Echte Vertreter dieser Klasse von Diskretisierungsmethoden sind die sogenannten *TVD* (**T**otal **V**ariation **D**iminishing)-Methoden [49] [75]. TVD-Methoden basieren auf einer Zentralfferenzendiskretisierung in allen Bereichen mit einer auf das Gitter bezogen glatten Lösung, d.h. bei kleinen Peclet-Zahlen. In Bereichen großer Gradienten wird abhängig vom Verlauf der Lösung eine sogenannte *limiter*-Funktion berechnet, die die Diskretisierungsordnung so weit reduziert, dass Oszillationen unterbunden werden und die Lösung stabil bleibt.

Der Diskretisierungsansatz mit Zentralfdifferenzen lässt sich als eine Kombination von Upwind-Schema und einem Korrekturterm darstellen. Für den Stoffstrom über die linke Begrenzungsfläche des Kontrollvolumens (Abb. 8) gilt dann:

$$\dot{n}_W = u_W \left( \frac{c_W + c}{2} \right) A_W = (\dot{n}_W)_{upw} + \frac{1}{2} |u_W| A_W (c - c_W) \quad (69)$$

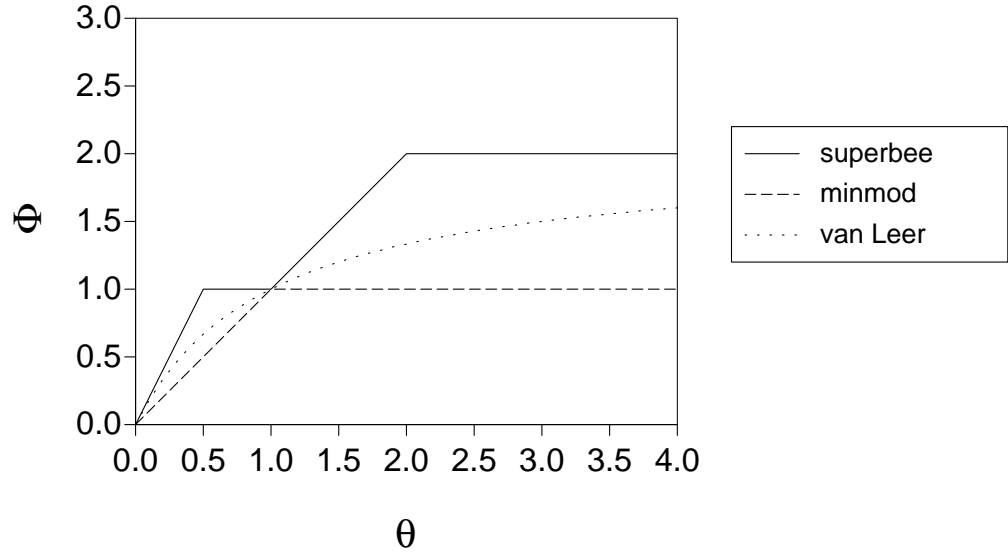


Abbildung 9: Verschiedene Limiter-Funktionen für die TVD-Diskretisierung.

mit

$$(\dot{n}_W)_{upw} = \begin{cases} u_W A_W c_W & \text{für } u_W \geq 0 \\ u_W A_W c & \text{für } u_W < 0 \end{cases} \quad (70)$$

Für das TVD-Verfahren wird der Korrekturterm mit der Limiter-Funktion  $\Phi$  multipliziert:

$$\dot{n}_W = (\dot{n}_W)_{upw} + \frac{1}{2} |u_W| A_W (c - c_W) \Phi_W \quad (71)$$

Die verschiedenen TVD-Verfahren unterscheiden sich in der Berechnung der Limiter-Funktion  $\Phi$ , die in Abhängigkeit vom Verhältnis der beiden stromaufwärts gelegenen Gradienten der Lösung berechnet wird:

$$\Phi_W = \Phi_W(\theta) \text{ mit } \begin{cases} \theta = \frac{c_W - c_{WW}}{c - c_W} & \text{für } u_W \geq 0 \\ \theta = \frac{c_E - c}{c - c_W} & \text{für } u_W < 0 \end{cases} \quad (72)$$

Abb. 9 zeigt verschiedene Limiter-Funktionen. Ein TVD-Verfahren weist eine Genauigkeit zweiter Ordnung auf, wenn  $\Phi(\theta)$  sich in dem von *superbee*- und *minmod*-Limiter eingeschlossenen Bereich bewegt [75]. Für die im Rahmen dieser Arbeit mit TVD-Diskretisierung durchgeführten Berechnungen wird der beispielsweise auch von Sokolichin et al. [126] für Simulationen der zweiphasigen Strömung in Blasensäulen verwendete *superbee*-Limiter (Roe [115]) verwendet:

$$\Phi = \llbracket 0, \min(1, 2\theta), \min(2, \theta) \rrbracket \quad (73)$$

Die TVD-Diskretisierung führt zwar zu einer verbesserten Diskretisierungsgenauigkeit, erfordert dafür aber auch einen erhöhten Berechnungsaufwand bei der Lösung des resultierenden Gleichungssystems.

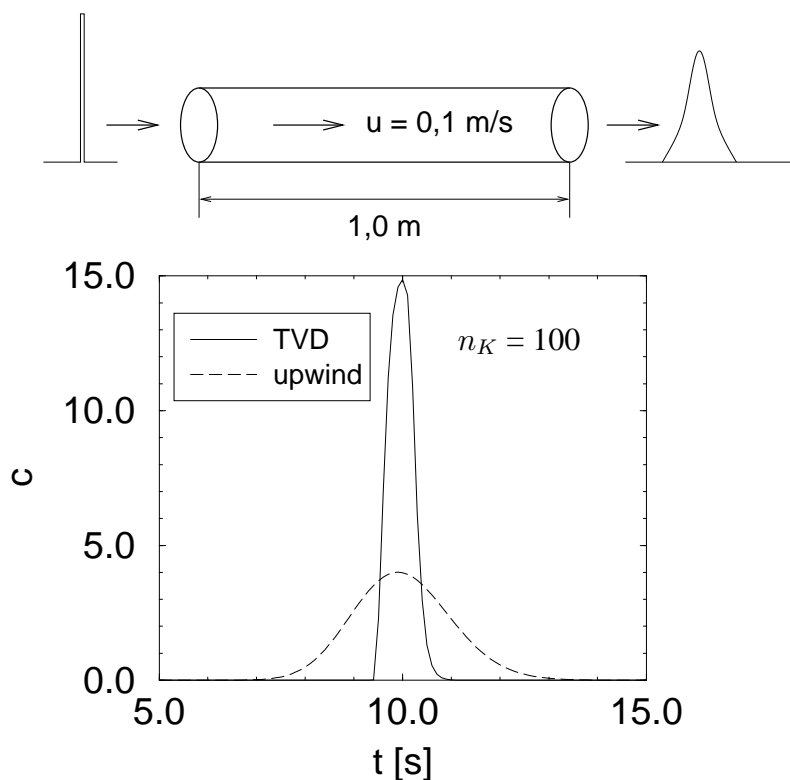


Abbildung 10: Puls in eindimensionaler Rohrströmung ohne Dispersion. Vergleich von Upwind- und TVD-Diskretisierung.

chungssysteme. Aus der Berechnung des Gradientenverhältnisses  $\theta$  ergeben sich für jede Raumrichtung Einträge auf zwei zusätzlichen Diagonalen der zu invertierenden Matrix.

Anhand des folgenden, einfachen Testbeispiels werden Upwind-, Hybrid- und TVD-Methode verglichen. Dabei wird der Transport einer pulsartig aufgebrachtene Spurstoffmarkierung durch ein Rohr simuliert. Die Ortsdiskretisierung erfolgt eindimensional mit finiten Volumina. Die Strömungsgeschwindigkeit beträgt  $0,1 \text{ m/s}$ , so dass das einen Meter lange Rohr in zehn Sekunden durchströmt wird. Wenn der, konstant angenommene, Dispersionskoeffizient gleich Null gesetzt wird, sollte das Eingangssignal das Rohr in unveränderter Form wieder verlassen. Abb. 10 zeigt den Vergleich für eine Diskretisierung mit hundert finiten Volumina. Da sich Upwind- und Hybrid-Methode erst ab  $Pe < 2$  unterscheiden, sind nur Ergebnisse für Upwind- und TVD dargestellt. In der Simulation ist der Eingangspuls als Rechtecksignal mit der Höhe 100 und der Breite  $0,01$  realisiert.

Bei Upwind-Diskretisierung wird der Rechteckpuls aufgrund der numerischen Dispersion sehr stark verschmiert, es kommt zu numerischer Dispersion mit einem Dispersionskoeffizienten von  $5 \cdot 10^{-4}$  (Gl. 59). Das mit der TVD-Methode berechnete Ausgangssignal entspricht noch in weit größerem Maße dem Eingangssignal, auch wenn seine Höhe immerhin von 100 auf ca. 15 redu-

	$Pe^{min}$	$\overline{Pe}$	$Pe^{max}$	$D_{eff}^{min}$ [m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]	$\overline{D_{eff}}$ [m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]	$D_{eff}^{max}$ [m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
1. $V_T = 67$ l, $n = 165$ 1/min, ein Rührer, Gitter 43·78 (s. Kap 6.1)	$9,5 \cdot 10^{-6}$	3,9	333,4	$2,5 \cdot 10^{-6}$	$4,9 \cdot 10^{-4}$	$1,2 \cdot 10^{-3}$
2. $V_T = 56$ m <sup>3</sup> , $n = 100$ 1/min, drei Rührer, Gitter 36·112 (s. Kap 7.2)	$3,4 \cdot 10^{-5}$	2,0	95,1	$2,2 \cdot 10^{-4}$	$3,9 \cdot 10^{-2}$	$9,6 \cdot 10^{-2}$

Tabelle 5: Gitter-Pecletzahlen und effektiver turbulenter Dispersionskoeffizient bei den Simulationen im Rührkesselreaktor.

ziert wird. Diese rein hyperbolische Situation ohne Dispersion ist allerdings für die Simulation von Stoffumsetzungen in der turbulenten Strömung in Rührkesselreaktoren nicht relevant. Entscheidend für den Einfluss der numerischen Dispersion ist hier die lokale Gitter-Pecletzahl und somit das Niveau der effektiven turbulenten Dispersionskoeffizienten und die Feinheit des Berechnungsgitters. In Tab. 5 sind für zwei typische, im Rahmen dieser Arbeit untersuchte Strömungssituationen die Extrem- und Durchschnittswerte von Pecletzahl  $Pe$  und effektivem turbulenten Dispersionskoeffizienten  $D_{eff}$  angegeben. Abb. 11 zeigt die Verteilung der Pecletzahl im Standardrührkesselreaktor (Strömungssituation Nr. 1 aus Tab. 5) für das radiale und axiale Gitter.

Die Pecletzahlen bewegen sich in einem weiten Spektrum zwischen starker Dispersions- bzw. Konvektionsdominanz. Die Betrachtung der Verteilung in Abb. 11 zeigt allerdings, dass die bezüglich numerischer Dispersion kritischen Bereiche mit hohen Pecletzahlen relativ eng begrenzt sind. Auf dem radialen Gitter sind das vor allem der Rührerausfluss und die in Bodennähe nach innen fließende Strömung. Im Rührerausfluss treten hohe Strömungsgeschwindigkeiten parallel zur Ausrichtung des Gitters auf, am Boden liegen zusätzlich sehr niedrige Werte von  $D_{eff}$  vor. Entsprechend sind auf dem axialen Gitter die Bereiche mit der in Wandnähe aufwärts- bzw. abwärtsgerichteten Strömung kritisch.

Abb. 12 zeigt den Vergleich der Diskretisierungsmethoden anhand der Simulation der Rohrströmung bei verschiedenen, für die Rührkesselsimulationen relevanten Gitter-Pecletzahlen und einem Dispersionskoeffizienten von  $D_{eff} = 5 \cdot 10^{-4}$  m<sup>2</sup>/s.

Eine Referenzlösung ist nicht dargestellt, da das Ergebnis der TVD-Simulation nicht von dieser zu unterscheiden ist. Bei  $Pe = 1$  hat auch das Hybrid-Verfahren eine höhere Diskretisierungsgenauigkeit und führt zu einem sehr guten Ergebnis, während der Verlauf mit reiner Upwind-Diskretisierung auch bei dieser niedrigen Pecletzahl noch von der Referenzlösung abweicht. Diese Abweichung nimmt mit der Pecletzahl noch erheblich zu. Der Testfall mit der genau in Gitterrichtung wandernden Rechteckfunktion stellt allerdings auch eine „worst case“ Betrachtung dar, wie sie bei den realen Simulationen des Stofftransports im Rührkessel nur unter sehr ungünstigen Be-

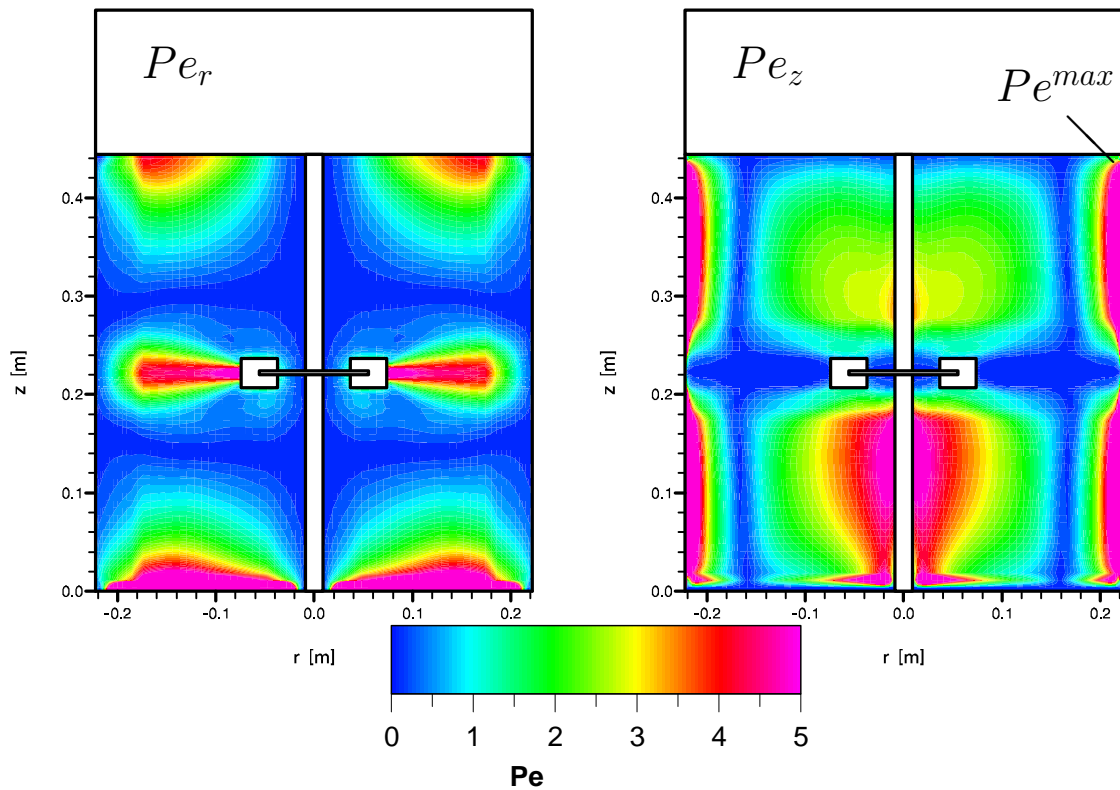


Abbildung 11: Verteilung der Gitter-Pecletzahl im Standardrührkesselreaktor bei  $n = 165$  1/min. Links auf dem radialen, rechts auf dem axialen Gitter. Gitterauflösung 43·78.

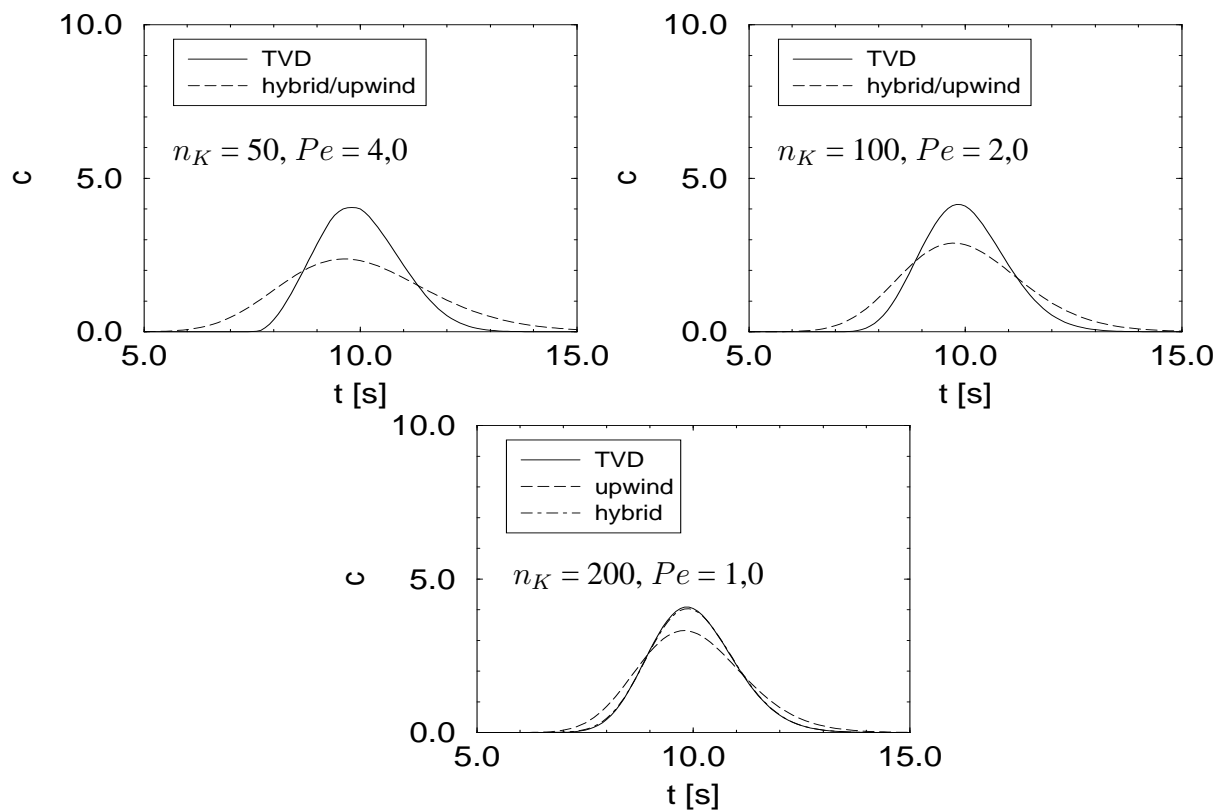


Abbildung 12: Pulsantwort in eindimensionaler Rohrströmung bei  $D_{eff} = 5 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$ .

dingungen vorliegt. Deshalb kann davon ausgegangen werden, dass für die Berechnungen im Rührkesselreaktor bei üblichen Betriebsbedingungen und der verwendeten Gitterauflösung mit dem Hybrid-Verfahren eine ausreichende Diskretisierungsgenauigkeit erzielt wird. Wenn nicht anders erwähnt, wird bei allen im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten axialsymmetrischen Simulationen das Hybrid-Verfahren, bei den dreidimensionalen Berechnungen die Upwind-Diskretisierung verwendet. In manchen Bereichen des Rührkessels liegen allerdings so hohe Gitter-Pecletzahlen vor, dass erhebliche numerische Dispersion möglich ist. Aus Gl. 59 wird jedoch klar, dass dies nur dann zwangsläufig zu signifikanten Fehlern führt, wenn diese in Verbindung mit Konzentrationsgradienten in Koordinatenrichtung auftreten.

Für Simulationen auf Gittern, die gegenüber der Strömungssimulation vergrößert werden, muss jedoch auf jeden Fall mit einer TVD-Methode oder einer anderen hochauflösenden Diskretisierung gearbeitet werden, um aussagekräftige Ergebnisse zu erhalten.

Zu Beginn dieses Abschnitts wurde erwähnt, dass die Ortsdiskretisierung der Dispersionsterme mit Zentralkoeffizienten erfolgt. Auch dabei können die Dispersionskoeffizienten auf den Kontrollvolumengrenzen mit verschiedenen Methoden berechnet werden. Neben linearer Interpolation (dreidimensionale Simulationen) kommt im Rahmen dieser Arbeit für die axialsymmetrischen Simulationen harmonische Interpolation [100] zum Einsatz.

### 5.2.3 Simulationen auf der Basis dreidimensionaler Strömungsfelder

Simulationen der Stoffbilanzen im Rührkesselreaktor mit dreidimensionaler Ortsdiskretisierung werden mit dem Softwarepaket *UG* (Unstructured Grids [16]) durchgeführt. *UG* wurde am Institut für Computeranwendungen III der Universität Stuttgart mit der Zielsetzung gestaltet, einen flexiblen Rahmen für die Entwicklung und Anwendung moderner numerischer Methoden, wie parallelen Mehrgitterverfahren auf unstrukturierten Gittern und lokaler Gitterverfeinerung, zur Verfügung zu stellen. Für die Diskretisierung und Lösung partieller Differentialgleichungen kann dabei für verschiedene Problemklassen auf vorhandene Module und zahlreiche numerische Routinen zurückgegriffen werden, während gleichzeitig jederzeit die Möglichkeit zur Integration neuer Module besteht. *UG* verwendet eine grafische Datenstruktur und erlaubt die Verwendung beliebiger Diskretisierungselemente. Die Initialisierung und Konfigurierung einer Simulation erfolgt in Skripten, innerhalb derer eine eigene *UG*-Befehlssprache verwendet wird. Die Simulation wird von einem *UG*-Shell aus gesteuert. Zusätzlich steht zur Beobachtung der Berechnungsergebnisse eine Online-Grafik zur Verfügung.

Für die Diskretisierung des Rührkesselreaktors werden zunächst die das Lösungsgebiet begrenzenden Flächen in einer von *UG* vorgegebenen Form von Funktionen in der Programmiersprache C definiert. Auf diesen wird ein Basisgitter aufgespannt, aus dem durch mehrmalige Verfeinerung das Gitter für die Simulation entsteht. Abb. 13 zeigt ein Basisgitter sowie ein dreifach verfeinertes



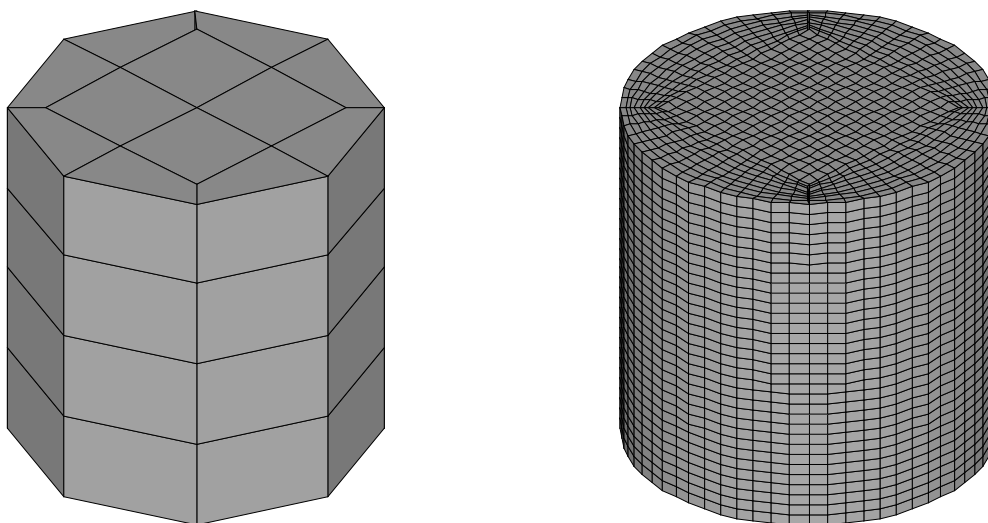


Abbildung 13: Basisgitter des Rührkessels in *UG* und seine dritte Verfeinerungsstufe.

#### Gitter für den Rührkesselreaktor.

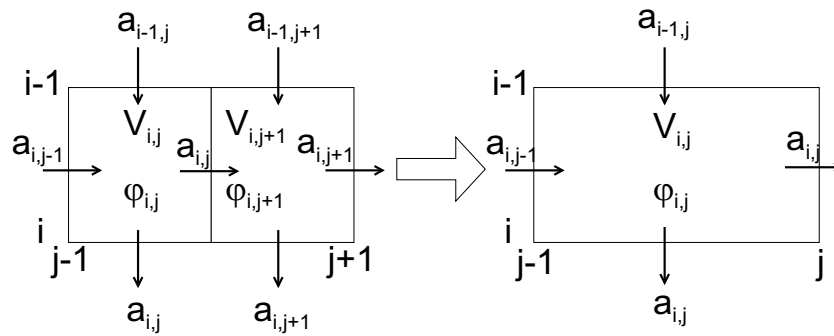
Die Ortsdiskretisierung erfolgt mit dem Upwind-Verfahren (s. Kap. 5.2.2) auf finiten Volumen, die Unbekannten liegen auf den Gitterknoten. Für die Behandlung der dünn besetzten Blockmatrizen, die aus den verkoppelten reaktionskinetischen Modellen entstehen und an jedem Knoten zu speichern sind, wurde von Neuss [92] eine effiziente Sparse-matrix-Darstellung entwickelt und implementiert. Da die Gitterstruktur von derjenigen aus der Simulation der Fluidodynamik in PHOENICS abweicht, werden die fluiddynamischen Koeffizienten (Dispersionskoeffizienten und Strömungsgeschwindigkeiten) durch lineare Interpolation auf das *UG*-Gitter transferiert. In einem ersten Schritt wird anschliessend ein Korrektur-Vektorfeld berechnet, um die Divergenzfreiheit des interpolierten Geschwindigkeitsfeldes auf dem neuen Gitter zu gewährleisten. Die Zeitintegration erfolgt mit einem Newton-Verfahren zweiter Ordnung. Für die Lösung des resultierenden linearen Gleichungssystems kommt ein Mehrgitterverfahren zum Einsatz. Grundlagen der Mehrgittermethoden betreffend sei auf [46] verwiesen, Details der in *UG* implementierten Variante werden von Bastian [14] [15] ausführlich dargestellt. Als Glättungsmethode sowie als Basislöser in den linearen Mehrgitterzyklen wird Gauss-Seidel-Iteration verwendet.

Die Implementierung der für die Simulation von Stoffbilanzen im Rührkesselreaktor notwendigen Module in *UG* wurde unter maßgeblicher Beteiligung von Dr. Nicolas Neuss (Interdisziplinäres Zentrum für Wissenschaftliches Rechnen (IWR), Heidelberg) durchgeführt.

### 5.2.4 Gitterreduktion

Die entkoppelte Simulation von Fluidodynamik und Stoffumsetzung erlaubt die Bearbeitung der beiden Fragestellungen auf unterschiedlichen Gittern. Eine sehr nützliche Option, die sich aus der Entkopplung ergibt, ist die Reduktion eines dreidimensionalen Strömungsfeldes auf zwei Dimensionen zur axialsymmetrischen Simulation einer Stoffumsetzung. Allgemein kann jedes Gitter durch Herausstreichen einzelner Kontrollvolumen auf ein gröberes Gitter reduziert werden. Eine Gitterverfeinerung gegenüber der Strömungssimulation ist prinzipiell möglich, wegen der dann fehlenden Detailinformation über die Strömungsverhältnisse allerdings nur bedingt sinnvoll.

Bei der Gitterreduktion werden Geschwindigkeitskomponenten auf wegfallenden Kontrollvolumengrenzen einfach gestrichen, da für die Stoffbilanzierung nur die Volumenströme über die Ränder des neuen, größeren Volumenelements von Bedeutung sind. Das reduzierte Gitter entsteht durch sukzessive Zusammenfassung von Kontrollvolumen in den drei Raumrichtungen. Beim zugrunde liegenden Einzelschritt zur Zusammenfassung zweier Kontrollvolumen werden die konvektiven Ströme über die Seitenflächen aufaddiert, die restlichen Größen ( $\varphi = \epsilon, k, \epsilon_G, p$ ) werden volumengemittelt addiert:



$$\varphi_{i,j} = \frac{\varphi_{i,j} V_{i,j} + \varphi_{i,j+1} V_{i,j+1}}{V_{i,j} + V_{i,j+1}} \quad (74)$$

$$V_{i,j} = V_{i,j} + V_{i,j+1} \quad (75)$$

$$a_{i-1,j} = a_{i-1,j} + a_{i-1,j+1} \quad (76)$$

$$a_{i,j} = a_{i,j} + a_{i,j+1} \quad (77)$$

Dispersive Stoffströme werden auf dem neuen Gitter mit den neuen  $\Delta x_i$  berechnet, wobei für  $D_{eff}$  die genaueste mögliche Näherung auf dem alten, feinen Gitter verwendet wird.

Abb. 14 zeigt am Beispiel des Vierfachrührersystems aus Kap. 7.1 eine weitgehende Reduktion des Geschwindigkeitsfeldes aus einer dreidimensionalen Strömungssimulation auf ein einfaches Kompartimentmodell. Untersuchungen zu den Auswirkungen einer solchen Gitterreduktion sind in Kap. 7.1.2 dargestellt.

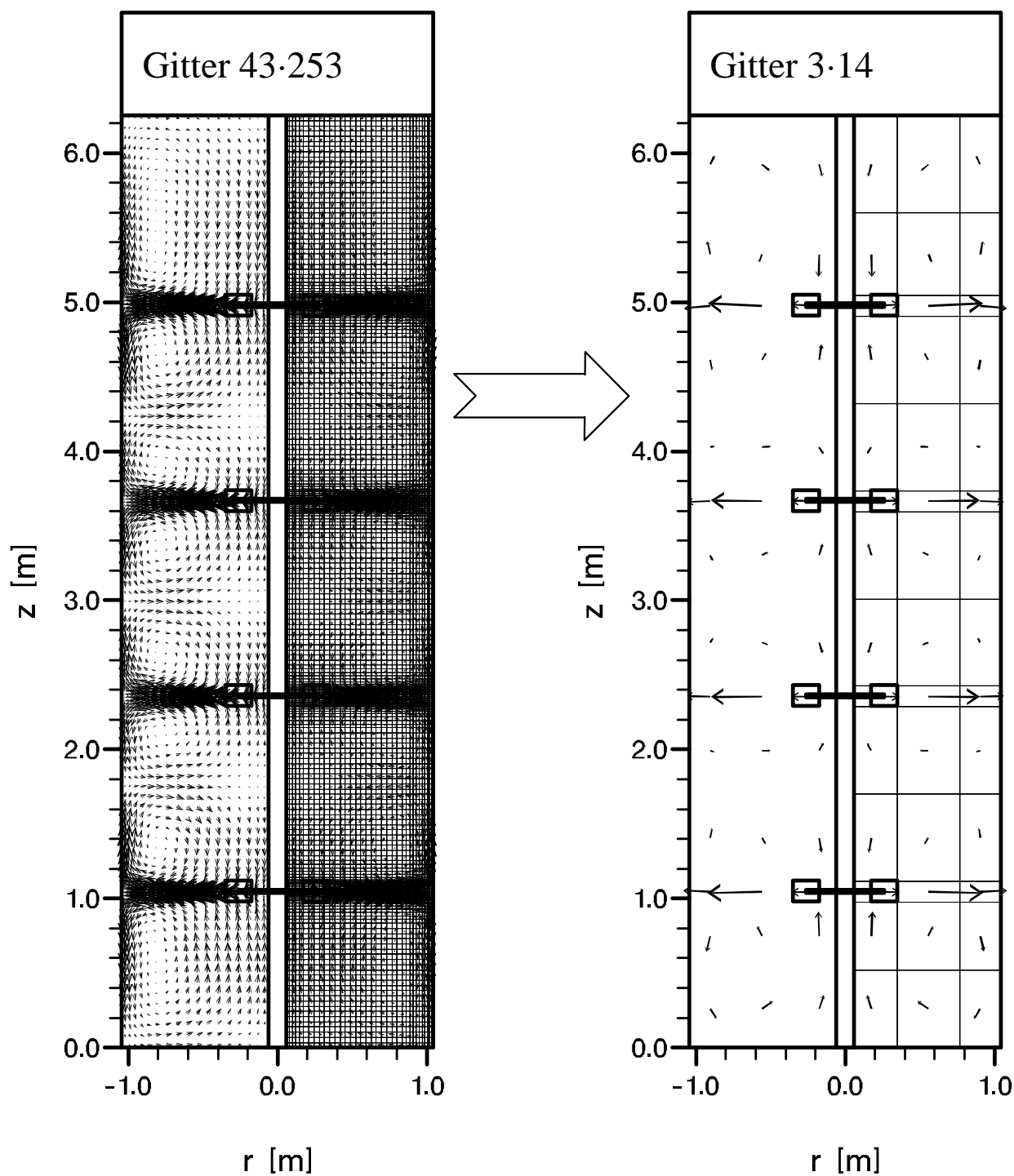


Abbildung 14: Beispiel für die Gitterreduktion.

Das Werkzeug zur Gitterreduktion wird darüber hinaus zur Umwandlung der Strömungsdaten in das von *UG* benötigte Format sowie zur Berechnung der Gasphasengeschwindigkeiten nach dem *algebraic-slip*-Ansatz (s. Kap. 3.2.2) eingesetzt.