

Auslegung eines Strömungsreaktors mit keramischen Monolithen zur Sauerstoffversorgung von immobilisierten aeroben Mikroorganismen

Von der Fakultät für Maschinenwesen der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen zur Erlangung des akademischen Grades einer Doktorin der Ingenieurwissenschaften genehmigte Dissertation

vorgelegt von

Dipl.-Ing. Karen Eva Otten

aus

Letmathe (Iserlohn)

Berichter: Univ.-Prof. Dr.-Ing. Horst R. Maier
Univ.-Prof. Dr.-Ing. habil. Christos G. Aneziris

Tag der mündlichen Prüfung: 22. Januar 2007

Diese Dissertation ist auf den Internetseiten der Hochschulbibliothek online verfügbar.

VORWORT

Die vorliegende Arbeit entstand im Rahmen von Forschungsarbeiten, die ich während meiner Tätigkeit als wissenschaftliche Angestellte am Lehrstuhl und Institut für Keramische Komponenten im Maschinenbau der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen unter der Leitung von Univ.-Prof. Dr.-Ing. H. R. Maier durchgeführt habe.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Univ.-Prof. Dr.-Ing. H.R.Maier für die wohlwollende Förderung dieser Arbeit sowie die wertvollen Hinweise und Anregungen.

Herrn Univ.-Prof. Dr.-Ing. habil. Christos Aneziris danke ich für die Übernahme des Koreferats und seine Unterstützung.

Daneben gilt mein Dank auch Herrn Univ.-Prof. Dr.-Ing. J. Büchs für die Übernahme des Vorsitzes der Prüfungskommission.

Allen Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern der Instituts für Keramische Komponenten im Maschinenbau sei an dieser Stelle sehr herzlich für die Zusammenarbeit und Unterstützung gedankt. Weiterhin danke ich den Studentinnen und Studenten, die mich im Rahmen ihrer Diplom- und Studienarbeiten sowie als Studentische Hilfskräfte unterstützt haben. Die umfangreichen experimentellen Untersuchungen wären ohne ihre Mitarbeit nicht zu bewältigen gewesen. Mein besonderer Dank gilt Herrn Falk Schulze für endlose Messreihen und sein jahrelanges erfrischendes Engagement.

Ein weiterer besonderer Dank gilt meinen Freundinnen und Freunden, die mich während meiner gesamten Promotion unterstützt und gefördert haben und mir auch in allen nicht fachlichen Bereichen zur Seite standen.

Vorallem aber danke ich meinen Eltern für ihre liebevolle Unterstützung.

Aachen, im Mai 2007

Karen Otten

KURZFASSUNG

Biofilme sind auf einer Oberfläche immobilisierte Mikroorganismen. Die sogenannte Immobilisierung (Fixierung) von Mikroorganismen bietet Chancen für eine Effizienzsteigerung und Handhabungsvereinfachung von Bioprozessen. In der Biotechnologie werden Biofilme zum Beispiel zur Produktion von Aminosäuren und Vitaminen eingesetzt. Die Ausbildung eines Biofilms in einem Bioreaktor hängt neben der Wechselwirkung der Trägerkörper und Mikroorganismen wesentlich von der Versorgung der Mikroorganismen ab.

In der Bioverfahrenstechnik werden unterschiedliche Reaktortypen eingesetzt, um den Anforderungen von Mikroorganismen hinsichtlich Durchmischung, Substratversorgung und Sauerstoffbedarf gerecht zu werden. In den Mehrphasenreaktoren liegen die an der jeweiligen Reaktion beteiligten Komponenten in mindestens zwei Phasen vor (typischerweise Gasphase und flüssige Phase). Für die meisten Anwendungsfälle ist es entscheidend, die vorliegenden Phasen möglichst intensiv miteinander in Kontakt zu bringen, um so einen wirksamen Sauerstoffübergang und damit hohe und wirtschaftliche Reaktionsgeschwindigkeiten zu erzielen.

Das Ziel der vorliegenden Dissertation ist die Auslegung eines neukonzipierten Gas-Flüssigkeit-Reaktors mit keramischen Monolithen zu Sauerstoffversorgung von immobilisierten aeroben Mikroorganismen. Schwerpunkt der Arbeit ist der volumetrische Stoffübergangskoeffizient k_{La} , der die Intensität des Sauerstoffübergangs von der Luft in die Flüssigkeit beschreibt. Die Auslegung des Reaktors erfolgte in erster Linie auf Grundlage von experimentell in einem chemischen Ersatzsystem ermittelten Daten, die die Variation von Luft- und Flüssigkeitsvolumenstrom, von Blasengröße und von Monolithgeometrie beinhalten.

Bei allen Versuchsreihen zeigte sich, dass kleinere Blasen höhere Stofftransferkoeffizienten liefern, unabhängig von den anderen Parametern. Der k_{La} Wert stieg außerdem in allen Versuchen mit zunehmendem Luftvolumenstrom. Unter Berücksichtigung des Leistungseintrags kann empfohlen werden, dass eine Erhöhung der Monolithlänge eine sinnvolle Maßnahme zur Steigerung des k_{La} Werts im Reaktor ist. Die im Rahmen der Arbeit durchgeführte Regressionsanalyse sichert die Interpolation und ermöglicht eine begrenzte Extrapolation. Nach Auswertung aller durchgeführten Messungen und vergleichenden Bewertungen der Einflussparameter wird ein optimaler Betriebsbereich des entwickelten Strömungsreaktors in Abhängigkeit des spezifischen Leistungseintrags zusammengefasst.

ABSTRACT

Biofilms are immobilized microorganisms on a surface. The so-called immobilization (fixation) of microorganisms provides a chance for enhancement of efficiency and for simplification of operation for bioprocesses. Biofilms are deployed in biotechnology for example, for the production of amino acids and vitamins. The formation of biofilms in a bioreactor depends on many factors, including the interaction between the immobilization body and the microorganisms on the supply of the microorganisms.

Biochemical engineering uses different reactor types to satisfy the requirement of microorganisms, in the consideration of mixing, substrate feed and oxygen need. In multi-phase reactors, the components of special reaction are available in at least two phases; gas phase and liquid phase. For most applications it is essential to contact the phases intensely to get an effectively oxygen transfer, and to gain a high and profitable reaction rate.

The Aim of this dissertation is, to gain an interpretation of a newly designed gas-liquid-reactor with ceramic monoliths for the oxygen supply of aerobic microorganisms. The focus of this work is the volumetric oxygen transfer coefficient k_{La} , which describes the intensity of oxygen transfer between gas and liquid phase. The reactor interpretation results are primarily based on experimental data, which include the variation of gas and liquid flow rate, bubble size and dimension of the monoliths.

The findings of all experimental series conclude that smaller bubbles bring a higher transfer coefficient independently of all other parameters. Furthermore the k_{La} value increases with increasing gas flow rate in all tests. To get a highervolumetric oxygen transfer in the reactor, in consideration of volume specific energy transfer it can be suggested to raise the length of the monoliths. The regression analysis ensures an interpolation and a limited extrapolation. According to all experiments and considering an optimal operating point of the new designed gas-liquid-reactor can be resumed in dependency of the volume specific energy transfer.

1	Einleitung	1
2	Aufgabenstellung und Zielsetzung	3
2.0	Ausgangspunkt IKKM	3
2.1	Sauerstoffversorgung immobilisierter aerober Mikroorganismen	5
2.2	Entwicklung eines neuartigen Reaktortyps	6
2.3	Poröse Keramiken für biologische Anwendungen	7
2.4	Stand der Technik	8
2.5	Zielsetzung	10
3	Theorie und Grundlagen	15
3.1	Reaktoren in der Biotechnologie und der chemischen Industrie	15
3.1.1	Bioreaktoren	15
3.1.2	Gas-Flüssigkeits-Reaktionen in der Biotechnologie	16
3.1.2.1	Begaste Rührkesselreaktoren	17
3.1.2.2	Blasensäulen	17
3.1.2.3	Begaste Schlaufenreaktoren	18
3.1.2.4	Monolithische Reaktoren	20
3.2	Keramische Funktions Hohlräume	21
3.2.1	Charakterisierung poröser Strukturen	22
3.2.2	Wabenstrukturen aus Keramik (Keramikmonolithe)	24
3.3	Grundlagen des Gas-Flüssig-Stofftransfers	25
3.3.1	Methoden zur Charakterisierung des Gas-Flüssig-Stofftransfers	25
3.3.1.1	Physikalische Methoden	25
3.3.1.2	Chemische Methode: Sulfitoxidation	26
3.3.2	Theorien des Gas-Flüssig-Stofftransfers	27
3.3.2.1	Sauerstoffübergang	27
3.3.2.2	Zweifilmtheorie	28
3.3.2.3	Sauerstofftransfer rate OTR	30
3.3.2.4	Volumetrischer Stoffübergangskoeffizient $k_L a$	32

3.3.3	Die Sulfitoxidationsreaktion im Modellsystem Natriumsulfit	33
3.3.3.1	Einfluss des Katalysators	35
3.3.3.2	Definition der Hatta-Zahl	36
3.3.4	Einflüsse auf den volumetrischen Stoffübergangs- koeffizienten	36
3.3.4.1	Einfluss des Luftvolumenstroms bzw. der Begasungsrate	37
3.3.4.2	Einfluss von Antischaummitteln	37
3.3.4.3	Einfluss der Temperatur	39
3.3.5	Übertragbarkeit auf ein biologisches System	39
3.4	Stoffübertragung in begasten Schlaufenreaktoren mit äußerem Umlauf	42
3.4.1	Strömungsformen	43
3.4.2	Grundlagen der Begasung	44
3.4.2.1	Begasungstechniken	44
3.4.2.2	Blasenbildung	45
3.4.3	Relativer Gasgehalt	53
3.4.3.1	Einfluss der Volumenstroms der Luft	53
3.4.3.2	Einfluss des Volumenstroms der Flüssigkeit	54
3.4.3.3	Einfluss der Flüssigkeitseigenschaften	55
3.4.3.4	Einfluss von Antischaummittel	56
3.4.4	Spezifischer Leistungseintrag	56
3.4.4.1	Leistungseintrag durch Umwälzung der Flüssigkeit	57
3.4.4.2	Leistungseintrag durch Begasung	57
3.4.4.3	Gesamtleistungseintrag	59
4	Versuchsaufbau und Messmethoden	60
4.1	Keramikmonolithe aus Siliciumkarbid und Cordierit	60
4.1.1	Der Werkstoff Siliziumkarbid	62
4.1.2	Der Werkstoff Cordierit	62
4.1.3	REM- und EDX-Untersuchungen der besiedelten Keramiken	63
4.2	Hydrodynamischer Versuchsreaktor	64
4.2.1	Auslegung eines Versuchsreaktors für hydrodynamische Messungen	64
4.2.2	Messtechnik der Versuchsanlage	70

4.2.3	Charakterisierung des Reaktors	71
4.2.3.1	Strömungsverhältnisse im Reaktor	71
4.2.3.2	Mischzeitversuche	71
4.2.2.3	Bestimmung des relativen Gasgehalts	72
4.2.2.4	Bestimmung des spezifischen Leistungseintrags	72
4.3	Ermittlung des volumetrischen Stoffübergangs	73
4.3.1	0,5 molares Sulfitsystem	73
4.3.2	Variation des Volumenstroms der Flüssigkeit	75
4.3.3	Einfluss des Luftvolumenstroms und der Blasengröße	76
4.3.4	Geometrievariation der Keramikmonolithen	77
4.4	Übertragung des k_{La} Werts auf ein biologisches System	78
4.4.1	Zugabe von oberflächenaktiven Substanzen	78
4.4.2	Biologische Stofftransferversuche	79
5	Ergebnisse und Diskussion	80
5.1	Charakterisierung der Werkstoffe	80
5.1.1	Keramische Monolithstrukturen	80
5.1.2	Nachweis des Biofilms	81
5.2	Reaktorcharakterisierung	87
5.2.1	Strömungsverhältnisse	87
5.2.2	Blasenverhalten im Abscheidebecken	90
5.2.3	Mischzeitbestimmung	91
5.3	Volumetrischer Stoffübergangskoeffizient k_{La}	92
5.3.1	Reproduzierbarkeit	93
5.3.2	Einfluss der Temperatur	93
5.3.3	Katalysatorvariation	94
5.3.4	Standardisierung eines k_{La} Werts	96
5.3.5	Einfluss der Volumenströme	97
5.3.6	Einfluss der Blasengröße	100
5.3.7	Einfluss der keramischen Monolithe	104
5.3.8	Einfluss des Füllstands im Abscheidebecken	110

5.4	Relativer Gasgehalt im Reaktor	112
5.4.1	Einfluss des Gasgehalts im Reaktor	112
5.4.2	Korrelation zwischen Gasgehalt und Stoffübergang	115
5.4.3	Bestimmung der Blasengröße	116
5.5	Spezifischer Leistungseintrag	122
5.5.1	Einfluss der Volumenströme	123
5.5.2	Einfluss der Blasengröße	124
5.5.3	Einfluss der keramischen Monolithe	125
5.5.4	Einfluss des spezifischen Leistungseintrags auf den $k_L a$ Wert	127
5.6	Antischaummittelvariation	133
5.7	Biologische Stofftransferversuche	136
5.7.1	Einfluss der Volumenströme	137
5.7.2	Einfluss der keramischen Monolithe	138
5.7.3	Versorgbare Biomassemenge	139
6	Regressionsanalyse des $k_L a$ Werts	142
6.1	Einfluss der Blasengröße auf den $k_L a$ Wert	142
6.2	Einfluss der Monolithlänge auf den $k_L a$ Wert	146
6.3	Einfluss des relativen Gasgehalts auf den $k_L a$ Wert	149
6.4	Vergleich zwischen relativem Gasgehalt und $k_L a$ Wert	151
7	Zusammenfassung	154
8	Formelzeichen	161
9	Literatur	164
10	Anhang	173

1 EINLEITUNG

Der Einsatz von Gas(G)-Flüssigkeits(L)-Reaktoren in der Industrie ist weit verbreitet und hat seit vielen Jahren auf breiter Basis Einzug in die unterschiedlichsten Branchen gefunden. G-L-Reaktoren sind Apparate, in denen eine Gasphase und eine Flüssigkeit in Kontakt gebracht werden, in der Regel um einen Stoffaustausch über die Phasengrenzfläche zu ermöglichen. Der Reaktor ist ein wichtiger Bestandteil chemischer und biologischer Umsetzungsprozesse, wie zum Beispiel die Fermentation von Vitamin C oder die biologische Abwasserreinigung. Allen biotechnologischen Anwendungen ist gemein, dass die Mikroorganismen ausreichend mit (Nähr-) Substraten und, im aeroben Fall, auch mit Sauerstoff versorgt werden müssen. In der Biotechnologie werden unterschiedliche Reaktoren eingesetzt, um den Ansprüchen von verschiedensten Mikroorganismen hinsichtlich Durchmischung der Phasen, Substratversorgung und Sauerstoffbedarf zu genügen.

Die vorliegende Arbeit resultiert aus den weiterführenden Fragestellungen eines von der DFG geförderten Forschungsprojekts zur Immobilisierung von aeroben Mikroorganismen in einem neuartigen Strömungsreaktor mit porösen Keramikmonolithen. Ziel des Projekts ist es, das Verständnis über die komplexen Zusammenhänge zwischen Werkstoff, Hydrodynamik und Biofilmbildung für aerobe Mikroorganismen zu erweitern. Die Versorgung der Mikroorganismen mit Sauerstoff stellt dabei eine der Hauptaufgaben beim Betrieb des Strömungsreaktors dar. Sauerstoff kann von den Mikroorganismen in einem flüssigen Nährmedium nur in gelöster Form aufgenommen werden. Eine ungenügende Sauerstoffversorgung der Mikroorganismen führt zu Ausbeuteverlusten.

Die vorliegende Dissertation konzentriert sich auf den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten k_{La} , der eine wichtige Kenngröße für die Effizienz des Sauerstoffeintrags von der Gasphase in die Flüssigkeit ist. Der Wert des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten resultiert in einem monolithischen G-L-Strömungsreaktor aus dem Zusammenwirken von Blasengenerierung, Strömungsform, dem Einfluss von keramischen Monolithen und weiteren Parametern, wie Volumenstrom und Leistungseintrag. Der Wert dient zur Abschätzung der maximalen Biomassekonzentration in einem Reaktor, die unter den praktisch erzielbaren Sauerstofftransportraten noch eine ausreichende Sauerstoffversorgung der Mikroorganismen ermöglicht.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist die hydrodynamische Auslegung eines neuartigen Strömungsreaktors mit Keramikmonolithen auf der Grundlage experimenteller Stofftransferdaten und deren Interpretation, auch hinsichtlich eines effizienten Leistungseintrags ins System. Im Rahmen der Arbeit werden mit einem chemischen Natriumsulfitsystem – als Ersatz für die sauerstoffverbrauchenden Mikroorganismen – die Einflüsse vom Volumenstrom der Luft und der Flüssigkeit, von Blasengröße und von Anzahl und Länge der keramischen Monolithen in dem Strömungsreaktor bestimmt. Das Modellsystem Natriumsulfit simuliert dabei die Zellatmung der Mikroorganismen, ohne dem Einfluss des Stoffwechsels von Mikroorganismen zu unterliegen.

Die Ausbildung eines Biofilms in einem Reaktor im biologischen Einsatz hängt neben der Wechselwirkung von Keramikmonolith und Mikroorganismen wesentlich von der Sauerstoffversorgung der Mikroorganismen ab. Nur durch das Verständnis der physikalischen Einflüsse auf den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ kann die maximal zu erzielende Stofftransferrate abgeschätzt werden. Die Einflüsse auf eine Biofilmbildung mit lebenden Mikroorganismen werden von dem Projektpartner dem Institut für Bioverfahrenstechnik (BioVT) an der RWTH Aachen in einem baugleichen biologischen Reaktor bestimmt /Seletzky, 2007/. In dem Reaktor wird die grundsätzliche Immobilisierungswirkung und damit die erzielbare Raum-Zeit-Ausbeute der Biomassemenge abgeschätzt. Dazu wird aus der vorliegenden Arbeit ein Qualifizierungsverfahren der Immobilisierungsdichte herangezogen. Die Untersuchungen im biologischen Reaktor überprüfen außerdem die Übertragbarkeit des chemischen Ersatzsystems Natriumsulfit auf biologische Anwendungen.

2 AUFGABENSTELLUNG UND ZIELSETZUNG

Die Motivation zu der vorliegenden Dissertation entstand aus dem von der Deutschen Forschungsgemeinschaft geförderten interdisziplinären Verbundprojekt „Immobilisierung von aeroben Mikroorganismen in Wechselwirkung mit offen porösen Keramikmonolithen“. Das Projekt befasst sich mit der Immobilisierung von aeroben Mikroorganismen mit hohem Sauerstoffbedarf in keramischen Monolithen mit hoher offener Porosität. Im Rahmen des mehrjährigen Projekts werden von beiden Projektpartnern IKKM und BioVT (Institutsverbund IKKM/IPAK: Institut für Keramische Komponenten im Maschinenbau und Institut für Prozess- und Anwendungstechnik Keramik und BioVT: Institut für Bioverfahrenstechnik, beide an der RWTH Aachen) Screeningverfahren zur Untersuchung der Interaktion zwischen Keramik und Mikroorganismen und zur Untersuchung des Stofftransports in porösen Keramikkapillaren entwickelt. Kerninhalt der Nutzung von Synergieeffekten zwischen Biotechnologie und Werkstofftechnik ist die Verknüpfung des biologischen Verhaltens mit dem chemisch/physikalischen Oberflächenzustand und den hydrodynamischen Einflüssen.

Zur Immobilisierung werden keramische Monolithstrukturen (Wabenkörper) mit definierter Kanal- und Porenstruktur eingesetzt. Die Kanäle sorgen für eine gleichmäßige und tottraumarme Durchströmung des Keramikmonolithen. Das die Kanäle eingrenzende Wandmaterial ist porös und dient bei einer sogenannten „Volumenbesiedlung“ als Nistplatz für die Mikroorganismen. Die Abstände zwischen den Kanälen, d.h. die Dicke der zwischen ihnen liegenden porösen Wände ist möglichst so gering, dass eine vollständige Versorgung der immobilisierten Biomasse mit Sauerstoff erreicht werden kann. Bei einer „Oberflächenbesiedlung“ ist im Gegensatz dazu das Oberflächen-zu-Volumen-Verhältnis der Keramikmonolithen die entscheidende Größe. Innerhalb der Wände ist bei beiden Ansätzen nur mit einem diffusiven Stofftransport zu rechnen. Das Konzept ist dem Aufbau von biologischem Körpergewebe nachempfunden, bei dem die Organe und Muskeln mit einer Struktur von großen zu- und abführenden Adern mit den dazwischen liegenden, sich fein verästelnden Adergefäßen tottraumfrei über das Blut ver- und entsorgt werden. Anders als in Lebewesen, bei denen der Sauerstoff in der Lunge in das Blut übergeht und vom Hämoglobin zum Ort des Verbrauchs transportiert wird, wird hier die Luft in Blasenform mit durch die Keramikmonolithen geleitet. Mit diesem Ansatz soll die immobilisierte

Biomassemenge aktiv atmender aerober Mikroorganismen deutlich über das bisher bekannte Maß hinaus gesteigert werden, um diese Technik möglichst auch wirtschaftlich interessant zu machen.

Die Mikroorganismen besiedeln die Keramik nicht mit einer Monoorganismenschicht. Nach der ersten Adsorption bildet sich ein Biofilm aus mehreren Mikroorganismenschichten. Die Dicke des Films hängt von der zur Verfügung stehenden Nährstoffmenge und in noch stärkerem Maße von der Sauerstoffmenge ab. Der Erhöhung der immobilisierten Biomassemenge sind allerdings enge geometrische und verfahrensbedingte Grenzen gesetzt. Bei Standard-Bioreaktoren ist es möglich Gelöstsauerstoffkonzentrationen von z.B. 50% Luftsättigung zu erreichen, wobei mit aktiv atmenden Bakterien eine Versorgungstiefe der immobilisierten Mikroorganismen von 30-200µm erzielt wird. Zur Erhöhung der Gelöstsauerstoffkonzentration bietet sich die Verwendung eines erhöhten Systemdruckes an. Die Besiedlungstiefe verändert sich mit der Wurzel der Gelöstsauerstoffkonzentration. Die Wirtschaftlichkeit ist deshalb langfristig unter Berücksichtigung eines erhöhten Systemdruckes zu verfolgen.

Die Hauptschnittstelle der beiden am Projekt beteiligten Institute ist der volumetrische Sauerstoffübergangskoeffizient $k_{L,a}$. Er hat sowohl auf die geometrische und die hydrodynamische, als auch auf die biologische Auslegung der keramischen Struktur einen entscheidenden Einfluss. Die Biofilmdicke und damit die Menge an immobilisierter Biomasse ist im wesentlichen abhängig von der Sauerstoffversorgung der Mikroorganismen und damit vom Stofftransfer aus der Gasphase in die flüssige Phase. Ohne eine ständige Nachlieferung (Belüftung des Systems) ist der gelöste Sauerstoff sehr schnell von den Mikroorganismen verbraucht und es kommt zu Ausbeuteverlusten der Biomasse bzw. zu einer Veränderung der Stoffwechsels (Umstellung auf anaeroben Stoffwechsel). Die Stofftransfermessungen werden mit dem chemischen Ersatzsystem (Natriumsulfit) im hydrodynamischen Reaktor am IKKM und mit dem biologischen System im biologischen Reaktor an der BioVT durchgeführt. Die Konstruktion und Instrumentierung der Reaktoren ist weitgehend identisch. Um Reihenmessungen durchführen zu können, steht bei dem hydrodynamischen Reaktor allerdings der einfache Wechsel der Keramikmonolithen und der Flüssigkeitsfüllung im Vordergrund. Mit diesem Reaktor können Monolithstrukturen bezüglich ihres Stoffübergangs in Abhängigkeit von der Blasengröße, von den Volumenströmen der Flüssigkeit und der Luft und von der Begasungsart bewertet werden.

Aus der Anforderung, eine detaillierten Bewertung des maximal möglichen Stoffübergangs in dem entwickelten Reaktorkonzept zur Immobilisierung von aeroben Mikroorganismen zu erstellen, wurde die in Kapitel 2.5 dargestellte Zielsetzung dieser Dissertation abgeleitet.

2.1 Sauerstoffversorgung immobilisierter aerober Mikroorganismen

Biofilme sind eine der ältesten Lebensformen (über 3,5 Mrd. Jahre) auf der Erde. Mikroorganismen waren wahrscheinlich die erste Lebensform auf unserem Planeten. Aufgrund der sehr langen Evolutionsperiode kann man davon ausgehen, dass sie unter verschiedensten Umgebungsbedingungen leben können oder zumindest in Symbiose überlebensfähig sind. Ein Biofilm ist die Lebensform von Mikroorganismen, die sich auf Grenzflächen immobilisiert (angesiedelt) haben. Merkmale von Biofilmen sind:

- die Nähe zum Festkörper,
- eine relative hohe Volumenkonzentration,
- eine lange Verweilzeit benachbarter Mikroorganismen zueinander und
- eine räumliche Heterogenität (Konzentrationsunterschiede), u.a. der Sauerstoff- und Nährsubstratkonzentrationen /Schmidt, 1999/.

Die sogenannte Immobilisierung (Fixierung) von Mikroorganismen auf einer festen Trägerstruktur bietet Chancen für eine Effizienzsteigerung und Handhabungsvereinfachung von Bioprocessen. Es lässt sich eine hohe Raum-Zeit-Ausbeute verwirklichen durch das Zurückhalten der lebenden und produzierenden Mikroorganismen im kontinuierlichen Prozess des Bioreaktors. Der sonst sehr aufwändige Trennprozess des gewonnenen Produktes von der Nährlösung und den Organismen wird deutlich vereinfacht.

Verschiedene Immobilisierungstechniken haben sich bei Enzympräparationen, bei anaeroben (nicht atmenden) Mikroorganismen und bei Bakterienkulturen mit geringem Sauerstoffbedarf etabliert und werden heute industriell eingesetzt. Allerdings führten die verwendeten Immobilisierungsmethoden von aeroben (atmenden) Mikroorganismen mit zum Teil hohem Sauerstoffbedarf bisher zu keinen nennenswerten Leistungssteigerungen /Enfors, 1983/, /Büchs, 1988/.

Schon bei konventionellen Fermentationsprozessen mit frei suspendierten Mikroorganismen (z.B. in Rührkesseln) ist es schwierig für einen ausreichenden Sauerstoff-

transfer zu sorgen. Bei Reaktoren mit höherem Sauerstoffbedarf durch zusätzliche immobilisierte Biomasse ist der Sauerstoffbedarf noch schwieriger zu decken /Enfors, 1983/. Um eine optimale Versorgung der Mikroorganismen zu gewährleisten, muss der Stoffübergang - vereinfacht gesagt - so hoch und schnell wie möglich sein. Je besser der Stoffübergang umso mehr Mikroorganismen können in dem System leben. Die Produktivität des Biosystems steigt mit der Erhöhung der Sauerstoffversorgung.

Aufgrund der geringen Löslichkeit von Sauerstoff in wässrigen Medien nimmt die Gelöst-sauerstoffkonzentration innerhalb eines Biofilms, in dem der Stofftransport rein diffusiv erfolgt, vom Rand her sehr schnell ab. Die mit Sauerstoff versorgbare Filmtiefe hängt direkt ab vom Sauerstoffangebot in der Flüssigkeit und beträgt für aerobe Mikroorganismen in der Regel lediglich 30 bis maximal 200 μm . Wird zusätzlich noch eine für aerobe Mikroorganismen ungeeignete Immobilisierungsmethode gewählt, z.B. der Einschluß in Hydrogele, so sind die Eindringtiefen von Sauerstoff und damit die aktiven Biomassen noch geringer /Enfors, 1983/.

Es müssen in einem Bioreaktor möglichst große besiedelbare Oberflächen zur Verfügung gestellt werden, um zu nennenswerten immobilisierten Biomassemengen zu kommen. Poröse Trägermaterialien erscheinen deshalb am geeignetsten. Bei üblichen Füllkörperschüttungen in Festbettreaktoren müssen theoretisch sehr kleine poröse Partikel (60-400 μm) verwendet werden, um einen ausreichenden Sauerstofftransport bis zur Oberfläche des Biomassefilms im gesamten Trägermaterial zu erreichen. Derart feinkörniges Trägermaterial lässt sich aber nur in einer Wirbelschichtfahrweise betreiben. Der Flüssigkeitsvolumenstrom des Wirbelschichtreaktors muss sehr hoch gewählt werden, um einen ausreichenden Gas/Flüssig-Stofftransfer zu gewährleisten, was zu einer sehr großen Wirbelschichtausdehnung führt, die die im Reaktor zurückhaltbare Trägermaterialmenge uninteressant gering werden lässt. Praktisch realisierbar sind daher nur grobkörnigere poröse Partikel (>1mm) für einen Einsatz im Wirbelschicht- oder Festbettreaktor. Mit der Technologie lassen sich unter optimalen Bedingungen allerdings nur immobilisierte Biomassemengen versorgen, die in der Größenordnung des Anteils an suspendierten Mikroorganismen liegen /Büchs, 1988/.

2.2 Entwicklung eines neuartigen Reaktortyps

Ein neuartiger Reaktortyp wird erforderlich, wenn ein hoher volumetrischer Sauerstoffübergang bei geringem spezifischen Leistungseintrag gefordert ist und keine

bekannte Reaktorbauart die Bedingungen für Bioprozesse mit aeroben Mikroorganismen ausreichend erfüllt. Es hängt von der Kinetik der untersuchten Reaktion im G-L-Reaktor ab, ob durch Erhöhung der absoluten Stoffaustauschfläche, die umgesetzte Stoffmenge bzw. der Stoffübergang in einem Reaktor gesteigert werden kann. Die Steigerung der umgesetzten Stoffmenge muss unter Berücksichtigung der aus Reaktionskinetik (Verweilzeit-, bzw. Verweilzeitverhalten) und Hydrodynamik (Grenzen der Gas- und Flüssigkeitsbeladung) gegebenen Randbedingungen und aus wirtschaftlichen Überlegungen erfolgen, wobei die Investitionskosten (Reaktorvolumen) mit den Betriebskosten (Energieaufwand) im Wettbewerb stehen /Nagel, 1972/.

Bei gleichem Stoffsystem ist die spezifische Stoffaustauschfläche eine Funktion der Betriebsparameter (s.Kap.2.5) und der ingenieurtechnischen Gestaltung des Gas-Flüssigkeits-Reaktors. Die in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen konzentrieren sich auf die der ingenieurmäßigen Auslegung zugänglichen Parameter, wie die Geometrie der Keramikmonolithen und die Bestimmung von optimalen Betriebsvariablen wie Volumenstrom und Blasengröße (s.Kap.2.5). Auf eine Untersuchung der chemischen Stoffwerteeinflüsse, wie Molarität des Natriumsulfitsystems und pH-Startwert, wird bewusst verzichtet.

2.3 Poröse Keramiken für biologische Anwendungen

Poröse Keramikstrukturen in Form von Membranen oder Filtern werden in zahlreichen biologischen Anwendungen eingesetzt. Keramikmembranen für die Mikrofiltration zum Beispiel sind seit den 1960er-Jahren bekannt /Hildebrand, 1992/. Ihre Herstellung erfolgt über den Folienguss oder über Beschichtungsprozesse auf poröse Substrate. Die Membranen werden auf keramischen Trägermaterialien aufgebracht, die die Belastbarkeit des Werkstoffverbunds verbessern. Neben Flachträgern finden mittels Extrudieren hergestellte Rohre (Monokanalelemente) Anwendung. Zur Erzielung einer möglichst großen Oberfläche werden sogenannte Wabenkörper (Mehrkanalelemente, Monolithe) verwendet. Hierzu wird die Strangpresstechnologie herangezogen, zum Beispiel für den Einsatz als Katalysator oder Dieselrußfilter. Anforderungen an poröse Trägermaterialien für die Biotechnologie sind eine hohe Aufnahmekapazität für die Mikroorganismen, ein großes Verhältnis von Besiedlungsoberflächen-zu-Bauvolumen und eine ausreichende mechanische und chemische Stabilität. Außerdem ist eine Autoklavierbarkeit und Wiederverwendbarkeit von Vorteil /Pörtner, 1996/.

2.4 Stand der Technik

In der Literatur finden sich zahlreiche Untersuchungen zur hydrodynamischen Auslegung von Gas-Flüssigkeits-Reaktoren und zum Gas-Stoffeintrag in flüssige Medien. Im vorliegenden Kapitel „Stand der Technik“ sind die Versuche und Ergebnisse der Literatur, die sich mit dem Stoffübergang in G-L-Reaktoren befassen, zusammengefasst. Der Vergleich mit diesen Quellen ermöglicht eine Abschätzung der Leistungsfähigkeit und des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ des in dieser Arbeit entwickelten hydrodynamischen Reaktors.

Eine experimentelle Untersuchung des G-L-Stofftransfers hat zum Beispiel /Lebens, 1999b/ durchgeführt und so den Einfluss der Strömungsgeschwindigkeiten der Flüssigkeit und des Gases in einem Strömungsreaktor mit monolithischer Keramik bestimmt. Der verwendete Reaktor wird im Gegenstrom betrieben. Die Flüssigkeit strömt in ihm mit einem wellenförmigen Film abwärts, während das Gas in einem zentralen Kern mit einem kleinem Druckgradienten aufwärts strömt. Die verwendeten bis zu 1m langen keramischen Monolithen mit quadratischen Kanälen (Kantenlänge der Kanäle 4,6mm) weisen ein Oberfläche-zu-Volumen-Verhältnis von $1032\text{m}^2/\text{m}^3$ bei einer Zelldichte von 150cps auf. Die Massenstransfermessungen zeigen, dass der volumetrische Stoffübergang $k_L a$ im Reaktor zwischen 0,03 und 0,16 1/s liegt. Außerdem stellt der Autor einen proportionalen Einfluss der Flüssigkeitgeschwindigkeit bei Erhöhung der Volumenströme von Gas und Flüssigkeit fest, während die Begasungsrate im untersuchten Reaktor nur einen geringeren Einfluss hat. Die Begasungsrate eines Systems ist der Volumenstrom der Luft pro Minute bezogen auf das Flüssigkeitsfüllvolumen im Reaktor (s.Kap.2.5).

/Kawakami, 1989b/ hat den Massentransfer von Gas in Flüssigkeit in keramischen Monolithen mit Zelldichten von 80, 200 und 400cps (cells per square inch) gemessen. Er hat in seinen Untersuchungen keine Abhängigkeit des volumetrischen Stofftransferkoeffizienten $k_L a$ von dem Kanaldurchmesser ermittelt. /Heibel, 2001/ hat dagegen in seinen Versuchen herausgefunden, dass der Gas-Flüssig-Massentransfer eine strenge Funktion des Oberfläche-zu-Volumen-Verhältnisses definiert durch die Kanalgeometrie der keramischen Trägerstruktur ist. Das größere Verhältnis eines 50cps Monolithen verglichen mit einem 25cps Monolithen resultiert in einer gestiegenen Gas-Flüssig-Grenzschicht und einer längeren mittleren Verweilzeit, da die Strömungs

geschwindigkeit in der größeren Anzahl von Kanälen geringer ist. Weitere Ergebnisse sind, dass Gleich- und Gegenstrom-Bedingungen vergleichbare Leistungseinträge erfordern und kurze Monolithen mit größerem Anteil des Einströmungsbereichs deutlich höhere Massentransferraten aufweisen. Die Untersuchungen wurden an Monolithen aus Cordierit (25 und 50cps, Länge 80, 250 oder 500mm) durchgeführt.

/Bercic, 1997/ hat den k_{La} Wert in einzelnen Kapillaren mit unterschiedlichem Kanalweiten (1,5, 3,0 und 5,0mm) gemessen. In seinen Versuchen war der Massentransfer von Methan/Wasser nur abhängig von der Einheitszelllänge. Die Einheitszelllänge setzt sich aus einem Flüssigkeitsabschnitt und einer Blase bei einer Taylorströmung in Kapillaren zusammen. Bei der Taylorströmung wechseln sich Gas- und Flüssigkeitsabschnitte innerhalb einer Kapillare ab. Der Autor fand keine Abhängigkeit des k_{La} Wertes von der Kanalweite, allerdings einen ausgeprägten Einfluss von der Länge einer Zelleinheit. Mit der Geschwindigkeit der Einheitszelle steigt nach /Heiszwolf, 2001a/ der Massentransfer. Der Autor zeigt außerdem, dass in einem keramischen Monolithen k_{La} -Werte im Bereich von 0,4 bis 1,0 1/s erreicht werden können.

In den Versuchen von /Choi, 1993/ in einem Airliftreaktor wurden k_{La} Werte bis 0,15 1/s gemessen. Allerdings nur wenn der Airliftreaktor als reine Blasensäule betrieben wurde, da dann der relative Gasgehalt höher war als im Airliftbetrieb. Die k_{La} Werte im Airliftbetrieb betragen dagegen nur 0,06 1/s. Der relative Gasgehalt ε_L ist als Verhältnis des dispergierten Gasvolumens zum Gesamtvolumen der Dispersion (Flüssigkeitsfüllvolumen und Gasvolumen in der Flüssigkeit) definiert. /Ade Bello, 1985/ resümierte, dass der relative Gasgehalt in einem Airliftreaktor und der volumetrische Stoffübergangskoeffizient k_{La} mit zunehmendem Volumenstrom der Luft und dem entsprechenden Leistungseintrag ansteigen. Bei ansteigendem Flüssigkeitsvolumenstrom sinkt bei gleichbleibendem Volumenstrom der Luft die Verweilzeit der Blasen und der relative Gasgehalt im Riser. Der relative Gasgehalt läuft dabei gegen einen Grenzwert.

Die Untersuchungen von /Barboza, 2000/ eines Wasser-Luft-Celite Systems in einem Rohrbioreaktor ($D=800\text{mm}$) zeigen, dass sich der k_{La} -Wert um den Faktor 10 erhöht, wenn die Gasleerrohrgeschwindigkeit (Strömungsgeschwindigkeit im Glasrohr ohne Einbauten) mit dem gleichen Faktor ansteigt (0,01 bis 0,1 1/s bei 0,5 bis 5,0cm/s). Die

gefundene Abhängigkeit der beiden Größen lässt sich in einem Potenzansatz beschreiben:

$$k_L a = C1 \cdot u_G^{c2} \quad (2.1)$$

/Kreutzer, 2001/ hat in einem monolithischen Dreiphasen-Reaktor (200-600cps) für die Hydrierung von α -Methylstyrene sogar $k_L a$ Werte zwischen 0,5 und 1,5 1/s gemessen.

Neben dem volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten ist der Leistungseintrag in das System eine wichtige Größe zur Auslegung eines Reaktors. Der Energieeintrag zur Flüssigkeitszirkulation eines Reaktors mit monolithischer Keramik, wie er nach /Cybulski, 1999/ typisch ist für chemische Anlagen, liegt nur bei 1kW/m^3 , während Energieeinträge für die Vermischung/Zirkulation in typischen Rührkesseln bei gleicher Produktivität mit einer Größe von $4\text{-}5\text{m}^3$ zwischen $1,5$ und 5kW/m^3 liegen.

2.5 Zielsetzung

Der Fortschritt im Bereich der Biotechnologie kann auch als Energieeinsatz pro Produktausstoß bemessen werden. Den Mehrphasenreaktoren kommt hierbei eine herausragende Bedeutung zu. In ihnen liegen die an der jeweiligen Reaktion beteiligten Komponenten in zwei (typischerweise Gasphase und flüssige Phase) oder auch mehreren Phasen vor. Für die meisten Anwendungsfälle ist es bei dieser Reaktorklasse entscheidend, die vorliegenden Phasen möglichst intensiv miteinander in Kontakt zu bringen, um so einen wirksamen Stoffübergang und damit hohe und wirtschaftliche Reaktionsgeschwindigkeiten zu erzielen.

Im Rahmen dieser Arbeit wird der maximal mögliche Sauerstoffübergang in ein flüssiges Medium unter Berücksichtigung des spezifischen Leistungseintrags abgeschätzt. Kernstück des untersuchten Reaktors sind keramische Monolithe, die durch ihre poröse Struktur und ihr großes Oberfläche-zu-Volumenverhältnis gute Möglichkeiten zur Immobilisierung von Mikroorganismen bieten. In den vorangegangenen Abschnitten wurden einige Möglichkeiten und Vorteile einer Immobilisierung von Mikroorganismen genannt.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist die Auslegung eines neuartigen Strömungsreaktors mit keramischen Monolithen in Abhängigkeit von wesentlichen Parametern wie Volumenstrom der Luft und der Flüssigkeit, Blasengröße, Monolithlänge und –anzahl in

Reihenschaltung. Die Untersuchungen werden mit einem chemischen Ersatzsystem (Natriumsulfit) durchgeführt. Vorteilhaft ist die einfache und schnelle Handhabung im Vergleich zu einem biologischen Medium. Es ist keine Sterilität erforderlich und keine physiko-chemische Einflüsse des Bioystems beeinträchtigen die Stoffübergangsuntersuchungen. Von Nachteil ist die unterschiedliche chemische Zusammensetzung des Ersatzsystems und des biologischen Mediums, zum Beispiel durch die Verwendung eines Antischaummittels während einer biologischen Fermentation. Die Bestimmung des notwendigen spezifischen Leistungseintrags zur Erzielung des gewünschten Stoffübergangs ist ein weiterer Bestandteil der Arbeit. Desweiteren ist die Übertragbarkeit des chemischen Ersatzsystems auf ein biologisches Fermentationsmedium zu beurteilen. Die Auswirkungen der Erkenntnisse auf eine Biofilmbildung von *Corynebacterium glutamicum* in identischen Keramikmonolithen wird von /Seletzky, 2007/ untersucht.

Zu den Kernaufgaben gehören (in Reihenfolge der Ergebniskapitel):

1. Entwicklung einer Auswertemethode für die Verteilung der immobilisierten Biomassemenge auf und in den Keramikmonolithen (Kap.5.1).
2. Charakterisierung des Strömungsreaktors bzw. der einzelnen Reaktorabschnitte bezüglich Strömungsgeschwindigkeit und Mischzeit (Kap.5.2).
3. Bestimmung der Einflüsse von den Volumenströmen der Luft und der Flüssigkeit, von der Blasengröße und der Monolithenlänge und –anzahl auf den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ (Kap.5.3).
4. Ermittlung der Abgängigkeit des relativen Gasgehalts von dem Volumenstrom der Luft und der Flüssigkeit und von der Blasengröße, sowie Bestimmung der Abhängigkeit des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ vom relativen Gasgehalt (Kap.5.4).
5. Abschätzung eines optimalen Betriebspunktes des Reaktors bezüglich aller Einflussgrößen durch Ermittlung des Leistungseintrags des Reaktors (Kap.5.5).
6. Beurteilung der Übertragbarkeit des verwendeten chemischen Ersatzsystems durch vergleichende Stofftransferuntersuchungen in einem biologischen System und Beurteilung des Einflusses von Antischaummitteln (Kap.5.6 und Kap.5.7).
7. Regressionsanalyse von ausgewählten Einflüssen auf den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ und Ermittlung von Extrapolationsgrenzen des Stoffübergangsverhaltens (Kap.6).

Abbildung 2.1 zeigt eine Prinzipskizze des verwendeten Strömungsreaktors mit keramischen Monolithen und Abbildung 2.2 das Prinzip der Sauerstoffversorgung der aeroben Mikroorganismen.

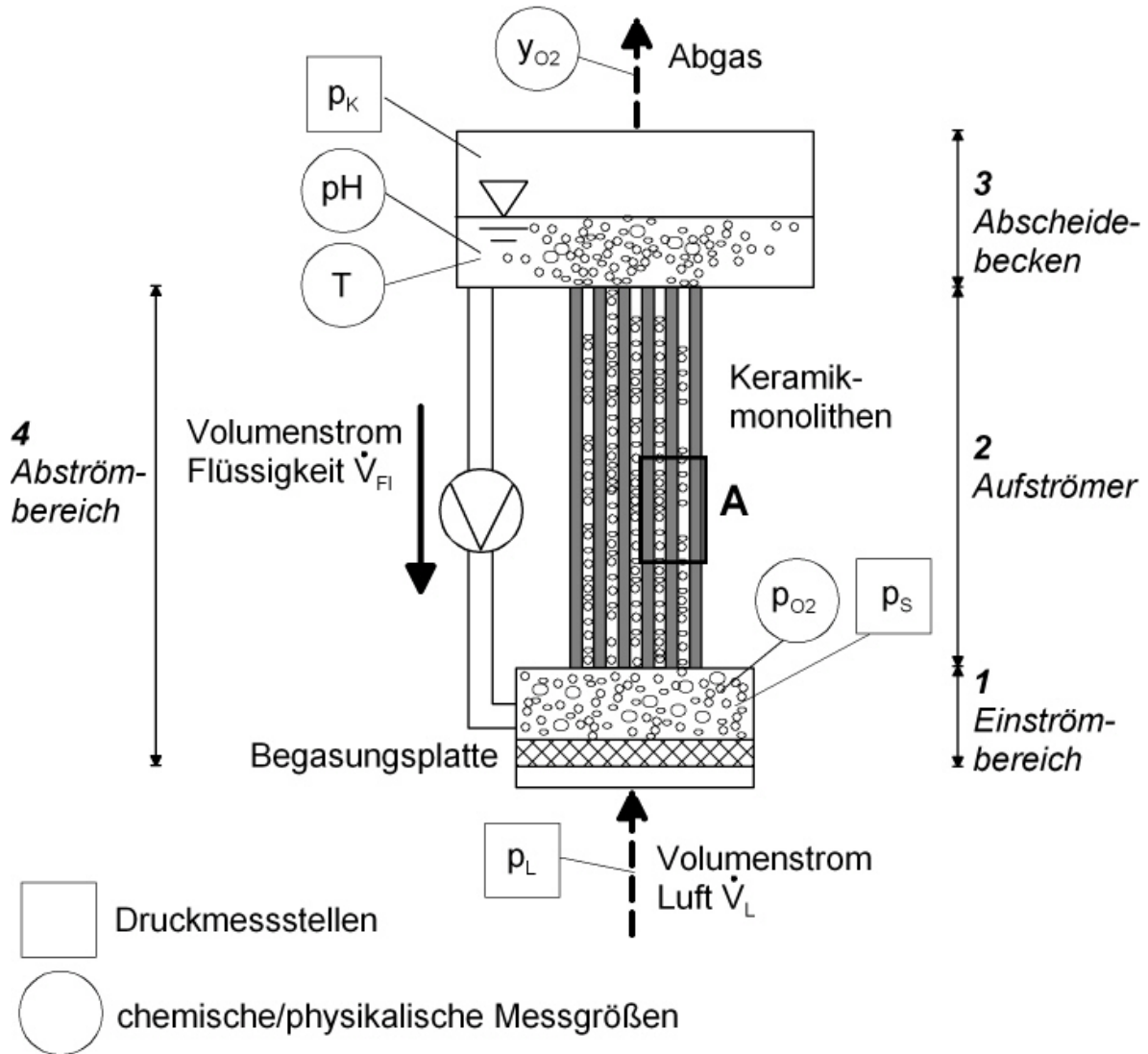


Abb.2.1: Prinzipskizze des Strömungsreaktors mit wichtigsten Messgrößen

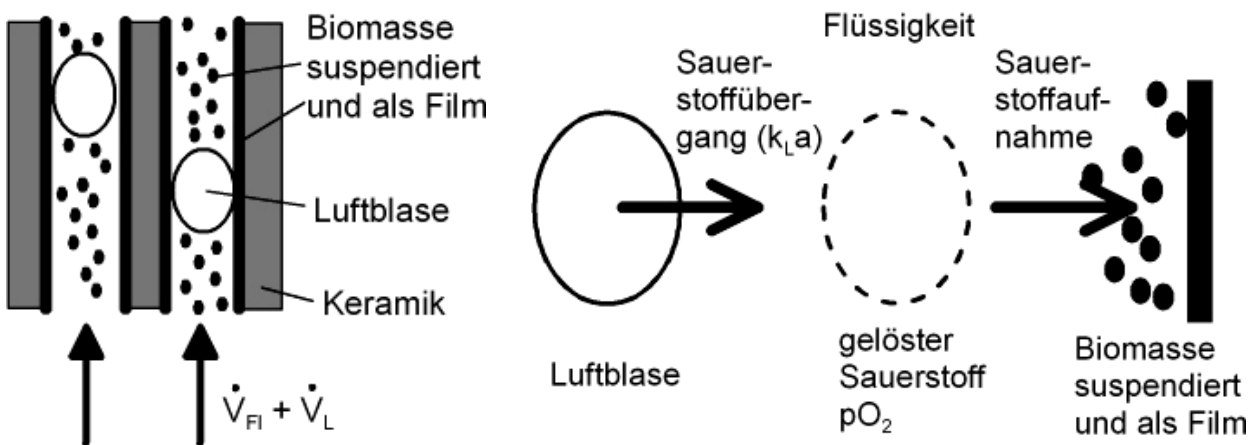


Abb.2.2: Ansicht A: Prinzipskizze der Sauerstoffversorgung der Mikroorganismen

Im folgenden Abschnitt sind die Ziel- und Einflussgrößen und die untersuchten Betriebsparameter aufgelistet. Ergänzt wird die Liste durch eine Definition der Begriffe. Die Tabelle 2.1 führt die Grenzen des Untersuchungsgebiets auf.

1. ZIELGRÖSSEN

- a. Volumetrischer Stoffübergangskoeffizient $k_L a$
- b. Spezifischer Leistungseintrag P/V
- c. Beurteilung der Übertragbarkeit des Ersatzsystems (Natriumsulfit)
- d. Quantifizierung der Biomassemenge X

2. EINFLUSSGRÖSSEN

2.1 GEOMETRIE

- a. Reaktor: Einströmbereich, Aufströmer, Abscheidebecken, Rückstrombereich
- b. Keramikmonolithe: Länge, Anzahl, Kanalweite, Oberflächen-Volumen-Verhältnis
- c. Poröse Begasungsplatte: mittlerer Porendurchmesser

2.2 WERKSTOFF

- a. Keramikart: Siliziumkarbid, Cordierit
- b. Porosität / Mittlerer Porendurchmesser

3. BETRIEBSPARAMETER

- a. Volumenstrom der Luft \dot{V}_L (Begasungsrate q)
- b. Volumenstrom der Flüssigkeit \dot{V}_{Fl}
- c. Blasengröße B
- d. Relativer Gasgehalt ε_L

DEFINITIONEN

$k_L a$ [1/s]: Volumetrischer Stoffübergangskoeffizient: Produkt aus flüssigkeitsseitigem Stoffübergangskoeffizient k_L und spezifischer Phasengrenzfläche a .

k_L [m/s]: Flüssigkeitsseitiger Stoffübergangskoeffizient beim Transport durch die Phasengrenze Gas-Flüssigkeit; abhängig von der Diffusionsgeschwindigkeit durch den Film der Flüssigkeitsgrenzschicht, von der

Filmdicke, von der Viskosität des Mediums und der Phasendurchmischung im Reaktor.

a [m^2/m^3]: Spezifische Austauschfläche: Gesamtoberfläche der Blasen in der Versuchsflüssigkeit bezogen auf das Flüssigkeitsvolumen; abhängig von dem eingetragenen Luftvolumenstrom, von dem relativen Gasgehalt im Reaktor und von der Blasengröße.

P/V [kW/m^3]: Spezifischer Leistungseintrag: Energie pro Zeit, die von der Flüssigkeit dissipiert wird, bezogen auf das Flüssigkeitsvolumen.

X [$\text{g}_{\text{TS}}/\text{l}_{\text{FI}}$]: Biomassemenge: Im Reaktor suspendierte und immobilisierte Masse (Trockensubstanz) an Mikroorganismen bezogen auf das Volumen der Flüssigkeit.

q [vvm]: Begasungsrate: Volumenstrom der Luft pro Minute bezogen auf das Reaktorfüllvolumen der Flüssigkeit in der Einheit 'vvm' (Abk. von [engl.] volume air per volume medium and minute).

ε_{L} [-]: Relativer Gasgehalt: Verhältnis des dispergierten Gasvolumens zum Gesamtvolumen der Dispersion (Flüssigkeitsfüllvolumen und Gasvolumen in der Flüssigkeit).

Tab. 2.1: Grenzen des Untersuchungsgebiets

Keramikmonolithe		Volumenströme		Blasen
Länge [mm]	Anzahl [-]	Luft [l/min]	Flüssigkeit [l/min]	Durchmesser [mm]
150 - 450	1 - 4 (je 150mm)	0 - 10	0 - 21,6	1,1 - 2,1

3 THEORIE UND GRUNDLAGEN

3.1 Reaktoren in der Biotechnologie und chemischen Industrie

Gas-Flüssigkeits-Reaktoren spielen in der chemischen und biotechnologischen Industrie eine tragende Rolle. In typischen Anwendungsfällen liegt ein Reaktionspartner in der Gasphase, der andere in der flüssigen Phase vor /Fleischer, 2001/. Sind Mikroorganismen an der Reaktion beteiligt, so sind diese meistens in der flüssigen Phase suspendiert. Damit eine (bio-)chemische Umsetzung zwischen den gasförmigen und den flüssigen Reaktionspartnern stattfinden kann, müssen diese möglichst intensiv miteinander in Kontakt gebracht werden. Eine Möglichkeit ist es die Gasphase in Form von Blasen in der Flüssigkeit zu dispergieren. Aus dem Inneren der Gasblasen muss das gasförmige Edukt an die Phasengrenze und von dort aus in die flüssige Phase transportiert werden, um dann durch eine chemische Reaktion oder die Atmung von Mikroorganismen verbraucht zu werden. Der entscheidende Stofftransportwiderstand ist dabei durch eine dünne Grenzschicht in unmittelbarer Nähe der flüssigseitigen Phasengrenze bedingt.

3.1.1 Bioreaktoren

Biotechnologische Produkte von Bioreaktoren können die Zellen der verwendeten Mikroorganismen selbst, primäre und sekundäre Metabolite oder aus Stoffumwandlungen entstandene Verbindungen sein. Um den industriellen Anforderungen gerecht zu werden, ist neben der sorgfältigen Stamm-, Mediums- und Prozess-Entwicklung auch intensive Forschungsarbeit auf dem Gebiet der Reaktortechnik notwendig /Rutte-Müller, 1986/.

Von /Pörtner, 1996/ werden unterschiedliche Kulturtechniken für Mikroorganismen verglichen. Kultur-Flaschen dienen zur Stammhaltung von Mikroorganismen. Die Zelldichten und Produktausbeuten sind gering und der manuelle Aufwand ist groß. Außerdem ist die Kontrolle und Regelung von Prozeßparametern (z.B. pH oder Sauerstoff) nur schwer möglich. Suspensionsreaktoren (Rührreaktor, Blasensäule) sind dagegen einfacher zu betreiben, bieten eine homogene Durchmischung und eine einfache Überwachung. Problematisch ist allerdings die Sauerstoffversorgung bei hohen Zelldichten und die Schädigung der Mikroorganismen durch Rühren und/oder

Blasenbegasung. In Wirbelschichtreaktoren werden die Mikroorganismen in meist makroporösen Trägermaterialien immobilisiert, die durch den Flüssigkeitsstrom in der Schwebe gehalten werden. Beim Scale-up ist die Sauerstoffversorgung problematisch, da die Höhe der Wirbelschicht aufgrund der Abreicherung an Sauerstoff begrenzt ist. Festbettreaktoren oder Monolithische Reaktoren ermöglichen aufgrund der makroporösen Trägermaterialien zur Immobilisierung der Mikroorganismen hohe volumenbezogene Zelldichten.

Nach /Pörtner, 1996/ liegen die volumenspezifischen Biomasse-mengen und Produktivitäten von Festbettreaktoren deutlich höher als bei Suspensionsreaktoren und in ähnlicher Größenordnung wie in Wirbelschichtreaktoren. Einige Beispiele aus der Literatur sind in Tabelle 3.1 aufgeführt.

Tab.3.1: Vergleich der volumenspezifischen Biomasse-mengen und Produktivitäten

Literatur	Reaktor	Trägermaterial	Konzentration [g/m]
/Pörtner, 1996/	Suspension	-	$5,3 \cdot 10^{-4}$
/Born, 1995/	Wirbelschicht	Siran (0,4-0,7mm)	$5,3 \cdot 10^{-3}$
/Ray, 1990/	Wirbelschicht	Verax (0,5mm)	$7,9 \cdot 10^{-2}$
/Wang, 1993/	Festbett	Fibrocell	$2,5 \cdot 10^{-2}$

Für die Lösung spezieller Probleme bei aeroben Prozessen und zur Verbesserung des Standard-Rührreaktors werden gezielt Bioreaktoren entwickelt. Um das Verhalten von Bioreaktoren kennenzulernen, ist grundsätzlich ein Vergleich mit chemischen Reaktoren möglich, auch wenn es prozessbedingte Abweichungen gibt, wie zum Beispiel die Größe der Produktkonzentration oder Sterilitätsbedingungen /Rutte-Müller, 1986/.

3.1.2 Gas-Flüssigkeits-Reaktionen in der Biotechnologie

Für G-L-Reaktionen werden in der Biotechnologie verschiedene Reaktortypen eingesetzt. Maßgabe für die Auswahl eines Reaktors sind vor allem die Stoffaustauschleistung und der für einen gewünschten Stoffübergang benötigte Leistungseintrag. Ziele einer industriellen Fermentation sind geringe produktspezifische Investitionskosten durch hohe Effektivität beim Sauerstoffeintrag und hohe Produktivität (Biomasse-menge/Flüssigkeitsvolumen [g/l]). Um eine Flüssigkeitsströmung zu induzieren,

muss Energie in den Reaktor eingetragen werden. Dies kann durch Zugabe des Gases unter Druck am Boden des Reaktors, durch Eintrag von elektrischer Energie oder durch gleichzeitige Zugabe von Flüssigkeit und Gas in den Reaktor geschehen. Typische Blasenapparate sind begaste Rührkesselreaktoren, Blasensäulen oder begaste Schlaufenreaktoren /Fleischer, 2001/.

3.1.2.1 Begaste Rührkesselreaktoren

Begaste Rührkessel gehören zu den klassischen, in allen Bereichen der Verfahrenstechnik zu findenden Reaktoren. Ihr Prinzip besteht darin, dass das im Kessel befindliche Reaktionsgemisch mittels einer eintauchenden Rührereinrichtung umgewälzt wird, wodurch ein nachhaltiger Stoff- und Wärmeaustausch zwischen den reagierenden Komponenten erreicht wird. Weitere Aufgaben der Rührereinrichtung sind das Homogenisieren, das Dispergieren von ineinander nicht löslichen Flüssigkeiten oder auch das Zerteilen der Gasphase in der Flüssigphase. Die Vielfalt an möglichen Rührereinrichtungen ist dabei nahezu unüberschaubar.

Rührkessel arbeiten meist diskontinuierlich („Batch“-weise), d.h. der Produktionsbetrieb wird nach dem Ablauf der gewünschten Reaktion jeweils unterbrochen, um das Produkt aus dem Behälter zu entnehmen, und diesen anschließend neu zu befüllen. Dadurch sind Rührkessel zwar hinsichtlich der in ihnen ablaufenden Reaktion flexibel, haben jedoch auch unvermeidliche Stillstandszeiten und ihr Betrieb bedingt einen häufig nicht unerheblichen Personalaufwand. Betrieben werden können Rührkessel auch bei relativ geringen Gasdurchsätzen und höheren Viskositäten. Die Stoffaustauschfläche ist über die Drehzahl des Rührers unabhängig von der durchgesetzten Gasmenge einstellbar.

3.1.2.2 Blasensäulen

Eine besonders einfache Art von Gas-Flüssigkeits-Reaktoren stellen Blasensäulen dar. Sie kommen bevorzugt dort zum Einsatz, wo ein hoher Gasdurchsatz, aber ein vergleichsweise geringer Flüssigkeitsdurchsatz gefordert sind. Häufig ist in ihnen zusätzlich eine dritte, feste Phase vorhanden, zum Beispiel als Katalysator für die geforderte Gas-Flüssigkeitsreaktion. Generell bestehen Blasensäulen aus einem stehenden, zylindrischen Flüssigkeitsbehälter in den das jeweilige Gas durch eine

Vorrichtung am Fuß des Behälters einströmt. Die Gaszuführung wird je nach Einsatzgebiet durch statische Gasverteiler wie Lochplatten oder poröse Glasplatten, oder dynamische Gasverteiler wie Strahldüsen oder Radialstromdüsen realisiert. Durch anforderungsgerechte Auslegung des Gasverteilers oder der Säule selbst können erwünschte thermische oder fluiddynamische Zustände in der Blasensäule befördert bzw. unerwünschte Zustände unterdrückt werden /Berg, 1993/.

Die Vorteile der Blasensäulen von /Deckwer, 1993/ zusammengefasst sind eine einfache Bauweise und keine Abdichtungsprobleme, da bewegliche Teile fehlen und ein vertretbarer Massentransport bei geringen Energiekosten. Außerdem ein geringer Standflächenbedarf und relativ günstig Investitionskosten. Die Nachteile sind die Rückvermischung der beiden Phasen, ein großer Druckverlust und die auftretende Blasenkoaleszenz.

3.1.2.3 Begaste Schlaufenreaktoren

Begaste Schlaufenreaktoren bestehen aus zwei meist schlanken (große Länge im Verhältnis zum Durchmesser) Bauteilen häufig zylindrischer Geometrie, die an Kopf und Fuß miteinander verbunden und mit einer flüssigen Phase gefüllt sind. Je nach Bauart können die Bauteile konzentrisch ineinander (innerer Umlauf) oder nebeneinander (äußerer Umlauf) angeordnet sein. Stets ist eines der Bauteile mit Gas beaufschlagt, welches am Kopf wieder abgezogen wird. Er wird aus diesem Grund oft auch als Entgasungskopf bezeichnet. Bei einem Betrieb des Schlaufenreaktors ohne mechanische Flüssigkeitsumwälzung, im sogenannten Airliftbetrieb, bedingt der Gasanteil einen Dichteunterschied zwischen den Flüssigphasen in den beiden Bauteilen. Dieser Dichteunterschied ruft wiederum eine Druckdifferenz hervor, welche eine Zirkulation der Flüssigphase zwischen dem begasten (Aufströmer, auch Riser) und dem unbegasten (Abströmer, auch Downcomer) Bauteil erzwingt. Durch diese gerichtete Strömung der Flüssigphase unterscheiden sich begaste Schlaufenreaktoren von herkömmlichen Blasensäulen. Sie eignen sich besonders für Prozesse, an denen eine dritte Phase in Form von Feststoffpartikeln oder Mikroorganismen beteiligt ist /Kochbeck, 1995/. Die Zirkulation kann durch den Einbau einer Pumpe im Downcomer oder einer Strahldüse unterhalb des Risers unterstützt werden.

Für das Betriebsverhalten von Schlaufenreaktoren sind der Durchmesser und die konstruktive Auslegung des Entgasungskopfes von Bedeutung. Eine ungünstige

Auslegung des Entgasungskopfes kann dazu führen, dass kleinere Gasblasen nicht vollständig abgeschieden sondern mit in den Downcomer gerissen werden (sog. Sichtungseffekt /Hirner, 1977/). Als wichtige verfahrenstechnische Parameter sind vor allem der Gas- und Flüssigphasenvolumenstrom sowie der relative Gasgehalt ε_L zu nennen /Kochbeck, 1995/.

Je nach Art des Energieeintrags unterscheidet man die drei Bauweisen von Schlaufenreaktoren als

- Airlift- oder Mammutschlaufenreaktor,
- Propeller- oder Rührschlaufenreaktor und
- Strahlschlaufenreaktor /Ewald, 1993/.

Airlift- oder Mammutschlaufenreaktor

Der Airlift- oder Mammutschlaufenreaktor ist die einfachste und am weitesten verbreitete Variante der Schlaufenreaktoren. Sein Flüssigkeitsumlauf wird durch die aufgrund unterschiedlicher Gasgehalts in Auf- und Abströmer entstandenen Dichte- und Druckdifferenz hervorgerufen. Große Gasdurchsätze und empfindliche Mikroorganismen sind in ihm besonders gut zu handhaben /Ewald, 1993/.

Die Vorteile von Airliftreaktoren sind nach /Choi, 2002/ ein einfaches Design, geringe Energiekosten und besonders sanfte Strömungsbedingungen, da sie keine bewegten Teile haben. Die Nachteile von Airliftreaktoren sind, der plötzliche Abfall der Kreislaufgeschwindigkeit, wenn viskose Flüssigkeiten verwendet werden und Abfall des Massentransfers, wenn die Flüssigkeitsgeschwindigkeit zu hoch ist.

/Merchuk, 1990/ gibt in seiner Arbeit Gründe für den Einsatz eines Airlift-Fermenters für Bioreaktionen an. Hauptsächlicher Unterschied zwischen Airlift-Reaktoren und gewöhnlichen Fermentern liegt in der Fluid-Dynamik der Systeme. In konventionellen Rührkesseln oder Blasensäulen findet der Leistungseintrag zum Umpumpen und Begasen der Flüssigkeit an einer Stelle im System statt. Im Airliftreaktor gibt es keine lokalen Punkte des Energieeintrags und die Scherstressverteilung ist gleichmäßig im System. Die speziellen Eigenschaften des Airliftreaktors machen ihn vorteilhaft für einige Prozesse mit schereempfindliche Mikroorganismen. Außerdem für großvolumige Prozesse mit geringen Kosten und kleinvolumige Prozesse mit hochwertigen Produkten, wie einige Kulturen aus tierischen und pflanzlichen Zellen.

Propeller- oder Rührschlaufenreaktor

Der Propellerschlaufenreaktor besitzt einen hydromechanisch angetriebenen Flüssigkeitsumlauf (Rührer) und kann als sehr schlanker Rührkessel mit Umlauf gesehen werden. Der Rührer ist neben Förder- und Mischeinrichtung auch Dispergierorgan. Sterilitätsprobleme durch Undichtigkeiten und eine aufwändige Konstruktion sind die Nachteile, im Gegensatz zum Vorteil, dass der Reaktor selbst bei hohen Flüssigkeitsviskositäten eingesetzt werden kann. Ein wesentlicher Nachteil des Reaktors ist der hohe Energieeintrag verglichen mit dem Airliftschlaufenreaktor /Ewald, 1993/.

Strahlschlaufenreaktor

Der Strahlschlaufenreaktor besitzt als Dispergierorgan zwei Düsen, die entweder in einem Begaser integriert oder einzeln in der Reaktorbasis angebracht sind. Durch eine der Düsen wird Gas und durch die andere Flüssigkeit mit hoher Geschwindigkeit geführt. Er ist wenig kompliziert in Konstruktion und Betrieb, besitzt ein definiertes Mischverhalten und erzielt gute Stoffaustauschleistungen bei verhältnismäßig niedrigen volumetrischen Leistungseinträgen /Ewald, 1993/.

3.1.2.4 Monolithische Reaktoren

Ein „Monolithischer Reaktor“ (MR) besteht aus den gleichen Bauteilen wie ein Schlaufenreaktor. Allerdings sind in den Reaktor Monolithe eingebaut, die vom Medium durchströmt werden. Das Konzept eines Monolithischen Reaktors zeigt ein mannigfaltiges Leistungspotential (gesteigerte Reaktionsrate, Selektivität und Ausbeute) für einen weiten Bereich von Reaktionen. Anorganische Materialien für MRs können inert oder katalytisch aktiv, dicht oder porös, aus Metall, Kohlenstoff, Glas oder Keramik sein. Ihre Struktur kann aus flachen Scheiben, Rohren (offen oder an einem Ende verschlossen), Hohlfasern oder Mehrkanalelementen bestehen /Julbe, 2001/.

Der Monolithische Reaktor ist eine attraktive Alternative zum Rührkessel. Als Ergebnis einer mathematischen Modellierung beider Reaktoren über einen breiten Bereich von Betriebsparametern wurde von /Cybulski, 1999/ festgestellt, dass der Monolithische Reaktor besser arbeitet als der Rührkessel in Bezug auf Produktivität und Selektivität. Besonders bei chemischen, katalysierten Reaktionen sind Monolithische Reaktoren

nach /Kreutzer, 2001/ und /Nijhuis, 2001a/ eine gute Alternative, da

- sie eine kurze Diffusionsstrecke in der aktiven katalytischen Schicht haben,
- ausgezeichnete Stofftransferwerte für Zweiphasenströmungen erreicht werden können,
- sie einen geringen Energiebedarf infolge eines kleinen Druckverlustes haben und
- der Katalysator nicht in einem eigenen Schritt abgetrennt werden muss.

Vergleicht man den Monolithischen Reaktor mit dem klassischen Verfahren zur Immobilisierung von Mikroorganismen, so hat der MR zahlreiche Vorteile gegenüber einem konventionellen Festbettreaktor:

- eine hohe mechanische Stabilität,
- eine große spezifische Oberfläche,
- dünne Wände,
- eine bessere Flüssigkeitsverteilung bei geringen Flüssigkeitsgeschwindigkeiten und
- einen geringen Druckverlust /Kawakami, 1989a/, /Irandoust, 1988/.

Der Monolithische Reaktor kann aufwärts oder abwärts, im Gleichstrom oder im Gegenstrom betrieben werden. Im von /Kawakami, 1989b/ untersuchten Bereich eines Monolithischen Bioreaktors ist der volumetrische Stoffübergangskoeffizient größer für den aufwärtsgerichteten Gleichstrombetrieb verglichen zum abwärtsgerichteten. Der Effekt der Kapillargröße kann in den Experimenten bei beiden Fällen vernachlässigt werden. Der Glukoseumsatz ist bei der untersuchten Oxidation von Glukose durch immobilisierte Glukose Oxidase im monolithischen Reaktor allerdings höher bei einer größeren Kapillarenanzahl, da die geometrisch bedingten dünneren Wänden zu einer Reduzierung von inneren Diffusionswiderständen führen. Der Betrieb im Aufwärtsstrom führt bei den Untersuchungen zu volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten, die zwei- bis fünfmal mal höher sind als die im Abwärtsbetrieb.

3.2 Keramische Funktions Hohlräume

Poröse Materialien haben viele Vorteile, beispielsweise ihr geringe Dichte, das thermische und elektrische Isolationsvermögen (beim Einsatz als Isolatoren) oder die Fähigkeit, Schall zu dämmen. Außerdem können in ihnen Fremstoff eingelagert werden, zum Beispiel bei der Verwendung von poröser Keramik als Knochenersatzwerkstoff.

Gegenüber Filterwerkstoffen aus Metall oder Kunststoff haben poröse Keramiken Vorteile bezüglich Temperatur-, Korrosions- und Abriebbeständigkeit abhängig von der Keramikart. Mit maßgeschneiderten Eigenschaftsprofil bieten sich porösen Keramiken immer wieder neue Anwendungsmöglichkeiten. Die gewünschten Formkörper werden durch Pressen, Extrudieren oder Gießen hergestellt. Keramiken mit Funktionshöhlräumen werden eingesetzt bei der Heißgasfiltration, für die Filtration von Flüssigkeiten, als Wärmetauscher und auch als Bakterienträger in Bioreaktoren.

Betrachtet man die Kapillarstruktur von Keramikmonolithen (Wabenstruktur) als Makroporosität, so ist neben ihr auch noch die Mikroporosität bei einer Immobilisierung von Mikroorganismen von Bedeutung. Auf beziehungsweise in den porösen Kapillärwänden können sich die Mikroorganismen ansiedeln. /Messing, 1979/ hat sich in seiner Arbeit mit der Bestimmung der Beziehung zwischen der Größenordnung der Mikroorganismen und der Ansammlung dieser Mikroorganismen in porösen, anorganischen Strukturen beschäftigt. Er hat festgestellt, dass die Beziehung der Größenordnung der Mikroorganismen von der Art der Reproduktion und von dem Porendurchmesser des Materials abhängt. Um eine hohe Besiedlungsdichte von Mikroorganismen, die sich mit Zellteilung reproduzieren, zu erreichen, sollten nach Meinung des Autors 70% der Poren des anorganischen Trägerkörpers Porendurchmesser im Bereich von den kleinsten Mikroorganismen bis viermal der Länge der größten Mikroorganismen aufweisen. Dies gilt nur bei Annahme einer ausschließlichen Besiedlung der Mikroorganismen im Volumen des Trägerkörpers.

3.2.1 Charakterisierung poröser Strukturen

Eine Charakterisierung und damit auch ein Vergleich der Keramiken erfolgt in dieser Arbeit sowohl durch Porositätsmessungen als auch durch rasterelektronenmikroskopische Auswertungen und Elektronenstrahlröntgenmikroanalysen. Die Grundlagen der genannten Verfahren werden im Folgenden kurz erläutert.

Porosität

Poren sind ein genereller Gefügebestandteil in Keramiken. Das Volumen aller Poren im Verhältnis zu dem des gesamten Körpers wird durch die Gesamtporosität ausgedrückt, die sich in geschlossene und offene Porosität unterteilt. Bei den offenen Poren unterscheidet man nochmal zwischen durchströmbaren und nicht durchströmbaren

Poren /Michaeli, 1994/. Die Porengrößenverteilung, die Rohdichte, die offene und die geschlossenen Porosität werden mit dem Quecksilberdruckporosimeter bestimmt. Das Prinzip der Porengrößenmessung basiert darauf, daß Quecksilber mit einem Benetzungswinkel zwischen 135°C und 155°C /Lowell, 1984/ nur durch einen äußeren Druck in die zugängliche Poren gepreßt wird.

Das Berechnungsmodell zur Ermittlung der Porosität und des mittleren Porendurchmesser, welches der Quecksilberdruckporosimetrie zugrunde liegt, geht von zylindrischen Poren in der Keramik aus. In Wirklichkeit sind die vorliegenden Poren allerdings nicht zylindrisch, d.h. sie erstrecken sich nicht mit konstantem Durchmesser innerhalb des Körpers, sondern bilden ein Porennetzwerk mit flaschenhalsförmigen Hohlstrukturen. Die eigentliche Größe des Hohlraums wird also mit der Quecksilberdruckporosimetrie nicht erfaßt /Michaeli, 1994/.

REM und EDX

Die Rasterelektronenmikroskopie (REM) ermöglicht die Abbildung und Analyse der Oberfläche von porösen Strukturen mit Auflösungen im Nanometerbereich und hoher Schärfentiefe. Ein feinfokussierter Elektronenstrahl (Primärelektronen) tastet einen kleinen Oberflächenbereich rasterförmig ab, die hierbei emittierten Elektronen werden mit entsprechenden Detektoren gemessen, synchron auf einem Bildschirm dargestellt und erzeugen dabei auf dem Bildschirm ein vollständiges Abbild der Probe.

Mit dem REM lassen sich neben Sekundärelektronenbildern, die die eigentliche Topographie ähnlich wie durch einem Lichtstrahl darstellen, auch Rückstreuielektronenbilder erzeugen. Mit den Rückstreuielektronenstrahlen werden Elementkontraste sichtbar gemacht, da schwere Elemente heller erscheinen. Bei immobilisierten Proben können so die Mikroorganismen von der Keramik unterschieden werden. Rasterelektronenmikroskope erreichen 100 000fache und höhere Vergrößerungen. Die durch den Elektronenbeschuss angeregte charakteristische Röntgenstrahlung dient in der Energiedispersiven Elektronenstrahlröntgenmikroanalyse (EDX, Energy Dispersive X-ray Analysis) zur qualitativen und quantitativen Elementanalyse im Mikrobereich.

Bei der Immobilisierung von Mikroorganismen auf einer porösen keramischen Trägerstruktur ist zur Optimierung der Keramik hinsichtlich Nährstoffversorgung und Haftungsbedingungen die Biomassemenge und die Besiedlungsdichte parameterabhängig nachzuweisen. Zum Nachweis der immobilisierten Biomassemenge kann die

Keramik im Ofen bei 800°C ausgebrannt und aus dem Gewichtsverlust ein Rückschluss auf den organischen Anteil in der Keramik getroffen werden. Eine andere Möglichkeit ist die Messung der optischen Dichte eines flüssigen Mediums, in das die Mikroorganismen vollständig von der Keramik abgelöst wurden. Beide Verfahren können nur Aussagen über die Gesamtmenge immobilisierter Mikroorganismen liefern, jedoch nicht die örtliche Verteilung. Dies ist mit einem Nachweis im Rasterelektronenmikroskop möglich.

Mit der Rasterelektronenmikroskopie ist es möglich, mit relativ geringem Aufwand einen direkten Vergleich unterschiedlicher Behandlungsmethoden und Strömungsbedingungen auf Besiedlung und Haftung der Mikroorganismen zu liefern. Darüber hinaus ist es möglich, mit Hilfe von EDX-Flächenanalysen die Biomassemenge in Abhängigkeit der Parameter nachzuweisen /Pfaff, 2003/.

3.2.2 Wabenstrukturen aus Keramiken (Keramikmonolithe)

Keramische Wabenstrukturen (Keramikmonolithe) bestehen aus einzelnen Blöcken mit kleinen (0,5-5mm) parallelen Kapillaren /Nijhuis, 2001b/. Die Kosten für monolithische Strukturen aus Keramik sind gering, da sie im großen Maßstab für die Automobilindustrie hergestellt werden und der Herstellungsprozess über Strangpressen relativ günstig ist. Die Flexibilität der Kanalgeometrien und -dimensionen erlauben das Zuschneiden eines monolithischen Reaktors für den speziellen Gebrauch einer Anwendung /Heibel, 2001/.

Das am meisten verwendete Material ist Cordierit, eine keramische Phase aus Magnesiumoxid, Siliziumoxid und Aluminiumoxid im Verhältnis 2:5:2. (s.Kap.4.1.2). Andere Materialien, die als Monolithen kommerziell erhältlich sind, sind Mullit (Phase aus Siliziumoxid und Aluminiumoxid, 2:3) und Siliziumkarbid (Dieselrußfilter). Keramische Wabenkörper sind erhältlich mit Zelldichten von 25 bis 1600cps (entspricht Zellgrößen von 5-0,6mm). Der Vorteil beim Einsatz von Monolithen mit höherer Zellzahl ist, dass die Wanddicke ab und die geometrische Oberfläche mit der Zellzahl zunimmt. Der Nachteil sind höhere Produktionskosten und ein größerer Druckverlust bei der Durchströmung. Der Druckverlust ist aber insgesamt nicht sehr hoch, verglichen mit Festbettreaktoren um ein 10faches geringer /Julbe, 2001/.

Neben einer geringen axialen Vermischung von zwei Phasen (z.B. Gas und Flüssigkeit) in den Kapillaren und einem verbesserten Massentransfer, sind nach /Irandoust, 1988/ und /Thulasidas, 1995/ ein geringer Druckverlust, eine große Oberfläche und eine gleichmäßige Strömung die Vorteile von monolithischen Strukturen in G-L-Reaktoren.

3.3 Grundlagen des Gas-Flüssig-Stofftransfers

3.3.1 Methoden zur Charakterisierung des Gas-Flüssig-Stofftransfers

Es gibt unterschiedliche Methoden zur Charakterisierung des Gas-Flüssig-Stofftransfers in einem Zweiphasensystem. Lokale Messmethoden beinhalten die physikalischen Methoden wie Photographie oder Leitfähigkeitsmessungen, um die Grenzfläche der Blasen zu bestimmen. Die globalen Methoden können in zwei Gruppen unterschieden werden: physikalische und chemische Methoden. Physikalische Methoden (basierend auf `Ausgasen` oder Druckverlustschritten) können stationär oder dynamisch betrieben werden. Die chemischen Methoden werden in Abhängigkeit von der Reaktionsrate eingeteilt. Eine häufig eingesetzte chemische Methode ist die Sulfitoxidation, aber auch andere Reaktionen mit Sauerstoff können verwendet werden /Poughon, 2003/.

Die am weitesten verbreiteten Methoden zur Bestimmung des $k_L a$ -Werts sind nach /de Ory, 1999/ die statische und die dynamische Ausgasungsmethode, die Sauerstoffbilanz und die Sulfit-Oxidation. /Poughon, 2003/ hat eine physikalische Gasbilanzmethode und die Sulfitoxidationsmethode in Rührkessel, Blasensäule und Festbettreaktor verglichen. Nach Meinung des Autors sind die gemessenen Werte für alle drei Methoden vergleichbar. Von /Skala, 1988/ wurde der volumetrische Stoffübergangskoeffizient $k_L a$ mittels der Sulfitmethode, der rein-physikalischen Absorption von Sauerstoff und einer dynamischen Methode unter Kulturbedingungen untersucht. Es wurde von ihm eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den Methoden bestätigt.

3.3.1.1 Physikalische Methoden

Stationäre Methode zur Bestimmung des $k_L a$ -Wertes

Bei der stationären Methode wird die bei kontinuierlichem Betrieb des Begasungsapparates in der Flüssigphase erzielte Sauerstoff-Anreicherung gemessen. Das

Messen allein der Ein- und Austrittskonzentrationen kann allerdings zu Fehlern führen, wenn annähernd Sättigung erzielt wird /Schumpe, 1985/. Dieser Bereich ist bei Verwendung der stationären Messmethode zu vermeiden.

Dynamische Methode zur Bestimmung des $k_L a$ -Wertes

Wenn keine Abgasanalyse zur Verfügung steht, kann der $k_L a$ -Wert durch die dynamische Methode bestimmt werden. Eine Abgasanalyse kann zum Beispiel nicht eingesetzt werden, wenn der Sauerstoffverbrauch extrem gering ist, wie das bei tierischen Zellkulturen der Fall sein kann. Bei der dynamischen Methode wird die Änderung der Sauerstoff-Flüssigphasenkonzentration bei sprunghafter Änderung der Gaszusammensetzung verfolgt. Der meist verwendete Sprung ist der Übergang von Stickstoff- zu Luft-Begasung /Schumpe, 1985/.

3.3.1.2 Chemische Methode: Sulfitoxidation

Zum Zweck der Charakterisierung von Gas-Flüssigkeits-Reaktoren und zur Untersuchung der Gas-Flüssig-Massentransferprozesse werden in biologischen Reaktoren oft chemische Methoden angewendet. Bei diesen wird der biologische Sauerstoffverbraucher durch chemische Reaktionen mit folgenden Vorteilen ersetzt: die physikalischen Eigenschaften des Mediums sind definiert und werden während des Experiments nicht verändert, die Messungen sind einfach durchzuführen und können unter nicht-sterilen Bedingungen stattfinden.

Die Oxidation von Natriumsulfit als Modellsystem zur Untersuchung des Stofftransfers von Gas in Flüssigkeit wurde als erstes von /Cooper, 1944/ beschrieben. In der Reaktion werden die Sulfitanionen oxidiert, es entsteht Natriumsulfat. Die Reaktion wird von einigen Metallionen, wie zum Beispiel Kobalt und Kupfer, katalysiert, welche ebenso als Verunreinigungen in kommerziell erhältlichem Sulfit vorkommen können. Um sicherzustellen, daß die Reaktion als eine ausreichende und gut definierte Reaktion stattfindet, wird eine vorgegebene Menge eines Katalysators in das Medium gegeben /B.Maier, 2002/.

3.3.2 Theorien des Gas-Flüssig-Stofftransfers

3.3.2.1 Sauerstoffübergang

Bei einer typischen Gas-Flüssigkeits-Reaktion liegt ein Reaktionspartner als gasförmiger Ausgangsstoff vor, während sich der zweite Reaktionspartner als reine Komponente oder gelöst in der Flüssigkeit befindet. Da die chemische Umsetzung überwiegend in der Flüssigkeit stattfindet, muss das gasförmige Edukt aus dem Inneren der Gasblasen an die Phasengrenze und von dort in die Flüssigkeit transportiert werden. Der Transportwiderstand konzentriert sich dabei auf eine dünne Grenzschicht in unmittelbarer Nähe der eigentlichen Phasengrenze. Um einen möglichst hohen Stoffaustausch zu gewährleisten, müssen die Phasen in engen Kontakt gebracht werden. Eine Möglichkeit ist es, die Gasphase dafür in Form von Blasen dispers in der Flüssigkeit zu verteilen. Dabei wird meistens eine möglichst hohe spezifische Phasengrenzfläche (z.B. gesamte Blasenoberfläche pro Flüssigkeitsvolumen [$m^2_{\text{Blasen}}/m^3_{\text{Fl}}$]) und deshalb kleine Blasen angestrebt. In der Praxis liegt immer eine Blasengrößenverteilung vor, wobei sich das Verhalten von Klein- und Großblasen deutlich unterscheiden kann. Die einzelnen Blasen unterliegen einer Vielzahl von äußeren Einflüssen, die zu Blasenzerfall oder zu Koaleszenz und damit zu einer Änderung der Blasengrößenverteilung führen können /Fleischer, 2001/.

Der Sauerstofftransport aus der dispergierten Gasphase (Blasen) ins Innere der Mikroorganismen lässt sich als eine Folge hintereinandergeschalteter Transportschritte darstellen (s.Abb.2.2).

- Aus dem Inneren der Gasblase an die Phasengrenzfläche (Konvektion),
- durch die Gas/flüssig Phasengrenzfläche (Diffusion),
- von der Phasengrenzfläche in den Kern der Flüssigkeit (Konvektion),
- aus dem Kern der Flüssigkeit an die Oberfläche der Mikroorganismen und
- gekoppelte Diffusion und Reaktion im Inneren der Mikroorganismen.

Im Falle des Sauerstofftransports ist der Transportwiderstand aus dem Kern der Gasphase an die Phasengrenzfläche Gas/Flüssigkeit gegenüber dem Transportwiderstand von der Phasengrenzfläche in den Kern der Flüssigkeit vernachlässigbar klein. Das heißt der Transport des Sauerstoffs von der Phasengrenzfläche in den Kern der Flüssigkeit kann vereinfachend als geschwindigkeitsbestimmender Schritt angenommen werden.

Schnelle chemische Reaktionen finden nicht nur im Kern der Flüssigkeit statt, sondern teilweise oder ganz in der oben beschriebenen flüssigkeitsseitigen Grenzschicht. Bei genügend hoher Reaktionsgeschwindigkeit kann es infolge eines „Aufsteilens“ der Konzentrationsgradienten an der Phasengrenze zu einer extremen Verstärkung des Stoffaustausches kommen. Kann der gasförmige Reaktionspartner nicht schnell genug zum Reaktionsort transportiert werden, wirkt sich dies limitierend auf den Bruttoreaktionsumsatz aus /Fleischer, 2001/.

Unter der Voraussetzung, dass die chemische Reaktion nicht den geschwindigkeitsbestimmenden Schritt für den Gesamtvorgang darstellt, kann die Stoffübertragung unter Berücksichtigung des chemischen Einflusses mit bekannten Stoffübertragungsmodellen, nämlich dem instationären Penetrationsmodell oder dem stationären Zweifilmmodell, berechnet werden. Obwohl das Zweifilmmodell nur als grobes Modell der in Wirklichkeit ablaufenden Vorgänge betrachtet werden darf, wird dieses Modell für die Berechnung der Stoffübertragung bei Absorption in Verbindung mit chemischer Reaktion am häufigsten angewendet /Hirner, 1974/ und auch für die vorliegende Arbeit herangezogen.

3.3.2.2 Zweifilmtheorie

Für die Beschreibung des G-L-Stofftransports ist die sogenannte 'Zweifilmtheorie' eine weitverbreitete Hypothese. Hierbei wird angenommen, dass der Transportwiderstand durch stagnierende Filme beidseitig der Phasengrenzfläche erfasst wird, und der Transport durch den Film ausschließlich durch molekulare Diffusion erfolgt. Da hierdurch der Anteil des konvektiven Transports nur indirekt erfasst wird, muss die Filmdicke eine Funktion des Impulstransportes sein.

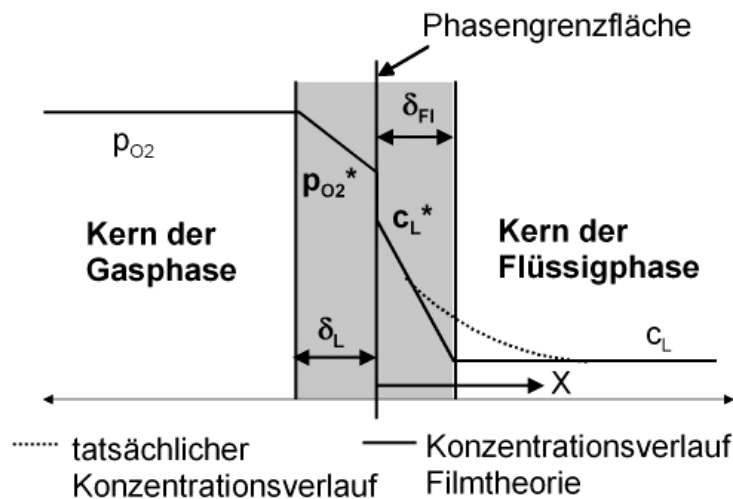


Abb.3.1: Konzentrationsverlauf an der Phasengrenzfläche (Zweifilmtheorie)

Abbildung 3.1 zeigt den Konzentrationsverlauf an der Gas-/Flüssigkeits-Phasengrenze. An beiden Seiten existiert eine dünne laminare Grenzschicht, in der Diffusion stattfindet. Die konstante Konzentration im Inneren der Phasen ist auf turbulente Strömungen innerhalb der Phasen zurückzuführen. An der Grenzfläche herrscht ständig Gleichgewicht zwischen den Phasen. Es müssen stationäre Bedingungen, konstante Temperatur, Gültigkeit des Henrygesetzes, Gültigkeit des idealen Gasgesetzes auf der Gasseite und ein Ausschluss von chemischen Reaktionen angenommen werden, damit die Zweifilmtheorie angewendet werden kann. Aus Gleichgewichtsbetrachtungen ergibt sich für den Gesamtstoffübergangskoeffizienten k beim Transport durch die Phasengrenze:

$$\frac{1}{k} = \frac{1}{k_L} + \frac{1}{k_g} \quad (3.1)$$

Der Sauerstofftransport aus den Gasblasen bis zu den Mikroorganismen wird als Serienschaltung von Teilwiderständen betrachtet, wobei der größte Widerstand als der geschwindigkeitsbestimmende anzusehen ist. Da der gasseitige Stoffübergangskoeffizient k_g im Vergleich zum flüssigkeitsseitigen Stoffübergangskoeffizient k_L gering ist, wird er in guter Näherung vernachlässigt. Es ergibt sich damit für den Stofftransport über die Phasengrenze:

$$\dot{n} = A \cdot k_L \cdot \Delta c \quad (3.2)$$

Durch die Einführung einer spezifischen Stoffaustauschfläche $a = \frac{A}{V_R}$ (Gesamtblasenoberfläche bezogen auf das Flüssigkeitsvolumen), erhält man durch Normierung

$$\frac{\dot{n}}{V_R} = k_L \cdot a \cdot \Delta c . \quad (3.3)$$

Die Sauerstofftransferate OTR (Oxygen Transfer Rate) ist wie folgt definiert:

$$\frac{\dot{n}}{V_R} = \text{OTR} . \quad (3.4)$$

Mit der Sauerstofftransferate ergibt sich schließlich die Stoffübergangsgleichung:

$$\text{OTR} = k_L a \cdot \Delta c . \quad (3.5)$$

Somit ist die in ein flüssiges Medium eintragbare Sauerstoffmenge abhängig von

- dem Konzentrationsgefälle Δc ,
- der spezifischen Stoffaustauschfläche a und
- dem flüssigkeitsseitigen Stofftransportkoeffizienten k_L .

3.3.2.3 Sauerstofftransferate OTR

Zur Bestimmung der Sauerstofftransferate OTR muss sich das System im Fließgleichgewicht zwischen dem durch die Gasphase zugeführtem und dem infolge der Reaktion verbrauchten Reaktanden befinden:

$$\frac{\partial c_{\text{O}_2}}{\partial t} = 0 . \quad (3.6)$$

Ist dies der Fall, dann kann über eine Bilanzierung der Gas- oder der Flüssigphase die Stofftransportrate ermittelt werden. Daraufhin ist bei Kenntnis der Gelöstkonzentration des gasförmigen Reaktanden die Berechnung des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ möglich. Es muss jedoch darauf geachtet werden, dass die chemische Reaktion den Gas-Flüssig-Stofftransport nicht durch eine so genannte chemische Beschleunigung verändert wird. Um das zu vermeiden, muss auf eine geeignete Einstellung der Reaktionsgeschwindigkeit geachtet werden /B.Maier, 2002/ (s.Kapitel 3.3.3). Die Gleichung für die Sauerstofftransferate OTR ergibt sich aus den Stoffbilanzen um den G-L-Reaktor (Abb.4.3).

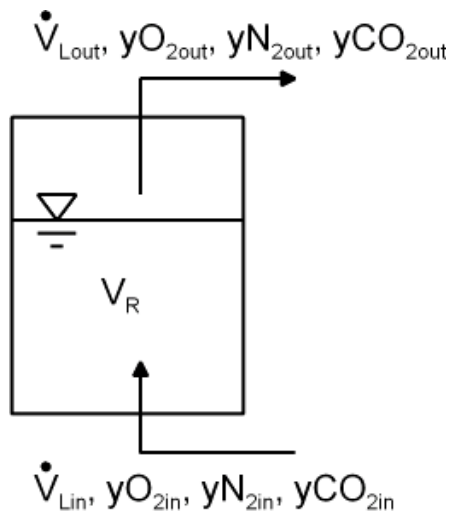


Abb.3.2: Stoffbilanz um den G-L-Reaktor

Aus der Sauerstoffbilanz

$$\dot{V}_{Lin} \cdot y_{O_{2in}} = \dot{V}_{Lout} \cdot y_{O_{2out}} + OTR \cdot V_R, \quad (3.7)$$

der Stickstoffbilanz

$$\dot{V}_{Lin} \cdot y_{N_{2in}} = \dot{V}_{Lout} \cdot y_{N_{2out}}, \quad (3.8)$$

und den Bilanzen für ein- und ausgehende Ströme (hier die Bilanz für ausgehende Ströme, die der eingehenden ist nicht explizit angegeben)

$$y_{N_{2out}} + y_{O_{2out}} + y_{CO_{2out}} = 1, \quad (3.9)$$

ergibt sich:

$$\dot{V}_{Lout} = \dot{V}_{Lin} \cdot \frac{y_{N_{2in}}}{y_{N_{2out}}} = \dot{V}_{Lin} \cdot \frac{1 - y_{O_{2in}} - y_{CO_{2in}}}{1 - y_{O_{2out}} - y_{CO_{2out}}}. \quad (3.10)$$

Damit läßt sich unter Angabe des mittleren molaren Volumens von Luft $V_m = 22,414 \text{ m}^3/\text{kmol}$, der OTR-Wert berechnen:

$$OTR = \frac{\dot{V}_{Lin}}{V_R \cdot V_m} \cdot \left(y_{O_{2in}} - \frac{1 - y_{O_{2in}} - y_{CO_{2in}}}{1 - y_{O_{2out}} - y_{CO_{2out}}} \cdot y_{O_{2out}} \right). \quad (3.11)$$

Da bei den hier durchgeführten Versuchen im Gegensatz zu Versuchen mit Mikroorganismen keine CO_2 produziert wird, entfällt der CO_2 Anteil.

Die Sauerstofftransferrate OTR ist ein Maß für die Übergangsgeschwindigkeit von Sauerstoff in ein flüssiges Medium. Der OTR-Wert ist eine wichtige Größe, da Mikroorganismen Sauerstoff nur in gelöster Form in ihren Stoffwechsel aufnehmen können.

Ein weitere wichtige Größe ist die Sauerstoffaufnahme rate (OUR: Oxygen Uptake Rate). Sie beschreibt wie schnell die Mikroorganismen den Sauerstoff aufnehmen. Um die Mikroorganismen optimal mit Sauerstoff versorgen zu können, sollte der OTR Wert mindestens so groß wie der OUR Wert sein (Abb.3.3).

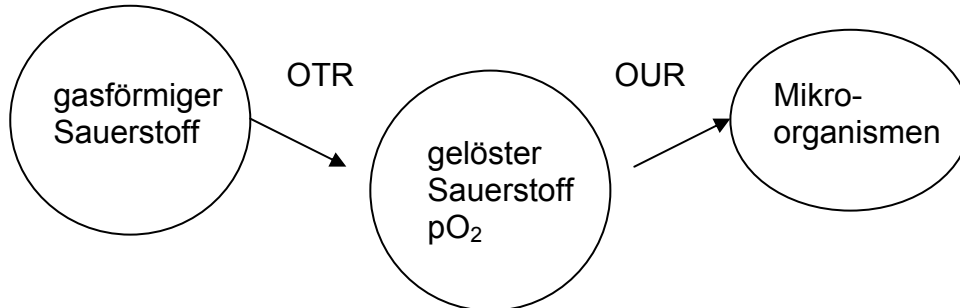


Abb.3.3: Zusammenhang OTR und OUR

3.3.2.4 Volumetrischer Stoffübergangskoeffizient $k_L a$

Allgemein hängt die Gas-Flüssig-Austauschfläche von den geometrischen Abmessungen des Apparates, den einstellbaren Betriebsgrößen und den physikalisch-chemischen Eigenschaften des spezifischen Stoffsystems ab. Im Bereich der Absorption begleitet von langsamer oder momentaner Reaktion wird die Stoffaustauschrate durch den Stoffübergang bestimmt. Das Produkt aus dem flüssigkeitsseitigen Stoffübergangskoeffizienten k_L und der spezifischen Phasengrenzfläche a (Gesamtblasenoberfläche bezogen auf das Flüssigkeitsvolumen) bezeichnet man als volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$. In vielen Fällen ist die Kenntnis dieser Größe zur Charakterisierung der Stoffaustauscheigenschaften und für Auslegungszwecke eines Gas/Flüssig-Reaktors ausreichend. Das liegt daran, daß zum einen gaseitige Stoffübergangswiderstände oft vernachlässigbar sind und zum anderen eine Aufspaltung in die individuellen Werte von k_L und a nicht erforderlich ist /Deckwer, 1985/.

Aus der Gleichung 3.5 für den OTR-Wert lässt sich der $k_L a$ -Wert durch das Einsetzen der Konzentrationen von Sauerstoff bestimmen:

$$\text{OTR} = k_L a \cdot (c_{\text{O}_2}^* - c_{\text{O}_2}). \quad (3.12)$$

Mit der Gleichung für die Konzentration von Sauerstoff in der ideal durchmischten Flüssigkeit in Abhängigkeit des Drucks im Reaktor p_R und der Sauerstofflöslichkeit L_{O_2}

$$c_{O_2} = p_R \cdot L_{O_2} \cdot \left(\frac{p_{O_2}}{100} \cdot y_{O_{2in}} \right) \quad (3.13)$$

und der Gleichung für die Konzentration von Sauerstoff an der Grenzfläche

$$c_{O_2}^* = p_R \cdot L_{O_2} \cdot y_{O_{2out}} \quad (3.14)$$

erhält man für den $k_L a$ -Wert die folgende Gleichung:

$$k_L a = \frac{OTR}{p_R \cdot L_{O_2} \cdot \left(y_{O_{2out}} - \frac{p_{O_2}}{100} \cdot y_{O_{2in}} \right)} \quad (3.15)$$

Nach /Linek, 1981/ lässt sich die Löslichkeit des Sauerstoffs im 0,5M Sulfitsystem in Abhängigkeit der Temperatur nach der folgenden Gleichung bestimmen:

$$L_{O_2} = 5,83140 \cdot 10^{-6} \cdot \exp \left[\frac{1602}{T} - \frac{0,9407 \cdot c_{Na_2SO_4}}{(1 + 0,1933 \cdot c_{Na_2SO_4})} \right] \quad (3.16)$$

$$\Rightarrow L_{O_2} = 0,85 \text{ mol/bar} \cdot \text{m}^3 \text{ für } 23^\circ\text{C.}$$

Der Zusatz von Salzen erniedrigt die Sauerstofflöslichkeit /Ho, 1988/.

3.3.3 Die Sulfitoxidationsreaktion im Modellsystem Natriumsulfit

Die Sulfitreaktion basiert auf der Oxidation von Natriumsulfit zu Natriumsulfat. In wässriger Lösung werden die Sulfitanionen durch den gelösten Sauerstoff nach folgender Gleichung oxidiert:



Die Reaktion wird durch Metallionen wie Co^{2+} , Cu^{2+} , Fe^{2+} und Mn^{2+} katalysiert /Linek, 1981/, die auch als Verunreinigungen in den Ausgangsstoffen auftreten können. Üblicherweise wird ein Kobalt- oder Kupfersalz als Katalysator eingesetzt. Es empfiehlt sich, Kobalt als Katalysator zu wählen, da Kobalt die Reaktion bedeutend besser katalysiert. Bei Verwendung von Kupfer bilden sich eventuell einwertige Cu^+ -Ionen, die die Reaktion inhibieren. Es können undefinierte Verhältnisse entstehen.

Die Konzentration des Katalysators ist ein wichtiger Faktor. So kommt es bei einer zu hohen Kobaltkonzentration bereits in der Flüssigkeitsgrenzschicht zur Abreaktion des Sauerstoffs, was unbedingt zu vermeiden ist. Unter diesen Bedingungen ist die Zweifilmtheorie nicht mehr gültig, die von rein diffusiven Vorgängen ausgeht

(s.Kap.3.3.2). Der Sauerstoffverbrauch ist dann nicht mehr durch die hydrodynamischen Konditionen im Fermenter bestimmt und es kommt zu Veränderung der Reaktionsordnung /Koska, 1991/. Ein weiterer Vorteil von Kobaltsalz als Katalysator liegt in der besseren Reproduzierbarkeit seiner Wirkung /Hirner, 1974/.

Die Geschwindigkeit, mit der zwei Stoffe miteinander reagieren, ist von verschiedenen Faktoren abhängig. Für homogene Reaktionen ist die Reaktionsgeschwindigkeit definiert als Quotient aus Konzentrationsänderung und der dafür benötigten Zeit:

$$\dot{r} = \frac{\Delta c}{\Delta t} \quad (3.18)$$

Ausschlaggebend für die Reaktionsgeschwindigkeit ist zum Beispiel wie schnell neue Eduktteilchen zur Verfügung stehen und Produktteilchen an den Phasengrenzflächen abtransportiert werden, denn nur dort kann die Reaktion stattfinden. Sind diese Transportvorgänge langsamer als der eigentliche chemische Prozess, bestimmen sie die Reaktionsgeschwindigkeit. Stehen ständig neue Eduktteilchen zur Verfügung, so ist die chemische Reaktion selbst geschwindigkeitsbestimmend. Damit es zur Reaktion kommt, müssen die Teilchen eine gewisse Mindestgeschwindigkeit haben. Die kinetische Energie, die dieser Geschwindigkeit entspricht, heißt Aktivierungsenergie. Katalysatoren stellen den Reaktionspartnern die nötige Aktivierungsenergie zur Verfügung, liegen nach der Reaktion aber unverändert vor. Um die Reaktionsgeschwindigkeit über die komplette Versuchszeit zu beschreiben benutzt man die Reaktionsordnung. Sie sagt, von welcher mathematischen Ordnung die Funktion ist, die durch die interessierenden Variablen und die Reaktionsgeschwindigkeit beschrieben wird.

Es gibt Unterschiede in der Reaktionsordnung bezüglich Sulfit, Sauerstoff und dem Katalysator /Linek, 1981/. /Reith, 1973/ hat in seiner Arbeit gezeigt, dass die Reaktionsrate nullter Ordnung in Sulfit und erster Ordnung in Kobalt ist für die folgenden Bedingungen:

$$15^{\circ}\text{C} < T < 60^{\circ}\text{C},$$

$$3 \times 10^{-6} \text{ kmol/m}^3 < c_{\text{Co}^{++}} < 3 \times 10^{-3} \text{ kmol/m}^3,$$

$$7,5 < \text{pH} < 8,5 \text{ und}$$

$$0,4 \text{ kmol/m}^3 < c_{\text{SO}_3^-} < 0,8 \text{ kmol/m}^3.$$

/U.Maier, 2002/ gibt die Reaktionsrate an mit nullter Ordnung in Natriumsulfit, erster Ordnung in Kobaltsulfat und nullter Ordnung in Sauerstoff für ein 0,5molares Natriumsulfitsystem. Die Reaktionsrate kann sich um zwei Zehnerpotenzen verändern

bei Variation des pH Werts, der Temperatur oder der Kobaltkonzentration. Die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante k wird nach /Hirner, 1974/ von den genannten Größen beeinflusst, außerdem von Verunreinigungen der wässrigen Sulfitlösung.

Gegen die Modellreaktion werden häufig folgende Einwände erhoben:

- 1) die Reaktionsordnung ist nicht gesichert und
- 2) die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante wird durch Spuren von Verunreinigungen stark verändert.

Zu Punkt 1 liegen aus der Literatur eine große Anzahl gleichlautender Ergebnisse vor, so dass die Reaktionsordnung heute als gesichert angesehen werden kann. Die Einwände zu Punkt 2 können durch sorgfältiges Arbeiten, zum Beispiel durch gründliches Spülen des Reaktors nach jedem Versuch, verringert werden /Hirner, 1974/. In der vorliegenden Arbeit wurde der Reaktor nach jedem Versuch mindestens zweimal gründlich, d.h bei hohen Volumenströmen von Luft und Flüssigkeit, mit deionisiertem Wasser gespült.

3.3.3.1 Einfluss des Katalysators

Durch Zugabe eines Katalysators lässt sich die Reaktionsgeschwindigkeit beeinflussen. Die für die Reaktion von Natriumsulfit zu Natriumsulfat geeigneten Kobalt- und Kupferionen sind als Verunreinigungen im kommerziell zu erwerbenden Na_2SO_3 enthalten. Um jedoch definierte Versuchseigenschaften zu gewährleisten, muss eine bestimmte Menge Katalysator hinzugegeben werden, die so groß ist, dass die ursprünglichen Verunreinigungen keine Rolle mehr spielen /B.Maier, 2001/, /U.Maier, 2002/. Die Katalysatorkonzentration hängt direkt mit der Sauerstoffabsorptionsrate zusammen (Abb.3.4) /Koska, 1991/.

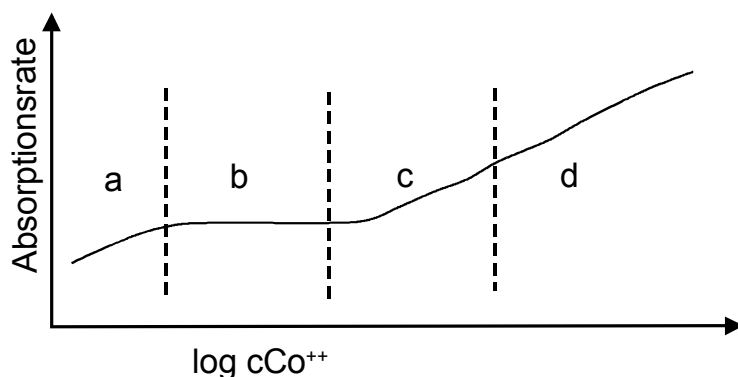


Abb.3.4: Sauerstoffabsorptionsrate über der Katalysatorkonzentration /Koska, 1991/

3.3.3.2 Definition der Hatta-Zahl

Mit Hilfe der Hatta-Zahl lassen sich in der Abbildung 3.4 vier Bereiche abgrenzen. Die Hatta-Zahl charakterisiert das Verhältnis der Reaktionsgeschwindigkeit in der Grenzschicht zur Stofftransportgeschwindigkeit (ohne chemische Reaktion) durch die Grenzschicht /Last, 2000/:

$$Ha = \frac{\text{Reaktionsgeschwindigkeit}}{\text{Stofftransportgeschwindigkeit}} \quad (3.19)$$

a) $Ha < 0,03$: gehemmter Bereich

b) $0,03 < Ha < 0,3$: nicht beschleunigter Bereich

Diese beiden Abschnitte bilden zusammen das langsame Reaktionsregime. Der oxidierte Sauerstoff im Filmvolumen kann vernachlässigt werden, da er gegenüber dem in der Kernflüssigkeit gering ist. Die Gelöstsauerstoffkonzentration wird jedoch nicht null, dafür ist die Reaktion noch zu langsam.

c) $0,3 < Ha < 3$: Übergangsbereich

Der Einfluss der chemischen Reaktion auf den Gas-Flüssig-Stofftransport ist nicht mehr zu vernachlässigen. Die Gelöstsauerstoffkonzentration nähert sich dem Wert Null.

d) $Ha > 3$: beschleunigter Bereich

Der eingetragene Sauerstoff wird in diesem Bereich bereits im Filmvolumen oxidiert. Das hat zur Folge, dass in der Kernflüssigkeit kein Sauerstoff mehr gelöst ist /B.Maier, 2002/.

3.3.4 Einflüsse auf den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten

/Enfors, 1983/ beschreibt zwei Wege, um die Sauerstoffübertragungsrate in einem Reaktor zu kontrollieren. Die zur Verfügung stehende Stoffaustauschfläche kann gesteigert werden, zum Beispiel durch Steigerung der Schüttelrate bei Verwendung eines Schüttelkolbens oder durch Erhöhung der Begasungsrate bzw. des relativen Gasgehalts im Reaktor. Ein weiterer Weg ist die Steigerung der Sauerstoffkonzentration im Medium direkt über die Erhöhung des Partialdruckes von Sauerstoff der eintretenden Luft entweder durch Erhöhung des Gesamtdrucks oder durch Mischung von reinem Sauerstoff zur eingetragenen Luft.

Außer den genannten Parametern wirken noch andere Einflussgrößen auf den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten eines G-L-Systems in einem „Monolithischen Reaktor“. Neben den Volumenströmen der Flüssigkeit und des Gases, sind die Blasengröße und die Geometrie der Monolithen weitere wichtige hydrodynamische Parameter. Ein besonders Augenmerk sollte außerdem auf den Einfluss von Antischaummitteln gelegt werden, da Prozesse mit Mikroorganismen zum Schäumen neigen und in der Regel nicht ohne Antischaummittel durchgeführt werden.

3.3.4.1 Einfluss des Luftvolumenstroms bzw. der Begasungsrate

Die Begasungsrate ist der Volumenstrom der Luft pro Minute bezogen auf das Reaktorfüllvolumen der Flüssigkeit. Sie kann in der Einheit 'vvm' (Abk. von [engl.] volume air per volume medium and minute) angegeben werden und ist in der Verfahrenstechnik eine übliche Einheit bei begasteten Stofftransport-Untersuchungen.

In Schlaufenreaktoren im Airliftbetrieb (s.Kap.3.1.2) wird durch den Volumenstrom der Luft ein Volumenstrom der Flüssigkeit erzeugt. In Reaktoren mit Pumpenbetrieb sind die Volumenströme der Luft und der Flüssigkeit in ausreichender Näherung unabhängig voneinander. Hierbei liegen die erzielten Volumenströme der Flüssigkeit auch deutlich über denen im Airliftbetrieb (abhängig von der Pumpenleistung).

Durch Erhöhung der Begasungsrate wird der relative Gasgehalt ε_L im Reaktor (Gasvolumen im Reaktor bezogen auf die Summe von Gas- und Flüssigkeitsvolumen im Reaktor) bis zur maximalen Beladungsgrenze gesteigert. In der Literatur sind zahlreiche Untersuchungen zu finden, die sich mit dem Einfluss der Begasungsrate auf den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten beschäftigen. So hat zum Beispiel /Choi, 1993/ Blasensäulen untersucht. In ihnen steigt der relative Gasgehalt ε_L und der volumetrische Stoffübergangskoeffizient $k_{L,a}$ mit zunehmender Begasungsrate und läuft gegen einen Grenzwert.

3.3.4.2 Einfluss von Antischaummitteln

Mikroorganismen scheiden in ihrem Stoffwechsel schäumende Komponenten ab, zum Beispiel Proteine. Durch Zufuhr von Luft und der Durchmischung der so entstandenen Protein-Nährstofflösung entsteht Schaum. Das Schäumen ist eine charakteristische Eigenschaft von Gas-Flüssig-Abläufen in Gegenwart von oberflächenaktiven

Substanzen. In biologischen Fermentationen wurden nach /Morao, 1999/ zwei Wirkungsweisen von Antischaummitteln auf den $k_L a$ -Wert unterschieden:

- 1) Einfluss auf die spezifische Austauschfläche a und
- 2) Einfluss auf den Massentransferkoeffizienten k_L .

Antischaummittel senken die Oberflächenspannung. Die Oberflächenspannung ist ein Maß für die nach innen gerichteten Kräfte an der Oberfläche einer Flüssigkeit. Oberflächenspannung entsteht durch die Kohäsionskräfte zwischen den Molekülen. Im Phaseninneren heben sich diese Kräfte auf, an den Phasengrenzflächen, hier also zwischen Luftblase und Versuchsflüssigkeit, entsteht eine Kraft nach innen, da die Teilchen an der Oberfläche keine symmetrische Verteilung ihrer Nachbar-Teilchen haben, die Kohäsionskräfte sich also nicht mehr aufheben können. Eine Senkung der Oberflächenspannung kann man zum Beispiel durch Zugabe von Alkohol und Fettsäuren erzielen. Diese Stoffe besitzen hydrophobe und hydrophile Anteile in ihrem molekularen Aufbau. Eine Anlagerung solcher Teilchen an der Phasengrenzfläche bewirkt die Senkung der Oberflächenspannung.

Mit der Senkung der Oberflächenspannung werden auch die durchschnittlichen Blasendurchmesser direkt an der Stelle gesenkt, an der die Blasen erzeugt werden. Dadurch erhöht sich die spezifische Oberfläche a . Entfernen sich die Blasen jedoch von dort, kommt eine weitere Wirkung des Antischaummittels zur Geltung: es erhöht die Koaleszenz. Die Blasen vereinigen sich wieder und a wird gesenkt. Die Ausprägungen der beiden gegenläufigen Effekte hängen vom Antischaummittel selbst und von der Versuchsflüssigkeit ab. /Akita, 1988/ und /Kawase, 1990/ nehmen an, dass die Wirkung von Antischaummitteln auf a vernachlässigbar ist und damit der Einfluss auf den k_L -Wert wichtiger ist. Generell kann man in der Literatur allerdings verschiedene Theorien dazu lesen. Der k_L -Wert wird durch die Zugabe von Antischaummitteln herabgesetzt, welches sich an der Phasengrenzfläche anlagert. Durch die Anlagerung wird der Stofftransport erschwert.

In den Untersuchungen von /Morao, 1999/ wurde festgestellt, dass die Zugabe von Antischaummittel schon in einer geringen Konzentration den G-L-Massentransfer deutlich beeinflusst. Neben dem Effekt auf den Filmkoeffizienten k_L , wurden ebenso einige Effekte auf die spezifische Oberfläche a entdeckt. Mit Ausnahme einiger Situationen bei hohen Konzentrationen, unterdrückt die Zugabe von Antischaummittel den G-L-Massentransfer. Dies ist nach Aussage des Autors sowohl für Antischaum-

mittelzugabe zu einem koaleszierenden Medium (Kranwasser) und zu einem nicht-koaleszierenden Medium (Elektrolytlösung) und für alle drei getesteten Antischaummitteln (Sojaöl, Silikonöl, Polypropylenglycol) gültig.

Bei höheren Antischaummittel-Konzentrationen wurde von /Morao, 1999/ auch eine Verbesserung des $k_L a$ Werts bei hohen Zugaben von Antischaummittel beobachtet. Es werden zwei mögliche Erklärungen dafür gegeben. Wenn die Antischaummittelkonzentration steigt, gibt es drei Effekte: die Blasenoberflächen-Beweglichkeit sinkt, die Koaleszenz wird erhöht und die Oberflächenspannung sinkt. Die beiden ersten Effekte, welche den $k_L a$ -Wert erniedrigen, können aber einen Grenzwert erreichen, und zwar wenn alle sich berührenden Blasen koaleszieren und die Oberflächen-Beweglichkeit unterdrückt wird. Die Oberflächenspannung bleibt derweil sinkend, Blasengröße und deshalb $k_L a$ Wert beginnen zu wachsen. Das resultiert auch darin, dass der relative Gasgehalt im Reaktor über eine „kritische Konzentration“ zu steigen beginnt.

3.3.4.3 Einfluss der Temperatur

Die von /de Ory, 1999/ in einem Bioreaktor mit Essigsäureproduktion erzielten Ergebnisse zeigen, dass der $k_L a$ -Wert in G-L-Systemen eine lineare Abhängigkeit von der Betriebstemperatur aufweist. Mit einem Temperaturanstieg im System sinkt die Grenzflächenkonzentration von Sauerstoff, gleichzeitig steigt aber die Stoffübergangskonstante k_L . Die von dem Autor gefundene Abhängigkeit des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ von der Temperatur lautet:

$$k_L a(\text{h}^{-1}) = 0,9288 \cdot T(^{\circ}\text{C}) + 6,444 . \quad (3.24)$$

3.3.5 Übertragbarkeit auf ein biologisches System

Die im chemischen Ersatzsystem durchgeführten Versuche zur Bestimmung des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten dienen zur hydrodynamischen Abschätzung des Screeningreaktors bezüglich seiner maximalen Leistungsfähigkeit (maximaler volumetrischer Stoffübergangskoeffizient in Abhängigkeit vom spezifischen Leistungseintrag). Die Ergebnisse können mit Stofftransfermessungen in einem biologischen Fermentationsmedium verglichen werden. Es gibt allerdings wesentliche Unterschiede zwischen dem Stoffübergangskoeffizienten, der in einer reinen

Sulfitlösung bestimmt wurde und dem aus einem biologischen Kulturmedium, vermutlich infolge von unterschiedlichen physiko-chemischen Eigenschaften.

Biologische Fermentationsmedien sind wegen ihrer Anzahl an organischen Substanzen, Salzmischungen und metabolischen Stoffwechselprodukten komplex /Schumpe, 1982/. Da die Zusammensetzung des Kulturmediums einen deutlichen Einfluss auf die Stofftransportcharakteristik hat, besitzt eine Stofftransportcharakterisierung unter Fermentationsbedingungen nach /B.Maier, 2002/ nur eine beschränkte Aussagekraft. Erschwerend kommt hinzu, dass die physiko-chemischen Eigenschaften eines Kulturmediums während einer Fermentation deutlichen Änderungen unterliegen können. Eine höhere Ionenstärke des Mediums führt zu einer verringerten Koaleszenzneigung der Gasblasen. Eine Stofftransportcharakteristik aufgrund der Zusammensetzung des Kulturmediums zu berechnen ist jedoch bisher nicht möglich.

Eine Übertragung der in dem chemischen Modellsystem erhaltenen Ergebnisse auf Kulturmedien bedarf einer sorgfältigen Absicherung. Die in der Natriumsulfitlösung bestimmten volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ können durch kleinste Verunreinigungen mit oberflächenaktiven Substanzen beeinflusst werden. Diese Sensibilität kann zum einen eine weitere Fehlerquelle beinhalten. So kann eventuell eine geringe Verunreinigung des Reaktors zu einer großen Änderung der Messwerte führen. Zum anderen jedoch kann dieses Phänomen eventuell genutzt werden, um durch eine gezielte Zugabe von oberflächenaktiven Substanzen die physiko-chemischen Eigenschaften der Natriumsulfitlösung an die von Kulturmedien anzunähern und dadurch eventuell eine direkte Übertragbarkeit der in den unterschiedlichen Stoffsystemen erhaltenen Ergebnissen zu ermöglichen. Je weniger sich die physiko-chemischen Eigenschaften des Modellsystems (Viskosität, Sauerstofflöslichkeit, Ionenstärke) vom biologischen System unterscheiden, umso größer ist auch die Aussagekraft der durchgeführten Versuche /U.Maier, 2002/.

Die Übertragbarkeit der im Sulfitssystem gemessenen maximalen Sauerstofftransferkapazitäten auf mikrobielle Kulturen wurde von /U.Maier, 2002/ exemplarisch mit einer Kultur von *Pichia pastoris* überprüft. In Versuchen mit Schüttelkolben stellte die Autorin einen etwa dreifach höheren Sauerstofftransfer der Kulturen als die maximale Sauerstofftransferkapazität des Sulfitystems fest. Die erreichten Sauerstofftransferraten in der Fermentation sind aufgrund der geringeren Ionenstärke des Kulturmediums vom Betrag her höher als die maximalen Transferkapazitäten des Sulfitystems. Der

ermittelte Übertragungsfaktor betrug 2,8. Die Abhängigkeit beider Systeme von der Schüttelfrequenz war identisch. Eine Auswirkung aufgrund der unterschiedlichen Reaktionskinetik einer biologischen Kultur (0.Ordnung) und dem Sulfitssystem (1.Ordnung) wird nicht deutlich.

Der von /Hermann, 2001b/ in seiner Arbeit gefundene Korrelationsfaktor für die maximale Sauerstofftransferkapazität zwischen einem chemischen Sulfitssystem und einer biologischen Fermentation ist Eins. Der Autor hat in seinen Versuchen die Eignung des chemischen Modellsystems zur Bestimmung der maximalen Sauerstofftransferkapazität durch das sauerstofflimitierte Wachstum von *Pseudomonas putida* gezeigt. Bei sauerstofflimitiertem Wachstum von Mikroorganismen ist die Sauerstofftransfertrate im Bereich der Limitation konstant. Das Niveau der konstanten Transfertrate kann als die maximale Sauerstofftransferkapazität eines Bioreaktors bei den eingestellten Betriebsbedingungen bezeichnet werden. Das Ergebnis muss in der gleichen Größenordnung wie das des chemischen Modellsystems liegen /Hermann, 2001a/.

Mit dem Mikroorganismus *Pseudomonas putida* hat auch /B.Maier, 2002/ die Übertragbarkeit des chemischen Natriumsulfitystems auf eine biologische Fermentation überprüft. In den Versuchen in einem Rührkessel zeigt sich, dass sich insbesondere die Abhängigkeit des $k_L a$ Werts von dem Rührerleistungseintrag in beiden Medien unterscheidet. Der Einfluss der Rührerleistung ist im chemischen Modellsystem wesentlich ausgeprägter. Der Leistungseintragsunterschied des biologischen und chemischen Systems wurden im „Monolithischen Reaktor“ dieser Arbeit allerdings nicht untersucht. Die volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten aus dem Natriumsulfit-system sind bei gleicher Rührerleistung während der Versuche von /B.Maier, 2002/ mindestens doppelt bis zehnfach so groß. Die in seiner Arbeit ermittelten Werte stellen allerdings keinesfalls eine exakte Reaktorcharakterisierung dar, sondern geben nur eine Größenordnung vor, in der die $k_L a$ Werte in einem Kulturmedium liegen können.

Eine höhere Salzkonzentration oder Ionenstärke führt nach /Schumpe, 1982/ zu geringeren Gaslöslichkeiten und damit nach /Zieminski, 1971/ zu geringeren Sauerstofftransferkoeffizienten trotz kleinerer Diffusionskoeffizienten. Aufgrund der höheren Salzkonzentration hat /Duetz, 2000/ in seinen vergleichenden Versuchen in Schüttelkolben mit einer 0,5 molaren Natriumsulfitlösung und einer Kultur aus *Pseudomonas putida* einen etwas höheren Stofftransfer in dem biologischen Medium als im chemischen

Ersatzsystem gefunden. Die beobachteten Abhängigkeiten des Stofftransfers von Schüttelfrequenz und –durchmesser waren aber in beiden Medien identisch.

Die Koaleszenzeigenschaften eines Mediums in Abhängigkeit von seiner Zusammensetzung zu berechnen und damit die Charakterisierungsergebnisse auf unterschiedliche Medienzusammensetzungen zu übertragen wurde schon mehrfach versucht /Linek, 1988/, /Zahradnik, 1999/. Es konnte zum Beispiel gezeigt werden, dass eine höhere Ionenstärke des Mediums zu einer verringerten Koaleszenzneigung der Gasblasen führt /Robinson, 1973/. Eine Stofftransportcharakteristik aufgrund der Zusammensetzung des Fermentationsmediums zu berechnen ist jedoch bisher nicht möglich, da das Wissen über die Mediumseinflüsse auf den Stofftransport noch zu lückenhaft ist /B.Maier, 2002/.

Aus den oben aufgeführten Literaturstellen wird ersichtlich, dass die Übertragbarkeit von Stofftransferuntersuchungen von einem chemischen Sulfitssystem auf ein biologisches Medium nicht trivial ist. Außerdem können keine schon ermittelten Übertragungsfaktoren von anderen Versuchspartnern übernommen werden. Vergleichende Messungen im zu untersuchenden Reaktor mit einem biologischen Medium sind unerlässlich, liegen aber bisher noch nicht in ausreichendem Maße vor.

3.4 Stoffübertragung in begasten Schlaufenreaktoren mit äußerem Umlauf

Die stoffliche Leistung von Reaktoren für G-L-Systeme wird einerseits von der Reaktionskinetik der in der L-Phase ablaufenden Reaktion und andererseits von den verfahrenstechnischen Einflussgrößen der Stoffübertragung zwischen den Phasen und der Durchmischung in den Phasen bestimmt.

G-L-Reaktionen können eingeteilt werden in einen langsamen und einen schnellen Reaktionsbereich. Im schnellen Reaktionsbereich wird die Raum-Zeit-Ausbeute durch die zur Verfügung stehende Grenzfläche beherrscht und ein hoher relativer Gasgehalt und kleine Blasengrößen werden gewünscht. Im langsamen Reaktionsbereich wird ein großer relativer Flüssigkeitsgehalt gebraucht, damit die Reaktion stattfinden kann /Deckwer, 1993/. Wenn der Umsatz der kompletten Gasphase und dafür eine lange Verweilzeit der Blasen in einem monolithischen Schlaufenreaktor benötigt wird, wendet

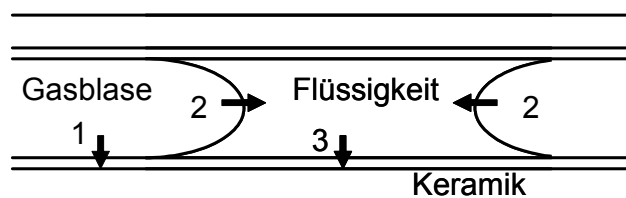
man zum Beispiel eine Abwärtsströmung an /Deckwer, 1993/, andernfalls die Aufwärtsströmung.

3.4.1 Strömungsformen

Bei vielen möglichen Strömungsformen in den monolithischen Kanälen eines Monolithischen Reaktors ist nach /Irandoust, 1988/ der „segmentierte“ Zweiphasenfluß (Taylorströmung) der mit den besten Massentransfereigenschaften. Die Taylorströmung sorgt für eine Rezirkulation in den Flüssigkeitsabschnitten zwischen den Blasen, was sowohl den Massentransfer von dem Gas in die Flüssigkeit, als auch den Massentransfer von der Flüssigkeit in die Wand steigert.

Wenn sich lange Blasen in einer Kapillare bewegen, die ansonsten mit Flüssigkeit gefüllt ist, dann sind sie von einem dünnen Flüssigkeitsfilm umgeben. Die Dicke dieses Flüssigkeitsfilms ist eine Funktion der Blasengeschwindigkeit. Bei kleinen Geschwindigkeiten ist er nach /Thulasidas, 1995/ typischerweise 5-50µm dick. Der Film wird kontinuierlich erneuert durch die Bewegung der Blasen und durch die Durchmischung innerhalb des Flüssigkeitsabschnitts. Die Dünne dieses Films fördert den Massenstransfer /Irandoust, 1988/, dominiert ihn nach /Bercic, 1997/ aber nicht.

Der volumetrische Stoffübergangskoeffizient $k_L a$ wird in dieser Arbeit in Keramikmonolithen bestimmt. Die Monolithen bestehen aus langen, nebeneinander liegenden Kapillaren, die von Luft und Flüssigkeit durchströmt werden. Durch den Einsatz der Keramikmonolithen wird die Strömung und damit der Austausch von Sauerstoff beeinflusst. Im Monolithen bildet sich bei einem geeigneten Verhältnis von Gasmenge zu Flüssigkeitsmenge, sowie passenden Geschwindigkeiten der beiden Phasen und der Ausbildung eines Wandfilms eine Taylorströmung aus (Abb.3.5).



- Sauerstoffaustausch zwischen
- 1 Gas und Flüssigkeitsfilm
 - 2 Gas und Flüssigkeit
 - 3 Flüssigkeit und Flüssigkeitsfilm

Abb.3.5: Diffusion in der Taylorströmung

Bei der Taylorströmung entsteht im Monolithen ein Abfolge von Gas- und Flüssigkeitsblasen, die sich durch die Kapillaren des Monolithen bewegen. Die Wand bleibt dabei immer mit Flüssigkeit benetzt. In Abbildung 3.5 sind die Diffusionswege in der Taylorströmung veranschaulicht. Es findet Austausch hier an den Phasengrenzen zwischen Gas- und Flüssigkeitsblase statt (2), sowie zwischen Gasblase und dem Flüssigkeitsfilm (1) an der Monolithwand. In den Flüssigkeitstropfen wird aufgrund der Reibung an den Wänden eine turbulente Zirkulation erzeugt, die die Diffusion begünstigt. Der Flüssigkeitsfilm bleibt ständig erhalten und nahezu stationär an der Wand haften, im Gegensatz zur viel schnelleren Strömung im Kanal. Er wird durch die vorbeiströmenden Flüssigkeitstropfen aber ständig erneuert (3).

Das Konzentrationsprofil ist bei der Taylorströmung im Flüssigkeitsfilm zwischen der Gasblase und der Kapillarwand und im Flüssigkeitsfilm an der Kapillarwand im Bereich des Flüssigkeitsabschnitts abhängig davon, ob eine Reaktion (Verbraucher) an oder in der Wand stattfindet oder nicht /Kreutzer, 2001/. Bei der Immobilisierung von Mikroorganismen in porösen Keramikmonolithen sitzt ein großer Teil der Verbraucher in den Wänden bzw. auf ihnen. Bei der Verwendung eines Sulfitsystems als chemisches Ersatzmodell für die Zellatmung, befindet sich der Verbraucher ausschließlich in der gesamten Reaktorflüssigkeit. Ein wichtiger Aspekt bei dem Vergleich des chemischen Systems mit dem biologischen.

3.4.2 Grundlagen der Begasung

3.4.2.1 Begasungstechniken

Bei zahlreichen G-L-Reaktionen, insbesondere bei Fermentationen, spielt der Stoffübergang und damit verbunden die spezifische Phasengrenzfläche eine entscheidende Rolle. Bei der Mehrzahl der in der Praxis auftretenden G-L-Reaktionssystemen sind deren Koaleszenzeigenschaften durch die verwendeten Substanzen festgelegt, so dass man auf diese die Phasengrenzfläche stark beeinflussende Eigenschaft praktisch keinen Einfluss hat. Die spezifische Phasengrenzfläche lässt sich folglich nur noch durch die Wahl des Kontaktapparates und durch die Wahl und die Auslegung des Begasers beeinflussen. Bei der Wahl des Begasers kann aber der Gesichtspunkt der Effektivität nicht isoliert von der zur Gasdispersion benötigten Energie betrachtet werden, da sonst der Vorteil der

Blasensäule bzw. des Schlaufenreaktors gegenüber gerührten Reaktoren hinsichtlich des Energieeintrags schnell verlorengeht /Buchholz, 1982/.

In G-L-Reaktoren kann man die folgenden Begasungstechniken unterscheiden: Begasung über die Oberfläche, blasenfreie Membranbegasung und direkte Blasenbegasung. Bei der Begasung über die Oberfläche steht in der Regel nur eine geringe Stoffaustauschfläche zur Verfügung. Das Verfahren findet Anwendung in Schüttelkolben. Für stark aerobe Prozesse ist der Stoffübergang zu gering. Bei der blasenfreien Membranbegasung wird Sauerstoff über gasdurchlässige Silikon-schläuche, Hohlfasermodule oder offenporige, hydrophobe Polypropylenmembranen, die in das Fermentationsmedium eintauchen und vom Gasgemisch durchströmt werden, in das Medium eingetragen. Ein gravierender Nachteil ist die geringe Membranpermeabilität und die damit notwendige große Membranfläche. Die direkte Blasenbegasung kann durch poröse Platten oder Lochdüsen direkt in der Flüssigkeit erfolgen. Ein möglicher Nachteil der direkten Blasenbegasung ist eine Schädigung der Mikroorganismen beim Austritt der Blasen aus der Flüssigkeit /Pörtner, 1996/.

Neben den genannten Arten gibt es noch andere Möglichkeiten der direkten Blasenbegasung. So fand der Gaseintrag im von /Kawakami, 1989a/ untersuchten „Monolithischen Reaktor“ durch ein Nadelkissen statt. Die Nadeln aus Edelstahl ragten im Versuchsaufbau bis in den untersten Monolithen, um dort direkt im Monolithen möglichst eine Taylorströmung zu erzeugen. Mit diesem Versuchsreaktor wurden volumetrische Stoffübergangskoeffizienten von bis zu 0,2 1/s gemessen.

