

# 1 Einleitung

Die Wärme- und Stoffübertragung ist ein großes Aufgabenfeld in verfahrenstechnischen Prozessen. Zu deren Verständnis werden die Flüssigkeitsströmungen in Filmapparaten wie beispielsweise den Fallfilmverdampfern untersucht. Fallfilme oder Rieselfilme wurden als dünne Flüssigkeitsfilme, die durch die Schwerkraft auf einer geraden oder schrägen Wand herabfließen, definiert, siehe Kraume (2020).

Fallfilmverdampfer sind Apparate zur Verdampfung von Stoffsystemen wie beispielsweise Zuckerlösungen, siehe Schliephake et al. (1996) und Christoph et al. (1998), Milch oder Fruchtsäften, siehe East et al. (2015); Bouman et al. (1993); Jebson und Chen (1997); Jebson und Iyer (1991); Suhadi et al. (2015) und Cyklis (2017). Weitere Anwendungsbereiche sind die Lösemittelabtrennung aus Oligomeren oder Polymeren, siehe Furukawa et al. (1978); Xi et al. (2007) und Woo et al. (2001), oder die Entwässerung ionischer Flüssigkeiten, siehe Wellner et al. (2011); Wang et al. (2022) und Hu et al. (2021). Die Fallfilmverdampfer unterscheiden sich von anderen Apparaten in der minimalen Temperaturdifferenz zwischen Heiz- und Produktseite und dem Betrieb bei sehr geringem lokalem Flüssigkeits-Hold-up. Diese beiden Aspekte minimieren die thermische Belastung der behandelten Produkte, was eine produktschonende Verdampfung ermöglicht. Hierzu arbeiten Fallfilmverdampfer vorzugsweise mit geringer Dicke der Flüssigfilme zwischen 0,2 und 2 mm. Eine Steigerung in der Filmdicke in Fallfilmen resultiert in Minderleistungen und damit in einer zu geringen Wärmeübertragung bzw. Abdampfrate. Auch eine vollständige Benetzung der Verdampferoberfläche ist für die Verdampfung wichtig, da sich die lokale Temperatur in den sonst gebildeten Trockenstellen erhöhen würde (Kraume 2020). In diesen nicht benetzten Bereichen kann Fouling oder Kristallisierung, wie beispielsweise bei der Verdampfung von Milch oder Zuckerlösungen, entstehen. Bei einem Verdampfungsprozess wird eine Flüssigkeit erhitzt, sodass ihre Siedetemperatur erreicht wird. Während die Siedetemperatur eines Reinstoffes nur von dem Dampfdruck bestimmt wird, hängt die Siedetemperatur eines Gemischs auch von der Zusammensetzung der Flüssigphase ab. Aus diesem Grund ist es von Interesse, zusätzlich die Änderung der lokalen Flüssigkeitszusammensetzung während des Prozesses zu verfolgen, um die Verdampfung zu optimieren.

Die vorliegende Arbeit behandelt die nichtinvasive und simultane Messung der lokalen Filmdicke und der Flüssigkeitszusammensetzung in Fallfilmen bei laminar-wellige Strömung bis einer Strömung in zweitem Übergangsbereich. Mithilfe der simultanen Ermittlung dieser zwei Parameter kann der Einfluss der Welligkeit sowie der Filmdicke auf die Entwicklung der Wärmeübertragung, analysiert werden. Al-Sibai (2006) untersuchte den Einfluss des Residualfilms auf die Nußelt-Zahl mit dem Ergebnis, dass die Wärme im Residualbereich eines laminar-welligen Films, im Vergleich zum laminaren Film besser übertragen wird. Weiterhin können die daraus gewonnenen Erkenntnisse der Messung der lokalen Flüssigkeitszusammensetzung zur Bestimmung der Wärmeübergangskoeffizienten des Gemischs und auch zur Festlegung der Leistung von Apparaten verwendet werden. Diese Leistung ist von dem Stoffaustausch im Verdampfungsprozess und von der zulässigen Zielzusammensetzung des Fluidkonzentrats abhängig.

Die Filmdicke und Strömungscharakteristika in Fallfilmen sind bereits in anderen Studien mit verschiedenen Methoden untersucht worden. Hierzu gibt es aktuell, dank der Verfügbarkeit kostengünstiger Kameras, bildgebende Applikationen zur Bestimmung der Filmdicke oder der Flüssigkeitszusammensetzung in einzelnen Spektralbereichen. Eine Kombination mehrerer Spektralbereiche bzw. der Einsatz von Multiwellenlängen-Optiken, als bildgebendes und Online-Messverfahren zur simultanen Analyse mehrerer Prozessparameter in Fallfilmen, ist bisher nicht etabliert.

Ziel der Arbeit ist daher die simultane und lokale Messung der beiden Parameter Filmdicke und lokale Flüssigkeitszusammensetzung entlang eines Fallfilms. Es wurde eine Apparatur entwickelt für die experimentellen Untersuchungen an einer senkrechten Platte. Hiermit wird ein binäres Stoffsystem Glycerol/Wasser mit Glycerol-Massenanteilen zwischen 0 und  $0,65 \, g_{Glyc} g_{Ges}^{-1}$ , Reynolds-Zahlen zwischen 4,80 und 270 und einer mittleren Filmdicke zwischen 0,2 und 1,2 mm untersucht. Die Forschungsschwerpunkte der vorliegenden Arbeit konzentrieren sich dabei auf die experimentelle, zeitlich und örtlich hochauflösende Analyse in zwei unterschiedlichen Spektralbereichen innerhalb eines definierten Messbereiches eines Fallfilms. Außerdem wird der Einfluss der Wellenform auf die Auswertung untersucht. Zum einen wird die Filmdicke in Fallfilmen mithilfe der Fluoreszenzmessung realisiert. Zum anderen wird die Bestimmung des lokalen Glycerol-Massenanteiles unter Nutzung der Nahinfrarot-Messtechnik durchgeführt. Die Ergebnisse sollen für eine weitere Verbesserung

der Auslegung von Apparaten sowie als Grundlage für die Optimierung von Verdampfungsprozessen dienen.

Kapitel 2 liefert die Grundlagen der Fluidodynamik sowie der Verdampfung von Fallfilmen (Abschnitt 2.1 und 2.2). Der Stand der Forschung mit einem entsprechenden Literaturüberblick bezüglich lokaler Bestimmung der Filmdicke und der Flüssigkeitszusammensetzung und einer Übersicht über aktuell verwendete Messtechniken werden in den Abschnitten 2.3 und 2.4 erläutert. Aus diesen Kenntnissen lässt sich abschließend in Abschnitt 2.5 die wissenschaftliche Lücke, die die Motivation für diese Arbeit begründet, beschreiben.

Für die Entwicklung des bildgebenden Multiwellenlängen-Messverfahrens werden in Kapitel 3 die Materialien und Methoden beschrieben. Dabei werden Grundlagen wie Fluoreszenzspektroskopie und Nahinfrarotspektroskopie anhand der optischen Eigenschaften des Stoffsystems Glycerol/Wasser in diesen Bereichen aufgeführt (Abschnitt 3.1 und 3.2). Weiterhin werden in Abschnitt 3.3 der Aufbau der Versuchsanlage, gefolgt von Beleuchtungseinheit, Kamerasystem und Optik in Abschnitt 3.4 beschrieben. Schließlich wird auf die automatisierte Bildanalyse in Abschnitt 3.5 mit der Fehlerbetrachtung des Messsystems eingegangen (Abschnitt 3.6).

Kapitel 4 beinhaltet die technischen Ergebnisse des optischen Messsystems, wie die Leistung der Beleuchtung und der Software, gefolgt von den Ergebnissen der Kalibrieroutine (Abschnitt 4.1). Zunächst werden die Ergebnisse der Messung der lokalen Filmdicke und Flüssigkeitszusammensetzung in Fallfilmen aufgezeigt und diskutiert (Abschnitt 4.2 und 4.3), gefolgt von der Multiwellenlängen-Analyse in Abschnitt 4.4. Anschließend wird die Praxistauglichkeit des entwickelten Messsystems auf Basis anderer Systeme einer gesonderten Betrachtung unterzogen (Abschnitt 4.5).

Die Zusammenfassung und der Ausblick werden in Kapitel 5 beschrieben.



## 2 Stand des Wissens

Die Wärme- und Stoffübertragung ist ein wesentlicher Teil von industriellen Prozessen und stellt eine wichtige verfahrenstechnische Aufgabenstellung dar. Dabei spielen die Gas-Flüssigkeitsströmungen mit dem dazugehörigen Wärmeübergang eine wichtige Rolle, in dem Phasenwechselprozess sich mit den Fluidströmungen überlagern. Hier ist die Beschreibung von Wärmetransportvorgänge für die Auslegung und Konstruktion von Apparaten entscheidend, um eine thermische und mechanische Arbeitsbelastung zu vermeiden.

Eine schonende Teilverdampfung des Produktmediums ist in einem Verdampfungsprozess wichtig und dafür werden Fallfilmverdampfer eingesetzt. Fallfilmverdampfer sind unter den Verdampfern besonders dafür geeignet, mit thermisch sensiblen Stoffsystemen zu arbeiten, siehe Goedecke (2006). Bei Fallfilmverdampfern muss die Umlaufflüssigkeit mithilfe eines Verteilers an der Innenseite des Verdampferrohres gleichmäßig ausgebreitet werden. Der Film bildet eine Schicht zwischen 0,2 und 2 mm über die Gesamtlänge des Rohres aus, wobei eine Verdampfung an der Oberfläche des Films stattfindet. Die Verdampfung ist mit einer Steigung der Viskosität des Mediums zu rechnen, siehe Kraume (2020). Für einen energie- und produktschonenden Betrieb ist ein guter Wärmeübergang durch Verdampfung an der Filmoberfläche wünschenswert. Dafür zeichnen sich Fallfilmverdampfer durch kleine Flüssigkeitsinhalte bzw. sehr dünne Filme sowie eine kleine Temperaturdifferenz und Verweilzeit aus, siehe Schnabel (2013).

Zur Analyse von Fallfilmen wird im folgenden Abschnitt zunächst die Theorie der Fluidodynamik von Fallfilmen beschrieben (Abschnitt 2.1). Darauf folgt im Abschnitt 2.2 die Beschreibung der Verdampfung von Fallfilmen sowie in Abschnitt 2.3 eine Übersicht über den aktuellen Stand der Forschung seitens der Messtechnik zur Untersuchung von Filmdicken. Im Abschnitt 2.4 wird der aktuelle Stand des Wissens über die Bestimmung der Zusammensetzung in Fluiden gegeben. Schließlich wird Abschnitt 2.5 mit einer Beschreibung der Diskussion zum wissenschaftlichen Erfordernis, auf die vorliegende Arbeit begründet ist, beendet.

## 2.1 Grundlagen der Fluidodynamik von Fallfilmen

Fallfilme sind dünne Filme, die aufgrund der Gravitationskräfte an einer Wand entlang herunterfließen. Die Wasserhauttheorie von Nußelt (1916), basierend auf den Untersuchungen von Filmkondensation an einer geneigten Wand, beschreibt eine laminare Filmströmung auf einer ebenen und glatten, Schubspannungsfreien Platte, (siehe Abbildung 2-1). Die Filmströmung ist abhängig von der Erdbeschleunigung  $g$  und dem Neigungswinkel  $\varphi$ .

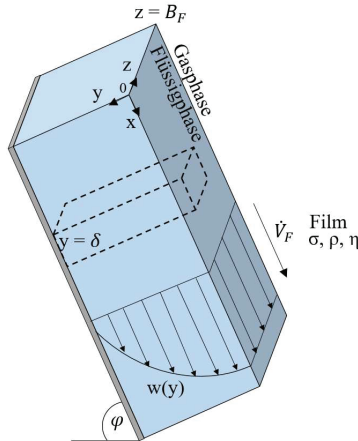


Abbildung 2-1: Strömung einer Flüssigkeit mit Volumenstrom  $\dot{V}_F$ , Breite  $B_F$ , Oberflächenspannung  $\sigma$ , Dichte  $\rho$  und dynamischen Viskosität  $\eta$  über eine glatte, geneigte Oberfläche. Nachbildung von Kraume (2020)

Die Analyse erfolgt unter den Annahmen, dass der Film laminar herunterströmt und die Fluidstoffdaten wie die Dichte  $\rho$  und die dynamische Viskosität  $\eta$  konstant sind. Daneben ist die Unterkühlung im Kondensatfilm und die Impulsänderung seiner Masse vernachlässigbar. Die Berechnung der Geschwindigkeitsverteilung  $w(y)$  des Films wird in Gleichung 2.1 beschrieben, siehe Nußelt (1923),

$$w(y) = \frac{\delta^2 \rho g \sin \varphi}{\eta} \left[ \frac{y}{\delta} - \frac{1}{2} \left( \frac{y}{\delta} \right)^2 \right] \quad 2.1$$

Für eine Filmhöhe  $y = \delta$  ergibt sich eine Oberflächengeschwindigkeit  $w_{Nu,Of}$  für den Film, wie in Gleichung 2.2 beschrieben.

$$w_{Nu,of} = \frac{\rho g \sin \varphi}{2\eta} \delta^2 \quad 2.2$$

Für die Beschreibung des Films wird zuerst die Berieselungsdichte definiert. Die Berieselungsdichte  $\Gamma$  des Fallfilms wird als der Volumenstrom  $\dot{V}_F$ , bezogen auf die Breite der Platte  $B_F$  oder die vom Fallfilm benetzte Breite, definiert.

$$\Gamma = \frac{\dot{V}_F}{B_F} \quad 2.3$$

Mithilfe von dimensionslosen Filmkennzahlen lassen sich Fallfilme beschreiben und der Einfluss verschiedener Versuchsparameter vergleichen. Im Folgenden werden die wichtigsten Filmkennzahlen für diese Studie dargestellt. Die Reynolds-Zahl  $Re$  beschreibt den Zusammenhang zwischen Trägheits- und Zähigkeitskräften. Die Zahl wird anhand der experimentellen Berieselungsdichte  $\Gamma$  aus Gleichung 2.3 und der kinematischen Viskosität  $\nu$  mithilfe von Gleichung 2.4 berechnet. Das Verhältnis kann auch mit dem Massenstrom  $\dot{m}$ , der kinematischen Viskosität  $\nu$ , der Dichte  $\rho$  und der Breite der überströmten Platte  $B_F$  beschrieben werden.

$$Re = \frac{\Gamma}{\nu} = \frac{\dot{m}}{\nu \rho B_F} \quad 2.4$$

Über die Reynolds-Zahl lässt sich die mittlere Filmgeschwindigkeit  $\bar{w}$  mit Gleichung 2.5 bestimmen:

$$\bar{w} = \left( \frac{\nu g \sin \varphi}{3} \right)^{1/3} Re^{2/3} \quad 2.5$$

Die mittlere Filmdicke lässt sich mit der Reynolds-Zahl berechnen und mit Gleichung 2.6 beschreiben.

$$\delta = \left( \frac{3 \nu^2}{g \sin \varphi} \right)^{1/3} Re^{1/3} \quad 2.6$$

Die zweite Kennzahl zur Beschreibung der Filmströmung ist das Kräfteverhältnis, die sogenannte Kapitza-Zahl oder deren Kehrwert, die Filmzahl. Die Kapitza-Zahl kann mit Gleichung 2.7 berechnet werden und enthält die Stoffgrößen Dichte  $\rho$ , Oberflächenspannung  $\sigma$ , dynamische Viskosität  $\eta$ , die Fallbeschleunigung  $g$  und den Neigungswinkel der überströmten Platte  $\varphi$ .

$$Ka = \frac{\rho \sigma^3}{\eta^4 g \sin \varphi} \quad 2.7$$

Fallfilme werden in unterschiedliche Strömungsformen eingeteilt: laminare, laminar-wellige und turbulente Strömung. Die Experimente von Ishigai et al. (1972) charakterisieren das Filmregime in Abhängigkeit von Kapitza- und Reynolds-Zahlen. Bei rein laminarer Strömung sind keine Wellen vorhanden und der Film lässt sich mit der Theorie von Nußelt (1923) beschreiben. Nach diesem Strömungsregime folgt der erste Übergangsbereich, in dem Wellen aufgrund des Einflusses der Oberflächenspannung aufkommen. Eine stabile Wellenströmung ist ab einer Reynolds-Zahl von  $Re = 2,2 Ka^{1/10}$  zu erkennen. Direkt nach diesem Bereich folgt der zweite Übergangsbereich mit einer welleninduzierten Turbulenz. Eine vollkommene Turbulenz tritt ab einer Reynolds-Zahl von  $Re = 400$  auf. Al-Sibai (2006) erweiterte und passte durch weitere Untersuchungen dieses Strömungsregimes an. Tabelle 2-1 zeigt den Vergleich in den Bereichen für die Strömungscharakteristika nach Ishigai et al. (1972) und Al-Sibai (2006).

Tabelle 2-1: Strömungscharakteristika nach Ishigai et al. (1972) und Al-Sibai (2006)

Strömungs- bereiche	Ishigai et al. (1972)	Al-Sibai (2006)
1	<b>Rein laminar</b>	
	$0 < Re \leq 0,47 Ka^{1/10}$	$0 < Re \leq 0,6 Ka^{1/10}$
2	<b>erster Übergangsbereich</b>	<b>sinusförmige Wellenströmung</b>
	$0,47 Ka^{1/10} < Re \leq 2,2 Ka^{1/10}$	$0,6 Ka^{1/10} < Re \leq Ka^{1/10}$
3	<b>stabile Wellenströmung</b>	<b>laminar-wellige Strömung</b>
	$2,2 Ka^{1/10} < Re \leq 75$	$Ka^{1/10} < Re \leq 25 Ka^{9/100}$
4	<b>zweiter Übergangsbereich</b>	
	$75 < Re \leq 400$	$25 Ka^{9/100} < Re \leq 192 Ka^{6/100}$
5	<b>vollkommen turbulent</b>	
	$400 < Re$	$192 Ka^{6/100} < Re$



Ein signifikanter Unterschied zwischen Ishigai et al. (1972) und Al-Sibai (2006) ist am Übergang zur turbulenten Strömung, in den Al-Sibai (2006) den Einfluss der Kapitza-Zahl in der Berechnung integriert hat, zu erkennen.

Al-Sibai (2006) hat mit experimentellen Untersuchungen dimensionslose Filmdicken als Funktion der Reynolds-Zahl, des Neigungswinkels und der Viskosität des Versuchsmediums bestimmt. Die dimensionslose Filmdicke wird mit Gleichung 2.8 beschrieben.

$$\delta_x^+ = \delta_x \left( \frac{g \sin(\varphi)}{\nu^2} \right)^{1/3} \quad 2.8$$

Über  $x$  kann die minimale (min), residual (r), mittlere (m), maximale (max) Filmdicke beschrieben werden. Die empirische Gleichung für die dimensionslose Beschreibung der minimalen Filmdicke wird mit Gleichung 2.9 beschrieben.

$$\delta_{min}^+ = 1 + 0,09 Re^{0,68} \quad 2.9$$

Im Bereich zwischen den Wellen zeichnet eine glatte Oberfläche den Fluid aus. Dieser Bereich wird Residualfilm genannt und setzt sich wie Gleichung 2.10 zusammen.

$$\delta_r^+ = 1 + 0,219 Re^{0,6} \text{ für } Re < 25 Ka^{0,09} \quad 2.10$$

Die mittlere Filmdicke ergibt sich folgendermaßen:

$$\delta_m^+ = 1 + 0,615 Re^{0,47} \quad 2.11$$

Für die maximale Filmdicke am Wellenberg gilt:

$$\delta_{max}^+ = 0,67 Ka^{0,03} (-3,41 + 6,24 Re^{0,19}) \quad 2.12$$

Diese Definitionen gelten für den Reynolds-Zahlenbereich von  $1 < Re < 700$  und werden in Abschnitt 4.2 und 4.3 der Messung der Filmdicke als Korrelation verwendet.

## 2.2 Verdampfung von Fallfilmen

Bei einem Verdampfungsprozess wird die Flüssigkeit bis zur Erreichung der Siedetemperatur erhitzt. Im Fall von Reinstoffen hängt die Siedetemperatur vom Dampfdruck ab, während bei Stoffgemischen die Siedetemperatur von der Zusammensetzung bzw. der Flüssigkeitszusammensetzung und dem daraus resultierenden Gemischdampfdruck bestimmt wird, siehe Goedecke (2006).

Bei Dampf-Flüssig-Trennverfahren kommen Fallfilmverdampfer zur Erhitzung oder teilweise Verdampfung der Flüssigkeit zum Einsatz. Die Wärmeübertragung wird dabei mithilfe von Rohrbündeln oder Platten durchgeführt. Bei Fallfilmapparaten bildet sich eine dünne Filmschicht von etwa 0,2 bis 2 mm aus, die Riesel- oder Fallfilm genannt wird. Bei der Verdampfung hat die Oberfläche des Fallfilms Kontakt zur Gleichgewichts-Dampfphase. Als Folge nimmt die Filmdicke mit der Zeit ab. In dem Fall von Konzentraten, z. B. bei Säften, nimmt die Viskosität des Fluids bei einer hohen Verdampfungsleistung zu.

Der Wärmeübergang in Fallfilmen bei Verdampfung oder Kondensation wurde vielfach untersucht und kann in seiner einfachsten Form mit der Nußelt-Theorie erklärt werden (Nußelt 1916). Für die Beschreibung nach der Nußelt-Theorie soll ein Fallfilm, in Kontakt zum Dampf an einer senkrechten und geheizten Platte, einige Annahmen erfüllen. Ein Überblick dazu gibt Faghri und Zhang (2020):

- Der Dampf befindet sich in einem ruhenden Zustand.
- Die Trägheit des laminaren Films ist vernachlässigbar.
- Die Wärmeübertragung ist nur Wärmeleitung, Wärmekonvektion ist vernachlässigbar.
- Die Wandtemperatur  $T_W$  ist konstant.
- Die Wärmeübertragung ist stationär.
- Die Wandoberfläche ist glatt und schubspannungsfrei.

Abbildung 2-2 zeigt die Darstellung eines laminaren Fallfilms nach der Nußelt-Wasserhauttheorie. Ein lineares Temperaturgefälle stellt sich zwischen der Wandtemperatur  $T_W$  und Siedetemperatur  $T_S$ , an der Oberfläche des Fluids ein.