Experimentelle Untersuchung von Stofftransport und Fluiddynamik bei Rieselfilmströmungen auf mikrostrukturierten Oberflächen

vorgelegt von
Dipl.-Ing. Martin Kohrt
aus Berlin

von der Fakultät III - Prozesswissenschaften
der Technischen Universität Berlin
zur Erlangung des akademischen Grades
Doktor der Ingenieurwissenschaften

- Dr.-Ing. -

eingereichte Dissertation

Prüfungsausschuss

Vorsitzender: Prof. Dr.-Ing. Felix Ziegler
1. Gutachter: Prof. Dr.-Ing. Günter Wozny
2. Gutachter: Prof. Dr.-Ing. Jens-Uwe Repke

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 30.03.2012

Berlin 2012
D83

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Zeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Fachgebiet Dynamik und Betrieb technischer Anlagen des Instituts für Prozess- und Verfahrenstechnik der Technischen Universität Berlin. Für die erfolgreiche Erstellung dieser Arbeit innerhalb von dreieinhalb Jahren sind zahlreiche Personen beteiligt gewesen, denen ich an dieser Stelle meinen Dank aussprechen möchte.

Mein besonderer Dank gilt meinem Doktorvater, Herrn Prof. Dr.-Ing. Günter Wozny, der mich stets tatkräftig unterstützte und für hervorragende Arbeitsbedingungen sorgte. Ich danke ihm zudem für das Vertrauen mir einen großen wissenschaftlichen Gestaltungsfreiraum zu gewähren sowie für die kritischen Diskussionen, was wesentlich zum Erfolg der Arbeit beigetragen hat. Mein weiterer Dank gilt Herrn Prof. Dr.-Ing. Jens-Uwe Repke für die Übernahme des Zweitgutachtens sowie insbesondere für die konstruktiven Diskussionen und die fachliche Unterstützung während der Bearbeitungszeit des Promotionsprojektes. Herrn Prof. Dr.-Ing. Felix Ziegler danke ich für die Übernahme des Prüfungsvorsitzes.
Mein herzlicher Dank gilt der Sulzer Chemtech AG für die finanzielle Unterstützung sowie für die hervorragende Zusammenarbeit innerhalb des Kooperationsprojektes. In diesem Zusammenhang möchte ich Ilja Ausner für die zahlreichen konstruktiven Diskussionen sowie für die fachliche und die persönliche Unterstützung im besonderen Maße danken. Weiterhin richtet sich mein Dank an Marc Wehrli, Markus Duss sowie Lothar Spiegel für die kritischen Diskussionen sowie die zahlreichen Anregungen während der Projektbearbeitung.
Ich danke zudem Frau Prof. Dr. Sabine Enders für die Möglichkeit zur Durchführung diverser Gleichgewichtsmessungen sowie zahlreicher FTIR-Analysen am Fachgebiet Thermodynamik und Thermische Verfahrenstechnik. Herrn Prof. Dr. Michael Gradzielski vom Institut für Chemie danke ich für die freundliche Unterstützung bei der Fluoreszenzspektroskopie.
Weiterhin möchte ich den an dieser Arbeit beteiligten Studenten Christoph Walowski, Hannes Kästner, Philip Lutze, Simon Kamaryt, Maximilian Fechtner, Marius Wansleben, Hilke Lorenz, Alexander Albrecht, Boram Gu, Yasemin Burcu, Bettina Bosse, Elise Touzeau-Airé, André Marek, David Lemarchand, Raphael Griveau, Janake Ratnayake, Daniel Illmer und Marion Powilleit für ihre tatkräftige Unterstützung herzlich danken.
Mein weiterer Dank gilt meinen Kollegen und Freunden am Fachgebiet Dynamik und Betrieb technischer Anlagen, durch die ich eine wunderbare Arbeitsatmosphäre erfahren habe. Hierbei danke ich besonders meinen langjährigen Bürokollegen Steve Paschke für die große Diskussions- und Hilfsbereitschaft. Meinen ganz besonderen Dank möchte ich schließlich den ständigen Mitarbeitern am Fachgebiet, Inge Habsireitinger, Marita Skupin, Dietmar Plotka und Max Zeidler, für ihre tatkräftige Hilfe und ihre engagierte Einsatzfreude aussprechen.

Abstract

In the present work, the impact of surface textures to liquid-side controlled mass transfer in falling liquid films can be quantified experimentally for the first time close to practical conditions. Hereby, the textured surfaces are samples from industrially used structured packing materials for distillation and absorption processes, which consist of two- and three-dimensional micro-structured topographies in the order of 1 mm. The mass transfer measurements are accomplished by falling film absorption of CO_2 into different silicone oils for a wide range of liquid loads and viscosities. It is found that the texture design has a significant influence on the mass transfer efficiency, e.g. volumetric mass transfer coefficient $k_L A$ can be increased up to 90% by a textured surface compared with a flat inclined plate. Additionally, counter current gas flow affects the mass transfer positively as expected, but the texture impact is significantly higher.

To establish understanding of the observed mass transfer phenomena, different optical flow measurements are exercised and developed further. Film thickness measurements with a fluorescence method (LIF) are applied to estimate liquid hold up and film contour (i.e. gas-liquid interfacial area). It results in the fact that the texture impact on mass transfer is not dominated by an increase of interfacial area. Thus liquid-side mass transfer coefficients k_L reach about 75% higher values for low viscosities (1 mm^2/s) and about 30% higher values for high viscosities (10 mm^2/s). Consequently, other flow phenomena have to be responsible for the observed mass transfer enhancement, in particular increased liquid hold up, improved liquid cross mixing and vortex induction. In addition to LIF, velocity measurements (μPIV) and tracer tests are accomplished to permit qualitative explanations of the most significant mass transfer results. Overall, several previously unreleased flow phenomena for three-dimensional textures are determined and visualized; it is found for instance that three-dimensional textures may induce stationary eddies, strong dispersion effects, no-flow regions, special wave formations and resonance phenomena.

Furthermore, wetting tests with aqueous solutions and silicone oil are performed on complex surfaces, i.e. textured plates and single packing sheets. In general, surface textures improve the liquid spreading on the metal sheets for liquids with both, high and low surface tension. Most significant is the pre-wetting of the surface for aqueous systems, which is leading to an increase of the steady-state wetted surface by a factor of 2 for an aqueous solution, if a three-dimensional texture is used.

To sum up, the texture design is a crucial factor for the efficiency of packing materials for distillation and absorption processes and this work delivers important basics for further improvement of their separation efficiency in many chemical engineering applications.

Kurzfassung

In dieser Arbeit ist es erstmalig gelungen den Einfluss mikrostrukturierter Oberflächen auf den flüssigkeitsseitig kontrollierten Stofftransport in Rieselfilmströmungen für den praxisnahen Betriebsbereich technischer Kolonnen für die Rektifikation und die Absorption experimentell zu quantifizieren. Für die CO_2-Absorption in verschieden viskosen Silikonölen werden die entscheidenden Prozessparameter, wie die Gas- und Flüssigbelastung sowie die Flüssigkeitsviskosität und die Topographie der Mikrostrukturen, systematisch variiert und decken ein weites Anwendungsfeld ab. Die untersuchten Mikrostrukturen besitzen zwei- oder dreidimensionale Formen in der Grössenordnung von 1 mm und sind Ausgangsmaterial für industriell eingesetzte strukturierte Packungen. Es kann gezeigt werden, dass das Mikrostrukturdesign einen signifikanten Einfluss auf den flüssigkeitsseitigen Stofftransport besitzt, so dass zum Beispiel der volumetrische Stoffübergangskoeffizient $k_L A$ gegenüber einer glatten, geneigten Platte bei jeweils vollständiger Benetzung um bis zu 90% gesteigert werden kann. Der Einfluss des Gasgegenstroms ist wie erwartet positiv für den Stofftransport; unterhalb des Staupunkts überwiegt jedoch der Einfluss der Mikrostrukturen.
Zum besseren Verständnis der beobachteten Stofftransportphänomene werden unterschiedliche optische Strömungsmessungen angewendet und weiterentwickelt. Anhand von Filmdickenmessungen mit der Fluoreszenzmethode LIF wird gezeigt, dass die Stofftransporterhöhungen nicht von der Phasengrenzflächenerhöhung dominiert werden. Daraus ergeben sich Steigerungen des flüssigkeitsseitig kontrollierten Stoffübergangskoeffizienten k_L für niedrige Viskositäten (1 mm^2/s) um 75% sowie für hohe Viskositäten (10 mm^2/s) um 30%. Weiterhin werden Geschwindigkeitsmessungen (μPIV) und Farbfadentests durchgeführt, was es ermöglicht die Ursachen der Stofftransportsteigerungen (Zunahme des Flüssigkeitsinhalts, bessere Durchmischung sowie Wirbelbildung im Film) qualitativ richtig zu bestimmen sowie für dreidimensionale Mikrostrukturen im praxisnahen Bereich bisher unveröffentlichte Strömungsphänomene (Strömungstotzonen, Wirbelbildung, spezielle Wellenformationen und Resonanz) zu visualisieren.
Zusätzliche Benetzungstests mit wässrigen Lösungen und Silikonölen an geneigten Platten sowie an makrostrukturierten Packungsblechen zeigen im Allgemeinen eine verbesserte Flüssigkeitsverteilung, wenn mikrostrukturierte Oberflächen verwendet werden. Hervorzuheben ist das Ergebnis mit Vorbenetzung der Mikrostrukturen, wodurch bei wässrigen Systemen die benetzte Oberfläche (bei gleicher Mikrostruktur) um den Faktor 2 gesteigert werden kann.

Zusammenfassend lässt sich festhalten, dass das Mikrostrukturdesign ein entscheidender Parameter für die Effizienz von Packungsmaterialien bei Rektifikations- und Absorptionsprozessen ist. Diese Arbeit liefert wesentliche Grundlagen für die Weiterentwicklung der Leistungsfähigkeit strukturierter Packungen in der chemischen Industrie.

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis vi

Tabellenverzeichnis xii

1. Einleitung 1

2. Grundlagen und Stand des Wissens 4

2.1. Filmströmung auf glatten Oberflächen . . . 4

2.1.1. Fluiddynamische Aspekte . . . 4

2.1.2. Stofftransport/ Gasabsorption . . . 9

2.2. Filmströmung auf Mikrostrukturen . . . 18

2.2.1. Einleitung . . . 18

2.2.2. Stofftransport und Fluiddynamik . . . 21

2.3. Fazit und Ziele der Arbeit . . . 29

3. Stoff- und Materialeigenschaften 33

3.1. Reinstoffdaten verwendeter Fluide . . . 33

3.1.1. Flüssigkeiten . . . 33

3.1.2. Gase . . . 35

3.2. Fluidsystemeigenschaften . . . 35

3.2.1. Gaslöslichkeit und Absorptionswärme . . . 35

3.2.2. Diffusionskoeffizienten . . . 39

3.2.3. Optische Eigenschaften . . . 41

3.2.4. Benetzungseigenschaften . . . 45

3.3. Packungsmaterialien . . . 47

4. Messmethoden 50

4.1. Stofftransportmessungen . . . 50

4.1.1. Messprinzip der Fallfilmabsorption . . . 50

4.1.2. Realisierung des Messsystems . . . 52

4.2. Strömungsmessungen . . . 59

4.2.1. Filmdickenmessung (LIF-Methode) . . . 60

4.2.2. Farbfaden- und Benetzungstests . . . 64

4.2.3. Geschwindigkeitsmessungen (PIV-Methode) . . . 66

5. Ergebnisse und Diskussion **69**
5.1. Stofftransportmessungen . . . 69
5.1.1. Glatte Oberfläche . . . 69
5.1.2. Mikrostrukturierte Oberflächen . . . 77
5.2. Strömungsmessungen . . . 88
5.2.1. Fluidverteilung (LIF-Ergebnisse) . . . 88
5.2.2. Tracer-Experimente (Farbfadentests) . . . 101
5.2.3. Fluidgeschwindigkeiten (PIV-Ergebnisse) . . . 105
5.3. Fazit der Hauptuntersuchungen . . . 115
5.4. Benetzungstests . . . 117

6. Zusammenfassung und Ausblick **126**

A. Ergänzungen zu den Stoff- und Materialeigenschaften **129**
A.1. Flüssigkeitsdichte . . . 129
A.2. GLE Literaturdaten . . . 130
A.3. Diffusionskoeffizienten . . . 131
A.4. Kontaktwinkel bei unterschiedlichen Systemen . . . 133

B. Ergänzungen zu der FTIR-Analyse **134**

C. Ergänzungen zu den Stofftransportergebnissen **136**
C.1. Druckabfall aufgrund der Gasabsorption . . . 136
C.2. Penetrationstheorie versus Messergebnisse . . . 137
C.3. Volumetrische Stoffübergangskoeffizienten . . . 137
C.4. Standardeinstellungen DC1, DC5 und DC10 . . . 139

D. Ergänzungen zu den Strömungsmessungen **140**
D.1. Filmdickenmessungen . . . 140
D.2. Mögliche Resonanzerscheinung . . . 142
D.3. Beispiele zur Wellendynamik . . . 144
D.4. Geschwindigkeitsmessungen . . . 146
D.5. Benetzungstests . . . 149

E. Eigene Veröffentlichungen und betreute Arbeiten **150**
E.1. Publikationen in Fachzeitschriften . . . 150
E.2. Vorträge bei Fachtagungen . . . 150
E.3. Betreute Arbeiten . . . 151

Literaturverzeichnis **152**

Abbildungsverzeichnis

2.1. Schematische Darstellungen der Rieselfilmströmung auf geneigter Wand inklusive Kennzeichnung einiger Grundgrößen. 5
2.2. Mittels LIF visualisierte Wellenevolution bei Silikonöl DC5 (Stoffeigenschaften siehe 3.1.1) mit Re =9; 13; 17; 20; 24 von links nach rechts ($t_B = 5\ ms$). Die Größe der überströmten Platte mit $\alpha = 30°$ beträgt $L = 30\ cm$ und $B = 10\ cm$. Nach glattem Einlauf folgen 2d- und 3d-Wellen. 8
2.3. Skizze der Beladungsverläufe in Abhängigkeit der Lauflänge sowie der Filmdicke in einer Rieselfilmströmung bei der physikalischen CO_2-Absorption sowie Darstellung eines Fluidelements für die lokale Bilanzierung des Stoffübergangs. 10
2.4. Qualitative Abhängigkeit des Stoffübergangskoeffizienten bei glattem und welligem Film nach Brauer [1971]. 14
2.5. Von links nach rechts: Natürlicher Rieselfilm mit $Re = 32$ (x = 0-36 cm) sowie Ausschnitte pulsierter Filmströmung mit Re = 20,9 und $\omega = 19\ Hz$; Re = 40,8 und ω = 19,1 Hz; Re = 59,3 und $\omega = 17\ Hz$ aus Park und Nosoko [2003] (jeweils Wasserströmung mit $\alpha = 0°$). 15
2.6. Strömungskarte für die Stofftransport- und Wellencharakteristika der Wasserströmung auf glatter, senkrechter Wand bei 15°C nach Demekhin et al. [2007] sowie Darstellung einer 3d-Wellenfront ($Re = 59$, $Ka^* = 3940$) von Dietze [2010]. 17
2.7. Schemata zweidimensionaler Strukturen (Sinus-/ Wellentyp und Rippen) inklusive charakteristischer Abmaße. Es wird zwischen den Anströmrichtungen parallel zu den Kanälen (longitudinal) sowie senkrecht dazu (transversal) unterschieden. . 19
2.8. Stofftransportsteigerung bezüglich glatter Platte für unterschiedliche Rippenabstände sowie Re-Zahlen und zugehörige Strömungskizzen nach Davies und Warner [1969]. 24
2.9. Simulation der Um- und Überströmung dreier Einzelobjekte von Baxter et al. [2010]. 29

3.1. Dampfdruckkurve für DC1 (Octamethyltrisiloxan) aus Flaningam [1986] sowie eigene Messwerte; Wasserdaten zum Vergleich aus Müller und Müller [2009]. . . . 34
3.2. Schema zur Funktionsweise der GLE-Apparatur bei isochorer Messreihe. Für die isobare Messung wird ein Quecksilber-Präzisionsbürettensystem angeschlossen über das ein definiertes Gasvolumen zur Druckkompensation zugeführt werden kann. 36

3.3. Massenbezogene Henry Koeffizienten für CO_2 bei unterschiedlichen Lösungsmitteln im Vergleich. Neben Werten des etablierten physikalischen Absorbens Selexol sind Beispiele ionischer Flüssigkeiten (IL) aufgeführt. 37
3.4. Druckabhängigkeit der binären Gasgleichgewichtsbeladungen für die untersuchten Silikonöle bei 28,5 $°C$. 38
3.5. Viskositätsabhängigkeit der CO_2 Diffusion in nicht wässrigen Lösungen (25 $°C$) sowie in Wasser (6,5-50 $°C$) aus Winkelmann [2007]. Die Abschätzung für die untersuchten Silikonöle liegt auf der Trendkurve für nicht wässrige Lösungen, siehe Gleichung (3.8). 40
3.6. Qualitative Darstellung der IR-Spektren von gasförmigem CO_2 sowie Hexamethyldisiloxan ($C_6H_{18}OSi_2$) nach Ansyco [2011]. Eigene Analysen mit CO_2 in flüssigen Silikonölen ergeben einen Absorptionspeak bei 2337,72 cm^{-1}, siehe Abb.B.3. 43
3.7. Fluoreszenz-/ Emissionsspektren für C152A in DC1 und DC10 bei der Anregungsfrequenz $\lambda_a = 316\ nm$ sowie rechts für DC10 und C152A bei den Anregungsfrequenzen $300\ nm < \lambda_a < 500\ nm$ unter Kennzeichnung der jeweiligen Intensitätsmaxima. 45
3.8. Schematische Darstellung zur Definition des statischen Kontaktwinkels. 46
3.9. Links: Schematische Darstellung der eingesetzten 3d-Typen (A, B und C) nach Plüss [1991] sowie Kennzeichnung charakteristischer Positionen und Ort eines periodischen Elementes für μPIV-Messungen. Rechts: Untersuchte Anströmkonfigurationen sowie Kennzeichnung von *Peak-* und *Passlinie*. 48
3.10. Ausschnitt einer mikroskopischen Aufnahme von 3d-T ($A_S \approx 275\ \mu m$, $P_S \approx 2{,}1\ mm$). 49

4.1. Prinzipschema zur Fallfilmabsorption mit redundanter Stofftransportmessung. . . 51
4.2. Verfahrensfließbild des realisierten semi-kontinuierlichen Versuchskonzepts zur Fallfilmabsorption mit absatzweiser Vakuumdesorption sowie Foto der Anlage im Laborabzug. 53
4.3. Aufzeichnungsdaten des Differenzdrucksignals vom Prandtl-Rohr FIR03 sowie des Absolutdrucks am Kopf der Messzelle PIC01 während der Versuchsvorbereitungen. 54
4.4. Absorptionsmesszelle in maßstabsgetreuer Schnittdarstellung sowie Fallfilmabsorber im Betrieb mit DC1. Während bei glatter Platte sowie der 2d-Struktur Wellen erkennbar werden, sind für die Strömungsvisualisierung beim 3d-Typ spezielle Messverfahren notwendig, siehe 4.2. 55
4.5. B02 vor und während dem Entgasen. Obwohl Silikonöl häufig als Entschäumer Anwendung findet, neigt es beim Entgasen selbst zur Schaumbildung, allerdings löst sich der Schaum innerhalb weniger Sekunden wieder auf. 57
4.6. Anordnung der LIF-Messtechnik mit LIF-Messzelle (links). Zweikeilige Durchflussküvette bei ungefilterter Digitalkamera-Aufnahme (mittig) sowie bei gefilterter *pco.2000*-Aufnahme mit DC10-Strömung auf glatter Platte (rechts). 61

4.7. Pixelintensitäten $I(x_{pix})$ im Keilbereich ergeben lineare Trends; der Schnittpunkt beider Trends legt den Nullpunkt $\delta_F(I_{HR},\ x_{pix,0}) = 0\ mm$ der Keile fest (a). Abbildung einer Kalibrierfunktion $I = f(\delta_F)$ für den Keilbereich mit 1,5° (b). Alle Angaben für DC10 mit $t_B = 10\ ms$. 62
4.8. Aufbau mit Spritzenpumpe und LED-Anordnung, Schnappschuss einer Tracer-Messung mit DC1 und Beispiel eines Tracer-Experiments mit DC1 auf 3d-Typ. . 64
4.9. Aufbau für Benetzungstests an geneigten Platten (links) sowie für Tests an makrostruktierten Blechen am Beispiel eines perforierten Bleches mit DC5-Aufgabe (rechts). 65
4.10. Fließbild und Foto des PIV-Messstands. 67

5.1. Vergleich der redundanten Stofftransportmessmethoden für DC10 (Mittelwerte je Batch für die drei Standardbelastungen sowie Mittelwert für die Standardbelastung). 70
5.2. Vergleich der redundanten Stofftransportmessungen für DC5 (Mittelwerte verschiedener Batches). 71
5.3. Beladungsprofile entsprechend Gleichung (2.14) nach $x = 0{,}3\ m$ sowie mittlere Austrittsbeladungen in der Theorie nach Gleichung (2.16) sowie nach den redundanten Messmethoden. 72
5.4. Berechnete Beladungsprofile für $x = 0{,}3\ m$ nach Lösen der Konvektions-Diffusions-Gleichung (2.14) und der Näherungslösung für geringe Eindringtiefen in Gleichung (2.17) für die drei Silikonöle bei jeweils minimaler Standardbelastung. 73
5.5. Dimensionslose Darstellung der Stofftransportergebnisse nach konventionellem Plot (2.19) für die untersuchten Silikonöle (jeweils drei Standardbelastungen, F in $Pa^{0,5}$) und für Wasser bei $F = 0$ nach Tab.2.2 zum Vergleich. 74
5.6. Plot der erweiterten Sh-Korrelation (5.1) für 200 Messpunkte der untersuchten Silikonöle und für Wasser nach Tab.2.2 und mit $Fi = 5{,}8 \cdot 10^{10}$ jeweils im stabil welligen Bereich. 75
5.7. Steigungsänderung beim Übergang der Strömungsbereiche für Silikonöl analog zur Literatur, vergleiche Abb.2.4. 76
5.8. Volumetrische Stoffübergangskoeffizienten für DC1 bei unterschiedlichen Oberflächen sowie Flüssig- und Gasbelastungen. 78
5.9. Prozentuale Steigerung der (k_LA)-Werte für DC1 nach (5.3). 79
5.10. Prozentuale Änderung der (k_LA)-Werte für DC10 nach (5.3). 81
5.11. Dimensionslose Darstellung der DC1- und DC10-Messergebnisse für eine glatte und vier unterschiedlich mikrostrukturierte Oberflächen. 82
5.12. (k_LA)-Werte für DC5-Messungen bei verschiedenen F-Faktoren. 84
5.13. Prozentuale Änderung der (k_LA)-Werte für DC5 nach (5.3). 85
5.14. (k_LA)-Zusatzergebnisse für DC5 für die glatte Oberfläche sowie der 3d-B*-Struktur. 86
5.15. LIF-Messungen für DC10 auf glatter Oberfläche bei unterschiedlichen Belastungen mit einer Belichtungszeit von $t_B = 50\ ms$ sowie der Naheinstellung Position I. 88

5.16. Filmdickenergebnisse für DC10 auf glatter Oberfläche bei unterschiedlichen Belastungen mit $t_B = 10\ ms$ (Position II). 90
5.17. LIF-Ergebnis für DC5 auf glatter Oberfläche mit $B_f = 91\ m^3/m^2h$ mit $t_B = 10\ ms$ (Position II). 91
5.18. Filmdickenergebnisse für DC1 auf glatter Oberfläche bei unterschiedlichen Belastungen mit $t_B = 10\ ms$ (Position II). 91
5.19. Momentaufnahmen für DC1 und DC10 auf glatter Oberfläche bei unterschiedlichen Belastungen mit $t_B = 10\ ms$ (Position II); DC5-Wellenbilder siehe Abb.2.2. 92
5.20. Übersicht der mittleren Filmdickenergebnisse bezüglich der Wegstrecke x mit der Belichtungszeit $t_B = 10\ ms$ bei der Position II. 93
5.21. Abschätzung der Phasengrenzflächenänderung am Beispiel von DC10 (Ausschnitt von Abb.5.16 bei mittlerer Belastung). 94
5.22. Beispiel einer DC10-Filmdickenmessung für 3d-A, 3d-B* sowie 3d-C im Eintrittsbereich bei 53 m^3/m^2h für jeweils zwei Perioden bei gleicher Filmdickenskala. Die hohe Regelmäßigkeit dieses Verlaufs wird für fünf P_S-Strecken in Abbildung D.3 veranschaulicht. 95
5.23. Dickenprofile (oben) sowie Filmkonturen (unten) für DC10-Strömungen auf 3d-B*-*Peaklinie* in einem wellenfreien Bereich bei unterschiedlichen B_f-Werten. . . . 96
5.24. Filmkonturen für DC1- und DC10-Strömungen auf einer 3d-C-*Peaklinie* im wellenfreien Bereich unter Berücksichtigung des Einbauwinkels ($\alpha = 30°$). 97
5.25. Tracer-Ergebnisse für DC1 auf glatter Platte mit $B_f = 40;\ 66;\ 92\ m^3/m^2h$ von oben nach unten aufsteigend (Strömung von links nach rechts; Aufnahmen um 90° gedreht). 101
5.26. Tracer-Ergebnisse für DC1 jeweils mit hoch konzentrierter Tracerzugabe im Tal der 3d-Strukturen 3d-B* und 3d-C. 102
5.27. Ergebnisse eines Tracerimpulses für die glatte Platte sowie 3d-C mit DC10 und jeweils $B_f = 22\ m^3/m^2h$. Bei 3d-C erfolgt die Tracerzugabe im Tal und der zeitliche Farbfadenverlauf ist für $x = 0{,}5...\ cm$ und $x = 25...\ cm$ gegeben. 103
5.28. Minimale Verweilzeiten nach Tracerzugabe in DC10-Strömungen für $x = 30\ cm$. . 104
5.29. Maximalgeschwindigkeiten aus μPIV-Messungen bei DC1-Strömungen im Vergleich zur Nusselt-Lösung einer glatten Platte. 106
5.30. Bildausschnitte von PIV-Ergebnissen der oberflächennahen Geschwindigkeitsverteilung $\mathbf{w}_{x,z}(y_{PIV})$ in cm/s für DC1-Strömungen auf 3d-C mit den Objektiven Pentax für a-b) und MX1 für c). 107
5.31. μPIV-Ergebnisse für DC1 und 3d-C im Talbereich bei unterschiedlichen Filmdicken δ_F oberhalb des Strukturminimums ($B_f = 30\ m^3/m^2h$, Skala in cm/s). . . 109
5.32. μPIV-Ergebnisse für DC1 und 3d-C im Talbereich bei unterschiedlichen Filmdicken δ_F oberhalb des Strukturminimums ($B_f = 87\ m^3/m^2h$, Skala in cm/s). . . 110
5.33. PIV-Ergebnisse für die DC5-Strömung bei $B_f = 30\ m^3/m^2h$ auf 3d-B*. 111
5.34. μPIV-Ergebnisse für die DC5-Strömung bei $B_f = 60\ m^3/m^2h$ auf 3d-B*. 112

5.35. μPIV-Ergebnisse der DC5-Strömung mit $B_f = 50\ m^3/m^2h$ auf 3d-B* aus unterschiedlichen Ansichten (Kamerapositionen) in ein Tal. In dem oberen Bild ist der gesamte Aufnahmebereich von Ansicht I sowie ein kleiner Teil von Ansicht II dargestellt und in dem unteren Bild umgekehrt. 113
5.36. μPIV-Ergebnisse für DC5-3d-B* entlang einer *Peaklinie* im Talbereich auf der strömungsabgewandten Seite eines Berges bei verschiedenen Flüssigbelastungen um den Bereich des Stofftransportminimums (jeweils gleiche x- und y-Längenskalen). 114
5.37. Mögliche Methodik zur Vorhersage komplexer Vorgänge in Packungskolonnen anhand einfacher Tests an geneigten Platten mittels geeigneter Übertragungsmodelle nach Repke et al. [2011]. 117
5.38. Benetzungstests für DC1 bei Flüssigkeitszugabe über eine Kanüle mit $\dot{V}_f = 0{,}6\ l/h$. 118
5.39. Benetzungstests für Wasser, 45%-ige Wasser Glyzerin Lösung und DC5 zur Veranschaulichung grundlegender Effekte auf polierter Edelstahlplatte mit $\alpha = 45°$ (Pfeile kennzeichnen die Buckelbildung). 119
5.40. Rinnsalbreiten für diskrete x-Werte bei punktueller Rohraufgabe von Wasser, 45%-ige Wasser-Glyzerin-Lösung und DC5 auf eine polierte Edelstahlplatte ($\alpha = 45°$, $d_R = 4\ mm$, zugehörige Re-Zahlen siehe Tabelle D.1). 119
5.41. Ergebnisse eines Benetzungstests an einer 3d-Struktur mit 50 Gew.-% Glyzerin und $Re_R = 538$ (Auswertung der nebenstehenden Fotographien ohne und mit Vorbenetzung). 120
5.42. Einfluss der Stoffeigenschaften auf die Benetzung von B1-300® bei $Re_R = 742$. . 121
5.43. Vorbenetzungseffekt bei 45-Gew.% Glyzerin und B1-300®. 122
5.44. Einfluss der Mikrostrukturen sowie der Vorbenetzung auf die Flüssigkeitsausbreitung von 45%-iger Wasser-Glyzerin-Lösung. 123

A.1. Literatur und Messdaten für die Temperaturabhängigkeit der Silikonöl-Dichten. . 129
A.2. GLE-Daten für das Methylsiloxan AK 100 von Wacker bei Umgebungsdruck aus [Wacker-Chemie, 2001] 130
A.3. Kontaktwinkel θ (Messpunkte entsprechen Fortschreitwinkel) verschiedener Oberflächen und Flüssigkeiten als Funktion der Oberflächenspannung σ_{fg} nach Nicolaiewsky und Fair [1999]. 133

B.1. Teststand zur FTIR-Kalibrierprobenherstellung von Silikonölen und Trockeneis. . 134
B.2. Zerlegbare Küvette (*Omni-Cell* von Specac) für FTIR-Analysen [LOT-Oriel]. . . 135
B.3. Relevante Peaks zur Bestimmung der CO_2 Beladung in DC5 von Proben am Ein- und Austritt der Fallfilmsaborption. 135

D.1. Filmdickenvergleich für DC5 bei den Standardbelastungen auf glatter Platte. . . 140
D.2. Filmdickenvergleich für DC1 bei minimaler und maximaler Standardeinstellung auf glatter Platte bestätigt hohe Unregelmäßigkeit der Wellenaktivität von Abb.5.19. 140

D.3. Filmdickenvergleich analog zu Abb.5.22 für je fünf Perioden bei gleicher Dickenskalierung (DC10, 53 m^3/m^2h). 141
D.4. Filmkonturen der DC1- und DC10-Strömung auf 3d-C-*Peaklinie* als Ausschnitt von Abb.5.24 bei gleichskalierter x- und y-Achse. 141
D.5. Fotografien im Einlaufbereich der DC1-Strömung auf der 3d-B*-Struktur bei $B_f = 43;\ 53;\ 73;\ 94;\ 107\ m^3/m^2h$ zeigen eine Zunahme der Filmwölbung mit steigender Flüssigbelastung (Strömung von oben nach unten). 142
D.6. Ausschnitte von LIF-Aufnahmen der DC1-Strömung auf 3d-B* mit $t_B = 5\ ms$ und $B_f = 30;\ 43;\ 56;\ 76;\ 88;\ 100\ m^3/m^2h$ visualisieren den Strömungswechsel im Einlaufbereich sowie die nachfolgenden Wellenregime (Strömung von oben nach unten). 143
D.7. Jeweils gleich großer Ausschnitt zur Visualisierung der unterschiedlichen Wellenformationen bei DC1 auf 3d-B* für $B_f = 56\ m^3/m^2h$ sowie $B_f = 88\ m^3/m^2h$ mit $t_B = 3\ ms$. 144
D.8. Jeweils gleich großer Ausschnitt zur Visualisierung der unterschiedlichen Wellenformationen bei DC5 auf 3d-B* für $B_f = 65;\ 77;\ 91;\ 111\ m^3/m^2h$ mit $t_B = 10\ ms$. 145
D.9. Visualisierung unterschiedlicher Wellenformationen bei DC5 auf 3d-A mit $B_f = 49;\ 91\ m^3/m^2h$, auf 3d-T mit $B_f = 91\ m^3/m^2h$ sowie auf glatter Oberfläche mit $B_f = 91\ m^3/m^2h$ bei jeweils $t_B = 10\ ms$. 146
D.10. PIV-Messung am Beispiel DC10-3d-C unter Andeutung der Berg- und Talpositionen. 147
D.11. μPIV-Messung am Beipiel DC10-3d-C in etwa 100 μm unterhalb der Strukturspitze ($\Delta y = -100\ \mu m$), vergleiche Abbildung D.12. 147
D.12. $\bar{w}_x$-Profile aus Mittelung der Ebenenvektorfelder (Messort mit Berg in Bildmitte) für verschiedene Höhendifferenzen bzgl. der Strukturspitze Δy ($Berg$) bei den Standardbelastungen und dem System DC10-3d-C. 148
D.13. $\bar{w}_x$-Profile aus Mittelung der Ebenenvektorfelder für verschiedene Positionen oberhalb der Mikrostruktur mit jeweils $\delta_F = 0$ auf fester Tal-, Pass- oder Berg-Oberfläche sowie Vergleich mit theoretischer Lösung auf glatter Oberfläche, Gl. (2.2), bei dem System DC1-3d-C und $B_f = 30\ m^3/m^2h$. 148

