3. - 5. September 2019, Erlangen

# Mischungscharakterisierung in Helixreaktoren mittels laser-induzierter Fluoreszenz

## Mixing characterization in helical reactors with laser induced fluorescence

P. Kováts, M. Mansour, C. Velten, D. Thévenin und <u>K. Zähringer</u> Otto-von-Guericke-Universität, Magdeburg

Schlagworte: Helixreaktoren, Mischung, CFI, CFR, laser-induzierte Fluoreszenz, CFD Key words: Helix reactors, mixing, CFI, CFR, laser induced fluorescence, CFD

## Zusammenfassung

Die Mischung zweier Flüssigkeiten in unterschiedlichen Helixgeometrien wurde mittels Laser induzierter Fluoreszenz (LIF), in einer einfach gewickelten, horizontalen Helix (CF), einem Coiled Flow Inverter (CFI) und einem Coiled Flow Reverser (CFR) untersucht. Die verschiedenen Geometrien wurden in zwei Längenausführungen, drei und sechs Wendeln, und bei Reynoldszahlen im Bereich 50≤Re≤1000 verwendet. Die Mischung wurde mittels der Fluoreszenz des Tracers Resorufin charakterisiert. Die aus den Versuchen gewonnenen Mischungskoeffizienten dienen zum einen der Bewertung und Charakterisierung der Mischung in den Helixreaktoren, sowie zur Validierung von Simulationsdaten. Die Ergebnisse zeigen den Vorteil einer frühzeitigen Strömungsumkehrung, die die Mischung stark verbessert. So sind CFI und CFR in allen Fällen der geraden Helix überlegen und auch die 3-wendeligen Ausführungen zeigen bessere Vermischung gegenüber den Ergebnissen der 6-wendligen Ausführung, bei gleicher Länge.

# Abstract

The mixture of two liquids in different helix geometries was investigated by laser-induced fluorescence (LIF) using, a straight, horizontal helix (CF), a coiled flow inverter (CFI), and a coiled flow reverser (CFR). The different geometries were investigated in two length versions, three and six coils, and at Reynolds numbers in the range 50≤Re≤1000. Mixing was characterized through the fluorescence of the tracer resorufin. The mixture coefficients, obtained from the experiments serve to evaluate and characterize the mixture in the different helix reactors, as well as to validate simulation data. The results show the clear advantage of early flow inversion, which strongly enhances mixing. Thus the CFI and CFR reactors outmatch the straight helix in all examined cases and also the three-coil versions show better results compared to the sixcoil reactors at the same length.

# Einleitung

Gewendelte Helixreaktoren finden immer mehr Einsatz zur Intensivierung von Prozessen, die Mischung oder Stoffübergang beinhalten, da sie zu einer Verstärkung dieser Operationen im Vergleich zu Rohrreaktoren führen (Vashishth et al., 2008). Die Zentrifugalkräfte in der Helix verursachen eine Sekundärströmung in radialer Richtung (Dean-Wirbel), die den Stoffüber-

gang und die radiale Mischung steigern. Die dabei vorliegenden Strömungsbedingungen können über die Dean-Zahl  $De = Re \cdot \sqrt{\delta}$  beschrieben werden, wobei eine Abhängigkeit von dem Durchmesserverhältnis  $\delta = \frac{d}{D}$  mit dem Rohrinnendurchmesser *d* und dem Wendelinnendurchmesser *D* sowie der Reynoldszahl  $Re = \frac{u \cdot d \cdot \rho}{\eta}$  mit der mittleren Strömungsgeschwindigkeit *u*, der Dichte  $\rho$ , dem und der dynamischen Viskosität  $\eta$  besteht.

In Helix-Reaktoren kommt es bereits während der ersten 2-3 Wendeln zur vollständigen Ausprägung der Dean-Wirbel (Austin und Seader, 1973; Vashisth und Nigam, 2009; Saffari und Moosavi, 2014; Mansour et al., 2018; Kováts et al., 2018), wodurch es anschließend zu keiner weiteren wesentlichen Verbesserung der Durchmischung kommt (Mansour et al., 2017 und 2018). Durch das Verändern der Geometrie, abweichend von der einfach gewickelten horizontalen Helix, wird der stabil ausgebildete Wirbel zerstört und die Strömung muss sich neu ordnen, was zu einer weiteren Verbesserung der Durchmischung führt. Dabei kommt es bereits bei einer Beeinflussung der Strömung vor der vollständigen Ausbildung der Dean-Wirbel zu signifikanten Verbesserungen (Khot et al., 2019; Kováts et al.; 2018).