3.4.2.2 Blasenbildung

Der Blasendurchmesser ist zusammen mit dem Gasgehalt maßgebend für die im Reaktor zur Verfügung stehende Stoffaustauschfläche. Für den auf die Stoffaustauschfläche bezogenen Stoffübergang ist auch die Qualität bzw. Struktur der Stoffaustauschfläche wichtig. So treten bei kleinen Blasen mit relativ starrer Oberfläche kleine Stoffübergänge auf, während Blasen mit größeren Durchmessern mit beweglicher und oszillierender Oberfläche hohe Turbulenzintensitäten aufweisen, was zu hohen Stoffübergängen führt. Die k_L -Werte sind wesentlich abhängig von der Blasengröße und der Strömung um die Blase. Kleine Blasen, die in Wasser eine gute Durchmesser bis zu etwa 1mm haben, verhalten sich mit dem an der Phasengrenzfläche haftendem Flüssigkeitsfilm wie starre Kugeln. Blasen mit größerem Durchmesser weisen eine

bewegliche, oszillierende Oberfläche auf, zudem sind ihre Aufstiegsgeschwindigkeiten größer /Deckwer, 1985/, /Fleischer, 2001/.

Sowohl die Blasenbildung als auch die Blasenablösung in G-L-Systemen sind sehr komplexe Vorgänge, da die Blasen fortlaufend ihre Größe und Form ändern. Im Folgenden werden einigen relevante Ansätze aus der Literatur zu Blasenbildung an Lochplatten oder Düsen zusammengefasst.

Blasenbildung in ruhender Flüssigkeit bei geringem Gasdurchsatz

Beim sogenannten Blasengasen bei geringen Gasdurchsätzen bilden sich periodisch Einzelblasen an der Begasungseinheit. Der anfänglich an der Öffnung gewölbte Kugelabschnitt expandiert durch den Nachfluss des Gases zu einer Blase. Bis die Auftriebs- oder Strömungskräfte stark genug sind, bleibt die Blase durch einen Verbindungsschlauch mit der Öffnung verbunden. An der Blase wirken gleichzeitig Halte- und Ablösekräfte. Gehalten wird die Blase durch die Grenzflächenkraft:

$$F_{\sigma} = d_p \cdot \pi \cdot \sigma(t). \quad (3.25)$$

Die zeitabhängige Grenzflächenspannung wird näherungsweise mit der Gleichgewichtsgrenzflächenspannung zwischen den beiden Phasen abgeschätzt. Als ablösende Kraft wirkt die Auftriebskraft:

$$F_A - F_G = \Delta\rho \cdot g \cdot V_B. \quad (3.26)$$

Aus dem Gleichgewicht dieser beiden Kräfte errechnet sich für den Bereich des geringen Gasdurchsatzes die Blasengröße nach der Kapillaritätstheorie /Siemes, 1954/:

$$d_B = \sqrt[3]{\frac{6 \cdot d_p \cdot \sigma}{g \cdot \Delta\rho}}. \quad (3.27)$$

Die an der Blase wirkende Widerstandskraft wird von /Mersmann, 1962/ zusätzlich betrachtet. Die Kraft resultiert aus dem Widerstand der umgebenden Flüssigkeit gegen die Blasenentstehung bzw. -ablösung:

$$F_W = c_W \cdot \frac{v_{B,rel} \cdot \rho_{Fl}}{2} \cdot \frac{d_B^4 \cdot \pi}{4}. \quad (3.28)$$

Mit dem sich dadurch ergebenden Kräftegleichgewicht von

$$F_{\sigma} + F_W = F_A - F_G \quad (3.29)$$

ergibt sich für den Blasendurchmesser unter Berücksichtigung der Kontinuitäts

gleichung und der Annahme einer konstanten Blasenbildungsfrequenz:

$$d_B = \sqrt[3]{\frac{3 \cdot \sigma \cdot d_P}{\rho_{Fl} \cdot g} + \sqrt{\left(\frac{3 \cdot \sigma \cdot d_P}{\rho_{Fl} \cdot g}\right)^2 + \frac{K \cdot \dot{V}_L^2 \cdot d_P}{g}}} \quad (3.30)$$

Der Faktor K resultiert aus dem Widerstandsbeiwert c_W und einem Formfaktor für das Abweichen der Blasen von der Kugelform und nimmt Wert zwischen 10 und 30 an.

Die Gleichung (3.30) von /Mersmann, 1962/ liefert nur eine grobe Abschätzung und wurde von zahlreichen Autoren modifiziert. Trotzdem können aus ihr die Haupteinflüsse auf die Blasenbildung abgeleitet werden:

- Luftvolumenstrom durch die Porenöffnung,
- Durchmesser der Porenöffnung,
- Grenzflächenspannung und
- Dichte der Flüssigkeit.

Die Einführung der dimensionslosen Kennzahlen Weber-Zahl und Froude-Zahl ermöglicht eine dimensionslose Schreibweise der Gleichung. Die Weber-Zahl gibt das Verhältnis von Trägheitskraft und Grenzflächenkraft wieder:

$$We = \frac{v_P^2 \cdot d_P \cdot \rho_G}{\sigma} \quad (3.31)$$

$$\text{mit } v_P = \frac{4 \cdot \dot{V}_L}{d_P^2 \cdot \pi \cdot n} \quad (n: \text{Anzahl der Poren}). \quad (3.32)$$

Die Froude-Zahl ergibt sich aus der Trägheitskraft in Bezug auf die Differenz aus Auftriebs- und Schwerkraft:

$$Fr = \frac{v_P^2}{g \cdot d_P} \quad (3.33)$$

Mit den Kennzahlen ergibt sich die oben aufgestellte Gleichung zu

$$d_B = 1,817 \cdot d_P \cdot \left(\frac{Fr}{We}\right)^{1/3} = 1,26 \cdot d_P \cdot \left(\frac{3 \cdot \sigma}{\rho_{Fl} \cdot g \cdot d_P^2}\right)^{1/3} \quad (3.34)$$

Mit dieser Gleichung lassen sich nach /Brauer, 1971/ Messwerte für das Blasengasen in unterschiedlichen Systemen und bei unterschiedlichen Düsendurchmessern gut beschreiben.

Eine etwas detailliertere Beschreibung für den Blasendurchmesser in niedrigviskosen Flüssigkeiten liefert /Kumar, 1967/. Er gibt eine durch Iteration lösbare Gleichung aus einem zweistufigen Modell aus Expansion und Ablösung an, die durch die

Berücksichtigung der Blasenvergrößerung nach dem Ablösen ein größeres Blasen-
volumen als frühere Abschätzungen annimmt. /Ruff, 1974/ gibt ein ähnliches Modell für
das Blasen-
volumen auf der Basis einer Dimensionsanalyse aus experimentellen Daten
an und /Räbinger, 1982/ liefert in seiner Arbeit Verbesserungsvorschläge für das Modell
von /Kumar, 1967/. Die hohe Komplexität der aufgestellten Modelle begrenzt allerdings
die Anwendbarkeit in der Praxis.

Eine sehr einfache Gleichung zu Berechnung des Blasen-
volumens wurde von /Davidson, 1960/ aufgestellt, die auch für höher viskose Medien gilt:

$$V_B = \left(\frac{4 \cdot \pi}{3} \right)^{1/4} \cdot \left(\frac{15 \cdot \nu \cdot \dot{V}_L}{2 \cdot g} \right)^{3/4} \quad (3.35)$$

Blasenbildung in ruhender Flüssigkeit bei hohem Gasdurchsatz

Erhöht man den Gasdurchsatz nimmt anfänglich nur die Blasenbildungsfrequenz zu.
Die Blasen-
größenverteilung bleibt annähernd monodispers. Bei weiterer Erhöhung des
Gasdurchsatzes berühren sich die Blasen und die Blasenbildungsfrequenz erreicht
einen konstanten Wert. Die Blasen verändern ihre Form und können auch
zusammenwachsen, so dass eine heterodisperse Blasen-
größenverteilung entsteht. In
Abhängigkeit der Kräfte und der Grenzflächeneigenschaften vereinen sich die Blasen
oder sie werden durch die Strömungskräfte in kleinere Blasen zerteilt.

In der Literatur wird das Kriterium für den Übergang zum Strahlgasen mit einer Weber-
Zahl > 2 angegeben /z.B. Mersmann, 1962/. /Klug, 1983/ gibt an, dass ab einer Weber-
Zahl von 6 der Blasendurchmesser nicht mehr von dem Gasdurchsatz abhängt.

Die Blasen-
größe in ruhender Flüssigkeit bei hohem Gasdurchsatz ist von den drei
Faktoren abhängig:

- Primärdispersierung am Dispergierorgan,
- Koaleszenzneigung des Stoffsystems und
- Sekundärdispersierung in der kontinuierlichen Phase.

Der Blasen-
bildungsvorgang wird in diesem Bereich Strahlgasen genannt. Mit
zunehmendem Luftvolumenstrom steigt die mittlere Blasen-
größe, da die Blasen
aufeinanderstoßen und sich vereinigen können. Der Einfluss der Grenzflächen-
spannung reduziert sich und hat im Bereich des Strahlgasens keinen Einfluss mehr.

Wenn es sich um ein koaleszenzgehemmtes System handelt, dann kann die Sekundär- auch mit der Primärblasengröße identisch sein.

/Siemes, 1956/ gibt für den Bereich des Strahlgases folgende Gleichung an:

$$d_B = 0,72 \cdot d_P \cdot Fr^{1/6}. \quad (3.36)$$

Die von /Bikerman, 1973/ angegebene Gleichung ist unabhängig vom Porendurchmesser:

$$V_B = C4 \cdot \left(\frac{\dot{V}_L \cdot \eta}{g \cdot \rho} \right)^{0,75}. \quad (3.37)$$

Die Konstante C4 muss experimentell ermittelt werden.

Der erforderliche Mindestdurchsatz für das gleichmäßige Durchströmen durch alle Porenöffnungen einer Begasungsplatte lässt sich durch Umformen der Weber-Zahl berechnen, wenn die Weber-Zahl gleich 2 gesetzt wird.

$$\dot{V}_{L,\min} = \frac{\pi}{4} \cdot n \cdot d_P^{3/2} \cdot \sqrt{\frac{2 \cdot \sigma}{\rho_L}}. \quad (3.38)$$

Reale poröse Systeme werden oft als Multidüsen schematisiert und berechnet, da ein Netzwerk aus unregelmäßigen Poren schwer zu charakterisieren ist und sehr komplexe Druckverhältnisse vorliegen. Als Folge davon liegt der berechnete Blasendurchmesser unterhalb der experimentell ermittelten. Die Wechselwirkungen benachbarter Öffnungen, die zum Beispiel für das Zusammenfließen von benachbarten Blasen verantwortlich sind, werden bei Verwendung von Lochplatten meistens vernachlässigt. Der Abstand benachbarter Düsen bzw. Poren muss mindestens die Größe der Durchmesser der entstehenden Blasen aufweisen, um eine definierte Blasengröße zu gewährleisten /Bals, 2002/.

Blasenbildung in bewegter Flüssigkeit

Erfolgt die Blasenbildung in ein strömendes Medium, wird sie in entscheidendem Maße von den Strömungskräften beeinflusst. So stellte zum Beispiel /Bikerman, 1973/ fest, dass sich die Blasenvolumina um den Faktor 4 bis 10 verringern, sobald das Medium bewegt wird, in das die Blasen einströmen. Nach /Klug, 1983/ verschiebt sich in strömenden Medien der Übergang von Blasengasen zu Strahlgasen hin zu höheren Weber-Zahlen, da die ablösenden Kräfte an der Blase zunehmen.

/Bals, 2002/ gibt einen Überblick über alle Einflussfaktoren, die auf die Blasenbildung und –ablösung wirken (Tab.3.2).

Tab.3.2: Einflussfaktoren, die auf die Blasenbildung und –ablösung wirken

Konstruktionsgrößen	Porendurchmesser, -anzahl, Porosität, Vorkammervolumen, Strömungsführung, geometrische Abmessungen
Prozessgrößen	Gasdurchsatz, Volumenstrom der Flüssigkeit, Druck, Temperatur, Leerrohrgeschwindigkeit
Stoffwerte	Viskosität, Dichte, Grenzflächenspannung, Konzentration

Über die Einflüsse der oben genannten Faktoren auf die resultierende Blasengröße liegen in der Literatur zahlreiche Untersuchungen vor, die Aussagen gestalten sich jedoch teilweise sehr gegensätzlich, da die verwendeten Betriebsbedingungen grundlegend verschieden sind. Die Einflussfaktoren sind außerdem voneinander abhängig und beeinflussen sich gegenseitig.

Dispergierung der Blasen

Bei der Behandlung der Dispergierung der Gasphase muss man unterscheiden zwischen koaleszenzhemmenden und –fördernden Medien. In koaleszenzhemmenden Medien sollte man in einem begrenzten Bereich der Gasdispergierung möglichst hohe lokale Energiedissipationsraten anwenden. Der in diesem Bereich erzielte hohe Dispergierungsgrad der Gasphase bleibt weitgehend erhalten, auch dann, wenn die Blasen in Bereiche gelangen, in denen geringe lokale Energiedissipationsraten vorherrschen /Schügerl, 1980/, /Scharifullin, 1993/.

Sowohl in koaleszenzhemmenden als auch in koaleszenzfördernden Medien spielt die Oberflächenspannung eine Rolle bei der Blasenbildung, dem Blasenzerfall und der Koaleszenz und übt so einen Einfluss auf die Größe des volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten aus. Allgemein lässt sich sagen, dass der Blasendurchmesser mit steigender Oberflächenspannung zunimmt. Mit abnehmender Oberflächenspannung, hervorgerufen durch oberflächenaktive Substanzen, nimmt die Koaleszenzgeschwindigkeit drastisch zu. Der Einfluss der Oberflächenspannung beschränkt sich nicht nur auf die Stoffaustauschfläche, sondern erstreckt sich auch auf den Stoffübergangskoeffizienten k_L und wird kleiner mit fallender Oberflächenspannung /Ewald, 1993/.

Blasenverhalten im Reaktorkopf

Im Kopf (Abscheidebecken) eines Schlaufenreaktors, wie er auch in dieser Arbeit verwendet wird, liegen deutlich andere Strömungsbedingungen vor als in den anderen Reaktorbereichen. Der Reaktorkopf dient zur Abscheidung der aufsteigenden Blasen aus der Flüssigkeitsströmung und ist durch eine starke Strömungsumlenkung gekennzeichnet bei einem zum Rest des Reaktors deutlich vergrößerten Strömungsquerschnitt. Den Blasen soll durch die Konstruktion der freie Aufstieg ermöglicht werden. Zum besseren Verständnis des Abscheideverhalten des Reaktorkopfes wird im Folgenden auf das Blasenauftiegsverhalten eingegangen.

Zur hydrodynamischen Beschreibung des Verhaltens von Einzelblasen in einer unendlich ausgedehnten Flüssigkeit ist eine Charakterisierung der Blasen bezüglich Blasenform sowie Blasenauftiegs geschwindigkeit erforderlich. Beide Charakteristiken sind eng miteinander verknüpft und werden von den Stoffeigenschaften des Zweiphasengemischs beeinflusst. Im normalen Anwendungsfall in einem Strömungsreaktor treten zusätzlich Einflüsse der benachbarten Schwarmblasen sowie der Reaktorwände auf. Berücksichtigt man darüber hinaus die stochastische Natur der Blasenströmung, wird klar, wieso eine detaillierte Vorausberechnung des Blasenverhaltens derzeit noch nicht möglich ist.

Der einfachste Ansatz zur Berechnung der stationären Relativgeschwindigkeit zwischen Gas und Flüssigkeit $|\Delta u| = |u_L - u_F|$ (Schlupfgeschwindigkeit) geht von einer konstanten, von der Blasengröße unabhängigen Aufstiegsgeschwindigkeit aus. Für das Stoffsystem Wasser/Luft wird für mittelgroße Blasen zwischen 2 und 10mm in der Regel $\Delta u \approx 0,22 - 0,30 \text{ m/s}$ angegeben /Fleischer, 2001/. Eine von der Blasengröße unabhängige Aufstiegsgeschwindigkeit scheint zunächst der Anschauung zu widersprechen. Der Grund dafür, dass sie trotzdem die Aufstiegsgeschwindigkeit angemessen wiedergibt, liegt darin, dass sich größere Blasen abzuplatten beginnen, wodurch der Aufstieg in eine Taumelbewegung übergeht und der Strömungswiderstand steigt.

Viele Ansätze für die Schlupfgeschwindigkeit berücksichtigen jedoch die Blasengröße. Eine frei aufsteigende Blase erreicht ihre stationäre Geschwindigkeit, wenn die Auftriebskraft F_A und die aus der Blasenbewegung resultierende Widerstandskraft F_W

im Gleichgewicht sind:

$$F_A = (\rho_L - \rho_{Fl}) \cdot g \cdot \frac{\pi}{6} \cdot d_B^3 = c_w \cdot \frac{\pi}{4} \cdot d_B^2 \cdot \frac{\rho_L}{2} \cdot \Delta u^2 = F_w \quad (3.39)$$

Die Beschleunigung bzw. Trägheit der Blasen kann in technischen Anwendungen wegen der gegenüber der Flüssigkeit sehr kleinen Gasdichte in der Regel vernachlässigt werden. Durch Umformen der Gleichung ergibt sich folgender Zusammenhang zwischen Schlupf und Blasengröße:

$$\Delta u = \sqrt{\frac{4}{3} \cdot \frac{(\rho_{Fl} - \rho_L)}{\rho_{Fl}} \cdot \frac{d_B \cdot g}{c_w}}, \quad (3.40)$$

wobei der Wert c_w derzeit nur durch Messungen bestimmt werden kann.

Abbildung 3.6 zeigt den Verlauf einer in /Fleischer, 2001/ angegebene Gleichung für die Abhängigkeit des Blasenanstiegs von der Blasengröße mit Stoffkonstanten für Leitungswasser:

$$\Delta u = \left(\Delta u_{Levich}^{-C_3} + \Delta u_{Mendelson}^{-C_3} \right)^{-1/C_3} \quad (3.41)$$

$$\text{mit } \Delta u_{Levich} = \frac{\rho_{Fl} \cdot g \cdot d_B^2}{C_2 \cdot \eta_{Fl}}, \quad (3.42)$$

$$\Delta u_{Mendelson} = \sqrt{\frac{2 \cdot C_1 \cdot \sigma}{\rho_{Fl} \cdot d_B} + \frac{g \cdot d_B}{2}} \quad (3.43)$$

und $C_1=1,2$, $C_2=37,2$ und $C_3=0,8$.

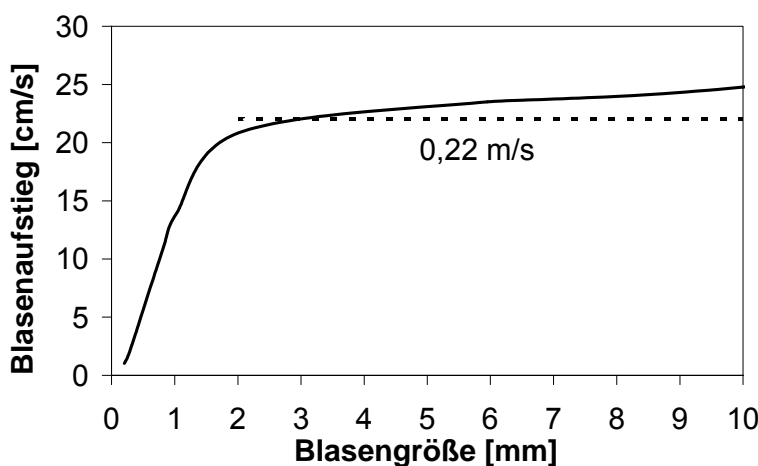


Abb.3.6: Blasenanstieg in Abhängigkeit der Blasengröße, Gleichung 3.41

3.4.3 Relativer Gasgehalt

Der relative Gasgehalt ε_L stellt eine wichtige Kenngröße zur Charakterisierung des Betriebsverhaltens von Gas-Flüssigkeits-Reaktoren dar. Er ist als Verhältnis des dispergierten Gasvolumens zum Gesamtvolumen der Dispersion definiert. Der auf das Volumen der begasten Flüssigkeit bezogene Flüssigkeitsanteil wird relativer Flüssigkeitsgehalt genannt. Das Gasvolumen V_G ist gleich der Summe der Volumina aller im Gas-/Flüssigkeitssystem verteilten Einzelblasen.

$$\varepsilon_L = \frac{V_L}{V_R} = \frac{V_L}{V_L + V_{FI}}. \quad (3.44)$$

$$\varepsilon_{FI} = \frac{V_{FI}}{V_R} = \frac{V_{FI}}{V_L + V_{FI}}. \quad (3.45)$$

$$\varepsilon_{FI} + \varepsilon_L = 1. \quad (3.46)$$

Zur Messung des Gasgehaltes werden, je nach Reaktortyp, verschiedene Messmethoden herangezogen. Die einfachste Praktik ist die Messung der Differenz der Reaktorfüllhöhe im begasten bzw. im unbegasten Zustand. Diese Methode wird häufig bei Blasensäulen angewendet. Eine andere Vorgehensweise stellt das Auffangen des nach dem Abschalten der Gaszufuhr aus dem Reaktor entweichenden Gases dar. Sie bietet sich unter anderem dann an, wenn die Füllhöhenmethode durch Einbauten im Reaktorinneren oder durch eine komplizierte Reaktorgeometrie mit Unsicherheit behaftet ist. Weitere Möglichkeiten stellen je nach Medium Leitfähigkeits- und elektrooptische Verfahren dar, die sich insbesondere für die Messung von lokalen, radial- oder höhenabhängigen Gasgehalten bewährt haben. Schließlich sei an dieser Stelle noch die Aufnahme eines Druckprofils über der Reaktorhöhe erwähnt. Dabei wird die Druckdifferenz zwischen den in verschiedener Höhe angebrachten Messstellen und dem Kopf des Reaktors gemessen. Aus dem Differenzdruck kann unter Einbeziehung der Dichte der Flüssigkeit und unter Vernachlässigung der Gasdichte der relative Gasgehalt an der Messstelle ermittelt werden /Deckwer, 1985/.

3.4.3.1 Einfluss des Luftvolumenstroms

Wird ein Reaktor nur schwach begast und ist die Gasgeschwindigkeit demzufolge niedrig, so bildet sich eine Gasverteilung mit annähernd gleichförmigen Blasen aus

/Choi, 2002/. Der Gasgehalt ist in diesem Bereich nahezu direkt proportional zum Luftvolumenstrom. Erhöht man den Luftvolumenstrom, so wird die Blasenverteilung inhomogen, das System weicht unter der Bildung größerer Blasen aus. Sie entstehen, weil sich, aufgrund der höheren Blasendichte im Reaktor, kleinere Blasen durch Koaleszenz zu größeren vereinigen. Da bei diesen sogenannten Sekundärblasen die Auftriebskraft im Verhältnis zur Reibungskraft größer ist als bei den kleineren Blasen, haben sie höhere Aufstiegsgeschwindigkeiten und somit kürzere Verweilzeiten im Reaktor. Dadurch verläuft der Gasgehalt im Verhältnis zum Luftvolumenstrom bei höherem Gasdurchsatz zunehmend degressiv. Verschiedene Autoren haben beobachtet, dass bei hohen Luftvolumenströmen der Anteil an kleinen Blasen nahezu konstant bleibt und der Gasgehalt mit steigendem Volumenstrom zunehmend durch den Anteil an großen Blasen bestimmt wird (s.Abb.3.7). Der Strömungsbereich, in dem größere Blasen neben kleineren vorliegen, wird heterogener Betriebszustand genannt. Ist die Querschnittsfläche des Reaktors gering, so bilden die großen Blasen der heterogenen Strömung auch sogenannte Gaspfropfen oder Kolbenblasen /Deckwer, 1985/. Bei homogener Blasenströmung erzielt man größere spezifische Phasengrenzflächen im Gegensatz zur heterogenen Blasenströmung /Braeske, 1996/.

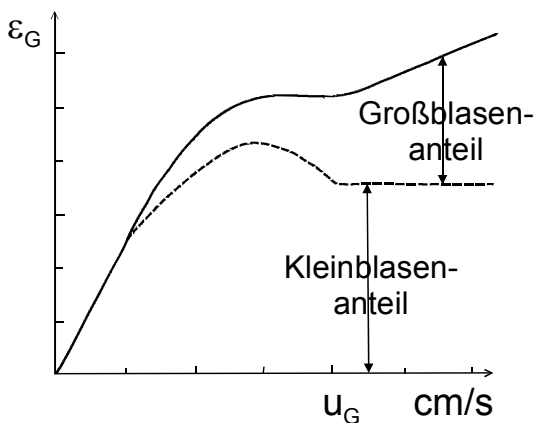


Abb.3.7: Anteil der Groß- und Kleinblasen am Gasgehalt bei steigender Gasleerrohrgeschwindigkeit /Deckwer, 1985/

In den Versuchen in einem Strahlschlaufenreaktor von /Hirner, 1974/ stieg der relative Gasgehalt anfangs mit zunehmendem Gasdurchsatz linear an. Dieser Bereich entspricht dem laminaren Strömungsverhalten in der Blasensäule. Die mittlere Blasengröße und damit auch die mittlere Aufstiegsgeschwindigkeit der Blasen bleiben hier konstant. Der Umschlagspunkt zum turbulenten Bereich lag bei den Versuchen zwischen 0,02 bis 0,04m/s Gasleerrohrgeschwindigkeit (ca.3l/min). Bei größeren

Geschwindigkeiten nimmt die Koaleszenz von Gasblasen zu, die höhere Aufstiegs- und Abstiegsgeschwindigkeit der dadurch entstandenen größeren Blasen führt zu einer relativen Abnahme des Gasgehaltes. Der Gasgehalt nimmt zunächst linear mit dem Gasdurchsatz zu. Bei weiterer Steigerung des Gasdurchsatzes erreicht der Gasgehalt schließlich ein Maximum, die Gasbeladungsgrenze für das Gas-Flüssigkeits-System.

/Choi, 2002/ fand in seinen Untersuchungen in einem Airliftreaktor heraus, dass der relative Gasgehalt im Reaktor mit steigendem Luftvolumenstrom ansteigt, da die Blasendichte im Reaktor größer wird. Die Anstiegsrate des Gasgehalts ändert sich mit dem Luftvolumenstrom und bekommt einen zunehmend potentiellen Verlauf. Außerdem sinkt nach Meinung des Autors bei gleichbleibendem Luftvolumenstrom die Verweilzeit der Blasen im Reaktor bei einem Anstieg der Flüssigkeitgeschwindigkeit. In der von /Choi, 1993/ untersuchten Blasensäule steigt der relative Gasgehalt und der volumetrische Stoffübergangskoeffizient $k_L a$ mit steigendem Luftvolumenstrom und läuft gegen einen Grenzwert. Eine Modellierung der gefundenen Abhängigkeit der untersuchten Parameter wurde durch eine exponentielle Mehrfachregression erreicht.

Eine optimale Leistung eines monolithischen G-L-Reaktors verlangt eine Abstimmung des Luft- und des Flüssigkeitsvolumenstroms, um den gewünschten Strömungsbereich zu erreichen. Eine Erhöhung des Luftvolumenstroms führt zu einer Verdrängung der Flüssigkeit aus den für die Reaktion relevanten Bereichen. Die Verweilzeit der Flüssigkeit ist eine Funktion der Leerrohrgeschwindigkeit der Flüssigkeit und des Gases. Die Verweilzeitverteilung ist eine Messung der Zeit, die ein Flüssigkeitspartikel in den Abgrenzungen des Reaktors verweilt. Die Verweilzeit ist also die Zeit, die zur Reaktion zur Verfügung steht. Der Umsatz eines Reaktors (maximal möglicher Stoffübergang pro Flüssigkeitsvolumen) kann in großer Abhängigkeit der Verweilzeit sein /Patrick, 1995/.

3.4.3.2 Einfluss des Volumenstroms der Flüssigkeit

Erhöht man bei gleichbleibendem Luftvolumenstrom den Volumenstrom der Flüssigkeit in einem Schlaufenreaktor, so geht damit im Allgemeinen eine Verringerung des Gasgehalts einher. Dies ist vor allem darauf zurückzuführen, dass die Aufstiegs- und Abstiegsgeschwindigkeit der Blasen mit dem Volumenstrom der Flüssigkeit steigt (Blasen werden mitgerissen) und damit die Verweilzeit der Blasen im Reaktor sinkt. Ab einem bestimmten Volumenstrom der Flüssigkeit sinkt bei weiterer Erhöhung derselben der

Gasgehalt nur noch unwesentlich, sein Wert nähert sich einem Minimum an. Dann stellt sich ein Zustand ein, in dem die Gasblasen im Reaktorkopf teilweise nicht mehr abgeschieden werden und durch den gesamten Reaktor zirkulieren /Ade Bello, 1985/.

Jedoch stellt sich bei einer Erhöhung des Volumenstroms der Flüssigkeit auch ein gegenläufiger Effekt ein, da die mittlere Blasengröße sinkt. Die Verkleinerung der Blasen ist auf die zunehmende Turbulenz der Strömung zurückzuführen, welche den Zerfall von Großblasen in Kleinblasen befördert. Daraus resultiert wiederum eine gleichmäßigere Gasverteilung im Reaktor sowie eine Verringerung der Blasenauftiegs- geschwindigkeit, was tendenziell eine Erhöhung des Gasgehaltes mit sich bringt. Der Effekt tritt bei hohen Flüssigkeitsvolumenströmen zunehmend in den Hintergrund.

3.4.3.3 Einfluss der Flüssigkeitseigenschaften

Insbesondere bei niedrigviskosen Medien wird der Gasgehalt auch von den Oberflächeneigenschaften beeinflusst, die für das Koaleszenzverhalten von erheblicher Bedeutung sind. Dieses wird schon von geringen Anteilen an oberflächenaktiven Substanzen oder Elektrolyten beeinflusst. Salze und Alkohole haben in wässrigen Lösungen eine koaleszenzhemmende Wirkung und sorgen so für tendenziell kleinere Blasengrößen, was wiederum eine Erhöhung des Gasgehaltes nach sich zieht. Bei solchen koaleszenzgehemmten Systemen ist die Größe der am Gasverteiler eingebrachten Primärblasen von großer Bedeutung. Bei zur Koaleszenz neigenden Medien wie zum Beispiel destilliertem Wasser ist die Art der Gaseinbringung und die Primärblasengröße dagegen von geringerer Bedeutung /Deckwer, 1985/.

3.4.3.4 Einfluss von Antischaummittel

Das Schäumen ist eine charakteristische Eigenschaft von Gas-Flüssig-Abläufen in Gegenwart von oberflächenaktiven Substanzen, die in biologischen Medien in der Regel vorliegen. In Fermentationen und biochemischen Prozessen ist das Schäumen das dominierende Problem, da es zum Überlaufen und damit zum Verlust des Mediums und der Produkte führen kann. Durch die Zugabe von Antischaummitteln wird der Schaum oberhalb des Mediums zerstört. Das Antischaummittel kann aber gleichzeitig auch die Koaleszenz der Blasen im Bereich der Flüssigkeit begünstigen. Das Resultat liegt in einer Vergrößerung des Blasendurchmessers und einer Reduzierung des relativen Gasgehalts /Al-Masry, 1999/.

3.4.4 Spezifischer Leistungseintrag

Zwei wichtige Kriterien für die Auslegung eines hydrodynamischen Reaktors sind der volumetrische Stoffübergang und der spezifische Leistungseintrag. Eine hohe Effizienz des Reaktors ist nur dann zu erreichen, wenn ein hoher Stoffübergang bei einem möglichst kleinen Leistungseintrag erzielt wird. Der Leistungseintrag muss sowohl zum kontinuierlichen Transport der Flüssigkeit durch den Reaktor, als auch zur Begasung des Systems erfolgen. Dabei ist der spezifische Leistungseintrag die Energie pro Zeit, die von der Flüssigkeit dissipiert wird bezogen auf das Flüssigkeitsvolumen. Der spezifische Leistungseintrag in das System ist nicht die elektrische Leistung, die für den Betrieb des Versuchsreaktors benötigt wird und sagt nichts über Energieverluste durch Wärmeabstrahlung, Spaltverluste, Reibungsverluste der Pumpen oder über die bei der Gaskompression entstehenden Verluste aus.

3.4.4.1 Leistungseintrag durch Umwälzung der Flüssigkeit

Der Leistungseintrag der Pumpen zum Umwälzen der Flüssigkeit innerhalb eines Reaktors berechnet sich aus dem Produkt aus Flüssigkeitsvolumenstrom und dem Druckunterschied zwischen Pumpeneintritt und Pumpenaustritt.

$$P_P = \Delta p_P \dot{V}_{Fl} \quad (3.47)$$

3.4.4.2 Leistungseintrag durch Begasung

Der G-L-Reaktor erhält durch das Begasen mit Luft einen weiteren Leistungseintrag. Die Fachliteratur bietet zur Bestimmung des gaseitigen Leistungseintrags unterschiedliche Ansätze. Während /Liepe, 1988/ die isotherme Entspannungsleistung der im Reaktor aufsteigenden Gasblasen betrachtet, bestimmt /Weuster-Botz, 1999/ zusätzlich den Leistungseintrag durch Gasblasenbildung. /Schügerl, 1980/ dagegen bestimmt den Leistungseintrag durch Gaskompression.

Expansionsleistung der Gasblasen

Sowohl /Liepe, 1988/ als auch /Weuster-Botz, 1999/ berechnen den gaseitigen Leistungseintrag über die Gasexpansion. Dabei wird angenommen, dass das Gas aufgrund der großen spezifischen Phasengrenzfläche unmittelbar an der

Einspeisungsstelle die Temperatur der Flüssigkeit annimmt. Die Expansion der Gasblasen erfolgt damit isotherm. Da sowohl durch aerobe Mikroorganismen als auch durch eine Sulfitoxidation im G-L-System nur ein geringer Anteil des gesamten Gasstroms aufgenommen wird, kann die Änderung des Massenstroms vernachlässigt werden.

Wie aus der Thermodynamik bekannt, berechnet sich die Volumenänderungsarbeit bei reversiblen Prozessen nach der Gleichung:

$$(W)_V^{\text{rev}} = -\int_1^2 p dV. \quad (3.48)$$

Mit Hilfe der idealen Gasgleichung ($pV = mRT$) und der Annahme isothermer Zustandsänderung $T_e = T_a = \text{konst.}$ folgt:

$$(W)_V^{\text{rev}} = -mRT \ln \frac{p_1}{p_2}. \quad (3.49)$$

Damit berechnet sich der Leistungseintrag durch die Expansionsleistung der Gasblasen in Abhängigkeit vom Druck der Luftzufuhr vor dem Reaktoreintritt p_L , dem Druck im Reaktorsockel p_S , dem Druck p_K im Reaktorkopf sowie dem Luftvolumenstrom nach der Beziehung:

$$P_{\text{exp}} = \dot{m}RT \ln \frac{p_S}{p_K} = \rho \dot{V}RT \ln \frac{p_S}{p_K} = p_L \dot{V} \ln \frac{p_S}{p_K}. \quad (3.50)$$

Bei konsequenter Beachtung der Vorzeichenregeln der Thermodynamik, gibt ein negatives Ergebnis der Gleichung 3.49 an, dass das Gas Arbeit abgibt. Das positive Ergebnis von Gleichung 3.50 besagt, dass die Flüssigkeit im Reaktor die Leistung der Gasblasenexpansion aufnimmt.

Leistungseintrag durch Gasblasenbildung

Bei einer Begasung durch poröse Platten werden in den Begasungsplatten Oberflächen erzeugt. Die spezifische Energie zur Oberflächenbildung entspricht dabei der Oberflächenspannung. Diese wird von der Flüssigkeit im Reaktor vollständig dissipiert. Nach /Zierep, 1979/ berechnet sich die eingebrachte Leistung durch Blasenbildung in Abhängigkeit des Luftvolumenstroms, der Oberflächenspannung σ ($\sigma_{\text{H}_2\text{O}} = 0,072 \text{ N/m}$) und dem mittleren Blasendurchmesser d_b :

$$P_{\text{Blasen}} = \frac{6 \cdot \dot{V}_L \cdot \sigma}{d_B}. \quad (3.51)$$

3.4.4.3 Gesamtleistungseintrag

Der Gesamtleistungseintrag durch Begasung setzt sich aus der Summe aus Expansionsleistung (Gl.3.50) und der Leistung zur Gasblasenbildung (Gl.3.51) zusammen. Der spezifische Gesamtleistungseintrag des Reaktors ist die Summe der Leistungseinträge aus Umpumpen (Gl.3.47) und Begasen und wird auf das Volumen der Flüssigkeit innerhalb des Reaktors bezogen.

Die Versuche von /Ewald, 1993/ zeigen, dass der relative Gasgehalt in einem Strahlschlaufenreaktor mit zunehmendem Luftvolumenstrom ansteigt. Der Anstieg des Gasgehalts ist allerdings bei geringem Luftvolumenstrom stärker ausgeprägt als bei hohem, der Gasgehalt strebt je nach Volumenstrom der Flüssigkeit gegen einen Grenzwert. Auch der Stoffübergangskoeffizient steigt mit dem Luftvolumenstrom. Es wird vom Autor außerdem gezeigt, dass mit höheren Flüssigkeitsvolumenströmen größere Stoffübergangskoeffizienten erzielt werden können. Bei gleichem Leistungseintrag werden allerdings im unteren Bereich höhere Stoffübergangswerte bei niedrigeren Flüssigkeitsvolumenströmen erreicht. Mit Hilfe einer Normierung des Stoffübergangskoeffizienten über den Leistungseintrag war es /Ewald, 1993/ möglich, den energetisch optimalen Betriebsbereich für seinen untersuchten Strahlschlaufenreaktor anzugeben. In den optimalen Bereichen werden – bezogen auf die in den Reaktor eingebrachte Leistung – die größten Stoffübergangswerte erzielt.

4 VERSUCHSAUFBAU UND MESSMETHODEN

Gegenstand der Untersuchungen dieser Arbeit ist ein Strömungsreaktor mit Keramikmonolithen als Immobilisierungsräume. Der Reaktor wurde eigens für die gestellten Anforderungen konzipiert. Er dient zur Auslegung von optimalen Stoffübergangsraten bei geringen Leistungseinträgen. Der Sauerstoffverbrauch der chemischen Reaktion des Natriumsulfits simuliert dabei die Zellatmung von Mikroorganismen. In den folgenden Kapiteln werden die verwendeten Keramiken, der Strömungsreaktor und die chemischen Systeme beschrieben. Außerdem wird die Vorgehensweise bei den Messungen und die biologischen Versuche in einem baugleichen Reaktor erläutert.

4.1 Keramikmonolithe aus Siliciumkarbid und Cordierit

Als Werkstoffe für die Monolithen in dieser Arbeit wurde stranggepresstes Siliziumkarbid der Firma Heimbach und stranggepresstes Cordierit der Firma Corning verwendet. Die Spezifikation der verwendeten Monolithen ist in der Tabelle 4.1 dargestellt. Die Porosität und der mittlere Porendurchmesser wurden mit einem Quecksilberdruckporosimeter der Firma Micromeritics ermittelt. Der Niederdruckteil des Geräts umfaßt Drücke von 0,0035-0,2 MPa, was meßbaren Porenradien von 200-4 µm entspricht. Im Hochdruckteil können Drücke im Bereich von 0,1-400 MPa realisiert werden, entsprechend Porenradien von 8-0,0018 µm.

Bei der Quecksilberdruckporosimetrie wird der Druck gemessen, der notwendig ist, um ein bestimmtes Volumen Quecksilber in die Probe zu pressen. Über das ermittelte Volumen wird ein Porendurchmesser berechnet, von dem ausgegangen wird, dass er für das Porenvolumen konstant ist. In der Realität sind die Hohlräume durch Flaschenhalse mit dem ermittelten Durchmesser verbunden.

In Tabelle 4.1 ist zu erkennen, dass der Unterschied der beiden verwendeten Keramikmonolithen besonders in der unterschiedlichen Kanalinnenfläche und damit im Oberflächen-zu-Volumen-Verhältnis liegt. Durch die fast identische Anströmfläche der Kanäle ergibt sich im Gegensatz dazu in den Kanälen eine gleiche Strömungsgeschwindigkeit des Zweiphasengemisches. Die Änderung der Strömungsgeschwindigkeit in den Kanälen mit steigendem Luftvolumenstrom bei konstantem Flüssigkeitsvolumenstrom zeigt Abbildung 4.1.

Tab.4.1: Spezifikation der Keramikmonolithen

	Siliciumcarbid	Cordierit
Standardlänge [mm]	150	150
Zellzahl [cpsi]	200	400
Kanalbreite (innen) [mm]	1,3	1,0
Wanddicke [mm]	0,4	0,2
Porosität [%]	36	30
Porendurchmesser [μm]	7,0	6,6
Kanalquerschnitt [-]	quadratisch	quadratisch
Anströmfläche der offenen Kanäle [mm^2]	676	680
Kanalinnenfläche für 150mm Monolithen [m^2]	0,312	0,408
Oberflächen-zu-Volumen-Verhältnis [m^2/m^3]	392	513

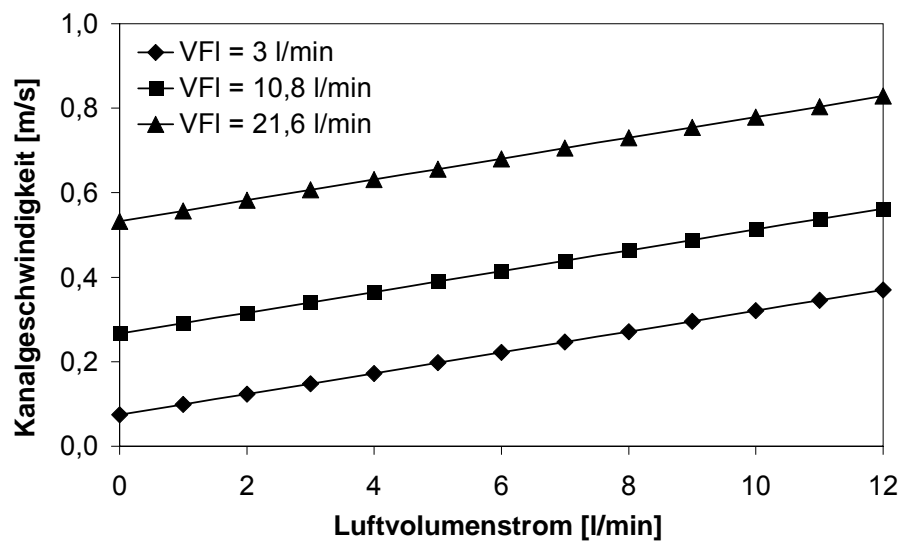


Abb.4.1: Strömungsgeschwindigkeit in den Monolithkanälen in Abhängigkeit des Luftvolumenstroms bei jeweils konstantem Flüssigkeitsvolumenstrom von 3, 10,8 und 21,6 l/min (Cordierit und SiC-Monolithen)

4.1.1 Der Werkstoff Siliziumkarbid

Der Werkstoff Siliziumcarbid besteht zu 70,05 Masseprozent aus Silizium (Si) und zu 29,95 Masseprozent aus Kohlenstoff (C) und kommt in der Natur nur in sehr geringen Mengen vor. Im sogenannten „Acheson-Verfahren“ kann SiC bei ca. 2400°C aus den pulverförmigen Rohstoffen gewonnen werden. Der stark kovalente Charakter der Si – C Bindung (kovalenter Bindungsanteil 88%) führt zu einer Kombination von Eigenschaften wie unter anderem hoher E-Modul, hohe Wärmeleitfähigkeit, Korrosionsstabilität und große Härte. Die Haupteinsatzgebiete sind die Verwendung als Schleifmittel, als Legierungszuschlag sowie als Feuerfestmaterial in der Stahlindustrie /Piwonski, 2005/.

Rekristallisiertes Siliziumkarbid ist die einzige SiC-Keramik, die ohne jegliche Zusätze von Additiven gesintert wird. Der Grünkörper besteht hierbei aus zwei SiC-Pulverfraktionen. Bei der groben Fraktion handelt es sich typischerweise um eine enge Korngrößenverteilung von ca. 100µm, bei der zweiten Fraktion um sehr viel feineres Pulver (bis in den Submikrometerbereich). Bei der Sinterung bei Temperaturen bis zu 2500°C wird die feine Kornstruktur aufgrund ihrer hohen Oberflächenenergie allmählich sublimiert und an den Kontaktstellen der groben Partikel resublimiert. Die groben Körner wachsen dadurch zusammen und bilden Hälse aus. Es verbleibt eine Porosität im Sinterkörper /Piwonski, 2005/.

Die hier verwendeten SiC-Monolithen der Firma Heimbach bestehen aus reaktionsgebundenem und rekristallisiertem Siliziumkarbid und bieten durch ihre feine Kanalstruktur (200cps) und große Porosität (s.Tab.4.1) ideale Bedingungen für die gestellten Anforderungen. Siliziumkarbid bildet an Luftatmosphäre eine geschlossene Siliziumdioxid-Schicht, die mit ihren hydrophilen Eigenschaften gute Voraussetzungen für die Immobilisierung mit den gewählten Mikroorganismen bietet.

4.1.2 Der Werkstoff Cordierit

Cordierit – ein in metamorphen Gesteinen vorkommendes Mineral – wird künstlich durch Brennen von einem Teil Ton und zwei Teilen Speckstein (Talk) hergestellt, oft gibt man auch noch Al₂O₃-haltige Rohstoffe hinzu. Die Zusammensetzung des Cordierits ergibt sich aus dem Dreistoffsystem MgO, Al₂O₃ und SiO₂. Von den vielen Modifikationen ist nur die thermisch stabile α-Modifikation von Bedeutung. Sie hat die Mol-Zusammensetzung 2MgO-2Al₂O₃-5SiO₂ und die Massenanteile 13,8% MgO, 34,8%

Al_2O_3 und 51,4% SiO_2 . Der Werkstoff zeichnet sich durch niedrige Wärmeleitfähigkeit, sehr niedrige Wärmeausdehnungskoeffizienten, verbunden mit hoher Temperaturwechselbeständigkeit und offener Porosität aus [Watzdorf, 1996/].

Der in dieser Arbeit entscheidende Unterschied zum verwendeten Siliziumcarbid liegt in der Kanalgeometrie (400 statt 200 μm). Da der Werkstoff zu einem großen Teil aus Siliziumdioxid besteht, finden die Mikroorganismen auch auf diesem Werkstoff gute Bedingungen für eine Ansiedlung im Biomedium.

4.1.3 REM- und EDX-Untersuchungen der besiedelten Keramiken

Die rasterelektronenmikroskopischen (REM-) Aufnahmen und Elementanalysen (EDX) wurden im Rahmen dieser Arbeit nach einer Trocknung und Kohlenstoff-Bedampfung der immobilisierten Keramikproben in einem Jeol JSM 6400 mit EDX-Analyse EDAX Genesis 4000 mit S-UHTW-Si-(Li)-Detektor „Sapphire“ untersucht. Dabei erwiesen sich Beschleunigungsspannungen von 7 kV als vorteilhaft.

REM-Aufnahmen

Die in dieser Arbeit verwendeten Werkstoffe können außer durch Porositätsmessungen auch mit dem Rasterelektronenmikroskop charakterisiert werden. Bei einer mehr als 200-fachen Vergrößerung mit dem Sekundärelektronendetektor lassen sich außerdem Bilder erstellen, auf denen die lokale Verteilung und Dichte der immobilisierten Mikroorganismen gut zu erkennen ist. Mit dem Rasterelektronenmikroskop können neben Sekundärelektronenbildern, die die eigentliche Topographie ähnlich wie durch einem Lichtstrahl darstellen, auch Rückstreuelektronenbilder erzeugt werden. Mit den Rückstreuelektronenstrahlen werden Elementkontraste sichtbar gemacht, da schwere Elemente heller erscheinen.

EDX-Untersuchungen

Um die örtliche Verteilung der Mikroorganismen auf der Keramikoberfläche in Abhängigkeit von strömungstechnischen Parametern und Oberflächeneigenschaften der Keramik besser charakterisieren zu können, werden EDX-Mappings (s.Kap.3.2.1), welche die Verteilung einzelner Elemente nachweisen können, durchgeführt und verglichen. Dazu wurden Elemente bestimmt, die in den Mikroorganismen vorkommen,

aber auf der Keramikoberfläche kaum oder günstigstenfalls gar nicht vorhanden sind. Nach einer Behandlung der Proben mit einer 0,9Gew.% Kochsalzlösung (NaCl) und einer anschließend Trocknung lassen sich die Mikroorganismen nachweisen. Das Kochsalz lagert sich an die Mikroorganismen an und kann somit zur Lokalisierung verwendet werden.

4.2 Hydrodynamischer Versuchsreaktor

4.2.1 Auslegung eines Versuchsreaktors für hydrodynamische Messungen

Gas-Flüssig-Stofftransfer und Leistungseintrag sind die maßgeblichen Größen bei der Bestimmung der optimalen hydrodynamischen Parameter und der maximal immobilisierbaren Biomasse. Der hier verwendete neuartige hydrodynamische Screeningreaktor wurde entwickelt, um die Auswirkungen von Betriebseinflüssen wie Volumenstrom der Luft und der Flüssigkeit und Blasengröße auf den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten ohne Einfluss von Mikroorganismen untersuchen zu können. Er unterscheidet sich von allen in der Literatur bekannten G-L-Systemen, lässt sich aber einordnen in die Gruppe der monolithischen Reaktoren bzw. der Schlaufenreaktoren mit äußerem Umlauf (s.Kap.3.1.2).

Die Abbildung 4.2 zeigt den kompletten Versuchsstand mit angeschlossener Abgasanalytik. Eine fotografische Aufnahme und eine Skizze des Reaktors ist in Abbildung 4.3 zu sehen. Genaue Konstruktionszeichnungen des am IKKM für diese Arbeit konstruierten und gebauten Reaktors können am Institut für Keramischen Komponenten im Maschinenbau der RWTH Aachen eingesehen werden. Ein bauähnlicher Reaktor für biologische Versuche mit Mikroorganismen, der der Konstruktion des Screeningreaktors zugrunde liegt, wurde von /Schneider, 2003/ entwickelt und von /Seletzky, 2007/ untersucht.

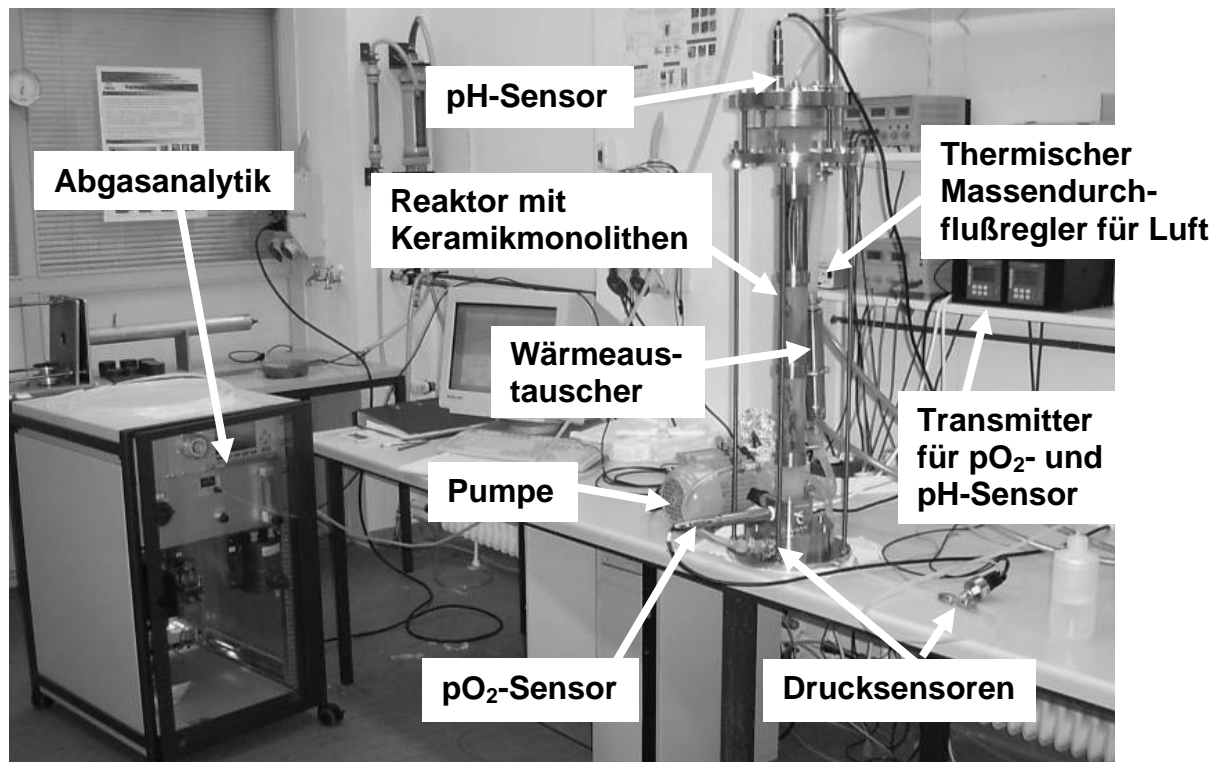


Abb.4.2: Versuchsaufbau mit Abgasanalytik

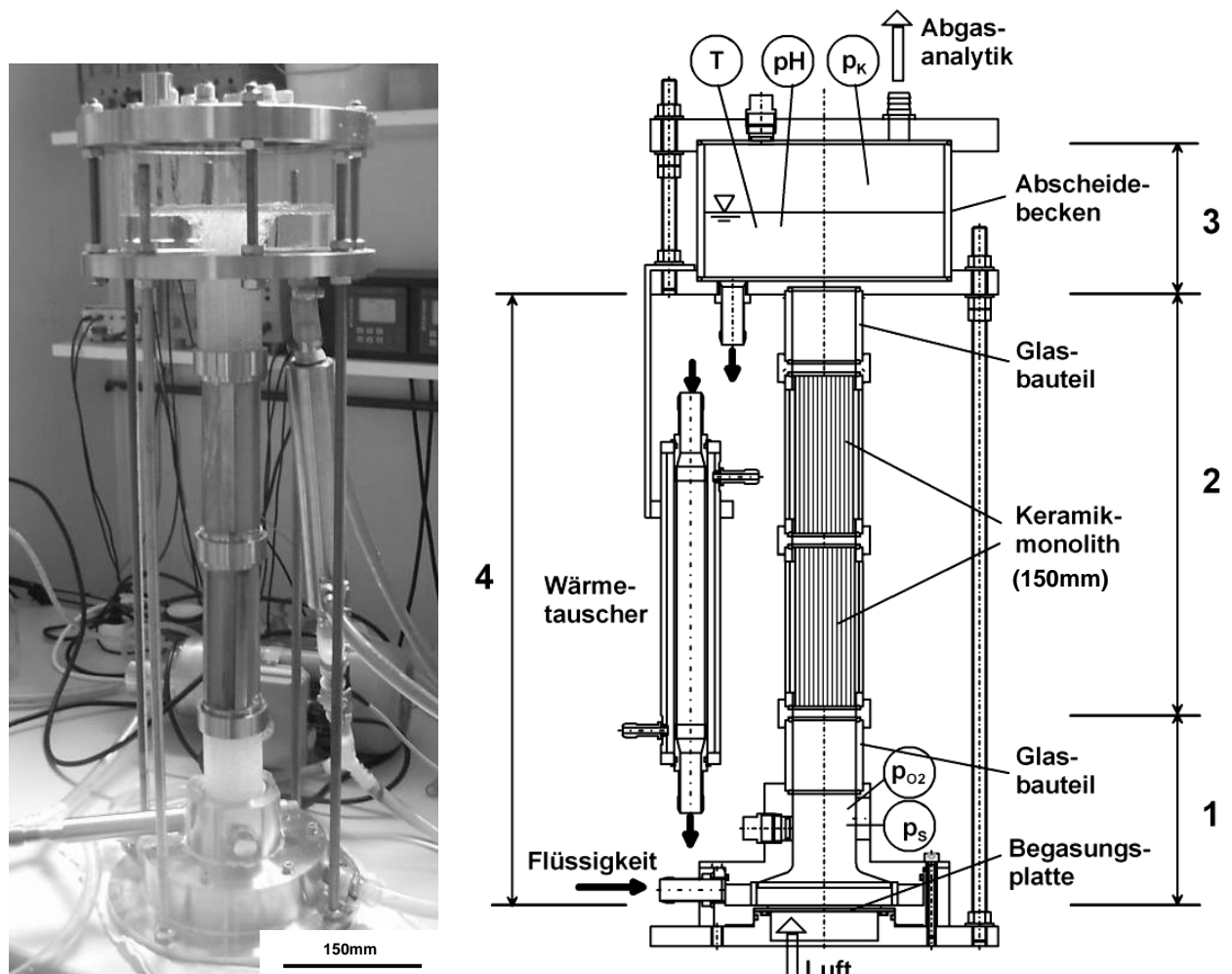


Abb.4.3: Hydrodynamischer Screeningreaktor (Fotografie und Skizze)

Bei dem Screeningreaktor handelt es sich um einen Monolithischen Schlaufenreaktor, bei dem die Flüssigkeitszirkulation durch Zahnrادpumpen erreicht wird. Der Reaktor kann in vier Bereiche unterteilt werden, die sich durch die Art der Strömung unterscheiden:

- 1 Einströmbereich mit Glasbauteil ($d_{\text{innen}}=45\text{mm}$) unterhalb des Keramikmonolithen (35% des Gesamtflüssigkeitsvolumens),
- 2 Bereich mit Keramikmonolithen und Glasbauteil ($d_{\text{innen}}=45\text{mm}$) vor dem Abscheidebecken (Aufströmer, 22% des Gesamtflüssigkeitsvolumens),
- 3 Entgasungskopf bzw. Abscheidebecken (24% des Gesamtflüssigkeitsvolumens) und
- 4 Rückstrombereich (Downcomer) (19% des Gesamtflüssigkeitsvolumens).

In den ersten beiden Bereichen (Riser) findet eine Aufwärtsströmung des Zweiphasengemisches statt. Im Abscheidebecken wird die Flüssigkeitsströmung um 180° umgelenkt und durch die zusätzlich etwas längere Verweilzeit in diesem Bereich mit dem größten Querschnitt werden die Gasblasen aus dem System abgeschieden. Der Rückstrombereich ist dadurch gekennzeichnet, dass in ihm das nahezu blasenfreie Medium in einer abwärtsgerichteten Strömung zum Einströmbereich zurückgeführt wird.

Die Funktionsweise des Reaktors ist relativ einfach. Luft wird unten in den Reaktor geleitet und durchströmt als erstes eine poröse Begasungsplatte. Durch Variation der Porendurchmesser der Begasungsplatte können verschiedene Blasengrößen generiert werden. Oberhalb der Begasungsplatte vermischen sich die Blasen mit der aus dem Rücklauf einströmenden Flüssigkeit (Druck Luft > Druck Flüssigkeit). Die Blasen durchströmen nun zusammen mit der Versuchsflüssigkeit die Kanäle der hintereinander geschalteten Wabenkörper. Zwischen der porösen Begasungsplatte und dem untersten Monolithen wird ein ausreichender Abstand eingehalten, damit sich die Blasen gleichmäßig in der Versuchsflüssigkeit verteilen können. Nach dem Durchströmen der Keramikmonolithen gelangt das Zweiphasengemisch in den Entgasungskopf.

Das Strömungsverhalten im Entgasungskopf unterscheidet sich deutlich von den anderen Bereichen. Das Verhalten in der Entgasungszone wird in erster Näherung als ideal durchmischt angenommen. Für die Flüssigphase ist diese Annahme wegen der starken Verwirbelungen sicher zutreffend. Der Entgasungskopf hat die Funktion, durch eine Erweiterung des Strömungsquerschnitts und der damit verbundenen Verlangsamung der Strömung ein möglichst vollständiges Ausgasen der Blasen zu

ermöglichen. Das tatsächliche Strömungsverhalten in der Entgasungszone und das damit verbundene Entgasungs- und Rezirkulationsverhalten der Blasen ist komplex und hängt unter anderem von der Geometrie des Kopfes, dem Volumenstrom der Flüssigkeit sowie der Blasengrößenverteilung ab. Für die Flüssigphase ist wegen der starken Verwirbelungen beim Eintritt der Strömung in den erweiterten Kopf in der Regel die Annahme der idealen Durchmischung zutreffend. Die Blasen entgasen aus dem Reaktor mit höherer Wahrscheinlichkeit, wenn die mittlere Verweilzeit der Blasen im Kopf deutlich größer ist als die zum Aufstieg durch die Kopfhöhe benötigte Zeit. Ist die Verweilzeit der Blasen dagegen sehr viel kleiner als die Aufstiegszeit, so werden die Blasen mit größerer Wahrscheinlichkeit wieder in die Schlaufe eingesaugt und rezirkuliert (s.Kap.4.2.3).

Das aus dem Entgasungskopf abgeschiedene Gas wird in eine Abgasanalytik geleitet, die die Sauerstoff-Konzentration der Abluft misst. Die Versuchsflüssigkeit wird im Rückstrombereich durch eine oder zwei parallel geschaltete Zahnradschleiben kontinuierlich im Kreis gepumpt. Durch die Pumpen wird eine hohe Geschwindigkeit der Flüssigkeit erreicht (maximaler Flüssigkeitsvolumenstrom: ca.21,6l/min). Im Kreisprozess befindet sich ein Wärmetauscher, um die Temperatur im Reaktor konstant zu halten. Während des gesamten Prozesses werden über verschiedene Sonden der Druck im Reaktorsockel und in der Luftleitung, die Volumenströme der Luft und der Flüssigkeit, die Gelöstsauerstoffkonzentration und der pH-Wert gemessen (s.Abb.4.3).

Der Reaktor hat die Untersuchung der Keramik als Schwerpunkt und gewährleistet den schnellen Umbau und den Einbau verschiedener Monolithen. Er ist ein Baukastensystem von Monolithen und Glasrohren, die je nach Bedarf, durch Metallringe verbunden werden können. Die Abdichtung erfolgt über wegbeaufschlagte O-Ringe, die einfach zu handhaben sind und die Anforderungen der Messreihen voll erfüllen. Abbildung 4.4 zeigt die Teile des Baukastensystems und Abbildung 4.5 die beiden untersuchten Keramikmonolitharten. Im Rahmen dieser Arbeit wurden bis zu vier Monolithen hintereinander geschaltet.

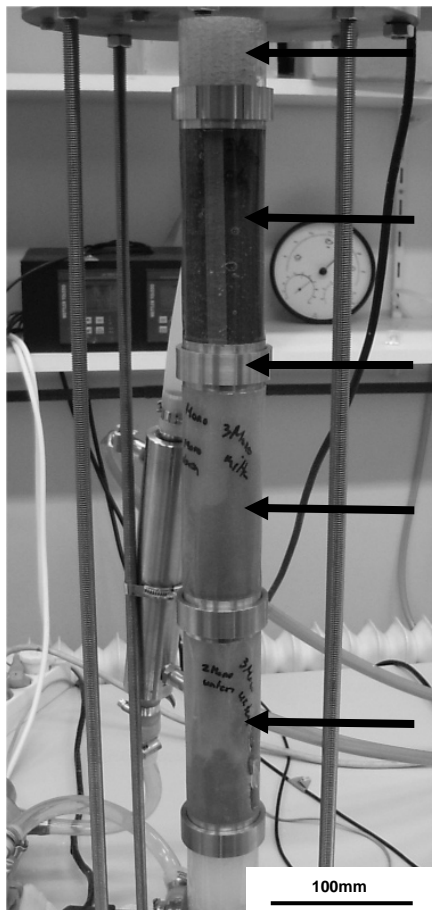


Abb.4.4:
Monolithenbaukastensystem

Glasbauteil
Keramikmonolith
Metallring
Keramikmonolith mit
Dichtungsmasse
umhüllt
Keramikmonolith

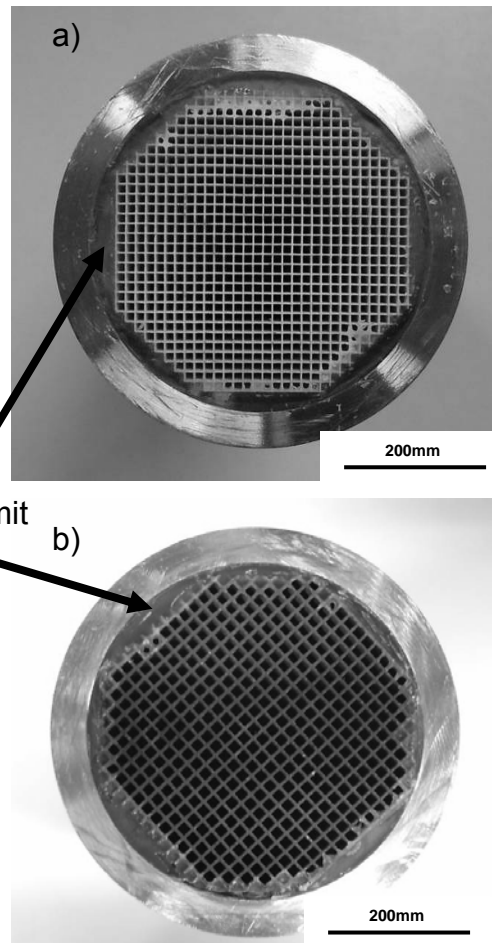


Abb.4.5: Draufsicht auf einen
a) Cordierit-Monolithen und
b) SiC-Monolithen
(s. Tabelle 4.1)

Zahnradpumpen

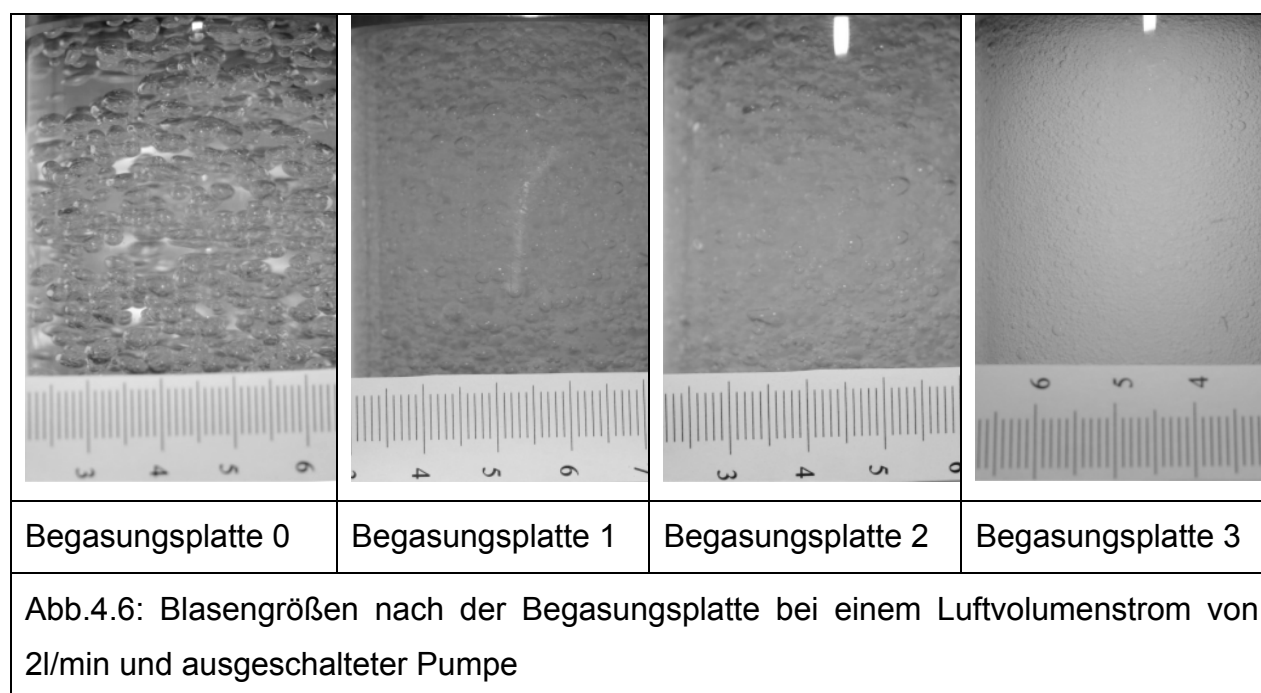
Bei den verwendeten Pumpen handelt es sich um Zahnradpumpen der Firma Scherzinger (Type 8200 WM020R). Der Reaktor wird mit einer oder zwei parallelgeschalteten Zahnradpumpen betrieben, so dass Volumenströme der Flüssigkeit bis 21,6l/min möglich sind. Zum Betrieb des Reaktors im Airliftbereich können die Pumpen deinstalliert werden. Ein Schlauch verbindet den Reaktorkopf dann direkt mit der Basis. Das Ausschalten der Pumpen genügt hierbei nicht, da die Bauweise der Pumpen keine Strömung durchlässt, wenn sie ausgeschaltet sind. Im Airliftbetrieb wird ein maximaler Flüssigkeitsvolumenstrom von 3l/min erreicht. Dieser Volumenstrom der Flüssigkeit entspricht einem Betrieb des Reaktors mit zwei Pumpen bei 20% der Maximalleistung.

Begasungsplatten

Die von einer externen Druckleitung eingebrachte Luft durchströmt poröse Filterplatten (Glasfilter der Firma ROBU) mit unterschiedlichen Porendurchmessern. Die auf der Oberfläche der Platten erzeugten Blasen werden von dem Flüssigkeitsstrom mitgerissen und steigen im Reaktor auf. Der gerechnete mittlere Blasendurchmesser in Wasser ist der Tabelle 4.2 zu entnehmen. In Abbildung 4.6 sind Aufnahmen der Blasengrößen nach der Begasungsplatte bei einem Luftvolumenstrom von 2l/min und ausgeschalteter Pumpe dargestellt. Die in dieser Arbeit angegebenen Primärblasengrößen werden nach Gleichung 3.27 abgeschätzt. Die Angaben zu Porosität und mittlerem Porendurchmesser werden mit einem Quecksilberdruckporosimeter bestimmt (s.Kap.3.2.1). Eine ausführliche photographische Darstellung der Blasengrößen im Reaktor steht im Anhang.

Tab.4.2: Begasungsplatten zur Blasenenerzeugung im Reaktor

Begasungsplatte	0	1	2	3
Porenbereich [μm]	160–250	100–160	40–100	16–40
Porosität (gem.) [%]	25	32	32	32
mittl. Porendurchmesser [μm]	210	145	85	28
gerechnete Blasengröße in Wasser nach Gl.3.27 [mm]	2,1	1,7	1,4	1,1



4.2.2 Messtechnik der Versuchsanlage

Zur Messtechnik gehören zwei Drucksensoren (Greisinger 891.13.520 und WIKA ECO-1), eine Sonde zur Ermittlung des Sauerstoffanteils im Stoffsystem (METTLER TOLEDO InPro 6800) sowie eine pH-Sonde (METTLER TOLEDO InPro 3200). Die Drucksensoren befinden sich unterhalb des Keramikmonolithen und im Zulaufschlauch der Luftzufuhr. Die pO_2 -Sonde befindet sich ebenfalls in der Bodenplatte und die pH-Sonde wird durch den Deckel des Reaktors in das Stoffsystem im Abscheidebecken eingesteckt. Alle Sonden benötigen Stromnetzteile (CONRAD PS2403D) und liefern ihre Daten an den Messrechner. Die pH- und O_2 -Sonde benötigen zusätzliche Transmitter (METTLER TOLEDO pH2050e und O_2 4050e). Die Abdeckplatte des Entgasungskopfes ist mit allen für die Sonden notwendigen Bohrungen vorgesehen, so dass alle Sonden auch im Entgasungskopf eingesetzt werden können.

Kühlsystem

Das Kühlsystem besteht aus einem selbstgefertigten Wärmetauscher, der zwischen Reservoir und Pumpe eingebaut ist, sowie einem Kryomaten (HAAKE Typ 001-0385), der eine einstellbare konstante Temperatur liefert. Während der Versuchsreihen dieser Arbeit wird immer 20°C eingestellt, was einer Temperatur im Reaktor bei eingeschalteten Pumpen von 23°C entspricht.

Messrechner

Bei dem Messrechner handelt es sich um einen Arbeitsplatzrechner mit eingebauter Messkarte (National Instruments 6052E).

Abgasanalytik

Die Abgasanalytik der Firma Emerson (Typ 15620/00/207) ermittelt die prozentualen Anteile von Sauerstoff im Messgas. Das Messgas wird am Kopf des Reaktors über einen Schlauch abgezogen und in einer Wasserfalle von Restfeuchte getrennt.

Thermischer Massendurchflußregler für den Luftstrom

Um den Luftstrom regeln zu können, ist ein thermischer Massendurchflußregler der Firma Brooks (Typ 5850TR) installiert, der über ein Potentiometer von Hand stufenlos einstellbar ist.

4.2.3 Charakterisierung des Reaktors

4.2.3.1 Strömungsverhältnisse im Reaktor

Die Strömungsbedingungen in den verschiedenen Teilen des Reaktors werden zur Interpretation der Versuchsergebnisse zur Bestimmung des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten charakterisiert. Dazu wird die Reynoldszahl über dem Luft- sowie dem Flüssigkeitsvolumenstrom aufgetragen. Anschließend erfolgt die Unterteilung in den laminaren ($Re \leq 2100$), den transitionellen (Übergangsbereich, $2100 < Re \leq 4000$) und den turbulenten ($Re > 4000$) Bereich /Schröder, 2004/. Bei der Berechnung der Reynoldszahl nach Gleichung 4.1 liegt die kinematische Zähigkeit von Wasser ($\nu_{\text{Wasser}, 20^\circ\text{C}} = 1,004 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$) zugrunde:

$$Re = \frac{u_{\text{Fl}} \cdot d}{\nu} \quad (4.1)$$

mit der Leerrohrgeschwindigkeit der Flüssigkeit u_{Fl} und dem hydrodynamischen Durchmesser d des jeweiligen Reaktorteils.

4.2.3.2 Mischzeitversuche

Am Institut für Bioverfahrenstechnik der RWTH Aachen wurden in einem baugleichen biologischen Screeningreaktor Mischversuche zur Charakterisierung des Reaktorverhaltens durchgeführt. Die Bestimmung der Mischzeit erfolgt mittels einer visuellen Beobachtung einer Entfärbereaktion /Liepe, 1988/. Hierbei können Gebiete mit längsten Mischzeiten leicht lokalisiert werden. Als Farbindikator wird Phenolphthalein in einer Konzentration von 0,02g/l verwendet. Im sauren bis neutralen Bereich liegt Phenolphthalein farblos in der Lösung vor. Bei Änderung des pH Werts in den basischen Bereich (8,4 bis 10) findet ein Farbumschlag nach rosa statt. Der Farbumschlag kann durch Zugabe einer Säure rückgängig gemacht werden.

Zur Durchführung der Versuche wird der Reaktor mit einer Natrium-Phosphat Lösung ($\text{NaH}_2\text{PO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) in einer Konzentration von 17g/l und einem pH-Wert von 8,4 gefüllt. Anschließend wird ein Puls von 1ml 5-molarem NaOH in festgelegte Stellen des Reaktors gespritzt und die Mischzeiten der einzelnen Reaktorbereiche bestimmt. Die genaue Versuchsdurchführung wird in /Mehnert, 2005/ beschrieben.

4.2.3.3 Bestimmung des relativen Gasgehalts

Zur Bestimmung des relativen Gasgehaltes wird das gleiche Stoffsystem wie zur Ermittlung der k_{La} -Werte (s.Kap.4.3.1) verwendet. Der Gasgehalt wird in Abhängigkeit von dem Volumenstrom der Luft und der Flüssigkeit gemessen. Die Temperatur wird bei konstant 23°C gehalten und kontrolliert, da sie einen gewissen Einfluss auf die Viskosität der Flüssigkeit hat.

Bei den Gasgehaltsmessungen wird der Reaktor ohne Deckel betrieben, das heißt das Abscheidebecken ist oben offen. Ein mit Versuchslösung vollständig gefüllter Messzylinder wird mit der Öffnung nach unten so im Entgasungskopf positioniert, dass er die Öffnung des Aufströmers zum Entgasungskopf nicht überlappt. Der Reaktor wird dann auf einen Betriebspunkt (Luft- und Flüssigkeitsvolumenstrom) eingestellt, und bei diesem 2 Minuten lang betrieben. Es kann davon ausgegangen werden, dass sich binnen dieser Zeit ein Gleichgewicht zwischen ein- und ausströmender Luft einstellt. Nun werden die Luftzufuhr und die Flüssigkeitsumwälzung mittels eines Schalters schlagartig unterbrochen und gleichzeitig die Öffnung des Messzylinders über den Aufströmer bewegt. Die nun austretende Luft verdrängt einen Teil der Flüssigkeit im Zylinder. Das verdrängte Volumen kann dann über die Skala des Messzylinders abgelesen werden. Jeder Messwert wird dreifach aufgenommen, um eventuelle Messfehler auszuschließen bzw. zu minimieren. Die tatsächliche Streuung der Ergebnisse lag bei unter 5%.

4.2.3.4 Bestimmung des spezifischen Leistungseintrags

Der spezifische Gesamtleistungseintrag setzt sich aus dem Anteil der Pumpen und dem Anteil durch Einblasen der Luft in den Reaktor zusammen. Die beiden Teilleistungseinträge sind von den Parametern wie Luft- und Flüssigkeitsvolumenstrom, Monolithenanzahl und -Länge abhängig. Im Rahmen dieser Arbeit wird der Einfluss dieser Parameter auf den Leistungseintrag beschrieben. Neben den Einflüssen auf den Gesamtleistungseintrag wird auch die Abhängigkeit des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten k_{La} von dem spezifischen Leistungseintrag des Reaktors näher untersucht.

4.3 Ermittlung des volumetrischen Stoffübergangs

4.3.1 0,5 molares Sulfitssystem

Bei dem verwendeten Modellsystem zur Simulation der Atmung von Mikroorganismen handelt es sich um ein 0,5 molares Sulfitssystem, bestehend aus vollentionisiertem Wasser, Natriumsulfit, einem Phosphatpuffer und Kobaltsulfat als Katalysator. Das Gemisch besteht in allen Versuchen zur hydrodynamischen Auswertung aus 54ml Phosphatpuffer, 2250ml vollentionisiertem Wasser, 2,25ml Kobaltsulfat und 177g Natriumsulfit.

Das vollentionisiertem Wasser wird über eine Entionisierkartusche aus normalem Leitungswasser gewonnen. Das Natriumsulfit wurde von der Firma ROTH bezogen (Nr.8637). Kobaltsulfat und Phosphatpuffer müssen in einem Vorschritt hergestellt werden.

Um den Katalysator aus Kobaltsulfat zu erhalten, werden 140,6mg Cobald(II)sulfat-Heptahydrat (CoSO_4) der Firma Fluka (Nr.60860) mit VE-Wasser auf 100ml aufgefüllt. Dies ergibt eine Stammlösung der Konzentration $5 \cdot 10^{-3} \text{ mol/l}$. Die Stammlösung wird dann mit weiteren 100ml VE-Wasser auf $5 \cdot 10^{-5} \text{ mol/l}$ verdünnt. Die Standardmenge des Kobaltkatalysators im 0,5 molaren Sulfitssystem ist bei allen Versuchen zur Ermittlung des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $5 \cdot 10^{-5} \text{ mol/l}$. Zur Bestimmung der Grenzen der Katalysatorkonzentration werden unterschiedliche Katalysatormengen zu dem Sulfitssystem hinzugegeben. Die zugegebene Katalysatormenge liegt zwischen $1 \cdot 10^{-5}$ und $5 \cdot 10^{-2} \text{ mol/l}$.

Der Phosphatpuffer ist ein Gemisch aus Dinatriumhydrogenphosphat (Na_2HPO_4)–Lösung und Natriumdihydrogenphosphat (NaH_2PO_4)–Lösung. Die Na_2HPO_4 –Lösung entsteht durch Auflösen von 35,5g Na_2HPO_4 in 450ml VE-Wasser. Dann wird die Lösung auf 500ml aufgefüllt. Die Na_2HPO_4 –Lösung entsteht aus 3,5g NaH_2PO_4 und 45ml VE-Wasser, die nach dem Lösen auf 50ml aufgefüllt wird. Anschließend wird die Na_2HPO_4 –Lösung so lange mit Na_2HPO_4 –Lösung aufgefüllt bis der pH-Wert 8 ist.

Das Natriumsulfit wird unter ständiger Stickstoffbegasung in dem entionisierten Wasser vollständig gelöst. Durch den Stickstoff wird ein frühzeitiges Einsetzen der Oxidationsreaktion verhindert. Nach der Zugabe von Katalysator und Phosphatpuffer wird die gewünschte Menge des Stoffsystems, hier 1900ml, in den Reaktor eingefüllt.

Der Reaktor wird zu diesem Zeitpunkt ebenfalls mit Stickstoff begast. Nun wird der pH-Wert der Lösung durch sukzessives Zugeben geringer Mengen verdünnter Schwefelsäure auf den Wert 8,0 eingestellt. Die Kontrolle erfolgt über die in die Lösung eintauchende pH-Sonde. Durch den zu Versuchsbeginn stets gleichen pH-Wert werden gleichbleibende Reaktionsbedingungen sichergestellt.

Die Messwertaufnahme wird gestartet, wenn sich das Stoffsystem im Reaktor befindet und die Messtechnik einsatzbereit ist. Die Einlaufzeit des Systems (bis sich ein konstanter volumetrischer Stoffübergangskoeffizient einstellt) ist abhängig von der Blasengröße und den Volumenströmen. Diese „Einlaufphase“ wird messtechnisch erfasst und für jeden Versuch dokumentiert, um eventuelle Unregelmässigkeiten ausschließen bzw. detektieren zu können. Induktionseffekte beim Kobaltkatalysator werden von /U.Maier, 2002/ und /Ruchti, 1985/ als Einfluss auf die Einlaufzeit beschrieben. Vor dem Beginn der eigentlichen Messung wird der Reaktor deshalb ungefähr 30 Minuten bei geringem Luft- und Flüssigkeitsvolumenstrom betrieben. Dadurch kann das Vorherrschen konstanter Bedingungen bei der Messung sichergestellt werden.

Die Dauer eines Versuches ist theoretisch durch den Zeitpunkt begrenzt, an dem kein Sulfit mehr im Reaktor vorliegt und/oder die Sulfitreaktion zum Erliegen kommt. Das Ende des Versuches zeigt sich durch einen schnellen Abfall des pH-Werts auf unter 4 (s.Abb.4.7). Gleichzeitig steigt die Konzentration des gelösten Sauerstoffs in der flüssigen Phase stark an und erreicht die Sättigungslinie. In den meisten Versuchen kommt es allerdings nicht zu diesem Punkt, weil die Messreihe vorher beendet ist.

In Abbildung 4.7 ist ein typischer Verlauf eines „konstanten Versuchs“ aufgezeigt. Bei diesem Versuch wurden alle Parameter konstant gehalten und der $k_L a$ Wert über der Zeit aufgetragen. In der Abbildung ist außerdem der Verlauf des pH Werts eingetragen. Aus dem Verlauf der beiden Kurven ergibt sich der eigentliche Messbereich eines Versuchs. Die Einlaufzeit und die Zeit, wenn der pH Wert unter 7,5 fällt, werden nicht betrachtet. Im Messbereich ist der $k_L a$ Wert konstant.

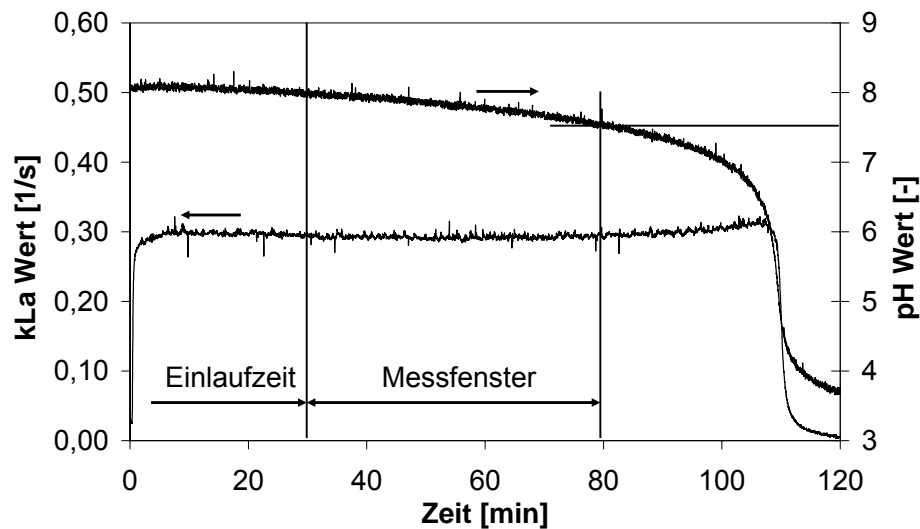


Abb.4.7: Versuchsverlauf bei konstanten Bedingungen

4.3.2 Variation der Volumenströme

Volumenstrom der Luft (Begasungsrate)

Zur Ermittlung der Abhängigkeit einzelner Parameter von dem Luftvolumenstrom bzw. der Begasungsrate wurde innerhalb eines Versuchs der Luftvolumenstrom in vorgegebenen Stufen erhöht und jeweils für fünf Minuten konstant gehalten (Abb.4.8). Aus denen während dieser Zeitspanne konstanten Einstellwerte für den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten k_{La} wurde der jeweilige Durchschnittswert gebildet und in die Auswertung übernommen.

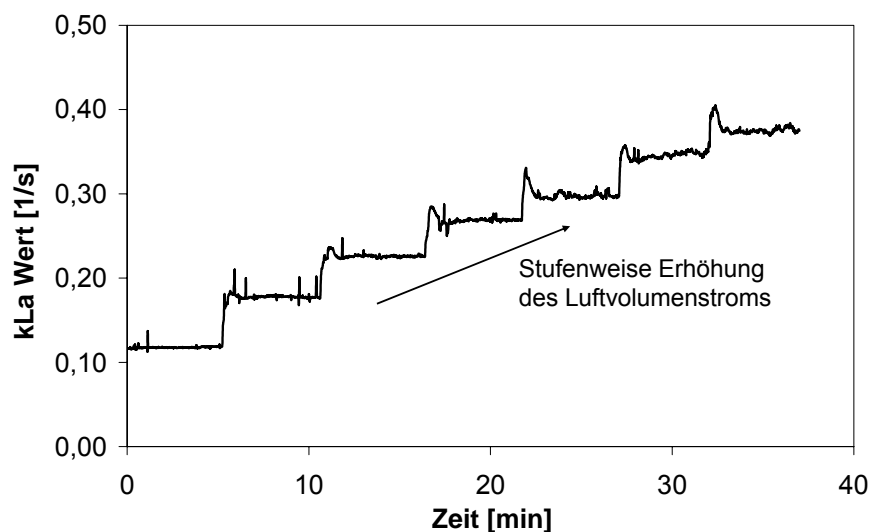


Abb.4.8: Versuchsverlauf bei stufenweiser Änderung des Luftvolumenstroms

Volumenstrom der Flüssigkeit

Der Volumenstrom der Flüssigkeit kann über Leistungsregler an den beiden Zahnradpumpen bis zu einem Maximalwert von ca. 21,6 l/min eingestellt werden. Zur Bestimmung des Einflusses wird jeweils der Luftvolumenstrom über der Versuchsdauer konstant gehalten und der Volumenstrom der Flüssigkeit über die Leistung der Pumpen variiert. Der Volumenstrom der Flüssigkeit wurde genau wie der der Luft stufenweise gesteigert und jeweils für minimal fünf Minuten konstant gehalten.

4.3.3 Einfluss des Luftvolumenstroms und der Blasengröße

Im Rahmen dieser Arbeit werden poröse Glasplatten mit unterschiedlichen Porengrößen zur Erzeugung unterschiedlicher Blasengrößen im Reaktor verwendet, siehe Tabelle 4.2. Für einige Versuchsreihen dieser Arbeit wurde ein neuartiges Nadelkissen nach Vorlage der Literatur von /Kawakami, 1989a/ entwickelt. Ziel des Nadelkissens ist es, jeder Kapillare im Monolithen einzeln Luft zuzuführen. Dadurch wird der Koaleszenzprozess, die Verschmelzung von mehreren kleinen Blasen zu einer größeren (s. Kap. 3.4.2), im Anströmbereich unterhalb der Monolithen reduziert und in den Kapillaren kann ein Taylorflow gewährleistet werden. Mit dem Nadelkissen kann außerdem der volumetrische Stoffübergang der keramischen Monolithe ohne den Einfluss des Einströmbereichs unterhalb der Monolithen untersucht werden. Die verwendeten Nadeln weisen allerdings mit einem Außendurchmesser von 0,8 mm und einem Innendurchmesser von 0,5 mm einen deutlich größeren Querschnitt als die Poren der Glasplatten auf (s. Abb. 4.9). Die mit Gleichung 3.27 nach /Siemes, 1954/ berechnete Blasengröße ergibt sich bei den Nadeln zu 2,8 mm.

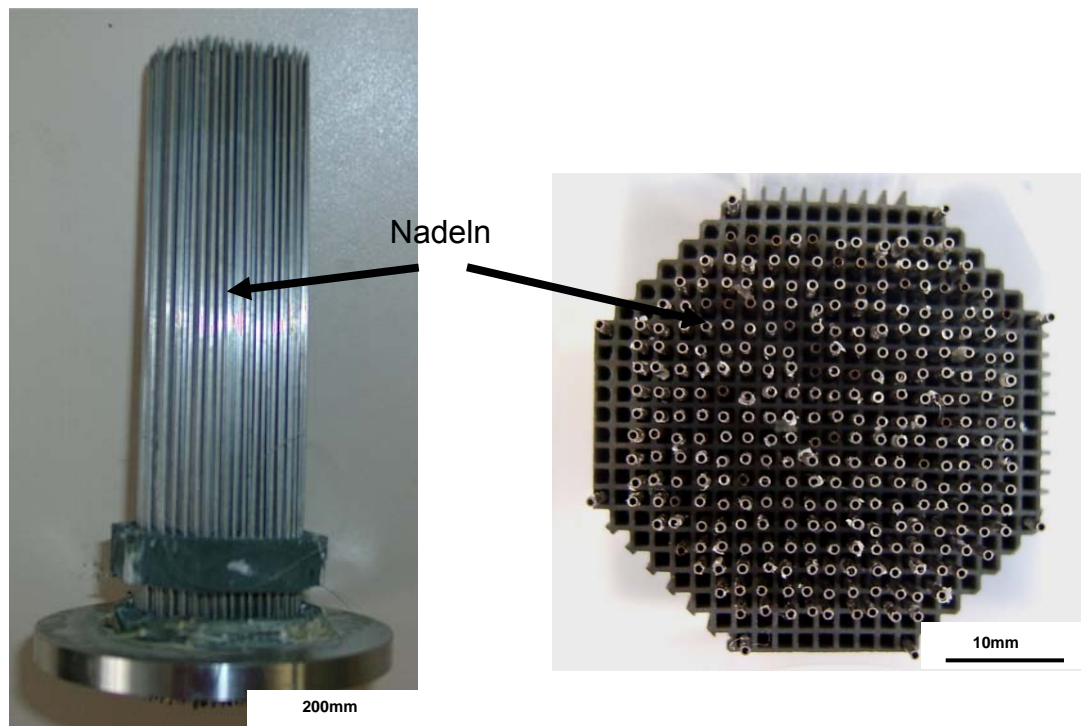


Abb.4.9: Nadelkissen, Seitenansicht und Draufsicht

In Abbildung 4.10 sind die beiden vorgestellten Begasungssysteme 'poröse Glasplatte' und 'Nadelkissen' qualitativ gegenübergestellt.

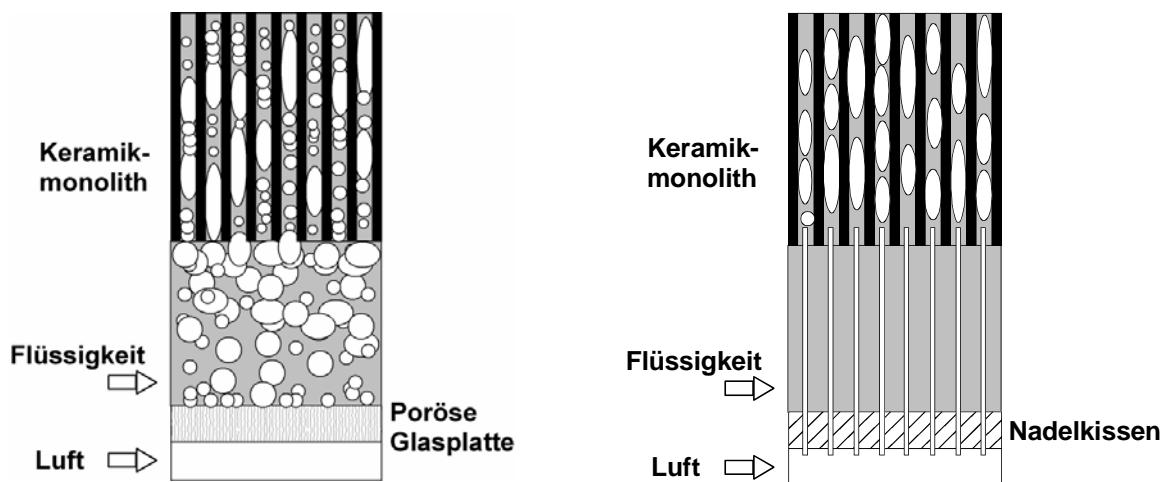


Abb.4.10: Vergleich der Begasungssysteme 'Poröse Glasplatte' und 'Nadelkissen'

4.3.4 Geometrievariation der Keramikmonolithen

Als Werkstoffe für die Wabenfilter wurde Siliziumkarbid und Cordierit verwendet (s.Kap.4.1). Neben ihrem Werkstoff unterscheiden sich die untersuchten Keramikmonolithen entscheidenderweise in ihren Abmessungen. Der Innendurchmesser und

die Wandstärke der Siliziumkarbid-Monolithen sind größer als bei den Cordierit-Monolithen. Daraus ergibt sich im Reaktor eine kleinere besiedelbare innere Oberfläche des SiC Monolithen. Bei gleichen angelegten Volumenströmen im Reaktor strömt das Zweiphasengemisch mit der gleichen Geschwindigkeit durch die SiC- wie durch die Cordierit-Kapillaren (Tab.4.1).

4.4 Übertragung des $k_L a$ Werts auf ein biologisches System

Zwischen dem $k_L a$ Wert einer Sulfitlösung und dem eines biologischen Kulturmedium gibt es Unterschiede infolge von unterschiedlichen physiko-chemischen Bedingungen, wie zum Beispiel Oberflächenspannung oder Ionenstärke. Im Rahmen dieser Arbeit werden deshalb Untersuchungen des Antischaummitteleinflusses auf den $k_L a$ Wert bei unterschiedlichen Luftvolumenströmen und Leistungseinträgen durchgeführt. Die Versuche dieser Arbeit werden außerdem mit $k_L a$ -Wert-Messungen in einem biologischen Medium verglichen.

4.4.1 Zugabe von oberflächenaktiven Substanzen

Durch die Zugabe von Antischaummitteln kann der $k_L a$ -Wertes beeinflusst werden. Schon bei Zugabe von geringen Konzentrationen wird in der Literatur von einer Senkung des $k_L a$ -Wertes gesprochen. /Morao, 1999/ beschreibt aber auch eine Erhöhung des $k_L a$ Werts bei entsprechend hoher Zugabe eines Antischaummittels. Die von ihm gefundene Zunahme wird im Rahmen dieser Messungen ebenfalls überprüft.

Es werden zwei verschiedene Antischaummittel verwendet: Polypropylenglykol P1'200 der Fluka Chemika und Plurafac LF 1300 der BASF. Beide Antischaummittel werden jeweils in Konzentration von 10ppm (10ml Antischaummittel bezogen auf 1m^3 Natriumsulfitlösung), 100ppm und 1000ppm zur Natriumsulfitlösung hinzugegeben und die $k_L a$ -Werte bei Luftvolumenströmen von ca. 2, 4 und 6l/min (entspricht Begasungsraten von 1, 3 und 5vvm) gemessen. Im biologischen System wurde das Antischaummittel Plurafac LF 1300 zwischen 1ppm und 1000ppm variiert.

4.4.2 Biologische Stofftransferversuche

Die chemischen Stofftransfer-Versuche dienen zur Bestimmung der maximalen Leistungsfähigkeit des hydrodynamischen Screeningreaktors. Zur Ermittlung der Übertragbarkeit werden $k_L a$ Messungen in einem baugleichen Reaktor mit einem biologischen Fermentationsmedium durchgeführt.

Versuche mit *Corynebacterium glutamicum*

Das verwendete *Corynebacterium glutamicum* (ATCC 13032) kann als typischer Repräsentant der aeroben Mikroorganismen angesehen werden. Das grampositive Bakterium wird seit 40 Jahren zur Produktion von Lysin verwendet. Fermentativ hergestelltes Lysin findet vor allem Anwendung als Zusatzstoff in der Schweinemast /Susenbeth, 1995/ sowie als Grundstoff in der Kosmetikindustrie /Leuchtenberger, 1996/. Es ist eines der wichtigsten Produktionsorganismen der Biotechnologie.

Zum Einfluss kommt ein Vollmedium, welches aufgrund seiner Ähnlichkeit zu gängigen Produktionsmedien gut zur wirtschaftlichen Validierung des Prozesses geeignet ist, und ein neu entwickeltes Mineralmedium mit Lactat als Kohlenstoffquelle. Das Lactat kann von *C. glutamicum* nur veratmet und nicht vergoren werden. Durch diesen Kunstgriff ist sichergestellt, dass die immobilisierten Biofilmdicken nicht durch anaerobe Stoffwechselaktivitäten beeinflusst werden.

Sämtliche Versuche zur Immobilisierung der Mikroorganismen wurden auf Keramikplättchen in Schüttelkolben und in Keramikmonolithen im eigentlichen Bioreaktor am Lehrstuhl für Bioverfahrenstechnik an der RWTH Aachen durchgeführt. Im Rahmen dieser Versuche wird auch der volumetrischen Stoffübergangskoeffizient $k_L a$ unter Fermentationsbedingungen mittels der stationären Methode bestimmt. Diese Methode basiert auf der Annahme, dass der Sauerstoffeintrag in das Medium gleich der Sauerstoffaufnahme der Mikroorganismen ist. Durch Messung der Sauerstoff- und Kohlendioxidkonzentration in der Abluft und des gelösten Sauerstoffpartialdrucks im Medium kann der $k_L a$ Wert berechnet werden. Die genaue Versuchsbeschreibung der biologischen Versuche kann /Mehnert, 2005/ entnommen werden.

5 ERGEBNISSE UND DISKUSSION

Im vorliegenden Kapitel werden die Ergebnisse der Arbeit vorgestellt und diskutiert. Kapitel 5.1 beginnt mit der Charakterisierung der untersuchten Keramiken, zu der auch die Auswertung der Immobilisierungsversuche in den porösen keramischen Strukturen gehört. Eine Charakterisierung des Strömungsreaktors zur Abschätzung des hydrodynamischen Verhaltens der einzelnen Reaktorbauteile und Einflussparameter ist Inhalt des Kapitels 5.2. Im hydrodynamischen Hauptteil der Arbeit (Kapitel 5.3) werden die Einflüsse von den Volumenströmen der Luft und der Flüssigkeit, von der Blasengröße und der Monolithenlänge und -anzahl auf den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten k_{La} beschrieben. Die Abhängigkeit des relativen Gasgehalts von den Volumenströmen und der Blasengröße und der Einfluss der relativen Gasgehalts auf den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten k_{La} wird in Kapitel 5.4 ermittelt. Außerdem wird auf die erzeugten Blasengrößen im Reaktor eingegangen. Zur Abschätzung eines optimalen Betriebspunktes des Reaktors wird in Kapitel 5.5 der Einfluss der obengenannten Parameter auf den Leistungseintrag bewertet. Kapitel 5.6 stellt die Ergebnisse der Antischaummittelversuche vor und Kapitel 5.7 schliesst den Ergebnisteil mit einer Zusammenfassung der biologischen Stofftransferuntersuchungen.

5.1 Charakterisierung der Werkstoffe

5.1.1 Keramische Monolithstrukturen

Die keramischen Monolithstrukturen der vorliegenden Untersuchungen bestehen aus Siliziumkarbid und Cordierit. Die beiden Werkstoffe unterscheiden sich neben ihrer Porosität, ihrem mittlerem Porendurchmesser, natürlich in ihrer chemischen Zusammensetzung und damit auch in der Form ihres Mikrogefüges. Die Abbildung 5.1 zeigt Querschnitte der beiden monolithischen Strukturen, die Abbildung 5.2 Längsschnitte durch die Kapillare der Monolithen. Die Aufnahmen wurden mit einer Stereolupe, die jeweiligen eingefügten Vergrößerungen mit einem Rasterelektronenmikroskop erstellt.

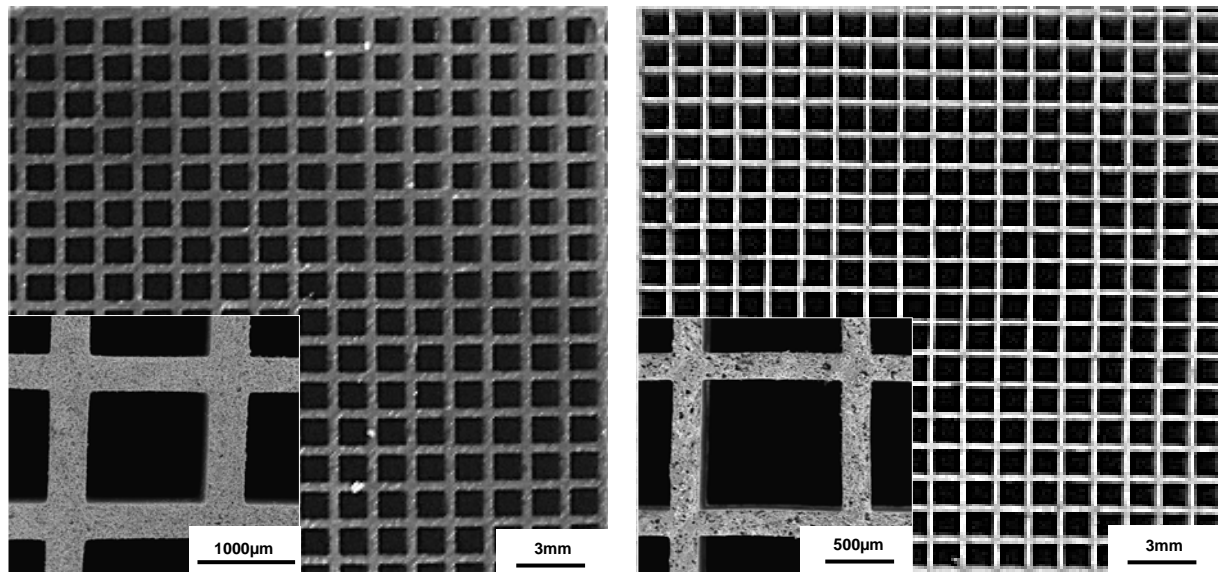


Abb.5.1: SiC (links) und Cordierit (rechts) Kanalstruktur, Querschnitt

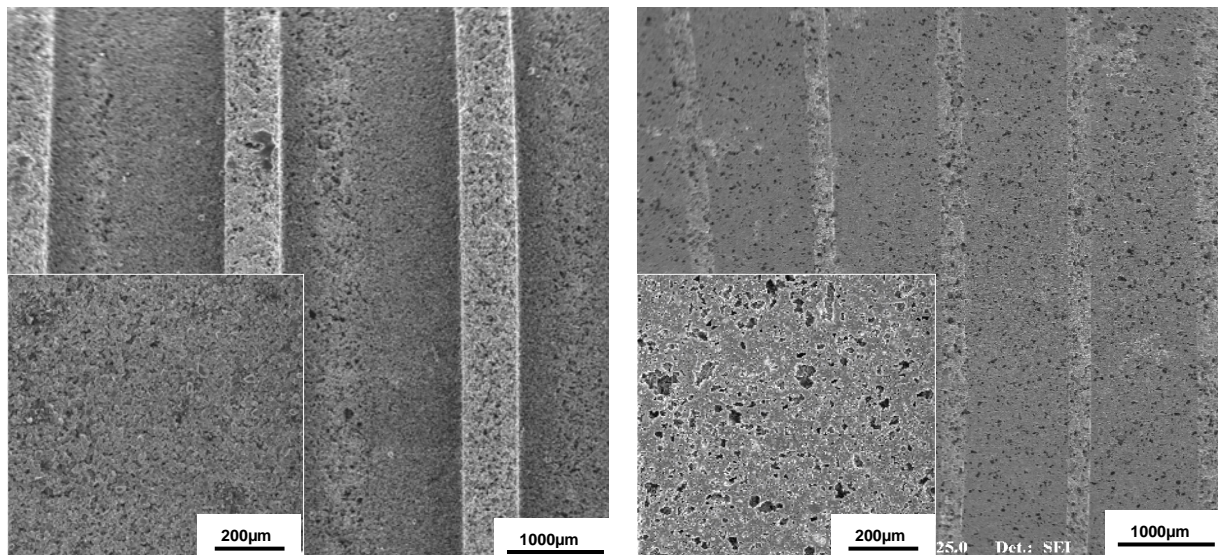


Abb.5.2: SiC (links) und Cordierit (rechts) Kanalstruktur, Längsschnitt

5.1.2 Nachweis des Biofilms

Nachweis mittels REM

Wie in Kapitel 3.2 beschrieben lässt sich eine unterschiedliche Besiedlungsdichte der Mikroorganismen auf den Keramiken mit dem Rasterelektronenmikroskop aufzeigen. Abbildung 5.3 zeigt eine SiC-Probe, die nur einen Tag lang besiedelt wurde, während sich die SiC-Probe in Abbildung 5.4 mehrere Tage im Kultivierungsmedium befunden hat. Die Besiedlung der Mikroorganismen beginnt in den strömungsgeschützten Zwickeln der Keramik und zieht sich von da aus über die gesamte Keramikoberfläche. In Abbildung 5.4 sind die extrapolymeren Substanzen, die die Mikroorganismen

zusammenhalten und mit denen die Mikroorganismen auf der Keramik 'festkleben', gut zu erkennen. Die Immobilisierung der Keramik wurde mit *C.glutamicum* durchgeführt (s.Kap.4.4.2). Die Mikroorganismen sind circa 1µm groß.

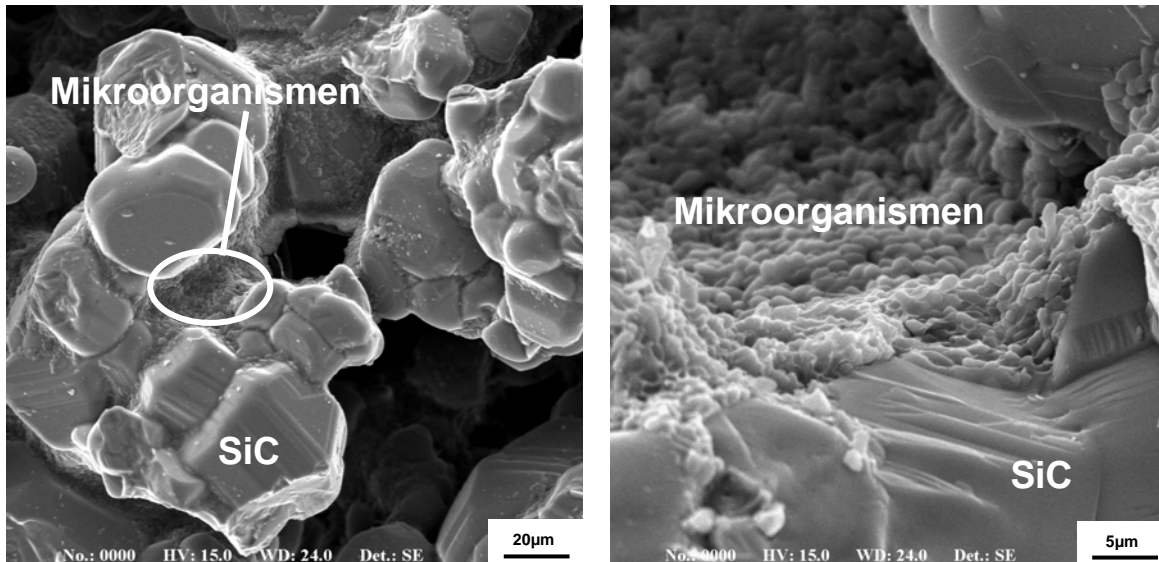


Abb.5.3: Beginn der Besiedlung einer SiC-Probe

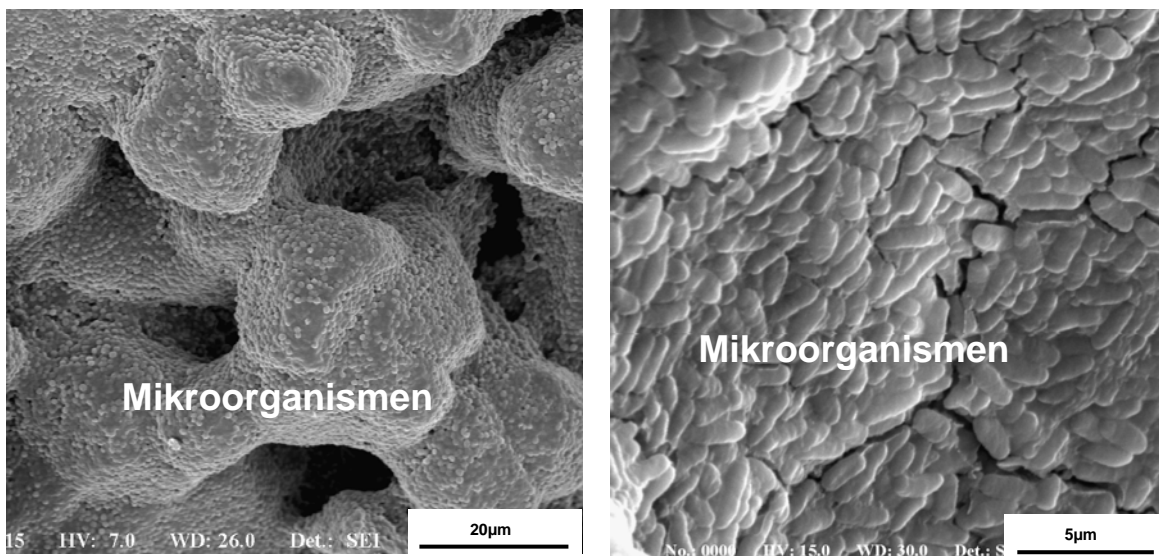


Abb.5.4: Fortgeschrittene Besiedlung einer SiC-Probe

In Abbildung 5.5 ist ein geschlossener Biofilm auf der Innenfläche einer SiC-Kapillare dargestellt. Die Risse sind durch die Trocknung der Probe nach der Immobilisierung entstanden. Die Trocknung an Luft im Trockenschrank bei bis zu 80°C erwies sich als geeignete Probenpräparation für das REM. Eine Vergrößerung des Biofilms zeigt Abbildung 5.6. Hier ist der mehrlagige Schichtaufbau der Mikroorganismen gut zu erkennen. Bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Immobilisierungsversuchen und Auswertungen mit dem Rasterelektronenmikroskop wurden maximale Schichten

von bis zu 30µm der Mikroorganismen beobachtet. Hierbei ist zu beachten, dass die Schichten nur im getrockneten Zustand im REM untersucht werden können. Ein lebender Biofilm während der Anwendung ist durch Einlagerung von flüssigen Stoffen mit Sicherheit dicker.

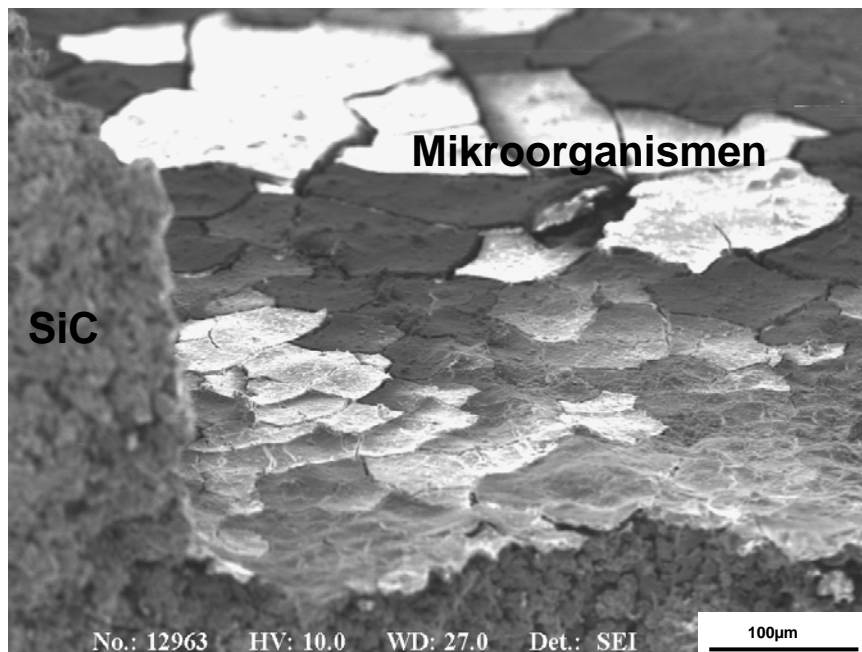


Abb.5.5: Immobilisierter Biofilm in einer SiC-Kapillare

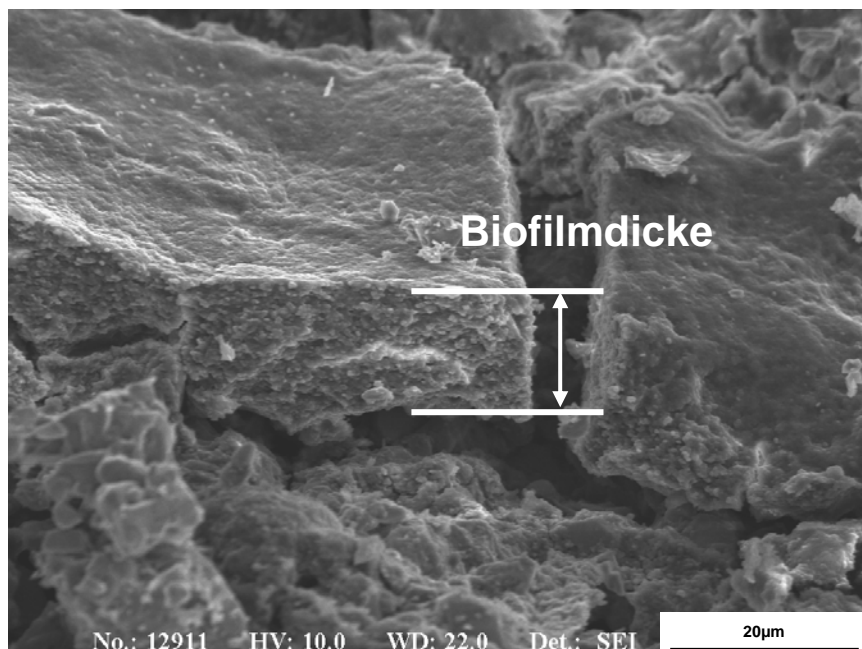


Abb.5.6: Mehrlagiger Schichtaufbau eines Biofilms

Bei einer mehr als 200-fachen Vergrößerung können mit dem Sekundärelektronendetektor des REMs Bilder erstellt werden, auf denen die lokale Verteilung

und Dichte der Mikroorganismen gut zu erkennen ist (Abb.5.3 bis 5.6). Eine Auswertung eines Bereichs größer 150 μm mal 150 μm ist allerdings so nicht möglich bzw. sehr zeitaufwändig. Mit Rückstreuelektronenbildern lassen sich größere Bereiche darstellen und auswerten. Die Abbildung 5.7 zeigt unterschiedlich stark bewachsene SiC-Kanäle im Längsschnitt. Die dunkleren Flächen sind immobilisierte Mikroorganismen, die hellere Flächen das Siliziumkarbid. Es lassen sich mit diesem Verfahren Aufnahmen mit einer nur 25fachen Vergrößerung erstellen und vergleichen.

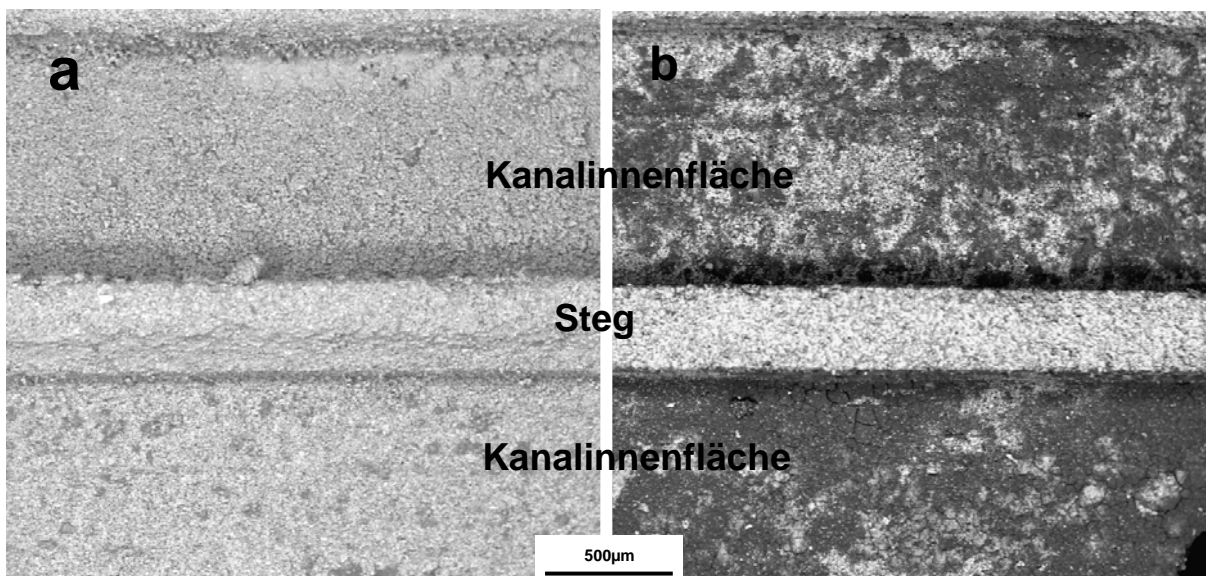


Abb.5.7: Immobilisierte SiC-Kanäle (dunkle Flächen: Biofilm), Rückstreuelektronenaufnahmen

a) wenig besiedelt

b) stark besiedelt

Nachweis mittels EDX

Aufgrund der eingeschränkten optischen Nachweismöglichkeiten wurde versucht, mit Hilfe von EDX-Mappings die Verteilung der immobilisierten Mikroorganismen in den porösen Keramikmonolithen darzustellen. Dazu wurden zunächst für die Mikroorganismen Elemente festgelegt, die in der Keramikoberfläche kaum oder günstigenfalls gar nicht vorhanden sind. Das Problem dabei war, dass die Proben zur Leitfähigkeitserzeugung mit Kohlenstoff bedampfen werden müssen, und dass die SiC-Keramik an der Oberfläche eine Oxidschicht aufweist. Beide Elemente sind Hauptbestandteile von Mikroorganismen. Die Lösung wurde gefunden, indem die Keramik nach der Immobilisierung mehrfach mit 0,9-% NaCl-Lösung gewaschen wurde.

Dabei wurden zum einen die Reste von Nährlösung entfernt und zum anderen die Organismen bzw. die Schicht, die sie umgibt mit NaCl angereichert.

Zur Ermittlung der Elemente, die sich mit der EDX auf den immobilisierten Proben nachweisen lassen, wurden zwei Analysen durchgeführt (Tab.5.1). Die Punktanalyse eines Bereichs der Keramik, der nicht von Mikroorganismen besiedelt ist, zeigt die Elemente Silizium, Kohlenstoff und Sauerstoff, die Punktanalyse der Mikroorganismen einen erhöhten Anteil von Kohlenstoff und als weitere Elemente Natrium, Stickstoff, Phosphor und Chlor.

Tab.5.1: EDX Punktanalyse auf die angegebenen Bereiche

Siliziumkarbid-Korn	Mikroorganismen
C, O, Si	C, O, Si, P, N, Na, Cl

In der Abbildung 5.8 ist eine rasterelektronenmikroskopische Aufnahme einer immobilisierten Siliziumkarbid-Probe der dazugehörigen EDX-Analyse gegenübergestellt. Die hochporöse Keramik ist für den EDX-Detektor abhängig von Abschattungen nur in einer gewissen Tiefe erreichbar. Die dunklen Flächen stellen das Element Silizium, die weißen Flächen die Elemente Natrium und Chlor dar. Die hellgrauen Flächen entsprechen der Porosität innerhalb der Nachweistiefe.

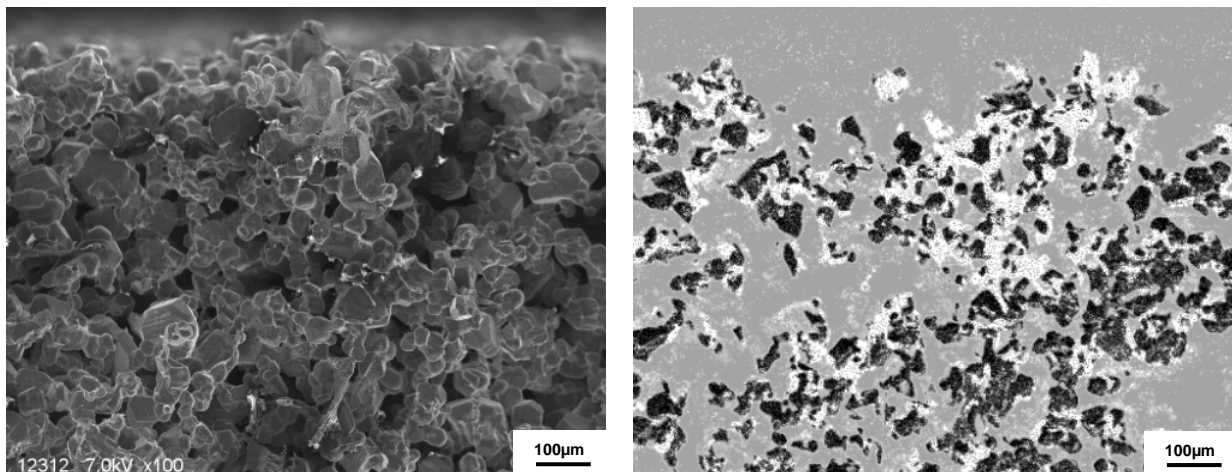


Abb.5.8: REM-Aufnahme einer untersuchten SiC-Bruchfläche und zugehöriges EDX-Mapping (Si, Na + Cl)

Mit den EDX-Mappings konnte die Vergrößerung auf bis zu 100-fach verringert werden. Dann sind die Mikroorganismen zwar nicht mehr zu erkennen, es kann aber trotzdem ein größtmöglicher Bereich ausgewertet werden. Als Beispiel zeigt die Abbildung 5.9 die unterschiedliche Besiedlungsdichte zweier Proben und die Abbildung 5.10 die Abnahme der Besiedlungsdichte in die Tiefe der keramischen Struktur. Alle Versuche wurden mit Keramikplättchen durchgeführt, die in einem Schüttelkolben immobilisiert wurden. Die genaue Versuchsbeschreibung kann /Seletzky, 2007/ entnommen werden.

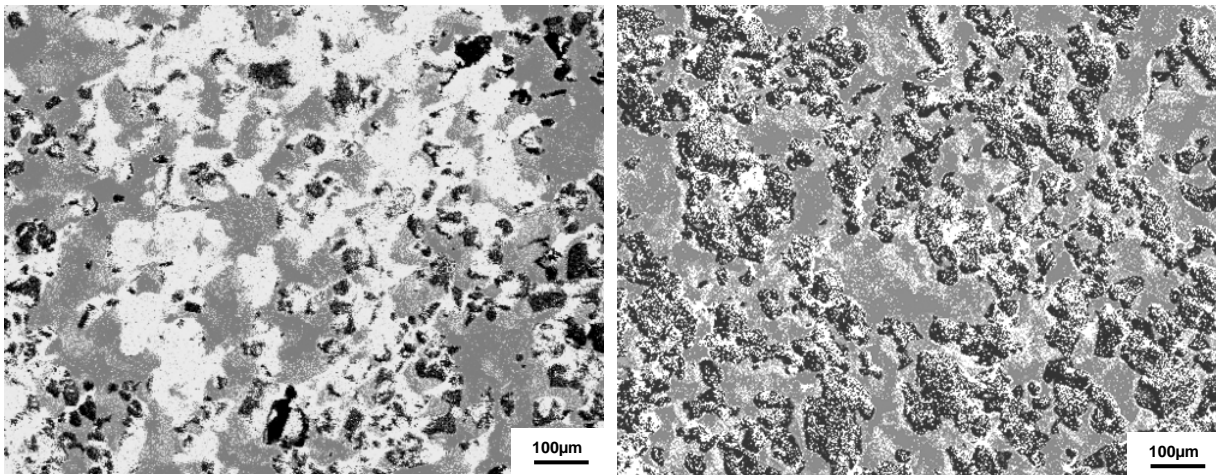


Abb.5.9: EDX-Mappings zwei unterschiedlich stark besiedelter SiC-Proben (Draufsicht)

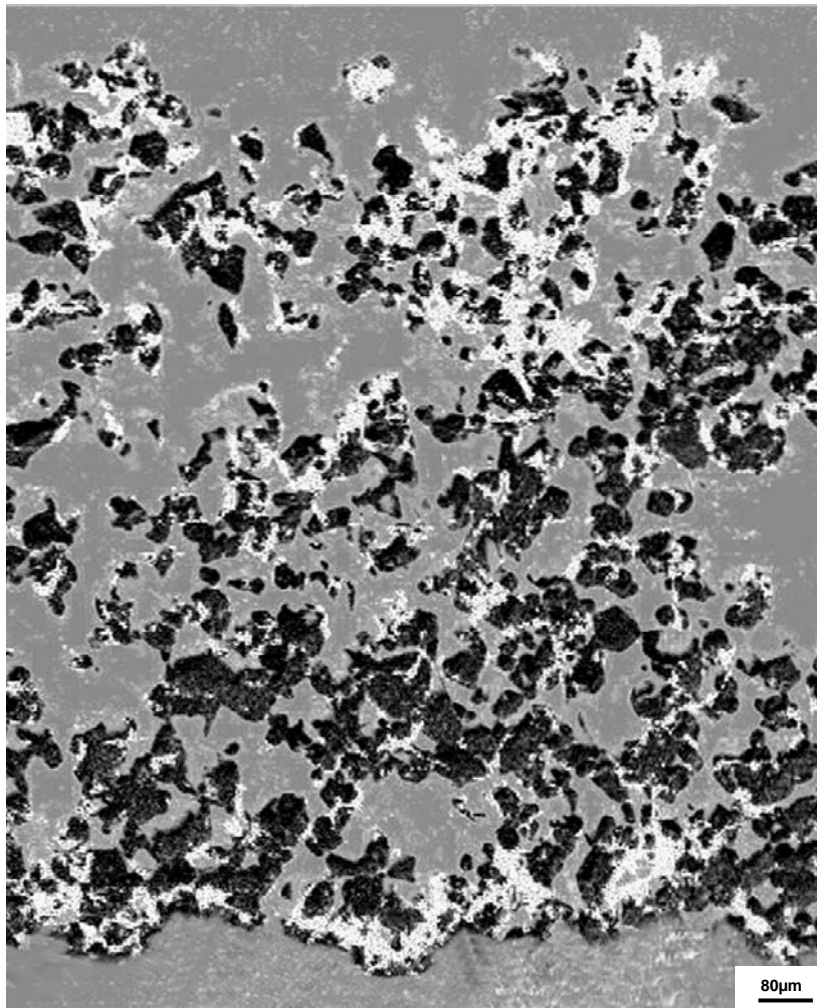


Abb.5.10: EDX-Mapping über eine Bruchfläche eines SiC-Plättchens (Querschnitt)

5.2 Reaktorcharakterisierung

Zu einer ausführlichen Charakterisierung eines hydrodynamischen Reaktors gehört neben einer Beschreibung der in jedem Reaktorteil vorherrschenden Strömungsverhältnisse auch die Bestimmung der Mischzeiten des Reaktors. Auf diese Reaktorcharakterisierung wird in den folgenden Kapiteln eingegangen.

5.2.1 Strömungsverhältnisse

In den verschiedenen Teilen des Reaktors wurden die dort jeweils vorherrschenden Strömungsbedingungen bestimmt. Dazu wurde die Reynoldszahl über dem Gas- sowie dem Flüssigkeitsvolumenstrom aufgetragen und in die Bereiche laminar ($Re \leq 2100$), transitionell (Übergangsbereich, $2100 < Re \leq 4000$) und turbulent ($Re > 4000$) eingeteilt.

Glasbauteile

In den Glasbauteilen des Risers (Durchmesser $d_{\text{innen}}=45$ mm, s.Kap.4.2) wird davon ausgegangen, dass für die Leerrohrgeschwindigkeit die Einzelgeschwindigkeiten von Gas- und Flüssigphase addiert werden können. Es ergibt sich für die Reynoldszahlen in diesen Bereichen des Reaktors untenstehendes Bild (Abb.5.11). Dabei zeigt sich, dass in allen für die Praxis relevanten Betriebsbereichen eine turbulente Strömung angenommen werden muss.

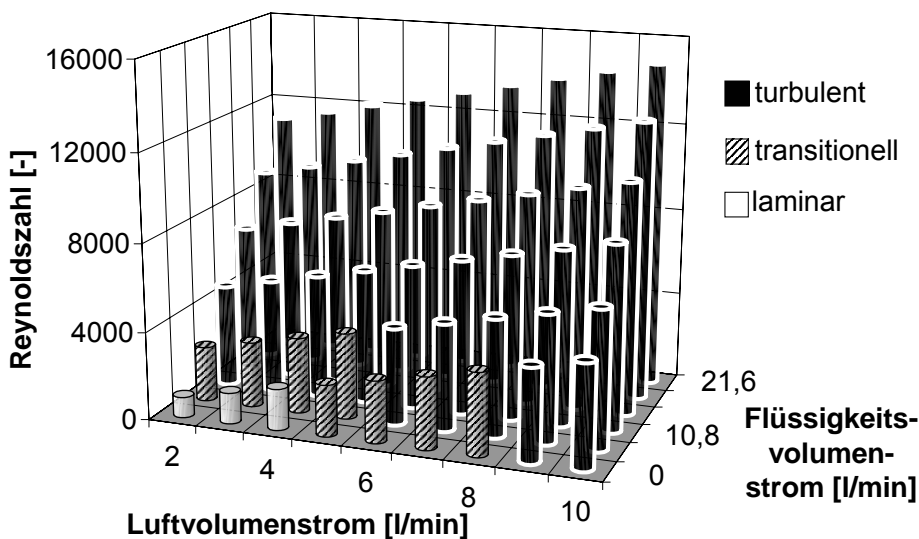


Abb.5.11: Reynoldszahl in Abhängigkeit vom Flüssigkeits- und Luftvolumenstrom in den Glasbauteilen

Keramikmonolithe

Ganz anders stellen sich die Verhältnisse in den Kapillaren der Keramikmonolithen (Abmessungen s.Kap.4.1) dar. Auch hier werden die Einzelgeschwindigkeiten von Gas- und Flüssigphase addiert. Lässt man bei der Berechnung der Reynoldszahlen Wandreibungseffekte außer Acht, so ergibt sich in Abbildung 5.12 dargestelltes Bild, die Strömung ist durchgängig laminar.

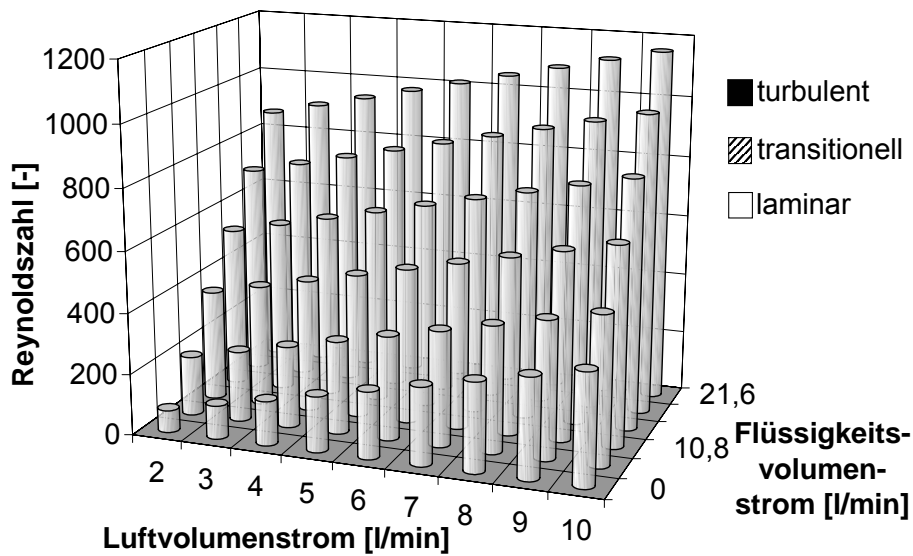


Abb.5.12: Reynoldszahl in Abhängigkeit vom Flüssigkeits- und Luftvolumenstrom in den Keramikmonolithen

Bei der Ermittlung der Reynoldszahlen im Downcomer (Abströmbereich) wird davon ausgegangen, dass dieser von keinerlei Gasblasen durchströmt wird. Die Reynoldszahl wird deshalb nur in Abhängigkeit vom Flüssigkeitsvolumenstrom aufgetragen (Abb.5.13).

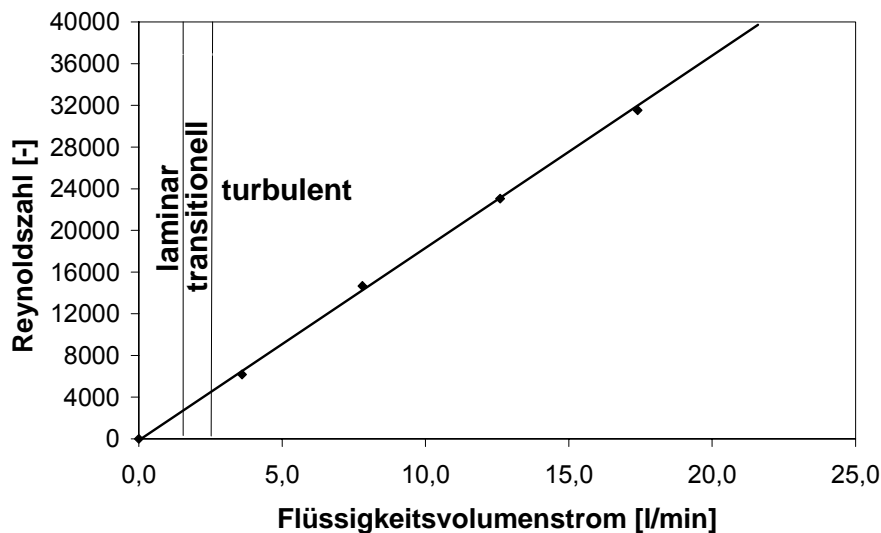


Abb.5.13: Reynoldszahl in Abhängigkeit vom Flüssigkeitsvolumenstrom im Downcomer

Bedingt durch den kleinen Durchmesser ($d=11,5\text{mm}$) und die daraus resultierenden hohen Strömungsgeschwindigkeiten, liegt im Downcomer bei allen im Rahmen dieser Arbeit eingestellten Pumpenleistungen eine deutlich turbulente Strömung vor.

Zusammenfassend lässt sich der Schluss ziehen, dass bei keinem der in dieser Arbeit untersuchten Betriebsparameter ein ausgeprägtes Übergangsgebiet durchlaufen wird. Man bewegt sich entweder deutlich im laminaren oder aber deutlich im turbulenten Bereich. Es wird deshalb davon ausgegangen, dass eventuelle Sprünge im Stoffübergangsverhalten bei Veränderung der Betriebsparameter nicht auf einen Umschlag zwischen laminarer und turbulenter Strömung zurückzuführen sind.

5.2.2 Blasenverhalten im Abscheidebecken

Das Abscheidebecken dient zur Abtrennung der Gasblasen aus der Zweiphasenströmung im Reaktor. Die im Kapitel 3.4.2 hergeleitete Gleichung für den Blasenaufstieg dient hier zur theoretischen Abschätzung einer erfolgreichen Abscheidung und ist in Abbildung 5.14 dargestellt. Die in dieser Arbeit verwendeten Begasungsplatten erzeugen unterschiedliche Blasengrößen, die durch senkrechte Linien im Diagramm Schnittpunkte mit der Gleichung bilden. Die in den Reaktor eingebrachten Blasen sind in allen Versuchen $\leq 2,1\text{mm}$ und die Blasenauftiegs- geschwindigkeit damit im Bereich der freien Aufwärtsströmung im Reaktorkopf unter $0,22\text{m/s}$. Auch bei Koaleszenz der Blasen ist die maximale Blasenauftiegs- geschwindigkeit $0,22\text{m/s}$, da die Blasen immer kleiner als 10mm bleiben.

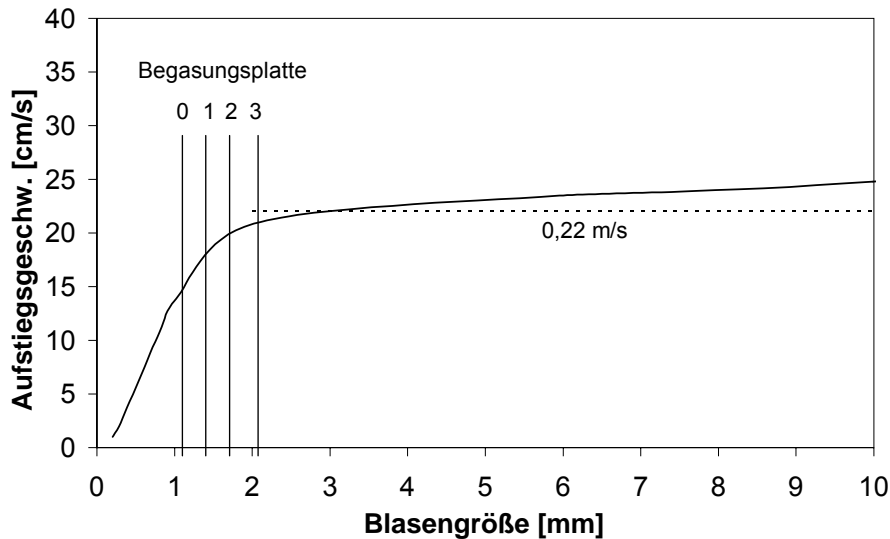


Abb.5.14: Blasenauftiegs geschwindigkeit in Abhängigkeit der Blasengröße, Gleichung 3.41

Die Füllhöhe im Abscheidebecken der Strömungsreaktors liegt zwischen 20 und 60mm (s.Kap.5.3.8). Damit ergibt sich eine reale Zeit, die die Blasen für den freien, senkrechten Aufstieg im Reaktorkopf benötigen, nämlich von 0,1 bis 0,4s bei einer Blasengröße von 1,1 bis 2,1mm. Durch die Strömung der Flüssigkeit im Abscheidebecken steigen die Blasen allerdings nicht senkrecht auf, sondern in einem hier nicht weiter quantifizierten Winkel. Bei Annahme eines Aufstiegs winkels der Blasen von 45° ergibt sich eine Aufstiegszeit zwischen 0,13 und 0,6s. Damit die Blasen vollständig aus der Flüssigkeit abgeschieden werden können, muss die Flüssigkeit diese Zeit mindestens im Abscheidebecken verweilen bevor sie durch die Pumpe wieder in den Abströmbereich des Reaktors gefördert wird. Die Verweilzeit einzelner Teile und des kompletten Reaktors können durch Mischzeitversuche bestimmt werden.

5.2.3 Mischzeitbestimmung

Die am Institut für Bioverfahrenstechnik durchgeführten Versuche in dem baugleichen biologischen Reaktor (s.Kap.4.4.2) zeigen die in Abbildung 5.15 dargestellten Verläufe der Mischzeiten des Reaktors. Die Mischzeiten wurden mit der größten hier verwendeten Blasengröße von 2,1mm und bei einem Luftvolumenstrom von 2,6l/min (Begasungsrate ca.1,5vvm) durchgeführt. Die Versuche zeigen eine Abnahme der Mischzeiten mit steigendem Volumenstrom der Flüssigkeit bei konstantem Luftvolumenstrom. Die maximale Mischzeit liegt bei ca.35s und die minimale bei ca.5s.

Es ist außerdem zu erkennen, dass die Mischzeit des Abscheidebeckens immer oberhalb der Aufstiegszeit der Blasen liegt und ab 9l/min fast konstant verläuft. Bei Versuchen mit kleineren Blasen wurde allerdings beobachtet, dass ein bestimmter Anteil der Blasen mit in den Rückstrom gezogen wird. Dieser Effekt kommt vermutlich daher, dass die Blasen bei den realen Strömungsverhältnissen im Abscheidebecken nicht frei aufsteigen können, sondern mit der Strömung mitgerissen werden. Der Anteil der mitgerissenen Blasen wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht quantifiziert, da die notwendige Messtechnik sehr aufwendig ist und nicht vorlag. Der Anteil der mitgerissenen Blasen führt allerdings dazu, dass der relative Gasgehalt im Reaktor ab dem Moment ansteigt, bei dem der Blasenanteil im Rückstrom merklich steigt. Versuche mit höheren Luftvolumenströmen zeigten eine Abnahme der Mischzeit bei kleinen Flüssigkeitsvolumenströmen. Bei großen Flüssigkeitsvolumenströmen hat der Volumenstrom der Luft allerdings keinen Einfluss auf die Mischzeiten im Reaktor.

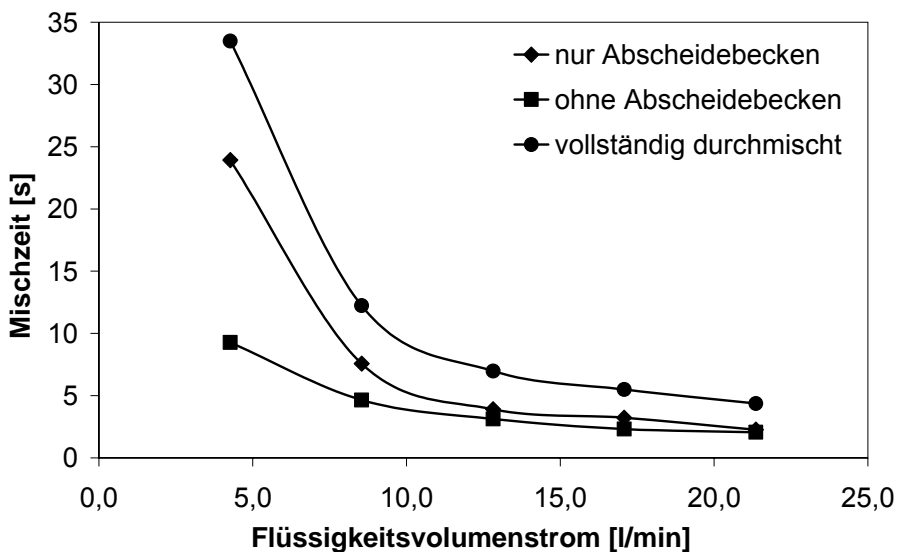


Abb.5.15: Mischzeiten des Reaktors, 2 SiC Monolithen, 2,6l/min Luftvolumenstrom, 2,1mm Blasen

5.3 Volumetrischer Stoffübergangskoeffizient $k_L a$

In den folgenden Kapiteln werden die durchgeführten experimentellen Versuche zum volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ ausgewertet und die Messwerte diskutiert. Es werden folgende Untersuchungen beschrieben: die Reproduzierbarkeit der Messungen (Kapitel 5.3.1), die Standardisierung eines $k_L a$ Werts (Kapitel 5.3.2), die

Variation des Katalysators (Kapitel 5.3.3) und die Einflüsse der Blasengröße, der keramischen Monolithe und des Füllstands (Kapitel 5.3.4-7).

5.3.1 Reproduzierbarkeit

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zahlreiche Versuche zur Überprüfung der Reproduzierbarkeit wiederholt. Es kam in der Regel zu einer Bestätigung der schon gefundenen Abhängigkeiten. Abbildung 5.16 zeigt Beispiele dieser Wiederholungsversuche zur Bestimmung des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ bei unterschiedlichen Volumenströmen und Blasengrößen. Die Reproduzierbarkeit des verwendeten Systems ist gegeben, wenn alle Anwendungsvorschriften sorgfältig beachtet werden.

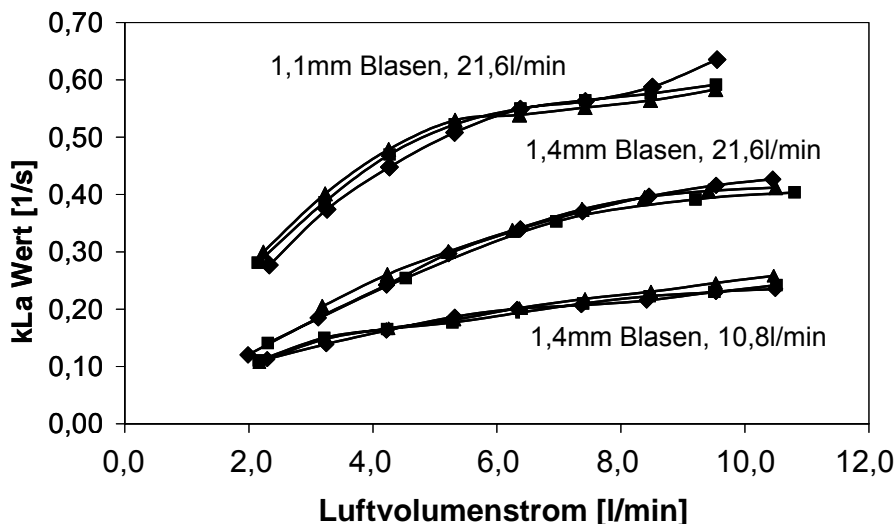


Abb.5.16: Reproduzierbarkeit der Versuche (3fach Wiederholung), 2 SiC Monolithen, jeweils konstanter Flüssigkeitsvolumenstrom

5.3.2 Einfluss der Temperatur

Durch einen Versuch mit ausgeschalteter Kühlung konnte der Einfluss der Temperatur auf den $k_L a$ Wert nachgewiesen werden. Durch die Umwälzung der Flüssigkeit mit zwei Zahnradpumpen erwärmt sich die Flüssigkeit im Reaktor während eines Versuch um bis zu 15°C. Die dadurch stattfindende Erhöhung des $k_L a$ Werts ist in Abbildung 5.17 zu erkennen. Bei allen anderen Versuchen wurde durch einen Wärmetauscher die Temperatur im Reaktor bei 23°C konstant gehalten (s.Kap.4.2.2).

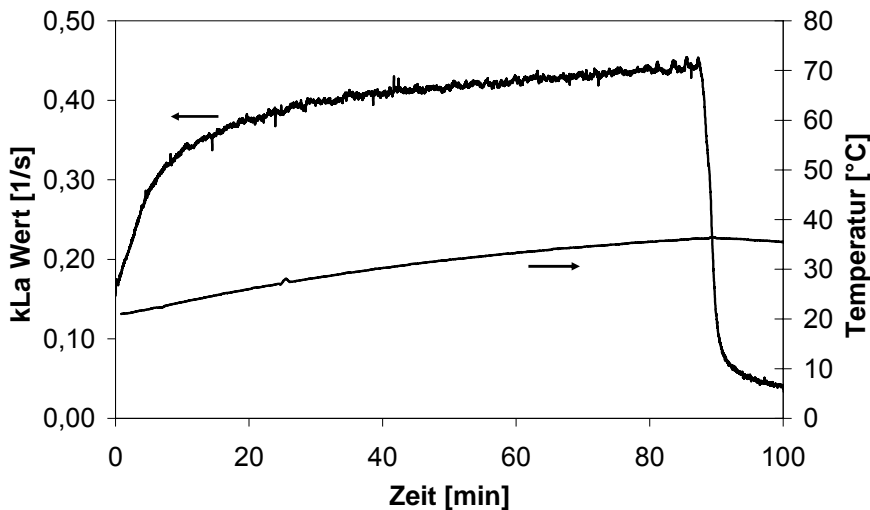


Abb.5.17: Einfluss der Temperatur auf den k_{La} Wert, 2 SiC Monolithen, 6l/min Luftvolumenstrom, 21,6l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, 1,4mm Blasen

Der mittels der oben dargestellten Messungen ermittelte Korrelationsfaktor für Medien mit unterschiedlichen Temperaturen weicht von der von /de Ory, 1999/ aufgestellten Beziehung ab (Gl.3.24). Zur Ermittlung des tatsächlichen Temperatureinflusses im hier verwendeten System müssen noch weitere Versuche mit Temperaturvariation durchgeführt werden. Dies ist nicht im Rahmen dieser Arbeit geschehen.

5.3.3 Katalysatorvariation

Der Katalysator hat einen großen Einfluss auf die Reaktionsgeschwindigkeit. Bei zu hoher Konzentration reagiert der Sauerstoff schon in der Flüssigkeitsgrenzschicht. Die Zweifilmtheorie ist in diesem beschleunigten Bereich nicht mehr gültig (s.Kap.3.3.2), da sie von rein diffusiven Vorgängen ohne chemische Reaktion in der Grenzschicht ausgeht. Der Sauerstoffverbrauch wird dann nicht mehr durch die hydrodynamischen Bedingungen bestimmt und die Reaktionsordnung ändert sich.

Die $[\text{Co}^{2+}]$ -Ionen Konzentration liegt bereits vor Zugabe des Katalysators in das Natriumsulfitsystem bei einem Wert von $[\text{Co}^{2+}] < 1 \cdot 10^{-6} \text{ mol/l}$ durch den Phosphatpuffer. Die Summe der katalytischen Stoffe, die durch chargenbedingte Verunreinigungen der Ausgangsstoffe in Lösung sind [Pb, Fe, Cu] kommt hinzu. Wird nur Kobalt als katalytisch wirksam angenommen, kann sich die Zugabe des Katalysators erst ab einer Konzentration über $1 \cdot 10^{-6} \text{ mol/l}$ bemerkbar machen. Wird der Einfluss der

Konzentrationserhöhung nachgewiesen, kann die Summe der anderen möglichen Katalysatoren vernachlässigt werden.

Zur Bestimmung der Grenzen der Katalysatorkonzentration in dieser Arbeit wurden unterschiedliche Katalysatormengen zu dem Sulfitsystem hinzugegeben. Standardmenge des Kobaltkatalysators im 0,5 molaren Sulfitsystem war $5 \cdot 10^{-5}$ mol/l (s.Kap.4.3.1). In der Abbildung 5.18 sind Messpunkte von Versuchsreihen mit 1,4mm großen Blasen, zwei Siliziumkarbidmonolithen und einem Luftvolumenstrom von 6l/min (ca.3vvm) eingetragen. Der Volumenstrom der Flüssigkeit betrug 10,8 bzw. 21,6l/min. Die zugegebene Katalysatormenge lag zwischen $1 \cdot 10^{-5}$ und $5 \cdot 10^{-2}$ mol/l. Die Auswertung der Versuche zeigt, dass das Sulfitsystem bis zu einer Katalysatorkonzentration von $5 \cdot 10^{-4}$ mol/l im nicht-beschleunigten Bereich liegt. Erst ab einer höheren Konzentration kommt es zu einer verhältnismäßig deutlichen Zunahme des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten.

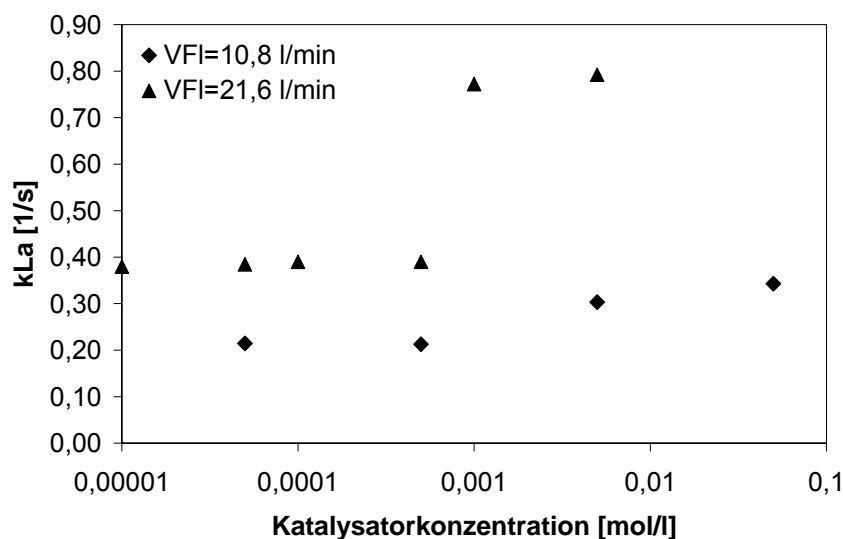


Abb.5.18: Katalysatorvariation im 0,5molaren Sulfitsystem, 2 SiC Monolithen, 6l/min Luftvolumenstrom, 1,4mm Blasen

In der Abbildung 5.19 werden die gemachten Beobachtungen bestätigt. Bei den Versuchen mit zwei Siliziumkarbid- bzw. Cordieritmonolithen, Blasengrößen von 1,1 und 1,7mm und einem Flüssigkeitsvolumenstrom von 21,6 bzw. 10,8l/min verliefen die Versuche ohne Katalysatorzugabe identisch zu den Versuchen mit $5 \cdot 10^{-5}$ und $5 \cdot 10^{-4}$ mol/l. Bei standardmäßiger Verwendung einer Katalysatorkonzentration von $5 \cdot 10^{-5}$ mol/l in dieser Arbeit kann somit der nicht-beschleunigte Bereich vorausgesetzt werden.

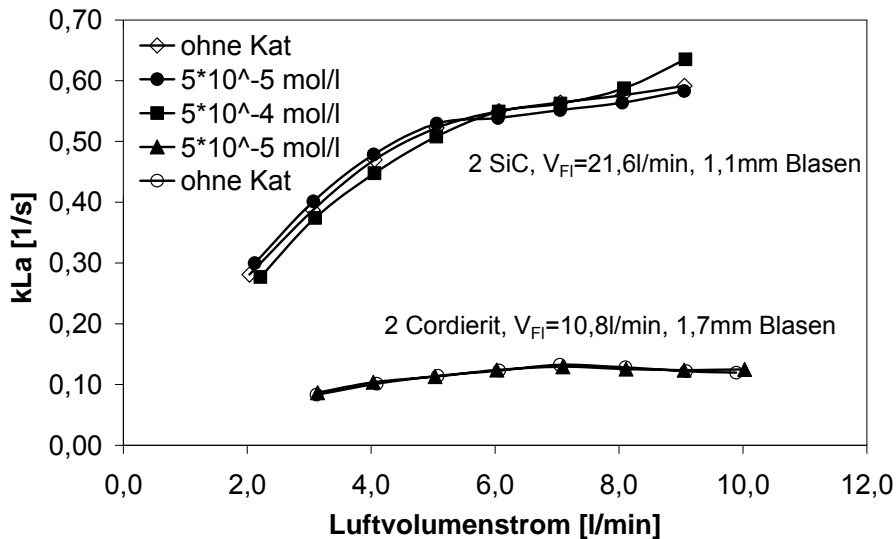


Abb.5.19: Einfluss der Katalysatorkonzentration auf den Versuchsverlauf

5.3.4 Standardisierung eines k_{La} Werts

In den durchgeführten Versuchsreihen zur Bestimmung des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten k_{La} wurden zahlreiche Parameter wie die Geometrie der Monolithen, die Blasengröße und die Volumenströme variiert. Um den jeweiligen Einfluss bewerten zu können, wurde ein sogenannter „Standardversuch“ eingeführt. Alle Variationen des Systems können mit diesem Standardversuch verglichen werden.

Der Standardversuch wird mit zwei Siliziumkarbid-Monolithen, die mit einem 10mm großen Abstand hintereinander gesteckt sind, bei einem konstanten Luftvolumenstrom von 6l/min (ca.3vvm) und einem Volumenstrom der Flüssigkeit von 10,8l/min durchgeführt, was dem Betrieb des Reaktors mit einer Zahnradpumpe unter voller Leistung bedeutet. Die berechnete Blasengröße beträgt 1,4mm (s.Tab.4.2). Mit den Bedingungen wurde ein k_{La} Wert von $0,18s^{-1}$ gemessen. Dieser „Standard- k_{La} “ dient als Vergleichsgrundlage in den folgenden Kapiteln (Tab.5.2).

Tab.5.2: Standardversuch der k_{La} Wert Bestimmung

Monolithen	2 SiC mit 10mm Abstand
Volumenstrom der Luft	6 l/min (ca.3vvm)
Volumenstrom der Flüssigkeit	10,8 l/min
Blasengröße	1,4 mm
gemessener k_{La}	$0,18 s^{-1}$

5.3.5 Einfluss der Volumenströme

Volumenstrom der Luft (Begasungsrate)

Zur Bestimmung des oben genannten Standard- k_{La} Werts wurde eine Versuchsreihe durchgeführt, bei der der Volumenstrom der Luft, wie in Kapitel 4.3.3 beschrieben, in Stufen von 1l/min (entspricht ca.0,5vvm) erhöht wurde. In der Abbildung 5.20 ist der Verlauf des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten über dem Luftvolumenstrom aufgetragen.

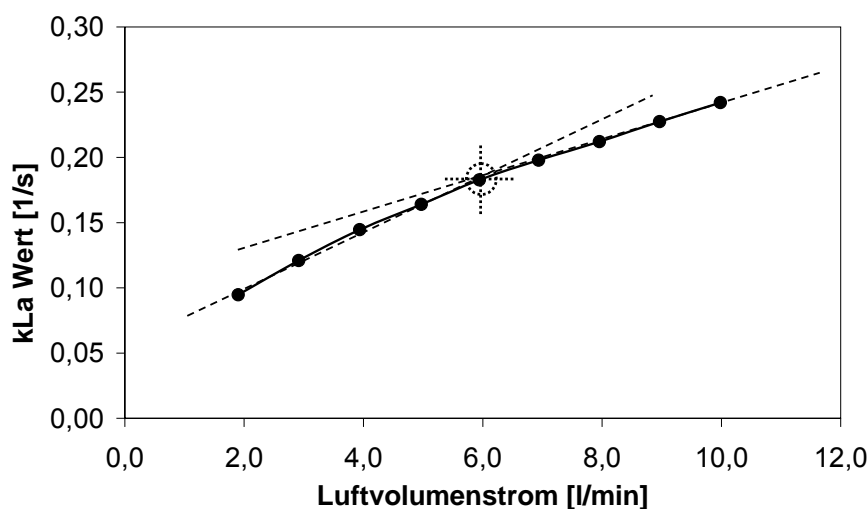



Abb.5.20: „Standardisierungsversuch“, 2 SiC Monolithe, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, 1,4mm Blasen

Der Verlauf dieser Kurve gibt den Verlauf aller Versuche, die mittels Erhöhung des Luftvolumenstroms durchgeführt wurde, exemplarisch wieder. In dem vorgestellten Fall fällt die Steigung der Kurve nach einer anfänglich Erhöhung des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten ab einem Luftvolumenstrom von ungefähr 6l/min ab. Die mathematische Näherung der Kurven war in allen untersuchten Fälle potenziell mit einer sinkenden Steigung. In einigen Fällen lief der k_{La} Wert sogar gegen einen Grenzwert oder fiel auf ein geringeres Niveau ab einem Luftvolumenstrom von 6l/min.

Mit einem „Fadenkreuz“ () ist in der Abbildung 5.20 und in allen späteren Abbildungen der oben beschriebene Standardversuch (Kap.5.3.4) gekennzeichnet. Mit Hilfe des Fadenkreuzes lässt sich der Einfluss der jeweiligen variierten Parameter, die im Diagramm dargestellt werden, auf den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten erkennen.

Volumenstrom der Flüssigkeit (Umpumprate)

An dem verwendeten Versuchsstand kann nicht nur der Volumenstrom der Luft, sondern auch der Volumenstrom der Flüssigkeit variiert werden. Hierfür stehen zwei Zahnradpumpen zur Verfügung. Die Pumpen sind parallel geschaltet und der umgepumpte Flüssigkeitsvolumenstrom durch den Reaktor erreicht bei voller Leistung der Pumpen einen Wert von 21,6l/min. Eine Pumpe unter voller Leistung bzw. beide Pumpen bei jeweils 50% Leistung liefern einen Flüssigkeitsvolumenstrom von 10,8l/min. Ein Flüssigkeitsvolumenstrom von maximal 3l/min wird durch einen Airliftbetrieb des Reaktors erreicht. Hierbei sind die Pumpen abgebaut und eine Flüssigkeitsumwälzung wird nur durch die aufsteigenden Blasen erreicht. Bei eingebauten Pumpen erreicht die Einstellung von jeweils 20% der Maximalleistung den gleichen Flüssigkeitsvolumenstrom.

Die unterschiedlichen Flüssigkeitsvolumenströme haben einen Einfluss auf den volumetrischen Stoffübergang, wie in Abbildung 5.21 zu erkennen. In der Abbildung sind Versuche dargestellt, bei denen der Luftvolumenstrom konstant gehalten und der Volumenstrom der Flüssigkeit im Laufe des Versuchs erhöht wurde.

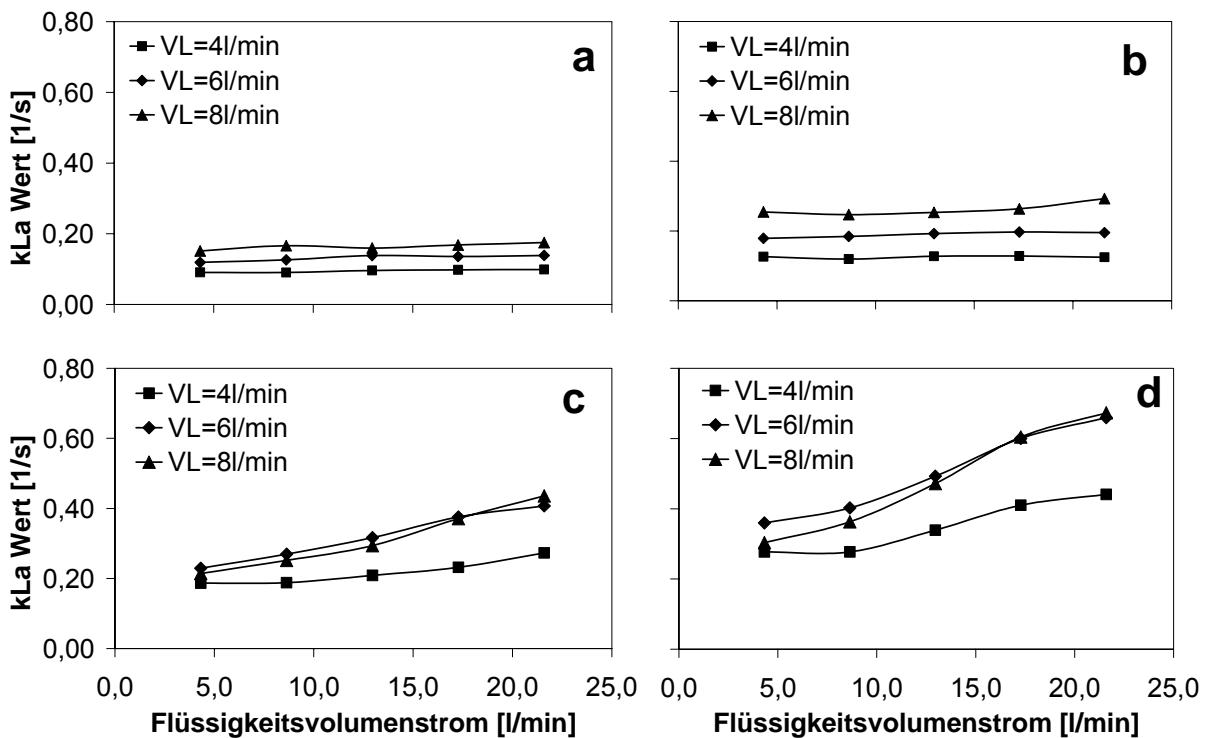


Abb.5.21: Einfluss des Flüssigkeitsvolumenstroms, 2 SiC Monolithen

a: 2,1mm Blasen; b: 1,7mm Blasen; c: 1,4mm Blasen; d: 1,1mm Blasen

Für die Versuche wurden unterschiedliche Begasungsplatten in das System eingebaut, die zu unterschiedlichen Blasengrößen führen (s.Kap.4.2). Bei den beiden größeren Primärblasengrößen (a:2,1 und b:1,7mm) zeigte die Erhöhung des Flüssigkeitsvolumenstroms keinen Einfluss auf den k_{La} Wert. Erst ab einer Primärblasengröße kleiner 1,7mm kam es zu einer Erhöhung des Stoffübergangs bei Erhöhung des Flüssigkeitsvolumenstroms. Der Einfluss auf den k_{La} Wert war dabei bei hohem Luftvolumenstrom (>6l/min) deutlicher als bei niedrigem (<4l/min). Ähnlich wie der Einfluss des Luftvolumenstroms scheint es auch hier ein Maximum zu geben, nach dem eine weitere Erhöhung des Volumenstrom der Flüssigkeit keine Verbesserung des Stoffübergangs mehr liefert.

Vergleicht man die Kurven mit den Messungen bei Erhöhung des Luftvolumenstroms, erkennt man das höhere Anfangsniveau der k_{La} Werte. Bedingt durch die Reaktorkonstruktion kommt es bei geringen Flüssigkeitsvolumenströmen zur Bildung eines Schaumteppichs unterhalb der Keramikmonolithen. Dieser Schaumteppich wird bei einer Flüssigkeitsvolumenstromerhöhung erst bei Werten von ca. 12l/min zerstört, und es kommt dann zu einer gleichmäßigeren Vermischung der beiden Phasen im System. Der Stoffübergang ist in dem Schaumteppich mit einem verringerten Flüssigkeitsanteil und einem erhöhten Luftblasenanteil verstärkt und sorgt so für die höheren k_{La} Werte.

Kommt es durch eine Erhöhung des Luftvolumenstroms zu keiner weiteren deutlichen Zunahme des k_{La} Werts, kann der Stoffübergang durch eine Steigerung des Volumenstroms der Flüssigkeit noch weiter verbessert werden. Wenn die maximale Gasbeladung des Systems erreicht ist, führt eine Volumenstromerhöhung der Flüssigkeit zu einer verbesserten Dispergierung des Gases in der Flüssigkeit. Außerdem kommt es bei hohen Flüssigkeitsvolumenströmen und kleinen Blasen zu einer gesteigerten Gasbeladung des Systems, da nicht mehr alle Blasen im Abscheidebecken genügend Zeit zum Entgasen haben, sondern im System rezirkuliert werden. Abbildung 5.22 zeigt eine Draufsicht auf das offene Abscheidebecken bei Betrieb des Reaktors mit zwei SiC Monolithen, aber mit verschiedenen Begasungsplatten (Primärblasengröße 2,1 und 1,1mm). Der Volumenstrom der Flüssigkeit und der Luft war bei beiden Versuchen identisch (10l/min).

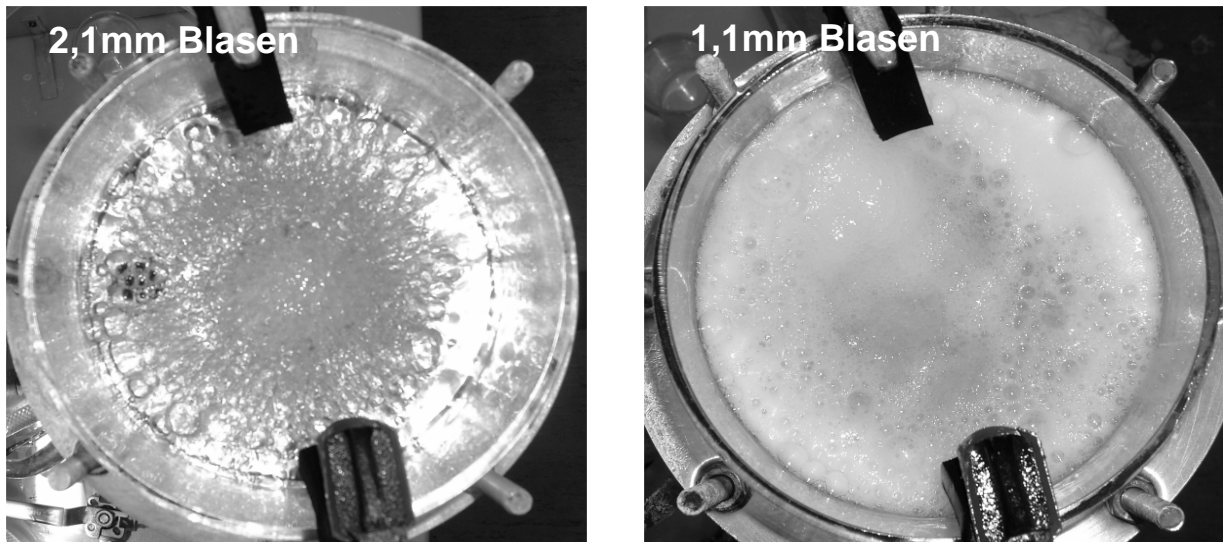


Abb.5.22: Abscheidebecken bei unterschiedlichen Begasungsplatten, 2 SiC Monolithen, 10,0l/min Luft- und 10,0l/min Flüssigkeitsvolumenstrom

Während beim Einsatz der grobporösen Begasungsplatte (2,1mm Blasen) ein deutliches Entgasen über dem Riser zu beobachten ist, erscheint die Flüssigkeit bei der feinporösen Begasungsplatte (1,1mm Blasen) milchig, bedingt durch den hohen Anteil an Kleinstblasen. Bei diesen Kleinstblasen kann davon ausgegangen werden, dass sie zu einem gewissen Anteil mit der Flüssigkeit in den Downcomer gerissen werden.

5.3.6 Einfluss der Blasengröße

Die Abbildung 5.23 zeigt den Einfluß der gerechneten Primärblasengröße auf den k_{La} Wert. Die Primärblasengröße wurde durch den Einbau von unterschiedlichen Begasungsplatten in den Reaktor variiert. Die Versuche wurden mit zwei SiC Monolithen bei 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom durch eine stufenweise Erhöhung des Luftvolumenstroms durchgeführt. Abbildung 10.1 im Anhang stellt die Ergebnisse eines Versuchs mit den gleichen Bedingungen allerdings mit Cordierit Monolithen dar. Der ermittelte Einfluss ist bis zu einem Luftvolumenstrom von 6l/min identisch. Danach fallen die Werte von Cordierit deutlich zurück.

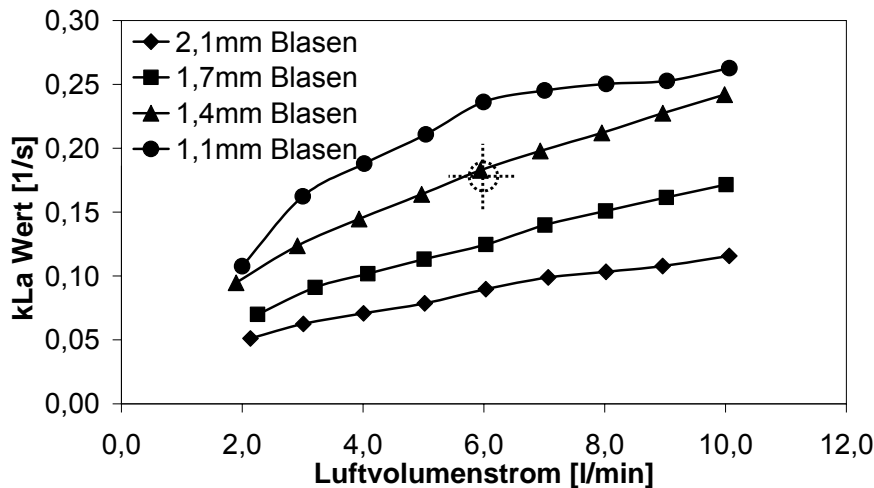


Abb.5.23: Einfluß der Blasengröße auf den k_{La} Wert, 2 SiC Monolithen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom

Der Einfluss der Primärblasengröße ist deutlich zu erkennen. Umso kleiner die in das System eingebrachten Blasen sind, desto größer ist der volumetrische Stoffübergangskoeffizient. Eine Verkleinerung der Blasen führt zu einer Erhöhung der spezifischen Stoffaustauschfläche und damit zur Erhöhung des k_{La} Werts. Auf den Einfluss des relativen Gasgehalts in Abhängigkeit von der Blasengröße auf den k_{La} Wert wird in Kapitel 5.4 eingegangen. Inwieweit für die Erzeugung der kleineren Primärblasen ein höherer Leistungseintrag notwendig ist, wird in Kapitel 5.5 ausführlich geklärt.

In den Diagrammen auch zu erkennen ist eine Abnahme der Kurvensteigung in allen untersuchten Fällen. Eine Erhöhung des Luftvolumenstroms über die Grenze von 6l/min hinaus führt zu einer geringeren Zunahme des k_{La} Werts als im Bereich bis 6l/min (Begasungsrate ca.3vvm).

Trägt man den Einfluss der Blasengröße für den Standardversuch in ein getrenntes Diagramm ein, so ergibt sich der in Abbildung 5.24 dargestellte Verlauf. Zusätzlich sind auch noch die Verläufe bei einem Luftvolumenstrom von 4 und 8l/min aufgetragen. Die hier zu erkennende Abhängigkeit der Parameter wird in der Modellierung in Kapitel 6 überprüft. Eine Verkleinerung der Primärblasen von 1,7 auf 1,1mm bedeutet für die untersuchten Fälle eine Zunahme des k_{La} Wertes um ungefähr 84%.

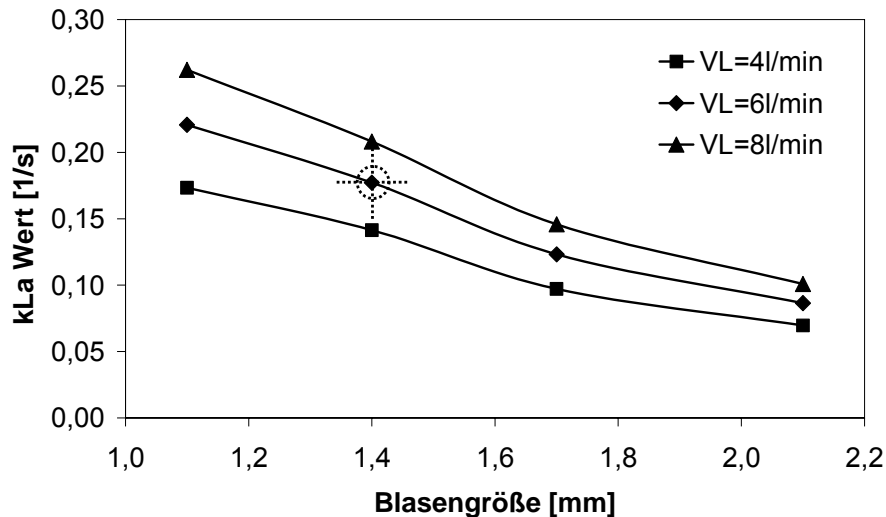


Abb.5.24: Einfluss der Primärblasengröße im Standardversuch, 2 SiC Monolithen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom

Welchen Einfluss die Primärblasengröße auf die Bildung einer Taylorströmung in den porösen Keramikkapillaren hat, wird im Rahmen dieser Arbeit nicht geklärt. Vermutlich liegen erst die Blasendurchmesser der Begasungsplatte 3 mit 1,1mm unterhalb der Kapillardurchmesser. Inwiefern sich die Blasen aber beim Eintritt in die Kapillaren vereinigen und eine Taylorströmung bilden, kann bei den angelegten Volumenströmen nicht beobachtet werden.

Nadelkissen

Für einige Versuchsreihen dieser Arbeit wurde am IKKM ein Nadelkissen zur Begasung des Reaktors konstruiert (s.Kap.4.2). Die zugrundeliegende Idee des Nadelkissens ist, jedem Kanal im Monolithen einzeln Luft direkt zuzuführen. Dadurch wird zum einen eine mögliche Koaleszens der Blasen im Anströmbereich unterhalb der Monolithen verhindert. Zum anderen wird direkt in den Monolithkanälen eine Taylorströmung realisiert.

In den Versuchen konnte das Nadelkissen allerdings die Erwartungen nach Literaturangaben /Kawakami, 1989b/ eines hohen volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten nicht erfüllen. Die Abbildung 5.25 steht beispielhaft für Versuchsergebnisse, die mit dem Nadelkissen erzielt wurden.

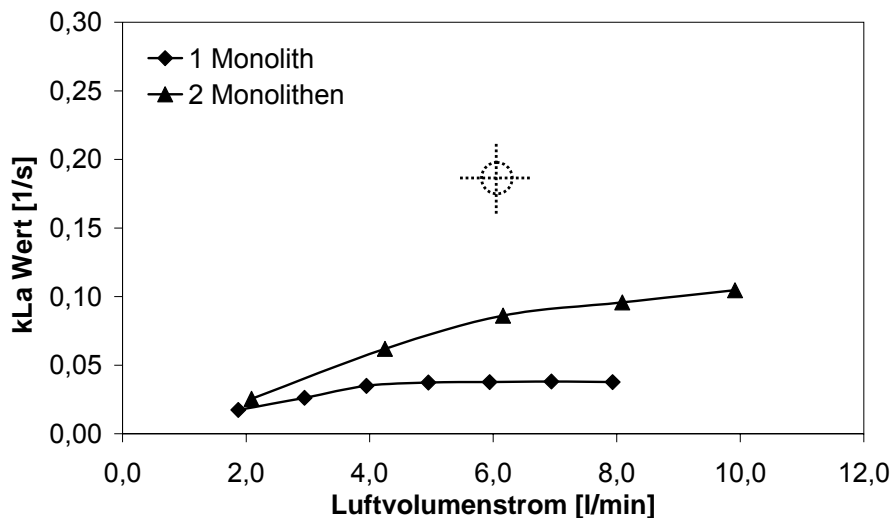


Abb.5.25: Begasungseinheit Nadelkissen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom

Im vorliegenden Kapitel wird nachgewiesen, dass ein Kriterium für einen hohen k_{La} -Wert ein geringer Blasendurchmesser ist. Die verwendeten Nadeln weisen mit einem Innendurchmesser von ungefähr 0,5mm jedoch einen größeren Querschnitt als dies bei den Poren der Begasungsplatten der Fall ist. Der nach Gleichung 3.27 berechnete Blasengröße ergibt sich zu 2,8mm. Das resultierende geringere Oberflächen-Volumen-Verhältnis der Blasen schlägt sich in einem verminderten k_{La} -Wert nieder.

Eine weitere Ursache für die niedrigen k_{La} Werte liegt im Strömungsverhalten im Bereich zwischen Begasungsplatte und Monolithen. Dieser Bereich ist im konventionellen Aufbau mit porösen Begasungsplatten durch ein stark turbulentes Strömungsverhalten gekennzeichnet. Dieser Bereich, der aufgrund der Turbulenz und des deutlich erhöhten relativen Gasgehalts sehr gute Voraussetzungen für den Sauerstofftransport in die Flüssigkeit bietet, entfällt beim Einsatz des Nadelkissen, da die Begasung erst im Monolithen erfolgt. Vor diesem Hintergrund erscheint ein Einbruch der k_{La} -Werte bei dieser Begasungseinheit plausibel.

Neben seinen geringen k_{La} Werten, kann das Nadelkissen auch wegen seiner Sensibilität gegenüber mechanischer Beanspruchung und wegen seiner problematischen Handhabung beim Einbau nicht überzeugen. Im Umkehrschluss besteht aber durch den Einsatz des Nadelkissens die Möglichkeit, explizit den Anteil der Monolithen am Sauerstoffübergang ohne den Einfluss der Reaktorbasis zu bestimmen. So ergibt sich zum Beispiel bei einem Volumenstrom der Luft von 6,0 l/min und ansonsten Standardbedingungen (s.Kap.5.3.5) ein k_{La} Wert von 0,18 1/s. Bei

Verwendung des Nadelkissens wurde bei ansonsten gleichen Bedingungen ein k_{La} Wert von 0,08 1/s gemessen, also 44% des Standardwerts.

5.3.7 Einfluss der keramischen Monolithe

Monolithanzahl

Durch die Baukastenweise des hydrodynamischen Screeningreaktors können mehrere Keramikmonolithen mit einem Abstand von jeweils 10mm hintereinander geschaltet werden. Es wurden Versuche mit keinem und bis zu vier Siliziumkarbidmonolithen durchgeführt. Bei den Versuchen ohne Monolith wurde ein Glasrohr in den Reaktor eingebaut. Das Flüssigkeitsfüllvolumen des Reaktors war immer identisch. Die Versuchsreihe mit keinem Monolithen ist in Abbildung 10.2 im Anhang dargestellt, außerdem der nur geringe Einfluss der Monolithanzahl auf den k_{La} Wert bei einem Flüssigkeitsvolumenstrom von 3l/min (Airlift).

Die Abbildung 5.26 zeigt die k_{La} -Werte in Abhängigkeit der Monolithenanzahl. Der Einfluss der Monolithanzahl auf den k_{La} Wert ist bei einem Volumenstrom der Flüssigkeit von 10,8l/min deutlich: Der Einbau von mehreren Monolithen (Länge eines einzelnen Monolithen 150mm) erhöht den Stoffübergang im Reaktor. Wie auch schon bei dem in Kapitel 5.3.6 betrachteten Primärblasengrößeneinfluss, kommt es auch hier zu einem degressiven Verlauf.

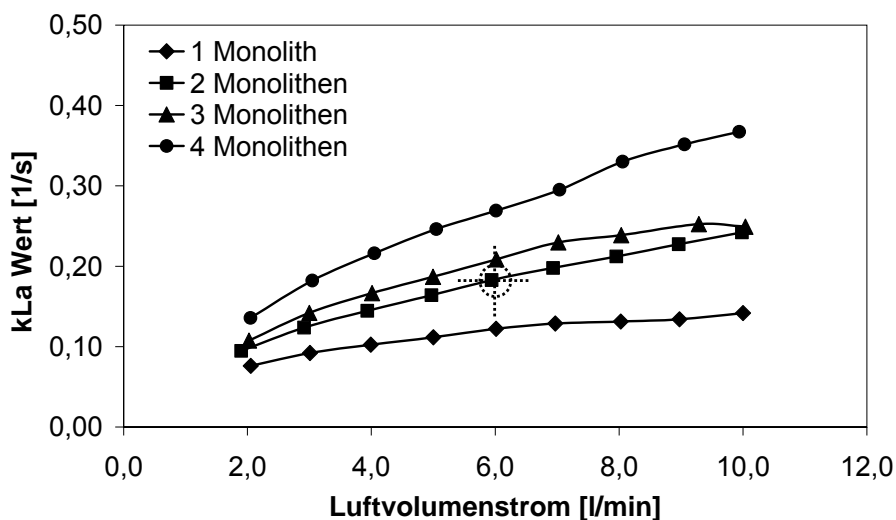


Abb.5.26: Einfluss der Monolithenanzahl auf den k_{La} Wert, SiC Monolithen mit Abstand, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, 1,4mm Blasen

In Abbildung 5.27 ist die Abhängigkeit des k_La Werts von der Monolithanzahl des Standardversuchs bei unterschiedlichen Luftvolumenströmen aufgetragen. Im Diagramm zeigt sich eine Zunahme des k_La Werts von etwa 50% bei einer Erhöhung des Monolithanzahl des Standardversuchs von zwei auf vier Monolithen. So erhöht sich zum Beispiel der k_La Wert bei einem Luftvolumenstrom von 6l/min von 0,18 auf 0,27 1/s und bei 8l/min von 0,21 auf 0,32 1/s.

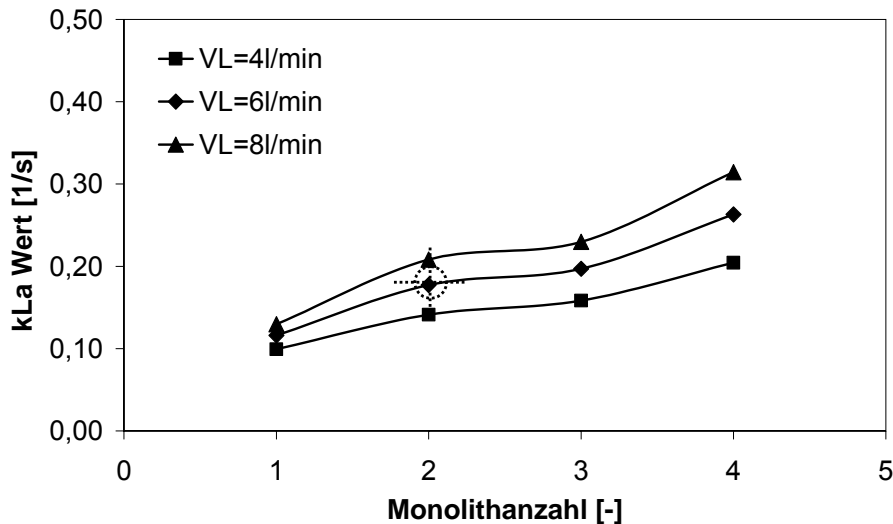


Abb.5.27: Einfluss der Monolithanzahl mit Abstand auf den k_La Wert des Standardversuchs, SiC Monolithen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, 1,4mm Blasen

Zur Überprüfung des Einflusses der Anzahl an eingebauten Monolithen auf den Volumenstrom der Flüssigkeit, wurde der Volumenstrom in Abhängigkeit der Monolithenanzahl bestimmt. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Monolithenanzahl zu keiner Veränderung des Volumenstroms führt bei identisch eingestellter Pumpenleistung (Abb.10.3 im Anhang).

Monolithlänge

Anstelle von mehreren gleichlangen Monolithen hintereinander mit einem jeweiligen Abstand von 10mm können auch einzelne längere Monolithen in den Reaktor eingebaut werden. In Abbildung 5.28 ist der Vergleich unterschiedlicher Monolithlängen bei zwei verschiedenen Blasengrößen aufgeführt.

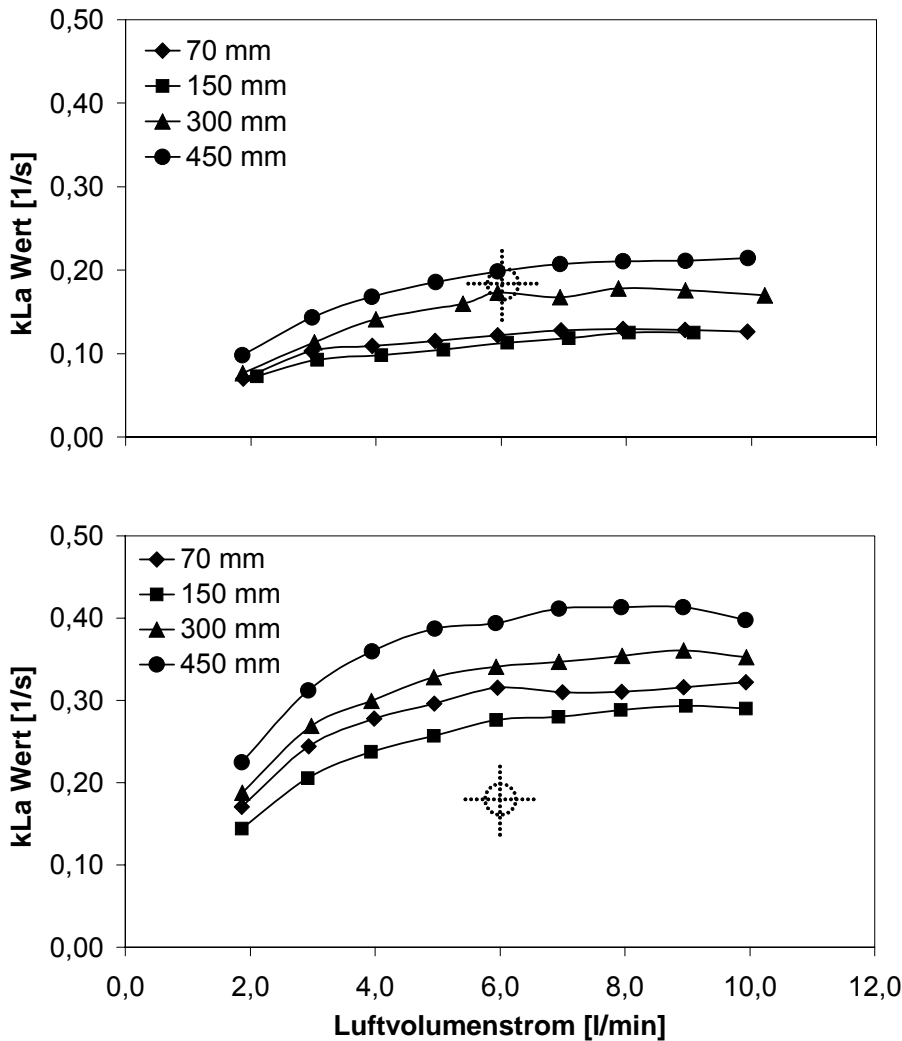


Abb.5.28: Einfluss der Monolithlänge auf den k_{La} Wert, SiC Monolithen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, oben.: 1,4mm Blasen, unten: 1,1mm Blasen

Der Einfluss der Monolithlänge ist deutlicher als der Einfluss der Monolithanzahl. Längere Monolithen liefern einen höheren k_{La} Wert. Der Längeneinfluss ist bei kleineren Blasen ausgeprägter als bei größeren. Vergleicht man die Abbildung 5.28 mit der Abbildung 5.26 erkennt man, dass bei einem Luftvolumenstrom (bei ansonsten auch gleichen Bedingungen) die Abweichung des k_{La} Werts bei nur 0,01 1/s liegt. Diese nur geringfügige Verbesserung des k_{La} Werts bei Verwendung von längeren Monolithen ohne Abstand wird ergänzt durch die Untersuchungen zum Einfluss des Abstands zwischen den Monolithen (s.u.).

Beim Einbau nur eines Monolithen mit einer Länge von 70mm in den Reaktor musste aus konstruktiven Gründen ein größeres Glasstück hinter den Monolithen eingebaut werden. Der somit größere Bereich mit erhöhtem Gasgehalt verglichen mit den anderen

Reaktorbauteilen und den anderen Versuchen führt dazu, dass der Versuch mit einem 70mm langen Monolithen einen fast identischen bzw. sogar einen höheren k_La Wert als der 150mm lange Monolith liefert.

Durch die Versuche mit unterschiedlichen Monolithlängen wurde der auch schon in den vorangegangenen Kapiteln ermittelte optimale Betriebsbereich des Reaktors bei einem Luftvolumenstrom von 6 l/min bestätigt. Auch hier verläuft die Kurvensteigung über den ganzen Bereich des Luftvolumenstroms degressiv und ab einem Luftvolumenstrom von 6l/min (ca.3vvm) verringert sich die Steigung bei allen untersuchten Fällen fast auf den Wert Null.

Da der Standardversuch mit zwei Monolithen (je 150mm) mit Abstand durchgeführt wird, kann der Einfluss der Monolithlänge ohne Abstand auf den k_La Wert nicht unmittelbar für den Standardversuch abgeschätzt werden. In Abbildung 5.29 ist trotzdem der Einfluss der Monolithlänge auf den k_La für unterschiedliche Luftvolumenströme aufgetragen. Bei einem geringeren Luftvolumenstrom von 4l/min nimmt der k_La Wert um 60% zu bei einer Verlängerung des Monolithen um 60%. Bei Luftvolumenströmen von 6 und 8l/min dagegen um ungefähr 80% bei gleicher Verlängerung. Die Blasengröße und der Flüssigkeitsvolumenstrom entsprechen dem Standardversuch.

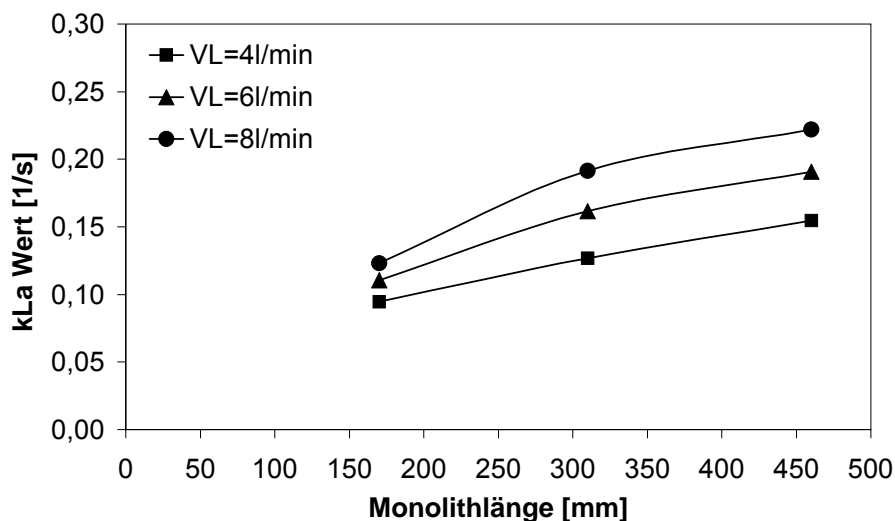


Abb.5.29: Einfluss der Monolithlänge auf den k_La Wert, SiC Monolithen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, 1,4mm Blasen

Monolithabstand

Die Keramikmonolithen können in dem verwendeten Screeningreaktor mit einem Abstand von 10mm und ohne Abstand hintereinander eingebaut werden. Sind die

150mm langen Monolithen mit einem Abstand von 10mm verschaltet, erhöht sich die Anzahl der Ein- und Ausströmbereiche für das Blasen-Flüssigkeitsgemisch im System. Die sich in den Kapillaren bildende Strömung reißt häufiger ab und muss sich neu bilden.

Abbildung 5.30 zeigt den Verlauf des volumetrischen Stoffübergangskoeffizient k_{La} für drei Monolithen von je 150mm Länge mit und ohne Abstand (ohne Abstand ergibt eine Gesamtlänge des Monolithen von 450mm) bei zwei unterschiedlichen Blasengrößen. Bei der Blasengröße des Standardversuchs von 1,4mm gibt es eine nur leichte Verbesserung des k_{La} Werts von 0,01 1/s (5%), dagegen bei kleineren Blasen von 1,1mm einen Anstieg von 30% bei dem Standard-Luftvolumenstrom von 6l/min (ca.3vvm). Eventuell ist als Grund für diesen Anstieg ein unterschiedlicher Verlauf des relativen Gasgehalts im Reaktor zu sehen. Eine detaillierte Begründung für das Verhalten kann im Rahmen dieser Arbeit allerdings nicht geliefert werden. Hierzu wären weitere Versuchsreihen mit und ohne Abstand bei unterschiedlichen Blasengrößen und Monolithlängen notwendig.

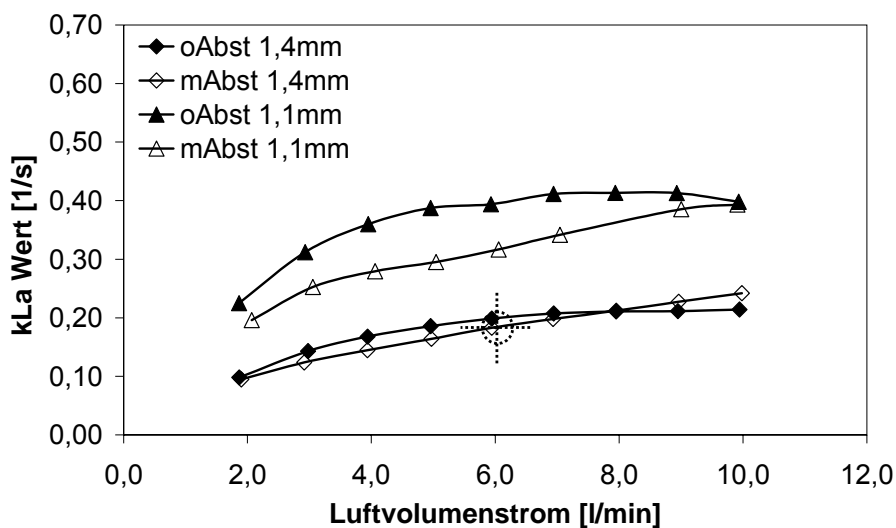


Abb.5.30: Einfluss des Abstands der Monolithen, 3 SiC Monolithen, 10,8l/s Flüssigkeitsvolumenstrom

Monolithgeometrie

Die verwendeten Keramikmonolithen aus Cordierit und Siliziumkarbid unterscheiden sich nicht nur im Werkstoff, sondern vor allem in der Geometrie ihrer Kanäle. Die Kanaldurchmesser von Cordierit sind kleiner als die von SiC (Tab.4.1). Durch eine höhere Anzahl von Kanälen und dünnere Wandstärken des Cordierits ergeben sich

allerdings gleiche Anströmflächen und damit gleiche Strömungsgeschwindigkeiten in den Kanälen (s.Kap.4.1). In Abbildung 5.31 sind zwei Messungen bei gleichen strömungstechnischen Bedingungen, aber unterschiedlichen Monolithgeometrien dargestellt.

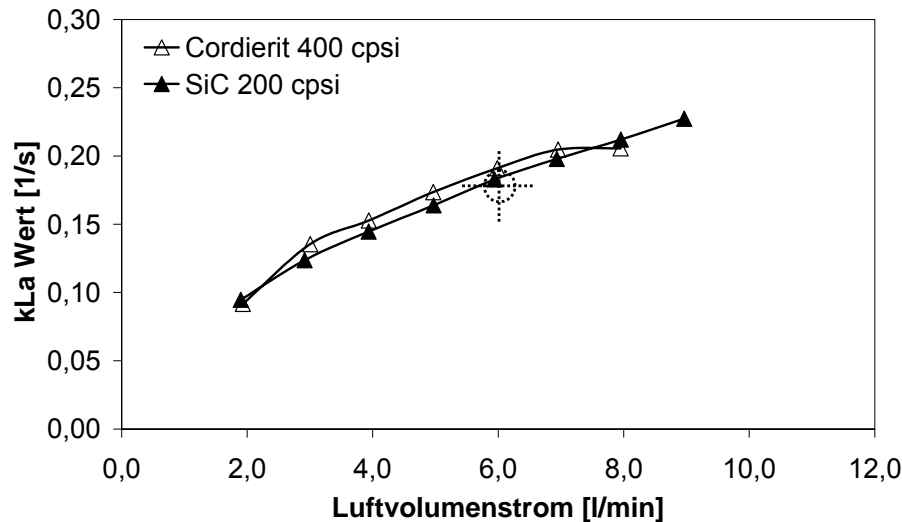


Abb.5.31: Einfluss der Geometrie der Monolithen, 2 Monolithen mit Abstand, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, 1,4mm Blasen

Bei einem Flüssigkeitsvolumenstrom von 10,8l/min, der dem Standardversuch entspricht, ist der Unterschied des k_{La} Werts kleiner als ca. 5%. Der Einfluss wird hier als nicht ausgeprägt genug angesehen, um einen eindeutigen Einfluss der unterschiedlichen Monolithgeometrie auf den k_{La} Wert nachweisen zu können. Bezüglich eines für die Immobilisierung wichtigen Oberflächen-zu-Volumen-Verhältnis liegt Cordierit in der Bewertung vor dem in dieser Arbeit verwendeten Siliziumkarbid (s.Tab.4.1). Andere Bewertungskriterien zur Beurteilung der Immobilisierung wie Oberflächenbeschaffenheit (Ladung, Hydrophilität etc.) werden in dieser Arbeit nicht berücksichtigt.

5.3.8 Einfluss des Füllstands im Abscheidebecken

Beim Hintereinanderschalten der Monolithen ändert sich bei gleichem Reaktorfüllvolumen der Füllstand im Abscheidebecken. Zur Bestimmung des Einflusses dieses Füllstands wurde ein Versuch durchgeführt, bei dem die Volumenströme der Luft und der Flüssigkeit konstant gehalten wurden, der Füllstand aber durch Ablassen von

Flüssigkeit in vorgegebenen Mengen variiert wurde. In Abbildung 5.32 ist die Abhängigkeit des k_{La} Werts vom Füllstand im Abscheidebecken aufgezeigt. Der Luftvolumenstrom wurde bei diesem Versuch so angepasst, dass sich eine konstante Begasungsrate von 2,2vvm ergab. Abbildung 5.33 zeigt eine Messung des k_{La} Werts nur im Abscheidebecken. Der Reaktor wurde hierfür mit fast komplett gefülltem Abscheidebecken betrieben, was einem Gesamtfüllvolumen der Flüssigkeit von 2700ml (alle andere Versuche mit 1900ml) und einem Füllstand von 70mm entspricht. Statt der Monolithen wurde ein 50mm kurzes Glasrohr eingebaut.

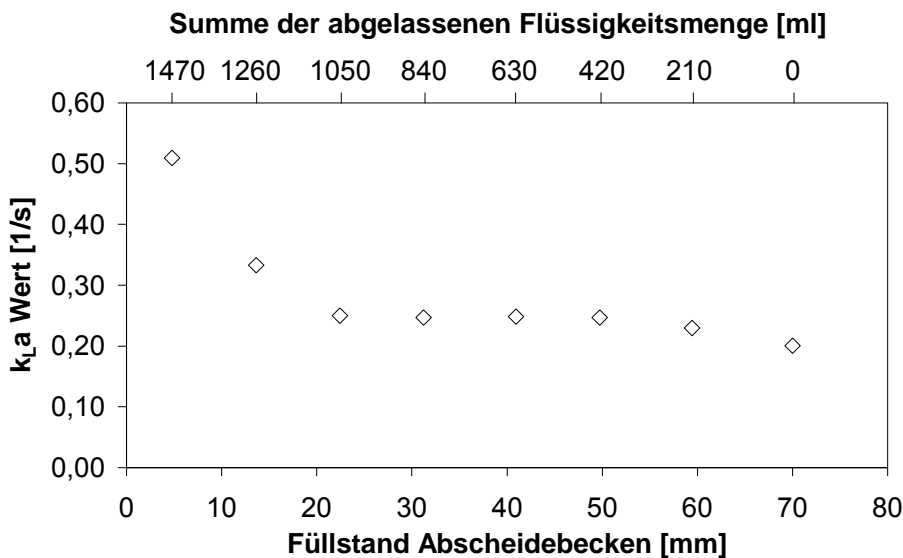


Abb.5.32: Einfluss des Füllstands im Abscheidebecken, 2 SiC Monolithen, 21,6l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, 2,2vvm Begasungsrate, 1,4mm Blasen

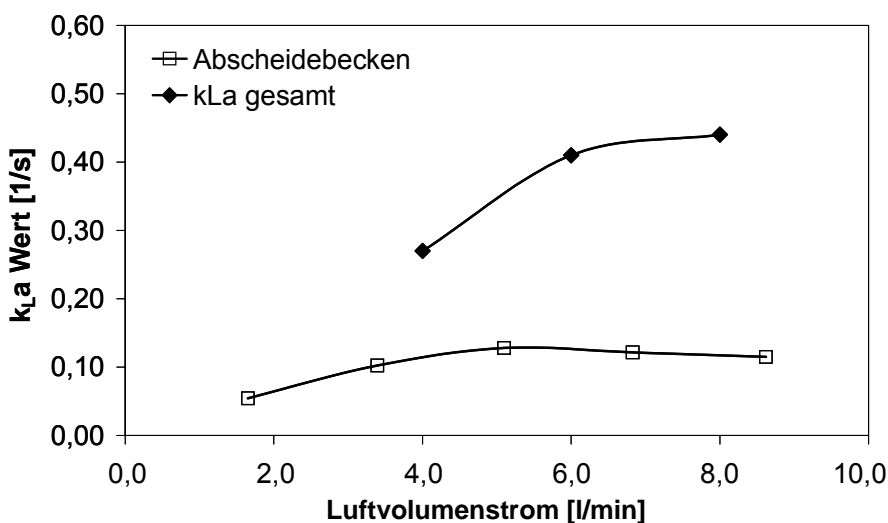


Abb.5.33: k_{La} Wert des Abscheidebeckens und des Reaktors mit 2 SiC Monolithen, 21,6l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, 1,4mm Blasen

Die Messungen wurden mit dem in dieser Arbeit maximal möglichen Flüssigkeitsvolumenstrom von 21,6l/min durchgeführt. Die in diesem Randbereich ermittelten Erkenntnisse lassen sich auf den voraussichtlichen Betriebsbereich übertragen.

Im Verhältnis zum sonst bei gleichen Bedingungen gemessenen k_{La} Wert beim Betrieb des Reaktors mit zwei Monolithen mit Abstand (in Abb. 5.33 mit „ k_{La} gesamt“ bezeichnet) weist das Abscheidebecken einen deutlich geringeren k_{La} Wert auf. Bei einem Luftvolumenstrom von 6l/min liegt der k_{La} Wert des Abscheidebeckens bei nur 30% des Versuchs mit Monolithen. Gründe hierfür sind die schlechtere Durchmischung des Abscheidebeckens und der wesentlich geringere relative Gasgehalt im Vergleich zum Einströmbereich und zu den Monolithen. Der Einfluss des Abscheidebeckens auf den gesamten Stoffübergangskoeffizienten wird aber erst ab einem hohen Füllstand (>50mm) deutlich, wie Abbildung 5.32 zeigt. Bei sehr geringem Füllstand (<20mm) werden Blasen von der Oberfläche mit in den Rücklauf eingezogen. Dadurch erhöht sich der relative Gasgehalt im Reaktor und damit auch der volumetrische Stoffübergangskoeffizient.

Bei allen im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen mit Variation der Monolithlänge/-anzahl, Volumenströme und Blasengröße lag der Füllstand zwischen 20 und 50mm. In diesem Bereich ist der k_{La} Wert unabhängig von dem Füllstand. Der Einfluss des Füllstands auf den k_{La} Wert kann somit vernachlässigt werden.

5.4 Relativer Gasgehalt im Reaktor

Der relative Gasgehalt ε_L (Gas- bzw. Blasenvolumen in der Flüssigkeit bezogen auf die Summe des Gas- und Flüssigkeitsvolumens im Reaktor) stellt eine wichtige Kenngröße zur Charakterisierung des Betriebsverhaltens des Strömungsreaktors dar. Kennt man den Gasgehalt an einem bestimmten Betriebspunkt, so können sich in Korrelation mit der Blasengröße Rückschlüsse auf die Stoffaustauschfläche ziehen lassen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Abhängigkeit des k_{La} -Werts vom Volumenstrom der umgepumpten Flüssigkeit, sowie vom relativen Gasgehalt des Reaktors bestimmt. Der Gasgehalt ist wiederum von den Volumenströmen der Luft und der Flüssigkeit und von der Blasengröße abhängig. Letzteres da sich durch eine langsamere Aufstiegs-geschwindigkeit volumenmäßig mehr kleinere als größere Blasen im Reaktor aufstauen.

Die Ergebnisse der Gasgehaltsuntersuchungen leisten einen Beitrag zur Aussage über den „optimalen Betriebspunkt“ des Strömungsreaktors.

5.4.1 Einfluss des Gasgehalts im Reaktor

Je nach Strömungsbedingungen und Blasengrößen ändert sich der relative Gasgehalt im Reaktor, wie genau wird in den nächsten Kapiteln erläutert. Der relative Gasgehalt wird durch Auffangen des Gases nach dem plötzlichen Ausschalten von Begasungseinheit und Pumpen bestimmt (s.Kap.4.2.3). In Abbildung 5.35 sind Messungen zum relativen Gasgehalt in Abhängigkeit des Luft- und Flüssigkeitsvolumenstroms und der Blasengröße in dreidimensionaler Form aufgezeigt. Bei geringen Volumenströmen der Flüssigkeit (<7,8l/min) konnte der relative Gasgehalt mit der in Kapitel 4.2.3 vorgestellten Methode nicht zuverlässig und reproduzierbar ermittelt werden. Wie schon in Kapitel 5.3.5 beschrieben, bildet sich bei geringen Flüssigkeitsvolumenströmen unterhalb der Keramikmonolithen ein Schaumpolster aus. Dieser undefiniert erhöhte Luftblasenanteil sorgt vermutlich für die stark schwankenden Gasgehaltmessungen im unteren Geschwindigkeitsbereich. Dieser Bereich wird in den Diagrammen in Abbildung 5.34 nicht dargestellt.

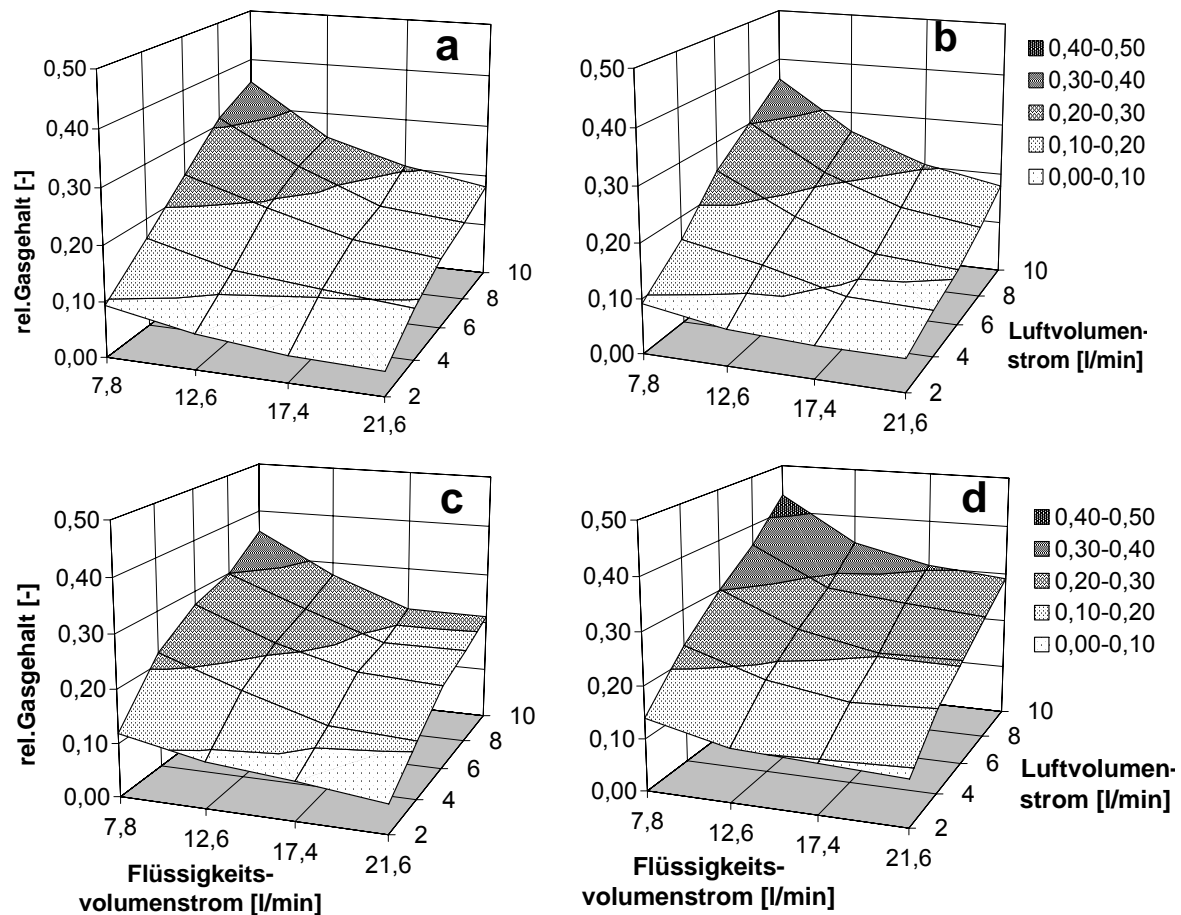


Abb.5.34: Relativer Gasgehalt bezogen auf Reaktorfüllvolumen

a: 2,1mm Blasen; b: 1,7mm Blasen; c: 1,4mm Blasen; d: 1,1mm Blasen

In den Diagrammen ist zu erkennen, dass der relative Gasgehalt mit steigendem Luftvolumenstrom zunimmt und mit steigendem Flüssigkeitsvolumenstrom abnimmt. Dieses Verhalten ist während aller durchgeführten Versuche schon mit bloßem Auge erkennbar. Die Versuche zeigen außerdem, dass mit kleineren Blasen die maximal mögliche Gasbeladung des Reaktors (im Rahmen der in dieser Arbeit variierten Parameter) bei Erhöhung des Luftvolumenstroms schneller erreicht ist als mit größeren Blasen bei gleichem Gasgehaltsmaximum. In der Auftragung des relativen Gasgehalts über dem Volumenstrom der Flüssigkeit erkennt man, dass die Erhöhung des Volumenstroms der Flüssigkeit bei kleinen Luftvolumenströmen zu einer nicht sehr ausgeprägten Abnahme des Gasgehalts führt. Erst bei höheren Luftvolumenströmen (≥ 4 l/min) hat der Volumenstrom der Flüssigkeit einen signifikanten Einfluss.

Mit dem Anstieg des relativen Gasgehalts bei steigendem Luftvolumenstrom lässt sich der gleichverlaufende Anstieg des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $k_{L,a}$ erklären. Die Gasgehalts-Kurven weisen einen ähnlichen Verlauf wie der $k_{L,a}$ Wert über

dem Luftvolumenstrom auf. Warum es bei einer Erhöhung des Volumenstroms der Flüssigkeit zu einer Erhöhung des $k_L a$ Werts kommt bei gleichzeitiger Abnahme des relativen Gasgehalts, soll mittels einer visuellen Bestimmung der Blasengrößen und des Strömungsverhaltens geklärt werden (s.Kap.5.4.3).

Der relative Gasgehalt fällt bei einer Erhöhung des Flüssigkeitsvolumenstroms zunächst ab, um sich bei weiterer Intensivierung der Flüssigkeitsumwälzung einem Minimalwert anzunähern. Durch eine Erhöhung des Volumenstroms der Flüssigkeit kommt es zu einer verstärkten Aufstiegs geschwindigkeit der Blasen, da sie mit der Flüssigkeit mitgerissen werden. Ab einem gewissen Wert der Flüssigkeit geschwindigkeit werden allerdings die Blasen im Abscheidebecken nicht mehr abgeschieden, sondern mit in den Flüssigkeitsumlauf gezogen. Gleichzeitig sinkt der mittlere Blasendurchmesser durch einen erhöhten Volumenstrom der Flüssigkeit (Kap.5.4.3), die Blasen aufstiegs geschwindigkeit wird durch diesen Effekt wieder verringert.

In der Auftragung des relativen Gasgehalts in Abhängigkeit vom Luftvolumenstrom (Abb.5.35) erkennt man im Bereich bis ungefähr 6l/min einen linearen Anstieg des Gasgehalts. Der Volumenstrom der Luft entspricht einer Gasleerrohrgeschwindigkeit von 0,06m/s. Die Gasleerrohrgeschwindigkeit ist die Strömungsgeschwindigkeit der Luft ohne Flüssigkeit im Glasbauteil vor den Monolithen (s.Abb.4.3). Bei höheren Luftgeschwindigkeiten wird der Anstieg des Gasgehalts mit dem Luftvolumenstrom bei Flüssigkeitsvolumenströmen von 7,8 und 12,6l/min degressiv. Die Grenze zwischen den beiden Bereichen wird in der Blasensäulen-Literatur als Übergang zwischen „homogenem“ und „heterogenem“ Strömungsbereich gekennzeichnet. Bei Flüssigkeitsvolumenströmen von 17,4 und 21,6l/min verläuft der Anstieg zum Ende des Messbereichs von 10l/min allerdings nicht degressiv. Bei diesen hohen Volumenströmen von Luft und Flüssigkeiten stösst das manuelle Messverfahren an seine Grenzen und die leicht progressiven Kurvenverläufe werden hier als Messungenauigkeiten gedeutet.

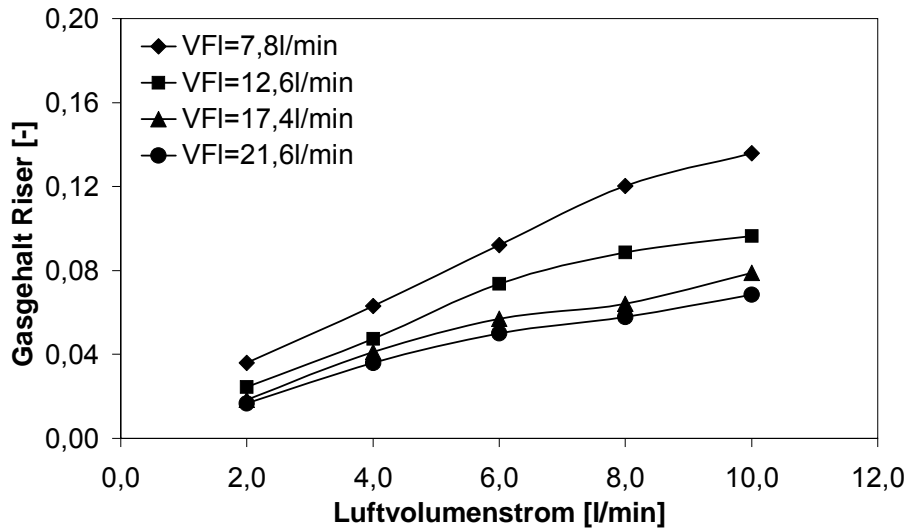


Abb.5.35: Relativer Gasgehalt in Abhängigkeit des Luftvolumenstroms, 2 SiC Monolithen, 2,1mm Blasen

5.4.2 Korrelation zwischen Gasgehalt und Stoffübergang

Bei den Messungen des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten k_{La} in Kapitel 5.3 kam es bei allen untersuchten Parametern zu einer Abnahme der Steigung des k_{La} Werts über dem Luftvolumenstrom. Das Verhalten der Werte stimmt mit den in Kapitel 5.4 vorgestellten Gasgehaltsmessungen sehr gut überein. Der volumetrische Stoffübergang im Reaktor wird durch eine Erhöhung des relativen Gasgehalts im Reaktor gesteigert. Eine Erhöhung des relativen Gasgehalts im Reaktor kann allerdings auf unterschiedliche Weise erreicht werden. Sowohl eine Erhöhung des Luftvolumenstroms, eine Verkleinerung der Blasen und auch eine Vergrößerung des Reaktorbauteils, in dem der größte Gasgehalt vorliegt, führen zu einem gesteigerten relativen Gasgehalt im hydrodynamischen Reaktor.

Trägt man Gasgehalt und k_{La} Wert gemeinsam in einem Diagramm über dem Flüssigkeitsvolumenstrom auf und nähert die Kurvenverläufe durch Asymptoten an, so lässt sich folgendes feststellen: Der Volumenstrom der Flüssigkeit, bei dem der relative Gasgehalt nur noch langsam absinkt, um sich schließlich einem Minimum anzunähern, ist nahezu gleich dem Flüssigkeitsvolumenstrom, ab dem die Kurve des k_{La} Werts einen Wendepunkt durchläuft. Der Grund dafür ist, dass ab einem gewissen Flüssigkeitsvolumenstrom ein Teil der im Reaktor befindlichen Blasen im

Entgasungskopf nicht mehr abgeschieden, sondern in den Downcomer gerissen wird. Dadurch kann es vorkommen, dass Blasen mehrere Male durch den Reaktor zirkulieren, wobei sie bei jedem Umlauf einen Teil des in ihnen befindlichen Sauerstoffs an die flüssige Phase abgeben. Die Intensität des Stoffübergangs wird dabei immer geringer, weil die Konzentration von Sauerstoff in den Blasen mit jedem Umlauf sinkt. Zudem werden die Blasen mit jedem Umlauf durch die Abgabe von Sauerstoff kleiner, wodurch es wiederum wahrscheinlicher wird, dass sie auch beim nächsten Durchlauf durch den Entgasungskopf nicht abgeschieden werden. Das gesamte Phänomen wird außerdem dadurch gefördert, dass mit einer Erhöhung der Flüssigkeitsumwälzung die Neigung zum Blasenzerfall (und damit zu kleineren Blasen) zunimmt. Dies lässt sich qualitativ auch bei den Versuchen beobachten.

Für eine Blasengröße von 1,4mm und einen Luftvolumenstrom von 6l/min ist dieses Phänomen in Abbildung 5.36 dargestellt. Der Flüssigkeitsvolumenstrom, bei dem sich die Steigungen der Verläufe sowohl des Gasgehaltes als auch des k_La Wertes ändern, liegt bei beiden Begasungsplatten zwischen 17 und 18l/min. Auch bei einer Blasengröße von 1,1mm konnten die Verläufe bestätigt werden, siehe Abbildung 10.4 im Anhang.

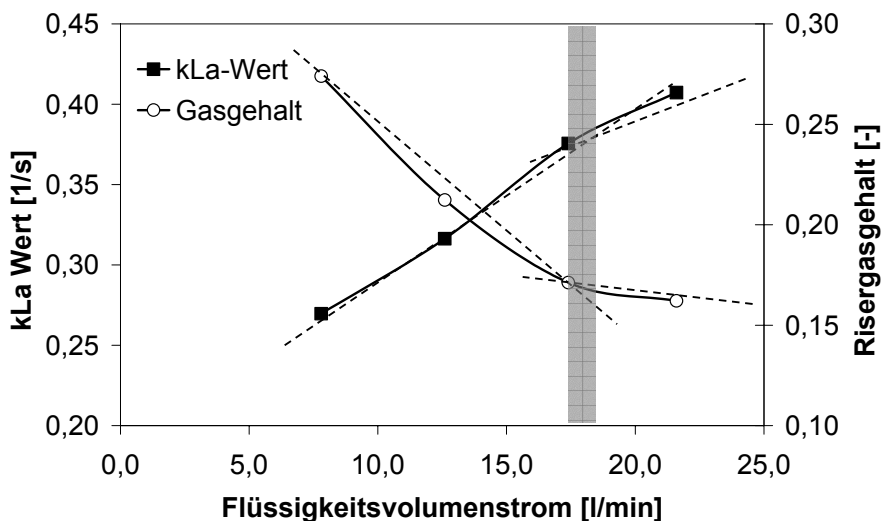


Abb.5.36: Korrelation zwischen Gasgehalt und k_La Wert, 2 SiC Monolithen, 6l/min Luftvolumenstrom, 1,4mm Blasen

5.4.3 Bestimmung der Blasengröße

Zu Überprüfung des Blasenverhaltens im Reaktor und den Kapillaren wurde ein eingegossenes Bündel aus Glaskapillaren in den Reaktor eingebaut. Die durchsichtigen

Glaskapillaren bieten die Möglichkeit, das Blasenverhalten innerhalb des Monolithen zu beobachten. Die Versuche wurden mit dem in Kapitel 4.3 vorgestellten Stoffsystem durchgeführt. Die Ergebnisse sind nicht uneingeschränkt auf poröse und rauhe Keramikkapillare mit quadratischem Querschnitt übertragbar, liefern aber eine ergänzende Abschätzung für das Strömungsverhalten der Blasen im Reaktor und der Ausbildung von Taylorflow in den Monolithen. In Tabelle 5.3 sind die geometrischen Abmessungen des Glaskapillarbündels zum Vergleich mit den Werten der SiC- und Cordierit-Monolithen (s.Tab.4.1) aufgeführt. Auffallend ist besonders das abweichende Flächenverhältnis der Anströmfläche der Glaskapillaren. Bei gleichem Volumenstrom der Flüssigkeit im Reaktor strömt das Zweiphasengemisch demzufolge fast mit dreifacher Geschwindigkeit durch die Glaskapillaren als durch die keramischen Kanalstrukturen.

Tab.5.3: Vergleich der geometrischen Verhältnisse der Monolithen

	Glaskapillare
Zellzahl [cpsi]	2,5
Kanalbreite [mm]	2,7
Kapillarquerschnitt [-]	rund
Anströmfläche der offenen Kanäle [mm²]	235

In Tabelle 4.2 sind die Eigenschaften der verwendeten Begasungsplatten aufgeführt. Es wurden im Rahmen dieser Arbeit Versuche an den Glaskapillaren mit der Begasungsplatte 0 und 1 (s.Tab.4.2) durchgeführt. Dabei zeigte sich, dass die Blasenabschnitte in den Kapillaren bei beiden Begasungsplatten die gleiche Länge aufweisen. Für die Länge der Blasen scheint in den Kapillaren also nicht die Blasengröße, sondern der Luftvolumenstrom bzw. der Gasgehalt vor dem Monolithen entscheidend zu sein. Eine weitere Beobachtung war, dass es vor dem Glaskapillarbündel zu einem deutlichen Anstieg des Gasgehalts mit steigendem Luftvolumenstrom kommt und der Gasgehalt außerdem bei hohem Flüssigkeitsvolumenstrom (ab ca. 17l/min) absinkt. Zusätzlich kommt es zu abnehmenden Blasengrößen mit zunehmendem Flüssigkeitsvolumenstrom. Bei geringem Flüssigkeitsvolumenstrom (<6l/min) werden allerdings nicht alle Glaskapillare durchströmt. Außerdem bekommt die Flüssigkeit durch hohe Volumenströme eine 'milchige' Farbe, vermutlich durch einen verstärkten Rückstrom

von kleinen Blasen, die bei hohen Flüssigkeitsvolumenströmen nicht mehr abgeschieden werden. Einige exemplarische Abbildungen des Gasgehalts vor und in den Glaskapillaren sind in Tabelle 5.4 und Tabelle 5.5 zusammengestellt (ausführlichere Darstellung im Anhang, Tab.10.1 und Tab.10.2).

Tabelle 5.4: Blasenkonfiguration vor dem Monolithen aus Glaskapillaren

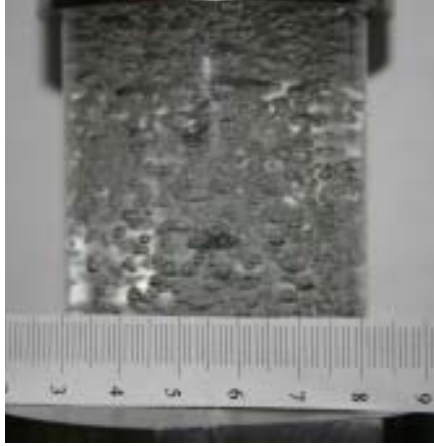

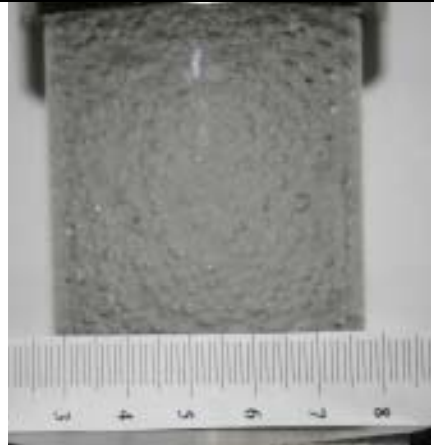







<p>Flüssigkeits- volumenstrom 12,6 l/min Luftvolumenstrom 2 l/min</p>		
<p>Flüssigkeits- volumenstrom 12,6 l/min Luftvolumenstrom 10 l/min</p>		
<p>Flüssigkeits- volumenstrom 21,6 l/min Luftvolumenstrom 10 l/min</p>		
	<p>Berechnete Blasengröße 2,1mm</p>	<p>Berechnete Blasengröße 1,7mm</p>

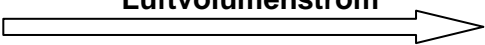


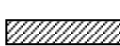

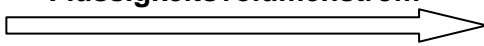




Tabelle 5.5: Gasgehalt in dem Glaskapillarenbündel

<p>Luftvolumenstrom 2 l/min Berechnete Blasengröße 2,1 mm</p>		
<p>Luftvolumenstrom 10 l/min Berechnete Blasengröße 2,1 mm</p>		
	<p>Flüssigkeitsvolumenstrom 12,6 l/min</p>	<p>Flüssigkeitsvolumenstrom 21,6 l/min</p>

Bei Einsatz der vier unterschiedlichen Begasungsplatten kam es zu einer Zunahme der Blasengröße mit Erhöhung des Luftvolumenstroms und zu einer Abnahme der Blasengröße mit steigendem Volumenstrom der Flüssigkeit.

In Tabelle 5.6 sind die Ergebnisse der Blasengrößenmessungen vor den Keramikmonolithen zusammengefasst. Die Vergrößerung der schraffierten Kästchen in der Tabelle steht für eine Zunahme des Parameters mit dem Luft- bzw. Flüssigkeitsvolumenstrom.

Tab.5.6: Auswertung der Blasenversuche in Glaskapillaren

	Luftvolumenstrom 	
Blasengröße vor dem Monolithen		
Gasgehalt vor dem Monolithen		
	Flüssigkeitsvolumenstrom 	
Blasengröße vor dem Monolithen		
Gasgehalt vor dem Monolithen		

Bei den Blasenversuchen mit Glaskapillaren kam es zu einer Zunahme der beobachteten Blasengröße mit steigendem Luftvolumenstrom. Bei einem konstantem Flüssigkeitsvolumenstrom von 12,6l/min waren zum Beispiel die Blasen bei einem Luftvolumenstrom von 2l/min vor den Glaskapillaren ca.1-2mm groß und bei einem Luftvolumenstrom von 10l/min bis zu ca.3mm. Gleichzeitig wurde eine Zunahme des relativen Gasgehalts vor dem Monolithen beobachtet. Bei einer Zunahme des Flüssigkeitsvolumenstroms von 7,8 auf 21,6l/min kam es bei einem konstanten Luftvolumenstrom von 6l/min zu einer Verringerung der beobachteten Blasengröße von ca.2-3mm auf nur noch ca.1-2mm. Der relative Gasgehalt sank gleichzeitig.

Bezieht man die Abhängigkeit des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten von den Volumenströmen der Luft und der Flüssigkeit nur auf den relativen Gasgehalt und die beobachtete Blasengröße, ergeben sich folgende Zusammenhänge:

1. Bei der Zunahme des k_{La} Werts mit steigendem Luftvolumenstrom ist der damit verbundene Anstieg des relativen Gasgehalts im Reaktor, der vorallem im Aufströmer (s.Abb.4.3) bzw. vor den Monolithen stattfindet, die entscheidende Größe.
2. Bei Erhöhung des Volumenstroms der Flüssigkeit kommt es durch die damit erreichte Verringerung des Blasendurchmessers zu einer Verbesserung des k_{La} Werts. Die Verringerung überwiegt die Abnahme des relativen Gasgehalts.
3. Die abnehmende Blasengröße bei steigendem Flüssigkeitsvolumenstrom erklärt auch, warum es bei hohen Luftvolumenströmen nur noch durch eine Erhöhung des Flüssigkeitsvolumenstroms zu einer Verbesserung des Stoffübergangs kommt.

Mit kleineren Blasen ist zwar eine schnellere Gasbeladung des Systems mit steigendem Luftvolumenstrom möglich, gleichzeitig bieten kleinere Blasen aber vor allem eine größere Oberfläche und damit Stoffaustauschfläche als größere Blasen.

Blasengrößenberechnung

Die Berechnung der Primärblasengrößen, die an der porösen Glasplatte gebildet werden, erfolgte nach den in Kapitel 3.4.2 dargestellten Gleichungen. Aus dem Gleichgewicht der Grenzflächenkraft und der Auftriebskraft errechnen sich nach der Kapillaritätstheorie /Siemes, 1954/ mit der Gleichungen 3.27 die in der Tabelle 5.7 dargestellten Werte für die Primärblasengröße an der jeweiligen Begasungsplatte. Die Werte stimmen mit den in den Versuchen beobachteten und fotografisch ausgewerteten Blasengrößen bei geringen Volumenströmen überein.

Tab.5.7: Primärblasengröße nach der Kapillaritätstheorie /Siemes, 1954/

Glasfilterplatte	0	1	2	3
Porenbereich	160–250 µm	100–160 µm	40–100 µm	16–40 µm
gerechnete Blasengröße in Wasser nach Gl.3.27	2,1 mm	1,7 mm	1,4 mm	1,1 mm

Mit der an der Blase wirkende Widerstandskraft wird von /Mersmann, 1962/ die erweiterte Gleichung 3.30 angegeben. Mit dieser Gleichung lassen sich für den in dieser Arbeit verwendeten Fall Blasengrößen zwischen 5 und 14mm errechnen. Blasen mit diesen Durchmessern konnten allerdings während keiner Versuchsreihe beobachtet werden und die Gleichung wird somit als nicht geeignet angesehen. Die Einführung der dimensionslosen Kennzahlen Weber-Zahl und Froude-Zahl ermöglicht eine dimensionslose Schreibweise der Gleichung 3.30. Die Berechnung der Blasengrößen mit dieser Gleichung ergeben auch die Werte in Tabelle 5.7.

Eine sehr einfache Gleichung zu Berechnung des Blasenvolumens wurde von /Davidson, 1960/ aufgestellt, die eine Blasengröße unabhängig vom Porendurchmesser berechnet. Mit ihr ergeben sich Blasengrößen in Abhängigkeit der Volumenstroms der Luft (Tab.5.8).

Tab.5.8: Primärblasengröße nach Gleichung 3.35 /Davidson, 1960/

Luftvolumenstrom	2 l/min	4 l/min	6 l/min	8 l/min	10 l/min
gerechnete Blasengröße nach Gl.3.35	3,1 mm	3,7 mm	4,1 mm	4,4 mm	4,7 mm

Nach /Siemes, 1956/ berechnen sich für den Bereich des Strahlgasens die Blasengrößen nach der Gleichung 3.36 zu Werten unterhalb von 500µm bei allen Begasungsplatten und Luftvolumenströmen.

Es wird in dieser Arbeit zur Vergleichbarkeit der verwendeten Begasungsplatten wegen der besten Übereinstimmung mit den beobachteten Blasengrößen (s.Kap.5.4.3) von einer Blasengröße nach Gleichung 3.27 ausgegangen.

5.5 Spezifischer Leistungseintrag

Für die Ermittlung eines optimalen Betriebspunktes des hydrodynamischen Strömungsreaktors muss neben dem Stoffübergang auch der Leistungseintrag in das System beurteilt werden, der zur Erzeugung von optimierten Stoffübergängen notwendig ist. Der spezifische Gesamtleistungseintrag des hier untersuchten Reaktors setzt sich aus dem Anteil der Pumpen und dem Anteil durch Einblasen der Luft in den Reaktor zusammen (s.Kap.3.4.4). Die beiden Teilleistungseinträge sind von den Parametern wie Luft- und Flüssigkeitsvolumenstrom, sowie Monolithenanzahl und -länge abhängig und beeinflussen sich gegenseitig. Wird einer der Teilleistungseinträge gezielt erhöht, ob durch die Steigerung des Luft- oder des Flüssigkeitsvolumenstroms, steigt unterhalb der Monolithen im Einströmbereich (s.Abb.4.3) der Druck an. Gegen diesen erhöhten Druck müssen sowohl die Begasungseinrichtung als auch die Pumpen arbeiten.

Die beiden parallelgeschalteten Pumpen bringen Leistung gegen den Druckverlust der Strömung auf. Der Druckverlust setzt sich aus der Flüssigkeitsreibung und aus den Verwirbelungen und Ablösungen der Strömung aufgrund von Einschnürungen, Umlenkungen und Durchmessersprüngen zusammen. Dieser Anteil des Leistungseintrags durch die Pumpen ist von der Konstruktion des Reaktors abhängig.

Der Leistungseintrag durch Begasung setzt sich aus der Expansionsleistung sowie der für die Bildung der Blasen benötigte Leistung zusammen (s.Kap.3.4.4). Die Leistung zur

Bildung der Blasen ist allerdings nach /Kiecz, 2005/ mit maximal 1,2% des Gesamtleistungseintrags verschwindend gering und wird vernachlässigt. Detaillierte Ergebnisse der Anteile der Leistungsbilanz werden von /Kiecz, 2005/ zusammengefasst. In den folgenden Kapiteln wird auf einige entscheidende Erkenntnisse der Leistungseintragsmessungen eingegangen.

5.5.1 Einfluss der Volumenströme

Volumenstrom der Flüssigkeit

Die gesamte Strömung im Reaktor kann mit Ausnahme der Einströmbereichs ohne Glasbauteil (s.Abb.4.3) und des Abscheidebeckens als Rohrströmung idealisiert werden. Bei Rohrströmungen steigt der Druckverlust linear mit dem Flüssigkeitsvolumenstrom an, damit auch der Leistungseintrag. Abbildung 5.37 zeigt den spezifischen Gesamtleistungseintrag (s.Kap.3.4.4) bei steigendem Flüssigkeitsvolumenstrom und unterschiedlicher Blasengröße.

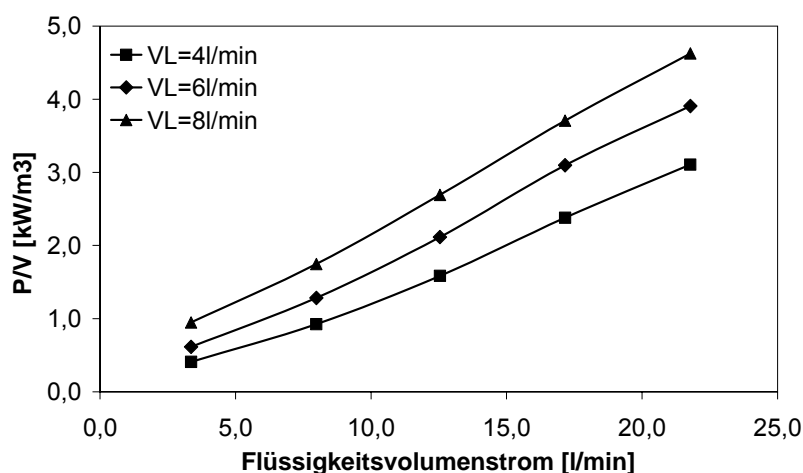


Abb.5.37: Spezifischer Leistungseintrag bei steigendem Flüssigkeitsvolumenstrom, 2 SiC Monolithen, 1,4mm Blasen

Wie aus der Abbildung ersichtlich, ist der Verlauf des Leistungseintrages über dem Volumenstrom der Flüssigkeit nahezu linear. Der zusätzliche Druckaufbau durch höhere Luftvolumenströme gegen den die Pumpen arbeiten müssen ist für die unterschiedliche Steigung der Geraden verantwortlich. Der Leistungseintrag ist folglich auch abhängig von dem Luftvolumenstrom.

Volumenstrom der Luft (Begasungsrate)

Der Einfluss des Luftvolumenstroms auf den Leistungseintrag wird in den folgenden Kapiteln verdeutlicht. In den Abbildungen ist jeweils der spezifische Leistungseintrag in Abhängigkeit vom Luftvolumenstrom und von der Blasengröße, der Monolithanzahl und der Monolithlänge aufgetragen. In allen Versuchen steigt der Druck im Reaktor vor den Monolithen mit dem Luftvolumenstrom und damit auch der Leistungseintrag.

Die Zahnradpumpen sorgen für einen konstanten Flüssigkeitsvolumenstrom und die Begasungsseinrichtung für einen konstanten Luftvolumenstrom. Da mit steigendem Luftvolumenstrom ein höherer Gesamtvolumenstrom den Aufströmer (Riser, s.Kap.4.2) des Reaktors durchströmt, steigt folglich auch die mittlere Geschwindigkeit des Zweiphasensystems in diesem Teil. Der Druck vor den Monolithen steigt mit zunehmendem Luftvolumenstrom an, damit auch der Druck unterhalb der Glasfilterplatte in der Luftzufuhr.

5.5.2 Einfluss der Blasengröße

Abbildung 5.38 zeigt, dass der mittlere Blasendurchmesser einen nur sehr geringen Einfluss auf den spezifischen Leistungseintrag besitzt. Die Versuche mit unterschiedlicher Blasengröße wurden mit zwei SiC Monolithen ohne Abstand bei einem konstanten Flüssigkeitsvolumenstrom von 10,8l/min durchgeführt. Der Luftvolumenstrom wurde variiert. Bei einem Luftvolumenstrom von 6l/min weichen die Leistungseinträge bei Primärblasengrößen zwischen 1,4 und 2,1mm nur um 4,2% von einander ab. Die Abweichung liegt im Rahmen der Messungenauigkeit. Der Wert für den Leistungseintrag der Primärblasengröße von 1,1mm liegt bei dem gleichen Luftvolumenstrom allerdings um 13,5% oberhalb des Wertes bei einer Primärblasengröße von 1,4mm. Diese Abweichung ergibt sich, da bei dieser Versuchsreihe 23mm längere SiC Monolithen verwendet wurden. Der Einfluss der Monolithlänge wird im Kapitel 5.5.3 noch beschrieben.

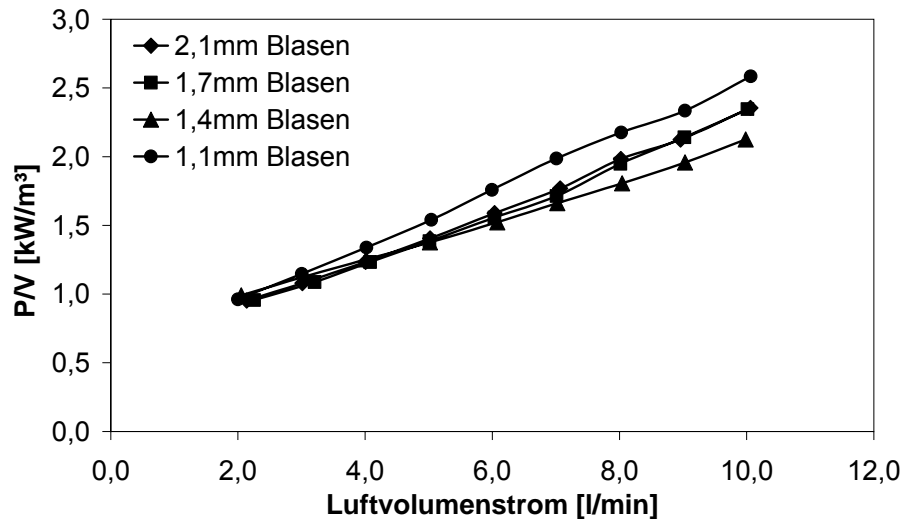


Abb.5.38: Einfluss des mittleren Blasendurchmessers auf den Leistungseintrag, 2 SiC Monolithen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom

Betrachtet man nur die Blasengrößen zwischen 1,4 und 2,1mm folgt aus den oben aufgeführten Ergebnisse, dass der spezifische Leistungseintrag linear mit dem Volumenstrom der Luft und der Flüssigkeit ansteigt und unabhängig von der Blasengröße ist.

5.5.3 Einfluss der keramischen Monolithe

Monolithanzahl

Abbildung 5.39 zeigt den Einfluss der Monolithenanzahl auf den spezifischen Gesamtleistungseintrag. Bei Einbau von mehreren Monolithen muss das Zweiphasensystem eine verhältnismäßig längere Strecke durch die Monolithen zurücklegen, damit steigt die durch Reibung dissipierte Energie und der Druck in der Reaktorbasis. Um einen konstanten Volumenstrom der Flüssigkeit aufrecht zu erhalten, müssen die Pumpen mehr Leistung in das System einbringen. Da der gaseitige Leistungseintrag vom Druck in dem Einströmbereich des Reaktors abhängt, nehmen auch die Monolithenanzahl und –länge Einfluss. Der Gesamtleistungseintrag steigt nahezu linear mit dem Luftvolumenstrom für eine unterschiedliche Monolithenanzahl an. Bei Betrachtung nur des flüssigkeitsseitigen Leistungseintrags ergeben sich gleiche Steigungen der Kurven (s.Gleichung 3.47). Bei der gaseitigen Betrachtung nimmt allerdings die Steigung mit der Monolithanzahl zu (s.Gleichung 3.50) und dadurch dann auch die Steigung des Gesamtleistungseintrags. Wie nicht anders zu erwarten,

bedeutet eine höhere Monolithenanzahl auch einen höheren spezifischen Gesamtleistungseintrag. Der Gesamtleistungseintrag über der Monolithanzahl ist in Abbildung 10.6 im Anhang aufgetragen. Es zeigt sich ein linearer Zusammenhang der beiden Größen.

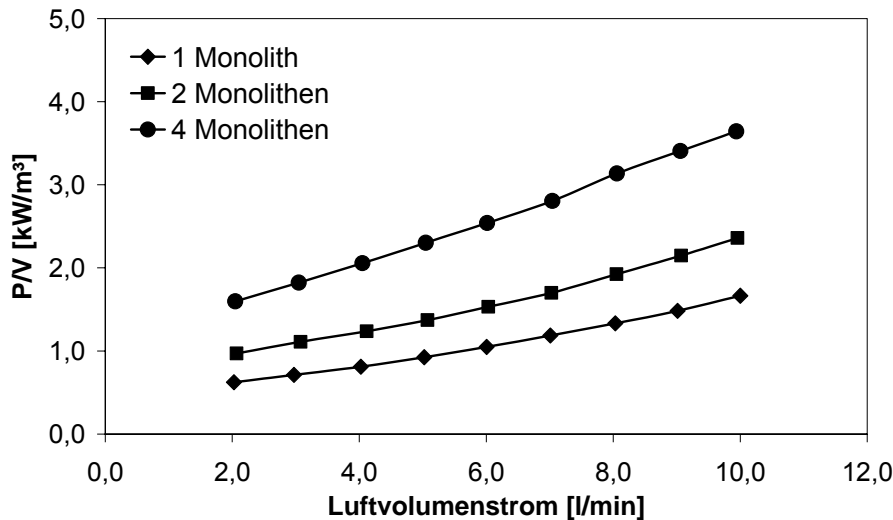


Abb.5.39: Einfluss der Monolithenanzahl (ohne Abstand) auf den Gesamtleistungseintrag in Abhängigkeit vom Luftvolumenstrom, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, 1,4mm Blasen

Monolithlänge

Ähnlich wie die Monolithanzahl verhält sich auch der Einfluss der Monolithlänge auf den spezifischen Gesamtleistungseintrag. Längere Monolithen (ohne Abstand) haben einen höheren spezifischen Gesamtleistungseintrag zur Folge. Abbildung 5.40 gibt den linearen Verlauf des Leistungseintrags mit dem Luftvolumenstrom wieder für unterschiedliche Blasengrößen. In Abbildung 10.6 im Anhang ist der spezifische Leistungseintrag über der Monolithlänge aufgetragen. Es zeigt sich auch hier ein linearer Zusammenhang.

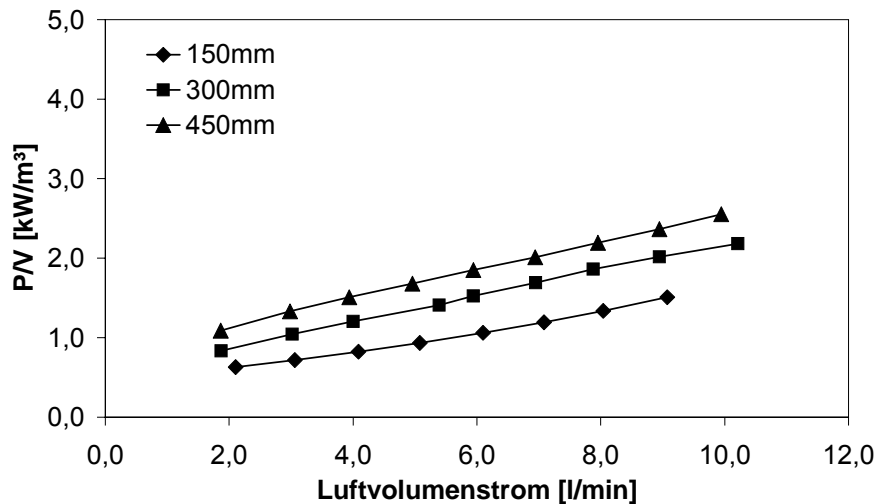


Abb.5.40: Einfluss der Monolithenlänge (ohne Abstand) auf den spez. Gesamtleistung in Abhängigkeit vom Luftvolumenstrom, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, 1,4mm Blasen

5.5.4 Einfluss des Leistungseintrags auf den k_{La} Wert

Volumenströme

Wie bereits erwähnt hängt der spezifische Leistungseintrag von den Volumenströmen, der Monolithenanzahl und -länge ab. Diese drei Parameter haben neben dem mittlerem Blasendurchmesser aber auch einen erheblichen Einfluss auf den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten k_{La} (s.Kap.5.3).

Abbildung 5.41 stellt die Abhängigkeit des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten vom spezifischen Gesamtleistungseintrag dar. Bei den Versuchen wurden jeweils zwei SiC Monolithen (je 150mm) im Abstand von 10mm verwendet. Bei der Versuchsdurchführung wurde bei jeweils konstantem Luftvolumenstrom von 4, 6 und 8l/min der Volumenstrom der Flüssigkeit schrittweise erhöht (s.Kap.4.3). Weiterhin wurde der Einfluss unterschiedlicher Primärblasengrößen untersucht. Abbildung 5.41a gibt das Verhalten für eine Primärblasengröße von 1,4mm und Abbildung 5.41b eine Primärblasengröße von 1,1mm wieder (1,7mm Blasen im Anhang Abb.10.8). Wie oben dargestellt, erhöht sich bei einer Steigerung des Flüssigkeitsvolumenstroms der gasseitige Leistungseintrag.

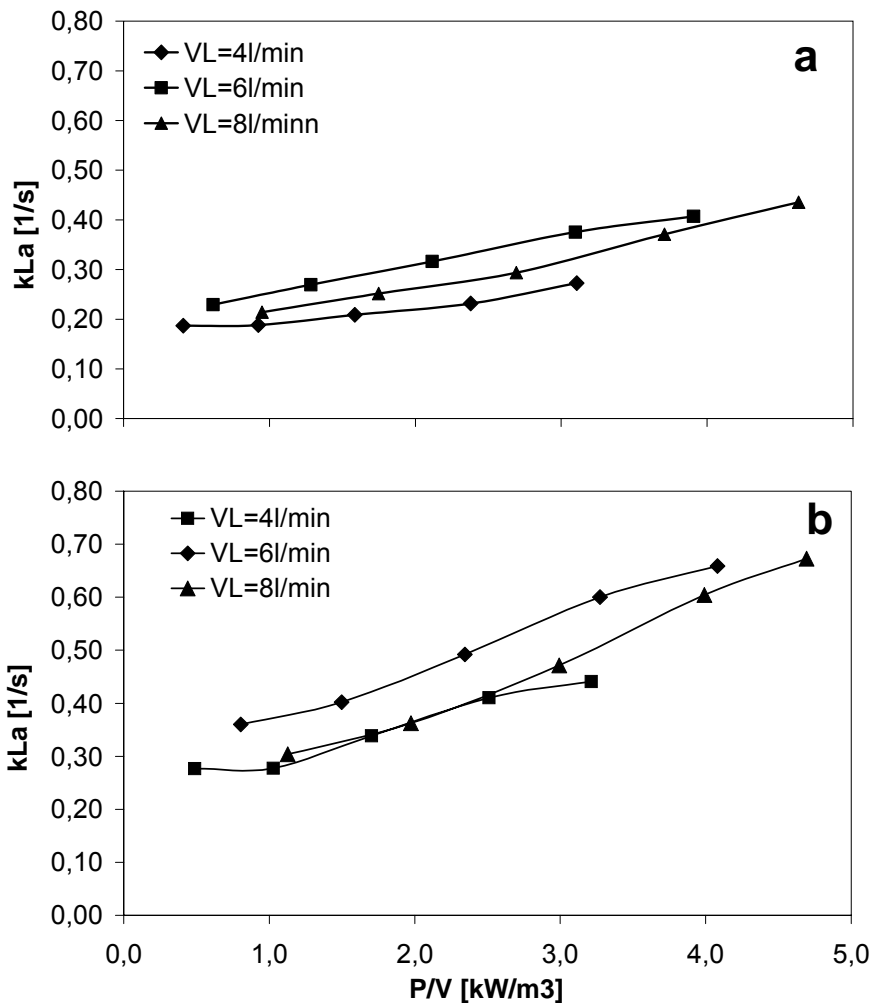


Abb.5.41: Einfluss des spez. Gesamtleistungseintrags auf den k_{La} Wert, 2 SiC Monolithen, a: 1,4mm Blasen, b: 1,1mm Blasen

Wie nicht anders zu erwarten, liegt der Kurvenverlauf des Luftvolumenstroms 4l/min unterhalb der anderen beiden, da hier weniger Luft einbracht wird und dementsprechend weniger Sauerstoff übergeht. Auffällig ist aber, dass die Kurven des Luftvolumenstroms 6l/min über den Kurven des Luftvolumenstroms 8l/min verlaufen.

Der volumetrische Stoffübergangskoeffizient k_{La} kann nicht beliebig mit dem Luftvolumenstrom gesteigert werden, wie schon in Kapitel 5.3 beschrieben. Es stellt sich bei Erhöhung des Luftvolumenstroms ein Maximum des Stoffübergangs ein und eine weitere Erhöhung führt zu keiner weiteren Verbesserung des k_{La} Werts. Diese Erkenntnis ist auch die Erklärung für die Kurvenverläufe der k_{La} Werte über den Leistungseinträgen in Abbildung 5.41. Wegen des höheren Drucks unterhalb der Monolithen steigt der spezifische Gesamtleistungseintrag bei zusätzlicher Erhöhung des

Luftvolumenstroms weiter an. Der optimale Betriebspunkt des Versuchsreaktors liegt bei einem Luftvolumenstrom von ca. 6l/min.

In Abbildung 5.41 ist auch eine Abhängigkeit der Blasengröße zu erkennen. Während sich bei einem mittleren Primärblasendurchmesser von 1,7mm der Stoffübergang mit dem spezifischen Gesamtleistungseintrag nicht signifikant erhöht, steigt er bei einem Durchmesser von 1,1mm doch erheblich an. Auf den Einfluss des mittleren Blasendurchmessers wird im folgenden Abschnitt eingegangen.

Blasengröße

Während der Blasendurchmesser keinen Einfluss auf den spezifischen Gesamtleistungseintrag hat, kann der Stoffübergang mit kleinen Blasen beträchtlich erhöht werden. Diese Erkenntnis ist Abbildung 5.42 zu entnehmen, die den Verlauf des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten k_{La} mit dem Luftvolumenstrom für die Versuchsreihen aus Abbildung 5.41 darstellt. Die k_{La} Werte für 1,1mm große Blasen liegen deutlich über den Werten der Primärblasengröße 2,1mm.

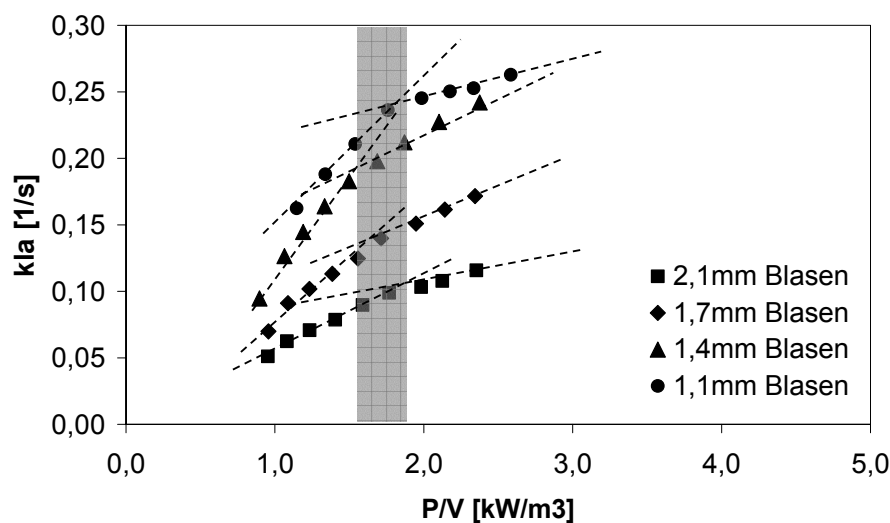


Abb.5.42: Einfluss der Blasengröße auf den Stoffübergang, 2 SiC Monolithen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom

Ein kleinerer Blasendurchmesser steigert den Stoffübergang deutlich (s.Kap.5.3.6), hat aber zugleich keinen negativen Einfluss auf den Leistungseintrag wie in Kapitel 5.5.2 gezeigt. In der Abbildung 5.42 sind die Steigungsgeraden der k_{La} Kurven eingezeichnet. Bei einem Leistungseintrag ungefähr zwischen 1,5 und 1,8kW/m³ flachen die Steigungen der Kurven deutlich ab bei allen untersuchten Blasengrößen

(grauer Kasten in Abb.5.42). Die Steigerung der Leistungseintrags wird durch eine Erhöhung des Luftvolumenstroms hervorgerufen, da bei den eingetragenen Versuchen der Flüssigkeitsvolumenstrom von 10,8l/min konstant gehalten wurde. Ein Leistungseintrag von 1,5-1,8kW/m³ wird mit Luftvolumenströmen von 6-8l/min (ca.3-8vvm) erreicht.

In Abbildung 5.43 ist die Abhängigkeit des k_{La} Werts von der Blasengröße bei konstantem Leistungseintrag aufgeführt. Der volumetrische Stoffübergangskoeffizient sinkt mit steigender Blasengröße. Im Rahmen der untersuchten Blasengrößen, ist ein Primärblasendurchmesser von 1,4mm als optimal anzusehen. Eine weitere Verkleinerung der Blasen führt zu keiner nennenswerten Erhöhung des k_{La} Werts bei konstantem Leistungseintrag. Ein konstanter Leistungseintrag bedeutet in dem eingetragenen Fall ein konstanter Luftvolumenstrom.

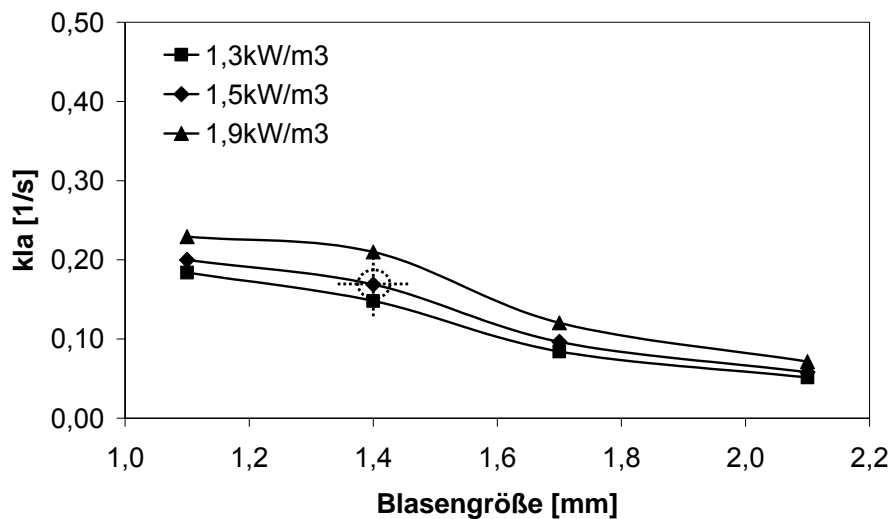


Abb.5.43: Einfluss der Blasengröße auf den Stoffübergang bei konstantem Leistungseintrag, 2 SiC Monolithen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom

Monolithanzahl und -länge

Die Abhängigkeit des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten k_{La} vom spezifischen Gesamtleistungseintrag für die Messreihen wird in Abbildung 5.44 dargestellt. Die Monolithen hatten jeweils eine Länge von 150mm und wurden mit einem Abstand von je 10mm hintereinander geschaltet.

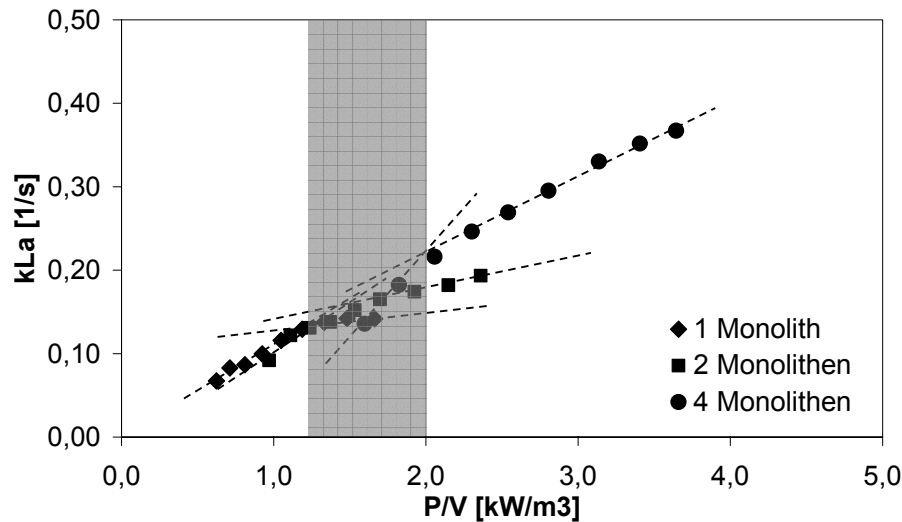


Abb.5.44: Einfluss der Monolithenanzahl auf den k_{La} Wert in Abhängigkeit vom spez. Leistungseintrag, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, 1,4mm Blasen

Eine Erhöhung der Monolithenanzahl ist eine sinnvolle Maßnahme zur Steigerung des Stoffübergangs. Bei gleichem Leistungseintrag kann mit mehreren Monolithen ein höherer volumetrischer Stoffübergang erzielt werden. Bei einem spezifischen Gesamtleistungseintrag von etwa $2,0 \text{ kW/m}^3$ wird bei zwei Monolithen ein k_{La} Wert von ca. $0,171/\text{s}$ erreicht. Wird die Anzahl bei gleichem Leistungseintrag auf vier Monolithen verdoppelt, liegt der k_{La} Wert bei $0,221/\text{s}$. Dies ist eine Steigerung des k_{La} Werts von ca. 30%. Damit ist der optimale Betriebspunkt des Versuchsreaktors auch von der Monolithanzahl abhängig.

In der vorgestellten Versuchen wurde nicht nur die Anzahl der Monolithen mit Abstand erhöht, sondern auch die Länge eines Monolithen (ohne Abstand) variiert. Längere Monolithen erhöhen nicht nur den Leistungseintrag, sondern auch den Stoffübergang. Dies wird in Abbildung 5.39 ersichtlich. Mit längeren Monolithen kann bei gleichem Leistungseintrag (ab etwa $1,5 \text{ kW/m}^3$) ein höherer k_{La} Wert erzielt werden. Bei einer mittleren Blasengröße von 1,1mm wird bei einer Monolithlänge von 450mm ein k_{La} Wert von fast $0,41/\text{s}$ erreicht. Dagegen ergibt sich bei einem Monolithen der Länge 150mm und gleichem Leistungseintrag lediglich ein k_{La} Wert von $0,31/\text{s}$.

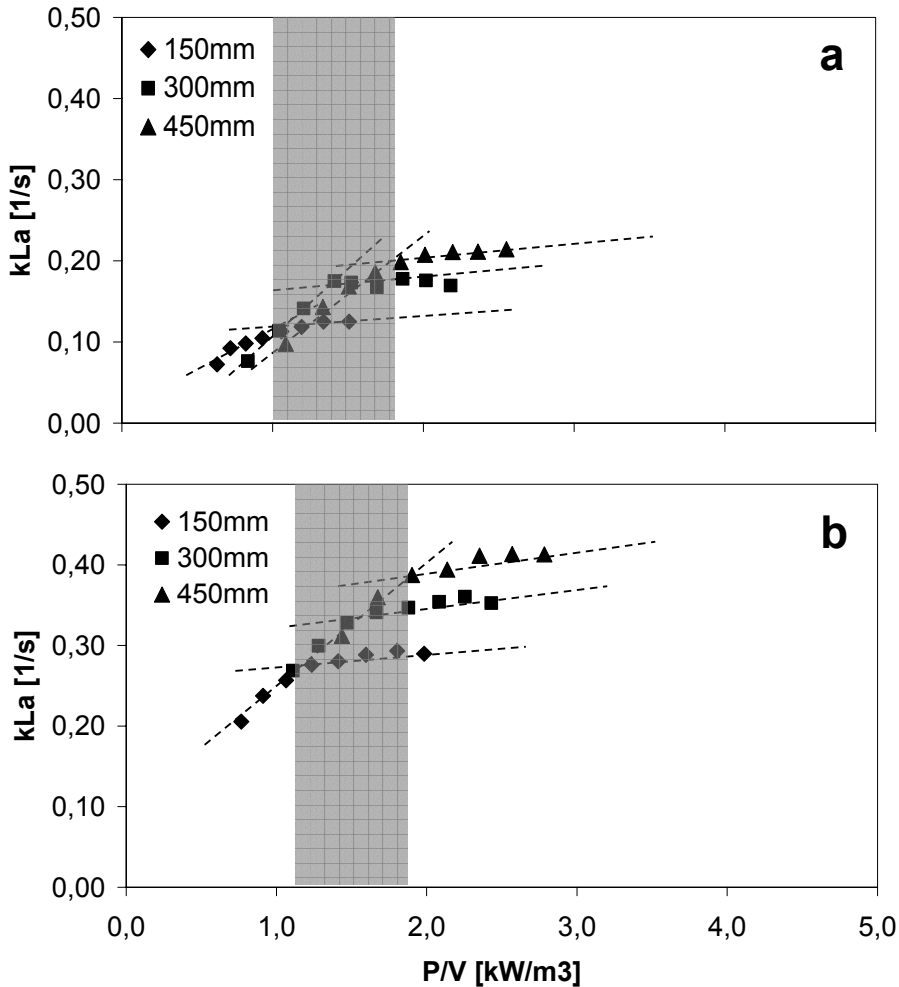


Abb.5.45: Einfluss der Monolithlänge auf den k_{La} in Abhängigkeit vom spezifischen Leistungseintrag, SiC Monolithen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom

a: 1,4mm Blasen, b: 1,1mm Blasen

Eine Verlängerung der Monolithen ist folglich als sinnvolle Maßnahme anzusehen, um den volumetrischen Stoffübergang im Reaktor zu erhöhen. Vergleicht man die Abbildung 5.45 mit der Abbildung 5.44 zeigen sich identische k_{La} Wert, ob man die Monolithen mit Abstand hintereinander schaltet oder stattdessen einen längeren Monolithen verwendet. Bei einem Leistungseintrag von $2,0\text{kW/m}^3$ und einer Blasengröße von 1,4mm ergibt sich ein k_{La} Wert von 0,18 1/s sowohl für zwei 150mm langen Monolithen mit 10mm Abstand als auch für einen 300mm langen Monolithen. In Abbildung 5.45 wird außerdem nochmal der große Einfluss der Blasengröße deutlich.

Zwischen einem Leistungseintrag von 1,0 und $2,0\text{kW/m}^3$ flachen die Steigungen der Kurven deutlich ab bei den untersuchten Monolithanzahlen und -längen (graue Kästen in Abbildung 5.44 und Abb.5.45), ähnlich wie auch schon bei den Blasengrößen (s.Abb.5.42). Die Leistungseintragszunahme wird hier allerdings nicht nur durch eine

Erhöhung des Luftvolumenstroms hervorgerufen, sondern auch durch die Steigerung der Monolithanzahl bzw. -länge. Der Flüssigkeitsvolumenstrom ist bei den eingetragenen Versuchen konstant. Der Betrieb des Reaktors sollte in diesem Bereich des Leistungseintrags betrieben werden, da die Steigerung des k_La Werts über diesen Bereich hinaus deutlich abnimmt. Ein Leistungseintrag zwischen $1,0$ und $2,0\text{kW/m}^3$ bedeutet bei einem Betrieb des Reaktors mit zwei Monolithen, einer Primärblasengröße von $1,4\text{mm}$ und einem Flüssigkeitsvolumenstrom von $10,8\text{l/min}$ einen Luftvolumenstrom zwischen 3 und 8l/min .

5.6 Antischaummittelvariation

Die Menge an immobilisierter Biomasse ist im wesentlichen abhängig von der Sauerstoffversorgung der Mikroorganismen und damit vom Stofftransfer aus der Gasphase in die flüssige Phase. Die Stofftransfermessungen werden in erster Linie mit dem chemischen Ersatzsystem (Sulfitsystem) im hydrodynamischen Reaktor durchgeführt. Ergänzende Versuche finden, wie in Kapitel 4.4 beschrieben, in einem biologischen System statt. Die Versuche dienen zur Bestimmung der Übertragbarkeit der Ergebnisse aus dem chemischen System auf das biologische.

Ein wesentliches Merkmal eines biologischen Systems ist das Schäumen des Fermentationsmediums. Das Schäumen beeinträchtigt den Betrieb so stark, dass immer mit Antischaummittel gearbeitet werden muss. In diesem Kapitel wird die Beeinflussung des Stoffübergangskoeffizienten bei Zugabe von Antischaummittel näher beschrieben. Die Versuche wurden im chemischen und im biologischen System durchgeführt.

Einfluss von Antischaummittel im chemischen System

Der Einfluss von Antischaummitteln auf den k_La Wert im chemischen Natriumsulfitsystem wurde mit den Antischaummitteln Polypropylenglykol P1'200 (PPG) und Plurafac LF 1300 untersucht. Es wurden jeweils 10ppm (10ml Antischaummittel bezogen auf 1m^3 Natriumsulfidlösung), 100ppm und 1000ppm des Antischaummittels hinzugegeben und die k_La -Werte bei 2 , 6 und 8l/min (ca. 1 , 3 und 5vvm) gemessen. Mit PPG sinkt der k_La -Wert bei 6l/min Luftvolumenstrom von $0,21\text{ 1/s}$ ohne Antischaummittel auf $0,13\text{ 1/s}$ mit 10 bzw. 100ppm Antischaummittel (Abb.5.46) bei Verwendung von zwei Cordierit Monolithen, einem Flüssigkeitsvolumenstrom von $10,8\text{l/min}$ und einer

berechneten Blasengröße von 1,4mm. Ein großer Unterschied zwischen 10ppm und 100ppm ist nicht zu beobachten. Erst die Zugabe von 1000ppm senkt den k_{La} -Wert erneut.

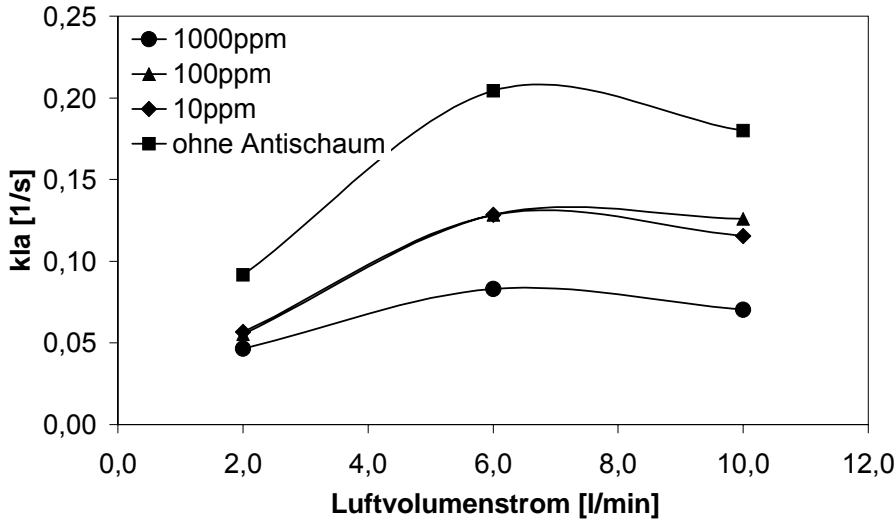


Abb.5.46: k_{La} Wert bei Variation des Antischaummittels Polypropylenglykol P 1'200, 2 Cordierit Monolithen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, 1,4mm Blasen

Mit dem Antischaummittel Plurafac LF 1300 erreicht der k_{La} -Wert nur maximal $0,084s^{-1}$ bei 10l/min und 100ppm. Die Konzentration scheint keinen Einfluss zu haben, wie man in Abbildung 5.47 sehen kann, liegen die Werte mit Plurafac LF alle übereinander.

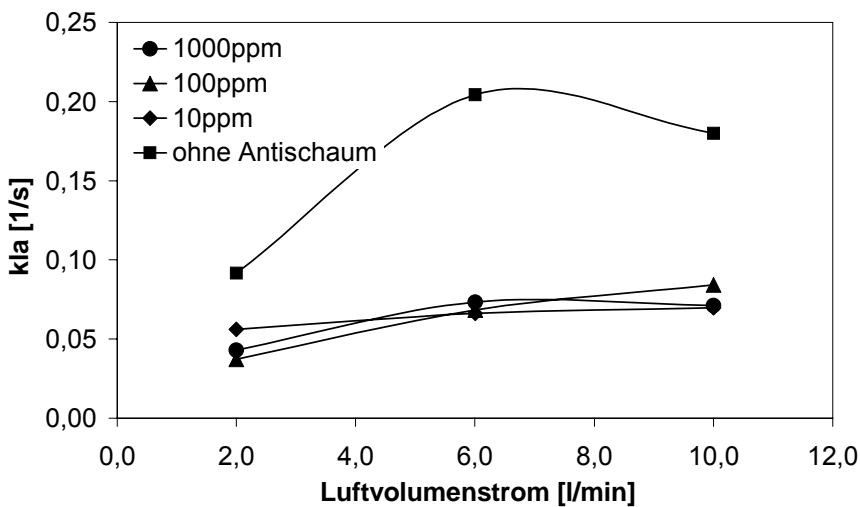


Abb.5.47: k_{La} -Wert bei Variation des Antischaummittels Plurafac LF 1300, 2 Cordierit Monolithen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, 1,4mm Blasen

Bei allen im chemischen System durchgeführten Versuchen zeigte sich eine Abnahme der k_{La} Werte durch die Zugabe eines Antischaummittels. Eine Erhöhung des k_{La} -Wertes durch Zugabe von Antischaummitteln, wie /Morao, 1999/ beschrieben hat, konnte allerdings nicht beobachtet werden, obwohl ebenfalls Versuche, wie vom Autor beschrieben, mit 1000ppm durchgeführt wurden.

Einfluss von Antischaummittel im biologischen System

Eine gezielte Zugabe von Antischaummittel im biologischen System zeigte, dass erst ab einer Konzentration von 500ppm die Schaumbildung unterdrückt wird. Die Auswertung von mehreren biologischen Fermentationen ergab, dass eine Konzentration des Antischaummittels Plurafac LF 1300 von 1000ppm erforderlich ist um eine Schaumbildung erfolgreich zu verhindern. Die im realen Betrieb gemessenen k_{La} Werte sind damit immer von einem Antischaummittel beeinflusst. Die Bestimmung des Antischaummitteleinflusses in dem biologischen Fermentationsmedium ergab außerdem, dass eine Antischaummittelkonzentration schon von 1ppm den k_{La} Wert um 50% senkt. Ab einer Antischaumkonzentration von 100ppm bleibt der k_{La} Wert dann konstant.

In der Abbildung 5.48 sind die Verläufe der k_{La} Werte über dem Luft- und Flüssigkeitsvolumenstrom von Messungen mit 1000ppm und ohne Antischaummittel im biologischen Reaktor aufgetragen. Durch die Zugabe eines Antischaummittels wird der k_{La} Wert deutlich gesenkt. Außerdem nimmt der Einfluss der Volumenströme signifikant ab. Im biologischen Reaktor wurden die meisten Messungen mit einem Blasen-durchmesser von 2,1mm durchgeführt, da so die Schaumbildung am geringsten war.

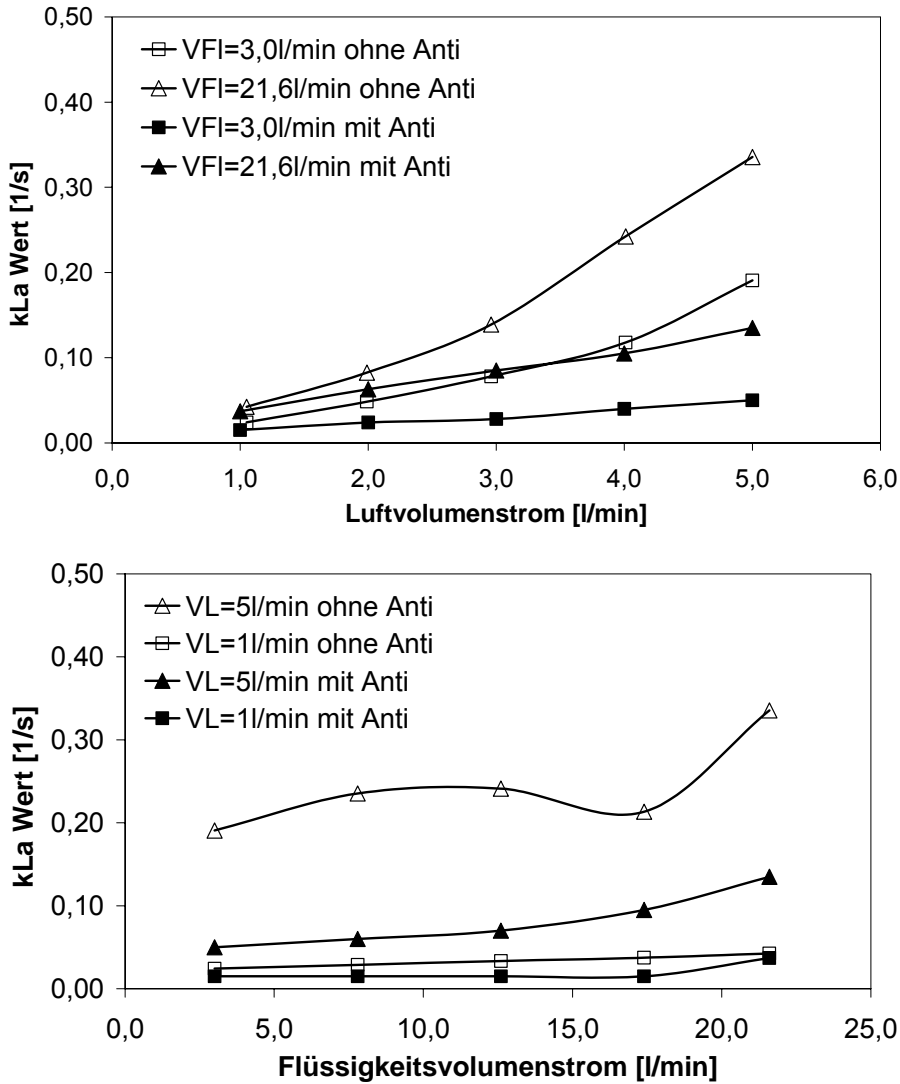


Abb.5.48: Einfluss der Volumenströme auf den k_{La} Wert mit 1000ppm und ohne Antischaummittel im biologischen Medium, 330mm SiC Monolith, 2,1mm Blasen

5.7 Biologische Stofftransferversuche

Durch Versuche in einem Biologischen Screeningreaktor mit immobilisierten Mikroorganismen (s.Kap.4.4) wurde der volumetrischen Stoffübergangskoeffizient k_{La} unter Fermentationsbedingungen bestimmt. Die möglicherweise vorhandenen Abweichungen im k_{La} Wert zwischen den Stoffübergangskoeffizienten eines biologischen und eines chemischen Systems werden auf diesem Weg ermittelt.

Bei konstanter Durchflussrate (= Umsatzrate, die Biologie befindet sich im steady-state) wurden die Volumenströme der Luft und der Flüssigkeit variiert und der volumetrische Stoffübergangskoeffizient im Fermentationsmedium ermittelt. Dabei kam sowohl ein

Siliziumkarbid-Monolith (mit den geometrischen Eigenschaften wie in Kapitel 4.1 beschrieben, allerdings mit einer Länge von 330mm) als auch ein sogenannter 'Ersatzmonolith' zum Einsatz. Der Ersatzmonolith hat einen quadratischen Querschnitt, der so groß ist wie die Summe aller durchströmbaren Kanäle des in Kapitel 4.1 beschriebenen keramischen Monolithen (200cpsi).

5.7.1 Einfluss der Volumenströme

Volumenstrom der Luft (Begasungsrate)

Bei Variation des Luftvolumenstroms zeigte sich ein ähnlicher Verlauf der k_{La} Werte wie bei den Untersuchungen im chemischen Ersatzsystem (s.Abb.5.20). Der k_{La} nimmt mit steigendem Luftvolumenstrom zu. Die Versuche im biologischen Medium wurden nur bis zu einem Luftvolumenstrom von 6l/min durchgeführt, da es ab diesem Luftvolumenstrom zu einer zu starken Schaumbildung im System kam. So konnte nicht ermittelt werden, wann die Gasbeladungsgrenze des Systems erreicht ist. Bei Einsatz eines Antischaummittels fielen die k_{La} Werte wesentlich geringer aus (s.Abb.5.48), der grundsätzliche Einfluss des Luftvolumenstroms blieb aber bestehen. Auf die Einflüsse des Volumenstroms der Flüssigkeit und des Antischaummittels, die auch in der Abbildung 5.48 zu erkennen ist, wird im folgenden Abschnitt eingegangen.

Volumenstrom der Flüssigkeit

Im Gegensatz zu dem Luftvolumenstrom konnte bei einer Änderung des Volumenstroms der Flüssigkeit kein ähnlicher Einfluss auf den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten bestimmt werden. Bei einer Erhöhung des Flüssigkeitsvolumenstroms im Biomedium kam es bei einer Blasengröße von 2,1mm zu einem Anstieg des k_{La} Werts ab einem Flüssigkeitsvolumenstrom von ungefähr 12,0l/min. Dieser Anstieg zeigte sich im chemischen Medium erst bei kleineren Blasen, siehe Kapitel 5.3.5.

Ein Vergleich von Messwerten bei konkreten Bedingungen ergibt die in Tabelle 5.9 aufgeführten Daten. Der k_{La} Wert ist gültig für einen Flüssigkeitsvolumenstrom von 10,8l/min, eine Blasengröße von 2,1mm und einem Luftvolumenstrom von 6l/min. Es ist deutlich zu erkennen, dass die im chemischen Ersatzsystem gemessenen k_{La} Werte deutlich näher an den Werten aus dem Biosystem mit Antischaummittel liegen als ohne

Antischaummittel. Das Ergebnis passt zu den Beobachtungen während der Versuche. Während das Biomedium sehr stark zum Schäumen neigt, kommt es selbst bei Luftvolumenströmen von 10l/min im Natriumsulfitsystem zu keiner Schaumbildung. Das chemische System ist koaleszenzhemmender als das Fermentationsmedium. Die Ionenstärke der verwendeten wässrigen Natriumsulfidlösung liegt bei 1,9mol/l, während sie im Fermentationsmedium 1,7mol/l beträgt. Die Ionenstärke einer Lösung hat einen entscheidenden Einfluss auf die chemische Aktivität der Ionen in dieser Lösung und ist daher bedeutend für ihre Reaktivität und für die elektrische Leitfähigkeit der Lösung. Bei einer Verringerung der Ionenstärke wird die Koaleszenzneigung erhöht bzw. die Zeit bis zur Koaleszenz erniedrigt. Da der volumetrische Stoffübergang direkt abhängig ist von der Oberfläche der Blasen, hat die Ionenstärke des Mediums einen Einfluss auf den k_{La} Wert.

Tab.5.9: Vergleich der k_{La} Werte im biologischen und chemischen System (Flüssigkeitsvolumenstrom 10,8l/min, Blasengröße 2,1mm, Luftvolumenstrom 6l/min)

Bio ohne Anti	Bio mit Anti	Chemie ohne Anti
0,24 1/s	0,066 1/s	0,085 1/s

5.7.2 Einfluss der keramischen Monolithe

Anders als der hydrodynamische Screeningreaktor ist der biologische Reaktor nicht wie ein Baukastensystem aufgebaut (s.Kap.4.2). In dem biologischen Reaktor ist die Länge der Monolithen auf 330mm festgelegt. Zur Bestimmung des Einflusses der Keramikmonolithen wurde bei dieser Bauweise keine unterschiedlichen Monolithlängen eingebaut, sondern der Reaktor ohne Keramikmonolith betrieben. Statt eines keramischen Monolithen wurde ein sogenannter 'Ersatzmonolith' in den Reaktor eingebaut. Der Ersatzmonolith besteht aus einem einzelnen quadratischen Kanal, dessen Querschnitt so groß ist wie die Summe aller durchströmbaren Kanäle des keramischen Monolithen.

Die mit dem Ersatzmonolithen gemessenen k_{La} Werte sind in Abbildung 5.49 dargestellt. Der Einfluss der Keramikmonolithen im System zeigt sich bei höheren Flüssigkeitsvolumenströmen besonders deutlich, bei kleinen Luft- und Flüssigkeitsvolumenströmen ist er weniger ausgeprägt. Wird der Reaktor ohne Keramik betrieben,

findet natürlich auch ein Stofftransfer vom Gas in die Flüssigkeit statt, allerdings ist die Zunahme des k_La Werts mit dem Luftvolumenstrom dann weniger ausgeprägt.

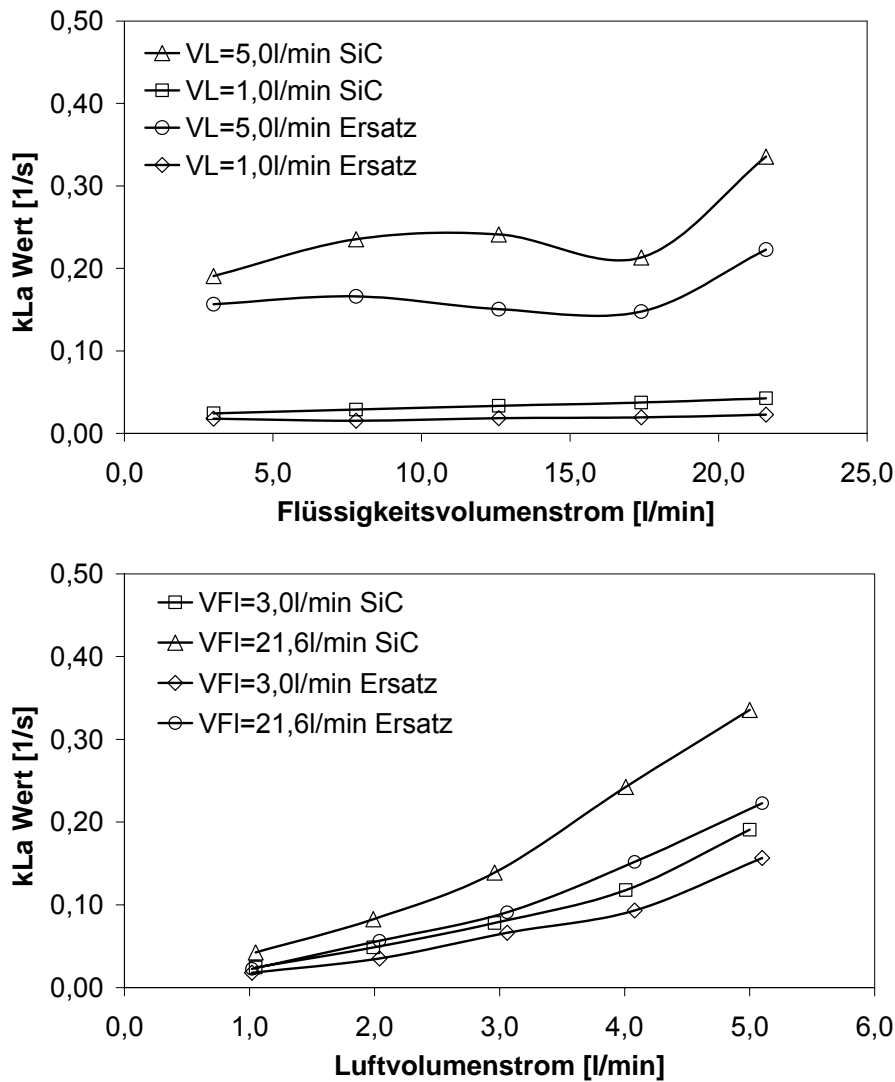


Abb.5.49: Einfluss der Volumenströme auf den k_La Wert im Bio-System im SiC- und Ersatzmonolithen, ohne Antischaum, 2,1mm Blasen

Eine ausführliche Auswertung der Stofftransfermessungen im biologischen System ist in /Mehnert, 2005/ und /Seletzky, 2007/ zu finden.

5.7.3 Versorgbare Biomassemenge

Im vorliegenden Kapitel wird die Biomassemenge abgeschätzt, die maximal im Reaktor in Abhängigkeit des Sauerstoffangebots bei den erreichten Stoffübergangswerten

lebensfähig sein kann. Die Abschätzung dient zu einer ersten Einordnung des verwendeten Reaktorkonzepts.

Zur Sicherung von unlimitierten Kulturbedingungen darf der maximale Sauerstoffverbrauch der Mikroorganismen OUR_{\max} das maximale Sauerstoffangebot aus dem gas-flüssigen Massentransfer OTR_{\max} nicht übersteigen.

$$OUR_{\max} \leq OTR_{\max} \quad (5.1)$$

Der maximale Sauerstoffverbrauch einer biologischen Kultur hängt von der maximalen Wachstumsrate μ_{\max} der Mikroorganismen, dem Sauerstoffausbeutekoeffizient der Biomasse Y_{X/O_2} und der Biomassekonzentration X_{ges} ab.

$$OUR_{\max} = \frac{1}{Y_{X/O_2}} \cdot \mu_{\max} \cdot X_{\text{ges}} \quad (5.2)$$

Die Gleichung für die spezifische Atmungsrate lautet:

$$q_{O_2} = \frac{1}{Y_{X/O_2}} \cdot \mu_{\max} \quad (5.3)$$

Die Sauerstoffaufnahme ist damit das Produkt aus gesamter Biomasse im Reaktor X_{ges} und der spezifischen Atmungsrate q_{O_2} bei maximaler Wachstumsrate μ_{\max} /Seletzky, 2007/.

Nach biologischen Fermentationen wurden von /Seletzky, 2007/ in Tabelle 5.10 die Werte für *Corynebacterium glutamicum* aufgeführt.

Tab.5.10: Stoffdaten einer biologischen Fermentation mit *C. glutamicum*

	Bezeichnung	Einheit	Wert
μ_{\max}	maximale Wachstumsgeschwindigkeit	[1/h]	0,32
Y_{X/O_2}	Ausbeutekoeffizient in Abhängigkeit vom Sauerstoffverbrauch	[g/mol]	28,5

Trägt man die mit dem Sulfitsystem bestimmten volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten bei variiertem Luftvolumenstrom und konstantem Flüssigkeitsvolumenstrom von 10,8l/min über der mit den obenaufgeführten Gleichungen bestimmten Biomassemenge auf ergibt sich der in Abbildung 5.50 dargestellte Zusammenhang.

Die Gleichung 5.4 für den $k_L a$ Wert gibt die lineare Abhängigkeit der beiden Größen wieder:

$$k_L a = 0,019 \cdot X_{ges} \quad (5.4)$$

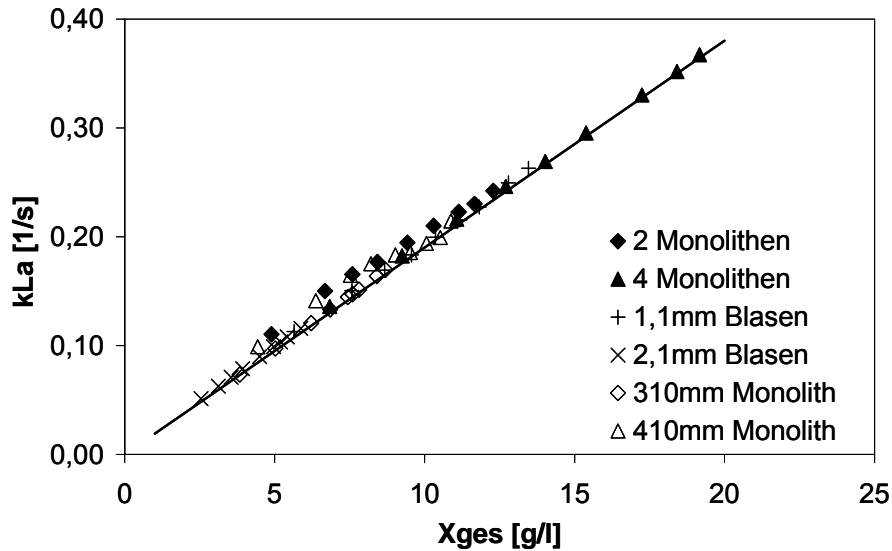


Abb.5.50: Biomassemenge in Abhängigkeit des Volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten, SiC Monolithen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, 1,4mm Blasen, Bestimmtheitsmaß $R^2=0,98$

In der Abbildung 5.50 wird der logische Zusammenhang deutlich, dass ein hoher $k_L a$ Wert zu einer hohen Biomassemenge führen kann. Wie schon in den Kapiteln 5.3 erläutert, führen unterschiedliche Maßnahmen zu einem höheren Stoffübergang. In den oben aufgeführten Versuchen ergibt sich der höchste $k_L a$ Wert bei Einbau von vier Monolithen.

6 REGRESSIONSANALYSE DES $k_{L}a$ WERTS

Der Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit liegt auf der messtechnischen Auslegung des neuartigen Monolithischen Reaktors. Mit einigen in den Versuchen variierten Parametern wurde zusätzlich aber noch eine Regressionsanalyse durchgeführt. Ziel der Regressionsanalyse ist es, Beziehungen (Zusammenhänge) zwischen einer abhängigen und einer oder mehrerer unabhängigen Variablen festzustellen. Aus den gefundenen Zusammenhängen können Betriebspunkte, die nicht ermittelt wurden, berechnet werden.

6.1 Einfluss der Blasengröße auf den $k_{L}a$ Wert

Durch exponentielle Mehrfachregression ist es möglich die gefundenen Einflüsse auf den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $k_{L}a$ in einen formelmäßigen Zusammenhang zu setzen, mit dem sich dann der $k_{L}a$ Wert berechnen lässt. Die ermittelten Messwerte werden in der Rechensoftware MAPLE in ein dreidimensionales Koordinatensystem eingetragen und die Abhängigkeit der Parameter in einer Formel ausgegeben. Der gefundene formelmäßige Zusammenhang für den Einfluss der Blasengröße und des Luftvolumenstroms lautet:

$$k_{L}a = 0,18 \cdot \dot{V}_L^{0,51} \cdot B^{-2,46} . \quad (6.1)$$

Trägt man die mit MAPLE gefundene Beziehung in das Diagramm mit den ermittelten Messwerten ein, erkennt man eine gute Übereinstimmung der Werte, besonders im Bereich bis zu einem Luftvolumenstrom von 6l/min (ca.3vvm) (Abb.6.1). In allen folgenden Abbildungen stellen die gestrichelten Linien die mit MAPLE gefundenen Gleichungen dar. Die Messungen in den Cordieritmonolithen wurden nicht bei einer Blasengröße von 1,1mm durchgeführt. In die Abbildungen ist aber zum Vergleich die mit MAPLE berechneten Kurven für diese Blasengröße eingezeichnet.

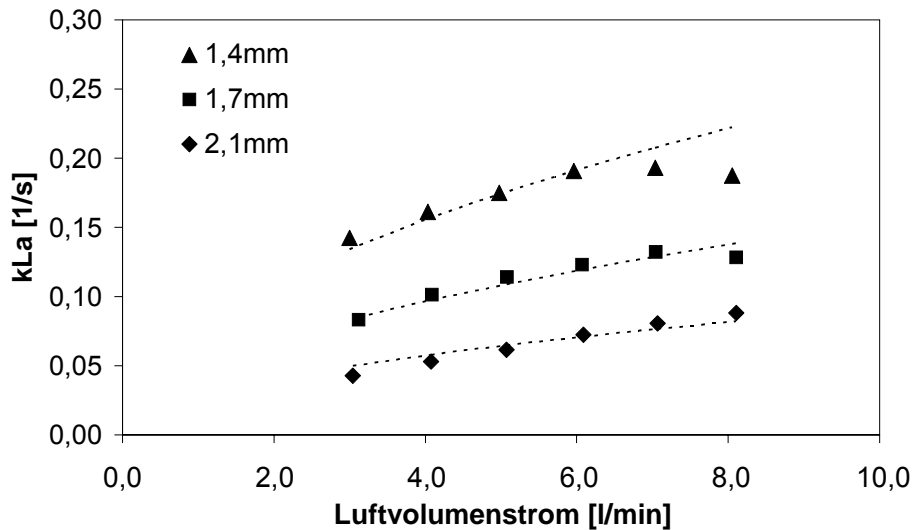


Abb.6.1: Vergleich zwischen Rechnung und Messung, 2 Cordierit Monolithen, 3l/min Flüssigkeitsvolumenstrom

Der Einfluss des Luftvolumenstroms und der Blasengröße auf den k_La Wert liefert in den Cordieritmonolithen bei einem höheren Volumenstrom der Flüssigkeit von 10,8l/min den folgenden Zusammenhang:

$$k_La = 0,19 \cdot \dot{V}_L^{0,45} \cdot B^{-2,06} \quad (6.2)$$

Auch hier ergibt sich eine gute Übereinstimmung der Gleichung mit den Messwerten, siehe Abbildung 6.2.

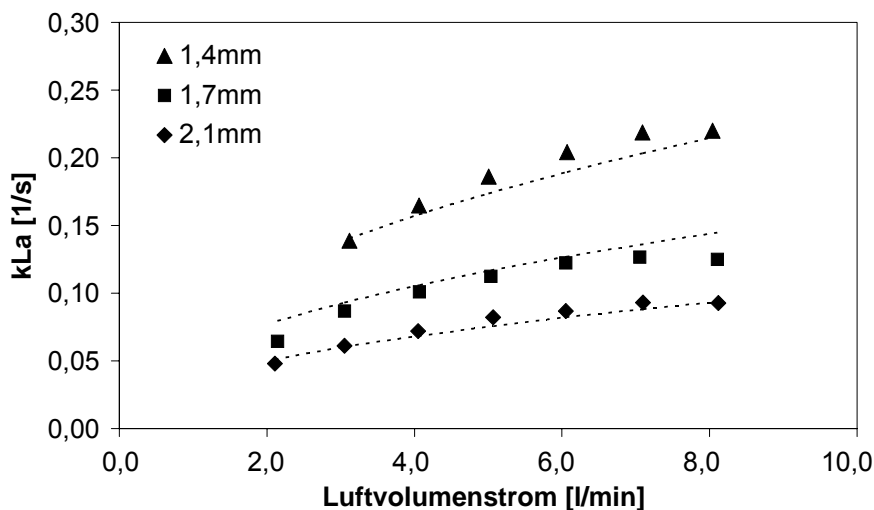


Abb.6.2: Vergleich zwischen Rechnung und Messung, 2 Cordierit Monolithen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom

Bei SiC Monolithen zeigt sich eine Abweichung der ermittelten Gleichung von den Messwerten bei Blasen mit einem Durchmesser von 1,4mm, siehe Abbildung 6.3. Die Regressionsgleichung lautet:

$$k_L a = 0,4 \cdot \dot{V}_L^{0,52} \cdot B^{-1,50} \quad (6.3)$$

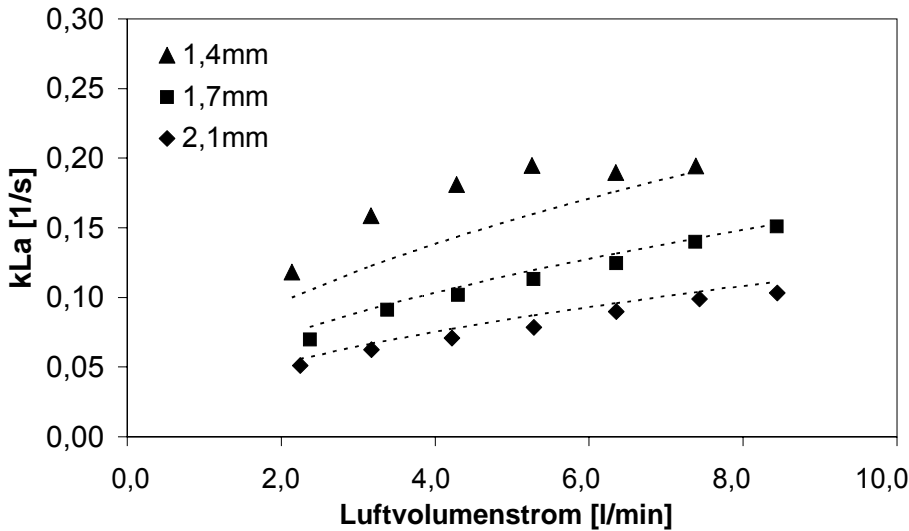


Abb.6.3: Vergleich zwischen Rechnung und Messung, 2 SiC Monolithen, 3l/min Flüssigkeitsvolumenstrom

Die beiden untersuchten Keramiken Siliziumkarbid und Cordierit unterscheiden sich hauptsächlich in ihrem Kanaldurchmesser. Trägt man die Beziehungen für den gleichen Kanaldurchmesser bei unterschiedlichen Flüssigkeitsvolumenströmen in ein gemeinsames Diagramm ein, erkennt man, dass die für den Flüssigkeitsvolumenstrom von 10l/min ermittelte Gleichung 6.2 auch für die Werte bei einem Flüssigkeitsvolumenstrom von 3l/min eine gute Annäherung zeigt (Abb.6.4). Die Gleichung zeigt außerdem bei beiden Kanaldurchmessern bei einem Flüssigkeitsvolumenstrom von 10,8l/min eine passende Abbildung der Messgrößen (Abb.6.4). In der Abbildung 6.4 stellt die durchgezogene Linie die mit MAPLE ermittelte Gleichung 6.2 dar.

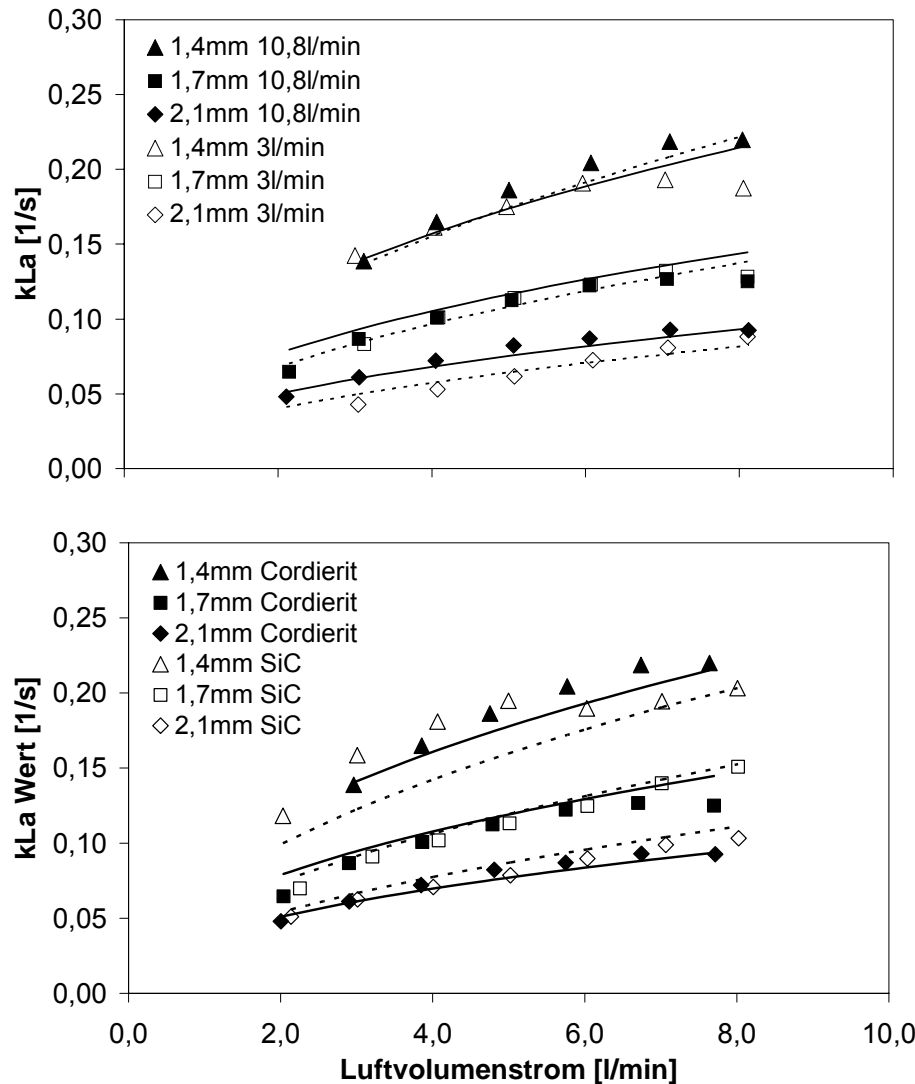


Abb.6.4: Übereinstimmung der mit MAPLE bestimmten Gleichungen,
 oben: 2 Cordierit Monolithen, 3 und 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom
 (gestrichelte Linie: Gl.6.1, durchgezogene Linie: Gl.6.2)
 unten: 2 Cordierit und 2 SiC Monolithen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom
 (gestrichelte Linie: Gl.6.3, durchgezogene Linie: Gl.6.2)

In Abbildung 6.5 sind die berechneten Größen den im Reaktor gemessenen Größen gegenübergestellt. In weiten Bereichen gibt es eine sehr gute Übereinstimmung der Werte. Das Bestimmtheitsmaß der ermittelten Gleichung R^2 beträgt 0,98. Die Gleichung 6.2 kann also in den untersuchten Grenzen als ausreichend genau angenommen werden. Mit ihr kann der nicht versuchstechnisch erfasste volumetrische Stoffübergangskoeffizient in Abhängigkeit des Luftvolumenstroms und der Blasengröße berechnet werden.

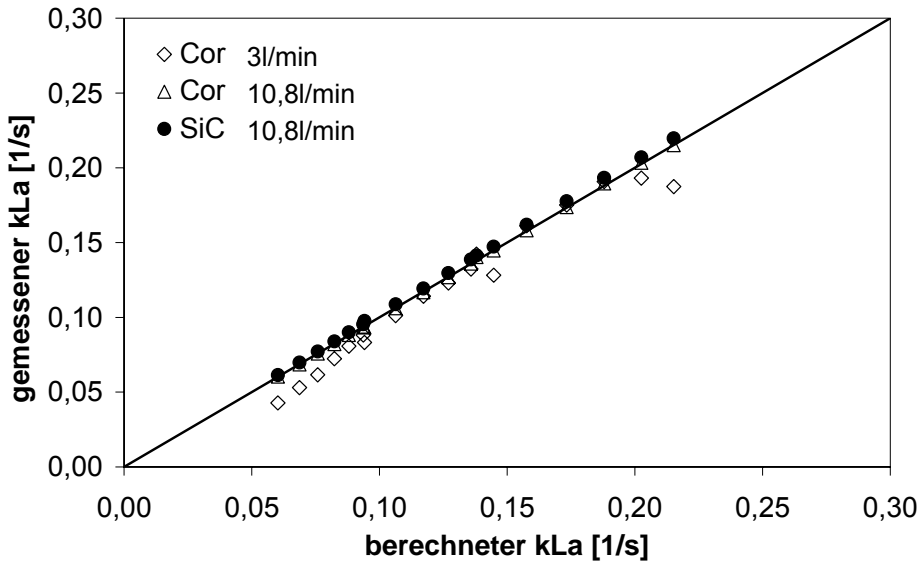


Abb.6.5: Übereinstimmung der ermittelten Gleichung 6.2 mit den $k_L a$ Messwerten, 2 Cordierit und 2 SiC Monolithen, 3 und 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, $R^2=0,98$

6.2 Einfluss der Monolithlänge auf den $k_L a$ Wert

Trägt man den Einfluss der Monolithlänge und des Luftvolumenstroms, wie auch schon den Einfluss der Blasengröße, in einem dreidimensionalen Zusammenhang auf, ergibt sich durch exponentielle Mehrfachregression eine Gleichung für den $k_L a$ Wert in Abhängigkeit der beiden genannten Parameter. Die Gleichung

$$k_L a = 0,003 \cdot \dot{V}_L^{0,51} \cdot L^{0,53} \quad (6.4)$$

gibt den Verlauf der Messwerte gut wieder, wie Abbildung 6.6 zeigt.

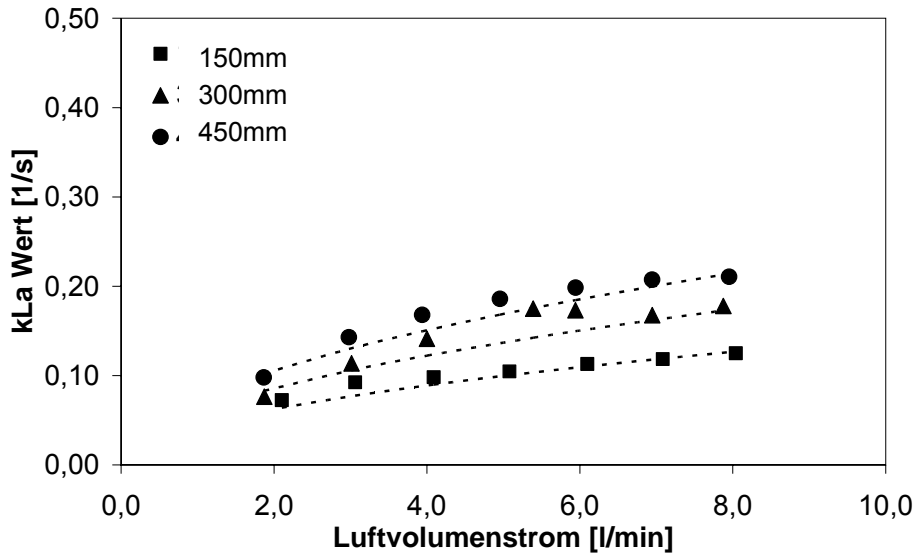


Abb.6.6: Vergleich zwischen Rechnung und Messung, 2 SiC Monolithen, 1,4mm Blasen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom

Bei kleineren Blasen wurde ein abweichender Zusammenhang ermittelt:

$$k_{La} = 0,016 \cdot \dot{V}_L^{0,43} \cdot L^{0,40} \quad (6.5)$$

Auch hier gibt es eine gute Übereinstimmung mit den Messwerten (Abb.6.7), allerdings kann in diesem Fall anders als bei der Abhängigkeit der Blasengröße der gefundene formelmäßige Zusammenhang nicht auf beide betrachtete Fälle angewendet werden.

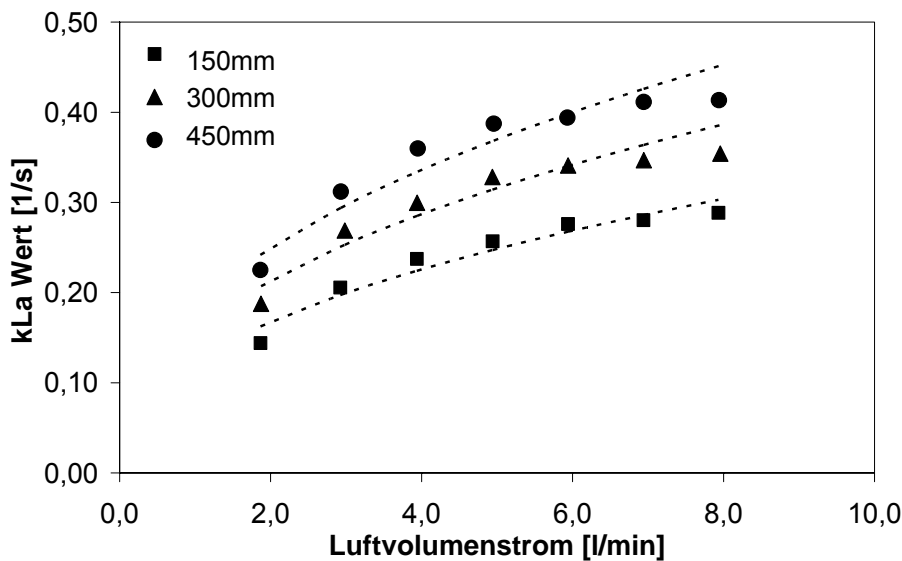


Abb.6.7: Vergleich zwischen Rechnung und Messung, 2 SiC Monolithen, 1,1mm Blasen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom

In Abbildung 6.8 sind die mit den Gleichungen 6.4 und 6.5 gerechneten Stoffübergangskoeffizienten den im Reaktor gemessenen gegenübergestellt. Die Gleichungen stimmen mit einem Bestimmtheitsmaß R^2 von 0,98 sehr gut mit den Messwerten überein und bieten die Möglichkeit den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten in Abhängigkeit des Luftvolumenstroms und Monolithlänge zu berechnen, allerdings bei konstanter Blasengröße. Die auszuwählende Gleichung ist von der Blasengröße abhängig.

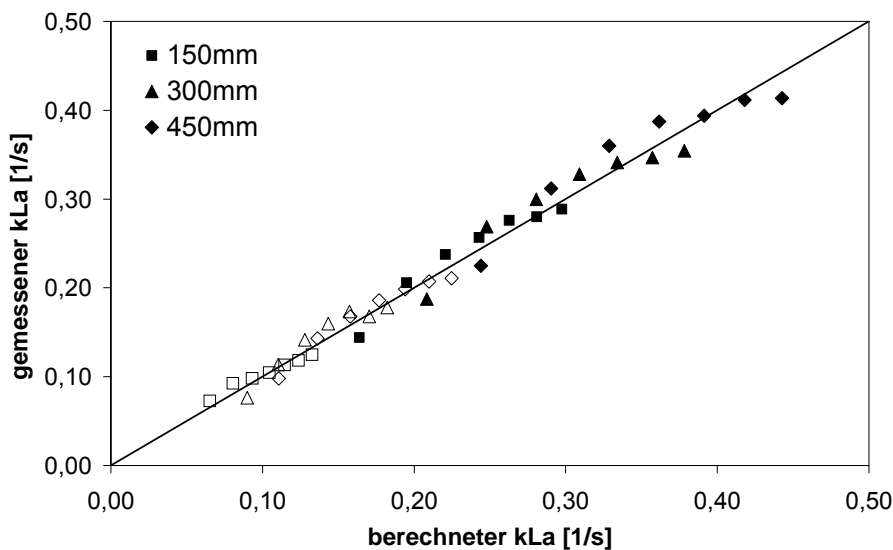


Abb.6.8: Übereinstimmung der ermittelten Gleichungen 6.4 und 6.5 mit den k_{La} Messwerten, SiC Monolithen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, $R^2=0,98$

Legende: schwarze Punkte: 1,1mm Blasen, weiße Punkte: 1,4mm Blasen

Betrachtet man die Gleichung 6.5 für Blasen von 1,1mm und trägt sie über der Monolithlänge für unterschiedliche Luftvolumenströme auf, ergibt sich der in Abbildung 6.9 dargestellte Verlauf. In das Diagramm ebenfalls eingetragen sind die Steigungen und mit den Steigungen ermittelte optimale Monolithenlänge im Reaktor. Der volumetrische Stoffübergangskoeffizient erhöht sich mit steigender Monolithlänge. Ab einer Monolithlänge von ca. 400mm nimmt die Steigung allerdings deutlich ab, das zeigt sich auch bei anderen Blasengrößen (s.Anhang). Der Einbau von längeren Monolithen ist somit nicht sinnvoll im verwendeten Reaktor. Will man trotzdem eine höhere Immobilisierungsfläche im Reaktor zur Verfügung stellen, ist eine Vergrößerung der Monolithenquerschnittsfläche oder eine Parallelschaltung von mehreren Monolithen eine Möglichkeit.

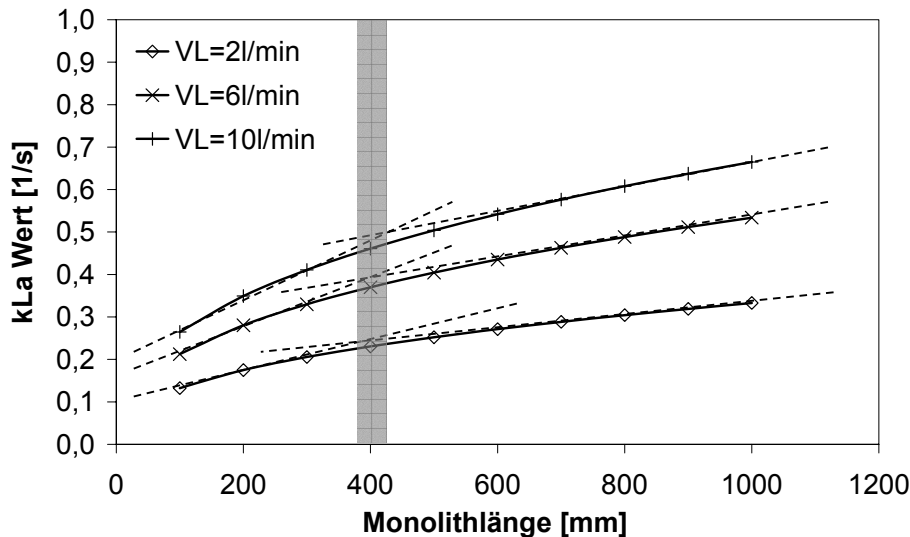


Abb.6.9: Volumetrischer Stoffübergang in Abhängigkeit der Monolithlänge, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, 1,1mm Blasen

6.3 Einfluss des relativen Gasgehalts auf den $k_L a$ Wert

Wie schon in Kapitel 5 erwähnt, hat der relative Gasgehalt ε_L im Reaktor einen entscheidenden Einfluss auf den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten. Zur Abschätzung des Verhaltens des relativen Gasgehalts wird im vorliegenden Kapitel die Modellierung des Gasgehalt vorgestellt. Mit der Rechensoftware MAPLE wurden durch exponentielle Mehrfachregression Gleichungen für die gefundenen Abhängigkeiten zwischen dem Gasgehalt und den Volumenströmen der Luft und der Flüssigkeit bestimmt. Für die unterschiedlichen Begasungsplatten ergaben sich die in Tabelle 6.1 dargestellten Beziehungen. Die angegebenen Blasengrößen wurden mit Gleichung 3.27 nach /Siemes, 1954/ berechnet.

Tab.6.1: Abhängigkeit des relativen Gasgehalts von den Volumenströmen der Luft und der Flüssigkeit bei unterschiedlichen Blasengrößen

Begasungsplatte 0 (2,1mm Blasen)	$\varepsilon_L = 0,54 \cdot \dot{V}_L^{0,88} \cdot \dot{V}_{FI}^{-0,68}$	(6.6)
Begasungsplatte 1 (1,7mm Blasen)	$\varepsilon_L = 0,67 \cdot \dot{V}_L^{0,78} \cdot \dot{V}_{FI}^{-0,7}$	(6.7)
Begasungsplatte 2 (1,4mm Blasen)	$\varepsilon_L = 0,58 \cdot \dot{V}_L^{0,72} \cdot \dot{V}_{FI}^{-0,62}$	(6.8)
Begasungsplatte 3 (1,1mm Blasen)	$\varepsilon_L = 0,22 \cdot \dot{V}_L^{0,72} \cdot \dot{V}_{FI}^{-0,4}$	(6.9)

Zur Bestimmung einer allgemeingültigen Gleichung für die Abhängigkeit des relativen Gasgehalts von den Volumenströmen der Luft und der Flüssigkeit muss zwischen Blasen größer und kleiner als 1,6mm unterschieden werden. Für Blasen kleiner als 1,6mm konnte die Beziehung

$$\varepsilon_L = 0,7 \cdot \dot{V}_L^{0,8} \cdot \dot{V}_{FI}^{-0,7} \quad (6.10)$$

und für Blasen größer als 1,6mm die Beziehung

$$\varepsilon_L = 0,36 \cdot \dot{V}_L^{0,7} \cdot \dot{V}_{FI}^{-0,5} \quad (6.11)$$

gefunden werden. Die Übereinstimmung der Gleichungen mit den gemessenen Größen ist in Abbildung 6.10 zu erkennen.

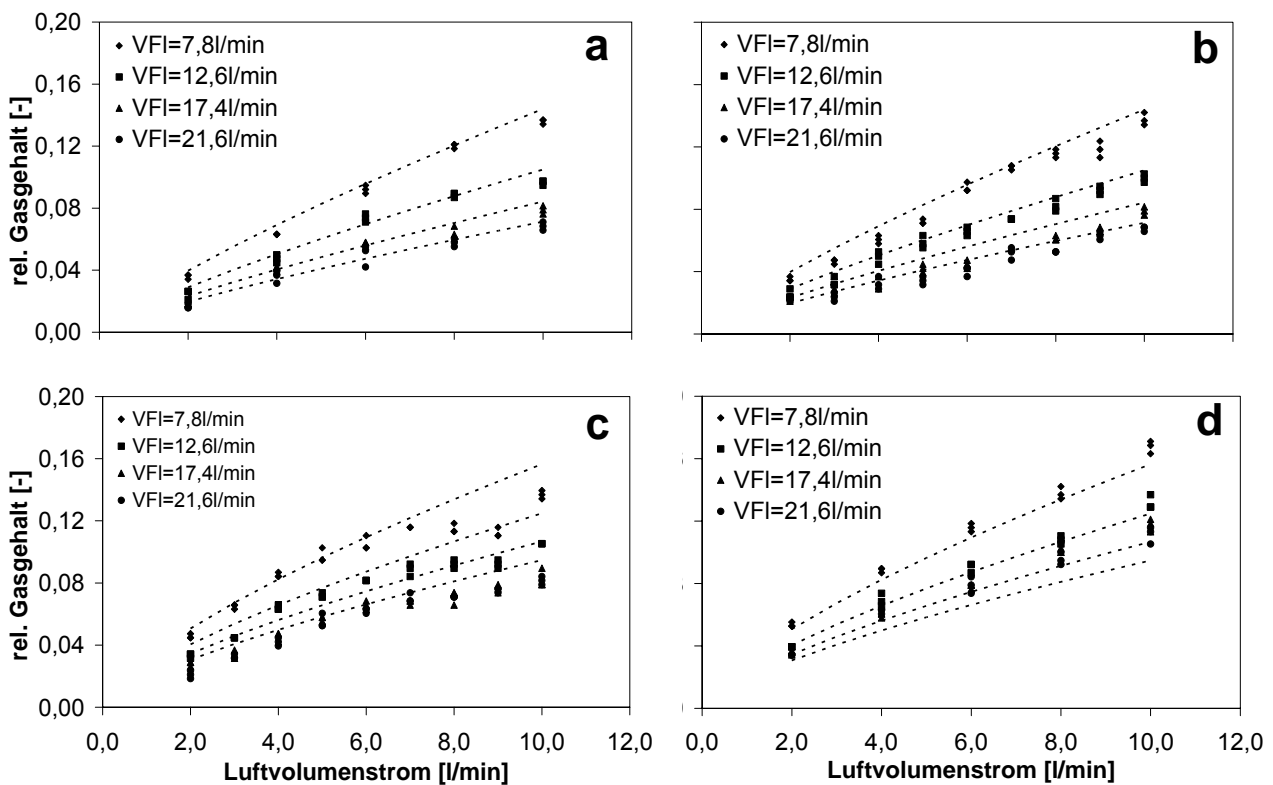


Abb.6.10: Vergleich des gemessenen Gasgehalts mit dem MAPLE berechneten, 2 SiC Monolithe, a: 2,1mm Blasen, b: 1,7mm Blasen, c: 1,4mm Blasen, d: 1,1mm Blasen

In Abbildung 6.11 sind die berechneten Größen den im Reaktor gemessenen Größen gegenübergestellt. In weiten Bereichen gibt es eine sehr gute Übereinstimmung der gemessenen Größen mit den berechneten. Das Bestimmtheitsmaß R^2 für die Gleichung 6.10 beträgt 0,96. Für die Gleichung 6.11 wurde ein R^2 von 0,90 ermittelt. Mit den Gleichungen lässt sich der Einfluss der Volumenströme auf den relativen Gasgehalt in den oben beschriebenen Grenzen bestimmen. Auf die Abhängigkeit des relativen

Gasgehalts von dem volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten wird im folgenden Kapitel eingegangen.

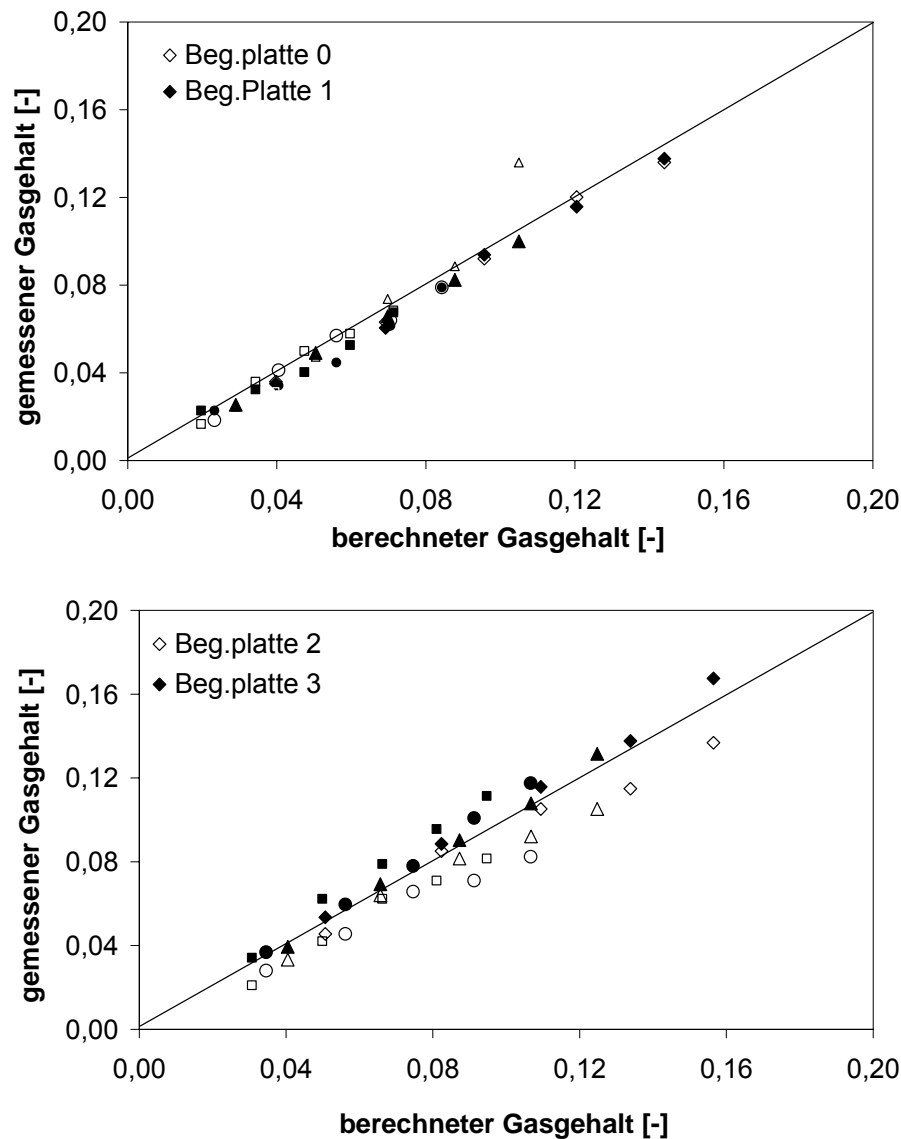


Abb.6.11: Vergleich des gemessenen Gasgehalts mit dem nach Gleichung 6.10 ($R^2=0,96$) und 6.11 ($R^2=0,90$) berechneten für unterschiedliche Begasungsplatten

6.4 Vergleich zwischen relativem Gasgehalt und k_{La} Wert

Trägt man die gemessenen Werte für den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten über dem relativen Gasgehalt in Abhängigkeit der Blasengröße auf, ergibt sich der in Abbildung 6.12 oben dargestellte Verlauf. Die gestrichelten Linien stellen die mit

MAPLE ermittelten Verläufe der Gleichung 6.12 dar:

$$k_L a = 1,62 \cdot \varepsilon_L^{0,67} \cdot B^{-1,54} \quad (6.12)$$

Es zeigt sich die guten Übereinstimmung der Gleichung mit den Messwerten. Das Bestimmtheitsmaß R^2 beträgt 0,98.

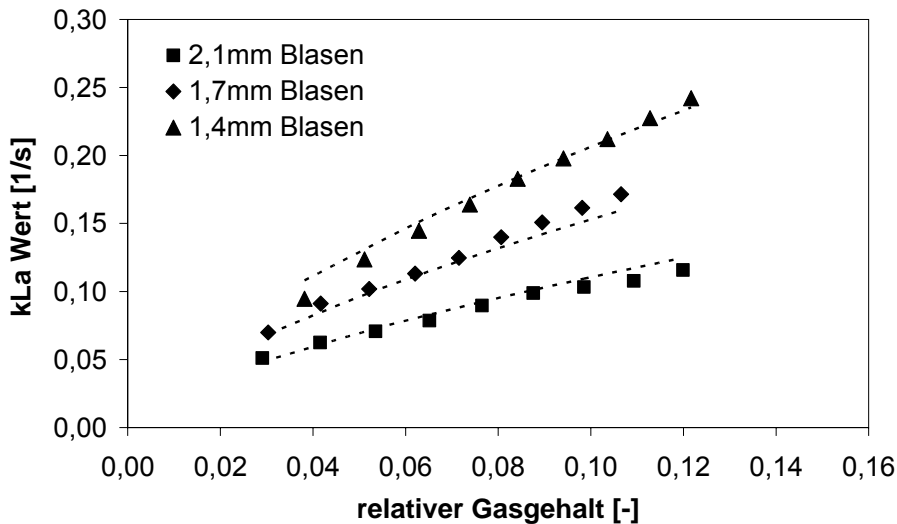


Abb.6.12: Vergleich zwischen relativem Gasgehalt und $k_L a$ Wert, 2 SiC Monolithen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, Gleichung 6.12, $R^2=0,98$

In der Modellierung des relativen Gasgehalts (Kap.6.3) wurde die Beziehung

$$\varepsilon_L = 0,7 \cdot \dot{V}_L^{0,8} \cdot \dot{V}_{FI}^{-0,7} \quad (6.10)$$

gefunden. Setzt man diese Gleichungen in die obige Gleichung 6.12 ein ergibt sich folgender Zusammenhang:

$$k_L a = 1,28 \cdot \dot{V}_L^{0,54} \cdot \dot{V}_{FI}^{-0,47} \cdot B^{-1,54} \quad (6.13)$$

Der mit dieser Gleichung berechnete Einfluss des Luftvolumenstroms und der Blasengröße auf den $k_L a$ Wert ist in Abbildung 6.13 oben eingetragen (gestrichelte Linien). Die Gleichung gibt die auch eingezeichneten Messwerte mit einem Bestimmtheitsmaß R^2 von 0.99 sehr gut wieder, wie zusätzlich in Abbildung 6.13 unten gezeigt wird. Mit der aufgestellten Gleichung 6.13 lässt sich der $k_L a$ Wert in Abhängigkeit von den Volumenströmen der Luft und der Flüssigkeit und gleichzeitig in Abhängigkeit der Blasengröße berechnen.

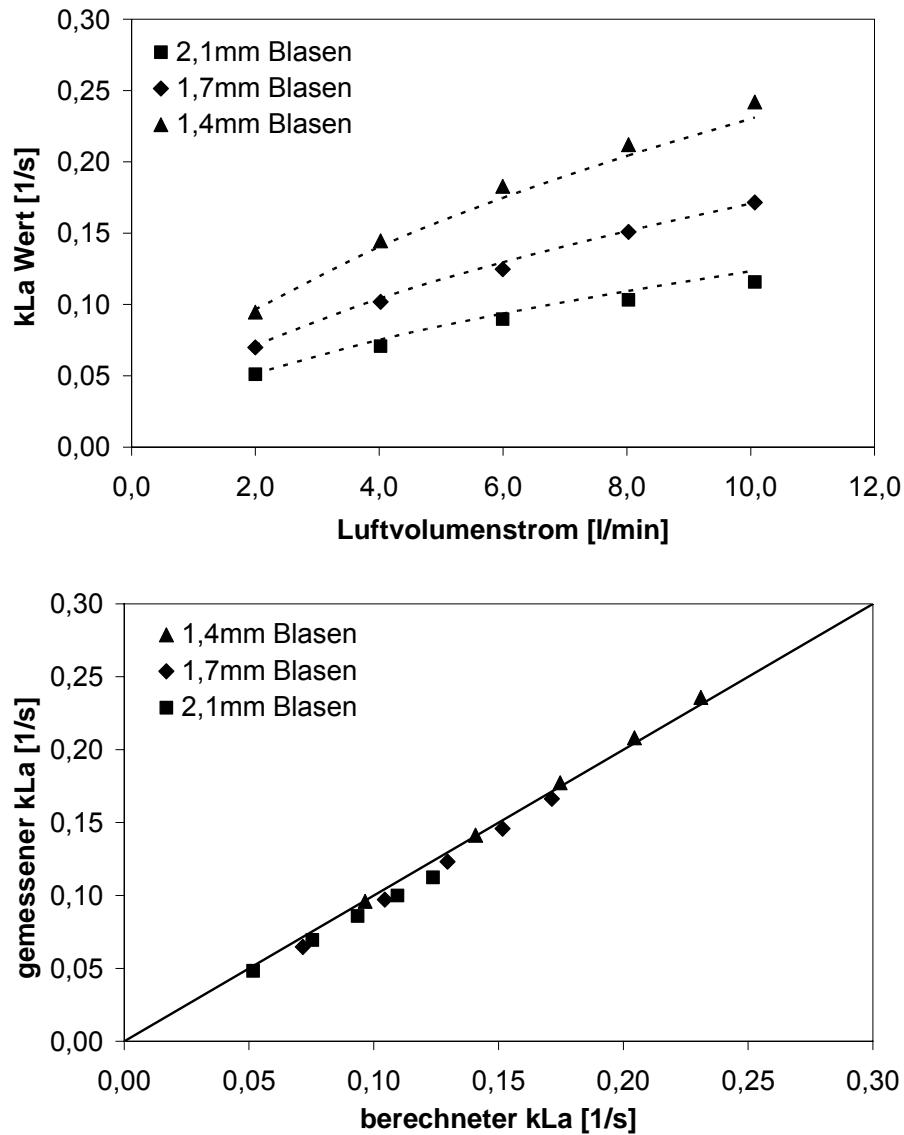


Abb.6.13: Vergleich zwischen relativem Gasgehalt und k_{La} Wert, 2 SiC Monolithen, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, Gleichung 6.13, $R^2=0,99$

Berechnet man mit der oben aufgestellten Gleichung 6.13 den Einfluss des Flüssigkeitsvolumenstroms auf den k_{La} Wert ergibt sich allerdings ein falscher Zusammenhang. Die berechneten Gleichungen verlaufen exponentiell fallend bei Steigerung des Flüssigkeitsvolumenstroms, entgegen den tatsächlichen Messungen (s.Abb.5.21). Die Abnahme des relativen Gasgehalts mit steigendem Flüssigkeitsvolumenstrom (s.Kap.5.4) wird in der Gleichung ausgedrückt, nicht jedoch der Anstieg des k_{La} Werts bei steigendem Flüssigkeitsvolumenstrom. Hier wird deutlich, dass der k_{La} Wert nicht nur vom relativen Gasgehalt abhängt.

7 ZUSAMMENFASSUNG

Die vorliegende Dissertation ist Teil des von der Deutschen Forschungsgemeinschaft geförderten interdisziplinären Verbundprojekts „Immobilisierung von aeroben Mikroorganismen in Wechselwirkung mit offen porösen Keramikmonolithen“. Im Rahmen des Projekts werden die komplexen Zusammenhänge zwischen Werkstoff, Hydrodynamik und Biofilmbildung für die Immobilisierung von aeroben Mikroorganismen in einem neuartigen Strömungsreaktor mit Keramikmonolithen untersucht. Die Versorgung der Mikroorganismen mit gelöstem Sauerstoff stellt dabei eine der Hauptaufgaben beim Betrieb des monolithischen Strömungsreaktors dar.

Im vorliegenden Anwendungsfall wird die Intensität des Sauerstoffübergangs von der Luft in die Versuchsflüssigkeit durch den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ beschrieben. Zu den Einflussparametern gehören unter anderem der Volumenstrom der Luft und der Flüssigkeit, die Größe der einströmenden Gasblasen, der relative Gasgehalt und die Geometrie der Reaktorbauteile.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein neuartiger Gas(G)-Flüssigkeits(L)-Reaktortyp entwickelt und untersucht, in dem ein hoher G-L-Stoffübergang für die Immobilisierung von aeroben Mikroorganismen erzielt werden soll. Die wesentliche Aufgabe besteht darin, den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten in dem Strömungsreaktor mit monolithischer Keramik aus Siliziumkarbid und Cordierit in Abhängigkeit von den oben genannten Parametern verfahrenstechnisch zu charakterisieren. Die Versuche zur Ermittlung des Stoffübergangs wurden mit einem chemischen Ersatzsystem durchgeführt. Das verwendete Modellsystem Natriumsulfit simuliert die Zellatmung der Mikroorganismen, ohne dem Einfluss des Stoffwechsels der Mikroorganismen zu unterliegen.

Eine weitere Aufgabe besteht darin, den erzielten Stoffübergang in Beziehung zu setzen mit dem notwendigen spezifischen Leistungseintrag. Daraus sind Kriterien für optimale Betriebsbedingungen abzuleiten, außerdem eine Bewertung der Übertragbarkeit des chemischen Ersatzsystems auf ein biologisches Fermentationsmedium. Die Messreihen für den Stoffübergangskoeffizienten und den Leistungseintrag wurden numerisch approximiert. Der Einfluss der oben genannten Parameter auf die Biofilmbildung von den aeroben Mikroorganismen *Corynebacterium glutamicum* in der

Keramik wurde vom Projektpartner, dem Institut für Bioverfahrenstechnik (BioVT) an der RWTH Aachen, bestimmt /Seletzky, 2007/.

Bei der Konstruktion des Reaktors steht der einfache Wechsel der Keramikmonolithen und der Flüssigkeitsfüllung im Vordergrund. Die Blasenenerzeugung im Reaktor geschieht unterhalb der Monolithen durch poröse Glasplatten. Es wurden vier verschiedene Begasungsplatten untersucht mit einem Porengrößenbereich zwischen 16 und 250 μm . Die mit einer Gleichung von /Siemes, 1954/ berechneten Primärblasengrößen liegen mit diesen Begasungsplatten zwischen 1,1 und 2,1mm. Bei allen Versuchsreihen mit unterschiedlichen Begasungsplatten zeigte sich, dass kleinere Blasen höhere volumetrische Stofftransferkoeffizienten lieferten, unabhängig von den anderen Parametern.

Mit den oben aufgeführten Begasungsplatten wurden Stofftransferversuche bei unterschiedlichen Volumenströmen durchgeführt. Die Luftvolumenströme lagen zwischen 2 und 10l/min (ca. 1 und 5vvm) und die Volumenströme der Flüssigkeit zwischen 3 und 21,6l/min. Der volumetrische Stoffübergangskoeffizient steigt mit zunehmendem Luftvolumenstrom. Ab einem Wert von 6l/min (ca.3vvm) verstärkt sich dabei der degressive Verlauf des $k_L a$ Werts bei allen Versuchen. Kommt es durch eine Luftvolumenstromerhöhung zu keiner weiteren deutlichen Zunahme des $k_L a$ Werts, kann der Stoffübergang durch eine Steigerung des Volumenstroms der Flüssigkeit noch weiter verbessert werden. Wenn die maximale Gasbeladung des Systems (durch den Luftvolumenstrom) erreicht ist, führt eine Volumenstromerhöhung der Flüssigkeit zu einer verbesserten Dispergierung des Gases in der Flüssigkeit. Ähnlich wie beim Einfluss des Luftvolumenstroms zeigt auch der Flüssigkeitsvolumenstrom einen degressiven Einfluss und erfordert die Definition einer Wirkungsgrenze oberhalb eines Wertes von ca.17l/min.

Die Untersuchungen des relativen Gasgehalts im Reaktor dienen zur Erklärung des Verhaltens der volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten bei den vorgegebenen Parametern. Der relative Gasgehalt ε_L und die Blasengröße sind maßgeblich für die im Reaktor zur Verfügung stehende Stofftransferfläche verantwortlich. Bei der Zunahme des $k_L a$ Werts mit steigendem Luftvolumenstrom ist der damit verbundene Anstieg des relativen Gasgehalts im Reaktor die verantwortliche Größe. Bei Erhöhung des Volumenstroms der Flüssigkeit kommt es zu einer Verringerung des Blasendurchmessers und dadurch zu einer Verbesserung des $k_L a$ Werts. Die Verringerung

überwiegt die Abnahme des Gasgehalts mit steigendem Flüssigkeitsvolumenstrom. Die abnehmende Blasengröße bei steigendem Flüssigkeitsvolumenstrom erklärt auch, warum es bei hohen Luftvolumenströmen nur noch durch eine Erhöhung des Volumenstroms der Flüssigkeit zu einer Verbesserung des Stoffübergangs kommt. Allerdings ist nicht nur der Gasgehalt die entscheidende Größe für den Stoffübergang. Mit kleineren Blasen ist eine schnellere Gasbeladung des Systems mit steigendem Luftvolumenstrom möglich, gleichzeitig bieten kleinere Blasen aber vor allem eine größere Oberfläche und damit Stoffaustauschfläche als größere Blasen.

Die Stoffübergangsuntersuchungen im hydrodynamischen Reaktor wurden mit zwei unterschiedlichen keramischen Monolithen durchgeführt. Die 150mm langen Keramikmonolithen unterscheiden sich neben ihrem Werkstoff insbesondere in ihrer Kanalbreite und Wanddicke und damit in ihrem Oberflächen-zu-Volumen-Verhältnis und in ihrer Anzahl an durchströmbaren Kanäle pro angeströmter Fläche (Siliziumkarbid: 200cps und Cordierit: 400cps). Die Versuche zeigten, dass der Einfluss der unterschiedlichen Kanalbreite der Keramiken auf den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten vernachlässigt werden kann, da die Strömungsgeschwindigkeit des Zweiphasengemisches in beiden Kanalstrukturen identisch ist. Im Rahmen der Versuche wurde außerdem nachgewiesen, dass eine Erhöhung der Anzahl, der in reihengeschalteten Monolithen, bzw. eine Verlängerung der Monolithen zu einem Anstieg des Stoffübergangs führt. Der Vergleich von längeren Monolithen mit mehreren kürzeren, mit 10mm Abstand in reihengeschalteten, Monolithen lieferte kein eindeutiges Ergebnis. Für eine endgültige Aussage müssen noch weitere Versuche folgen.

Beim Einsatz von vier Siliziumkarbidmonolithen wurden die höchsten $k_L a$ Werte dieser Arbeit gemessen, so zum Beispiel ein $k_L a$ Wert von 0,27 1/s bei ansonsten Standardbedingungen. Dies entspricht einer Erhöhung des $k_L a$ Werts gegenüber dem Wert bei Standardbedingungen um 50%. Bei sogenannten Standardbedingungen sind die Begasungsplatte mit einer Porengrößenverteilung von 40 bis 100 μ m (berechnete Blasengröße: 1,4mm) und zwei Siliziumkarbid Monolithen mit einem Abstand von 10mm in den Reaktor eingebaut. Mit einem eingestellten Flüssigkeitsvolumenstrom von 10,8l/min und einem Luftvolumenstrom von 6l/min (ca.3vvm) ergibt sich ein 'Standard $k_L a$ Wert' von 0,18 1/s.

Für die Ermittlung eines optimalen Betriebsbereichs wurde der spezifische Leistungseintrag ins System berücksichtigt. Danach ist eine Erhöhung der

Monolithanzahl bzw. –länge eine sinnvolle Maßnahme zur Steigerung des $k_L a$ Werts im Reaktor, da bei gleichem Leistungseintrag mit mehr bzw. längeren Monolithen ein höherer $k_L a$ Wert erreicht werden kann. So wird zum Beispiel bei einem konstanten Leistungseintrag von 2kW/m^3 bei Verwendung von vier statt zwei SiC Monolithen eine $k_L a$ Wert Steigerung um 24% erreicht. Außerdem zeigte sich, dass der Primärblasendurchmesser nur einen sehr geringen Einfluss (max.4.2%) auf den Leistungseintrag in den Untersuchungsgrenzen hat. Diese Erkenntnis führt zu dem Schluss, dass es zu einer deutlichen Steigerung des $k_L a$ Werts durch eine Verkleinerung des Blasendurchmessers kommt, bei vernachlässigbarem Einfluss auf den Leistungseintrag. Durch Vorgabe eines konstanten Leistungseintrags erhält man die optimale (berechnete) Primärblasengröße von 1,4mm. Die Untersuchung des Leistungseintrags bestätigt außerdem den maximal sinnvollen Luftvolumenstrom von 6l/min (ca.3vvm). Eine weitere wichtige Erkenntnis der Untersuchungen ist der optimale Betriebsbereich des Reaktors zwischen einem Leistungseintrag von 1,5 und 2kW/m^3 , da die Zunahme des $k_L a$ Werts bei Erhöhung des Leistungseintrags über diesen Bereich hinaus deutlich abnimmt.

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen des volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten wurden durch exponentielle Mehrfachregressionen mit der Rechensoftware MAPLE in eine analytische Form gezwängt. Durch die gewählte Regression wurde eine Gleichung gefunden, mit der die Einflüsse von Luftvolumenstrom und Blasengröße auf den $k_L a$ Wert berechnet werden können. Die Gleichung

$$k_L a = 0,19 \cdot \dot{V}_L^{0,45} \cdot B^{-2,06} \quad (6.2)$$

hat im untersuchten Bereich ein Bestimmtheitsmaß R^2 von 0,98 und wird so als hinreichend genau angenommen.

Mit der Regressionsanalyse des relativen Gasgehalts in Kombination mit der Blasengröße ergibt sich die folgende Gleichung zur Berechnung des $k_L a$ Werts:

$$k_L a = 1,28 \cdot \dot{V}_{\text{Luft}}^{0,54} \cdot \dot{V}_{\text{Fl.}}^{-0,47} \cdot B^{-1,54} \quad (6.13)$$

Die Gleichung 6.13 gibt die Messwerte sehr gut wieder, allerdings nur bei Variation von Luftvolumenstrom und Blasengröße, bei gleichzeitig konstantem Flüssigkeitsvolumenstrom ($R^2=0,99$). Berechnet man mit der Gleichung den Einfluss des Flüssigkeitsvolumenstroms auf den $k_L a$ Wert ergibt sich ein stark abweichender Zusammenhang. Die berechneten Gleichungen verlaufen exponentiell fallend bei Steigerung des Flüssigkeitsvolumenstroms, entgegen den tatsächlichen Messungen

(s.Abb.5.21). Die Abnahme des relativen Gasgehalts mit steigendem Flüssigkeitsvolumenstrom wird in der Gleichung ausgedrückt, nicht jedoch der Anstieg des k_{La} Werts bei steigendem Volumenstrom der Flüssigkeit. Hier wird nochmal deutlich, dass der k_{La} Wert vom relativen Gasgehalt und von der Blasengröße abhängt.

Die Modellierung des Monolithlängeneinflusses auf den Stoffübergangskoeffizienten zeigt, dass eine maximale Monolithenlänge von 400mm sinnvoll ist. Wird eine höhere Immobilisierungsfläche im Reaktor erfordert, ist eine Parallelschaltung von mehreren Monolithen eine Möglichkeit. Eine andere Möglichkeit ist eine weitere Stelle, an der Luft in den Reaktor eingetragen wird, zum Beispiel nach einem 400mm langen Monolithen bevor ein weiterer Monolith eingebaut sein könnte. Welche Einflüsse mehrere Begasungsstellen und/oder eine Parallelschaltung von Monolithen auf den volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten und den spezifischen Leistungseintrag hat, muss Gegenstand weiterführender Untersuchungen sein. Erst ein detailliertes Scale-up der hier gewonnen Erkenntnisse kann eine industrielle Nutzungsmöglichkeit des neuartigen Strömungsreaktors endgültig beantworten. Das Scale-up muss auch eine Beurteilung beinhalten, für welche chemischen und biologischen Prozesse die mit dem Reaktor erzielbaren Stoffübergangsraten interessant sein können.

Neben der hydrodynamischen Charakterisierung des Strömungsreaktors, wurde eine Charakterisierung der verwendeten Keramiken, zu der auch die Auswertung von biologischen Immobilisierungsversuchen in den keramischen Strukturen gehört, durchgeführt. Die Mikroorganismen besiedeln die Keramik nicht mit einer Monoschicht. Nach der ersten Adsorption auf der Oberfläche bildet sich ein sehr kompakter Biofilm. Die Dicke des Films hängt neben anderen Einflüssen in starkem Maße von der zur Verfügung stehenden Sauerstoffmenge ab. Die ausgewerteten Biofilme der ca.1 μ m großen Mikroorganismen *Corynebacterium glutamicum* hatten im getrockneten Zustand Dicken zwischen 5 und 30 μ m. Nach einer geeigneten Probenpräparation konnten die Mikroorganismen flächenmäßig, aber auch in der Tiefe der porösen Keramik, mit der Energiedispersiven Elektronenstrahlröntgenmikroanalyse (EDX) qualitativ nachgewiesen werden. Die im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Präparation der immobilisierten *Corynebacterium glutamicum* lässt sich auch auf andere Mikroorganismen übertragen und gewährleistet eine qualitative Auswertung, sowohl flächenmäßig als auch in der Tiefe der porösen Keramik. Durch geeignete Bildanalysemethoden kann eine quantitative Bewertung in weiterführenden Untersuchungen ergänzt werden.


Das in dieser Arbeit verwendete Ersatzsystem Natriumsulfit zeigt gegenüber einer biologischen Fermentation mit immobilisierten Mikroorganismen folgende Unterschiede. Während die chemische Reaktion überall in der Flüssigkeit geschieht, wird im biologischen Medium nur dort Sauerstoff verbraucht, wo sich die Mikroorganismen befinden. Ein Teil der Mikroorganismen ist in der Flüssigkeit suspendiert, ein anderer auf bzw. in der Keramik immobilisiert. Diese Anteile sind unbekannt. Ein weiterer Unterschied zwischen den Systemen ist die Koaleszenzwirkung. Das Natriumsulfit-system ist verglichen mit dem von /Seletzky, 2007/ verwendeten Biosystem weniger koaleszenzhemmend. Bei den Versuchen zur Bestimmung der Übertragbarkeit zeigte sich bei einem Flüssigkeitsvolumenstrom von 10,8l/min, einer Blasengröße von 2,1mm und einem Luftvolumenstrom von 6l/min, dass die Übertragbarkeit als ausreichend genau angesehen werden kann. Der $k_L a$ Wert betrug für das relevante Biosystem 0,066 1/s und für das Sulfitssystem 0,085 1/s. Die Werte weichen zwar um 22% voneinander ab, für die Übertragbarkeit der Erkenntnisse aus dem Sulfitssystem auf das Biosystem wird diese Abweichung aber als ausreichend genug angesehen. Für eine detailliertere Bestimmung eines zahlenmäßigen Übertragungsfaktors innerhalb der untersuchten Grenzen zwischen dem hier verwendeten 0,5molaren Natriumsulfitssystem und dem von /Seletzky, 2007/ fermentierten Biosystems mit *Corynebacterium glutamicum* müssen noch weitere Versuche folgen.

Die Hauptanforderungen an den neuartigen G-L-Reaktor ist ein hoher volumetrischer Stoffübergang bei einem möglichst geringen Leistungseintrag. Bei einem aus den Versuchserkenntnissen vorgegebenen Leistungseintrag ins System von maximal 2kW/m^3 liegt der aufgrund der Ergebnisse dieser Arbeit empfohlene optimale Betriebsbereich bei einem Luftvolumenstrom von 6l/min (ca.3vvm), einem Flüssigkeitsvolumenstrom von 12l/min, einer verwendeten Begasungsplatte mit dem Porenbereich von 40-100 μm (berechnete Primärblasengröße 1,4mm) und einer Monolithenlänge von 400mm. Der damit erreichte volumetrische Stoffübergangskoeffizient $k_L a$ beträgt 0,2 1/s (s.Tab.7.1). Der Volumenstrom der Flüssigkeit von 12l/min reicht aus, um eine gleichmäßige Durchströmung der beiden Phasen im Reaktor zu erreichen und ein Aufstauung der Blasen unterhalb der Keramikmonolithen zu verhindern.

Die Auswirkungen der hier untersuchten Einflüsse auf das tatsächliche Immobilisierungsverhalten von Mikroorganismen (insbesondere auf die Biofilmbildung in Abhängigkeit der Volumenströme) bedürfen weiterführende Untersuchungen. Besondere Aufmerksamkeit sollte bei folgenden Untersuchungen der Zusammenhänge

zwischen den physikalischen Parametern und der Biofilmbildung auf die Blasengröße und die damit einhergehenden Kriterien wie relativer Gasgehalt und die Stofftransferfläche gelegt werden.

Tab.7.1: Optimaler Betriebsbereich des Sulfit-Reaktorsystems

Luftvolumenstrom \dot{V}_L	6 l/min		Volumetrischer Stoffübergangskoeffizient $k_L a = 0,2 \text{ 1/s}$
Flüssigkeitsvolumenstrom \dot{V}_{Fl}	12 l/min		Spezifischer Leistungseintrag $P/V = 2 \text{ kW/m}^3$
Blasengröße B	1,4 mm		
Monolithlänge L	400 mm		

8 FORMELVERZEICHNIS

a	Spezifische Austauschfläche	[m ⁻¹]
A	Grenzfläche	[m]
B	Blasengröße	[m]
Δc	Konzentrationsänderung	[mol/L]
c _{Co++}	Konzentration des Kobaltkatalysators	[mol/L]
c _G	Konzentration in der Gasphase	[mol/L]
c _L	Konzentration in der Flüssigphase	[mol/L]
c _L [*]	Grenzflächenkonzentration in der Flüssigphase	[mol/L]
c _{Na2SO4}	Konzentration von Natriumsulfat	[mol/L]
c _{O2}	Sauerstoffkonzentration in der Flüssigkeit	[mol/L]
c _{O2} [*]	Sauerstoffkonzentration an der Grenzfläche	[mol/L]
c _W	Widerstandsbeiwert	[-]
C	Konstante	[-]
d	Durchmesser	[m]
d _B	Blasendurchmesser	[m]
d _P	Porendurchmesser	[m]
F _A	Ablösekraft	[N]
F _A -F _G	Auftriebskraft	[N]
Fr	Froude-Zahl	[-]
F _W	Widerstandskraft der umgebenden Flüssigkeit gegen Blasenentstehung bzw. -ablösung	[N]
F _σ	Grenzflächenkraft	[N]
g	Erdbeschleunigung	[m/s ²]
Ha	Hatta-Zahl	[-]
k	Gesamtstoffübergangskoeffizient beim Transport durch die Phasengrenze	[m/s]
k _g	Gasseitiger Stoffübergangskoeffizient beim Transport durch die Phasengrenze	[m/s]
k _L	Flüssigkeitsseitiger Stoffübergangskoeffizient beim Transport durch die Phasengrenze	[m/s]
k _L a	volumetrischer Stoffübergangskoeffizient	[1/s]
L	Länge der Monolithen	[m]

L_{O_2}	Sauerstofflöslichkeit	[mol/bar·m ³]
m	Stoffmenge, Molzahl	[mol]
\dot{m}	Stoffmengenfluss	[mol/s]
n	Porenanzahl	[-]
\dot{n}	Stofftransport über Phasengrenze	[mol/s]
OTR	Sauerstofftransferrate	[mol/L·h]
OUR	Sauerstoffaufnahmeferrate	[mol/L·h]
p	Druck	[Pa]
pH	pH Wert	[-]
p_K	Druck im Reaktorkopf	[bar]
p_L	Druck in der Luftzuleitung	[bar]
p_{O_2}	Partialdruck von Sauerstoff	[bar]
Δp_P	Druckunterschied zwischen Pumpeneintritt und -austritt	[bar]
p_R	Druck im Reaktor	[bar]
p_S	Druck im Reaktorsockel	[bar]
P	Leistung	[m ² ·kg/s ³]
P_{Blasen}	Leistungseintrag durch Blasenbildung	[m ² ·kg/s ³]
P_{exp}	Leistungseintrag durch Expansion der Blasen	[m ² ·kg/s ³]
P_P	Pumpenleistung	[m ² ·kg/s ³]
q	Begasungsrate	[vvm]
q_{O_2}	spezifische Atmungsrate	[mol/g/h]
R	molare Gaskonstante (8,314 kJ K ⁻¹ kmol ⁻¹)	[kJ K ⁻¹ kmol ⁻¹]
Re	Reynoldszahl	[-]
\dot{r}	Reaktionsgeschwindigkeit	[mol/L·s]
t	Zeit	[s]
T	Temperatur	[K]
Δu	Schlupfgeschwindigkeit	[m/s]
u_G	Gasleerrohrgeschwindigkeit	[m/s]
u_{Fl}	Strömungsgeschwindigkeit der Flüssigkeit	[m/s]
u_L	Strömungsgeschwindigkeit der Luft	[m/s]
v_P	Strömungsgeschwindigkeit in einer Pore	[m/s]
V_B	Blasenvolumen	[m ³]
\dot{V}_{Fl}	Volumenstrom der Flüssigkeit	[m ³ /s]
V_m	molares Normvolumen (22,41 m ³ kmol ⁻¹)	[m ³ kmol ⁻¹]

V_L	Luftvolumen im Reaktor	$[m^3]$
V_R	Füllvolumen des Reaktors	$[m^3]$
We	Weber-Zahl	$[-]$
$(W)_V^{rev}$	Volumenänderungsarbeit	$[N \cdot m]$
X_{ges}	Biomassekonzentration	$[g/l]$
y_{CO_2in}	Kohlendioxidanteil der in den Reaktor einströmenden Luft	$[-]$
y_{CO_2out}	Kohlendioxidanteil der aus dem Reaktor strömenden Luft	$[-]$
y_{O_2in}	Sauerstoffanteil der in den Reaktor einströmenden Luft	$[-]$
y_{O_2out}	Sauerstoffanteil der aus dem Reaktor strömenden Luft	$[-]$
y_{N_2in}	Stickstoffanteil der in den Reaktor einströmenden Luft	$[-]$
y_{N_2out}	Stickstoffanteil der aus dem Reaktor strömenden Luft	$[-]$
Y_{X/O_2}	Sauerstoffausbeutekoeffizient der Biomasse	$[g/mol]$
δ	Dicke der Grenzschicht	$[m]$
δ_L	Gasseitige Grenzschichtdicke	$[m]$
δ_{Fl}	Flüssigkeitsseitige Grenzschichtdicke	$[m]$
ε_L	relativer Gasgehalt im Reaktor	$[-]$
ε_{Fl}	relativer Flüssigkeitsgehalt im Reaktor	$[-]$
η	dynamische Viskosität	$[N \cdot s/m^2]$
μ_{max}	maximalen Wachstumsrate	$[1/s]$
ν	kinematische Viskosität	$[m^2/s]$
σ	Oberflächenspannung	$[N/m^2]$
$\Delta\rho$	Dichtedifferenz zwischen den Phasen	$[kg/m^3]$
ρ_L	Dichte der Luft	$[kg/m^3]$
ρ_{Fl}	Dichte der Flüssigkeit	$[kg/m^3]$

9 LITERATUR

- R.Ade Bello, C.W.Robinson, M.Moo-Young
Gas holdup and overall volumetric oxygen transfer coefficient in airlift contactors
Biotech. Bioeng., Vol.27, 369-384, 1985
- K.Akita, T.Okazaki, H.Koyama
Gas holdups and friction factors of gas-liquid two-phase flow in an airlift bubble column
J.of chem.Eng.of Japan, Vol 21,476-482, 1988
- W.A.Al-Masry
Effects of antifoam and scale-up on operation of bioreactors
Chemical Engineering and Processing 38, 1999
- A.Bals
Grundlagen der Blasenbildung an Einzelporen und Lochplatten
Chemie Ingenieur Technik, Vol.74, No.3, 2002
- M Barboza, M.Zaiat, C.O. Hokka
General relationship for volumetric oxygen transfer coefficient (kLa) prediction in tower bioreactors utilizing immobilized cells
Bioprocess Eng. 22, 181-184, 2000
- G.Bercic, A.Pintar
The role of gas bubbles and liquid slug lengths on mass transport in the Taylor flow trough capillaries
Chem. Engineering Science, Vol 52, Nr. 21/22, 3709-3719, 1997
- S.Berg
Zur Gasgehaltsverteilung und zum Verweilzeitverhalten der Gasphase in Blasensäulen mit längsangeströmten Rohrbündeleinbauten
Dissertation, Universität Dortmund, 1993
- J.J.Bikerman
Foams
Springer-Verlag, 1973
- C.Born, M.Biselli, C.Wandrey
Production of monoclonal antibodies in a pilot scale fluidized bed bioreactor
E.C.Beuvry et al., Animal Cell Technology: Developments Towards the 21st Century, Kluwer Academic Publishers, 683-686, 1995
- H.Braeske, J.Domnick, G.Brenn
Experimentelle Grundlagenuntersuchungen zur Strömungsmechanik in Blasensäulen
Bericht LSTM 513/E/96, Universität Erlangen-Nürnberg, 1996
- H.Brauer
Grundlagen der Einphasen- und Mehrphasenströmung
Verlag Sauerländer, Frankfurt am Main, 1971

R.Buchholz, J.Tsepetonides, J.Steinemann, U.Onken
Einfluss des Begasers auf die spezifische Phasengrenzfläche und den Stofftransport in Blasensäulen
Chem.-Ing.-Tech. 54, Nr.2, 1982

J. Büchs
Immobilisierung von aeroben Mikroorganismen an Glassintermaterial am Beispiel der L-Leucin-Produktion mit *Corynebacterium glutamicum*
Dissertation KfA Jülich, 1988

K.H.Choi
Circulation liquid velocity, gas holdup and volumetric oxygen transfer coefficient in external-loop airlift reactors
J.Chem. Tech. Biotechnol., 56, 51-58, 1993

K.H.Choi
Effect of unaerated liquid height on hydrodynamic characteristics of an external-loop airlift reactor
Chem.Eng.Comm.; Vol 189, Nr.1, 23-39, 2002

E.B.Cooper, G.A.Fernstrom, S.A.Miller
Performance of agitated gas-liquid contactors
Ind.Eng.Chem. 36, 504-509, 1944

A.Cybulski, A. Stankiewicz, R.K.Edvinsson Albers, J.A.Moulijn
Monolithic reactors for fine chemicals industries: A comparative analysis of a monolithic reactor and a mechanically agitated slurry reactor
Chem. Eng. Science 54, 2351-2358, 1999

J.F.Davidson, B.O.G.Schüler
Bubble Formation at an orifice in a viscous liquid
Trans.Inst.Chem.Eng. 38, 144-154, 1960

I.De Ory, L.E.Romero, D.Cantero
Laboratory scale equipment for the determination of $k_L a$ in bio-reactors
Bioprocess Engineering 20, 1999

W.-D. Deckwer
Reaktionstechnik in Blasensäulen
Otto Saale Verlag, 1985

W.-D.Deckwer, A.Schumpe
Improved tools for bubble column reactor design and scale-up
Chemical Engineering Science 48, No.5, 1993

W.A.Duetz, L.Rüedli, R.Hermann, K.O'Connor, J.Büchs, B.Witholt
Methods for intense aeration, growth, storage and replication of bacterial strains in microtiter plates
Appl. And Environmental Microbiology, Vol.66, No.6, 2641-2646, 2000

S.O.Enfors, B.Mattiasson

Oxygenation of processes involving immobilized cells

Immobilized Cells and Organelles, Vol. II, CRC Press Inc., USA, 1983

G.Ewald

Ermittlung des Stoffübergangs von Sauerstoff und des Gasgehalts in einem

Strahlschlaufenreaktor mit strukturviskosen Flüssigkeiten als Modellmedium

Dissertation, Dortmund 1993

S.Fischer

Blasenbildung von in Flüssigkeit gelösten Gasen

Dissertation TU München, 2001

C.Fleischer

Detaillierte Modellierung von Gas- Flüssigkeits- Reaktoren

Forschungsberichte VDI, Reihe 3 Nr 691, VDI Verlag, 2001

A.K.Heibel, J.J.Heiszwolf, F. Kapteijn, J.A.Moulijn

Influence of channel geometry on hydrodynamics and mass transfer in the monolith film flow reactor

Catalysis Today 69, 153-163, 2001

R.Hermann

Entwicklung und Anwendung optischer Methoden zur Charakterisierung von Kleinkulturbioreaktoren

Dissertation RWTH Aachen, 2001a

R.Hermann, N.Walther, U.Maier, J.Büchs

Optical method for the determination of the oxygen-transfer capacity of small bioreactors based on sulfite oxidation

Biotechnology and Bioengineering, Vol.74, No.5, 2001b

M.Hildebrand

Keramische Folien als Mikrofiltrationsmedium

Dissertation, RWTH Aachen, 1992

W.Hirner, H.Blenke

Gasgehalt und Phasengrenzfläche in Schlaufen und Strahlreaktoren

Verfahrenstechnik Nr. 5, 297-302, 1977

W.Hirner

Stoffübergang und Stoffübergangsfläche in Gas/ Flüssigkeits- Strahlreaktoren

Dissertation, Stuttgart, 1974

C.S.Ho, L.-K.Ju

Effects of microorganisms on effective oxygen diffusion coefficients and solubilities in fermentation media

Biotech. Bioeng. 32, 313-352, 1988

S.Irandoust, B.Andersson

Mass transfer and liquid-phase reaction in a segmented two-phase flow monolithic

catalyst reactor

Chem. Engineering Science, Vol 43, Nr. 8, 1983-1988, 1988

A. Julbe, D.Farrusseng, Ch.Guizard

Porous ceramic membranes for catalytic reactors- overview and new ideas

J. Membran Science, Vol. 181, 3-20, 2001

K.Kawakami, K.Kawasaki, F. Shiraishi, K. Kusunoki

Performance of a honeycomb monolith bioreactor in a gas-liquid- solid three-phase system

Ind.Eng.Chem.Res. Vol 28, 1989a

K. Kawakami, K. Adachi, N. Minemura, K. Kusunoki

Characteristics of a gas-liquid-solid, three-phase, honey-comb-mobilith bioreactor.

Oxidation of glucose by immobilized glucose oxidase

International Chem. Eng., Vol. 29, No.2, 320-327, 1989b

Y.Kawase, M.Moo-Young

The effect of antifoam agents on masstransfer in bioreactors

Bioprocess Engineering 5, 169-173, 1990

M.Kiecz

Einfluss des spezifischen Leistungseintrags auf den volumetrischen

Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ eines Zweiphasensystems für Keramikmonolithen

Studienarbeit IKKM, RWTH Aachen, 2005

P.Klug

Der Blasenbildungsvorgang bei der Gasverteilung an Lochplatten

Dissertation TU Clausthal, 1983

B.Kochbeck

Airliftreaktoren mit inversem inneren Umlauf- Design und Scale-up

Dissertation, Universität Paderborn, 1995

J.Koska

Stoffübergang in gerührten Bioreaktoren

Diplomarbeit FH für Technik Mannheim, 1991

M.T.Kreutzer, P.Du, J.J.Heiszwolf, F.Kapteijn, J.A.Moulijn

Masstransfer characteristics of three-phase monolith reactors

Chem. Eng. Science, 56, 6015-6023, 2001

R.Kumar, R.K.Kuloor

Blasenbildung in nichtviskosen Flüssigkeiten unter konstanten Fließbedingungen

Chemie Ingenieur Technik, Vol.19, No.11, 657-660, 1967

W.Last, J.Stichmair

Bestimmung der Stoffübergangparameter mit Hilfe chemischer Absorptionen

Chemie Ing. Technik, Vol. 72, Nr. 11, 1362-1366, 2000

P.J.M.Lebens, M.M.Stork, F.Kapteijn; , S.T.Sie, J.A.Moulijn
Hydrodynamics and mass transfer issues in a countercurrent gas- liquid internally
finned monolith reactor
Chem. Eng Science 54, 2381-2389, 1999b

W.Leuchtenberger
Amino acids – technical production and use
In: H.Rehm und G.Reed, Products of primary metabolism.
Biotechnology 6, VCH Weinheim, 1996

F.Liepe
Verfahrenstechnische Berechnungsmethoden
Teil 4: Stoffvereinigung in fluiden Phasen
VCH Verlagsgesellschaft, Weinheim, 1988

V.Linek, J.Tvrdik
A generalization of kinetic data on sulphite oxidation systems
Biotech. Bioeng. 13, 1971

V.Linek, V.Vacek
Chemical engineering use of catalyzed sulfite oxidation kinetics for the determination of
mass transfer characteristics of gas-liquid contactors
Chem. Eng. Science, vol 36, No11, 1747-1768 ,1981

V.Linek, P.Benes, O.Holecek
Correlation for volumetric mass transfer coefficient in mechanically agitated aerated
vessel for oxygen absorption in aqueous electrolyte solutions
Biotechn. Bioeng. 32, 482-490, 1988

S.Lowell, J.E.Shields
Powder Surface Area and porosity
Chapman and Hall, London, 1984

B.Maier, C.Dietrich, J.Büchs
Correct application of the sulphite oxidation methodology of measuring the volumetric
mass transfer coefficient $k_L a$ under non- pressurized and pressurized conditions
Trans IchemE, Vol 79, Part C, 1-6, 2001

B.Maier
Auslegung und Betrieb von Rührkesselbioreaktoren unter erhöhtem Reaktordruck
Dissertation RWTH-Aachen, 2002

U.Maier
Gas/ Flüssigkeits- Stofftransfer im Schüttelkolben
Dissertation, RWTH-Aachen, 2002

A.L.Marquez, G.Wild, N.Midoux
A review of recent chemical techniques for the determination of the volumetric mass-
transfer coefficient $k_L a$ in gas-liquid reactors
Chem. Eng and Proc., 33, 247-260, 1994

L.Mehnert

Reaktionstechnische Untersuchungen an einem kontinuierlich betriebenen Biofilmreaktor mit *Corynebacterium glutamicum*: Aerobe Biofilmbildung und Reaktorproduktivität

Diplomarbeit Lehrstuhl und Institut für Bioverfahrenstechnik, RWTH Aachen, 2005

J.C.Merchuk

Why use air-lift bioreactors?

Tibtech- March, vol 8, 66-71, 1990

A.Mersmann

Druckverlust und Schaumhöhen von gasdurchströmten Flüssigkeitsschichten auf Siebböden

VDI-Forschungsheft 491, VDI Verlag, Düsseldorf, 1962

R.A.Messing, R.A.Oppermann

Pore dimensions for accumulating biomass. I. Microbes that reproduce by fission or by budding

Biotech. and Bioengineering, Vol.XXI, 49-58, 1979

N.Michaeli

Herstellung von Hohlkörpern kleiner Abmessungen aus ZrO_2 durch kaltisostatisches Pressen und Einfluss von Druckpulsation während der Formgebung auf die Bauteileigenschaften

Diplomarbeit, IKKM RWTH Aachen, 1994

A.Morao, C.I.Maia, M.M.R.Fonesca, J.M.T.Vasconcelos, S.S.Alves

Effect of antifoam addition on gas-liquid mass transfer in stirred fermenters

Bioproc. Eng. 20, 165-172, 1999

T.A.Nijhuis, M.T.Kreutzer, A.C.J.Romijn, F.Kapteijn, J.A.Moulin

Monolithic catalysts as a efficient three phase reactors

Chem. Eng Science 56, 823-829, 2001a

T.A.Nijhuis, A.E.W.Beers, Th.Vergunst, I.Hoek, F.Kapteijn, J.A.Moulin

Preparation of monolithic catalysts

Catalysis Reviews 43(4), 345-380, 2001b

O.Nagel, H.Kürten, R.Sinn

Stoffaustauschfläche und Energiedissipationsdichte als Auswahlkriterien für Gas/ Flüssigkeits- Reaktoren

Chem. Ing. Tech. 44. Jahrg, Nr 5, 367-373, 1972

R.H.Patrick, Th.Klindera, L.L.Crynes, R.L.Cerro, M.A.Abraham

Residence time distribution in three-phase monolith reactor

AIChE Journal, Vol.41, No.3, 649-657, 1995

M. Piwonski

Keramische Membranen auf Basis von LPS-SiC: Schlickerentwicklung und Beschichtungsverfahren

Dissertation Technische Universität Dresden, 2005

- E.Pfaff, K.Otten
Nachweis der Besiedlungsdichte keramischer Oberflächen mit Mikroorganismen für biotechnische Anwendungen
Fortschritte in der Metallographie, G.Petzow, ISBN 3-88355-322-0, Berlin 2003
- R.Pörtner
Reaktionstechnik der Kultur tierischer Zellen
Habilitation TU Hamburg-Harburg, Shaker Verlag, 1996
- L.Poughon, D.Duchez, J.F.Cornet, C.G.Dussap
kLa determination: comparative study for a gass mass balance method
Bioproc. Biosyst. Eng. , 25, 341-348, 2003
- N.Räbinger, A.Vogelpohl
Berechnung der Blasengröße im Bereich des Blasen- und Strahlgasens bei ruhender und bewegter Newtonscher Flüssigkeit
Chemie Ingenieur Technik, Vol.54, No.11, 1082-1083, 1982
- N.G.Ray, A.S.Tung, E.G.Hayman, J.N.Vorunakis, P.W.Rundstadler Jr.
Continous cell cultures in fluidized-bed bioreactors
Ann. N.Y. Sci. 589, 443-457, 1990
- T.Reith, W.J.Beek
The Oxidation of aqueous sodium sulphite solutions
Chem. Eng Science, Vol 28, 1331-1339, 1973
- C.W.Robinson, C.R.Wilke
Oxygen absorption in stirred tanks: A correlation for ionic strength effects
Biotechn. Bioeng. 15, 755-782, 1973
- G. Ruchti, I.J. Dunn J.R Bourne
Practical Guidelines for the determination of oxygen transfer coefficients (kLa) with the sulfite Oxidation method
The Chem. Eng. J. 30, 29-38, 1985
- K.Ruff
Grenze zwischen Blasengasen und Strahlgasen bei niedrigviskosen Flüssigkeiten und konstantem Gasvolumen-Durchsatz
Chemie-Ingenieur-Technik 46, 1974
- U.H.Rutte-Müller
Leistungsfähigkeit eines Propellerschlaufenreaktors mit niedrig- und hochviskosen biologischen Testsystemen
Dissertation ETH Zürich, 1986
- W.Scharifullin, K.Schürigel
Optimierung des Sauerstoffeintrags in Bioreaktoren mit Verteiltem Sauerstoff- und Leistungseintrag
Chem. Ing. tech. 65, Nr 7, 847-848, 1993

R.Schmidt

Werkstoffverhalten in biologischen Systemen
Springer Verlag, 1999

H.Schneider

Konstruktion und Entwicklung eines Bioreaktors mit einem keramischen
Honeycombmonolithen als Carrier der immobilisierten Biomasse
Studienarbeit Institut für Bioverfahrenstechnik, RWTH Aachen, 2003

W.Schröder

Fluidmechanik, Vorlesungsumdruck
Aerodynamisches Institut und Lehrstuhl für Strömungslehre der RWTH Aachen, 2004

K. Schügerl

Neue Bioreaktoren für aerobe Prozesse
Chem. Ing. Tech. 52, Nr. 12, 1980

A.Schumpe, G.Quicker, W.D.Deckwer

Gas solubilities in microbial culture media
Reaction Engineering, SpringerVerlag, 1982

A.Schumpe

Zur Ermittlung von Stoffübergangszahlen auf der Basis von Gelöstsauerstoff-
Messungen
Chem. Ing. Tech. 57, Nr 6., 501-505, 1985

J.Seletzky

Scale-up und Simulation von aeroben biotechnologischen Prozessen. Ein Vergleich
zwischen suspendierten und immobilisierten Kulturen.
Dissertation RWTH Aachen, 2007

W.Siemes

Gasblasen in Flüssigkeiten, Teil I: Entstehung von Blasen an nach oben gerichteten
kreisförmigen Düsen
Chemie Ingenieur Technik, Vol.26, No.8/9, 479-496, 1954

D.Skala, V.Veljkovic

Mass transfer characteristics in a gas-liquid reciprocating plate column. I. liquid phase
volumetric mass transfer coefficient
Can. J. of Chem. Eng, Vol.66, 192-199m 1988

A.Susenbeth

Factors affecting lysine utilization in growing pigs: an analysis of literature data
Live. Prod. Sci. 43; 193-204, 1995

T.C.Thulasidas, M.A.Abraham,R.L.Cerro

Bubble Train flow in Cappillaries of circular and square cross section
Chem. Engineeering Science, Vol 50, Nr 2, 183-199, 1995

G.Wang, W.Zhang, C.Jacklin, L.Eppstein, D.Freedman
High cell density perfusion culture of hybridoma cells for production of monoclonal antibodies in the celligen packed bed reactor
S.Kaminogawa et al., Animal Cell Technology, Basic & Applied Aspects 5, 463-469, 1993

H.V.von Watzdorf
Korrosionsbeständigkeit offenporöser Corierit-Wabenkörper in natrium-additivierten dieselmotorischen Abgasen
Dissertation, RWTH Aachen, 1996

D. Weuster-Botz
Die Rolle der Reaktionstechnik in der mikrobiellen Verfahrensentwicklung
Schriften d. Forschungszentrums Jülich, Band 2, Habil. Schr., 81-91, 1999

J.Zahradnik, M.Fialova, V.Linek
The effect of surface-active additives on bubble coalescence in aqueous media
Chem. Eng. Sci. 54, 4757-4766, 1999





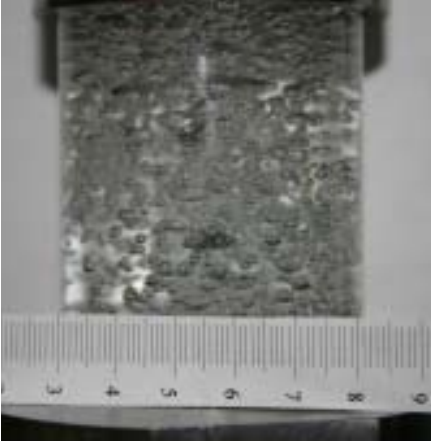
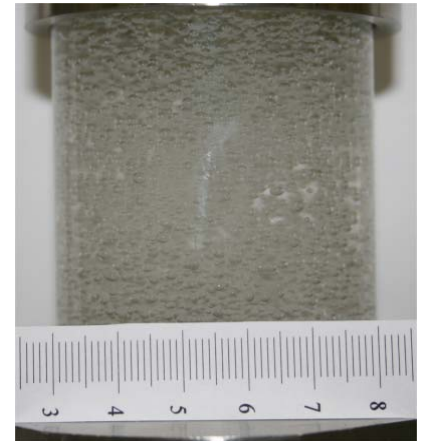
S.A.Zieminski, R.C.Whitemore
Behavior of gas bubbles in aqueous electrolyte solutions
Chem.Eng.Sci., 26, 509-520, 1971

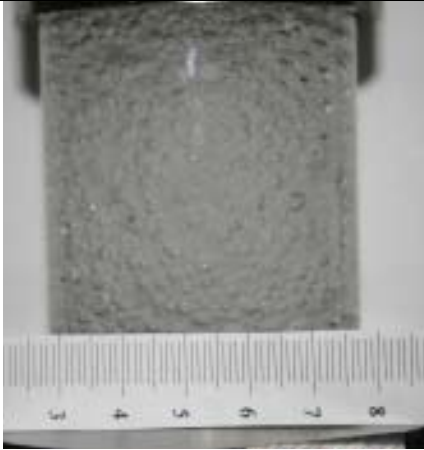





J.Zierep
Grundzüge der Strömungslehre
Verlag Karlsruhe: Braun, 1979

10 ANHANG









10.1 Blasengrößenmessung vor Glaskapillaren





Tab.10.1: Fotografische Auswertung von Blasengrößenmessung vor Glaskapillaren bei der Begasungsplatte 0 und 1

	Begasungsplatte 0	Begasungsplatte 1
Flüssigkeitsvolumenstrom 0 l/min Luftvolumenstrom 2 l/min		
Flüssigkeitsvolumenstrom 0 l/min Luftvolumenstrom 10 l/min		
Flüssigkeitsvolumenstrom 12,6 l/min Luftvolumenstrom 2 l/min		

<p>Flüssigkeits- volumenstrom 12,6 l/min Luftvolumenstrom 10 l/min</p>		
<p>Flüssigkeits- volumenstrom 21,6 l/min Luftvolumenstrom 2 l/min</p>		
<p>Flüssigkeits- volumenstrom 21,6 l/min Luftvolumenstrom 10 l/min</p>		

Tab.10.2: Blasengrößen in den Glaskapillaren

	Begasungsplatte 0	Begasungsplatte 1
Flüssigkeits- volumenstrom 0 l/min Luftvolumenstrom 2 l/min		
Flüssigkeits- volumenstrom 0 l/min Luftvolumenstrom 10 l/min		
Flüssigkeits- volumenstrom 12,6 l/min Luftvolumenstrom 2 l/min		
Flüssigkeits- volumenstrom 12,6 l/min Luftvolumenstrom 10 l/min		

Flüssigkeits- volumenstrom 21,6 l/min Luftvolumenstrom 2 l/min		
Flüssigkeits- volumenstrom 21,6 l/min Luftvolumenstrom 10 l/min		

Tab.10.3: Blasengrößenmessung vor Glaskapillaren bei der Begasungsplatte 1

Luftvolumenstrom [l/min]	Flüssigkeitsvolumenstrom [l/min]					
	0	3,0	7,8	12,6	17,2	21,6
2	1-2	1-2	1-2	1-2	1-2	milchig
4	2-3	2-3	1-2	1-2	1-2	milchig
6	2-4	2-4	1-3	1-3	1-2	milchig 1-2
8	2-5	2-4	2-3	1-3	1-3	milchig 1-2
10	3-6	2-5	2-4	1-3	1-3	milchig 1-3

10.2 Volumetrischer Stoffübergangskoeffizient

10.2.1 Einfluss der Blasengröße

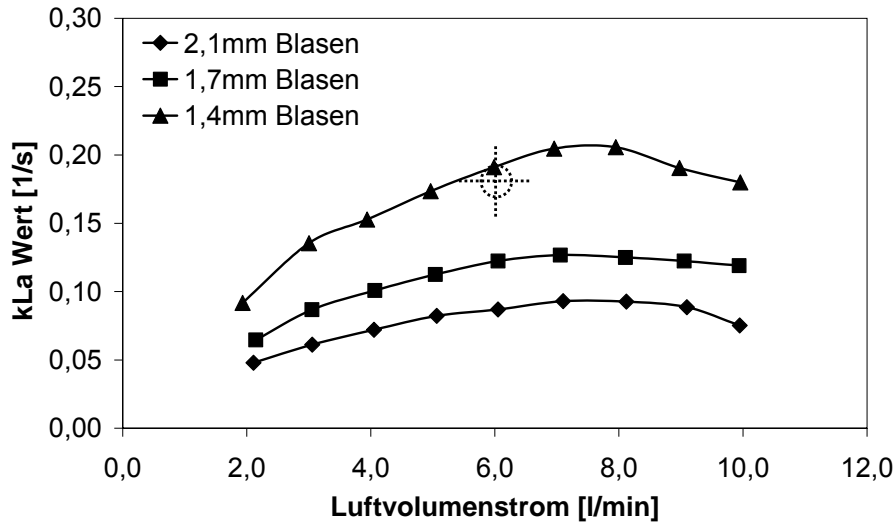


Abb.10.1: Einfluß der Blasengröße auf den k_{La} Wert, 2 Cordierit Monolithen, 10,8l/min Volumenstrom

10.2.2 Einfluss der keramischen Monolithe

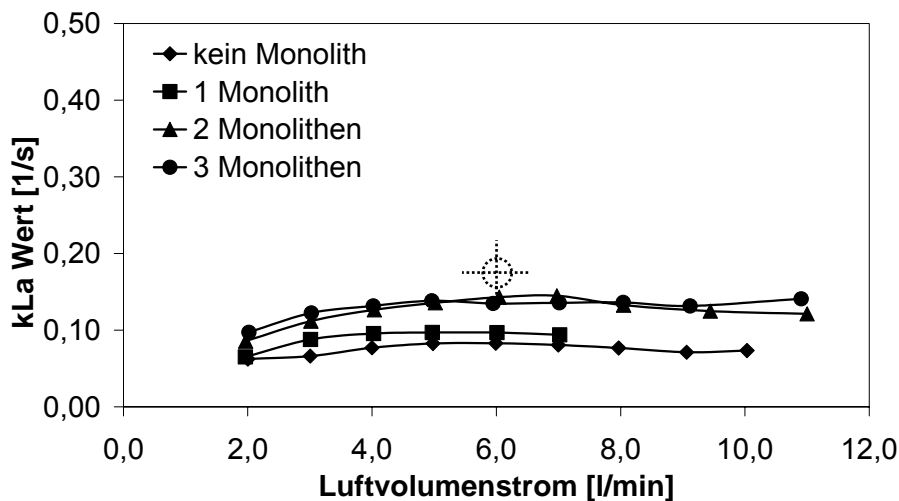


Abb.10.2: Einfluss der Monolithenanzahl auf den k_{La} Wert bei unterschiedlichen Luftvolumenströmen, SiC Monolithen, 3l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, 1,4mm Blasen

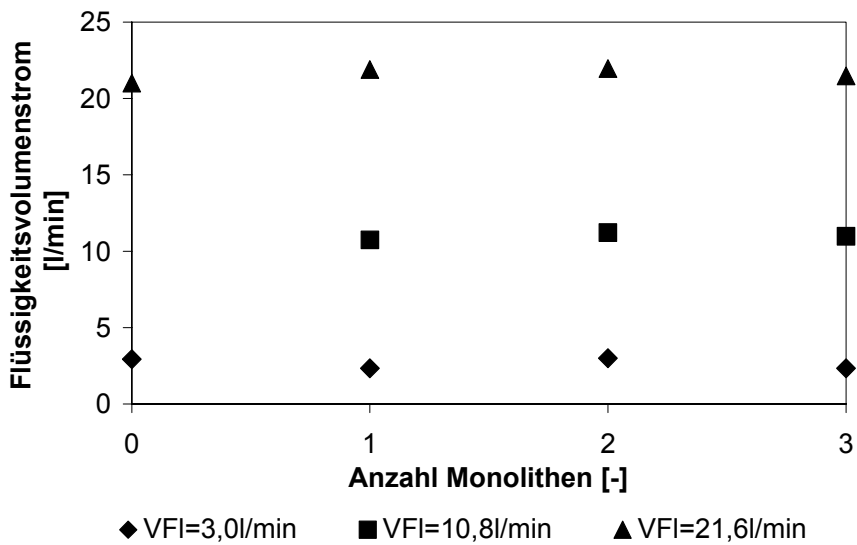


Abb.10.3: Einfluss der Anzahl der Monolithen auf den Flüssigkeitsvolumenstrom, SiC Monolithen, 1,4mm Blasen

10.2.3 Einfluss des Gasgehalts im Reaktor

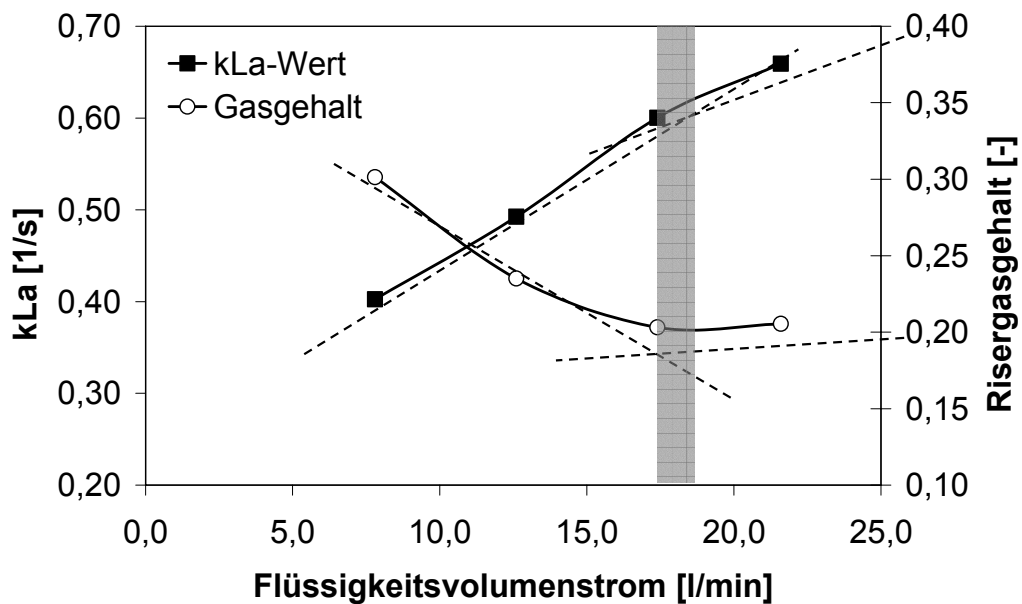


Abb.10.4: Korrelation zwischen Gasgehalt und k_{La} Wert, 2 SiC Monolithen, 6l/min Luftvolumenstrom, 1,1mm Blasen

10.3 Spezifischer Leistungseintrag

10.3.1 Einfluss des Volumenstroms der Flüssigkeit

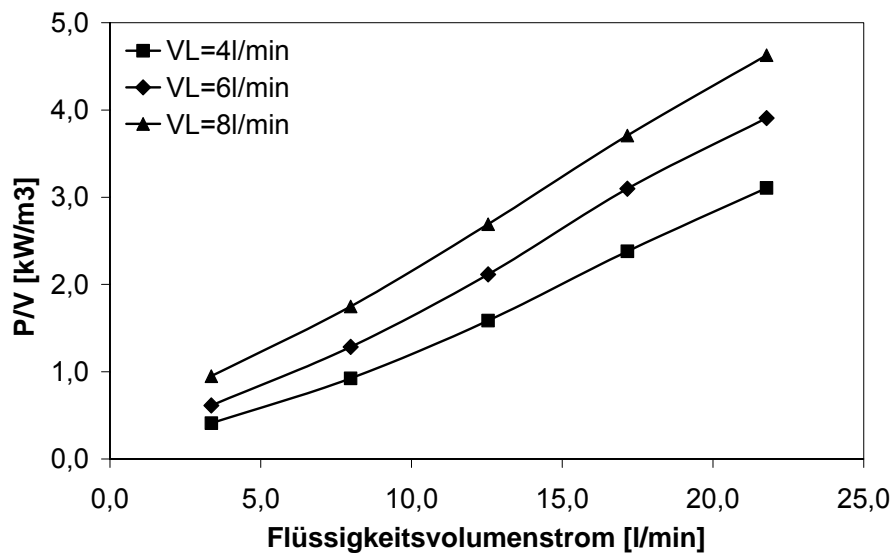
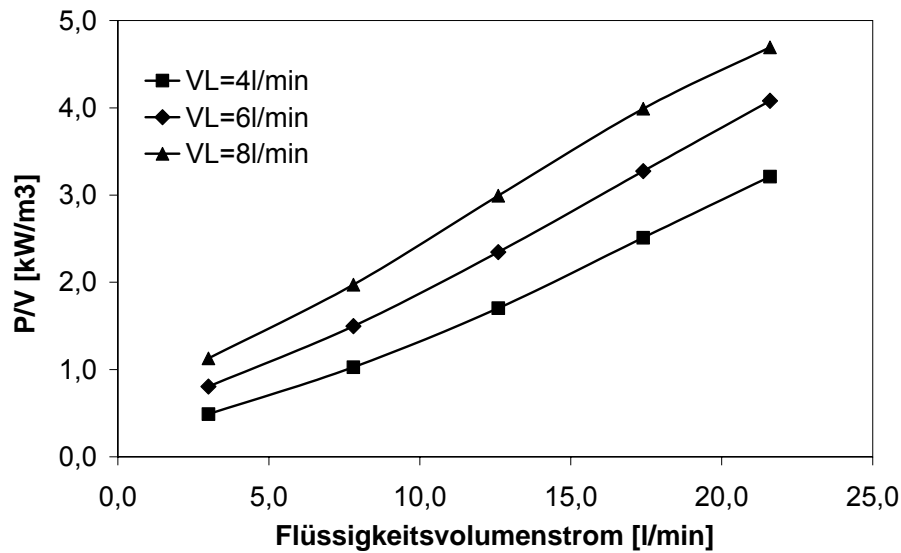


Abb.10.5: Spezifischer Leistungseintrag bei steigendem Flüssigkeitsvolumenstrom und unterschiedlicher Blasengröße, 2 SiC Monolithen

oben: 1,1mm Blasen

unten: 1,4mm Blasen

10.3.2 Einfluss der keramischen Monolithe

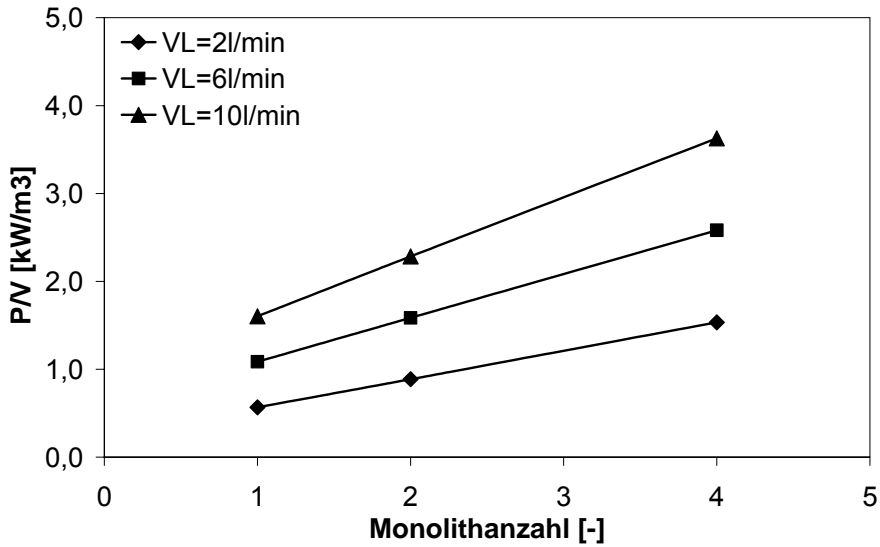


Abb.10.6: Einfluss der Monolithenanzahl auf den Gesamtleistungseintrag in Abhängigkeit von dem Luftvolumenstrom, 10,8l/min Volumenstrom, 1,4mm Blasen

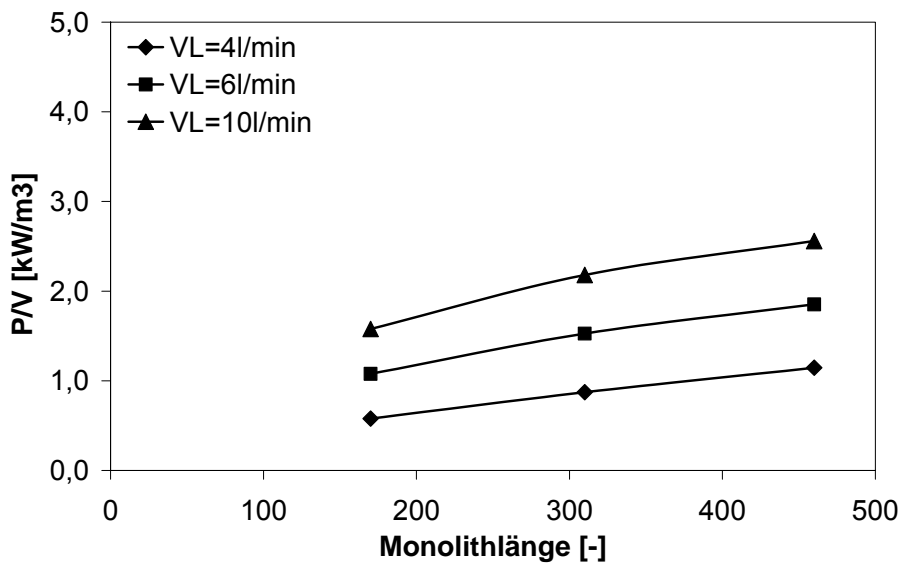


Abb.10.7: Einfluss der Monolithenlänge auf den spez. Gesamtleistung in Abhängigkeit von der Begasungsrate, 10,8l/min Flüssigkeitsvolumenstrom, 1,4mm Blasen

10.3.3 Einfluss des spezifischen Leistungseintrags auf den k_La Wert

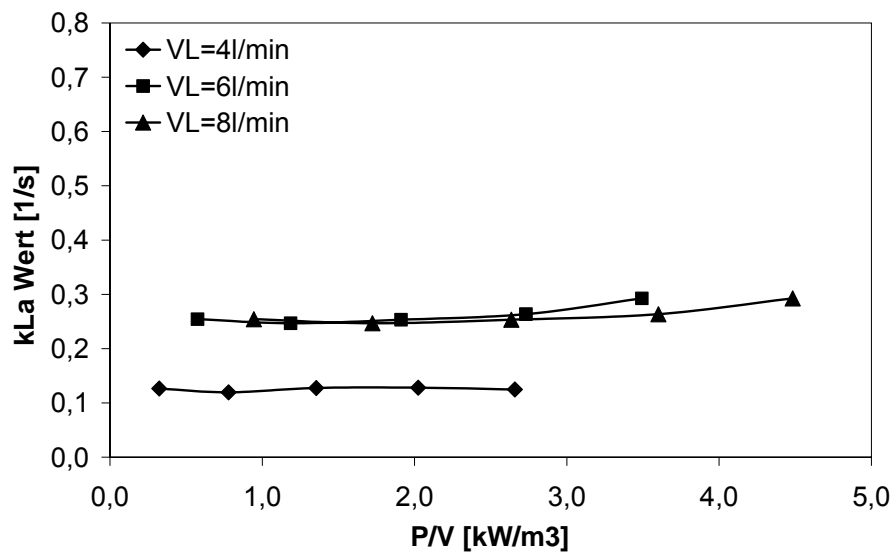


Abb.10.8: Einfluss des spez. Gesamtleistungseintrags auf den k_La Wert, 2 SiC Monolithen, 1,7mm Blasen

LEBENS LAUF

Persönliche Daten

Name: Karen Eva Otten
geboren am: 29.12.1972 in Letmathe (Iserlohn)

Schul Ausbildung

1979-1981 Grunds chule Zur Heide in Hagen-Hohenlimburg
1981-1983 Grunds chule in Bredenbeck bei Hannover
1983-1985 Orientierungsschule in Wennigsen bei Hannover
1985-1986 Gymnasium in Gehrden
1986-1992 Gymnasium Hohenlimburg in Hagen-Hohenlimburg

Studium

Oktober 1992-Mai 2000 Maschinenbau an der RWTH Aachen,
Vertiefungsrichtung Bioverfahrenstechnik
Abschluss: Diplom

Studienbegleitende Tätigkeit

April 1995-April 2000 Stelle als wissenschaftliche Hilfskraft am Institut für
Keramische Komponenten im Maschinenbau an der
RWTH Aachen

Berufstätigkeit

16.06.2000 Wissenschaftliche Angestellte am Institutsverbund
- 18.06.2006 Institut für Keramische Komponenten im Maschinenbau und
Institut für Prozess- und Anwendungstechnik Keramik
an der RWTH Aachen
seit 19.06.2006 Wissenschaftliche Mitarbeiterin beim Projektträger Jülich am
Forschungszentrum Jülich