Tabellenverzeichnis

2.1. Charakterisierung der Strömungsregime für den Fallfilm. 7
2.2. Parameter der Sh-Korrelation (2.19) für unterschiedliche Re Zahlen bei welliger Wasserfilmströmung nach Kraume [2004]. 14
2.3. Ausgewählte Publikationen zur Filmströmung auf 2d- und 3d-Mikrostrukturen sowie Spezifikationen (jeweils chronologisch nach Arbeitsgruppen geordnet). . . . 22
2.4. Details ausgewählter Arbeiten bezüglich Filmströmungen auf strukturierten Oberflächen. 23

3.1. Stoffdaten der verwendeten Silikonöle (*eigene Messungen bei 28,5 $°C$ und 1 atm; **Gunst [1950]). 34
3.2. Verwendete Stoffdaten relavanter Gase [VDI-Wärmeatlas, 2006]. 35
3.3. Massenbezogene (binäre) Henry Koeffizienten für CO_2, O_2 und N_2 in verschiedenen Silikonölen. Der aus der Abweichung mehrerer Messreihen ermittelte Messfehler liegt für CO_2 bei etwa 5% und bei den schwach löslichen Gasen O_2 und N_2 bei 10-15%. 37
3.4. Messwertanpassung für die CO_2 Diffusion in nicht wässrigen Flüssigkeiten mit unterschiedlichen Viskositätsexponenten in $D_{CO_2,LM} \propto \eta^{a_\eta}$. 40
3.5. Nach (3.8) abgeschätzte Diffusionskoeffizienten in unendlicher Verdünnung bei 25 $°C$ (vergleiche Abb.3.5) sowie resultierende Sc Zahlen im Temperaturbereich 25-28,5 $°C$. 41
3.6. Brechungsindizes der Silikonöle [DowCorning, 1998] sowie von Luft [Hecht, 2009] bei 25 $°C$. 41
3.7. Stoffeigenschaften für Benetzungsuntersuchungen für wässrige Lösungen bei 20 $°C$ (*Messwerte, **[Dow], $^{+}$[Cheng, 2008], $^{++}$[Romero und Paez, 2006]) sowie für DC5 bei 25 $°C$ aus [DowCorning, 1998]. 47
3.8. Eigenschaften makrostrukturierter Packungsbleche für Benetzungsuntersuchungen. 49

4.1. Übersicht relevanter Objektiv-Eigenschaften für PIV- und μPIV-Messungen bei mittlerem Arbeitsabstand aus Infinity [2009]. Die angegebene Schärfentiefe ist aufgrund des Linsen-Adapters sowie $n^* \neq 1$ jedoch etwas größer. So wird von Paschke [2012] für das MX6-Objektiv eine Abbildungsschärfe von ±30-40 μm angegeben. 66

5.1. Abschätzung der Änderung des flüssigen Hold Ups bei mikrostrukturierter Oberfläche gegenüber der glatten Platte in %. 99

5.2. Relative Stofftransport- sowie Maximalgeschwindigkeitsänderungen für 3d-C bezüglich der glatten Oberfläche bei den Standardbelastungen von DC1 und DC10. 106

A.1. Auflistung der Stoffdaten sowie Originalquellen bezüglich der Diffusionskoeffizienten von CO_2 in nicht wässrigen Lösungsmitteln in Abb.3.5 bei 25 $°C$ und 1,013 bar. Bei abweichender Temperatur wird die zugehörige Viskosität verwendet. 131
A.2. Fortsetzung der Tabelle A.1. 132

C.1. Abschätzung des Druckabfalls durch CO_2-Absorption nach (C.1) und (C.2). Die angegeben Austrittsbeladungen sind mittels *IR-Methode* aus Messungen an glatter Platte bestimmt worden. 136
C.2. Gegenüberstellung der abgeschätzten Austrittsbeladungen mittels Penetrationstheorie und der experimentellen Werte bei glatter Platte nach der *IR-Methode*. . 137
C.3. Volumetrische Stoffübergangskoeffizienten und Standardabweichung der DC1-Messungen. 138
C.4. Volumetrische Stoffübergangskoeffizienten und Standardabweichung für die DC5- und DC10-Messungen. 138
C.5. Fluiddynamische Randbedingungen für die Standardeinstellungen bei den Stofftransportmessungen bezüglich der drei eingesetzten Silikonöle. Die angegeben Werte für δ_N und $\bar{w}$ gelten für die glatte Platte nach der Nusselt-Theorie. 139

D.1. Übersicht der Volumenströme und Re_R-Zahlen für $d_R = 4\ mm$ der Benetzungsversuche. 149

Symbolverzeichnis und Abkürzungen

Lateinische Buchstaben

a	Parameter	-
a_η	Viskositätsexponent	-
a_V	Volumenbezogene Phasengrenzfläche	m^2/m^3
A	Phasengrenzfläche	m^2
A_{korr}	Korrelierte Fläche (FTIR-Analyse)	-
A_S	Amplitude einer Struktur	m
b	Parameter	-
B	Breite	m
B_f	Flüssigbelastung	m^3/m^2h
c	Parameter	-
c_i	Konzentration der Komponente i	mol/m^3
c_p	Spezifische Wärmekapazität ($p = konst.$)	$J/(kgK)$
d	Schichtdicke, Spacerabstand	m
d_R	Rohrinnendurchmesser	m
$D_{i,j}$	Diffusionskoeffizient (i in j)	m^2/s
$erf(a,b)$	Fehlerfunktuion, $erf(a,b) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_a^b e^{-c^2} dc$	-
E_λ	Extinktion	-
f	Funktion	-
F	F-Faktor, $F = \bar{w}_g \sqrt{\rho_g}$	$Pa^{0,5}$
g	Erdbeschleunigung	9,81 m/s^2
h_R	Rippenhöhe	m
Δh_{abs}	Absorptionswärme	J/mol
$H_{i,j}$	Massenbezogene Henry-Koeffizient, Substanz i gelöst im Lösungsmittel j	bar
$\widetilde{H}_{i,j}$	Molbezogene Henry-Koeffizient	bar
I	Intensität des transmittierten Lichts	W/m^2
I_0	Lichtintensität vor der Transmission	W/m^2
I_{abs}	Von Farbstoff absorbierte Intensität	W/m^2
I_F	Fluoreszenzintensität	W/m^2
I_{HR}	Lichtintensität des Hintergrundrauschens	-
k_{IR}	Kalibrierfaktor bei der IR-Analyse	-
k_L	Flüssigkeitsseitiger Stoffdurchgangskoeffizient	m/s

l_R	Rippenabstand	m
L	Länge	m
Δm_{CO2}	Absorbierte CO_2-Masse	kg
m	Masse	kg
$\dot{m}_{CO2}$	CO_2-Massenstromdichte	$kg/(s\ m^2)$
$\widetilde{M}$	Molmasse	g/mol
$\dot{M}$	Massenstrom	kg/s
$\dot{M}_{CO2}$	Absorbierter CO_2-Massenstrom	kg/s
$\dot{M}_{CO2,FI}$	$\dot{M}_{CO2}$ nach FI-Methode	kg/s
$\dot{M}_{CO2,IR}$	$\dot{M}_{CO2}$ nach IR-Methode	kg/s
$\dot{M}_{FIR02}$	Gasmassenstrom durch FIR02	kg/s
$\dot{M}_L$	Leckratenstrom	kg/s
n	Stoffmenge	mol
n^*	Brechungsindex	-
n_1^*	Brechungsindex bzgl. Medium mit α^*	-
n_2^*	Brechungsindex bzgl. Medium mit β^*	-
p	Absolutdruck	bar
p_{0i}^{LV}	Dampfdruck des Reinstoffes i	bar
p_i	Partialdruck der Komponente i	bar
Δp_{abs}	Druckänderung aufgrund von Absorption	$mbar$
Δp_{dyn}	Dynamischer Druck (FIR03-Messwert)	$mbar$
P_S	Periode/ Wellenlänge einer Struktur	m
r	Repitiereinheit	-
R	Universelle Gaskonstante	8,314 $J/(mol\ K)$
T	Temperatur	K; $^\circ C$
t	Zeit	s
t_B	Belichtungszeit	s
$\bar{v}_i^\infty$	Partiell molares Volumen der Komponente i in unendlicher Verdünnung	m^3/mol
V	Volumen	m^3
$\dot{V}$	Volumenstrom	m^3/s
$\mathbf{w}$	Geschwindigkeitsvektor	m/s
$\bar{w}$	Mittlere Geschwindigkeit	m/s
w_N	Nusselt-Geschwindigkeit	m/s
w_x	Geschwindigkeitskomponente in x-Richtung	m/s
w_y	Geschwindigkeitskomponente in y-Richtung	m/s
w_z	Geschwindigkeitskomponente in z-Richtung	m/s
x	Koordinate der Lauflänge des Films	-
x_i	Molenbruch der Komponente i	mol/mol
X_i	Gasbeladung im Lösungsmittel	kg/kg
$X_{CO2,aus}$	CO_2-Gasbeladung am Austritt	kg/kg

$X_{CO2,ein}$	CO_2-Gasbeladung am Eintritt	kg/kg
$X_{CO2,eq}$	CO_2-Gleichgewichtsbeladung	kg/kg
y	Koordinate der Filmdicke	-
y_B	y-Tiefenkorrektur aufgrund von Brechung	-
z	Koordinate der Filmbreite	-
Z	Realgasfaktor, $Z = pV_g/(nRT)$	-

Griechische Buchstaben

α	Neigungswinkel zur Vertikalen	$^\circ$
α^*	Einfallswinkel	$^\circ$
α^*_G	Grenzwinkel für Totalreflexion	$^\circ$
β^*	Ausfallswinkel	$^\circ$
β_f	Flüssigkeitsseitiger Stoffübergangskoeffizient	m/s
β_g	Gasseitiger Stoffübergangskoeffizient	m/s
β_H	Gradient vertikaler Geschwindigkeitsfluktuationen	$1/s$
δ_F	Filmdicke	m
δ_N	Nusselt-Filmdicke	m
δ^*	Relative Filmdicke, $\delta^* = \delta_N/A_S$	-
Δ	Differenz, Änderung	-
ϵ_{kA}	Relative Steigerung von (k_LA)	%
ϵ_λ	Molarer Extinktionskoeffizient	m^2/mol
η	Dynamische Viskosität	$kg/m\ s$
λ	Wellenlänge	m
$\bar{\lambda}$	Wellenzahl	m^{-1}
λ_a	Wellenlänge absorbierter Strahlung	m
λ_e	Wellenlänge emittierter Strahlung	m
ν	Kinematische Viskosität	m^2/s
ω	Frequenz	$1/s$
ρ	Dichte	kg/m^3
σ	Oberflächenspannung	N/m
θ	Kontaktwinkel	$^\circ$
τ	Kontaktzeit	s
ξ	Massenbruch	kg/kg

Indizes

aus	Austritt
$CO2$	Kohlenstoffdioxid
ein	Eintritt
f	Flüssigphase
g	Gasphase
LM	Lösungsmittel
max	Maximal
$mean$	Moderat, mittel
min	Minimal
mix	Mischung
pen	Penetrationstheorie
pix	Pixel
s	Feststoff

Dimensionslose Kennzahlen

Bo	Bond-Zahl, $Bo = \delta_N^2\ \rho\ g\ cos\alpha/\sigma_{fg}$
Bo_S	Bo für Wellenstruktur, $Bo_S = P_S^2\ \rho_f\ g\ cos\alpha/(4\pi^2\sigma_{fg})$
Cb	*Capillary buoyancy*, $Cb = Fi^{0,25}$
Fi	Filmzahl, $Fi = \rho_f\ \sigma_{fg}^3/(g\ \eta_f^4)$
Fr	Froude-Zahl, $Fr = \bar{w}_f^2/(g\ \delta_N)$
Ka	Kapitza-Zahl, $Ka = Fi^{-1}$
Ka^*	Kapitza-Zahl, $Ka^* = Fi^{1/3}$
Re	Reynolds-Zahl, $Re = \bar{w}_f\ \delta_N/\nu_f$
Re^*	Generalisierte Re-Zahl, $Re^* = Re^{11/9}/(3^{7/9}\ 5\ Fi^{1/9})$
Re_R	Rohr-Rynolds-Zahl, $Re_R = \bar{w}_f\ d_R/\nu_f$
Sc	Schmidt-Zahl, $Sc = \nu_f/D_{i,j}$
Sh	Sherwood-Zahl, $Sh = k_L\ \delta_N/D_{i,j}$
We	Weber-Zahl, $We = \bar{w}_f^2\ \rho\ \delta_N/\sigma_{fg}$

Abkürzungen

B	Berg/ Strukturspitze
C152A	Coumarin 152A, $C_{14}H_{14}NO_2F_3$
CCD	Charged Coupled Device
CFD	Computational Fluid Dynamics
DC1	Silikonöl mit $\nu_f(25\ °C) = 1\ mm^2/s$
DC5	Silikonöl mit $\nu_f(25\ °C) = 5\ mm^2/s$
DC10	Silikonöl mit $\nu_f(25\ °C) = 10\ mm^2/s$
FIR	Durchflussanzeige und Registrierung
FTIR	Fourier-Transform-Infrarot
G	Gebläse
GLE	Gas-Liquid Equilibrium
	Gas-Flüssig Gleichgewicht
HH	Handhahn
HV	Handventil
IL	Ionic Liquid (Ionische Flüssigkeit)
IR	Infrarot
LED	Light Emitting Diode
	Licht Emittierende Diode
LIC	Levelanzeige und Regelung
LIF	Light/ Laser Induced Fluorescence
	Licht Induzierte Fluoreszenz
MW	Mittelwert
P	Pass (Mitte zwischen B und T)
PIC	Druckanzeige und Regelung
PIR	Druckanzeige und Registrierung
PIV	Particle Image Velocimetry
μPIV	Micro Particle Image Velocimetry
Q	Probenentnahme zur Analyse
RW	Rührwerk
SOP	Standard Operating Procedure
	Standardarbeitsanweisung
T	Tal/ Strukturminimum
TIC	Temperaturanzeige und Regelung
TIR	Temperaturanzeige und Registrierung
UV	Ultraviolett
VP	Vakuumpumpe
WÜ	Wärmeübertrager

1. Einleitung

In der chemischen Industrie werden zur Stoffveredelung häufig die thermischen Trennoperationen Rektifikation sowie Absorption/ Desorption eingesetzt, wobei zusätzlich im Rahmen von Klimaschutzbemühungen bei der Energieversorgung die Abgaswäsche durch Absorption/ Desorption zunehmend erforscht wird. Die genannten Prozesse erfordern in der Regel ein hohes Maß an Energie und werden daher falls möglich in Kolonnen mit strukturierten Hochleistungspackungen durchgeführt, um den Energiebedarf zu minimieren. Diese strukturierten Packungen besitzen gegenüber anderen trennwirksamen Kolonneneinbauten den Vorteil bei hohen Flüssigkeitsdurchsätzen geringere Druckverluste und gleichzeitig höhere Trennleistungen realisieren zu können. Hinsichtlich der Effizienz besitzen Hochleistungspackungen daher ein Alleinstellungsmerkmal. Es ist anzunehmen, dass diese Packungstypen langfristig für eine Vielzahl von Anwendungen eingesetzt werden. Die weitere Erforschung der Wirkmechanismen sowie deren gezielte Beeinflussung zur Prozessintensivierung wird dadurch in besonderem Maße motiviert.

Das entscheidende Merkmal für die Effizienz von Hochleistungspackungen ist das Design der Packungsgeometrie. Diese wurde vielfach mit unterschiedlichen Zielstellungen detailliert untersucht. Dabei stand neben der Makrostruktur die Verwendung unterschiedlicher Packungsmaterialien im Vordergrund des Interesses. Der Einfluss von Makrostrukturen auf den Stofftransport sowie auf die Strömungsmechanik werden zum Beispiel in den Untersuchungen von Santos et al. [1991], Fischer et al. [2003], Olujic et al. [2009] und Wehrli [2011] analysiert. Wesentliche Ergebnisse betreffen hier die spezifische Stoffaustauschfläche in m^2/m^3 und die Kosten.
Obwohl moderne strukturierte Packungen in der Regel zusätzlich zu den Makrostrukturen mit mikrostrukturierten Oberflächen ausgestattet sind, ist der Mikrostruktureinfluss für praxisnahe Betriebsbedingungen der oben genannten Trennoperationen jedoch kaum untersucht worden. Lediglich von Bühlmann [1987] sowie von Schultes [2008] werden Stofftransportsteigerungen von etwa 20-100% für ein Destillationsbeispiel in einer Packungskolonne festgestellt, wenn anstelle einer glatten Packungsoberfläche eine mikrostrukturierte Oberfläche verwendet wird. Als Ursache dieser Verbesserung wird angenommen, dass die Mikrostrukturen die Turbulenz im Film erhöhen sowie den Flüssigkeitsinhalt steigern [Schultes, 2008], was bisher allerdings weder nachgewiesen noch näher untersucht wurde. Zudem können weitere, durch Mikrostrukturen induzierte, vorteilhafte Aspekte wie beispielsweise die möglicherweise verbesserte Benetzung nicht ausgeschlossen werden.

Demnach bleibt die grundlegende Frage zu klären, welchen Einfluss mikrostrukturierte Oberflächen tatsächlich auf den Stofftransport ausüben und welche fluiddynamischen Mechanismen hierbei maßgeblich sind. Essentiell zur Beantwortung dieser Fragestellung ist die Einhaltung

praktisch relevanter Prozessparameter wie Gas- und Flüssigbelastungen sowie die Größenordnungen von industriell eingesetzten Viskositäten und Mikrostrukturen. Bei der Analyse der Strukturen müssen zudem praktische Aspekte der Herstellung berücksichtigt und ein hohes Maß an Reproduzierbarkeit der experimentellen Untersuchungen gewährleistet werden. In diesem Zusammenhang erfolgte in Kooperation mit der Sulzer Chemtech AG die Planung entsprechender Versuchsanlagen und Experimente. Schließlich erweist es sich als zielführend die experimentellen Untersuchungen der Rieselfilmströmung auf unterschiedlich strukturierten Oberflächen zunächst an der vereinfachten Geometrie einer geneigten Platte durchzuführen, da einerseits der experimentelle oder numerische Zugang einer realen Packungsgeometrie zurzeit nicht mit genügend hoher Genauigkeit gegeben ist. Andererseits können an einer Plattengeometrie mittels moderner Messmethoden wertvolle Informationen sowohl über den Stofftransport als auch über die Fluiddynamik jeweils mit hoher Genauigkeit gewonnen werden [Repke et al., 2011]. Die so erzielten, neuen Grundlagenkenntnisse könnten im Weiteren beispielsweise dazu dienen Simulationsmodelle zu validieren und schließlich eine optimierte Gestaltung mikrostrukturierter Oberflächen für die Prozessintensivierung bei der Rektifikation und Absorption/ Desorption zu ermöglichen.

Die benötigten physikalischen Grundlagen sowie der Stand des Wissens bezüglich Filmströmungen auf glatten und mikrostrukturierten Oberflächen werden in Kapitel 2 im Zusammenhang mit dem Stofftransport und der Strömungsmechanik dargelegt. Aus diesen Kenntnissen lassen sich in 2.3 die wissenschaftlichen Lücken und somit die Ziele der Arbeit konkretisieren sowie eine zielführende Methodik ableiten.
Für die systematische Analyse des Mikrostruktureinflusses auf Filmströmungen werden in Kapitel 3 die relevanten Stoff- und Materialeigenschaften aus eigenen Messungen sowie aus Literaturdaten spezifiziert. Dabei werden weitere Grundlagen wie optische Eigenschaften für Konzentrations- und Strömungsmessungen sowie grundlegende Benetzungseigenschaften aufgeführt und schließlich in 3.3 die Spezifikationen der eingesetzten Packungsmaterialien angegeben.
Das Kapitel 4 beinhaltet die Beschreibung der Messmethoden zum Stofftransport nach dem verwendeten Prinzip der Fallfilmabsorption inklusive der Lösemittelregeneration sowie der genutzten optischen Strömungsmessverfahren wie die Filmdicken- und Geschwindigkeitsmessungen sowie die Tracer- und Benetzungstests.
Schließlich erfolgt die Ergebnisdiskussion der Stofftransport- und Strömungsmessungen in Kapitel 5, worin die gemessenen Effekte der Mikrostrukturen in Bezug auf die glatte Referenzoberfläche bewertet werden. Die Verknüpfung von Ursache und Wirkung wird im Rahmen der Hauptuntersuchungen dadurch erreicht, dass zunächst für einen großen Versuchsbereich die Stofftransportwirkung und für spezielle Ereignisse die fluiddynamisch bedingten Ursachen sowie der Zusammenhang zum Stofftransport ausgearbeitet werden. Während bei den Hauptuntersuchungen stets vollständige Benetzung über die gesamte Plattenbreite vorliegt, um den Mikrostruktureinfluss unabhängig von den Benetzungseigenschaften charakterisieren zu können, so werden schließlich in Abschnitt 5.4 erste Ergebnisse von weiterführenden Benetzungstests sowohl an ge-

neigten Platten als auch makrostrukturierten Blechen präsentiert. Mit Hilfe dieser ergänzenden Untersuchungen werden einerseits wichtige Aspekte zur möglichen Prozessintensivierung durch die Wahl des Mikrostrukturdesigns näher beschrieben und andererseits werden erste Ansätze für die Übertragbarkeit auf die komplexeren Geometrien realer Hochleistungspackungen gegeben.

Schließlich kann in dieser Arbeit erstmalig in einer detaillierten Untersuchung der Einfluss von Mikrostrukturen auf den flüssigkeitsseitigen Stofftransport in Rieselfilmströmungen für praxisnahe Bedingungen quantitativ angegeben werden. Aus vorherigen wissenschaftlichen Untersuchungen bekannte und auf rein fluiddynamischen Untersuchungen basierende Heuristiken für das Mikrostrukturdesign von Packungsmaterialien können in dieser Arbeit anhand von Stofftransportmessungen erstmalig bestätigt und um wesentliche Aspekte erweitert werden.

2. Grundlagen und Stand des Wissens

Diese Arbeit widmet sich im Wesentlichen der Untersuchung von Filmströmungen auf komplexen Oberflächen und hierbei insbesondere dem Effekt von Mikrostrukturen auf die Fluiddynamik und dem damit verknüpftem Stofftransport. Dieser Problemstellung liegt eine ingenieurtechnische Anwendung, nämlich der Einsatz strukturierter Hochleistungspackungen für die Stoffveredelung mittels Rektifikation oder Absorption in Packungskolonnen, zugrunde. Die hierzu notwendigen physikalischen Grundlagen werden im Folgenden erläutert und der aktuelle Wissensstand dargestellt. Die wissenschaftliche Problem- und Zielstellung dieser Arbeit folgt aus den offenen Fragestellungen zum Stand des Wissens.
Im Allgemeinen treten Filmströmungen über einen weiten Bereich an Längenskalen auf und besitzen eine zentrale Bedeutung für zahlreiche Gebiete der Ingenieurwissenschaften, der Geophysik sowie der Biophysik; dies beinhaltet zum Beispiel die Nano- und Mikroströmung, die Strömung bei der Oberflächenbeschichtung, die Prozessintensivierung bei Wärme- und Stofftransport und die Lavaströmung [Craster und Matar, 2009].
Im Folgenden werden zunächst die notwendigen Grundlagen von Filmströmungen auf glatten Oberflächen hinsichtlich der Fluiddynamik und des Stofftransports in 2.1 aufgeführt. Darauf aufbauend wird auf relevante Veröffentlichungen zur Filmströmung auf strukturierten Oberflächen in 2.2 eingegangen. Damit ist ein Überblick des aktuellen Stands des Wissens in Bezug auf die Problemstellung der Arbeit gegeben. Die daraus resultierenden Lücken der wissenschaftlichen Forschung werden in 2.3 zusammengefasst und die Ziele sowie Methodik der Arbeit motiviert und konkretisiert.

2.1. Filmströmung auf glatten Oberflächen

Die Strömung dünner Flüssigkeitsfilme (Rieselfilmströmung) ist seit mehreren Dekaden Gegenstand natur- und ingenieurwissenschaftlicher Forschung. Insbesondere die Film- und Rinnsalströmung auf glatten Oberflächen ist umfangreich untersucht worden. In diesem Zusammenhang werden im folgenden Abschnitt einige grundlegende Eigenschaften bezüglich der Fluiddynamik sowie des Stofftransports beschrieben und weiterführende Literatur angegeben.

2.1.1. Fluiddynamische Aspekte

Nusselt-Theorie für Filmdicken und Filmgeschwindigkeiten Eine der grundlegendsten Modellvorstellungen einer Filmströmung geht aus der Wasserhauttheorie von Nusselt [1916] hervor. Hiernach gilt für den gravitationsgetriebenen flüssigen Fallfilm auf einer glatten Oberfläche unter der Annahme einer newtonschen, inkompressiblen Flüssigkeit bei laminarer Strömung nach

Aufstellen einer Kräftebilanz folgende Differentialgleichung:

$$\eta_f \frac{d^2 w_x(y)}{dy^2} + \rho_f \; g \; sin\alpha = 0 \tag{2.1}$$

Darin sind η_f die dynamische Viskosität und ρ_f die Dichte der Flüssigkeit. Weiterhin erscheinen in (2.1) die Geschwindigkeitskomponente der Hauptfließrichtung w_x sowie der Neigungswinkel gegenüber der Vertikalen α. Als Lösung von (2.1) erhält man das Geschwindigkeitsprofil ausgehend von der Gas-Flüssig-Phasengrenzfläche ($y = 0$) bis zur Wand bzw. der mittleren Filmdicke ($y = \delta_N$):

$$w_N(y) = \frac{g \; sin\alpha \; \delta_N^2}{2 \; \nu_f} \left(1 - \left(\frac{y}{\delta_N}\right)^2\right) \tag{2.2}$$

Hierin ist $\nu_f = \eta_f / \rho_f$ die kinematische Viskosität der Flüssigkeit. Man bezeichnet (2.2) als das Nusselt-Geschwindigkeitsprofil w_N und δ_N als die Nusselt-Filmdicke; zur weiteren Veranschaulichung dient Abb.2.1. Die Integration von (2.1) zu (2.2) erfolgt unter den Randbedingungen,

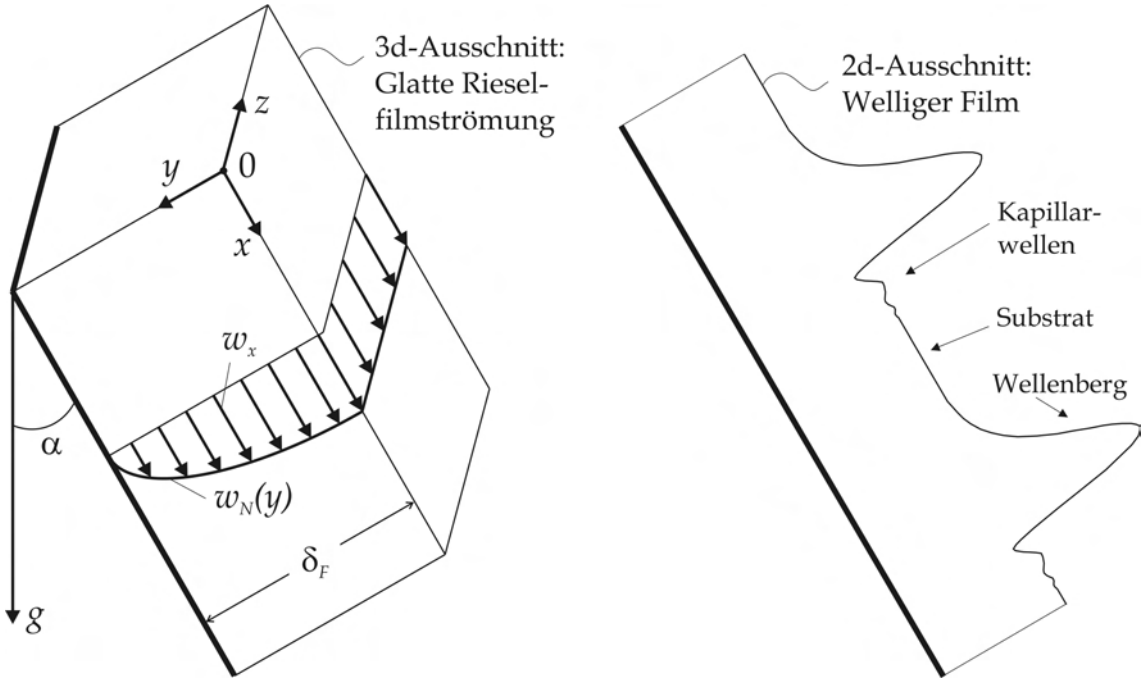

Abbildung 2.1.: Schematische Darstellungen der Rieselfilmströmung auf geneigter Wand inklusive Kennzeichnung einiger Grundgrößen.

dass Wandhaftung vorliegt ($w_x(y = \delta_N) = 0$) sowie keine Übertragung von Schubspannungen über die Oberfläche des Films erfolgt ($(dw_x/dy)_{y=0} = 0$). Die zweite Randbedingung induziert, dass die maximale Filmgeschwindigkeit nach Nusselt $w_{N,max}$ bei $y = 0$ liegt; es folgt aus (2.2):

$$w_{N,max}(y) = \frac{g \; sin\alpha \; \delta_N^2}{2 \; \nu_f} \tag{2.3}$$

Im Rahmen einer praktischen Anwendung besitzt der Film häufig definierte Ausdehnungen, so lässt sich zum Beispiel mit der Länge $x = L$ sowie Breite $z = B$ des Films der Flüssigkeitsinhalt

$V_f = B\ L\ \delta_N$ bestimmen. Damit ergibt sich für die freie Phasengrenzfläche A beim glatten Rieselfilm $A = B\ L$. Der Volumenstrom der Filmströmung $\dot{V}_f$ setzt sich aus dem Produkt von mittlerer Filmgeschwindigkeit $\bar{w}$ und der durchströmten Fläche $B\ \delta_N$ zusammen. Nach Umformen erhält man folgende Möglichkeit zur Berechnung der Nusselt-Filmdicke:

$$\delta_N = \sqrt[3]{\frac{3\ \dot{V}_f\ \nu_f}{B\ g\ cos\alpha}} \tag{2.4}$$

Obwohl die Nusselt-Gleichungen nur für den laminaren Rieselfilm ($Re <$ 3-5) abgeleitet wurden, gelten sie auch bei höheren Volumenströmen bis ca. $Re < 400$ in guter Näherung.

Dimensionslose Kennzahlen In der Literatur werden unterschiedliche dimensionslose Kennzahlen zur Beschreibung von Filmströmungen herangezogen; dieser Abschnitt gibt zunächst einen Überblick. Die für Strömungsvorgänge äußerst bedeutsame Reynolds-Zahl Re beschreibt im Allgemeinen das Kräfteverhältnis aus Impulsstrom und Reibung, für die Filmströmung wird sie definiert als:

$$Re = \frac{\dot{V}_f}{B\ \nu_f} = \frac{\overline{w}_f\ \delta_N}{\nu_f} \tag{2.5}$$

Im Vergleich zu Re für andere Systeme ist bemerkenswert, dass die charakteristische Länge in diesem Fall gleich δ_N und somit keine geometrische Konstante ist. Diese Definition wird dennoch verwendet, da sie sich als Standard durchgesetzt hat (in einigen Veröffentlichungen findet man noch 4 Re als Reynolds-Zahl).
Für Strömungen unter Schwerkrafteinfluss wird häufig die Froude-Zahl, mit $Fr = \overline{w}_f^2/(g\ \delta_F)$, verwendet. Hier wird der Impulsstrom auf die Schwerkraft bezogen. Bei Strömungsvorgängen mit freien Oberflächen sollte zudem die Oberflächenspannung σ_{fg} berücksichtigt werden. Bei der Weber-Zahl wird dies durch das Verhältnis aus Impulsstrom und Randkraft der Oberflächenspannung realisiert, es gilt $We = \overline{w}_f^2\ \rho\ \delta_N/\sigma_{fg}$.
Insbesondere für Filmströmungen besitzt die Filmkennzahl Fi bzw. die Kapitza-Zahl Ka eine große Bedeutung. Es gilt:

$$Fi = Ka^{-1} = \frac{\rho_f\ \sigma_{fg}^3}{g\ \eta_f^4} \tag{2.6}$$

Ein einfaches Kräfteverhältnis, analog zu klassischen dimensionslosen Kennzahlen, lässt sich nicht herleiten, es gilt jedoch eine Beziehung zu den oben genannten Größen ($Fi = Fr\ Re^4/We^3$). Somit ergibt sich folgende Kräftezusammensetzung von Fi: Impulsstrom^2, Randkraft der Oberflächenspannung^3, Schwerkraft^{-1} sowie Reibungskraft^{-4}. Da bereits bei kleinen Stoffwertvariationen eine große Änderung von Fi auftreten kann, findet man häufig Definitionen mit einem Exponenten ungleich 1. So führen Won und Mills [1982] die so genannte *Capillary buoyancy* mit $Cb = Fi^{-0,25}$ ein, um die Stoffwertabhängigkeit in ihre Stofftransportkorrelationen zu integrieren. Demekhin et al. [2007] verwenden $Ka^* = Fi^{1/3}$ als Kapitza-Zahl und bilden eine generalisierte Reynolds-Zahl mit $Re^* = Re^{11/9}/(3^{7/9}\ 5\ Fi^{1/9}) = 0{,}0851\ (Re^{11}/Fi)^{1/9}$, die sowohl Trägheits- als auch Oberflächenkräfte berücksichtigt. Demnach genügt dieser eine Parameter Re^*, um das Kapitza-Shkadov Modell, welches universell für alle Flüssigkeiten Gültigkeit

besitzt und unter anderem Wellenregime voraus berechnen kann, anwenden zu können.
Des Weiteren ist die Verwendung der Bond-Zahl $Bo = (\delta_N^2\ \rho_f\ g\ cos\alpha)/\sigma_{fg}$ [Valluri et al., 2005; Baxter et al., 2009], die eine abgewandelte Weber-Zahl darstellt, üblich. Für periodisch gewellte Oberflächen wird folgende Bond-Zahl $Bo_S = (P_S^2\ \rho_f\ g\ cos\alpha)/(4\pi^2\sigma_{fg})$ beziehungsweise Bo_S^{-1} als Parameter eingeführt [Häcker und Uecker, 2009; Heining et al., 2009], wobei P_S die Periode beziehungsweise Wellenlänge der Struktur repräsentiert.

Strömungsregime und Wellenphänomene In Abhängigkeit der oben genannten dimensionslosen Kennzahlen ergeben sich für den Rieselfilm unterschiedliche Strömungsregime sowie charakteristische Wellenformationen. Aus experimentellen Beobachtungen bzw. Filmdickenmessungen resultieren in Abhängigkeit von Re und Fi insgesamt drei Strömungsregime mit zwei Übergangsbereichen, siehe Tab.2.1.

Tabelle 2.1.: Charakterisierung der Strömungsregime für den Fallfilm.

Strömungsregime	Ishigai et al. [1972]	Al-Sibai [2005]
Laminarer, glatter Film	$Re \leq 0{,}47\ Fi^{0,1}$	$Re \leq 0{,}6\ Fi^{0,1}$
1. Übergangsbereich	$0{,}47\ Fi^{0,1} \leq Re \leq 2{,}2\ Fi^{0,1}$	$0{,}6\ Fi^{0,1} \leq Re \leq Fi^{0,1}$
Stabil welliger Film	$2{,}2\ Fi^{0,1} \leq Re \leq 75$	$Fi^{0,1} \leq Re \leq 25\ Fi^{0,09}$
2. Übergangsbereich	$75 \leq Re \leq 400$	$25\ Fi^{0,09} \leq Re \leq 192\ Fi^{0,06}$
Turbulente Film	$Re \geq 400$	$Re \geq 192\ Fi^{0,06}$

Dabei haben Ishigai et al. [1972] Untersuchungen mit Wasser sowie Wasser-Diethylenglykol-Mischungen durchgeführt. Die Einteilung nach Al-Sibai [2005] erfolgt mittels umfangreichen Messungen an unterschiedlichen Silikonölen, so dass die Variation an Fi deutlicher größer ist. Ein interessanter Aspekt in Tab.2.1 ist die Tatsache, dass Fi über den stabil welligen Bereich hinaus einen Einfluss besitzen kann und die voll ausgebildete Turbulenz nicht strikt für $Re > 400$ einsetzen muss.
Weiterhin ist ein natürlicher Fallfilm dadurch gekennzeichnet, dass sich nach einem glatten Anfangsbereich Wellen ausbilden. Aus der allgemeinen Wellentheorie folgt, dass sich Wellen bereits für $Re > 0$ ausbilden; in der Praxis ergeben sich jedoch aufgrund von Störungen Wellen erst oberhalb von Re = 3-5 [Alekseenko et al., 1994; Chang und Demekhin, 2002]. Die Wellenform hängt neben Re und Fi zusätzlich von der Lauflänge ab. Die wellenfreie Länge nimmt dabei mit steigender Reynolds-Zahl zu, siehe Abb.2.2.
Die in Abb.2.2 dargestellten Wellenbilder bilden einen frei beziehungsweise natürlich fallenden Rieselfilm ab. Nach einem glatten Einlaufbereich erkennt man zweidimensionale Wellen, die mit zunehmender Lauflänge dreidimensionalen Charakter erhalten sowie groß genug werden, um Kapillarwellen zu erzeugen (vergleiche Abb.2.6). Für die gezielte Charakterisierung des Welleneinflusses werden jedoch häufig die Filme mit einer künstlich aufgeprägten Frequenz ω versehen. Für diesen Fall sei auf die Anschauungsbeispiele unterschiedlicher Wellenformationen sowie weiterführende Literatur verwiesen, insbesondere zu empfehlen sind Alekseenko et al. [1994],

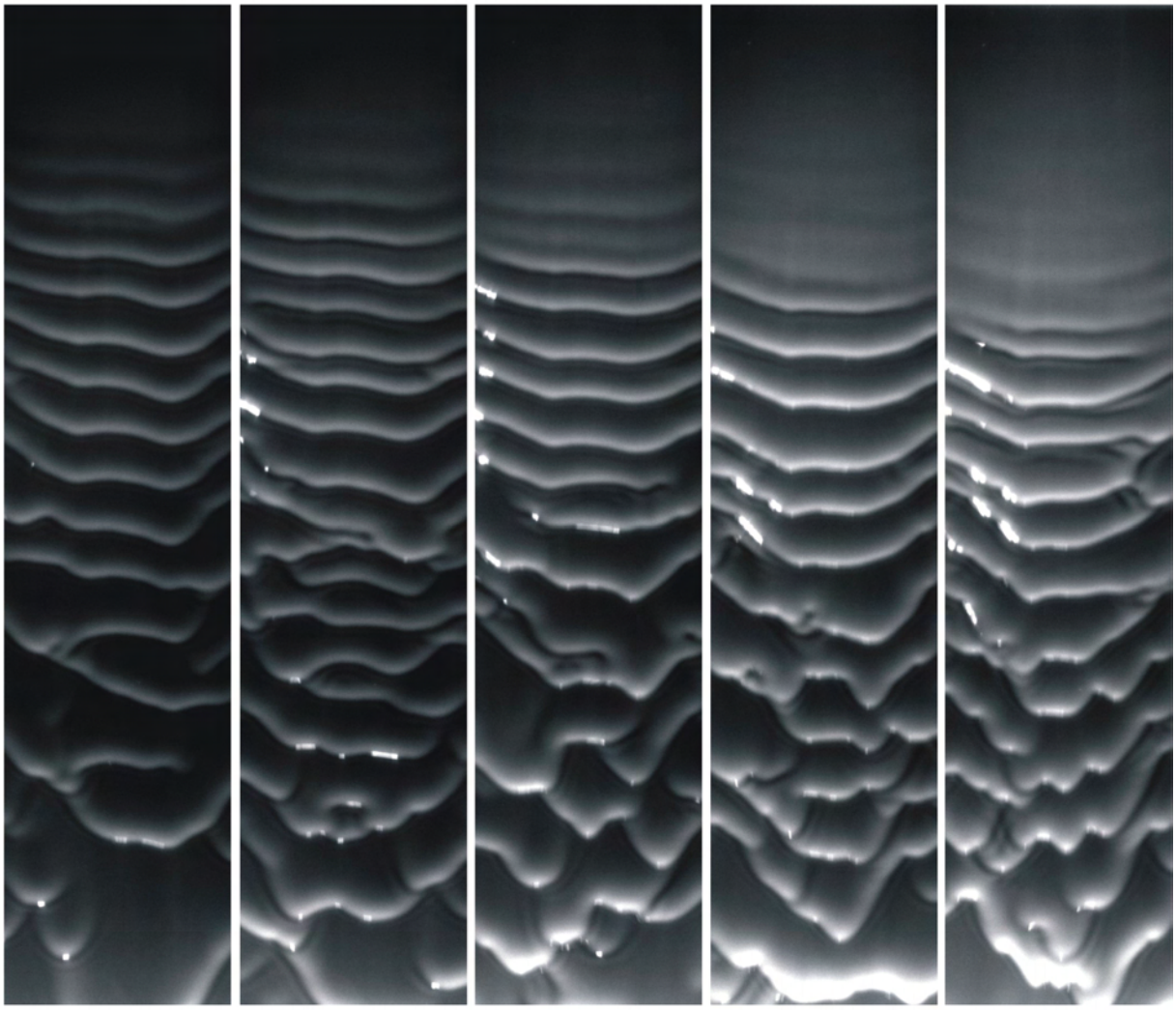

Abbildung 2.2.: Mittels LIF visualisierte Wellenevolution bei Silikonöl DC5 (Stoffeigenschaften siehe 3.1.1) mit Re =9; 13; 17; 20; 24 von links nach rechts ($t_B = 5\ ms$). Die Größe der überströmten Platte mit $\alpha = 30°$ beträgt $L = 30\ cm$ und $B = 10\ cm$. Nach glattem Einlauf folgen 2d- und 3d-Wellen.

Adomeit und Renz [2000], Chang und Demekhin [2002] sowie Park und Nosoko [2003].

Es ist bekannt, dass bei einem welligen Film der Wärme- und Stofftransport gegenüber einem glatten Film intensiviert wird [Baehr und Stephan, 2006; Park und Nosoko, 2003]. Die Wellenform beziehungsweise Wellenfrequenz hat dabei einen entscheidenden Einfluss auf die Transportvorgänge. Im Zusammenhang mit dem flüssigkeitsseitigen Stofftransport werden von Demekhin et al. [2007] in Abhängigkeit von Re folgende Regime angegeben:

- Glatte Oberfläche $Re <$ 3-5
- 2d-Kapillarwellen $5 \leq Re \leq 40$
- 3d-Wellen mit *Oberflächen Turbulenz* $40 \leq Re \leq 400$

- Quasi 2d-Rollwellen mit laminarer Bulkströmung $400 \leq Re \leq$ 800-1500
- Rollwellen mit turbulenter Bulkströmung $Re \geq$ 800-1500

Diese Einteilung erfolgt durch Beobachtungen am Beispiel von Wasser (15 $°C$, $\alpha = 0°$), weitere Details in Zusammenhang mit dem damit verknüpftem Stofftransport sind in Abschnitt 2.1.2 zu finden, siehe Abb.2.6.

2.1.2. Stofftransport/ Gasabsorption

Einleitung Im Rahmen dieser Arbeit wird im Wesentlichen der flüssigkeitsseitig dominierte Stofftransport zwischen freier Filmoberfläche und der anliegenden Gasphase behandelt. Bei der Aufnahme von Gasen oder Dämpfen in eine Flüssigkeit spricht man von Absorption; die Umkehrung bezeichnet man als Desorption oder Regeneration des Lösungsmittels (Absorbens). Für eine Intensivierung des Stofftransports gilt es limitierende Widerstände zu verringern. Grundsätzlich treten drei unterschiedliche Stofftransportwiderstände bei der Absorption auf, beim Übergang von der Gasphase zur Phasengrenzfläche, durch die Phasengrenzfläche sowie von der Phasengrenzfläche in die Flüssigphase. Der Widerstand im Phasengrenzbereich kann im Allgemeinen, aufgrund der geringen Ausdehnung der Phasengrenze von wenigen Nanometern, vernachlässigt werden. Nach der Zweifilmtheorie des Stoffaustauschs, ohne chemische Reaktionen und unter Annahme der Gültigkeit des Henry Gesetzes, gilt für den flüssigkeitsseitigen Stoffdurchgangskoeffizienten k_L [Baehr und Stephan, 2006]:

$$\frac{1}{k_L} = \frac{1}{\beta_f} + \frac{p}{H_{i,j}\ \beta_g} \tag{2.7}$$

Neben den Einzelübergangskoeffizienten β_f und β_g sind Gesamtdruck p sowie Henry-Koeffizient $H_{i,j}$ zu berücksichtigen (siehe Abschnitt 3.2.1). Da im Rahmen dieser Arbeit unter anderem angestrebt wird gezielt den Oberflächeneinfluss auf den Stofftransport zu charakterisieren, wird im Stoffübergangsexperiment eine Gasphase bestehend aus reinem CO_2 Gas bereitgestellt (siehe 4.1.1), daraus folgt $\beta_g \to \infty$. Somit reduziert sich das Transportproblem auf die flüssige Phase und es gilt:

$$k_L = \beta_f \tag{2.8}$$

Bei den Trennprozessen der Ab- und Desorption ergeben sich Besonderheiten bezüglich der Konzentrationsmaße. So werden anstelle der Molenbrüche ($x_i = n_i / \sum n_i$) oder Massenbrüche ($\xi_i = m_i / \sum m_i$) in der Praxis Beladungen (z.B. X_i für die Flüssigphase) verwendet. Die Beladung X_i wird aus dem Quotienten von der Masse des gelösten Gases und der Masse des Absorbens gebildet. An dem folgenden Beispiel aus dieser Arbeit wird klar, dass Massenbruch und Beladung annähernd als gleichwertig anzusehen sind. Verwendet man die Gleichgewichtslöslichkeiten von CO_2 in Silikonöl (DC10), es lösen sich ca. 3 mg in einem Gramm Öl (siehe 3.2.1), so erhält man $\xi_{CO2} = 2{,}99 \cdot 10^{-3}\ g/g$ sowie $X_{CO2} = 3 \cdot 10^{-3}\ g/g$. Der Unterschied ist damit deutlich geringer als die Messgenauigkeit der Gleichgewichtsdaten, so dass die Verwendung von Beladungen anstelle von Massenbrüchen in den folgenden Gleichungen gerechtfertigt ist.

Volumetrischer Stoffübergangskoeffizient Die über ein infinitesimales Flächenelement $dA = dx\ dz$ absorbierte CO_2 Massenstromdichte $\dot{m}_{CO2}$ entspricht dem Produkt aus der, über die Filmdicke δ_F gemittelten, Beladungsänderung dX_{CO2} und dem Flüssigkeitsmassenstrom $\dot{M}_f$ (vergleiche Abbildung 2.3), so dass gilt:

$$\dot{m}_{CO2}\ dA = \dot{M}_f\ dX_{CO2} \tag{2.9}$$

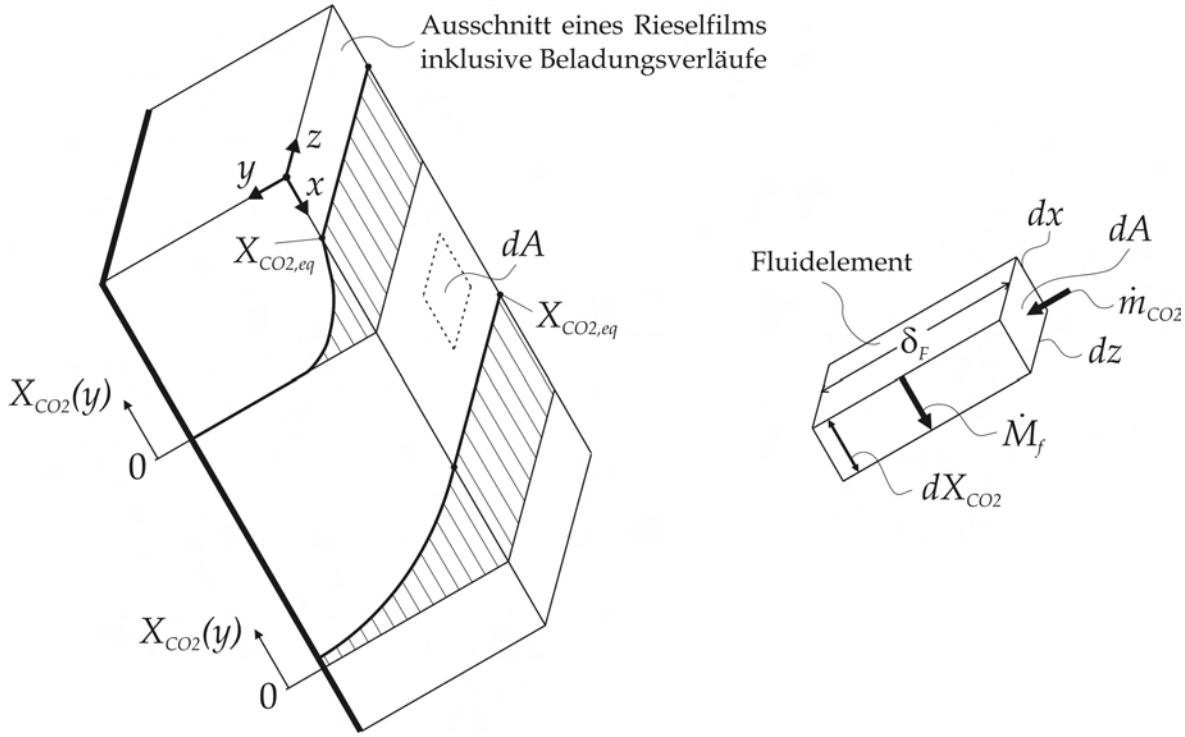

Abbildung 2.3.: Skizze der Beladungsverläufe in Abhängigkeit der Lauflänge sowie der Filmdicke in einer Rieselfilmströmung bei der physikalischen CO_2-Absorption sowie Darstellung eines Fluidelements für die lokale Bilanzierung des Stoffübergangs.

Weiterhin kann die lokal übergehende Massenstromdichte $\dot{m}_{CO2}$ unter der Annahme konstanter Gleichgewichtsbeladung an der Phasengrenzfläche $X_{CO2,eq}$ mit (2.8) wie folgt formuliert werden (vergleiche Baehr und Stephan [2006]):

$$\dot{m}_{CO2} = k_L\ \rho_f\ (X_{CO2,eq} - X_{CO2}) \tag{2.10}$$

Einsetzen von (2.10) in (2.9) ergibt dann:

$$k_L\ \rho_f\ (X_{CO2,eq} - X_{CO2})\ dA = \dot{M}_f\ dX_{CO2} \tag{2.11}$$

Nach Trennung der Variablen erhält man mit der Annahme kleiner absorbierter Gasmengen:

$$\rho_f \int_{ein}^{aus} k_L\ dA = \dot{M}_f \int_{ein}^{aus} \frac{dX_{CO2}}{X_{CO2,eq} - X_{CO2}} \tag{2.12}$$

Es kann weiterhin angenommen werden, dass entlang z keine Änderung der Beladung auftritt. Damit ist der Stoffübergang unabhängig von der Plattenbreite B, so dass das Integrieren über die gesamte Plattenlänge ($x_{ein} = 0$ bis $x_{aus} = L$) und das Auflösen von (2.12) den mittleren volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten ($k_L A$) ergibt:

$$(k_L A) = \dot{V}_f \; ln \left(\frac{X_{CO2,eq} - X_{CO2,ein}}{X_{CO2,eq} - X_{CO2,aus}} \right) \tag{2.13}$$

Hierin sind die Phasengrenzfläche mit $A = B\ L$ und die Ein- und Austrittsbeladungen bezüglich der gesamten Plattenlänge zu bilden.
Es ist zu beachten, dass k_L am Eintritt am größten ist, da dort der Beladungsgradient ebenfalls am größten ist. Dementsprechend ergeben sich für kürzere Lauflängen höhere Sherwood-Zahlen ($Sh = k_L\ \delta_N / D_{i,j}$) als für längere Wegstrecken, siehe Abb.2.6.
Mit Hilfe von (2.13), den temperaturabhängigen Gleichgewichtsdaten sowie den gemessenen Ein- und Austrittsbeladungen lässt sich schließlich in Abhängigkeit des Flüssigvolumenstroms die Stofftransportleistung bei der Fallfilmabsorption charakterisieren. Der volumetrische Stoffübergangskoeffizient in Gleichung (2.13) gibt schließlich Auskunft über die Absorptionsgeschwindigkeit eines Gases durch die verfügbare Phasengrenzfläche A mit der Einheit m^3/s. In Packungsanwendungen wird als volumetrischer Stoffübergangskoeffizient das Produkt aus k_L und volumenbezogener Phasengrenzfläche a_V verwendet [Mackowiak, 2008]. Für ($k_L a_V$) ergibt sich die Einheit s^{-1}, was unter Zuhilfenahme der geometrischen Abmaße in den Koeffizienten aus (2.13) umzurechnen ist.

Differentielle Stoffbilanz Unter Kenntnis des Diffusionskoeffizienten $D_{CO2,LM}$ lässt sich das Beladungsprofil in Abhängigkeit der Lauflänge x bestimmen; hierzu wird zunächst die differentielle Massenbilanz (Konvektions-Diffusions-Gleichung) aufgestellt:

$$w_x(y) \; \frac{\partial \rho_{CO2}}{\partial x} = D_{CO2,LM} \; \frac{\partial^2 \rho_{CO2}}{\partial y^2} \tag{2.14}$$

Mit der Annahme, dass die gelöste CO_2 Masse sehr klein im Vergleich zur Lösemittelmasse ist, gilt für das Lösemittelvolumen $V_f \approx m_f / \rho_f$. Mit der Definition der Dichte lässt sich somit die komponentenbezogene Massendichte ρ_{CO2} in den Massenbruch ξ_{CO2} oder die Beladung X_{CO2} umrechnen:

$$\rho_{CO2} \approx \xi_{CO2}\ \rho_f \approx X_{CO2}\ \rho_f \tag{2.15}$$

Einsetzen von (2.15) in (2.14) und Lösen der Differentialgleichung ermöglicht die Berechnung des Beladungsprofils über die Schichtdicke $X_{CO2}(y)$ für verschiedene Längen x, siehe Abb.2.3 sowie Matlab-Lösungen in den Abbn.5.3 und 5.4. Somit ist es möglich die mittlere Austrittsbeladung $X_{CO2,aus}$ bei $x = L$ über die gewichtete Mittelung von Beladungs- und Geschwindigkeitsprofil zu bestimmen:

$$X_{CO2,aus} = \frac{\sum_{y=0}^{y=\delta_N} [X_{CO2}(y)\ w_x(y)]}{\sum_{y=0}^{y=\delta_N} w_x(y)} \tag{2.16}$$

Zur Berechnung der Austrittsbeladung kann alternativ eine Short-Cut-Methode für geringe Eindringtiefen angewendet werden. Wenn $X_{CO2,ein} = 0$ gilt, folgt nach Bird et al. [2001]:

$$X_{CO2,aus}(y) = X_{CO2,eq} \left(1 - erf \frac{y}{\sqrt{4\ D_{CO2,LM}\ L/w_{N,max}}}\right) \tag{2.17}$$

In Abschnitt 5.1.1 werden die Simulationsergebnisse für die Lösung von (2.14) sowie von (2.17) mit experimentell ermittelten Daten verglichen und diskutiert.

Stoffübergangstheorien Zur Vorausberechnung des Stoffübergangsverhaltens aus Stoff- und Prozessdaten sind mehrere Modelle (Stoffübergangstheorien) entwickelt worden. Eine Übersicht erhält man in folgender Auflistung:

1. Filmtheorie, siehe Lewis und Whitman [1924]
2. Grenzschichttheorie, siehe Schlichting und Gersten [2006]
3. Penetrationstheorie, siehe Higbie [1935]
4. Oberflächenerneuerungstheorie (Erweiterung von 3.), siehe Danckwerts [1951]
5. Turbulenztheorie, siehe zum Beispiel Brauer [1979]
6. Hanratty-Ansatz, siehe Xu et al. [2008]

Während bei 1. und 2. stationäre Bedingungen vorausgesetzt werden, sind die unter 3. und 4. genannten Theorien entwickelt worden, um instationäre Vorgänge, zum Beispiel durch sehr kurze Kontaktzeiten, zu beschreiben. Die Geschwindigkeit der Gasabsorption in ein Flüssigkeitselement an der Phasengrenze hängt nach Higbie [1935] von der Kontaktzeit τ sowie der Diffusionsgeschwindigkeit $D_{i,j}$ ab und es gilt für den mittleren Stoffübergangskoeffizienten:

$$\beta_f = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{D_{i,j}}{\tau}} \tag{2.18}$$

Detaillierte Simulationen von Haroun et al. [2010] bezüglich des flüssigkeitsseitigen Stofftransports in einen Rieselfilm mittels einer *Volume of Fluid* Methode konkretisieren die Anwendbarkeit von 3. und 4. Hiernach beschreibt die Penetrationstheorie den rein physikalischen Stofftransport hinreichend genau. Falls chemische Reaktionen erster Ordnung im Film auftreten, so wird die Oberflächenerneuerungstheorie empfohlen.
Die von Brauer [1979] definierten Klassen der Turbulenz in mehrphasigen Systemen verwenden das Grundkonzept vorhandener Schwankungsgeschwindigkeiten um die zeitlich gemittelte Geschwindigkeit. Schließlich wird der Turbulenzgrad eingeführt, um die Intensität der Turbulenz zu charakterisieren. Zwei für diese Arbeit relevanten Klassen sind die Grenzflächen- sowie die Gitterturbulenz. Bei der Grenzflächenturbulenz verursachen starke Konzentrationsgradienten in der Flüssigkeit einen großen Gradienten der Oberflächenspannung, so dass so genannte Marangoni-Konvektion auftreten kann. Die Gitterturbulenz bezieht sich auf das Durchströmen

unbeweglicher Phasengrenzflächen, wobei eine Strömungsablösung als Turbulenzursache angesehen werden kann.
Für turbulente Filmströmungen verwendet ein neuerer Ansatz als hydrodynamischen Schlüsselparameter das so genannte Hanratty-β_H, was als Gradient der vertikalen Geschwindigkeitsfluktuationen an der Phasengrenzfläche definiert wird [Xu et al., 2008]. In jenen Untersuchungen werden aus Stofftransportmessungen an gepulsten Rieselfilmströmungen mittlere Stoffübergangskoeffizienten k_L ermittelt und aus Simulationen die zugehörigen β_H-Werte berechnet. Hieraus folgt der Zusammenhang $k_L\ (D_{i,j},\beta_H)^{-0,5} = a$, wobei a eine Konstante der Größenordnung 1 ist.

Alle hier aufgeführten Modellvorstellungen haben als wesentlichen Nutzen die Vermittlung von Prozessverständnis, so dass zum Beispiel Auswirkungen auf den Stofftransport bei Änderung von Prozessparametern abgeschätzt werden können. Den größten praktischen Nutzen zur Vorausberechnung besitzt die aus der Penetrationstheorie abgeleitete Gleichung (2.18). Die so ermittelten Werte werden mit eigenen experimentellen Resultaten in Abschnitt 5.1.1 verglichen und diskutiert. Insbesondere die Berechnung der Kontaktzeit stellt eine Herausforderung dar, wobei sie meist als Quotient aus Kontaktweg und Geschwindigkeit bestimmt wird, zum Beispiel $\tau = L/\bar{w}_f$.

Stoffübergangskorrelationen Die im vorigen Abschnitt beschriebenen Methoden zur Vorausberechnung von Stoffübergangskoeffizienten geben häufig nur eine erste Abschätzung oder besitzen lediglich dann Gültigkeit, wenn sehr einfache Systeme betrachtet werden. Aus diesem Grund sind in der Literatur für verschiedene technische Anwendungsfälle spezielle Korrelationen abgeleitet worden. Diese basieren auf rein experimentellen Daten (empirische Korrelation) oder auf theoretischer Grundlage mit Parameteranpassung aus Experimenten (halb-empirische Korrelation). Für die Rieselfilmströmung auf der Innen- oder Außenwand eines Rohrs (*wetted-wall column*) sowie auf senkrechten oder geneigten Platten ist eine große Vielfalt an Sh-Korrelationen verfügbar. Die Rohrgeometrie bietet den Vorteil, dass keine Randeffekte wie bei einer Platte auftreten. Allerdings ist eine gleichmäßige Flüssigkeitsaufgabe lediglich mit viel Aufwand zu realisieren. Das Problem der Randeffekte bei der Plattengeometrie kann schließlich mittels genügend großer Breite bis zur Vernachlässigbarkeit reduziert werden. Die allgemeine Form $Sh = a\ Re^b\ Sc^c$ wird hierbei in der Regel umgeformt zu:

$$Sh = a\ Re^b\ Sc^{0,5} \tag{2.19}$$

Die Parameter a und b sind jeweils für ein Strömungsregime konstant (c ergibt sich aus der Anpassung experimenteller Daten). Aus dem Übersichtartikel von Hobler und Kedzierski [1967] geht hervor, dass keine allgemein gültige Korrelationen für den Stofftransport bei Filmströmungen ableitbar ist. Dennoch soll wenigstens am Beispiel von Wasser gezeigt werden, welche Größenordnungen zu erwarten sind. Hierzu werden die experimentellen Ergebnisse verschiedener Autoren, die von Brauer [1971] zunächst mit $Sh/Sc^{0,4} = a\ Re^b$ angepasst wurden, in der Form (2.19) nach Kraume [2004] in Tab.2.2 angegeben.
An dieser Stelle sei ergänzend auf die Arbeit von Bakopoulos [1980] verwiesen, der den flüssigkeitsseitigen Stofftransport bei Filmströmungen in *Wetted-Wall*-Rohren systematisch untersucht

Tabelle 2.2.: Parameter der *Sh*-Korrelation (2.19) für unterschiedliche *Re* Zahlen bei welliger Wasserfilmströmung nach Kraume [2004].

Re-Bereich	*a*	*b*
12-70	0,0224	0,8
70-400	0,08	0,5
> 400	$8{,}9 \cdot 10^{-4}$	1,25

hat. Hierin werden u.a. der Einfluss der Flüssigkeitszugabe sowie das Verhältnis aus Rohrdurchmesser und Länge analysiert. Schließlich können empirische Stoffübergangskorrelationen in der Form (2.19) mit zusätzlicher Berücksichtigung des Durchmesser-Längenverhältnisses angegeben werden.

Einfluss von Filmwellen Wie mehrfach experimentell nachgewiesen werden konnte, übersteigt der Stofftransport eines welligen Films den eines glatten Films um ca. 200%, wobei der Anstieg der Phasengrenzfläche durch Filmwellen nicht höher als 10% liegt [Banerjee et al., 1967]. Da ein natürlicher Rieselfilm mit $Re > 5$ nach einigen Zentimetern stets Wellen ausbildet, resultiert der angegebene Unterschied aus dem Vergleich von theoretischen Werten für den glatten Film und experimentellen Ergebnissen am welligen Film. So ergibt sich nach Brauer [1971] in Abhängigkeit von *Re* ein Faktor von 2-3, was in Abb.2.4 qualitativ dargestellt ist. Die unterschiedlichen Stei-

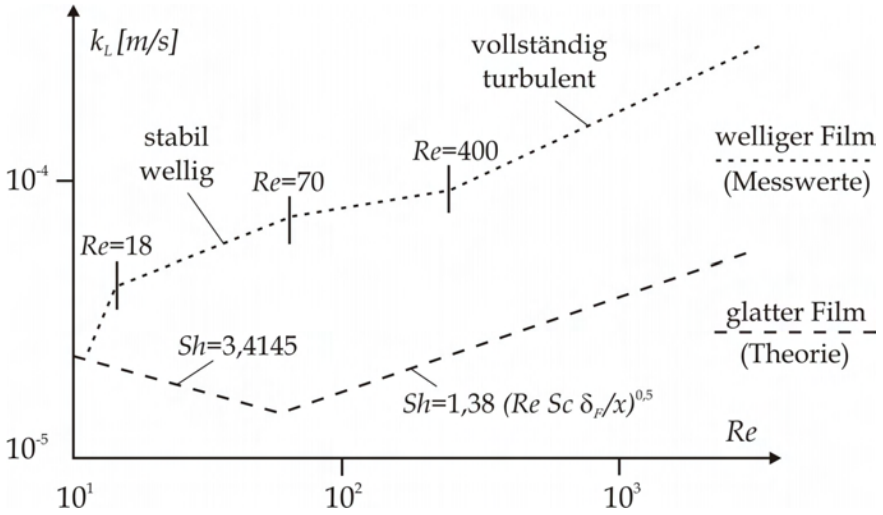

Abbildung 2.4.: Qualitative Abhängigkeit des Stoffübergangskoeffizienten bei glattem und welligem Film nach Brauer [1971].

gungen in Abhängigkeit vom Strömungsregime sind in Abb.2.4 analog zu Tab.2.2 gut erkennbar. Die Kurven für den glatten und den welligen Film trennen sich bei einer kritischen *Re*-Zahl, ab der sich Wellen ausbilden können; diese wird nach Brauer [1956] wie folgt angegeben:

$$Re = 0{,}306\ Fi^{1/10} \tag{2.20}$$

Wie bereits in Abschnitt 2.1.1 angedeutet, besitzen Filmwellen einen wesentlichen Einfluss auf den Stoff- und Wärmeaustausch. Allerdings ist es mit klassischen Methoden (z.B. Stoffübergangstheorien) nicht möglich die Welligkeit mathematisch exakt zu beschreiben und somit die resultierenden Auswirkungen auf den Stofftransport vorauszuberechnen. Aus diesem Grund sowie einer Vielzahl weiterer Anwendungen von Filmströmungen sind diverse Forschungsarbeiten zur mathematisch-physikalischen Beschreibung von Filmwellen durchgeführt worden, siehe Alekseenko et al. [1994] sowie Chang und Demekhin [2002]. Im Folgenden werden ausgewählte Arbeiten zum Stand des Wissens diskutiert.

Roberts und Chang [2000] entwickelten ein Modell zur Beschreibung des Stofftransports bei Wasserfilmströmungen mit $10 < Re < 300$ unter Berücksichtigung von Filmwellen. Für unterschiedliche Lauflängen ($L < 1\ m$ und $L > 1\ m$) korreliert das entwickelte Modell sehr gut mit diversen Messdaten und es folgt, dass bei $Re \approx 40$ anscheinend ein optimaler Volumenstrom (größte Stofftransportsteigerung) vorliegt.

Park und Nosoko [2003] beobachten bei $Re \approx 40$ für die Wasserströmung auf senkrechter Platte den bereits angesprochenen Wechsel der Wellendynamik im Detail. Für $Re < 40$ treten 2d-Wellen auf und für $Re > 40$ bilden sich Wellen in Hufeisenform aus, wobei vor einem Wellenberg Kapillarwellen sichtbar werden, vergleiche Abb.2.5 und Abb.2.6. Weiterhin werden die von Ba-

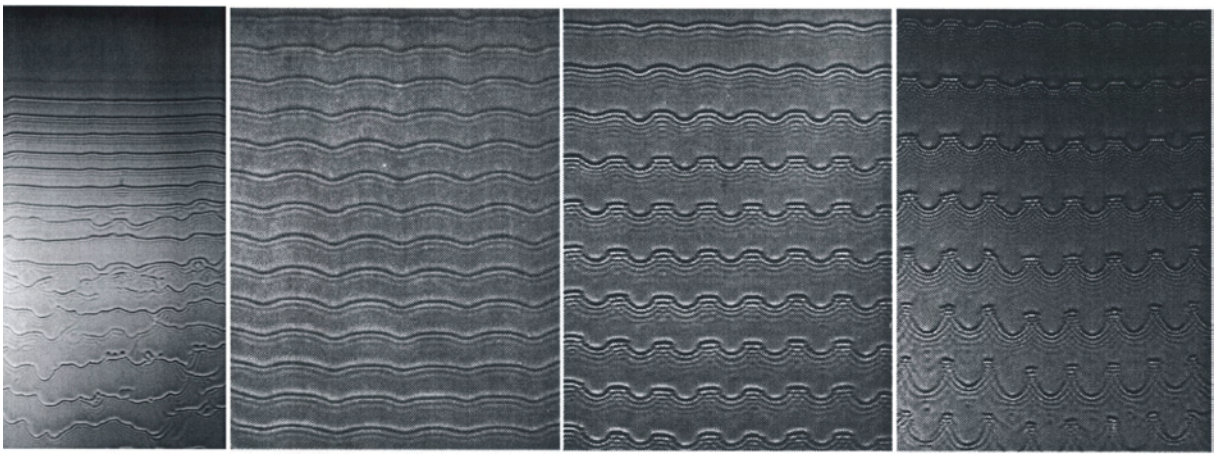

Abbildung 2.5.: Von links nach rechts: Natürlicher Rieselfilm mit $Re = 32$ ($x = 0$-$36\ cm$) sowie Ausschnitte pulsierter Filmströmung mit $Re = 20{,}9$ und $\omega = 19\ Hz$; $Re = 40{,}8$ und $\omega = 19{,}1\ Hz$; $Re = 59{,}3$ und $\omega = 17\ Hz$ aus Park und Nosoko [2003] (jeweils Wasserströmung mit $\alpha = 0°$).

kopoulos [1980] aufgestellten Korrelationen für $20 < Re < 1000$ mittels Experimenten sehr gut bestätigt. Lediglich für den Strömungsübergang bei $Re \approx 40$ liegen die experimentellen Daten oberhalb der verwendeten Korrelation. Des Weiteren werden Schattenbilder von natürlichen Fallfilmen mit Strömungsformen bei definiert aufgeprägter Frequenz verglichen. Es fällt auf, dass bei vorgegebener Frequenz die Wellenformationen regelmäßiger, also weniger zufällig erscheinen. Allerdings ist die Wellendynamik bezüglich der auftretenden Einzelwellen prinzipiell identisch.

Der Einfluss der Wellenfrequenz auf den Stofftransport wurde hier jedoch nicht untersucht.

Oliver und Atherinos [1968] haben experimentell ermittelt, dass der Unterschied beim Stofftransport bei einer äußerlich erzwungenen Wellenfrequenz im Vergleich zu einem natürlich welligen Film sehr gering ist. Sie kommen zu dem Schluss, dass natürliche Rollwellen gegenüber periodisch erzwungenen Sinuswellen vorteilhaft bezüglich des Stofftransports sind.

Rastaturin et al. [2006] studieren den Einfluss der Wellenfrequenz auf den Stofftransport für die Wasserströmung mittels Simulation. Dabei kommen sie zu dem erstaunlichen Resultat, dass für $Re = 18$ in Abhängigkeit der Frequenz drei $Sh/Sc^{0,5}$-Maxima auftreten. Für $Re = 40$ treten noch zwei derartige Maxima auf, wobei das höhere Maximum für eine große Welle mit Kapillarwellen im Nachlauf bei $\omega \approx 25\ Hz$ und das kleinere Maximum bei etwa $\omega = 42\ Hz$ liegt. Hiernach ist es möglich mit entsprechendem numerischen Aufwand den Welleneffekt auf den Stofftransport zu charakterisieren. Allerdings ist nicht bekannt, ob diese Simulationen experimentell bestätigt werden konnten. Weiterhin ist keine technische Anwendung bekannt, bei der zum Beispiel ein Stoffaustauschapparat gezielt mit gepulsten Flüssigkeitsströmen versehen wurde.

Eine sehr gute Übersicht der unterschiedlichen Wellenregime und den experimentell ermittelten Einfluss auf den Stofftransport (CO_2-Absorption in Wasser) gibt die Abb.2.6.
In Abb.2.6 findet man die in Abschnitt 2.1.1 beschriebenen Wellenregime wieder. Aufgrund von Einlaufeffekten liegen die Sh-Zahlen für kurze Lauflängen (25 cm) höher als für lange Strecken (60 cm). Die in Tab.2.2 angegebene Korrelation befindet sich in etwa zwischen den Kurven für 25 cm und 60 cm und kann als Abschätzung für Wasserströmungen herangezogen werden.

Um den Mechanismus aufzuklären, weshalb Filmwellen den Stofftransport steigern, haben Schagen und Modigell [2005] lokale Konzentrationsverteilungen mittels optischen Messverfahren bei der O_2-Absorption in einer Wasserlösung experimentell untersucht ($Re = 177$, $\omega = 1\ Hz$, $\alpha = 86°$). Als ein Ergebnis kann man festhalten, dass der lokale Stoffübergangskoeffizient abhängig von den drei Positionen in einer Einzelwelle (Wellenberg, Kapillarwellenregion und Substrat siehe Abb.2.1) stark variiert. So zeigt der Wellenberg die höchsten Absorptionsgeschwindigkeiten, was vermutlich darauf zurückzuführen ist, dass dort die lokal höchsten Geschwindigkeiten vorliegen, vergleiche Adomeit et al. [2000]. Weiterhin ist für alle drei Regionen der Einzelwelle der Stofftransport in etwa der halben lokalen Filmdicke am effektivsten. Diese Beobachtung kann man im Sinne der Oberflächenerneuerungstheorie damit erklären, dass die Fluidelemente nahe der Phasengrenzfläche mit denen in der Kernphase interagieren. Der daraus resultierende hohe Konzentrationsgradient lässt die effektiven Transportgeschwindigkeiten maximal werden.

Einfluss des Gasgegenstroms In Gas-Flüssigkontaktoren zur Trennung von Fluidgemischen (zum Beispiel in Packungskolonnen) wird in der Praxis in Abhängigkeit des Anwendungsfalls der flüssigen Film- oder Rinnsalströmung ein mehr oder weniger starker Gasstrom im Gegenstrom

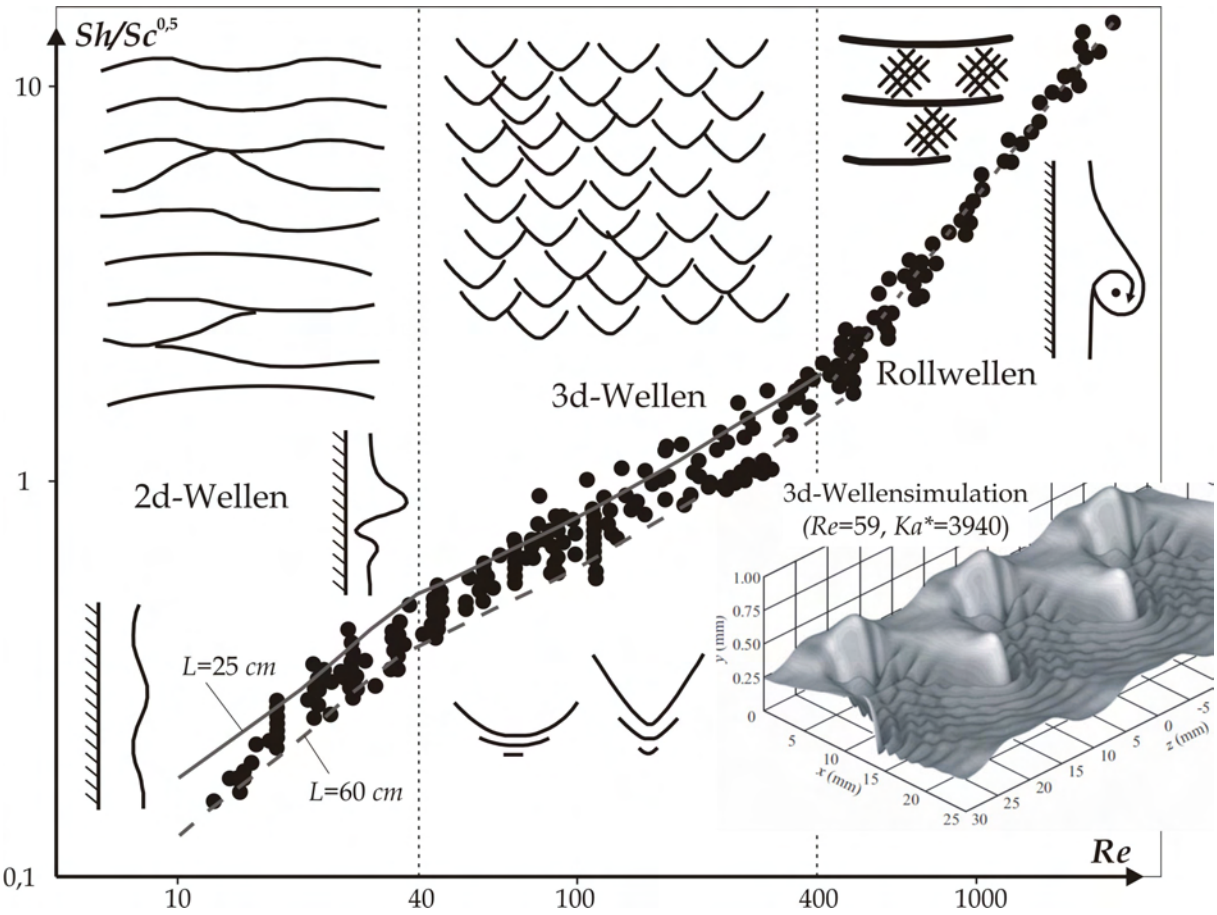

Abbildung 2.6.: Strömungskarte für die Stofftransport- und Wellencharakteristika der Wasserströmung auf glatter, senkrechter Wand bei 15°C nach Demekhin et al. [2007] sowie Darstellung einer 3d-Wellenfront ($Re = 59$, $Ka^* = 3940$) von Dietze [2010].

geführt. Es wird im Allgemeinen angenommen, dass mit steigendem Gasgegenstrom aufgrund zunehmender Flüssigkeitsanstauung der Stofftransport intensiviert wird. Dies besitzt Gültigkeit, solange keine Flüssigkeitstropfen aus dem Film gerissen und mit dem Gasstrom nach oben geführt wird (*Entrainment*), da die damit verbundene Rückvermischung das treibende Konzentrationsgefälle absenken würde. Die Flüssigkeitsanstauung erfolgt durch die auftretende Reibung zwischen Gas- und Flüssigphase. Die resultierende Reduktion der Filmgeschwindigkeit beschränkt sich jedoch nur auf den grenzflächennahen Bereich, wie aus experimentellen Untersuchungen von Yu et al. [2006] sowie Paschke [2012] hervorgeht. Eine deutlich detailliertere, jedoch rein theoretische Untersuchung des Gasgegenstromeffekts auf die Fluid- beziehungsweise Wellendynamik wird von Trifonov [2010] beschrieben. Allerdings wird der Einfluss auf den Stofftransport nicht explizit bewertet.

Der Einfluss des Gegenstroms am Rieselfilm ist von Oliver und Atherinos [1968] mittels CO_2-Absorption in Wasser untersucht worden ($\bar{w}_g \approx 165;\ 395;\ 590\ cm/s$). Für den gesamten Bereich $30 < Re < 300$ ist der Stofftransport mit jeweils höherem Gegenstrom größer. Im Vergleich zu

den theoretischen Werten des wellenfreien Films ist der Gegenstromeinfluss relativ gering.

Da der Fokus der vorliegenden Arbeit auf den Einfluss von Mikrostrukturen auf den Stofftransport liegt, soll unter anderem geprüft werden ob der Gasgegenstromeinfluss größer oder kleiner als der Einfluss der Mikrostrukturen ist. Es werden später Gasbelastungen gewählt, die unterhalb des Stau- oder Flutpunkts liegen.

2.2. Filmströmung auf Mikrostrukturen

Strukturierte Hochleistungspackungen für Packungskolonnen besitzen neben Makrostrukturen in vielen Fällen zusätzlich Mikrostrukturen. Während den Makrostrukturen ein großer Einfluss auf die Gasstromführung und damit dem Kolonnendruckverlust sowie der Flüssigkeitsverteilung zugeschrieben wird [Alekseenko et al., 2008; Olujic et al., 2009], so haben Mikrostrukturen einen wesentlichen Einfluss auf die Benetzung sowie Flüssigkeitsdurchmischung [Plüss, 1991; Schultes, 2008]. Es ist leicht nachvollziehbar, dass die größten Effekte von Mikrostrukturen zu erwarten sind, wenn die relevanten Skalen (Texturtopographie und Filmdicken) in derselben Größenordnung liegen. In dieser Situation können die Gleichungen aus Abschnitt 2.1 nur noch als grobe Näherung angewendet werden; die resultierenden Strömungsverhältnisse besitzen dann in Abhängigkeit der Systemparameter unterschiedlich komplexe Eigenschaften, welche es in dieser Arbeit näher zu untersuchen gilt.
Hierzu wird zunächst ein Überblick über die Arten und Anwendungsfelder von mikrostrukturierten Oberflächen in 2.2.1 gegeben. In 2.2.2 erfolgt ein detaillierter Literaturüberblick experimenteller und theoretischer Studien bezüglich der Fluiddynamik und dem Stofftransport bei Filmströmungen auf Mikrostrukturen.

2.2.1. Einleitung

Begriffsklärung Mit Mikrostrukturen (Texturen) sind in dieser Arbeit diejenigen Oberflächentopographien gemeint, deren geometrischen Abmaße in derselben Größenordnung liegen wie die Dicken von Rieselfilmströmungen. Für die meisten technischen Anwendungen liegen Filmdicken von 0,1 $mm < \delta_F < 1\ mm$ und geometrische Maße der Mikrostrukturen zwischen 10-1000 μm vor.
In der Mikrostruktur- oder Mikrosystemtechnik sind die geometrischen Abmaße von 0,1-1000 μm vorzufinden, so dass sowohl Mikro- als auch Nanostrukturen den betrachteten Prozess maßgeblich beeinflussen, siehe hierzu Koch et al. [2007] sowie die Übersichtartikel zur Benetzung komplexer Oberflächen von Herminghaus et al. [2008] und Quéré [2008].
Die Aufprägung von Nano- und Mikrostrukturen im Sinne der Mikrosystemtechnik nach Koch et al. [2007] ist zurzeit für eine Anwendung von strukturierten Packungen, aufgrund der hohen Herstellungskosten, nicht realistisch bzw. nur für Nischenlösungen relevant. Aus diesem Grund wird der Fokus folgender Betrachtungen auf Mikrostrukturen mit der Größenordnung 10-1000 μm beschränkt werden. Diese Größen beziehen sich zum Beispiel auf die Periode oder Amplitude der Oberflächenstrukturen, siehe Abb.2.7.

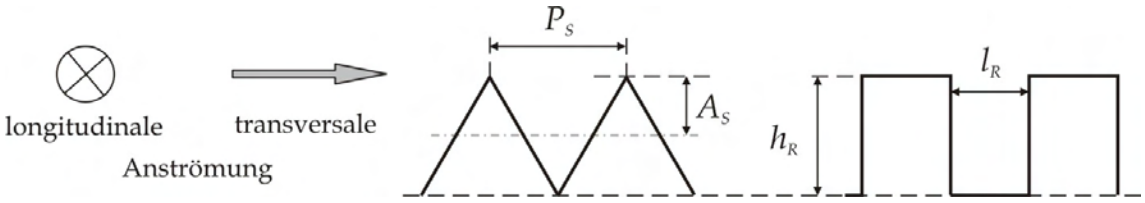

Abbildung 2.7.: Schemata zweidimensionaler Strukturen (Sinus-/ Wellentyp und Rippen) inklusive charakteristischer Abmaße. Es wird zwischen den Anströmrichtungen parallel zu den Kanälen (longitudinal) sowie senkrecht dazu (transversal) unterschieden.

Beispiele natürlich strukturierter Oberflächen Im Sinne der Bionik hat die Verknüpfung von natürlichem und technischem Design zu zahlreichen Innovationen geführt. Da in der Natur im Prinzip alle Pflanzen und Lebewesen über unterschiedlich strukturierte Oberflächen verfügen soll an dieser Stelle auf zwei spezielle Beispiele kurz eingegangen werden.

Ein häufig genanntes Beispiel aus der Natur ist der Lotus-Effekt, bei dem eine hydrophobe Doppelstruktur aus mikro- und nanoskopischen Gebilden für das Abperlen von Wasser und damit das Entfernen von Schmutzpartikeln (Selbstreinigung) sorgt [Herminghaus et al., 2008]. In Stoffaustauschapparaten wird allerdings der gegenteilige Prozess einer idealen Benetzung zur Erlangung einer möglichst großen Phasengrenzfläche angestrebt.

Als weiteres Beispiel aus der Natur soll der Haihaut-Effekt genannt werden. Dieser Effekt führt zu einer Verringerung des Reibungswiderstandes für das überströmende Fluid, was für Haihautreplika maximal 10% ausmachen kann [Bechert et al., 2000; Koeltzsch et al., 2002]. Offenbar besitzt in diesen Fällen die betrachtete Flüssigkeit deutlich höhere Schichtdicken als die Struktur. Scholle und Aksel [2006] können jedoch auch für eine schleichende Filmströmung zeigen, dass eine wellige Bodentopographie (nach dem Vorbild der Haifischhaut) eine Wirbelbildung im Film induziert, wodurch der Reibungswiderstand vermindert wird. Der Einfluss auf die Geschwindigkeit der freien Phasengrenzfläche ist allerdings verglichen mit der mittleren Filmgeschwindigkeit verschwindend klein. Immerhin kann in einer Parameterstudie die mittlere Transportgeschwindigkeit im Optimalfall um 1% gesteigert werden, wobei offen bleibt, ob sich diese Zahl durch Optimierung des Strukturdesigns weiter steigern lässt. Ein Effekt auf die Gasabsorption wäre in diesem Beispiel eher gering, da im Wesentlichen Bereiche nahe der festen Oberfläche beeinflusst werden.

Die genannten Beispiele finden bereits erfolgreiche technische Anwendungen (zum Beispiel der Lotus-Effekt bei Beschichtungen und der Haihaut-Effekt bei Schwimmanzügen), allerdings bleibt zu prüfen in wie fern natürliches Oberflächendesign bei der thermischen Trenntechnik von Nutzen sein kann.

Übersicht der Kategorien technischer Mikrostrukturen Strukturierte Oberflächen lassen sich grundsätzlich in zwei- und dreidimensionale Typen unterteilen. Beide Typen sind in der Rea-

lität dreidimensionale Gebilde, allerdings lassen sich die 2d-Typen mathematisch bereits mit nur zwei Koordinaten beschreiben, vgl. Abb.2.7. Ein weiteres Unterscheidungsmerkmal ist die Tatsache, dass die Flüssigkeit bei 2d-Typen vorzugsweise in eine Richtung strömt (unidirektionaler Typ) und bei 3d-Typen eine zweite Strömungsrichtung hervorgerufen wird (bidirektionaler Typ) [Kohrt et al., 2010]. Diese Strukturen induzieren Geschwindigkeitskomponenten entlang der y-Achse, so dass die Strömung auf 2d-Typen durch ein zweidimensionales und bei 3d-Typen durch ein dreidimensionales Geschwindigkeitsfeld vollständig beschrieben wird.
Innerhalb beider Gruppen kann man anhand eines Literaturüberblicks eine weitere Unterteilung vornehmen:

1. **2d-Typen:** Periodisch angeordnete Rippen oder Wellen
   - Transversale Anströmung [Davies und Warner, 1969; Ataki, 2006; Trifonov, 2007; Wierschem et al., 2010; Kohrt et al., 2011; Paschke, 2012]
   - Longitudinale Anströmung [Gambaryan-Roismann und Stephan, 2003; Zanfir et al., 2005; Lozano-Aviles, 2007]
   - Mischformen, z.B. Drallrohre oder Rohre mit Spiral- oder Gewindeformen [Shen et al., 1989; Lehnberger, 2002]
2. **3d-Typen:** Periodisch angeordnete Einzelgebilde beziehungsweise Wellen im Versatz
   - Fraktale Geometrien [Pozrikidis, 1993]
   - Pyramiden, z.B. *Sulzer-Textur* [Plüss, 1991; Kohrt et al., 2011]
   - Tetraeder, z.B. *Montz-Textur* [Paschke, 2012]
   - Halbkugeln [Blyth und Pozrikidis, 2006; Luo und Pozrikidis, 2007; Wang und Rothmayer, 2009; Baxter et al., 2010]
   - Zylinder [Baxter et al., 2010; Dressaire et al., 2010]

Die hier aufgelisteten 2d-Formen mit longitudinaler Anströmung sowie die Mischformen werden hauptsächlich für die Profilierung von Rohren eingesetzt, um den gekoppelten Wärme- und Stofftransport zu intensivieren. Diese Geometrien sind demnach zum Beispiel bei Rohrbündelwärmeübertragern, bei der Fallfilmverdampfung, Kondensation oder Absorption zu finden. Die relevanten Transportphänomene erstrecken sich hierbei in der Regel auf 3-4 Phasen (Fluid im Rohrinnern, Rohrmaterial, flüssige Phase an der Rohraußenseite und die darüber liegende Gasphase). Aufgrund der umfangreichen technischen Bedeutung sind zahlreiche Untersuchungen zur Designoptimierung vorgenommen worden, siehe Lozano-Aviles [2007] und Lehnberger [2002]. Allerdings können die daraus resultierenden Erkenntnisse nur bedingt auf die Problemstellung in strukturierten Packungen übertragen werden. Das mikrostrukturierte Packungsblech hat die Aufgabe den Flüssigkeitsfilm optimal zu verteilen und zu vermischen, um schließlich den Stoffaustausch zwischen Gas- und Flüssigphase zu intensivieren. Der Wärmetransport durch ein Packungsblech ist aufgrund der geringen Temperaturunterschiede zu vernachlässigen. In praktischen Packungsanwendungen sind vornehmlich 2d-Typen mit überwiegend transversaler Anströmung (z.B. *Rombopak^{TM} 9M* von Sulzer Chemtech und *FLEXIPAK®* von Koch-Glitsch)

sowie 3d-Typen mit Pyramidenform (z.B. *Mellapak*^{TM} *250.X/250.Y* von Sulzer Chemtech und *INTALOX*® von Koch-Glitsch) und deren Unterformen, wie zum Beispiel Tetraeder (*B1-300* von Montz) vorzufinden. Es sollte beachtet werden, dass die genannten Formen fertigungsbedingt nicht in mathematisch idealer Geometrie hergestellt werden können; insbesondere starke Steigungsänderungen sowie scharfe Kanten stellen mit heutigen Herstellungsmethoden eine Herausforderung dar.

Die detaillierte Literaturübersicht im folgenden Abschnitt bezieht sich schließlich auf diejenigen Untersuchungen von Oberflächenstrukturen, die hilfreiche Informationen zum Verständnis der relevanten Transportmechanismen in Strukturpackungen liefern und erste Hinweise auf ein geeignetes Mikrostrukturdesign geben.

2.2.2. Stofftransport und Fluiddynamik

In diesem Abschnitt wird der Stand des Wissens bezüglich experimenteller und theoretischer Untersuchungen von Filmströmungen auf Mikrostrukturen im Zusammenhang mit dem Stofftransport und der Fluiddynamik dargelegt. Zur besseren Übersicht dienen die Tabellen 2.3 und 2.4, in der einige bedeutende Publikationen aufgelistet und charakterisiert werden.
In Tab.2.3 werden zwischen den Arten und Geometrien der untersuchten Strukturen unterschieden sowie ausgewiesen, ob es sich um eine Modellstruktur (Mod.) oder um reale Packungsmaterialien (Pack.) handelt. Weiterhin wird zwischen theoretischen und experimentellen Beiträgen zum Stofftransport oder zur Fluiddynamik unterschieden. Grundsätzlich fällt auf, dass überwiegend 2 Typen untersucht wurden und sich aktuellere Arbeiten vorwiegend der Fluiddynamik widmen.
In Tab.2.4 werden zusätzlich Informationen über die geometrischen Abmaße der eingesetzten Topographien sowie über die verwendeten Stoffsysteme und Re-Bereiche angegeben.
Im Folgenden werden die in Tab.2.3 und Tab.2.4 aufgelisteten sowie weitere Veröffentlichungen in Abhängigkeit ihrer Kategorie diskutiert.

Stofftransport bei 2d-Topographien Im Gegensatz zu glatten Oberflächen sind nach Tab.2.3 nur sehr wenige Arbeiten veröffentlicht, die den Stofftransport bei der Filmströmung auf Mikrostrukturen untersuchen. Zudem beziehen sich die Messungen von Tatsuo et al. [1985] auf den Stofftransport durch die Kanalwände, ohne dass eine freie Flüssigkeitsoberfläche vorliegt. Dennoch wird an diesem Beispiel deutlich, wie Sinus- und Bogenstrukturen mit Amplituden zwischen 1,5 $mm < A_S <$ 2,5 mm in Abhängigkeit von Re Wirbel beziehungsweise Rezirkulationen erzeugen können. Es kann gezeigt werden, dass der Übergang zur turbulenten Strömung bereits bei kleineren Re Zahlen erfolgt, wenn Bogenstrukturen, also abrupte Veränderungen der Topographie an den Strukturspitzen vorliegen.

Negny et al. [2003] können für eine wellenförmige Makrostruktur ($P_S = 25\ mm$, $A_S = 5\ mm$) mittels Filmdickenmessungen zeigen, dass sich ab einer gewissen Re Zahl eine Filmwölbung vor einer Strukturspitze bilden kann. Strömungssimulationen ergeben das gleiche Phänomen, wobei

Tabelle 2.3.: Ausgewählte Publikationen zur Filmströmung auf 2d- und 3d-Mikrostrukturen sowie Spezifikationen (jeweils chronologisch nach Arbeitsgruppen geordnet).

Autoren	Klassifizierung der Strukturen				Stofftransp.		Fluiddyn.	
	Art	Geometrie	Mod.	Pack.	exp.	sim.	exp.	sim.
Davies und Warner [1969]	2d	Rippen	x		x		x	
Davies und Lozano [1979]			x				x	
Tatsuo et al. [1985]	2d	gewellter	x				x	
Tatsuo et al. [1990]		Kanal	x		x		x	
Zhao und Cerro [1992]	2d	Wellen	x	x			x	
Shetty und Cerro [1993]			x				x	x
Shetty und Cerro [1998]			x				x	x
Bontozoglou [2000]	2d	Wellen	x					x
Argyriadi et al. [2006]		Rippen	x				x	
Wierschem et al. [2003]	2d	Wellen	x				x	x
Scholle et al. [2008]			x				x	x
Wierschem et al. [2008]			x				x	x
Heining und Aksel [2010]			x					x
Wierschem et al. [2010]			x				x	x
Trifonov [2004]	2d	Wellen		x				x
Trifonov [2007]			x					x
Valluri et al. [2005]	2d	Doppelsinus		x				x
Ataki et al. [2006]	2d	Wellen		x			x	x
Ataki [2006]				x			x	x
Sisoev et al. [2010]	2d	flexibel	x					x
Pak und Hu [2011]	2d	Rippen	x					x
Paschke [2012]	2d	Wellen		x			x	
Diese Arbeit	2d	Wellen		x	x		x	
Pozrikidis [1988]	3d	komplex	x					x
Pozrikidis [1993]			x					x
Blyth und Pozrikidis [2006]		1 Partikel	x					x
Luo und Pozrikidis [2006]		Wellen-	x					x
Luo und Pozrikidis [2007]		versatz	x					x
Baxter et al. [2009]	3d	Zylinder/	x					x
Baxter et al. [2010]		Halbkugeln	x					x
Wang und Rothmayer [2009]	3d	Halbkugeln	x					x
Dressaire et al. [2010]	3d	Zylinder	x				x	x
Paschke [2012]	3d	Tetraeder		x			x	
Diese Arbeit	3d	Pyramiden		x	x		x	

Tabelle 2.4.: Details ausgewählter Arbeiten bezüglich Filmströmungen auf strukturierten Oberflächen.

Autoren	Geometrie			Fluiddynamik		
	α [°]	A_S [μm]	P_S [mm]	Flüssigkeit	η [$mPa\ s$]	Re [−]
Davies und Warner [1969]	65,5	950	9,47-54,5	H_2O	1,0	200-1600
Zhao und Cerro [1992]	0,0	175-1600	1,57-6,35	H_2O-Glyz./ Glyzerin/ Silikonöl	6,8-938	0,0006-9,1
Negny et al. [2003]	0	5000	25	H_2O-Glyz.	1,0-11	12,5-75
Trifonov [2004]	30	95	1,55	N_2 flüssig	0,16	5/ 45
Valluri et al. [2005]	0	0-1200	variabel	H_2O/ H_2O-Glyz.	1,0 5,5	0,13-23
Argyriadi et al. [2006]	75-88,7	100/ 200/ 400	12	H_2O	1,0	10-450
Raynal et al. [2009]	0-21,5	300	2,8	H_2O	1,0	10-200
Wierschem et al. [2010]	76-85	1000	10	Silikonöl	10,7	4-60
Paschke [2012]	30	≈75/ 275	1,6/ 2,1	H_2O-Glyz.	3,2-5,1	32/ 64
Diese Arbeit	30	≈60-1000	≈1,5-8	Silikonöl	0,8-9,0	3-100

es in der Wölbung zu einem rezirkulierenden Wirbel kommt. Des Weiteren wurde dieser Effekt auf den Stofftransport hin untersucht. Als Ergebnis der Simulationsrechnungen erhält man, dass für $Re = 12{,}7$ die Stofftransportwerte mit denen des glatten Referenzfalls in etwa übereinstimmen und bis $Re = 75$ stetig zunehmen und dort bis zu 20% Steigerung durch die verwendete Makrostruktur erreicht werden kann.
Analog zu Negny et al. [2003] verwenden Shen et al. [1989] einen von außen überströmten Zylinder wobei anstelle einer gewellten Form eine Oberfläche mit Gewindeform zum Einsatz kommt. Gegenüber eines Referenzzylinders mit gleich großer, aber glatter Oberfläche kann somit der Stofftransport um den Faktor 3-4 gesteigert werden. Als Ursache wird angenommen, dass die rezirkulierende Sekundärströmung anstelle einer Wellenunterdrückung eine Zunahme der Welligkeit herbeiführt.

Davies und Warner [1969] haben die CO_2-Absorption in Wasser experimentell an einer glatten und unterschiedlich gerippten Platten untersucht. Die Rippenhöhe ($h_R = 2\ A_S$) wurde mit 1,9 mm und deren Länge mit 3,2 mm konstant gehalten, während für $200 < Re < 1600$ die Rippenabstände l_R variiert wurden. Für fünf unterschiedliche Geometrien ergeben sich für $400 < Re < 500$ und $\alpha = 65{,}5°$ drei Strömungscharakteristika, siehe Abb.2.8.
Die drei Strömungsregime in Abb.2.8 werden wie folgt charakterisiert:

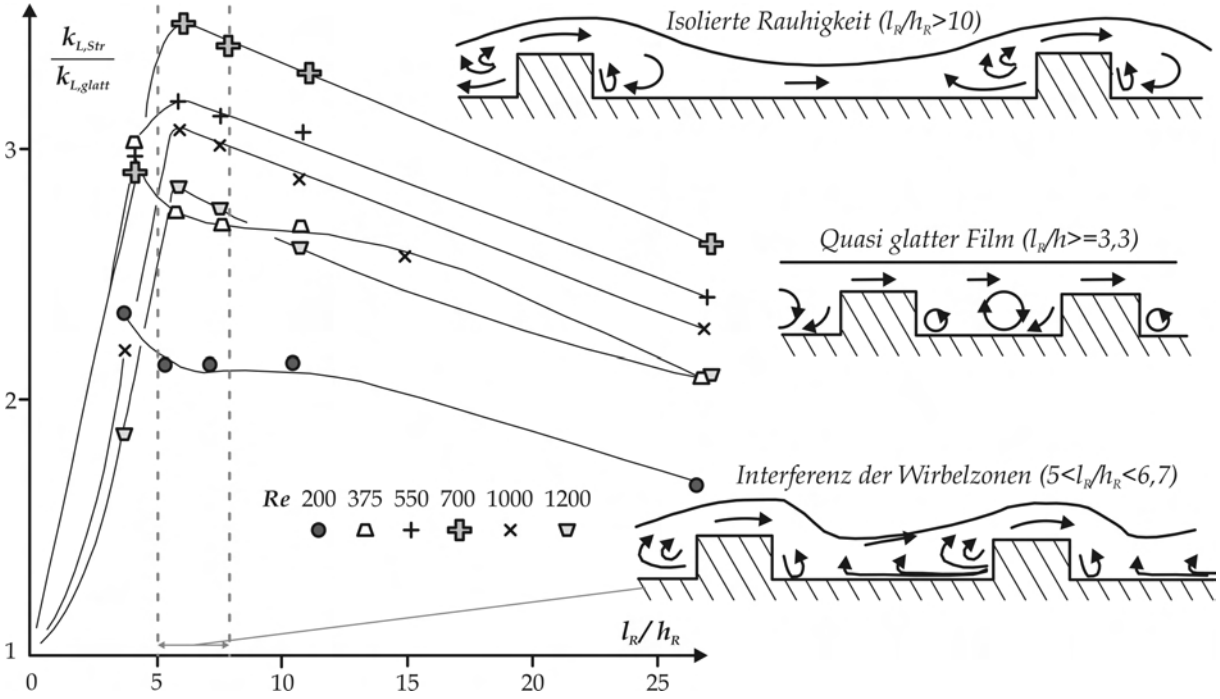

Abbildung 2.8.: Stofftransportsteigerung bezüglich glatter Platte für unterschiedliche Rippenabstände sowie *Re*-Zahlen und zugehörige Strömungskizzen nach Davies und Warner [1969].

1. *Isolierte Rauhigkeit* tritt auf für $l_R/h_R > 10$. Hier ist der Abstand zwischen den Ripen so groß, dass die Wirbelbildung im Nachlauf einer Rippe (*Ablösungswirbel/ separation vortex*) und die vor einer Rippe (*Erhebungswirbel/ elavation vortex*) von einander getrennt sind.

2. *Interferenz der Wirbelzonen* tritt auf für $5 < l_R/h_R < 6{,}7$. Hier sind die Rippenabstände in sofern ideal, dass beide Wirbeltypen interagieren (interferieren) und zu einer bemerkenswerten Rückströmung sowie intensiv oszillierende Verwirbelungen führen. Die Filmoberfläche ist dann starken Schwankungen unterworfen.

3. Der Film erscheint *quasi glatt* für $l_R/h_R = 3{,}3$. Die Rippenabstände sind so klein, dass sich stabile Wirbel (zwischen den Rippen geschlossen/ rotierend) ausbilden und der grenzflächennahe Film insgesamt weniger konvektiven Fluidaustausch mit unteren Schichten ausführt.

In dem betrachteten *Re*-Bereich sind jedoch für alle Fälle (1.-3.) Steigerungen der Absorptionsgeschwindigkeiten (k_L-Werte) gegenüber der glatten Platte um den Faktor 1,5-3,5 nachgewiesen worden. Wie in Abb. 2.8 zu sehen ist, erhält man für alle *Re*-Zahlen ein Maximum, wenn eine *Interferenz der Wirbelzonen* (Sogstörungsschwingungen) vorliegt. Dieser Strömungseffekt besitzt bei diesen Untersuchungen den größten Einfluss bei $Re = 700$.
In einer späteren Veröffentlichung widmen sich Davies und Lozano [1979] der Messung von Turbulenzintensitäten. Darin werden für die turbulente Wasserströmung Turbulenzintensitäten von 17% bei glatter und 60% bei gerippter Plattenoberfläche festgestellt. Sie kommen zu dem Schluss,

dass der Stofftransportzuwachs durch große Wirbel (Prandtl-Größe und höher) bestimmt wird.

Zanfir et al. [2005] verwenden einen Mikroreaktor mit longitudinal überströmten Kanälen (L = 66,4 mm), um die CO_2-Absorptionsraten in unterschiedlich konzentrierten Natronlaugen experimentell zu bestimmen. Die CO_2-Absorption wird durch den Anstieg des Verhältnisses aus Phasengrenzfläche und Flüssigvolumen verbessert, wobei der Mikroreaktor mit dünner werdenden Filmen effektiver wird. Bei diesen Untersuchungen fließt die Flüssigkeit über eine Platte mit Mikrokanälen, wobei die Abmaße für Breite und Tiefe 300 μm und 100 μm (64 Kanäle) sowie 1200 μm und 400 μm (16 Kanäle) betragen. Allerdings sind bei variiertem Texturdesign nicht vergleichbare Versuchsbedingungen eingestellt worden, so dass ein direkter Vergleich nicht möglich ist. Insgesamt erscheint die Anwendung von Mikroreaktoren jedoch nur für den Spezialfall stofftransportlimitierter hochexothermer Gas-Flüssigreaktionen relevant zu sein, siehe Wille [2000].

Alle weiteren Arbeiten in Tab.2.3 konzentrieren sich auf die Analyse der Fluiddynamik, wobei im Folgenden ausgewählte Ergebnisse zunächst für 2d-Typen und anschließend für 3d-Typen diskutiert werden.

Fluiddynamische Aspekte bei 2d-Topographien Argyriadi et al. [2006] bestimmen mittels einer Fluoreszenzmethode die Filmdickenverteilung auf einer gerippten Platte. Der Plattenneigungswinkel variiert zwischen $75° < \alpha < 88{,}7°$ und die Rippenhöhen betragen h_R = 0,2; 0,4; 0,8 mm; die Längen und Abstände der Rippen bleiben konstant bei 6 mm. Für Wasserströmungen mit $10 < Re < 450$ kann eine deutliche Strömungsstabilisierung festgestellt werden, welche sich dadurch äußert, dass die Wellenlänge der Rippen sowie der freien Oberfläche gleich sind. Die Filmwellen verlieren somit ihren eher stochastischen Charakter bei natürlicher Filmströmung auf glatter Oberfläche. Weiterhin wird eine Zunahme der Wellengröße für den gerippten Fall festgestellt (Filmdeformation). Das Deformationsmaximium liegt dabei oberhalb einer Rippe. Als Ursache wird eine Resonanzinteraktion zwischen Rippen und Film gesehen.
Tatsächlich werden Resonanzerscheinungen in aktuellen Forschungsarbeiten bezüglich des Topographieeinflusses auf die Filmströmung intensiv studiert, siehe Heining und Aksel [2010] sowie darin enthaltene Verweise. Zum Beispiel konnten Heining et al. [2009] zeigen, dass nicht-lineare Resonanzeffekte die Filmdickenamplituden signifikant über die Bodenamplituden hinaus steigern können. Für höhere Re-Zahlen zeigen die Filmamplituden unter Umständen sogar zwei Maxima, was auf eine starke Oberflächendeformation hinweist [Heining und Aksel, 2010].

Die Komplexität möglicher Strömungszustände, welche auf glatter Oberfläche nicht möglich sind, aber bei gewellten Oberflächen auftreten können, wird besonders eindrucksvoll anhand der Experimente von Wierschem und Aksel [2004] verdeutlicht. Hier werden schleichende Silikonölströmungen auf sinusförmig gewellten Platten betrachtet und unterschiedliche Strömungszustände in einem Filmdicken-Neigungswinkel-Diagramm zusammengefasst. Die Extrapolation auf dünnere Filme sowie größere Neigungswinkel deuten darauf hin, dass unter Bedingungen

nahe denen in Packungskolonnen die Effekte der Filmwölbung sowie stehende Wellen möglich sind.
Ein besonders interessantes Phänomen wird von Wierschem et al. [2010] an einer sinusförmigen Kontur mit $A_S = 1\ mm$, $P_S = 10\ mm$ und $\alpha = 82°$ beobachtet. Hier sind die Strömungsparameter ($\eta_f = 10{,}7\ mPas$ und $4 < Re < 60$) bereits sehr nahe einer typischen Packungsanwendung. Es kann boebachtet werden, dass die laminare Schichtenströmung ab circa $Re = 12$ in eine wirbelbehaftete Strömung übergeht. Die von dem Wirbel eingenommene Fläche wächst zunächst bis $Re = 15$ an und sinkt dann bei $Re = 25$ auf null ab; für $Re > 35$ entsteht erneut ein Wirbel, dessen Fläche kontinuierlich zunimmt. Als Resultat lässt sich zusammenfassen, dass ein abrupter Wechsel zwischen zwei Strömungsregimen auftritt und der Regimewechsel trotz steigender Re-Zahl eine Filmdickenabnahme herbeiführen kann.

Die häufig zitierte Pionierarbeit von Zhao und Cerro [1992] beinhaltet die experimentelle Untersuchung von Filmdicken und Geschwindigkeiten bei kleinen Re-Zahlen auf zweidimensional strukturierten Platten. Es kommen die Flüssigkeiten Glyzerin, Wasser-Glyzerin Mischungen und ein Silikonöl zum Einsatz ($6{,}8\ mPas < \eta_f < 938\ mPas$, $0{,}0006 < Re < 9{,}1$). Als charakteristischen Parameter führen sie das Verhältnis aus Nusselt-Filmdicke (siehe Gl.(2.4)) und Amplitude (siehe Abb. 2.7) ein:

$$\delta^* = \frac{\delta_N}{A_S} \tag{2.21}$$

Mit Hilfe der bezogenen Filmdicke δ^* lassen sich folgende nützliche Heuristiken (für kleine Re-Zahlen) aufstellen [Zhao und Cerro, 1992]:

- $\delta^* < 0{,}1$: Der Film folgt der Kontur der festen Oberfläche und die Strömungsbedingungen gleichen annähernd denen auf einer glatten Oberfläche.
- $0{,}1 < \delta^* < 1$: Hier treten „die interessantesten Effekte“ auf und dieser Bereich ist von größtem industriellen Interesse. Die hiermit gemeinten Effekte sind unter anderem dadurch gekennzeichnet, dass die freie Filmoberfläche mit gleicher Periode wie die des festen Untergrunds auftreten kann, wobei größere Variationen der Filmdicken vorhanden sind. Als Konsequenz ergibt sich eine Vielzahl möglicher Filmkonturen mit erhöhten Phasengrenzflächen für strukturierte Oberflächen gegenüber einer glatten Oberfläche.
- $\delta^* > 1$: Der Film erscheint annähernd glatt.

Schließlich merken Zhao und Cerro [1992] an, dass zukünftige Untersuchungen der Strömungseigenschaften von Filmströmungen auf komplexen Oberflächen (bezogen auf eine Anwendung strukturierter Packungen) hinsichtlich zweier sich ergänzenden Gesichtspunkten durchgeführt werden sollte. Diese beinhalten die Ermittlung:

1. Integraler Stofftransportraten als Funktion von Phasengrenzfläche und mittlerer Verweilzeit, welche in nicht einfacher Weise mit dem Flüssigkeitsinhalt gekoppelt sind
2. Trockener Bereiche sowie deren Stabilität, das heißt Benetzungseigenschaften

Benetzungseigenschaften werden von Shetty und Cerro [1998] für eine zweidimensional gewellte Makrostruktur untersucht, allerdings werden Messungen zum Stofftransport in Ergänzung der Ergebnisse von Zhao und Cerro [1992] nicht veröffentlicht.

Eine Kombination aus Experimenten und CFD Simulationen wurde von Ataki [2006] unter anderem an Packungselementen der *Rombopak*® durchgführt. Der Schwerpunkt liegt hier eher auf den Benetzungseigenschaften und soll an dieser Stelle nicht weiter vertieft werden, siehe 3.2.4.

Trifonov [2004] simuliert die Filmströmung von flüssigem Stickstoff (am Normalsiedepunkt) auf welliger 2d-Textur mit $A_S = 0{,}095\ mm$ in Anlehnung an eine Strukturpackung (*Sulzer 500Y*). Es kann gezeigt werden, dass zum Beispiel bei $Re = 45$ Wirbelstrukturen im Tal auftreten können, vergleiche Messungen von Wierschem et al. [2010]. Analog zu den Experimenten von Zhao und Cerro [1992] mit sehr hohen Viskositäten ($6{,}8\ mPas < \eta_f < 938\ mPas$) erlauben die Simulationen von Trifonov [2004] mit sehr geringen Viskositäten ($\eta_f \approx 0{,}16\ mPas$) folgende Schlussfolgerungen:

- Bei kleinen *Re*-Zahlen treten dünne Filme über den Strukturbergen und dickere Filme in den Tälern auf; bei der maximalen Textursteigung nach einer Strukturspitze wird die Filmdicke minimal
- Für höhere *Re*-Zahlen wird die Filmoberfläche insgesamt glatter und die Textur wird *geflutet*

Wird zusätzlich zur Mikrostruktur die Makrostruktur der *Sulzer 500Y* berücksichtigt, so kann man feststellen, dass eine kritische Texturamplitude existiert, die (zumindest in der Simulation für flüssigen Stickstoff) für vollständige Benetzung sorgt. Überschreitet man diese kritische Amplitude, so entstehen trockene Stellen und Rinnsale, wodurch die lokale Verteilung von Filmdicken und Flussraten sehr komplex wird. Weiterhin sollen die Texturneigungswinkel einen ausgeprägten Einfluss auf die mittleren Strömungsparameter besitzen, allerdings werden die zugehörigen Parameterstudien nicht ausreichend publiziert.

Valluri et al. [2005] simulieren eine *Katapak-S*® (Sulzer Chemtech) mittels zweidimensionaler Doppelsinuskontur, das heißt der sinusförmigen Makrostruktur wird eine zweite sinusförmige Mikrostruktur überlagert. Die geometrischen Parameter orientieren sich an die *Mellapak*® jeweils mit und ohne Mikrostrukturen. Die Stoffdaten werden entsprechend denen von reinem Wasser sowie einer Wasser-Glyzerin-Mischung gewählt (1 $mPas$, 5,5 $mPas$). In Übereinstimmung mit anderen Veröffentlichungen wird mit steigender Flüssigbelastung ($0{,}13 < Re < 23$) die Filmwölbung deutlich erhöht und die Phasenverschiebung gegenüber der Bodenwelle nimmt zu, vergleiche Argyriadi et al. [2006]. Bei Variation der Texturamplituden ($0 < A_S < 1{,}2\ mm$) erhält man mit steigender Amplitude eine größere Gas-Flüssig-Phasengrenzfläche (was Vorteile bezüglich des Stofftransports induziert), wobei das Verhältnis aus Struktur- und Filmoberfläche abnimmt (Täler werden zunehmend aufgefüllt). Bei konstanter Amplitude von $A_S = 0{,}1\ mm$ wird zudem der Einfluss zunehmender Strukturfrequenz untersucht. Dabei kann ein optimaler

Bereich an möglichen Frequenzen angegeben werden, so dass ein sinnvoller Kompromiss aus der Phasengrenzflächenerhöhung sowie dem Film-/ Strukturoberflächenverhältnis vorliegt. Interessanter Weise liegt laut Simulation die Strukturfrequenz einer *Mellapak*® annähernd in der Mitte dieses optimalen Bereichs. Weiterhin kann gezeigt werden, dass Kapillarwellen nach einer ausgebildeten Wellenfront (wo sie typischer Weise bei glatten Oberflächen erscheinen) durch die Struktur unterdrückt werden und der Film der Bodenkontur folgt. Mit Hilfe eines CFD Modells können Ergebnisse analog zu Negny et al. [2003] reproduziert werden, das heißt die Bildung eines Rezirkulationswirbels bei höheren Re Zahlen aufgrund der Makrostruktur, wobei die Mikrostruktur dabei scheinbar keinen signifikanten Einfluss besitzt. Allerdings ist aus Rechenzeitgründen die Gitterauflösung in diesen Fällen relativ groß gewählt worden, so dass der Einfluss der Mikrostruktur gegebenenfalls nicht exakt ermittelt wurde.

Fluiddynamische Aspekte bei 3d-Topographien Luo und Pozrikidis [2007] analysieren die Filmströmung entlang einer geneigten 2d-Struktur sowie eine 3d-Topographie mit unterschiedlicher Anströmrichtung, wobei die Strukturamplituden jeweils sehr klein gegenüber der Filmdicken sind. Gegenüber der 2d-Struktur mit unidirektionaler Strömungsrichtung erhält die Filmströmung bei einer 3d-Struktur bidirektionalen Charakter. Des Weiteren weist die Strömung beim 3d-Typ eine geringere Oberflächendeformation auf als beim 2d-Typ und die Phasenverschiebung bezüglich Oberflächen-/ und Filmkontur tritt bei beiden Typen auf.

Baxter et al. [2009] simulieren das Überströmen einer Halbkugel sowie das Umströmen zweier Zylindergeometrien jeweils als Einzelobjekt in der Filmströmung. Bei den umfangreichen Parameterstudien werden neben α und Bo auch die Strukturparameter variiert. Es stellt sich heraus, dass es unabhängig von der Geometrieart oder der Fallunterscheidung Um-/ Überströmen vor dem Einzelobjekt zu einem Anstauen der Flüssigkeit kommt. Analog zu 2d-Typen nimmt das Anstauen (Filmwölbung) mit steigendem Neigungswinkel (Re) zu und nach einem Hindernis sinkt die Filmdicke rasch ab. Insgesamt ergibt sich eine dreidimensional verformte Filmoberfläche.
In Baxter et al. [2010] wird die zuvor genannte Arbeit insofern erweitert, dass zwei bis drei Objekte in der Strömung platziert werden, siehe Abb.2.9. Zusätzlich zu den vorher genannten Variablen werden die Abstände beziehungsweise Positionen zwischen den Geometrien verändert. Bei großen Abständen erhält man das gleiche Verhalten wie bei einem Hindernis (entsprechend Davies und Warner [1969] für Rippen). Bei kleineren Abständen wird das Strömungsverhalten zunehmend komplexer, allerdings gerät die Diskussion fluiddynamischer Aspekte gegenüber numerischen Problemen in den Hintergrund.

Offenbar ist die theoretische Beschreibung der Filmströmung auf 3d-Mikrostrukturen zurzeit noch nicht in zufrieden stellendem Maße realisierbar, so dass im Folgenden zwei aktuelle Beispiele für experimentelle Ansätze diskutiert werden.
Dressaire et al. [2010] betrachten den Einfluss unterschiedlich mikrostrukturierter Oberflächen, welche lotrecht mit einer Jet-Strömung beschickt werden. Macht man den gleichen Versuch bei ei-

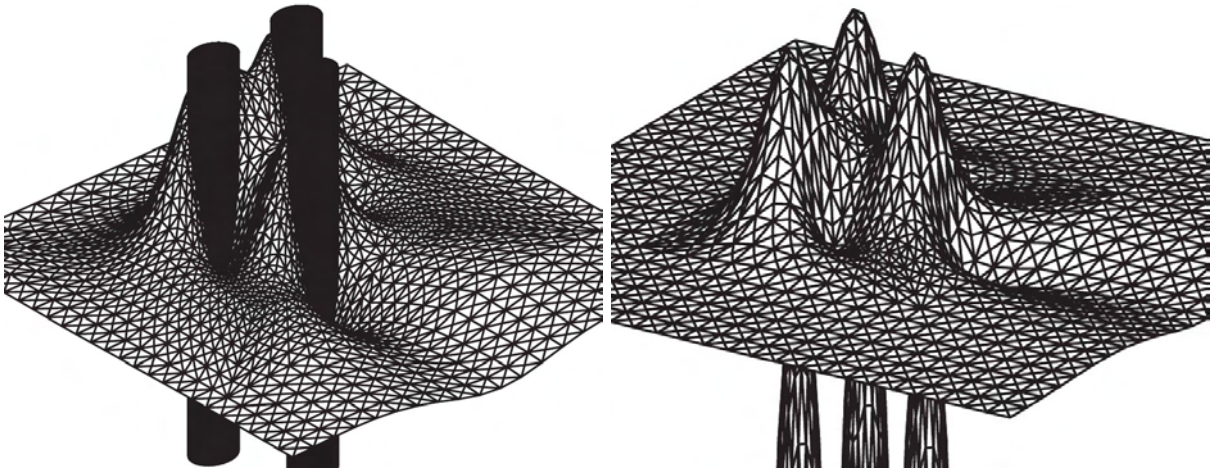

Abbildung 2.9.: Simulation der Um- und Überströmung dreier Einzelobjekte von Baxter et al. [2010].

ner glatten Oberfläche, so bildet sich nach einem glatten Filmbereich eine kreisrunde Aufwölbung aus. Je nach den Prozessparametern der zylindrischen Mikrostrukturen sowie der Flüssigkeit bilden sich weiterhin symmetrische, jedoch unrunde, blumenartige Formen aus. Mit Hilfe dieser Versuchsanordnung sollen in späteren Arbeiten Rückschlüsse auf die Strömungsverhältnisse im mikrostrukturierten Bereich für Platten- und Drehscheibenanwendungen ermöglicht werden.

Paschke [2012] bestimmt mittels μPIV Messungen lokale Geschwindigkeitsfelder (w_x, w_z) in Vogelperspektive für mehrere, ca. 80 μm dicke Filmschichten. Eine Tetraeder-Mikrostruktur mit $A_S \approx 275 \pm 36$ μm der Firma Montz GmbH wird aus zwei um 180° versetzte Richtungen mit Wasser-Glyzerin-Lösungen angeströmt. Für $Re = 32$ und $Re = 64$ werden aufgrund unterschiedlicher Viskositäten in etwa gleich große δ^*-Werte mit $\delta^* \approx 2$ vorgegeben. Aus den Messergebnissen ist die mehrfach angesprochene, für 3d-Typen typische bidirektionale Strömungsführung zu erkennen. Weiterhin kann man einen Effekt auf die Oberflächengeschwindigkeiten feststellen, so dass geringe Oberflächendeformationen anzunehmen sind. Die Filmdicke wächst bei Verwendung der mikrostrukturierten Oberfläche in etwa um 50-100% der Strukturamplitude gegenüber δ_N an. Im Vergleich zur glatten Oberfläche wächst der Flüssigkeitsinhalt um ca. 30-60% an und die mittlere Fließgeschwindigkeit sinkt dementsprechend bei jeweils gleichen Volumenströmen.
Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird unter anderem die in Paschke [2012] entwickelte μPIV-Technik durch die bewegte Phasengrenzfläche ebenfalls angewendet und auf Fälle mit $\delta^* < 1$ erweitert.

2.3. Fazit und Ziele der Arbeit

Wie in der Einleitung erwähnt, konnte von Bühlmann [1987] und Schultes [2008] gezeigt werden, dass bei der Verwendung mikrostrukturierter Packungen die Trennleistung bei der Destillation im Vergleich zu glatter, lediglich makrostrukturierter Packungsoberfläche signifikant erhöht werden kann. Aus den genannten Untersuchungen können jedoch die Ursachen dieser Prozes-

sintensivierung nicht zufriedenstellend abgeleitet werden; es kann nur vermutet werden, dass die Mikrostrukturen den Stofftransport zum Beispiel durch eine verbesserte Benetzung (höhere Phasengrenzfläche) oder durch eine bessere Durchmischung im Film intensivieren. Daraus ergibt sich als eine wesentliche Zielstellung dieser Arbeit:

- Wie beeinflussen Mikrostrukturen den Stofftransport bei Filmströmungen?

Hierzu soll der Fokus auf den flüssigkeitsseitig dominierten Stofftransport gelegt werden, so dass unabhängig von dem Benetzungsverhalten und dem gasseitigen Widerstand tatsächlich der Einfluss der Mikrostrukturen auf die flüssige Filmströmung in einem ersten Schritt näher untersucht wird. Falls ein nicht vernachlässigbarer Einfluss auf den flüssigkeitsseitigen Stofftransport nachgewiesen werden kann, so müssen zur Klärung der fluiddynamischen Ursachen Strömungsuntersuchungen folgen. Aufbauend auf diesen Kenntnissen soll es ermöglicht werden, die Leistungsfähigkeit von Hochleistungspackungen in Zukunft weiter zu steigern.

Zurzeit ist ein experimenteller oder theoretischer Zugang der Strömungsverhältnisse in realen strukturierten Packungen nur eingeschränkt möglich, so dass zunächst Untersuchungen an einer vereinfachten Geometrie (geneigte Platte) durchgeführt werden sollen. Der Einfluss von Mikrostrukturen soll dabei anhand des Vergleichs zu einer glatten Oberfläche bewertet werden.
Aus der Literaturübersicht in Abschnitt 2.1 wird klar, dass Filmströmungen auf glatten Oberflächen bereits zahlreich untersucht wurden und weitestgehend mathematisch beschreibbar sind. Dennoch sind offene Fragen zur Wellendynamik, zum Gasgegenstrom sowie dem damit verknüpften Wärme- und Stofftransport Gegenstand aktueller Forschungsaktivitäten. Betrachtet man die Filmströmung auf mikrostrukturierten Oberflächen (Abschnitt 2.2), so liegt eine hohe Komplexität der möglichen Strömungsvorgänge vor. In Abhängigkeit der Prozessparameter können sehr unterschiedliche Phänomene auftreten, die bei glatten Oberflächen nicht möglich sind. Hierbei sind insbesondere fluiddynamische Aspekte bei 2d-Modellstrukturen experimentell und theoretisch beschrieben. Mikrostrukturen realer Packungsmaterialien und generell 3d-Strukturen sind jedoch kaum untersucht worden.
Tatsächlich relevante Studien zum Stofftransporteinfluss werden nur von Davies und Warner [1969] sowie Negny et al. [2003] veröffentlicht (Publikationen aus den Anwendungsfeldern von Mikroreaktoren und Wärmeübertrageroberflächen können wegen mangelnder Übertragbarkeit auf Packungskolonnen nicht berücksichtigt werden). Negny et al. [2003] können einen positiven Stofftransporteffekt der verwendeten strukturierten Oberfläche nachweisen; die verwendete Geometrie überschreitet allerdings die Dimension von Packungstexturen. Davies und Warner [1969] zeigen, dass durch Variation der Rippenabstände der Stofftransport (k_L) bei turbulenten Wasserströmungen bis um den Faktor 3,5 gesteigert werden kann. Betrachtet man die Strömungsgeschwindigkeiten in Packungskolonnen, so liegen diese in der Regel deutlich unterhalb des turbulenten Bereichs (Kennzahlen induzieren Strömungsbereiche laminar bis stabil wellig). Damit wäre der scheinbar optimale Zustand interferierender Wirbel wie bei Davies und Warner [1969] bei einer Packungskolonne vermutlich nicht einstellbar.
Einen engen Bezug zur Packungsanwendung haben die fluiddynamischen Studien von Zhao und Cerro [1992], woraus folgt, dass für Mikrostrukturen mit $0{,}1 < \delta^* < 1$ die „interessantesten

Effekte“ zu erwarten sind. Allerdings werden hierzu höher viskose Flüssigkeiten beziehungsweise schleichende bis laminare Strömungen betrachtet und der Zusammenhang zum Stofftransport kann nicht hergestellt werden. Schließlich lässt sich obige Fragestellung näher konkretisieren:

- Wie ist der Einfluss von Mikrostrukturen auf den flüssigkeitsseitigen Stofftransport im realistischen (praxisnahen) Betriebsbereich von Packungskolonnen zu bewerten?

Damit ein möglichst großer Bereich praktischer Anwendungen abgedeckt wird, werden Flüssigbelastungen von B_f = 10-100 m^3/m^2h, Gasbelastungen von F = 0-2,5 $Pa^{0,5}$ und Viskositäten von 1-10 mm^2/s variiert. Hierzu werden fünf Packungsmaterialien mit jeweils unterschiedlicher Topographie eingesetzt, wobei die 2d- und 3d-Mikrostrukturen in der Größenordnung der möglichen Filmdicken liegen.

Die systematische und zielführende Vorgehensweise erfordert in einem ersten Schritt die Wahl des geeigneten Stoffsystems. An dieses Stoffsystem werden folgende Anforderungen gestellt:

- Der Stofftransport ist flüssigkeitsseitig dominiert
- Berührungslose (optische) Strömungsmessmethoden sind anwendbar
- Systematische Variation von Stoffdaten, insbesondere der Viskosität zwecks δ^*-Variation soll möglich sein
- Gute Benetzungseigenschaften, um einen großen Belastungsbereich mit jeweils einem Fluid bei vollständiger Benetzung realisieren zu können

Wie im Folgenden gezeigt wird, ist das Stoffsystem CO_2-Silikonöl hinsichtlich obiger Anforderungen geeignet. Silikonöle besitzen den Vorteil einer guten Benetzung bereits ab sehr kleinen Belastungen sowie die Möglichkeit der Viskositätsvariation durch die Wahl der Polymerkettenlänge beziehungsweise deren Verteilung. Ein weiterer Vorteil ist, dass bereits verschiedene optische Strömungsmessmethoden für Silikonöle erfolgreich angewendet wurden, zum Beispiel von Al-Sibai [2005] für glatte oder von Wierschem et al. [2010] für gewellte Oberflächen.
Bezüglich des Stofftransports ist lediglich aus dem Patent von Kammermayer und Sollami [1972] bekannt, dass Silikonöl als Absorbens für CO_2 geeignet sein könnte, allerdings liegen weder Gleichgewichtsdaten der Gaslöslichkeiten noch Analysemethoden für deren Bestimmung in der Literatur vor. Aus diesem Grund müssen im Rahmen dieser Arbeit als zweiten Schritt GLE-Messungen durchgeführt und eine geeignete Analysemethode für den CO_2-Gehalt in Silikonölen entwickelt werden, um eine wissenschaftliche Auswertung der Stofftransportmessungen zu gewährleisten.
Nach der Wahl des Stoffsystems sowie der Beschaffung grundlegender Stoffeigenschaften kann der Entwurf eines geeigneten Messsystems und die Erstellung eines Versuchsplanes erfolgen.

Zusammenfassend lässt sich die Vorgehensweise der Arbeit wie folgt formulieren:

- Entwicklung, Aufbau und Inbetriebnahme eines geeigneten Messsystems mit dem der Einfluss von Mikrostrukturen (2d- und 3d-Packungsmaterialien) auf den flüssigkeitsseitig dominierten Stofftransport sowie auf die wesentlichen Strömungscharakteristika von Filmströmungen wissenschaftlich untersucht werden kann
- Nutzung des Messsystems, um neues Grundlagenwissen zur Reduktion/ Schließung oben genannter wissenschaftlicher Lücken bereitzustellen
  - Kombination aus Experimenten zum Stofftransport (Effekt) und zur Fluiddynamik (Ursache) unter gleichen Bedingungen (dass heißt Stoffsystem und Prozessparameter bleiben gleich)
  - Berücksichtigung von Prozessparametern, die ein weites Anwendungsfeld praktischer Hochleistungspackungen abdecken (das heißt Einhaltung der Größenordnungen von Flüssig- und Gasbelastungen, der Viskosität sowie der Mikrostrukturen)

Die hier beschriebene Zielstellung sowie die zugehörige Vorgehensweise stellt den eigentlichen Schwerpunkt (Hauptuntersuchungen) der wissenschaftlichen Arbeit dar. Ergänzend sind zusätzliche Untersuchungen erforderlich, welche den Aspekt der Benetzungseigenschaften von unterschiedlich mikrostrukturierten Oberflächen in Abhängigkeit wesentlicher Fluideigenschaften (Viskosität, Oberflächenspannung und Volumenstrom) in Grundzügen bewerten sollen. Weiterhin sollen Benetzungstests an makrostrukturierten Packungsblechen erste Hinweise für die Übertragbarkeit beziehungsweise Relevanz voriger Detailuntersuchungen an der vereinfachten Plattengeometrie geben.

3. Stoff- und Materialeigenschaften

Die Anforderungen an das Stoffsystem für die Hauptuntersuchungen dieser Arbeit sind erfüllt, wenn das Gas Kohlenstoffdioxid und verschieden viskose Silikonöle verwendet werden. Somit kann die Viskositätsabhängigkeit des Mikrostruktureinflusses für ein weites Belastungsfeld untersucht werden. Das CO_2 wird bei den Stofftransportmessungen (siehe 4.1) durch Gasabsorption in den Silikonölen aufgenommen. Aufgrund geringer Absorptionsmengen kann angenommen werden, dass die Filmströmung durch die CO_2-Absorption nicht entscheidend gestört wird, so dass die Strömungsmessungen (siehe 4.2) ohne Stofftransport und sonst gleichen Bedingungen an Luft durchgeführt werden.
Im Folgenden werden die Reinstoff- und Systemeigenschaften der beteiligten Substanzen aus Literaturdaten sowie eigenen Messungen zusammengestellt. Die Reinstoffdaten in 3.1 dienen dabei überwiegend der fluiddynamischen Charakterisierung. Die Systemeigenschaften der Gaslöslichkeit in 3.2.1 und der Diffusion in 3.2.2 sind für die Beschreibung des Stofftransports von Nutzen. Die in 3.2.3 aufgeführten optischen Eigenschaften liefern die Grundlagen der Konzentrationsanalyse sowie der berührungslosen Strömungsmessungen. Weiterhin wird in 3.2.4 kurz auf die Grundgrößen von Benetzungseigenschaften eingegangen. Abschließend gibt 3.3 eine Übersicht der Eigenschaften untersuchter Packungsmaterialien.

3.1. Reinstoffdaten verwendeter Fluide

Dieser Abschnitt gibt eine kurze Übersicht relevanter Reinstoffdaten der eingesetzten Flüssigkeiten und Gase.

3.1.1. Flüssigkeiten

Fluiddynamische Grundgrößen Im Rahmen der Hauptuntersuchungen werden drei unterschiedliche Silikonöle der Firma Dow Corning (Xiameter® PMX-200 Silicone Fluid; vorige Bezeichnung Dow Corning Fluid® 200 Fluid) verwendet, siehe [DowCorning, 1998]. Es handelt sich dabei um Polydimethylsiloxane, also um unverzweigte Polymere mit der Formel $Si_2O(CH_3)_6$ $[SiO(CH_3)_2]_r$, wobei mit steigender Anzahl der Repitiereinheiten r die Viskosität zunimmt. Für $r = 1$ erhält man Octamethyltrisiloxan mit der kinematischen Viskosität von $\nu_f = 1\ mm^2/s$ bei 25 $°C$, was im Folgenden mit DC1 bezeichnet wird. Die hier eingesetzten höher viskosen Öle bestehen aus einer Mischung mit einer definierten Kettenlängenverteilung, so dass die Viskositäten $\nu_f = 5\ mm^2/s$ (DC5) und $\nu_f = 10\ mm^2/s$ (DC10) jeweils bei 25 $°C$ vorliegen.
Die Messungen zur Beurteilung des Einflusses der Mikrostrukturen sind in der Regel bei

28,5 ± 0,5 $°C$ durchgeführt worden, so dass für diese Temperatur in Tab.3.1 weitere Stoffdaten angegeben sind.

Tabelle 3.1.: Stoffdaten der verwendeten Silikonöle (*eigene Messungen bei 28,5 $°C$ und 1 atm; **Gunst [1950]).

Silikonöl	Viskosität* ν_f $[mm^2/s]$	Dichte* ρ_f $[kg/m^3]$	Oberflächenspannung* σ_{fg} $[mN/m]$	Filmzahl Fi $[-]$
DC1	0,97**	812	16,0	$8{,}8 \cdot 10^8$
DC5	4,9	915	18,3	$1{,}4 \cdot 10^6$
DC10	9,9	935	18,9	$8{,}8 \cdot 10^4$

Die Stoffwerte in Tab.3.1 sind mehrfach im Laufe der Versuchsreihen gemessen worden und haben sich dabei nicht verändert (Reproduzierbarkeit > 95%). Die Dichte wurde mit einem Pyknometer nach DIN51757, die dynamische Viskosität mit einem Rotationsviskosimeter nach DIN53019-1 und DIN53019-2 und die Oberflächenspannung σ_{fg} (gegen Luft) mittels *Pendant-Drop-Methode* ermittelt (Messgenauigkeiten 95-98%).

Dampfdruck Die Kenntnis des Dampfdrucks ist für die Bestimmung der Gaslöslichkeiten mit der in 3.2.1 beschriebenen Methode notwendig. Im Allgemeinen besitzen Polymere quasi keinen Dampfdruck, was hier auch für DC5 und DC10 im relevanten Temperaturbereich angenommen werden kann. Allerdings ist DC1 relativ kurzkettig mit $\widetilde{M}_{DC1} = 236{,}534\ g/mol$, so dass hier ein messbarer Dampfdruck bei Normalbedingungen vorliegt.
Aus Literaturdaten können Dampfdrücke von DC1 für 73-163 $°C$ entnommen werden [Flaningam, 1986]; dass eine Extrapolation auf die Betriebstemperatur von 28,5 $°C$ möglich ist, wurde anhand eigener Messungen mittels Ebuliometer bestätigt, siehe Abb.3.1.

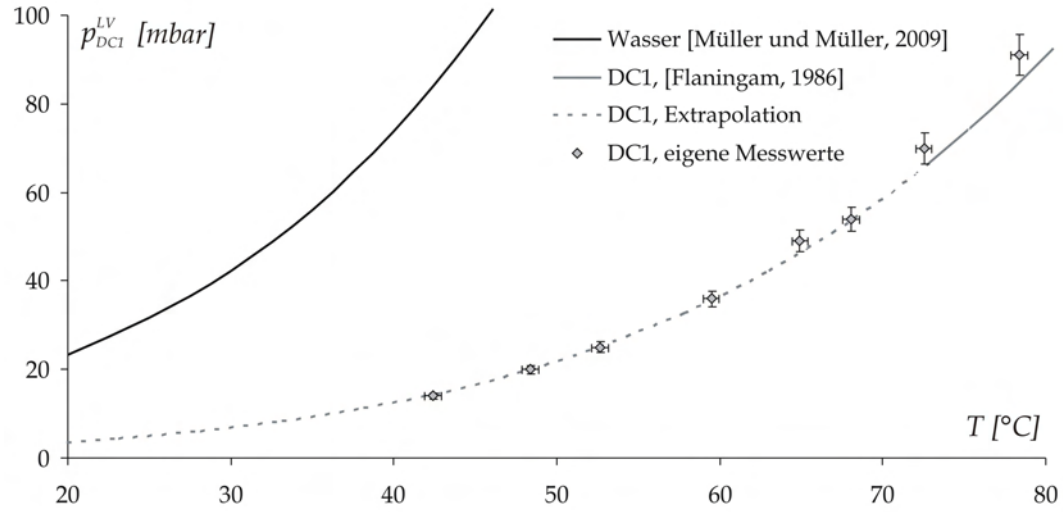

Abbildung 3.1.: Dampfdruckkurve für DC1 (Octamethyltrisiloxan) aus Flaningam [1986] sowie eigene Messwerte; Wasserdaten zum Vergleich aus Müller und Müller [2009].

Man erkennt in Abb.3.1, dass die extrapolierte Antoine-Gleichung von Flaningam [1986] auch auf eigene Messdaten bei tieferen Temperaturen anwendbar ist, es gilt für 42-163 $°C$:

$$p_{DC1}^{LV}(T) = exp\left(20{,}4352 - \frac{3033{,}52}{T[K] - 85{,}190}\right) \tag{3.1}$$

Des Weiteren ist in Abb.3.1 für denselben Temperaturbereich die Dampfdruckkurve für Wasser angegeben, woraus ein deutlich geringerer Dampfdruck für DC1 im Vergleich zu Wasser erkennbar ist.

3.1.2. Gase

Die für diese Arbeit relevanten Gase sind CO_2 sowie die Hauptbestandteile der Luft (N_2 und O_2). Einige Stoffwerte dieser Gase sind unter anderem für die Gaslöslichkeitsmessungen in 3.2.1 notwendig, siehe Übersicht in Tabelle 3.2.

Tabelle 3.2.: Verwendete Stoffdaten relavanter Gase [VDI-Wärmeatlas, 2006].

Stoffeigenschaft	Luft	N_2	O_2	CO_2
ρ_g (1 bar, 25 $°C$) $[kg/m^3]$	1,1685	-	-	1,7845
η_g (1 bar, 25 $°C$) $[\mu Pa\ s]$	18,45	-	-	14,93
$\widetilde{M_g}$ $[g/mol]$	-	28,0135	31,9988	44,0098
Z (1 bar, 30 $°C$) [-]	1	1	1	0,9953

In Tab. 3.2 gibt der Realgasfaktor Z die Abweichung von dem Gesetz des idealen Gases an ($Z = pV_g/(nRT)$). Offensichtlich kann für den Betriebsbereich der relevanten Gase die thermische Zustandsgleichung für ideale Gase verwendet werden.

3.2. Fluidsystemeigenschaften

Die im Folgenden aufgeführten Systemeigenschaften betreffen im Wesentlichen die verwendeten Flüssigkeiten in Verbindung mit mindestens einer weiteren Komponente oder Phase.

3.2.1. Gaslöslichkeit und Absorptionswärme

Gaslöslichkeitsmessungen Für die Berechnung des Stoffübergangskoeffizienten in Gleichung (2.13) werden die Gaslöslichkeiten im Gleichgewicht benötigt. Da diese Informationen aus Literaturdaten nicht verfügbar sind, ist es notwendig eigene Gleichgewichtsmessungen zur Gaslöslichkeit durchzuführen. Hierzu wird die von Knapp [1987], Maaßen et al. [1993], Clausen [2000] und Richter [2010] beschriebene Apparatur verwendet. Mit dieser GLE-Apparatur sind sowohl isobare Messungen bei Umgebungsdruck als auch isochore Messungen bei Unterdruck (0,5-0,8 bar absolut) für die drei Silikonöle mit unterschiedlichen Gasen für 10-55 $°C$ durchgeführt worden. Das Prinzipschema für die ischore Messung ist der Abbildung 3.2 zu entnehmen.
Nach Evakuierung des Gassystems auf circa 1 $mbar$ wird es mit dem zu untersuchenden Gas

gefüllt. Die GLE-Messzelle beinhaltet eine definierte Menge Silikonöl, welches bis auf seinen

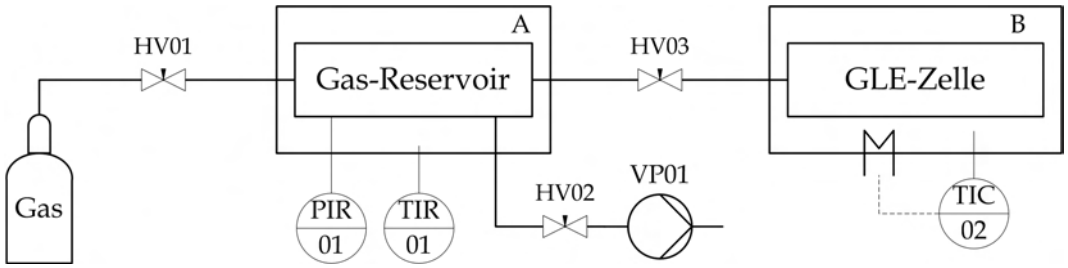

Abbildung 3.2.: Schema zur Funktionsweise der GLE-Apparatur bei isochorer Messreihe. Für die isobare Messung wird ein Quecksilber-Präzisionsbürettensystem angeschlossen über das ein definiertes Gasvolumen zur Druckkompensation zugeführt werden kann.

Dampfdruck entgast vorgelegt wird. Die geschlossenen, isochoren Systeme A und B werden miteinander verbunden, so dass sich das Gas in Abhängigkeit der Temperatur TIC02 in dem Silikonöl löst. Damit sinkt der Druck PIR01 im Messsystem bis auf den mit der Zeit konstant werdenden Gleichgewichtsdruck ab. Im Vorfeld erfolgt die Kalibrierung der Systemvolumina (Reservoir und Zellen), so dass nach Berechnung der Silikonölvolumina aus der Silikonöldichte $\rho_f(T)$ und gravimetrischer Vorlage m_f alle relevanten Volumina und Temperaturen bekannt sind. Unter Verwendung der thermischen Zustandsgleichung idealer Gase kann schließlich die Menge an gelöstem Gas aus der Differenz der Gasdrücke vor und nach der Absorption unter Berücksichtigung des Dampfdrucks bestimmt werden. Setzt man weiterhin die Gültigkeit des Raoult- sowie Henry-Gesetzes [Müller und Müller, 2009] voraus, so lassen sich bei unterschiedlichen Temperaturen die Henry-Koeffizienten bestimmen:

$$H_{g,LM}(T) = \frac{p - X_{LM}\ p_{0,LM}^{LV}}{X_{g,eq}} \tag{3.2}$$

Hierin kann für DC5 und DC10 der Dampfdruck vernachlässigt werden und für DC1 wird die Dampfdruckgleichung (3.1) verwendet.
Die Ergebnisse der so ermittelten Henry-Koeffizienten werden in Tab.3.3 sowie für CO_2 in den verwendeten Silikonölen und weiterer technischer CO_2-Lösemittel in Abb.3.3 dargestellt.
Aus Abb.3.3 folgt für die Silikonöle eine analoge Temperaturabhängigkeit der CO_2-Löslichkeiten im Vergleich zu anderen physikalischen CO_2-Lösemitteln, zudem wird je nach Ölviskosität ein großer Bereich typischer Löslichkeiten erreicht.
Schließlich werden aus den in Tab.3.3 angegebenen Daten die Trendkurven für $H_{i,j}(T)$ gebildet, wodurch die Berechnung der Gaslöslichkeiten bei vorgegebenen Druck und Temperatur mit dem Henry-Gesetz (reine Gasphase) $p = X_i\ H_{i,j}(T)$ ermöglicht wird. Da die $H_{i,j}(T)$-Werte aus isochoren Messungen bei 0,5-0,8 *bar* stammen, wird mittels isobarer Methode bei Umgebungsdruck die Güte der Extrapolation auf Betriebsdruck (1,053 *bar*) der Stoffübergangsmessungen in 4.1 geprüft. Es kann somit gezeigt werden, dass die Extrapolation im Rahmen der Messungenauigkeit von etwa 5% auf höhere Drücke möglich ist. Dies ist auch zu erwarten, wenn man die Druckabhängigkeit des molaren Henry-Koeffizienten $\widetilde{H}_{i,j}(p)$ nach der Kirchevski-Kasarnovski-

Tabelle 3.3.: Massenbezogene (binäre) Henry Koeffizienten für CO_2, O_2 und N_2 in verschiedenen Silikonölen. Der aus der Abweichung mehrerer Messreihen ermittelte Messfehler liegt für CO_2 bei etwa 5% und bei den schwach löslichen Gasen O_2 und N_2 bei 10-15%.

Fluid Paarung	$H_{i,j}$ $[bar]$			
	10 $°C$	25 $°C$	40 $°C$	55 $°C$
DC1-CO_2	152	199	262	349
DC1-O_2	1193	1607	2021	2435
DC1-N_2	2503	2522	2542	2561
DC5-CO_2	203	269	357	482
DC10-CO_2	240	311	396	506
DC10-N_2	4743	5759	7666	10465

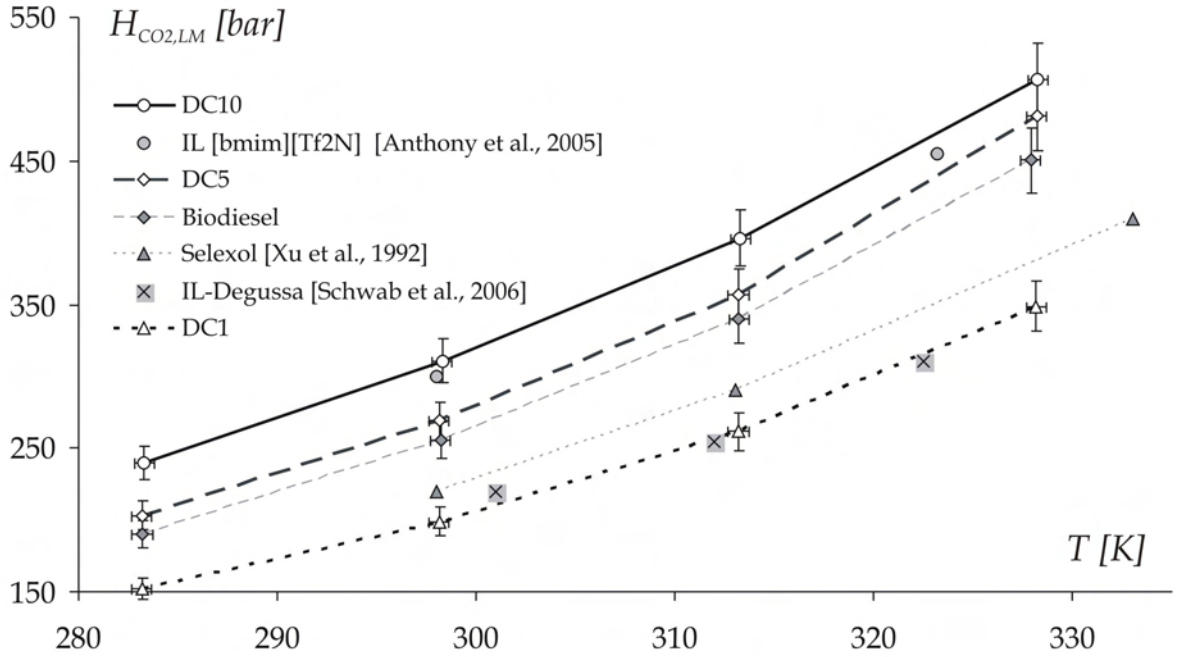

Abbildung 3.3.: Massenbezogene Henry Koeffizienten für CO_2 bei unterschiedlichen Lösungsmitteln im Vergleich. Neben Werten des etablierten physikalischen Absorbens Selexol sind Beispiele ionischer Flüssigkeiten (IL) aufgeführt.

Gleichung betrachtet:

$$ln\ \widetilde{H}_{i,j}(p) = ln\ \widetilde{H}_{i,j}(p_{0j}^{LV}) + \frac{\bar{v}_i^{\infty}(p - p_{0j}^{LV})}{R\,T} \tag{3.3}$$

Analog zur Poynting-Korrektur beim Raoult-Gesetz kann hier die Druckabhängigkeit aufgrund des geringen Arbeitsdrucks p vernachlässigt werden, es gilt $H_{i,j}(T, p) \approx H_{i,j}(T)$.
Die aus Tab.3.3 gemittelten $H_{i,j}(T)$-Werte können demnach genutzt werden, um zum Beispiel die Gleichgewichtsbeladungen bei Betriebstemperatur (28,5 $°C$) und unterschiedlichen Partialdrücken zu berechnen, siehe Abb.3.4. In Abb. 3.4 ist zu erkennen, dass sich jeweils deutlich

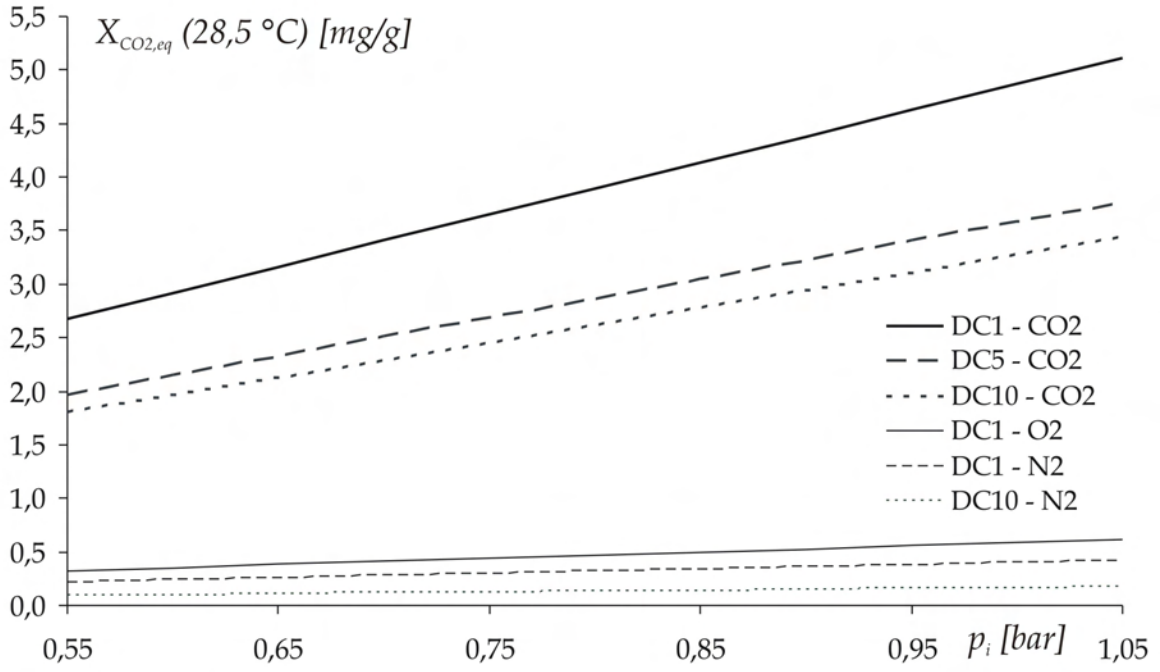

Abbildung 3.4.: Druckabhängigkeit der binären Gasgleichgewichtsbeladungen für die untersuchten Silikonöle bei 28,5 $°C$.

mehr CO_2 in den Silikonölen löst als die anderen Gase. Das Öl mit der kleinsten Dichte (DC1) nimmt dabei die jeweils größten und DC10 die jeweils kleinsten Gasmengen auf, so dass obere und untere Löslichkeitsgrenzen für die hier möglichen Systeme festgelegt sind.
Weiterhin ist Abb.3.4 zu entnehmen, dass die Partialdruckerniedrigung auf 0,04 *bar* (durch lineare Extrapolation des Henry-Gesetzes) bei dem Desorptionsprozess in Abschnitt 4.1 zu verschwindend geringen Gasbeladungen (ppm-Bereich) im Öl führen kann, siehe Gleichung (4.6).

Absorptionswärme/ Isotherme Fallfilmabsorption Des Weiteren kann aus der Temperaturabhängigkeit der Henry-Koeffizienten auf die Absorptionsenthalpie geschlossen werden. Hierzu ist folgende Gleichung anzuwenden [Sattler, 2001]:

$$\left(\frac{\partial\ ln\ \widetilde{H}_{i,j}(T)}{\partial\ T}\right)_p = \frac{\Delta h_{abs}}{R\ T^2} \tag{3.4}$$

Die resultierende Information kann schließlich genutzt werden, um die Wärmetönung bei der Absorption unter Betriebsbedingungen abzuschätzen. Aus der integralen Energiebilanz um den Fallfilm lässt sich für stationäre Bedingungen unter Vernachlässigung der potentiellen und kinetischen Energie sowie der Annahmen $\dot{M}_f = konst.$ und $\dot{M}_{CO2}\ c_{p,CO2}\ \Delta T_g \approx 0$ ableiten, dass gilt:

$$\dot{M}_{CO2}\ \Delta h_{abs} = \dot{M}_f\ c_{p,f}\ \Delta T_f \tag{3.5}$$

Es folgt für die Temperaturerhöhung der Flüssigkeit durch die CO_2-Gasabsortpion:

$$\Delta T_f = \frac{\dot{M}_{CO2}}{\dot{M}_f} \frac{\Delta h_{abs}}{c_{p,f}} \approx X_{CO2} \frac{\Delta h_{abs}}{c_{p,f}} \tag{3.6}$$

Um die maximal mögliche Temperaturerhöhung $\Delta T_{f,max}$ während der Absorptionsmesskampagne zu bestimmen, wird im Folgenden der Fall DC1 betrachtet. Für diesen Fall ergibt sich die Absorptionsenthalpie nach Differentation von Gleichung (3.4) mit $\widetilde{H}_{CO2,DC1}(T) = 2{,}962\ bar/K\ T + 143{,}4\ bar$ zu $\Delta h_{abs,DC1} \approx 2{,}2\ kJ/mol$ und die spezifische Wärmekapazität des Öls beträgt $c_{p,DC1} = 1{,}546\ J/(g\ K)$. Unter der Annahme, dass die Gleichgewichtsbeladung $X_{CO2,eq}(28{,}5\ °C,\ 1{,}053\ bar) \approx 5 \cdot 10^{-3}\ g/g$ erreicht würde, ergibt sich Gleichung (3.6) zu:

$$\Delta T_{f,max} \approx 5 \cdot 10^{-3}\ g/g\ \frac{2{,}2\ kJ/mol}{44\ g/mol\ 1{,}546\ J/(g\ K)} \approx 0{,}16\ K \tag{3.7}$$

Je nach Flüssigbelastung werden in den Experimenten zur Fallfilmabsorption nach 30 cm Lauflänge circa 40-60% der Gleichgewichtsbeladung erreicht, so dass im Rahmen dieser Arbeit von isothermer Absorption gesprochen werden kann ($\Delta T_{f,Betrieb} < 0{,}1\ °C$ bei $T_{Betrieb} = 28{,}5 \pm 0{,}5\ °C$).
Die Größenordnung der Absorptionsenthalpie deutet auf eine rein physikalische Gasabsorption hin. Der Nachweis, dass es sich bei den eingesetzten Silikonölen und CO_2 tatsächlich um eine Physisorption handelt, ist dem Abschnitt 3.2.3 zu entnehmen.

3.2.2. Diffusionskoeffizienten

Für die Berechnung der dimensionslosen Kennzahlen Sc und Sh ist die Kenntnis der Diffusionskoeffizienten von CO_2 in den Silikonölen notwendig. Diese Information geht allerdings aus der verfügbaren Literatur nicht hervor, so dass die Diffusionskoeffizienten wie folgt abgeschätzt werden müssen.

Die theoretische Vorausberechnung von gering löslichlichen Gasen in Flüssigkeiten kann nach den Methoden von Arnold [1930], Wilke und Chang [1955] oder Chen und Chen [1985] erfolgen. Allerdings werden hierzu Stoffdaten benötigt, die für die verwendeten Silikonöle nicht vollständig vorliegen oder zu beschaffen sind. Aus diesem Grund sind schließlich mehrere experimentelle Daten für die CO_2-Diffusion in nicht-elektrolytischen Flüssigkeiten aus Winkelmann [2007] gesammelt und verglichen worden aus. Hierbei werden Flüssigkeiten mit einer Sauerstoff-Doppelbindung am Molekülende nicht berücksichtigt, da diese nach Arnold [1930] aufgrund der Polarität von CO_2 ein Abbremsen der CO_2-Diffusion bewirken (Silikonöle besitzen eine O-Doppelbindung im Kern des Moleküls, es kann jedoch angenommen werden, dass die Diffusionsgeschwindgkeit durch die Methylgruppen an den Molekülenden bestimmt wird). Diese Sammlung von $D_{CO_2,LM}(25\ °C)$ umfasst insgesamt 47 Datenpunkte für 20 nicht wässrige Flüssigkeiten von 12 unterschiedlichen Autoren aus Winkelmann [2007] (detaillierte Aufschlüsselung siehe A.3), welche in Abhängigkeit der Viskosität in Abbildung 3.5 dargestellt werden. Zum Vergleich sind in Abb.3.5 die Diffusionskoeffizienten für CO_2 in Wasser bei unterschiedlichen Temperaturen/ Viskositäten dargestellt,

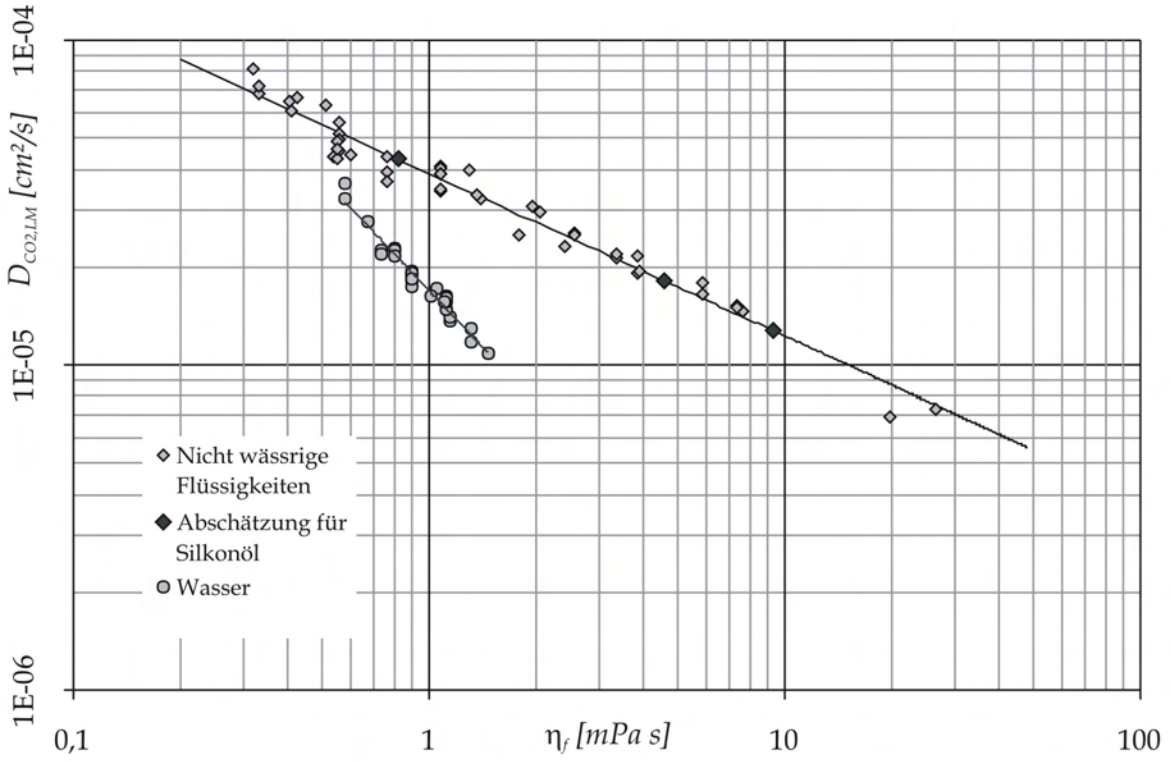

Abbildung 3.5.: Viskositätsabhängigkeit der CO_2 Diffusion in nicht wässrigen Lösungen (25 $°C$) sowie in Wasser (6,5-50 $°C$) aus Winkelmann [2007]. Die Abschätzung für die untersuchten Silikonöle liegt auf der Trendkurve für nicht wässrige Lösungen, siehe Gleichung (3.8).

woraus die verlangsamende Wirkung des stark polaren Wassers auf die Diffusionsgeschwindigkeit von CO_2 Molekülen hervorgeht.

Es ist bekannt, dass die Diffusionsgeschwindigkeit eines Moleküls eng mit der Viskosität (*Innere Reibung*) der Flüssigkeit zusammenhängt. In der Literatur findet man häufig $D_{CO_2,LM} \propto \eta^{a_\eta}$, wobei der Exponent a_η zwischen $-0{,}44$ und $-0{,}5$ variiert [Arnold, 1930; Hayduk und Cheng, 1971; Davies et al., 1967]. Wendet man die gegebenen Literaturwerte für a_η auf die gesammelten Messwerte von $D_{CO_2,LM}(25\ °C)$ an, so ergibt sich folgende Tabelle 3.4:

Tabelle 3.4.: Messwertanpassung für die CO_2 Diffusion in nicht wässrigen Flüssigkeiten mit unterschiedlichen Viskositätsexponenten in $D_{CO_2,LM} \propto \eta^{a_\eta}$.

Autor	Viskositäts-exponent a_η	Relative Abweichung der Messwertanpassung in Abb.3.5
Arnold [1930]	$-0{,}5$	9,7%
Davies et al. [1967]	$-0{,}45$	11,0%
Hayduk und Cheng [1971]	$-0{,}44$	11,6%

Aus Tab.3.4 folgt, dass die Proportionalität $D_{CO_2,LM} \propto \eta^{-0,5}$ für die ausgewählten Literaturdaten die geringsten Abweichungen zu den Messdaten ergibt. Für die CO_2-Diffusion bei 25 $°C$ in unpolaren Flüssigkeiten lässt sich demnach folgende Abschätzung ableiten:

$$\frac{D_{CO_2,LM}(25\ °C)}{m^2/s} = 0{,}388\ \frac{\eta^{-0,5}}{mPa\ s} \tag{3.8}$$

Daraus ergeben sich für die eingesetzten Silikonöle folgende Diffusionskoeffizienten:

Tabelle 3.5.: Nach (3.8) abgeschätzte Diffusionskoeffizienten in unendlicher Verdünnung bei 25 $°C$ (vergleiche Abb.3.5) sowie resultierende Sc Zahlen im Temperaturbereich 25-28,5 $°C$.

Silikonöl	η_f $[mPa\ s]$	$D_{CO_2,LM}$ $[m^2/s]$	Sc $[-]$
DC1	0,816	$4{,}30 \cdot 10^{-9}$	226
DC5	4,575	$1{,}81 \cdot 10^{-9}$	2700
DC10	9,340	$1{,}27 \cdot 10^{-9}$	7800

Es ist zu beachten, dass der Fehler der angegebenen Schätzung in Tab.3.5 etwa bei 10-20% liegt, was bei der Verwendung für die Bestimmung von Sh und Sc zu berücksichtigen ist.

3.2.3. Optische Eigenschaften

In diesem Abschnitt werden die grundlegenden Stoffeigenschaften für die im Rahmen dieser Arbeit angewandten optischen Analyse- und Messverfahren vorgestellt.

Lichtbrechung und Reflexion An der Phasengrenzfläche zweier transparenter Medien wird die eintreffende Wellenfront eines Lichtstrahls in Abhängigkeit des Einfallswinkels α^* sowie der Brechungsindizes der beiden Medien nach dem Snelliusschen Brechungsgesetz umgelenkt:

$$\frac{sin\alpha^*}{cos\beta^*} = \frac{n_2^*}{n_1^*} \tag{3.9}$$

Darin ist β^* der Ausfallswinkel im Medium mit n_2^*, nachdem die elektromagnetischen Wellen im Medium mit n_1^* unter dem Winkel α^* auf die Phasengrenze treffen. Die Brechungsindizes der verwendeten Silikonöle sowie Luft werden in Tab.3.6 aufgeführt:

Tabelle 3.6.: Brechungsindizes der Silikonöle [DowCorning, 1998] sowie von Luft [Hecht, 2009] bei 25 $°C$.

Substanz	Luft	DC1	DC5	DC10
Brechungsindex n^*	1,00029	1,382	1,397	1,399

Zusätzlich zum eindringenden Strahl wird ein Teil des Lichts an der Phasengrenzfläche reflektiert (partielle Reflexion), wobei stets gilt, dass der Einfallswinkel gleich dem Reflexionswinkel entspricht. Für den Spezialfall $\beta^* = 90°$ wird das gesamte Licht reflektiert und man spricht von

Totalreflexion. Dies kann jedoch nur eintreten, wenn das Licht von einem optischen dichteren in ein optisch dünneres Medium übergeht ($n_1^* > n_2^*$). Am Beispiel des Lichtübergangs von Silikonöl nach Luft ergibt sich nach (3.9) und Tab.3.6 als Grenzeinfallswinkel $\alpha_G^* = 45{,}6\text{-}46{,}4°$. Streng genommen tritt dies jedoch nur bei ideal transparenten Medien auf, da stets ein Teil der Strahlung mit einer bestimmten Wellenlänge absorbiert wird (abgeschwächte Totalreflexion). Das Prinzip der abgeschwächten Totalreflexion wird zum Beispiel bei IR-Analysemethoden mit Sonden angewendet.

Infrarotspektroskopie Die Analyse der CO_2-Beladung in den Silikonölen zur Berechnung der Stofftransportcharakteristika erfolgt mittels FTIR-Spektroskopie. Die FTIR-Spektroskopie unterscheidet sich von der IR-Spektroskopie dadurch, dass das Spektrum nicht durch schrittweises Ändern der Wellenlänge aufgenommen wird, sondern durch die Fourier Transformation eines Interferogramms berechnet wird. Grundsätzlich ist die IR-Spektroskopie eine Analysemethode zur Strukturaufklärung und zum quantitativen Nachweis von Molekülen, was auf den messbaren Wechselwirkungen zwischen Molekülen und der IR-Strahlung beruht [Günzler und Gremlich, 2003]. Strahlung des IR-Lichts ist langwellig ($\bar{\lambda} = 400\text{-}4000\ cm^{-1}$) und daher energieärmer als kurzwelliges Licht (zum Beispiel UV-Strahlung). Treffen IR-Strahlen ein Molekül, so wird die Photonenenergie absorbiert und das Molekül in Schwingungen versetzt; im Gegensatz dazu bewirken zum Beispiel bei der UV-Strahlung die Photonen das Anheben der Energieniveaus der Elektronen [Gey, 2008], siehe unten.
Im Bereich des IR-Spektrums wird die Strahlung nur von Molekülen mit unpolaren Bindungen beziehungsweise permanenten Dipolmomenten absorbiert, was am Beispiel der bekanntesten Treibhausgase Wasserdampf, Methan und Kohlenstoffdioxid besonders deutlich wird. Das CO_2-Molekül absorbiert trotz seines linearen Molekülaufbaus und den polaren Bindungen Infrarot-Strahlung, da es ein ausreichend großes inneres Dipolmoment besitzt [Günzler und Gremlich, 2003]. Diese Tatsache, sowie die konkrete Gestalt der IR-Spektren ermöglicht schließlich die quantitative Bestimmung der CO_2-Mengen im Silikonöl, siehe Abb.3.6 und Abb.B.3.
In Abb.3.6 werden die IR-Spektren von CO_2 und $C_6H_{18}OSi_2$ (entspricht einem Silikonöl in 3.1 ohne Repitiereinheit ($r = 0$); zum Vergleich ergibt $r = 1$ das Öl DC1 mit $C_8H_{24}O_2Si_3$) gegenübergestellt. Wie in diesem Bild zu erkennen ist, erscheinen die Wellenzahlen um etwa 2300-2400 cm^{-1} geeignet zur Konzentrationsanalyse von CO_2 in dem Gas eines niedrigviskosen Silikonöls. Im Laufe der Untersuchungen konnte die Analysemöglichkeit mittels FTIR-Spektroskopie für die flüssigen Silikonöle DC1, DC5 und DC10 im gleichen Wellenzahlenbereich bestätigt werden, siehe Abb.B.3. Die Tatsache, dass CO_2 in Gasform sowie im Silikonöl gelöst jeweils annähernd identische Infrarotspektren aufweist, lässt den Schluss zu, dass das CO_2 nur eine lockere physikalische Bindung mit dem Silikonöl eingeht. Die Vermutung aus 3.2.1, dass es sich um eine Physisorption handelt kann somit bestätigt werden.
Zur Probenanalyse wird schließlich ein FTIR-Spektrometer (*IR Prestige-21* von Shimadzu) nach dem Transmissionsprinzip verwendet. Das heißt, die Probe wird in eine Küvette (siehe Abb.B.2) mit dünnen Abstandshaltern (Schichtdicke $d = 0{,}5\text{-}1\ mm$) gefüllt und mit IR-Strahlung der Intensität I_0 beaufschlagt. Nach dem Lambert-Beer'schen Gesetz kann aus der Schwächung der

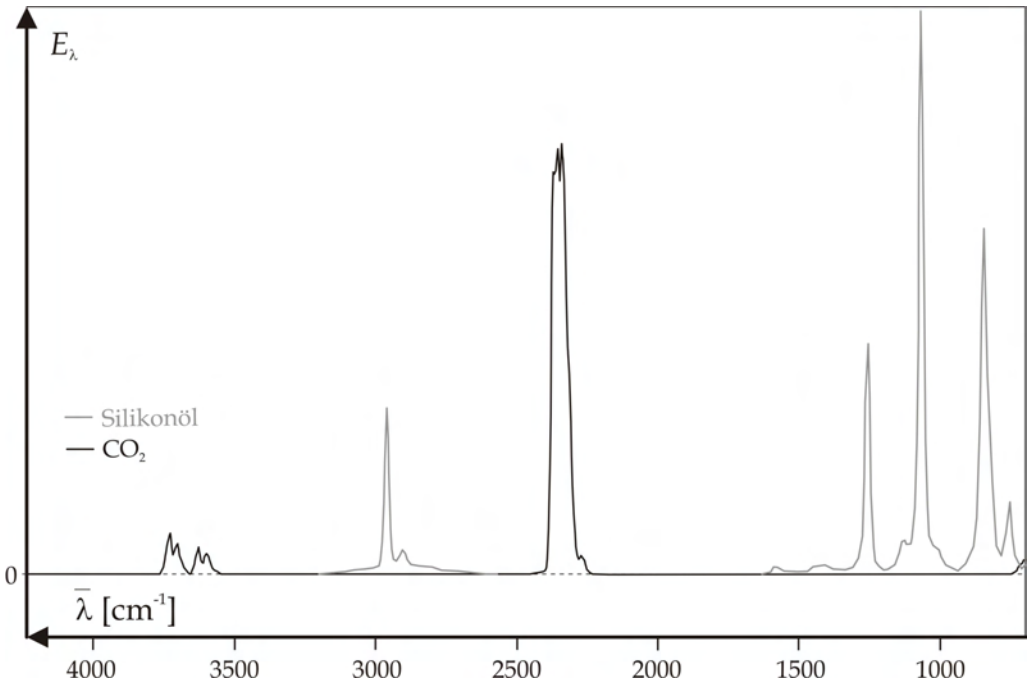

Abbildung 3.6.: Qualitative Darstellung der IR-Spektren von gasförmigem CO_2 sowie Hexamethyldisiloxan ($C_6H_{18}OSi_2$) nach Ansyco [2011]. Eigene Analysen mit CO_2 in flüssigen Silikonölen ergeben einen Absorptionspeak bei 2337,72 cm^{-1}, siehe Abb.B.3.

Infrarotstrahlung auf die molare Konzentration der CO_2-Moleküle geschlossen werden, wenn der molare Extinktionskoeffizient ϵ_λ bekannt ist, es gilt:

$$E_\lambda = -log\ \left(\frac{I}{I_0}\right)_\lambda = \epsilon_\lambda\ c_{CO_2}\ d \tag{3.10}$$

Für die Analysen der Proben aus den Stoffübergangsmessungen in 4.1 sind jedoch eigene Kalibrierlösungen angesetzt worden, um den Zusammenhang aus CO_2 Beladung X_{CO2} und korrelierter CO_2 Peakfläche der Extinktion E_λ (Absorbanz des Materials für Licht der Wellenlänge λ) bei den unterschiedlichen Ölen zu bestimmen, siehe 4.1.2.
Interessanterweise liegen die geeigneten Schichtdicken zur CO_2 Konzentrationsanalyse mit $d = 0{,}5\text{-}1\ mm$ für den Beladungsbereich $X_{CO_2} \approx 0{,}5\text{-}3\ mg/g$ in der gleichen Größenordnung der Filmdicken δ_N, so dass an diesem Stoffsystem lokale IR-Konzentrationsmessungen in zukünftigen Arbeiten theoretisch möglich sind. Im Rahmen dieser Arbeit wird das Stoffübergangsverhalten global betrachtet, dass heißt, es werden Proben am Ein- und Austritt der Fallfilmabsorption entnommen und die Proben in einem Offline-Analysegerät ausgewertet. Zur Klärung spezieller lokaler Stoffübergangseffekte in Analogie zu Schagen und Modigell [2005] könnte diese Methode jedoch in Zukunft erweitert werden.

Fluoreszenzspektroskopie Für die Bestimmung der Filmdickenverteilung mittels LIF in 4.2.1 sowie der Filmgeschwindigkeiten mittels PIV in 4.2.3 wird das Phänomen der Fluoreszenz ausgenutzt, um berührungslose Strömungsmessungen durchzuführen, vergleiche [Ausner, 2006; Pasch-

ke, 2012]. Hierbei werden gezielt Moleküle mit energiereicher Strahlung derart angeregt, so dass die absorbierte Photonenenergie zur Anhebung des Energieniveaus von Elektronen dient. Die Elektronen gelangen dann durch einen *stokesschen Übergang* in einen Zwischenzustand, wodurch Photonen mit geringerer Energie als die der Anregungsphotonen, demnach mit höherer Wellenlänge emittiert werden. Dieser Vorgang geschieht entweder innerhalb sehr kurzer Zeiten von etwa 10^{-7} s (*Fluoreszenz*) oder nach längerer Zeit von einigen Sekunden bis einigen Stunden (*Phosphoreszenz*) [Hecht, 2009].
Insbesondere die Verschiebung der Wellenlängen von absorbierter (λ_a) und emittierter (λ_e) elektromagnetischer Strahlung kann technisch genutzt werden. Bei Kenntnis der jeweiligen Fluoreszenzspektren ist es daher möglich Lichtquelle und Kamerafilter so auszulegen, dass nur Fluoreszenzinformationen aufgezeichnet werden, die nicht von störenden Lichtinformationen überlagert sind. Somit beziehen sich die gewonnenen Helligkeitsinformationen auf spezielle Strömungsvorgänge, welche man gezielt visualisieren kann.

Im Folgenden werden die für diese Arbeit notwendigen Stoffeigenschaften verwendeter fluoreszenter Substanzen in Form von Fluoreszenzspektren beziehungsweise den zugehörigen Wellenlängen bereitgestellt; Details zu den jeweiligen Messmethoden sind dem Abschnitt 4.2 zu entnehmen.

Aus der Arbeit von Al-Sibai [2005] ist bekannt, dass der Farbstoff **Coumarin 152A** (C152A, $C_{14}H_{14}NO_2F_3$, $\widetilde{M}_{C152A} = 285{,}27\ g/mol$) für Filmdickenmessungen nach dem LIF-Verfahren bei Silikonölen geeignet ist. Allerdings hängt die Wellenlänge der emittierten Strahlung stark von dem verwendeten Lösemittel ab; so verschiebt sich zum Beispiel für C152A ein Emissionsmaximum von $\lambda_{e,max,Ethanol} = 510\ nm$ [Brackmann, 2000] auf $\lambda_{e,max,DC5} \approx 440\ nm$. Da diese Information bezüglich der tatsächlich verwendeten Silikonöle für die Auslegung des optischen Messsystems entscheidend ist, sind eigene Messungen mit einem Fluoreszenzspektrometer (*F-4500* von Hitachi) am Institut für Chemie an der TU Berlin durchgeführt worden, siehe Abbildung 3.7.
In Abb.3.7 werden beispielhaft die Ergebnisse für DC1 und DC10 präsentiert, wobei bei gleicher Anregungsfrequenz $\lambda_a = 316\ nm$ die Fluoreszenzmaxima um nur wenige Nanometer verschoben sind. Am nebenstehenden Beispiel von DC10 ist zu erkennen, dass das Emissionsmaximum von $\lambda_{e,max} \approx 440\ nm$ zwei Anregungsmaxima $\lambda_{a,max,1} \approx 440\ nm$ und $\lambda_{a,max,2} \approx 316\ nm$ besitzt.
Als Lichtquelle für die LIF Messungen wird schließlich eine UV-LED-Lampe (*FRDA202* von IGB-Tech) mit maximaler Strahlungsintensität bei 395 nm verwendet. Aufgrund der monochromen Eigenschaften (*Einfarbigkeit*) von LED's besitzt das genannte Gerät ein schmales Leuchtspektrum, so dass für die Kamera ein passender Bandpassfilter mit den Eigenschaften cut-on $\approx 440\ nm$, Transmissionsmaximum von 70% bei $\approx 510\ nm$ sowie cut-off $\approx 580\ nm$ erfolgreich verwendet werden kann, siehe 4.2.1 und 4.2.2.

In der Arbeit von Paschke [2012] werden mit **Rhodamin B** ($C_{28}H_{31}ClN_2O_3$) besetzte Melaminharzpartikel für μPIV Messungen verwendet. Diese Partikel werden mit einem Laser der Wellenlänge 532 nm angeregt und deren Verlauf in der Strömung mittels Kamera (Bandpass-

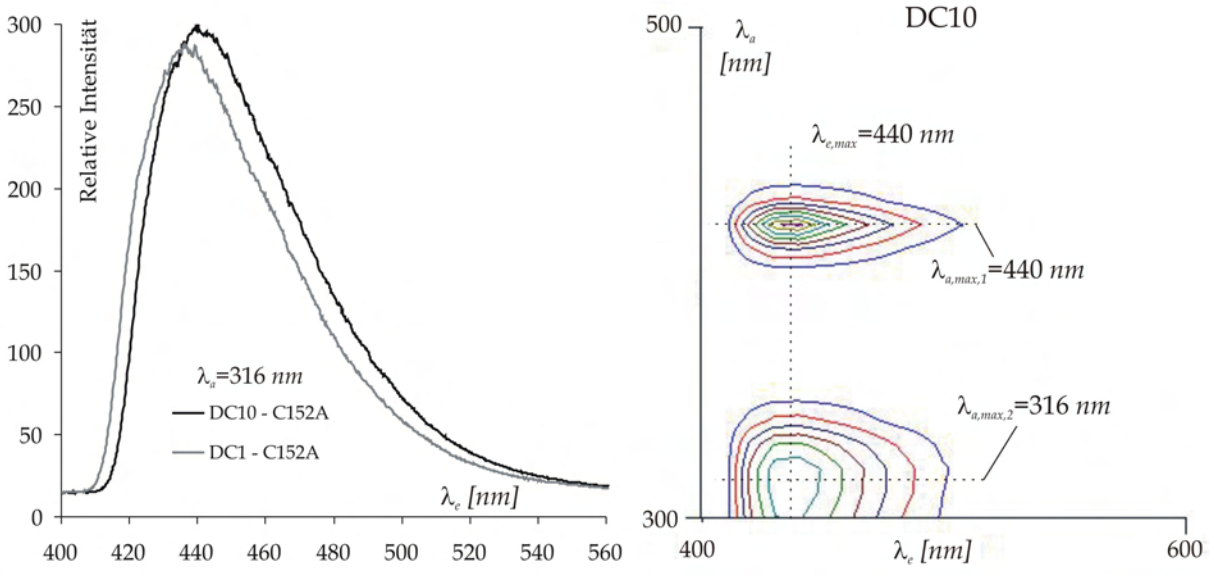

Abbildung 3.7.: Fluoreszenz-/ Emissionsspektren für C152A in DC1 und DC10 bei der Anregungsfrequenz $\lambda_a = 316\ nm$ sowie rechts für DC10 und C152A bei den Anregungsfrequenzen $300\ nm < \lambda_a < 500\ nm$ unter Kennzeichnung der jeweiligen Intensitätsmaxima.

filter mit Maximaltransmission von 75% bei $590 \pm 2\ nm$) verfolgt. Am Beispiel der Mehrphasenströmung wird das System aus DC10 und Melaminharzpartikel mit Rhodamin B (mittlerer Partikeldurchmesser 4,02±0,09 μm, $\lambda_{a,max} = 560\ nm$, $\lambda_{e,max} = 584\ nm$ und Dichte 1510 kg/m^3) erfolgreich eingesetzt.

Im Rahmen dieser Arbeit sind ebenfalls mit Rhodamin B dotierte Melaminharzpartikel erfolgreich für DC1, DC5 und DC10 mit den genannten Eigenschaften von Laser und Kamerafilter genutzt worden. Dabei werden für μPIV-Messungen Partikeldurchmesser mit $4{,}02 \pm 0{,}09\ \mu m$ sowie für PIV-Messungen aufgrund ihrer höheren Leuchtkraft $10{,}20 \pm 0{,}17\ \mu m$ verwendet. Wie von Paschke [2012] angemerkt besitzen die 4,02 μm-Partikel hydrophobe Eigenschaften und können damit problemlos in Silikonöl dispergiert werden. Die 10,20 μm-Partikel liegen hingegen in Wasser dispergiert vor, so dass diese getrocknet, mit Ethanol entklumpt sowie erneut getrocknet werden müssen, um sie schließlich in Silikonöl fein dispergieren zu können.

3.2.4. Benetzungseigenschaften

Bei dem Betrieb von Packungskolonnen bildet die flüssige Phase in der Regel eine Film-, Rinnsal- oder Tropfenströmung aus. Welche Strömungsform überwiegend vorliegt hängt neben den Stoff- und Materialeigenschaften zudem von der Flüssigkeitsbelastung ab. Dabei wird eine möglichst gleichmäßige Filmströmung angestrebt, um die größtmögliche Stofftransportoberfläche bereitzustellen. Im Rahmen der Hauptuntersuchungen liegt stets eine Filmströmung von Silikonöl vor, damit der Mikrostruktureinfluss entsprechend der Zielstellung studiert werden kann. Für eine generelle Bewertung von Mikrostrukturen stellt sich jedoch die Frage, in wie fern die Benetzungseigenschaften und damit die Stoffaustauschfläche beeinflusst werden kann, wenn die verwendete Flüssigkeit nicht die idealen Benetzungseigenschaften von Silikonölen aufweist.

Für die Untersuchung von Benetzungseigenschaften ist insbesondere die Kennzeichnung der Wechselwirkung von Flüssigkeit und fester Oberfläche von grundlegender Bedeutung. Für deren Charakterisierung wird der sogenannte Kontaktwinkel θ herangezogen, welcher sich nach der Young-Dupré-Gleichung wie folgt zusammensetzt:

$$\sigma_{fg}\ cos\theta = \sigma_{sg} - \sigma_{sf} \tag{3.11}$$

Die Gleichung (3.11) gilt jedoch nur für einen statischen (im Gleichgewicht vorliegenden) Tropfen beziehungsweise Bach auf einer glatten Oberfläche, siehe Abbildung 3.8. Allgemein bezeichnet

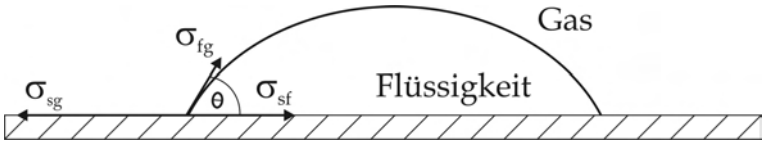

Abbildung 3.8.: Schematische Darstellung zur Definition des statischen Kontaktwinkels.

man Systeme mit $\theta < 90°$ als benetzend [Ausner, 2006], wobei mit abnehmenden Kontaktwinkel die Benetzung einer Oberfläche verbessert wird. In der Praxis stehen die Oberflächenspannungen verschiedener Flüssigkeiten σ_{fg} zwar häufig zur Verfügung beziehungsweise lassen sich diese Werte relativ einfach experimentell ermitteln; die übrigen Grenzflächenenergien in (3.11) liegen in der Literatur jedoch nur für Ausnahmefälle vor. Aus diesem Grund ist es zurzeit gängige Praxis den Kontaktwinkel experimentell zu bestimmen, vergleiche Paschke [2012]. Dabei ist zu unterscheiden, ob der Tropfen eine Flüssigkeitszunahme oder -abnahme erfährt beziehungsweise eine Neigung gegen die Horizontale vorliegt oder nicht; man unterscheidet dann zwischen Fortschreit- und Rückzugswinkeln. In diesen Fällen erhält man einen vom statischen Kontaktwinkel θ nach (3.11) sehr unterschiedlichen Winkel an der Dreiphasengrenze, Beispiele siehe [Ausner, 2006; Paschke, 2012].

Grundsätzlich lässt sich festhalten, dass im Allgemeinen mit sinkender Oberflächenspannung σ_{fg} der Kontaktwinkel ebenfalls abnimmt und damit die Benetzung verbessert wird. Dabei gibt es große Unterschiede in Abhängigkeit der festen Oberfläche, so dass zum Beispiel poröse Keramiken häufig besser benetzt werden können als Edelstahl, PVC oder Teflon, siehe Abbildung A.3. Weiterhin ist der Einfluss der Viskosität auf den statischen Kontaktwinkel bei annähernd gleichen Oberflächen zu vernachlässigen [Nicolaiewsky und Fair, 1999]. Die Viskosität (*innere Reibung*) beeinflusst nur die Dynamik bis zum Erreichen des statischen Kontaktwinkels, aber der Einfluss auf den Endwert wird durch σ_{fg} dominiert.

Wie im Anhang A.4 erläutert lassen sich Kontaktwinkel auf 3d-Mikrostrukturen experimentell nur mit größeren Ungenauigkeiten bestimmen, so dass in der Regel Überströmversuche notwendig sind, um deren Benetzungseigenschaften charakterisieren zu können. Dies wird im Rahmen dieser Arbeit mit den in 4.2.2 beschriebenen Methoden durchgeführt. Die hierzu verwendeten festen Oberflächen werden in Abschnitt 3.3 näher beschrieben. Die relevanten Stoffeigenschaften

der dafür verwendeten Flüssigkeiten werden in der Tabelle 3.7 aufgeführt. Die Angabe $\theta \leq 7°$ für

Tabelle 3.7.: Stoffeigenschaften für Benetzungsuntersuchungen für wässrige Lösungen bei 20 $°C$ (*Messwerte, **[Dow], $^+$[Cheng, 2008], $^{++}$[Romero und Paez, 2006]) sowie für DC5 bei 25 $°C$ aus [DowCorning, 1998].

	θ [°]	ρ_f $[kg/m^3]$	η_f $[mPa\ s]$	σ_{fg} $[mN/m]$ (25 $°C$)
0 Gew-% Glyzerin (H_2O)	76,6±3,0*	998**	1,0$^+$	71,8^{++}
45 Gew-% Glyzerin	69,2±3,2*	1113**	4,6$^+$	67,5^{++}
50 Gew-% Glyzerin	67,8±3,5*	1127**	5,9$^+$	67,2^{++}
DC5	$\leq 7°$	920	4,6	19,7

DC5 kann nur als Grenzwert angegeben werden, da mit vorhandener Messmethode (*Liegender Tropfen*) Werte unterhalb 7° nicht mehr genau bestimmbar sind. Dies ist auch nicht notwendig, da ab diesem Grenzwert bereits von optimaler Benetzung gesprochen werden kann und eine Änderung auf diesem sehr niedrigen Niveau lediglich zu vernachlässigbaren Benetzungsänderungen führt. Die Wahl der Stoffsysteme in Tab.3.7 unterliegt der Systematik zum einen den Viskositäts- beziehungsweise Geschwindigkeitseinfluss bei vergleichbarer Oberflächenspannung zu studieren (Wasser versus Wasser-Glyzerin-Lösungen) sowie bei gleichbleibender Viskosität/ Fließgeschwindigkeit den Effekt der Oberflächenspannung herauszuarbeiten (Wasser-Glyzerin versus DC5).

3.3. Packungsmaterialien

Die hier verwendeten, aus Edelstahl gefertigten, Packungsmaterialien sind ausnahmslos Ausgangsmaterialien realer strukturierter Packungen der Firmen Sulzer Chemtech und Montz. Für den Hauptteil der Untersuchungen werden mikrostrukturierte Bleche ohne Makrostruktur verwendet; diese Bleche werden auf ebenen Platten befestigt. Für die Benetzungstests werden neben Mikrostrukturen auf einer geneigten Platte auch makrostrukturierte Bleche eingesetzt.

Bei den Mikrostrukturen handelt es sich sowohl um 2d- als auch um 3d-Typen. Der verwendete 2d-Typ besitzt wellenförmige Erhebungen mit Amplituden, die in der Regel kleiner sind als die innerhalb dieser Untersuchungen möglichen Nusselt-Filmdicken. Des Weiteren kommen drei unterschiedliche 3d-Typen zum Einsatz, welche über pyramidische Erhebungen in Anlehnung an Abb.3.9 links verfügen. Die Größenordnungen der untersuchten 3d-Typen liegen im Bereich, der im Patent von Plüss [1991] angegebenen Amplituden. Als Unterscheidungsmerkmal der 3d-Typen dient die Größe der Mikrostrukturen, die sich in fein (3d-A), mittel (3d-B) und grob (3d-C) unterteilen lässt. Für Stofftransportmessungen mit DC5 ist zudem die von Paschke [2012] fluiddynamisch untersuchte Tetraeder-Textur (3d-T) von Montz eingesetzt worden. Die Amplituden von 3d-A und 3d-T liegen in der selben Größenordnung und es ergibt sich folgende Reihenfolge $A_{S,2d} < A_{S,3d-T} < A_{S,3d-A} < A_{S,3d-B} < A_{S,3d-C}$. Näherungsweise Größenangaben sind in Tab.2.4 zu entnehmen; im Betrieb treten zudem Nusselt-Filmdicken von $0{,}2 \leq \delta_N \leq 0{,}8$

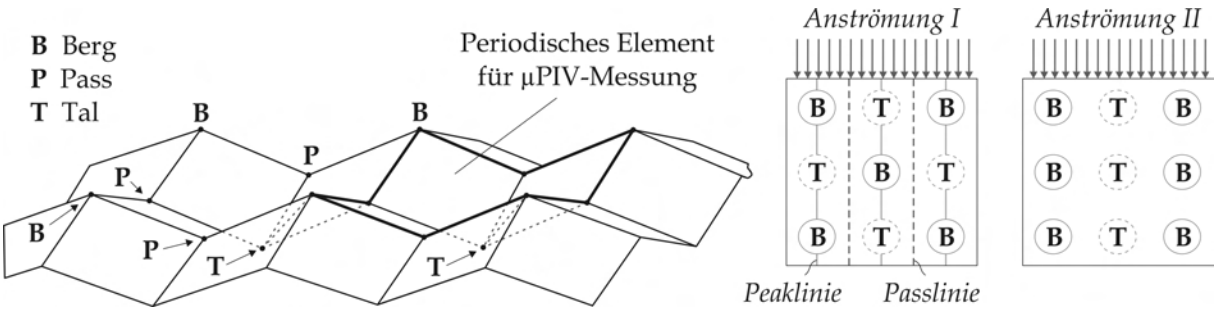

Abbildung 3.9.: Links: Schematische Darstellung der eingesetzten 3d-Typen (A, B und C) nach Plüss [1991] sowie Kennzeichnung charakteristischer Positionen und Ort eines periodischen Elementes für μPIV-Messungen. Rechts: Untersuchte Anströmkonfigurationen sowie Kennzeichnung von *Peak-* und *Passlinie*.

auf, so dass im Rahmen der Untersuchungen in etwa der Bereich $0{,}2 \leq \delta^* \leq 13$ abgedeckt wird. Im Vergleich hierzu werden bei Davies und Warner [1969] etwa $0{,}5 < \delta^* < 1{,}2$ sowie bei Argyriadi et al. [2006] etwa $0{,}6 < \delta^* < 10$ realisiert.

Neben der Strukturdimension wird bei den Typen 3d-A, 3d-B und 3d-C für die Benetzungstests an geneigter Plattengeometrie (s. 4.2.2) zudem die Anströmrichtung variiert. Bei der Konfiguration *Anströmung I* tritt entlang der Hauptströmungsrichtung ein Wechsel zwischen Berg und Tal auf (*Peaklinie*), wobei zwischen dieser *Peaklinie* jeweils versetzt die Pässe vorliegen (*Passlinie*). Bei der *Anströmung II* folgt die Hauptströmung der Abfolge Berg, Pass, Berg, usw. sowie Tal, Pass, Tal, usw. Je nach Flüssigbelastung ist zu erwarten, dass bei *Anströmung II* ein Großteil der Flüssigkeit entlang der Talfolge strömt, während bei *Anströmung I* aufgrund des periodischen Wechsels von Strukturhoch- und Tiefpunkt eine Zick-Zack-Bewegung der Flüssigkeit hervorgerufen werden kann. Im Rahmen der Hauptuntersuchungen (Stofftransport- und Strömungsmessungen) wird die *Anströmung I* für die 3d-Typen A, B und C verwendet. Als Nebenbetrachtung wird zudem die *Anströmung II* im Rahmen von Benetzungstests für 3d-B und 3D-C untersucht.
Für die oben genannte Einzelmessung von 3d-T bei DC5 wird die Oberfläche wie in Abbildung 3.10 dargestellt installiert und von oben überströmt. Die dort abgebildete Anordnung kann keiner der Anströmrichtungen in Abb.3.9 zugeordnet werden. Zudem ergibt sich zwischen der periodischen Anreihung von Tetraeder- beziehungsweise Pyramidennegative ein Unterschied des Umströmwinkels (60° bzw. 45°), was jeweils durch die Anzahl der von den Mikrostrukturen aufgespannten Flächen begründet ist.

Im Rahmen von Benetzungstests werden zudem makrostrukturierte Packungsbleche eingesetzt. Diese Bleche sind reale Elemente strukturierter Packungen, aus denen jeweils ein Packungssegment zusammengesetzt werden kann. Es kommen vier Bleche zum Einsatz, wobei folgende Unterscheidungsmerkmale zu nennen sind:

- Mit oder ohne Mikrostrukturen

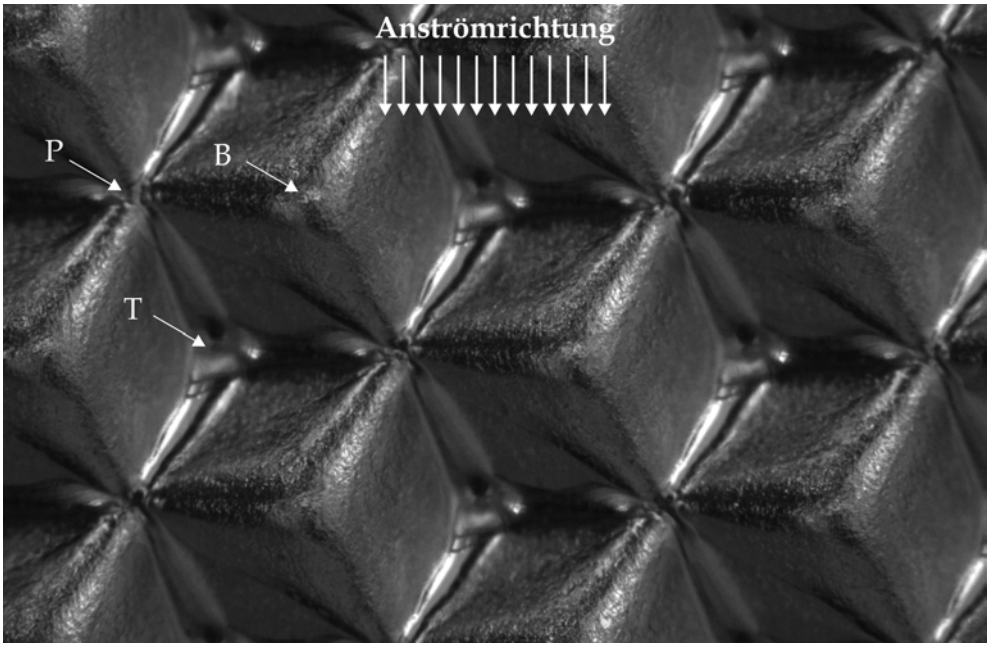

Abbildung 3.10.: Ausschnitt einer mikroskopischen Aufnahme von 3d-T ($A_S \approx 275\ \mu m$, $P_S \approx 2{,}1\ mm$).

- Mit oder ohne Perforierungen (hier kreisrunde Durchstöße des Blechs)
- Spezifische Packungsoberfläche a_V eines Segments (Hier nur einzelne Bleche, daher ergeben sich Unterschiede in Amplituden und Wellenlänge (Abstände) der Makrostrukturen

Alle Bleche sind aus Edelstahl gefertigt und die Makrostrukturen besitzen eine Neigung gegen die Horizontale von 45° (entspricht Kanalwinkel). Tabelle 3.8 gibt eine Übersicht der verwendeten Packungsbleche inklusive charakteristischer Unterscheidungsmerkmale.

Tabelle 3.8.: Eigenschaften makrostrukturierter Packungsbleche für Benetzungsuntersuchungen.

	Mellapak.350.Y® (A)	Mellapak.350.Y® (B)	Mellapak.250.Y®	B1-300®
a_V $[m^2/m^3]$	350	350	250	300
Mikrostruktur	ohne	mit	mit	mit
Perforierung	mit	mit	mit	ohne

4. Messmethoden

Wie in Abschnitt 2.3 dargelegt ist der Schwerpunkt dieser Arbeit die experimentelle Untersuchung des Mikrostruktureinflusses auf Stofftransport und Fluiddynamik. In einem ersten grundlegenden Schritt wird an unterschiedlich mikrostrukturierten Oberflächen der Effekt der Struktur auf den Stofftransport in Relation zu einer glatten Oberfläche in Abhängigkeit von Viskosität sowie von Gas- und Flüssigbelastungen analysiert und bewertet. Zur Ursachenklärung beobachteter Stofftransportphänomene werden unterschiedliche Strömungsmessungen durchgeführt.
Damit sowohl Stofftransportmessungen als auch detaillierte Messungen zur Fluiddynamik an dem selben Versuchsaufbau möglich sind, wird die komplexe Packungsgeometrie auf eine einfache Plattengeometrie reduziert. Anhand dieser Untersuchungen wird zunächst das Potential der Mikrostrukturen bezüglich des Stofftransporteffekts aufgezeigt sowie die damit verbundenen Strömungsmechanismen aufgedeckt. Mit Hilfe dieser Grundlagenuntersuchungen wird es in Zukunft möglich sein, Packungsgeometrien gegebenenfalls hinsichtlich ihres Mikrostrukturdesigns zu optimieren.
Hierzu werden in diesem Kapitel die Methodik und Realisierung der Stofftransportuntersuchungen in Abschnitt 4.1 sowie die unterschiedlichen optischen Strömungsmessverfahren der Haupt- und Nebenuntersuchungen in Abschnitt 4.2 vorgestellt.

4.1. Stofftransportmessungen

In diesem Abschnitt wird zunächst das Messprinzip unter Einhaltung der Anforderungen aus Abschnitt 2.3 in 4.1.1 dargelegt. Die Realisierung sowie wesentliche Prozessdetails des Verfahrenskonzeptes werden in 4.1.2 aufgeführt.

4.1.1. Messprinzip der Fallfilmabsorption

Einleitung Stofftransportmessungen an Platten- oder Zylindergeometrien sind für Filmströmungen auf glatten Oberflächen in der Literatur zahlreich dokumentiert, s. Abschnitt 2.1.2. Hierbei werden typischer Weise die Stoffpaarungen Wasser und CO_2 oder O_2 eingesetzt, wobei aufgrund der vorliegenden relativ langsamen Reaktion 1. Ordnung der Stofftransport flüssigkeitsseitig dominiert ist. Allerdings müssen aufgrund schlechter Benetzungseigenschaften von Wasser auf Edelstahloberflächen sehr hohe Flüssigbelastungen eingestellt werden, um unter stabilen Bedingungen eine vollständig benetzte Plattenoberfläche zu erhalten. Des Weiteren ist die Variation der Stoffeigenschaften Viskosität sowie Oberflächenspannung durch Zugabe von Glyzerin oder Alkoholen zwar möglich, allerdings muss dann ein relativ hoher experimenteller Aufwand betrieben werden, um die Stoffeigenschaften für umfangreiche Messkampagnen kon-

stant zu halten. Insgesamt ist der Einsatz unterschiedlich viskoser Silikonöle für die angestrebte systematische Untersuchung besser geeignet als die Verwendung von Wasser beziehungsweise wässrigen Mischungen. Aufgrund der geringen Oberflächenspannung der Silikonöle und dem damit einhergehenden niedrigen Kontaktwinkel auf Edelstahl wird eine vollständige Benetzung bereits bei kleinen Flüssigkeitsbelastungen ermöglicht.
Die Tatsache, dass das CO_2 nur physikalisch im Silikonöl gelöst wird, ermöglicht grundsätzlich die Realisierung des flüssigkeitsseitig dominierten Stofftransports. Weiterhin wird beim verwendeten Messprinzip dafür gesorgt, dass die Gasphase aus reinem CO_2 besteht beziehungsweise die Gaszusammensetzung konstant bleibt. Die absorbierten Gasmengen sind aufgrund des moderaten Betriebsdrucks so gering, dass die lokale CO_2-Partialdruckabnahme in der Gasphase klein gehalten wird. Aus diesen Gründen wird der dominierende Stofftransportwiderstand für die Silikonöle und CO_2 auf die flüssige Phase reduziert. Diese Grundvoraussetzung zur geforderten Charakterisierung unterschiedlicher Mikrostrukturen kann dahin gehend genutzt werden, redundante Stofftransportmessungen durchzuführen, siehe unten.

Redundante Stofftransportmessung Zur Absicherung beziehungsweise Steigerung der Messwertgüte experimenteller Untersuchungen wird häufig auf das Prinzip redundanter Zielwertbestimmung zurückgegriffen. In diesem Fall bedeutet dies die Bestimmung des übergehenden CO_2-Massenstroms $\dot{M}_{CO2}$ mittels zweier unabhängiger Messmethoden. Zum besseren Verständnis der folgenden Prozessbeschreibung sei auf Abbildung 4.1 verwiesen.

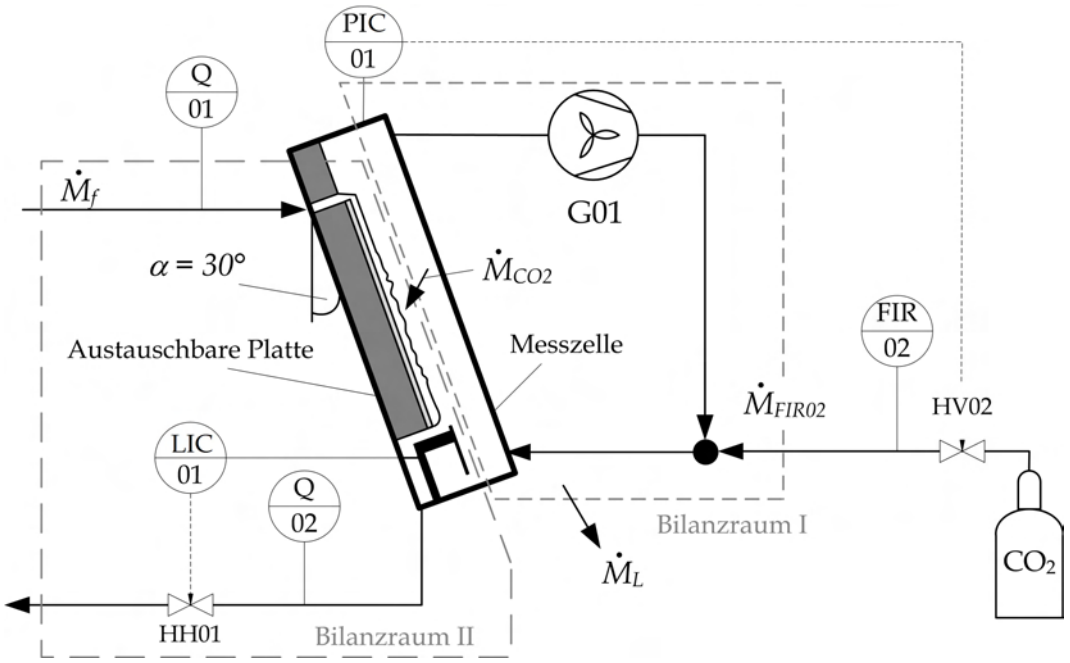

Abbildung 4.1.: Prinzipschema zur Fallfilmabsorption mit redundanter Stofftransportmessung.

In Abb. 4.1 ist die um 30° gegen die Vertikale geneigte Messzelle mit den ein- und austretenden Gas- und Flüssigströmen skizziert. In der Messzelle ist eine austauschbare Platte installiert,

die mit unterschiedlichen Oberflächen versehen werden kann. Die Flüssigkeit gelangt über ein Überlaufwehr in die Messzelle und überströmt als geschlossener Rieselfilm die jeweilige Platte. Am Ablauf wird mittels Handhahn HH01 ein konstanter Level eingestellt, damit dort kein Gas entweichen kann und das Gasvolumen in der Messzelle während des Betriebs konstant gehalten wird. Im Gegenstrom wird reines CO_2-Gas im Kreis geführt, wobei die Gasbelastung über die Leistung des Gebläses G01 gesteuert werden kann. Während der Absorptionsmessungen wird ein Druck von PIC01$= 1{,}053 \pm 0{,}001$ *bar* eingestellt, so dass keine Inertgase aus der Umgebungsluft in die Messzelle gelangen können. Aufgrund der Gasabsorption nimmt jedoch der Druck in der Messzelle ab, was durch Zufuhr von CO_2 über HV02 und FIR02 kompensiert werden muss, um einen stationären Betriebsdruck einzustellen. Prinzipiell entspricht die zu dosierte CO_2-Gasmenge der absorbierten CO_2-Menge und kann bei FIR02 abgelesen werden. Tatsächlich entweicht aufgrund des Überdrucks in der Messzelle eine geringe Menge an Gas, welche sich mittels FIR02 unter Betriebsdruck und ohne Absorption als Leckrate $\dot{M}_L$ erfassen lässt. Die Massenbilanz um den Bilanzraum I ergibt die absorbierte CO_2 Menge im Rieselfilm:

$$\dot{M}_{CO2,FI} = \dot{M}_{FIR02} - \dot{M}_L \tag{4.1}$$

Damit ist die erste Methode (*FI-Methode*) zur Bestimmung der übergehenden Stoffmenge $\dot{M}_{CO2,FI}$ bereitgestellt.
Die zweite Methode (*IR-Methode*) erfordert die Analyse von Flüssigkeitsproben, die am Ein- und Austritt entnommen werden (Q01 und Q02). Mittels FTIR-Analyse (siehe 3.2.3) lässt sich schließlich die jeweilige CO_2 Beladung bestimmen. Daraus kann man mittels globaler Massenbilanz um den Rieselfilm die absorbierte CO_2 Menge wie folgt berechnen:

$$\dot{M}_{CO2,IR} = \dot{M}_f \ (X_{CO2,aus} - X_{CO2,ein}) \tag{4.2}$$

Wobei angenommen wird, dass der Flüssigmassenstrom $\dot{M}_f$ trotz der CO_2 Aufnahme konstant bleibt. Diese typische Annahme ist hier gerechtfertigt, da Gasbeladungsunterschiede während der Experimente im Promillebereich liegen.
Die redundante Zielwertbestimmung von $\dot{M}_{CO2}$ durch die Gleichungen (4.1) und (4.2) kann schließlich für die so genannte *Data Reconciliation* beziehungsweise dem Ausschluss grober Messfehler genutzt werden [Narasimhan und Jordache, 2000]. Hierbei werden im Wesentlichen die Messunsicherheiten, sofern sie aus Herstellerangaben bekannt sind oder sinnvoll abgeschätzt werden können, bei den einzelnen Messgrößen berücksichtigt. Die aufgenommenen Messgrößen werden mittels dieser Methode schließlich im Rahmen der Fehlertoleranzen variiert, so dass die Bilanzgleichungen (hier $\dot{M}_{CO2} = \dot{M}_{CO2,FI} = \dot{M}_{CO2,IR}$) erfüllt werden. Statistisch gesehen lässt sich damit die Messwertgüte steigern beziehungsweise können grobe Messfehler (*Ausreißer*) leicht identifiziert werden.

4.1.2. Realisierung des Messsystems

Zur erfolgreichen Durchführung reproduzierbarer Messkampagnen sind Standardarbeitsanweisungen ([SOP-Nr.62, 2009; SOP-Nr.63, 2009]) entwickelt worden, die alle wesentlichen Arbeits-

schritte inklusive Vor- und Nachbereitung beschreiben. Die Laboranlage ist nicht automatisiert, so dass für den Absorptionsbetrieb zwei Anlagenfahrer und für die übrigen Schritte ein Anlagenfahrer benötigt wird. Die Funktionsweise sowie anlagenspezifische Bezeichnungen für die folgende Prozessbeschreibung sind der Abbildung 4.2 zu entnehmen. Im Versuchsaufbau in Abb.4.2

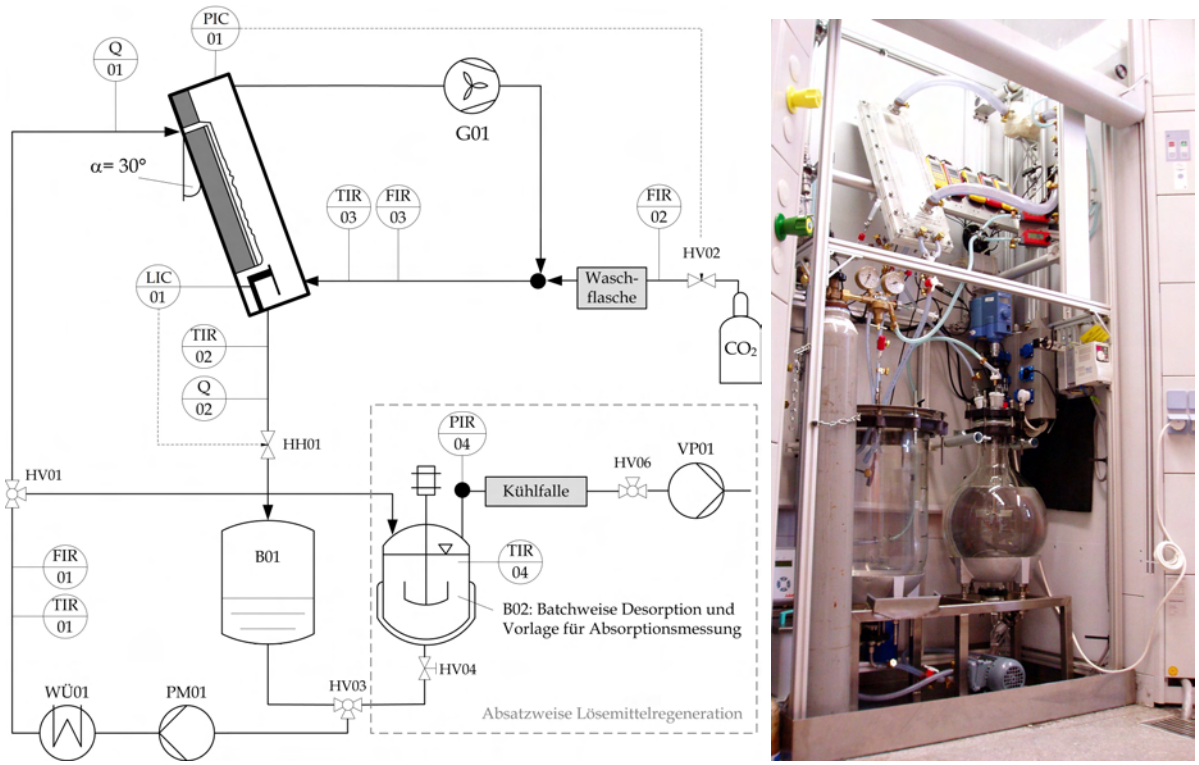

Abbildung 4.2.: Verfahrensfließbild des realisierten semi-kontinuierlichen Versuchskonzepts zur Fallfilmabsorption mit absatzweiser Vakuumdesorption sowie Foto der Anlage im Laborabzug.

sind die Waschflasche und die Kühlfalle nur bei Verwendung von DC1 notwendig. Die Kühlfalle vor der Vakuumpumpe verhindert bei der Tiefdruckdesorption, dass größere Mengen DC1 in die Pumpe gelangen können beziehungsweise es werden die Lösemittelverluste reduziert. Die Waschflasche wird mit DC1 gefüllt, um die Gasphase mit DC1 zu sättigen, wodurch das Verdunsten von DC1 aus der Filmströmung verhindert werden kann. Dies ist notwendig, damit die Dominanz des flüssigkeitsseitigen Stofftransports gewährleistet wird; es hat sich zudem im Laufe der Experimente gezeigt, dass durch diese Maßnahme die maximale Messwertstreuung für eine Versuchsreihe von 15% auf 5% reduziert werden konnte.
Als Durchflussmessgeräte sind für FIR01 drei Schwebekörperdurchflussmessgeräte (Rotameter) sowie für FIR02 vier thermische Massendurchflussmessgeräte (*GM-10* von Profimess GmbH) mit jeweils unterschiedlichen Messbereichen in Parallelschaltung installiert worden, um hohe Messgenauigkeiten in allen Betriebsbereichen garantieren zu können. Hierbei ist zu erwähnen, dass die Durchflussmessung mittels FIR02 annähernd temperatur- und druckunabhängig ist und die Kalibrierung von FIR01 temperaturabhängig erfolgt ist und bei den Experimenten berücksichtigt wurde.

Versuchsvorbereitungen Bevor mit den eigentlichen Absorptionsmessungen begonnen werden kann, müssen neben der Lösemittelregeneration einige Vorbereitungen getroffen werden. Zu Beginn wird die Messzelle derart mit Flüssigkeit gefüllt, dass die gleiche Menge an Flüssigvolumen in der Messzelle vorliegt wie unter Messbedingungen.
Als Zweites wird die Messzelle mit reinem CO_2-Gas angereichert. Hierbei wird dem Radialgebläse G01 (*RG100/1100-2012* von EBM-Papst) eine konstante Leistung aufgegeben und kontinuierlich circa 1,5 l/min CO_2-Gas über HV02 zugegeben, wobei durch eine Ventilöffnung am Zellenkopf die Gasmischung entweichen kann. Aufgrund des Messprinzips des Prandtl-Rohrs (FIR03) ist es möglich zu sehen, ab wann sich die Zusammensetzung der Gasphase nicht mehr ändert. Das Prandtl-Rohr misst die Druckdifferenz aus statischem Druck und Staudruck, was dem dynamischen Druck ($\Delta p_{dyn} = \bar{w}_g^2 \ \rho_g/2$) entspricht. Bei Vernachlässigung der Viskositätsunterschiede zwischen Luft und CO_2 kann bei konstanter G01-Leistung auch eine konstante Gasgeschwindigkeit $\bar{w}_g$ angenommen werden. Damit würde die Änderung des FIR03-Signals nur durch die auftretende Dichteänderung verursacht werden können; treten keine Änderungen mehr auf, so darf demnach auf konstante Gaszusammensetzung geschlossen werden. Die zugehörige Prozedur kann anhand des Trendbildes in Abb.4.3 nachvollzogen werden. Zu Beginn der Aufzeichnung

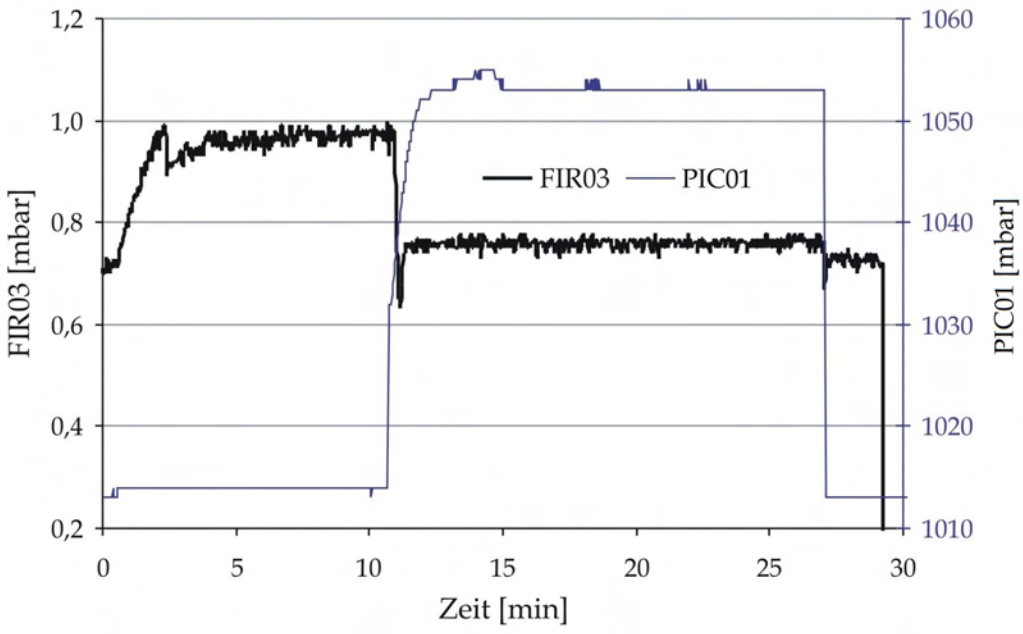

Abbildung 4.3.: Aufzeichnungsdaten des Differenzdrucksignals vom Prandtl-Rohr FIR03 sowie des Absolutdrucks am Kopf der Messzelle PIC01 während der Versuchsvorbereitungen.

wird FIR03 $\approx$ 0,7 $mbar$ eingestellt und CO_2 zugeführt. Trotz konstanter G01-Leistung steigt der FIR03-Wert schnell an und nähert sich schließlich asymptotisch dem Wert ≈ 1 $mbar$. Somit

ist folgende Überschlagsrechnung für 1 *bar* und 25 °*C* möglich:

$$\Delta p_{dyn} = \bar{w}_g^2 \, \rho_g / 2 \qquad \text{mit der Annahme } \bar{w}_g = konst. \text{ folgt} \tag{4.3}$$

$$\frac{\Delta p_{dyn,Luft}}{\Delta p_{dyn,mix}} = \frac{\rho_{Luft}}{\rho_{mix}} \tag{4.4}$$

$$\rightarrow \rho_{mix} = 1{,}669 \; kg/m^3 \tag{4.5}$$

Mit $\rho_{CO2} = 1{,}7845 \; kg/m^3$ ergibt sich offenbar noch eine 6%-ige Abweichung der eingestellten Gasdichte. Allerdings ist zu beachten, dass sich die dynamische Viskositäten von CO_2 und Luft bei gleichen Bedingungen um ca. 20% unterscheiden (siehe 3.1.2). Damit könnte der theoretisch auftretende Dichteunterschied zwischen ρ_{mix} und ρ_{CO2} erklärt werden, so dass die vorgestellte Methode zur Erstellung eines sehr hohen CO_2-Gehalts in der Messzelle als geeignet erscheint. Schließlich erfolgt die Leckratenbestimmung bei Arbeitsdruck mittels FIR02 mit kleinstem Messbereich bei $F = 1{,}5 \; Pa^{0,5}$ (entspricht $\Delta p_{dyn} \approx 0{,}7 \; mbar$). Kann der Arbeitsdruck PIC01= $1{,}053 \pm 0{,}001$ *bar* für mindestens 5 Minuten bei gleichbleibendem FIR02-Wert konstant gehalten werden, so ist die Leckrate $\dot{M}_L$ bestimmt (vergleiche Abb.4.3).

Absorptionsmessungen Nach Abschluss der Versuchsvorbereitungen kann dem 20 *l* fassenden Vorlagebehälter B02 unbeladenes Silikonöl über die Zahnradpumpe PM01 (*VP-0,6* von Variopumps) entnommen werden. Die Flüssigkeit durchläuft einen Intensivwärmeübertrager WÜ01, der mit einem Thermostat gekoppelt ist, bevor eines der Rotameter FIR01 durchströmt wird. Das Öl gelangt dann in die Messzelle, wo es in einem Steigkanal bis zum Überlaufwehr gelangt, siehe Abb.4.4. Am Überlaufwehr wird das Öl gleichmäßig über die gesamte Plattenbreite von

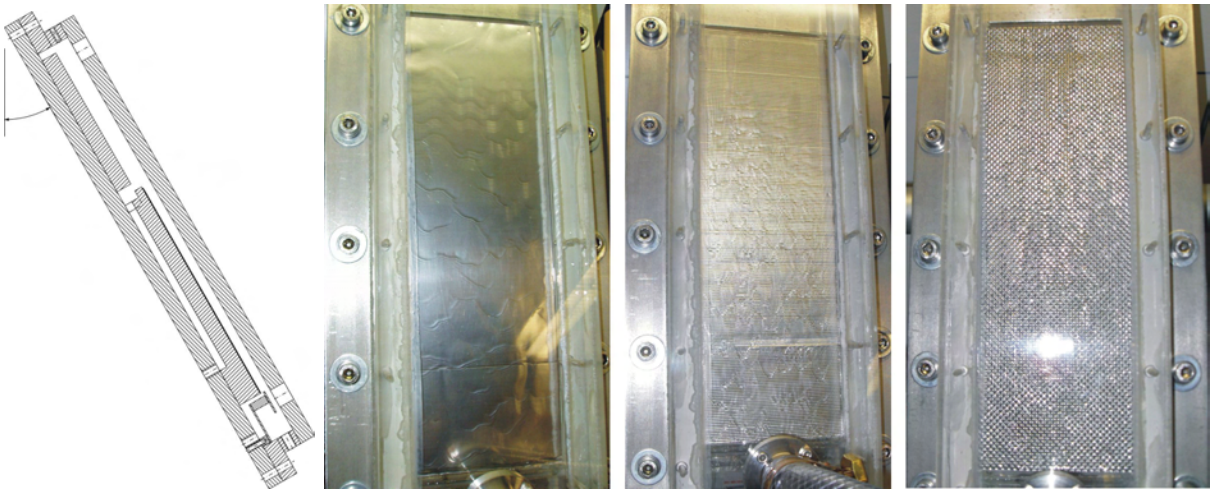

Abbildung 4.4.: Absorptionsmesszelle in maßstabsgetreuer Schnittdarstellung sowie Fallfilmabsorber im Betrieb mit DC1. Während bei glatter Platte sowie der 2d-Struktur Wellen erkennbar werden, sind für die Strömungsvisualisierung beim 3d-Typ spezielle Messverfahren notwendig, siehe 4.2.

10 *cm* verteilt und rieselt als geschlossener Film über die jeweils installierte, 30 *cm* lange Platte nach unten. Aufgrund der einsetzenden Gasabsorption muss an dieser Stelle die CO_2-Zufuhr

über FIR02 erhöht werden, um den Betriebsdruck $1{,}053 \pm 0{,}001$ *bar* konstant zu halten. Der Flüssigkeitsfüllstand im Sumpf der Zelle kann aufgrund der Ablaufkonstruktion beobachtet und durch den Handhahn mit Feingewinde HH01 konstant gehalten werden. Die mit CO_2 beladene Flüssigkeit wird dann in B01 gesammelt.
Je nach zu untersuchendem Betriebszustand wird der entsprechende Volumenstrom bei FIR01 eingestellt; hierbei muss je nach Umgebungsbedingungen das Thermostat so verstellt werden, dass TIR02 stabil im Bereich von $28{,}5 \pm 0{,}5$ $°C$ liegt. Sind weiterhin FIR03 und PIR01 im gewünschten Betriebsbereich, so werden alle mit R versehenen Sensorinformationen notiert (registriert). In diesem stationären Betriebszustand werden bei Q01 und Q02 jeweils 6 *ml* Flüssigkeitsprobe entnommen und je in ein Flakon abschließend (ohne Gasraum) gefüllt und mit Septum versehenem Deckel geschlossen. Dabei wird zuerst die Probe Q02 und sofort anschließend Q01 entnommen, um die Austrittszusammensetzung nicht durch die Probenentnahme vor der Absorption zu stören. Es wird erneut der stationäre Betriebszustand eingestellt; im Normalfall kann nach etwa zwei Minuten die nächste Probenentnahme erfolgen. Für den Standardbetrieb werden insgesamt vier Proben bei Q02 je Volumenstrom entnommen. Die Entnahme bei Q01 erfolgt nur zur Kontrolle bei der ersten und letzten Probenentnahme des Batches, da im Laufe der Versuchsreihen stets eine konstante Eintrittsbeladung nahe null (siehe Abb.B.3) nachgewiesen werden konnte. Weiterhin werden im Standardbetrieb mit einem Batch drei unterschiedliche Volumenströme bei gleicher Gasbelastung abgefahren.

Für den Erhalt reproduzierbarer Messergebnisse sind insbesondere zwei Anmerkungen zu beachten:

- Manuelle Probenentnahme Q02 mit gleichbleibendem Vorschub entnehmen; gegebenenfalls die Spritze wechseln, falls durch Verkanten keine gleichmäßige Entnahme mehr möglich ist. Zudem sind hier Kanülen mit großem Durchmesser (2,7 *mm*) verwendet worden, um ein Ausgasen durch plötzliche Querschnittsvergrößerung bei dem Eintritt in die Spritze zu reduzieren.
- Obwohl sehr lange und damit genaue Rotameter verwendet werden, ist die Kalibrierung in Abhängigkeit der Temperatur je nach Ölsorte entscheidend für die Genauigkeit der Volumenstromberechnung. Für eine Temperatur ist der Kalibrierfehler unter 1%; es kann jedoch in Abhängigkeit des Öls sowie der Rotametergröße bei einer TIR01-Differenz von 10 $°C$ der Volumenstrom um 5-20% abweichen.

Lösemittelregeneration Nach einer Absorptionskampagne liegt das Silikonöl beladen in B01 vor und muss für den nachfolgenden Versuch wieder regeneriert werden. Hierzu wird das Lösungsmittel durch WