

## Tomographische Visualisierung des Tropfenaufbruchs beim Hochdruckhomogenisieren mit Blenden in einem skalierten Versuchsstand

### Tomographic visualization of droplet break-up during high-pressure homogenization with orifices in a scaled test

B. Mutsch, C. J. Kähler

Institut für Strömungsmechanik und Aerodynamik, Universität der Bundeswehr München, Werner-Heisenberg-Weg 39, 85577 Neubiberg

#### Zusammenfassung

Der Zerfallsprozess von Tropfen beim Hochdruckhomogenisieren in Versuchsanlagen im Originalmaßstab kann in seinen Details optisch nicht beobachtet werden, da die relevanten Dimensionen zu klein sind (Blendendurchmesser  $< 0,5$  mm, Tropfendurchmesser  $0,1 - 10$   $\mu\text{m}$ ). Daher wurde ein optisch zugänglicher und mit dem Maßstabsfaktor ( $\Psi$ ) 50 skaliertes Versuchsstand entwickelt. In diesem Versuchsstand ist es möglich, Strömungscharakterisierungen mittels PIV durchzuführen und den Tropfenaufbruch mittels Hochgeschwindigkeitsaufnahmen im Detail zu beobachten und qualitativ auszuwerten. Durch die Verwendung von mehreren Hochgeschwindigkeitskameras wurde es möglich, den Tropfen nach dem Austritt aus der Zerkleinerungseinheit tomografisch zu rekonstruieren. Die Ergebnisse liefern wertvolle Informationen über den Tropfenaufbruch bei der Hochdruckhomogenisierung.

#### Einleitung

In der Chemischen-, Pharmazeutischen- und der Lebensmittelindustrie werden Emulsionen in vielen Bereichen produziert. Die Eigenschaften der Produkte hängen dabei zu einem wesentlichen Teil von der Tropfengröße und -verteilung ab. Der Größenbereich zwischen  $100$  nm und  $10$   $\mu\text{m}$  wird für viele Anwendungen benötigt und kann mittels Hochdruckhomogenisieren bei geeigneter Viskosität gut hergestellt werden.

Beim Hochdruckhomogenisieren wird eine Rohemulsion mittels Hochdruck (einige  $100$  bis  $100$  bar) durch eine Zerkleinerungseinheit gefördert, in der eine Blende mit einem sehr geringen Kanaldurchmesser (Mikrometerbereich) vorliegt. Durch diesen Prozessschritt werden die groben Tropfen der Rohemulsion in die gewünschte Tropfengröße zerkleinert.

Die Tropfendeformation und der Tropfenaufbruch können in laminaren Strömungen anhand der äußeren angreifenden Spannungen  $\sigma$ , des Tropfenradius  $r$  und der Grenzflächenspannung  $\gamma$  beschrieben werden. Diese Parameter werden in der dimensionslosen Kapillarzah  $Ca = \sigma r / (2\gamma)$  zusammengefasst. In turbulenten Strömungen werden Tropfendeformation und Tropfenaufbruch mittels der dimensionslosen Reynoldszahl  $Re = uL\rho_c/\eta_c$  – gebildet, aus der mittleren Strömungsgeschwindigkeit  $u$ , der charakteristischen Länge  $L$  und der Dichte  $\rho_c$  sowie der dynamischen Viskosität  $\eta_c$  der äußeren angreifenden Phase (Index c für continuous phase) – und der Weberzahl  $We = Ca \cdot Re$  charakterisiert (Grace H. P. 1982).

Dieser Ansatz, der für einzelne Tropfen und nicht für Tropfenkollektive aufgestellt wurde, ermöglicht die Berechnung von kritischen Zuständen. Diese müssen für eine ausreichend lange Zeit überschritten werden, damit es zum Tropfenaufbruch kommt (Walstra P. 1983).

Industriell relevante Emulsionen werden großtechnisch meist mit möglichst einfachen Mitteln und möglichst energieeffizient in verschiedenen empirisch entwickelten Apparaturen bzw. mit verschiedenen Methoden produziert.

Wissenschaftliche Untersuchungen beschäftigten sich in der Vergangenheit oft mit der Bestimmung der kritischen Beanspruchungsbedingungen vor allem in laminaren Strömungen (Taylor 1934, Bentley und Leal 1986), wohingegen neuere Untersuchungen sich auf die

technisch relevanteren überkritischen Bedingungen bzw. auf turbulente Strömungen fokussieren (Swartz und Kessler 1970, Karabelas 1978).

Systematische Versuche zur Ermittlung der Zusammenhänge zwischen erhaltener Tropfengrößenverteilung in Bezug auf die Prozessbedingungen wurden von Karbstein 1994 durchgeführt, wobei die Tropfengröße offline gemessen wurde. Kolb et al. 2001 und Bude et al. 2002 waren die ersten, die den Tropfen während des Durchlaufens skalierte Zerkleinerungseinheiten mit Hochgeschwindigkeitsaufnahmen visualisieren konnten. In anderen Untersuchungen (Duxenneuner et al. 2014, Schlender et al. 2015) wurde ebenfalls online gemessen, allerdings wurde nicht der Tropfenaufbruch an sich, sondern die Vorgänge, die zur Zerkleinerung führen könnten, analysiert. Damit die Messung des Tropfenaufbruchs den Vorgang an sich nicht beeinflusst, werden in neueren Untersuchungen optische Messverfahren (Hakansson et al. 2010) und optisch zugängliche Hochdruckhomogenisierapparaturen verwendet (Innings und Trägårdh 2005, Kelemen et al. 2015). Trotz großer Strömungsgeschwindigkeiten können mit der Particle Image Velocimetry (PIV) verlässliche Strömungsgeschwindigkeiten in Mikrokanälen gemessen werden (siehe Cierpka und Kähler 2011 sowie Kähler et al. 2016), systematische Parametervariationen sind in diesem Mikrometermaßstab allerdings nicht verlässlich möglich.

In diesem Projekt wird daher eine mit dem Maßstabsfaktor 50 skalierte Hochdruckhomogenisierapparatur verwendet. Die Zerkleinerungseinheit ist optisch zugänglich, sodass mittels PIV detaillierte Strömungsmessungen vorgenommen werden können und der Tropfenzerfall mit mehreren Hochgeschwindigkeitskameras untersucht werden kann.

## Versuchsaufbau und Methoden

### Versuchsstand

Die Strömungscharakterisierung und die Untersuchungen zum Tropfenaufbruch werden in einer mit dem Maßstabsfaktor 50 skalierten horizontalen Versuchsanlage durchgeführt. Die Zerkleinerungseinheit sowie der Einlaufbereich und der Nachlauf bestehen aus Glas bzw. Acrylglas, sodass alle Bereiche der Zerkleinerungseinheit mit optischen Messmethoden untersucht werden können.

Der Versuchsstand zur Durchführung der Strömungscharakterisierung und der Untersuchung der Tropfenaufbruchvorgänge ist in Abbildung 1 dargestellt.

Die kontinuierliche Phase wird im Versuchsstand von einer Kreislumpumpe (CME 10, Grundfos) auf den gewünschten Vordruck gebracht und so in der Anlage zirkuliert. Zu Beginn der

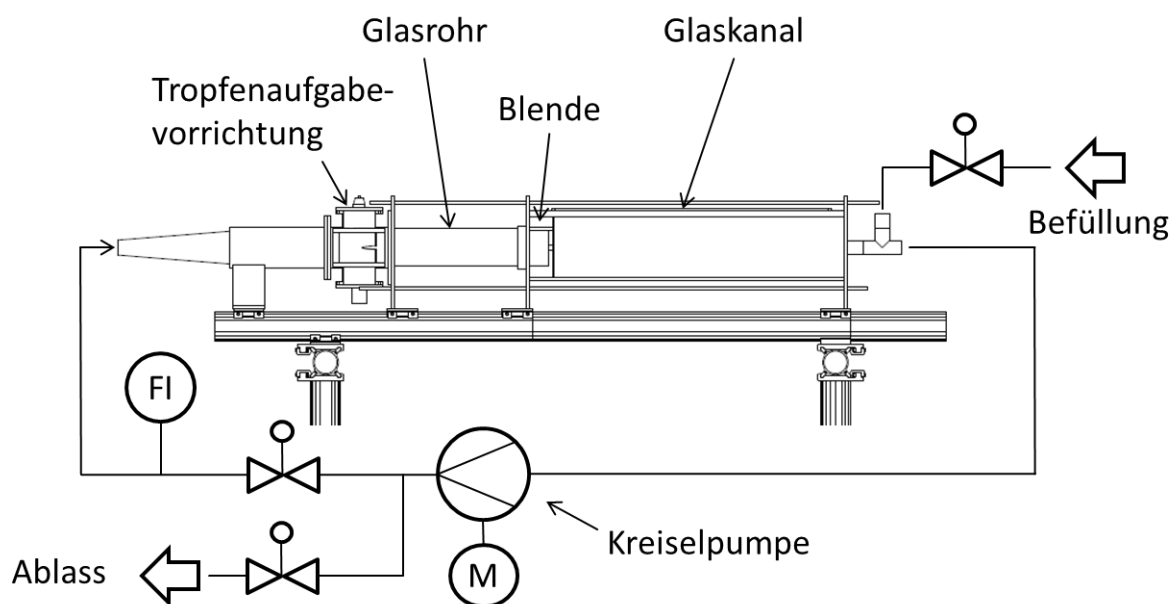


Abbildung 1: Schematische Darstellung des Versuchsstands

Messstrecke wird der Strömungsquerschnitt konisch mit einem Öffnungswinkel von  $9^\circ$  auf einen Innendurchmesser von 101 mm aufgeweitet. Nach dieser Aufweitung wird die Strömung durch einen Strömungsgleichrichter mit einem Wabendurchmesser von 1,6 mm und einem  $l/d$ -Verhältnis von 17,5 laminarisiert. Nach dem Durchfließen der Tropfenaufgabestelle strömt die kontinuierliche Phase durch ein Glasrohr der Länge 400 mm mit einem Innendurchmesser von 101 mm in die Blende. Diese besteht aus Acrylglas und ist somit ebenfalls optisch zugänglich. Verschiedene Blendengeometrie wurde in früheren Versuchen untersucht (Mutsch und Kähler 2017). Als Ergebnis dieser Untersuchungen hat sich gezeigt, dass die in Abbildung 2 gezeigte Blende sich sehr gut für systematische Untersuchungen eignet, da sie nur gering zu Kavitation neigt, der entstehende Freistrahл hinter der Blende charakteristisch für andere verwendete Blenden ist und weitere Parameterstudien in dieser Blende vergleichsweise einfach durchzuführen sind. Der Blendendurchmesser  $d$  der untersuchten Blenden beträgt 10 mm, die Blendenlänge 20 mm ( $2d$ ) und der Rundungsradius, durch den sie sich von einer normalen Lochblende unterscheidet,  $2d$ .

Hinter der Blende strömt das Fluid in einen quadratischen Auslaufkanal aus Glas mit einer Kantenlänge von 200 mm. Von dort fließt es zurück zur Kreispumpe.

Die disperse Phase wird an der Tropfenaufgabestelle mithilfe einer Spritzenpumpe durch eine Kapillare in die kontinuierliche Phase tropfenweise zugegeben. Um die Strömung der kontinuierlichen Phase nicht zu stören, ist die Kapillare von einem stromlinienförmigen Körper ummantelt. Diese Tropfenaufgabevorrichtung kann radial, stufenlos verfahren werden, sodass der Aufgabepunkt variiert werden kann. Dies ist notwendig, um den Effekt der Vordeformation des Tropfens auf das Zerfallsverhalten zu analysieren.

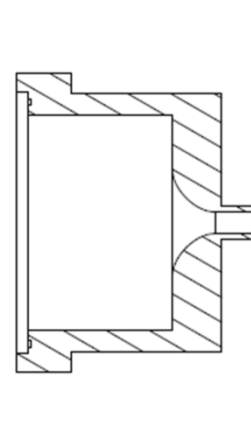


Abbildung 2: Kontur der verwendeten Blende

### Messtechnik

Das Tropfenaufbruchsverhalten wurde im Versuchsstand mittels Hochgeschwindigkeitskameras im Schattenverfahren aufgenommen. Dazu wurden vier Hochgeschwindigkeitskameras (Photron, Fastcam SA-Z) verwendet. Die Bildrate der Aufnahmen beträgt 72 kHz und die Belichtungszeit  $4 \mu\text{s}$ . Der Sichtbereich pro Kamera beträgt ca. 21 mm mal 64 mm und die Auflösung  $1/14 \text{ mm/px}$ . Die Hintergrundbeleuchtung der Aufzeichnungen wurde durch 4 extrem homogene und helle LED-Paneele erzeugt. Durch Bildbearbeitungsschritte kann der Tropfen maskiert und vom Hintergrund extrahiert werden.

In einer ersten Versuchsreihe wurden jeweils zwei Hochgeschwindigkeitskameras im Winkel von  $90^\circ$  zueinander auf den Nachlauf hinter der Blende fokussiert, um die räumliche Deformation der Tropfen zu erfassen. Das zweite Kamerapaar ist auf einen Bereich etwas weiter stromabwärts ausgerichtet, damit die verschiedenen Stadien des Tropfenaufbruchs erfassen zu können. Abbildung 3 (links) zeigt den Versuchsaufbau schematisch. Durch diesen Aufbau war es möglich, den Tropfen nach Verlassen der Blende während der Deformation bis zum Zerfall aus zwei Blickrichtungen fortlaufend zu verfolgen. Anhand dieser Aufnahmen bzw. der maskierten Bilder, konnte durch die Verwendung der beiden um  $90^\circ$  versetzten Blickrichtungen eine Triangulation des Tropfens erfolgen und so eine 3D Darstellung des Tropfens während der Deformation erzeugt werden. Dieses Model eignet sich sehr gut zur Positionsbestimmung des Tropfens beim Verlassen der Blende sowie im weiteren Verlauf.

Um die Genauigkeit der 3D-Rekonstruktion zu erhöhen und das Auftreten von Geistertropfen zu verringern, wurden in einem zweiten Versuchsaufbau drei Hochgeschwindigkeitskameras auf ein Teilvolumen ausgerichtet, in dem die physikalisch interessanten Phänomene stattfinden (siehe Abbildung 1 rechts).

## Ergebnisse und Diskussion

Die beim Tropfenaustritt aus der Blende aufgenommenen Rohbilder wurden jeweils vom Hintergrundbild subtrahiert, sodass der Tropfen besser hervortritt und die Charakterisierung nicht durch Hintergrundstörungen beeinflusst wird. Durch die Ausrichtung der vier Kameras auf zwei aneinander anschließende Volumen kann der Tropfen durch zusammenfügen der Kamerapaaire mit derselben Blickrichtung durchgehend analysiert werden, wie die Aufnahme des Tropfenaufbruchs vom Austritt aus der Blende bis zum Zerfall des Tropfens in Abbildung 4 zeigt.

Zudem können diese Bilder zur weiteren Verarbeitung binarisiert und gefiltert werden. In Abbildung 5 sind die Ergebnisse der einzelnen Bearbeitungsschritte dargestellt, die von einem Rohbild zu einem binarisierten Bild führen. Die fertig binarisierten Bilder sind geeignet, um die Tropfenposition durch die Verwendung der verschiedenen Blickwinkel zu triangulieren. Abbildung 6 zeigt den zeitlichen Verlauf eines Tropfens beim Austritt aus der Blende. Es ist deutlich erkennbar, dass der Tropfen zunächst als lang gestrecktes Filament aus der Blende austritt. Diese Deformation erfolgt durch die Konvektive Beschleunigung vor dem Eintritt in die Blende. Im Blendenkanal und im Kernbereich des Freistrahls hinter der Blende findet keine weitere Deformation des Filaments statt. Ab einer Lauflänge von ca. 3 Blendendurchmessern hinter der Blende beginnt der Tropfen sich leicht zu wellen. Diese mäandrierförmige Struktur wird beim Übergang des Tropfens aus dem Freistrahlkern in die turbulente Scherschicht weiter angefacht. Sobald der gestreckte Tropfen teilweise in die Scherschicht eintritt und mit den turbulenten Strömungsstrukturen interagiert, wird der Tropfen räumlich stark deformiert. Diese Deformationen führen zu einem Verwinden und Zerreißen des Filaments in einzelne Bruchstücke. Diese Filamentteile werden beim weiteren Durchlaufen der Scherschicht verstärkt deformiert und gestreckt, bis sie in feine Tropfen zerfallen.

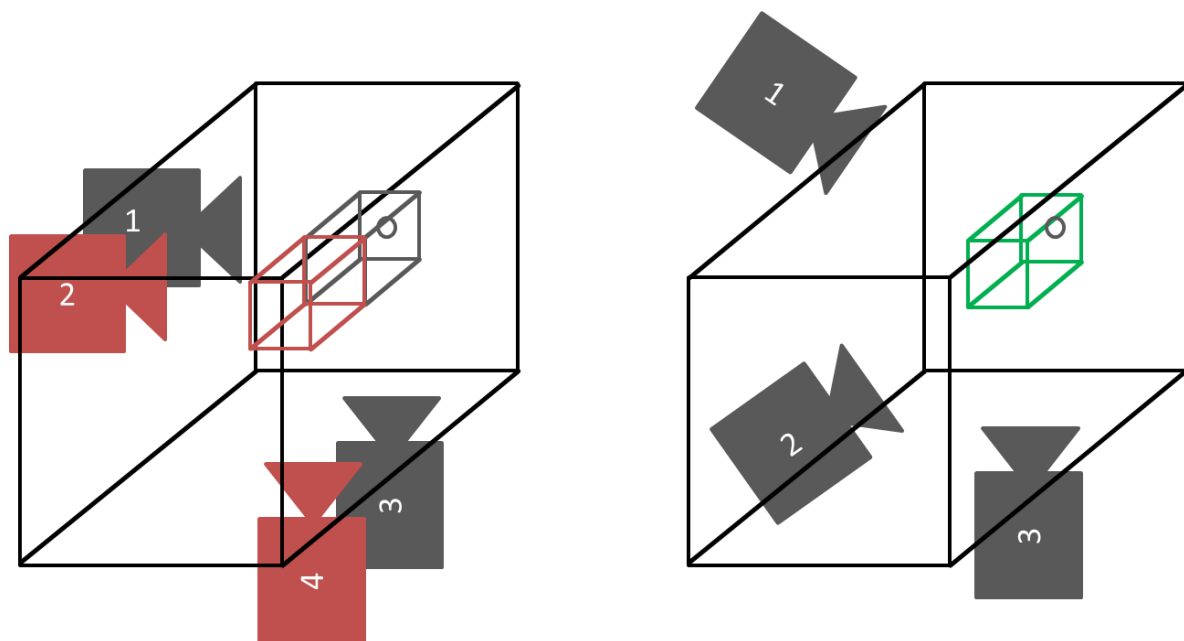


Abbildung 1: Schematische Darstellung des Kameraaufbaus und des Messbereichs

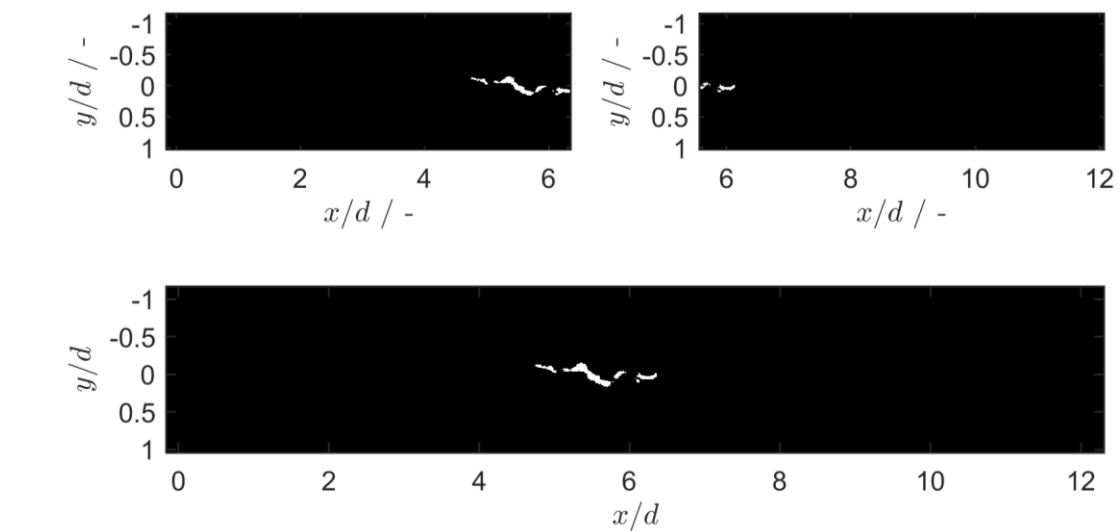


Abbildung 4: Zusammenfügen zweier Kamerabilder zu einem Einzelnen ermöglicht das Erfassen des gesamten Tropfenaufbruch

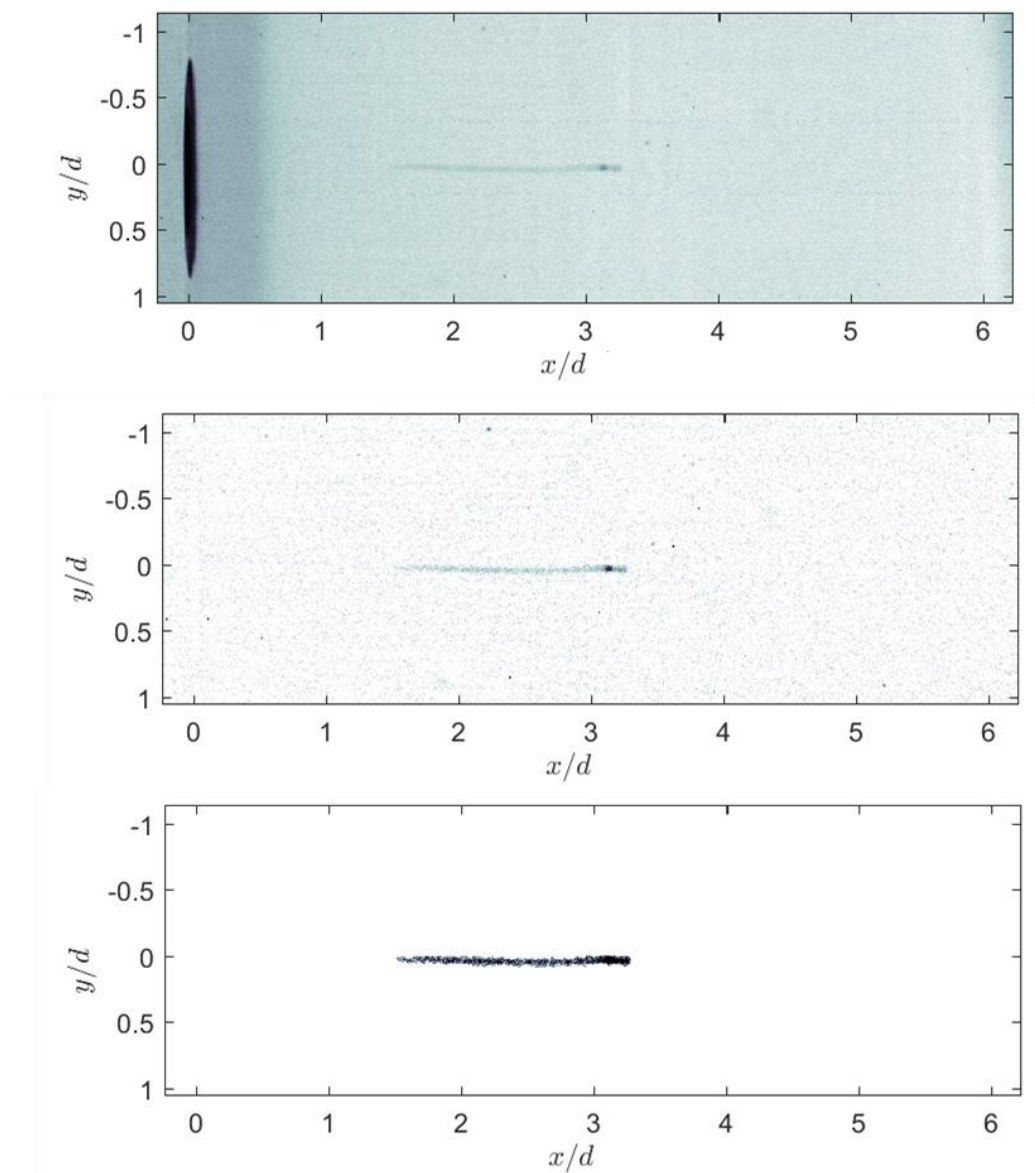


Abbildung 5: Vergleich des Rohbildes mit dem bearbeiteten und fertig maskierten Bild

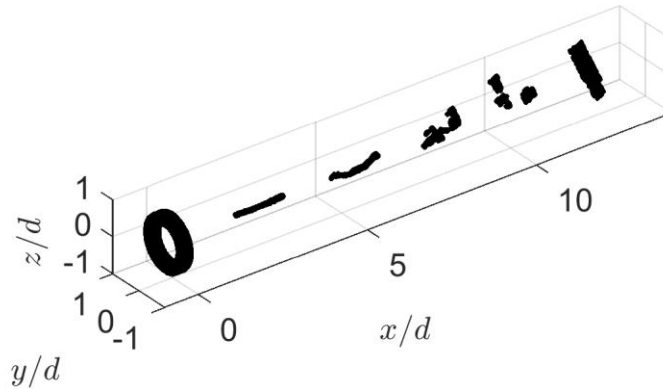


Abbildung 6: Zeitlicher Verlauf des Tropfens nach dem Austritt aus der Blende

Damit der beschriebene Tropfenaufbruch genauer untersucht werden kann, muss die Austrittsposition aus der Blende als Ausgangspunkt für die im späteren Verlauf einwirkenden Beanspruchungen bestimmt werden. Dazu können die ermittelten 3D-Daten verwendet werden. Um den Austrittspunkt aus der Blende und die damit verbundenen Beanspruchungen gezielt untersuchen zu können, ist die Tropfenaufgabevorrichtung radial verschiebbar. Dadurch können gezielt unterschiedliche Beanspruchungen für die aufgegebenen Tropfen erzeugt werden. Abbildung 7 zeigt die Austrittsposition von jeweils 25 Tropfen bei der Austrittsposition auf der Symmetrieachse und einem um einen Blendendurchmesser radial nach außen verschobenem Tropfenaufgabepunkt.

Es wird deutlich, dass die Tropfen sehr gut reproduzierbar an derselben Position austreten.

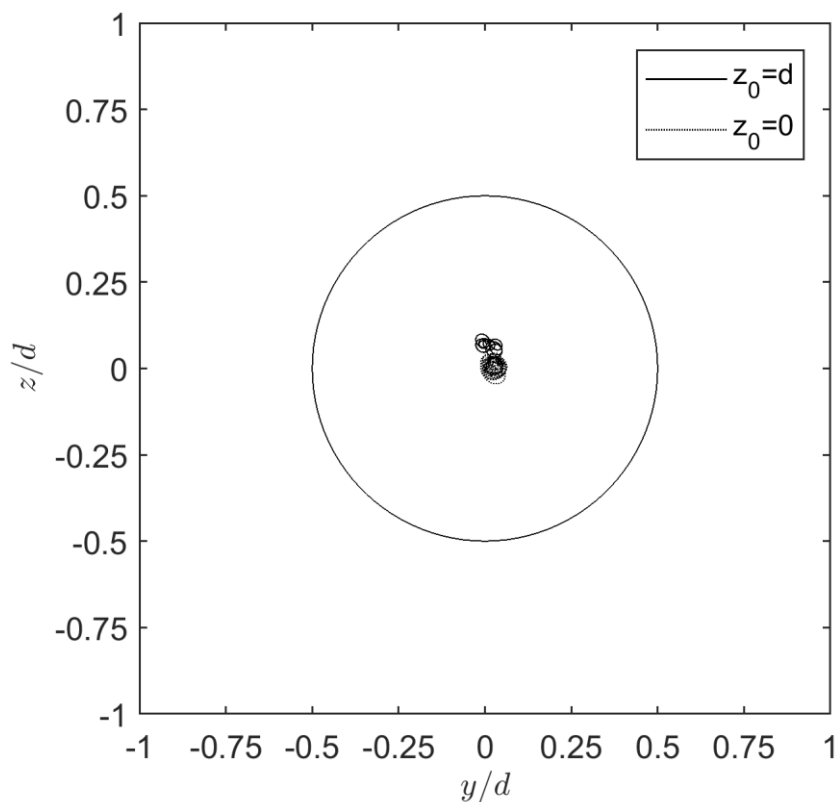


Abbildung 7: Vergleich der Tropfenaustrittsposition aus der Blende bei der Tropfenaufgabe auf der Symmetrieachse ( $z_0 = 0$ ) und einer um  $d$  radial verschobenen Aufgabeposition ( $y_0 = d$ )

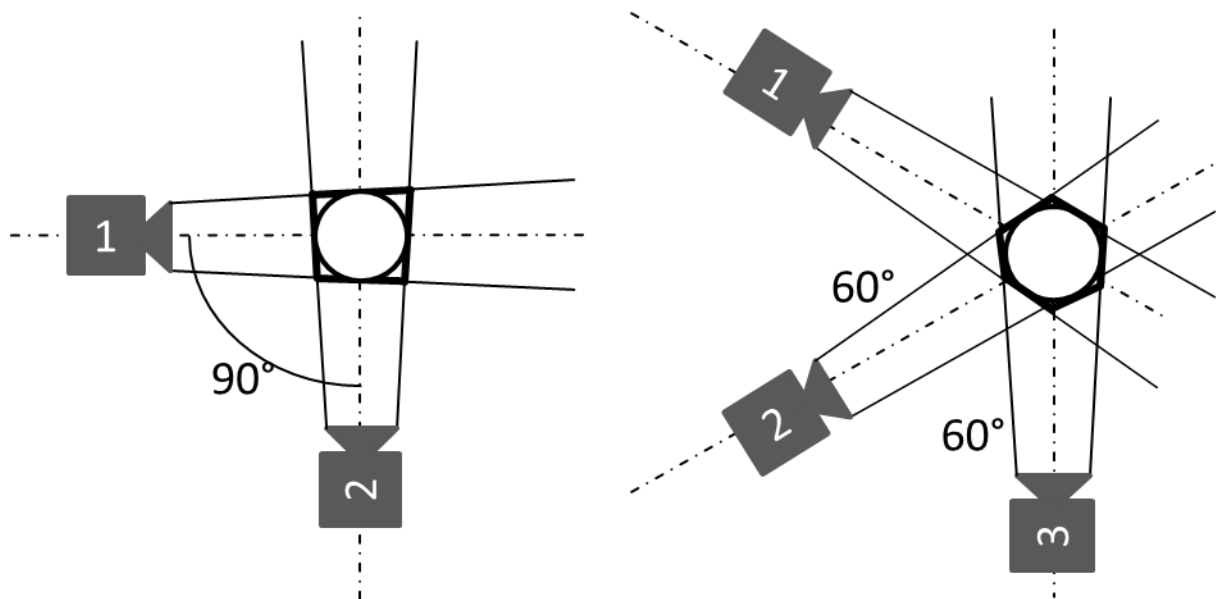


Abbildung 8: Vergleich der Rekonstruktionsgenauigkeit bei der Verwendung von 2 bzw. 3 Kameras

Die sehr gute Reproduzierbarkeit impliziert, dass die Anströmung der Blende laminar ist, was auf die langsame Querschnittserweiterung und die stromlinienförmige Tropfenaufgabevorrichtung zurückgeführt werden kann. Durch die Variation der Aufgabeposition kann die Beanspruchung der Tropfen im Nachlauf der Blende systematisch untersucht werden.

Zur genaueren Untersuchung des Tropfenzerfalls und zur Verbesserung der Genauigkeit der 3D-Rekonstruktion wurden in weiteren Untersuchungen drei Hochgeschwindigkeitskameras auf dasselbe Volumen ausgerichtet. Durch die Verwendung von drei Kameras konnte der Blickwinkel zwischen den Kameras von  $90^\circ$  auf  $60^\circ$  reduziert werden, was eine genauere Begrenzung des rekonstruierten Tropfenvolumens ermöglicht (siehe Abbildung 8). Zudem kann durch die Verwendung einer dritten Kamera die Rekonstruktion von Geisterpartikeln weitestgehend verhindert werden.

### Zusammenfassung und Ausblick

Zur Visualisierung des Tropfenzerfalls in einer skalierten Hochdruckhomogenisiereinheit wurde eine Versuchsanlage aufgebaut, die mit dem Maßstabsfaktor 50 skaliert wurde. Die Visualisierung der Tropfen erfolgt anhand des Schattenbildverfahrens mit drei bzw. vier Hochgeschwindigkeitskameras gleichzeitig. Dadurch ist es möglich, den gesamten Tropfenzerfall vom Austritt aus der Blende bis zur vollkommenen Zerstäubung unterhalb der Auflösungsgrenze zweidimensional aufzunehmen. Durch Fokussierung mehrerer Kameras auf dasselbe Volumen kann aus den 2D Daten ein 3D Model des Tropfens erstellt werden. Aus diesem Model lässt sich die Austrittsposition aus der Blende, sowie die Bewegung des Tropfens beim Durchlaufen der Freistrahlekernströmung als auch der Scherschicht quantitativ bestimmen. Durch die 3D-Positionsbestimmung kann gezeigt werden, dass die Austrittsposition aus der Blende bei gleicher Tropfenaufgabeposition sehr gut reproduzierbar ist. Die gute Reproduzierbarkeit wird durch die strömungsmechanisch optimierte Anströmung der Blende erreicht, die in Vorversuchen analysiert wurde (Mutsch und Kähler 2017).

Die Aufnahmen zum Tropfenzerfall zeigen, dass der Tropfen im Kernbereich des Freistrahls nur geringfügig deformiert wird, sodass der vorgestreckte, zu einem Filament gedehnte Tropfen nur leicht mäandert. Beim Eintritt in die Scherschicht wird der Tropfen dann in alle Raumrichtungen stark deformiert. Infolge der Deformation zerreißt der Tropfen teilweise in größere Bruchstücke, die anschließend durch die Turbulenz weiter beansprucht werden und in sehr kleine Tropfen zerfallen. Die Bedeutung der Turbulenz für den Tropfenzerfall ist damit ge-

zeigt. Aufgrund der Intermittenz der turbulenten Scherschicht erfolgt der Aufbruch oft lokal an einzelnen Teilbereichen des Tropfens.

In weiteren Untersuchungen kann die Tropfenaufgabeposition systematisch variiert werden, sodass die dadurch erreichten unterschiedlichen Beanspruchungen für den Tropfen bzw. den Tropfenzerfall genauer analysiert werden können.

## Dankesworte

Die Autoren danken der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) für die finanzielle Unterstützung durch das Projekt „Untersuchungen zur Messung der relevanten Strömungsbedingungen für die Deformation und den Aufbruch von Tropfen beim Hochdruckhomogenisieren mit Blenden und zur Skalierbarkeit der Methoden“ (KA 1808/19-1).

## Literatur

- Bentley, B. J., Leal, L. G., 1986:** “An experimental investigation of drop deformation and breakup in steady, two-dimensional linear flows”, *Journal of Fluid Mechanics*, 167, pp. 241 – 283
- Budde, C., Schaffner, D., Walzel, P., 2002:** „Modellversuche zum Tropfenzerfall an Blenden in Flüssig/Flüssig-Dispersionen“, *Chemie Ingenieur Technik*, 74, pp. 101 – 104
- Cierpka, C., Kähler, C.J., 2011:** “Particle imaging techniques for volumetric three-component (3D3C) velocity measurements in microfluidics”, *Journal of Visualization*, Vol. 15, Issue 1, pp 1 - 31
- Duxenneuner, M. R., Fischer, P., Windhab, E. J., Cooper-Whithe, J. J., 2014:** „Simultaneous visualization of the flow inside and around droplets generated in microchannels“, *Microfluidics and Nanofluidics*, 16, pp. 743 – 755
- Grace, H.P., 1982:** “Dispersion Phenomena in High Viscosity Immiscible Fluid Systems and Application of Static Mixers as Dispersion Devices in such Systems”, *Chemical Engineering Communications*, 14, pp. 225 – 277
- Hakansson, A., Fuchs, L., Innings, F., Revstedt, J., Bergenstahl, B., Trägårdh, C., 2010:** “Visual observations and acoustic measurements of cavitation in an experimental model of a high-pressure homogenizer”, *Journal of Food Engineering*, 100, pp. 504 – 513
- Innings, F., Trägårdh, C., 2005:** “Visualization of the Drop Deformation and Break-Up Process in a High Pressure Homogenizer”, *Chemical Engineering & Technology*, 28, pp. 882 – 891
- Innings, F., Trägårdh, C., 2007:** “Analysis of the flow field in a high-pressure homogenizer”, *Experimental Thermal and Fluid Science*, 32, pp. 345 – 354
- Karabelas, A. J., 1978:** “Droplet Size Spectra Generated in Turbulent Pipe Flow of Dilute Liquid/Liquid Dispersions”, *American Institute of Chemical Engineers Journal*, 24, pp. 170 – 180
- Karbstein, H., 1994:** “Untersuchungen zum Herstellen und Stabilisieren von Öl in Wasser Emulsionen”, Dissertation, Universität Karlsruhe
- Kähler, C. J., Astariata, T., Vlachos, P. P., Sakakibara, J., Hain, R., Discetti, S., La Foy, R., Cierpka, C., 2016:** “Main results of the 4<sup>th</sup> International PIV Challenge”, *Experiments in Fluids*
- Kelemen, K., Crowther, F. E., Cierpka, C., Hecht, L. L., Kähler, C. J., Schuchmann, H.P., 2015:** “Investigations on the characterization of laminar and transitional flow conditions after high pressure homogenization orifices”, *Microfluidics and Nanofluidics*, 18, pp. 599 – 612
- Kolb, G., Wagner, G., Ulrich, J., 2001:** “Untersuchungen zum Aufbruch von Einzeltropfen in Dispergiereinheiten zur Emulsionsherstellung“, *Chemie Ingenieur Technik*, 73, pp. 80 – 83
- Mutsch, B., Kähler, C.J., 2017:** „Charakterisierung eines Versuchsstands zur Messung der relevanten Strömungsbedingungen für die Deformation und den Aufbruch von Tropfen beim Hochdruckhomogenisieren mit Blenden“, *Experimentelle Strömungsmechanik 25. Fachtagung 2017*
- Schlender, M., Spengler, A., Schuchmann, H.P., 2015:** “High-pressure emulsion formation in cylindrical coaxial orifices: Influence of cavitation induced pattern on oil drop size”, *International Journal of Multiphase Flow*, 74, pp. 84 – 95
- Swartz, J. E., Kessler, D. P., 1970:** “Single Drop Breakup in Developing Turbulent Pipe Flow“, *American Institute of Chemical Engineers Journal*, 16, pp. 254 – 260
- Taylor, G.I., 1934:** “The Formation of Emulsions in Definable Fields of Flow“, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 146, pp. 501 – 523
- Walstra, P., 1983:** “Formation of emulsions” in *ENCYCLOPEDIA of EMULSION TECHNOLOGY*, 1, pp. 57 – 128, (Eds: Becher, P.), Marcel Dekker Inc., New York