Darauf aufbauend werden hier drei unterschiedliche horizontale Geometrien, in Form einer einfach gewickelten Helix (CF), eines Coiled Flow Inverters (CFI) und eines neuartigen Coiled Flow Reversers (CFR) hinsichtlich der Mischung mittels Laser induzierter Fluoreszenz charakterisiert. Dabei werden jeweils zwei verschiedene Längenausführungen mit einer Wendelanzahl n=6 bzw. n=3 untersucht.

Beim CFI wird die Strömung aufgrund zweier 90° Biegungen und beim CFR aufgrund zweier 180° Umlenkungen beeinflusst. Die Abwandlung der Geometrie wird für die 6-wendlige Ausführung nach der zweiten und vierten Position und für die 3-wendlige Ausführung vor und nach der zweiten Position vorgenommen.

Zur Beurteilung der Mischgüte wird der Mischungskoeffizient *M<sub>c</sub>* verwendet, der wie folgt definiert ist:

$$M_c = 1 - \frac{\sum_f |c - \bar{c}| A_f}{|\bar{c}| \sum_f A_f}$$
 mit  $\bar{c} = \frac{1}{A} \int c \, dA$ 

Wobei c die lokale Konzentration einer Komponente,  $\bar{c}$  die mittlere Konzentration über die Querschnittsfläche *A* und  $A_f$  die Fläche einer Gitternetzeinheit der Querschnittsfläche ist. Der Mischungskoeffizient liegt im Intervall von 0 bis 1 und gibt damit die Fälle der Nichtvermischung bei 0 bzw. 0% und der perfekten Mischung bei 1 bzw. 100% wieder (Mansour et al., 2017). Es wird die Mischung zweier Lösungen mit identischen Volumenströmen bei laminaren Strömungsbedingungen im Bereich von Reynoldszahlen von 50≤Re≤1000 untersucht, wobei eine der Lösungen mittels Resorufin als Fluoreszenztracer eingefärbt wurde.

#### Helixgeometrien und Strömungsbedingungen

Die Helixreaktoren werden aus FEP-Schlauch (Fluorethylen-Propylen) mit einem Innendurchmesser von d= 10mm und einer Wandstärke von s=1mm hergestellt. Das Material bietet alle geforderten Eigenschaften für die optische Messung, wie Transparenz und einen Brechungsindex ähnlich zu Wasser. Der Wendelinnendurchmesser beträgt in Anlehnung an Mansour et al. (2017) D = 118mm und der Wendelabstand b=16mm. Dabei ergibt sich ein Durchmesserverhältnis von  $\delta = 0,0847$  und eine Länge  $L = n \cdot \sqrt{\pi \cdot D^2 + b^2} = 2,23m$  für die 6-wendlige, bzw. L = 1,11m bei der 3-wendligen Ausführung. Der gerade Einlass wird für alle Reaktoren auf eine Länge von 120mm definiert. Die Biegung des CFI wird mit einer Hülse realisiert, die dafür sorgt, dass die beiden Schläuche gegeneinander verdreht werden können. Für die Umlenkung der Strömung im CFR kommen 3D-gedruckte 180° Umlenkstücke zum Einsatz. Auf die Herstellung einer 3-wendligen Ausführung des CF wird verzichtet, als Ergebnis werden an dieser Stelle die Daten der ersten drei Wendeln der 6-wendligen Ausführung verwendet. Die verschiedenen Helixgeometrien sind in der Abbildung 1 dargestellt.



Abb. 1: Modelle der verschiedenen Helixgeometrien in 6- und 3-wendliger Ausführung

Aus den entsprechenden Abmaßen und den vorgegebenen Reynoldszahlen im Bereich von 50≤Re≤1000 lassen sich die Dean-Zahl und der einzustellende Gesamtvolumenstrom Q nach der Gleichung  $Q = \frac{\pi \cdot d \cdot \eta \cdot Re}{4 \cdot \rho}$  berechnen. Die daraus resultierenden Werte sind in der Tabelle 1 angegeben. Hierbei ist zu beachten das der Gesamtvolumenstrom halbseitig für die beiden Lösungen zu gleichen Teilen eingestellt wird. Für die Berechnung werden die Stoffwerte von Wasser unter Standardbedingungen verwendet. Der Einfluss des Resorufins ist aufgrund der geringen Konzentration von 1mg/l nachgewiesenermaßen zu vernachlässigen.

Reynoldszahl Re	[-]	50	100	200	500	1000	
Dean-Zahl De	[-]	15	31	61	154	307	
Volumenstrom Q	[ml/min]	24	48	94	236	472	

#### Tabelle 1: Strömungsbedingungen

## Versuchsaufbau und Durchführung



Н	Helixreaktor in Plexiglasbox				
	mit brechungsindexangepass-				
	ter Mantellösung				
Κ	Imager sCMOS Kamera von				
	LaVision				
L	Nd:YAG-Laser				
0	Lichtschnittoptik				
S	Schiene zur Befestigung auf				
	Traverse bzw. Drehplatte				
Υ	Y-Einlaufstück				
L					

Abb. 2: Schema des Versuchsaufbaus

Abbildung 2 zeigt schematisch die wichtigsten Komponenten des Versuchsaufbaus. Im Mittelpunkt dabei steht der Helixreaktor der in einer mit einer brechungsindexangepassten GlyzerinWasser-Mischung gefüllten Plexiglasbox fixiert ist. Vorab wurde eine Brechungsindexanpassung zwischen Mantellösung und FEP-Schlauch durchgeführt, um das Auftreten von Verzerrungen während der Messung zu minimieren. Die Übereinstimmung der Brechungsindizes liegt bei einer Glyzerinkonzentration von 5-5,5% vor.

Die Plexiglasbox ist über eine Schiene auf der Traverse (CF und CFR) bzw. auf einer Drehplatte (CFI) befestigt, was das Einstellen der jeweiligen Messposition zum Lichtschnitt erlaubt. Der Fluoreszenztracer wird von einem Nd:YAG-Laser bei 532nm mit einer Energie von 15mJ/P angeregt und die Fluoreszenzintensitäten mit einer Imager sCMOS Kamera von LaVision mit 2560 x 2160 Pixeln unter Verwendung eines Tokina-Mikro-100mm-Objektives und eines 555nm Hochpassfilters detektiert.

Der Zufluss der Lösungen erfolgt schwerkraftgetrieben aus zwei Becken die ca. 1,5m über den Wendeln angebracht sind. In einem Becken befindet sich eine reine Wasserlösung, im anderen die Resurufinlösung (1mg/l). Die Volumenströme werden über Nadelventile eingestellt. Das Y-Einlaufstück sorgt dafür, dass die Lösungen am Einlass getrennt vorliegen und mit der entsprechenden Orientierung, hier senkrecht zur Helixachse, fließen, was im Gegensatz zum parallelen Einlass die schlechteste Mischung hervorruft, aber dadurch eine bessere Vergleichbarkeit der Helixgeometrien bereitstellt.

Für alle Messpositionen werden jeweils 200 Wasser-, Resorufin- und Messbilder der entsprechenden Reynoldszahl mit einer Aufnahmefrequenz von 5Hz aufgenommen. Die Verarbeitung und Steuerung erfolgt durch die Software DaVis 8.4.0. Um den Laser und die Kamera zu koordinieren, kommt eine Synchronisationseinheit (PTU) zum Einsatz. Die Aufnahmen werden zusätzlich durch mit einem Energiemonitor aufgezeichnete Energiewerte ergänzt.

## Auswertung der Rohdaten

Die gewonnenen Rohdaten werden in zwei Schritten ausgewertet. Der erste Schritt besteht hierbei in der Bildbearbeitung der 200 Rohbilder mittels Bildbearbeitungssoftware DaVis 8.4.0. Die dazu nötigen Bearbeitungsschritte sind beispielhaft in der Abbildung 3 dargestellt.



Abb. 3: Bildbearbeitungsschritte in Davis zur Vorbereitung der Berechnung der Mischungskoeffizienten

Zunächst wird aus den Rohbildern, also den Messbildern (Intensität der Messbilder *I*), Hintergrundbildern (0mg/I Resorufin, minimale Intensität  $I_0$ ) und Lichtschnittbildern (1mg/I Resorufin, maximale Intensität  $I_{max}$ ), jeweils ein Durchschnittsbild gebildet. Anschließend erfolgt eine Normalisierung (normalisierte Intensität  $\overline{I}$ ) nach der folgenden Gleichung:

$$\overline{I} = \frac{I - I_0}{I_{max} - I_0}$$

Somit wird eine Hintergrundkorrektur sowie eine Lichtschnittkorrektur erreicht. Nach der Normalisierung liegen die Intensitätswerte im Bereich zwischen 0 und 1 vor. An dieser Stelle könnte, falls vorgesehen, unter Verwendung einer Kalibrierung, auf die gewünschte Skala, z.B. Konzentrationsskala umgerechnet werden.

Weiterhin wird aus den Lichtschnittbildern eine Maske erstellt. Nach der Anwendung der Maske auf die normalisierten Messbilder kann das Bild in Matlab eingelesen werden und es erfolgt als zweiter Schritt die Berechnung der Mischungskoeffizienten.

Die Berechnung der Mischungskoeffizienten erfolgt auf der Grundlage der Intensitätswerte. Hierzu muss die bereits vorgestellte Gleichung zur Berechnung des Mischungskoeffizienten entsprechend angepasst werden:

$$M_{c} = \frac{\sum |I - I_{AVG}| \cdot A_{Pixel}}{I_{AVG} \cdot \sum A_{Pixel}}$$

Wobei durch  $I_{AVG}$  die Durchschnittsintensität eines Wendelquerschnittes und  $A_{Pixel}$  die Fläche eines Pixels beschrieben wird. Die so gewonnenen Messdaten werden anschließend grafisch dargestellt.

#### Numerische Simulationen

Die numerischen Simulationen wurden für ein laminares Strömungsregime durchgeführt, da nach Schmidt (1967) und Srinivasan (1968) bis zu einer kritischen Reynolds-Zahl von Re=6500 mit laminarer Strömung in allen Konfigurationen zu rechnen ist. Die Schmidt-Zahl wurde zu Sc=1000 gewählt, was typischerweise dem Wert von Wasser entspricht. Die Mischung wird durch das Lösen einer zusätzlichen Transportgleichung für einen Skalar quantifiziert, die zusätzlich zu den Massenerhaltungs- und Momentengleichungen gelöst wird (Mansour et al., 2017). Ein Upwind-Schema zweiter Ordnung wird zur Lösung der Gleichungen verwendet. Voruntersuchungen ergaben, dass sowohl der stationäre, als auch der instationäre Löser zu identischen Ergebnissen bezüglich der Massenanteile führt. Darum wurde für alle Berechnungen der stationäre Löser verwendet. Ähnlich zu unseren vorangehenden Untersuchungen (Jokiel et al., 2017; Mansour et al., 2017, 2018, 2018b; Jokiel et al., 2018) wurde Star-CCM+ für die numerischen Berechnungen verwendet. Details bezüglich der verwendeten Gleichung, Konvergenzkriterien, Gitter und Validierung sind in Mansour et al. (2017, 2018) beschrieben.

## Ergebnisse

In diesem Artikel werden beispielhaft die Ergebnisse der Messung bei Re=500 in den Abbildungen 4-7 ausführlicher dargestellt. Insgesamt wurden Mischungskoeffizienten in einem Bereich von 50≤Re≤1000 berechnet, die darauf folgend dargestellt sind. Zusätzlich erfolgt ein Vergleich mit den Simulationen.

Aufgrund der Geometrie der einzelnen Reaktoren, sollten in den ersten beiden Wendeln für 6wendlige bzw. im ersten Querschnitt der 3-wendligen Reaktoren ähnliche Strömungsbedingungen erkennbar sein. Dies ist in der Regel auch gegeben und die beiden Lösungen liegen nahezu getrennt vor (Abb. 4 und 6, jeweils erste Spalte), was anhand der unterschiedlichen normalisierten Intensitäten zu erkennen ist. Liegt der Wert nahezu bei 0, kann von reinem Wasser ausgegangen werden, liegt der Wert hingegen bei 1, so liegt nahezu ungemischte Resorufinlösung vor. Da die Volumenströme der beiden Seiten zu gleichen Werten eingestellt wurden, sollte bei einer komplett homogenen Mischung ein normalisierter Intensitätswert von 0,5 auftreten.

Bei der CF bleiben die beiden Flüssigkeitsströme durch die Dean-Wirbel durch die gesamte Wendel hindurch (bis 2070°) in zwei Kernen links und rechts im Rohr voneinander getrennt

erhalten (Abb. 4 und 6, erste Zeile). Nach der 180°Umlenkung (CFR) bzw. 90°Biegung (CFI) kommt es hingegen bei den anderen Reaktoren zu einer stark verbesserten Durchmischung. Dadurch kann hin zum letzten Querschnitt eine nahezu vollständige Durchmischung erreicht werden (Abb. 4 und 6, mittlere und untere Zeile).





Abb. 4: Mischungskoeffizienten in den 6-wendligen Reaktoren für Re=500









Abb. 6: Mischungskoeffizienten in den 3-wendligen Reaktoren für Re=500

ò

Abb. 7: Vergleich der gemittelten Mischungskoeffizienten der 3-wendligen Reaktoren bei Re=500 mit Simulationsdaten

Beim Vergleich von Simulations- und Messdaten lässt sich, für die über den Querschnitt gemittelten Mischungskoeffizienten, eine gute Übereinstimmung feststellen (Abb. 5 und 7), wobei die Simulationsdaten meist leicht über den Messdaten liegen.

Beim Vergleich der in den Abbildungen 8 und 9 dargestellten gemittelten Mischungskoeffizienten am Ende der 6- bzw. 3-wendligen Reaktoren für alle vermessenen Reynoldszahlen lässt sich feststellen, dass die 3-wendlige Ausführung in nahezu allen Fällen das schlechtere Ergebnis liefert. Der Unterschied ist vor allem bei kleinen Reynoldszahlen auffällig. Bei höheren Reynoldszahlen gleichen sich die Ergebnisse immer mehr an, so dass bei Re=1000 bei den 3-wendligen Ausführungen ein minimal besserer Mischungskoeffizient ermittelt werden kann. Allerdings, und dies zeigen beispielhaft die Abbildungen 5 und 7, liegt der Mischungskoeffizient der 3-wendligen Ausführung bei gleicher Länge, d.h. nach drei Wendeln, immer über dem der 6-wendligen, bei dem an dieser Stelle erst eine Strömungsumlenkung stattgefunden hat. Dies zeigt den Vorteil einer frühzeitigen Umlenkung der Strömung, die zu einer verbesserten Mischung, bei kürzerer benötigter Wendellänge führt. Für beide Ausführungen des CFR-Reaktors liegt der maximale Mischungskoeffizient bei Reynoldszahl 1000 mit 94,8 bzw. 95,4% (Abb. 8 und 9). Wobei für die 6-wendlige Ausführung bei Reynoldszahl 100 ein nur wenig geringerer Mischungskoeffizient von 93,5% erreicht wird. Für die Ausführung des 6-wendligen CFI-Reaktors liegt das Maximum bei Reynoldszahl 500 mit 93,6%, wobei nur ein geringer Unterschied zur Reynoldszahl 1000 mit 91,4% besteht. Für die 3-wendlige Ausführung des CFI wird bei Reynoldszahl 1000 der maximale Mischungskoeffizient von 92,1% erreicht, wobei die Koeffizienten hin zu den kleinen Reynoldszahlen stark abfallen. Beide Reaktoren liegen mit ihren Mischungskoeffizienten über den gesamten Re-Bereich immer erheblich über den Werten, die die gerade Wendel (CF) erreicht. Deren maximaler Mischungskoeffizient erreicht nur 71% bei Re=1000 und der 6-wendligen Ausführung.





Abb.8: Gemittelte Mischungskoeffizienten am 6. Querschnitt der 6-wendligen Reaktoren für 50≤Re≤1000



6-wendlige Reaktoren 3-wendligen Reaktoren

## Fazit

Die durch die Versuche gewonnenen Daten bestätigen, dass das Verändern der Helixgeometrie durch frühzeitige Strömungsumlenkung (CFI oder CFR) und der damit verbundene Eingriff in die Strömungsführung eine deutlich verbesserte Mischung mit sich bringt. Dabei liefert der neuartige CFR in 4 von 5 Fällen das beste Mischergebnis für beide Reaktorlängen.

Bei gleicher Gesamtlänge zeigen die 3-wendligen Ausführungen erheblich bessere Mischungsergebnisse, was wiederum die Folge einer frühzeitigen Strömungsumlenkung darstellt. So liefert der CFR in seiner 3-wendliger Ausführung den Maximalwert aller getesteten Fälle mit M<sub>c</sub>=95,4%. Eine Strömungsumlenkung, nicht nur um 90° wie in einem klassischen CFI, sondern um 180°, wie dies in dem neuen CFR verwirklicht wurde, zeigt somit die generell besten Mischungsergebnisse. Der Vergleich der Messdaten mit den Simulationen zeigt eine gute bis sehr gute Übereinstimmung, so dass die Simulationsmethode durch diese Daten validiert werden konnte.

#### Dankesworte

Die Autoren danken der Deutschen Forschungsgemeinschaft für die finanzielle Unterstützung im Rahmen des SFB/TR 63 "Integrierte chemische Prozesse in flüssigen Mehrphasensystemen" InPROMPT, Teilprojekt B1. Herrn Conrad Müller sei für seine Hilfe bei der Durchführung der Versuche gedankt.

#### Literatur

**Vashishth, S., Kumar, V., Nigam, K., 2008**: "A review on the potential applications of curved geometries in process industry" Industrial & Engineering Chemistry Research 47, 3291–3337

Austin, L. R., J. Seader, J., 1973: "Fully developed viscous flow in coiled circular pipes" AIChE J. 19 (1) 85-94

**Vashisth, S., Nigam, K. D. P., 2009**: "Prediction of flow profiles and interfacial phenomena for twophase flow in coiled tubes" Chem. Eng. Process. 48 (1) 452-463.

Saffari, H., Moosavi, R., 2014: "Numerical study of the influence of geometrical characteristics of a vertical helical coil on a bubbly flow" J. Appl. Mech. Tech. Ph. 55 (6) 957-969.

Mansour, M., Janiga, G., Nigam, K. D. P., Thévenin, D., Zähringer, K., 2018: "Numerical study of heat transfer and thermal homogenization in a helical reactor" Chem. Eng. Sci. 177 369-379

Kováts, P., Pohl, D., Thévenin, D., Zähringer, K., 2018: Optical determination of oxygen mass transfer in a helically-coiled pipe compared to a straight horizontal tube, Chem. Eng. Sci. 190 273-285

Mansour, M., Liu, Z., Janiga, G., Nigam, K. D. P., Sundmacher, K., Thévenin, D., Zähringer, K.,2017: "Numerical study of liquid-liquid mixing in helical pipes" Chem. Eng. Sci. 172 250-261

Khot, P., Mansour, M., Thévenin, D., Nigam, K. D. P., Zähringer, K., 2019: "Improving the mixing characteristics of coiled configurations by early flow inversion" Chem. Eng. Res. Des., 146, pp. 324-335.
E. F. Schmidt, 1967: "Wärmeübergang und Druckverlust in Rohrschlangen" Chemie Ing. Tech. 39 (13), pp. 781-789.

**Srinivasan, P. S., Nadapurkar, S. S., Holland, F. A.**, 1968: "Pressure Drop and Heat Transfer in Coils" Transaction of Institution of Chemical Engineers 48 T156-T161.

Jokiel, M., Wagner, L., Mansour, M., Kaiser N. M., Zähringer, K., Janiga, G., Nigam, K. D. P., Thévenin, D., Sundmacher, K., 2017: "Measurement and simulation of mass transfer and backmixing behaviour in a gas-liquid helically coiled tubular reactor" Chem. Eng. Sci 170 410-421

Mansour, M., Khot, P., Thévenin, D., Nigam, K.D.P, Zähringer, K., 2018: "Optimal Reynolds number for liquid-liquid mixing in helical pipes" Chem. Eng. Sci., doi: https://doi.org/10.1016/ j.ces.2018.09.046 Jokiel, M., Kaiser, N. M., Kováts, P., Mansour, M., Zähringer, K., Nigam, K. D. P., Sundmacher, K.,2018: "Helically coiled segmented flow tubular reactor for the hydroformylation of longchain olefins in a thermomorphic multiphase system" Chremical Engineering Journal, doi: https://doi.org/10.1016/j.cej.2018.09.221.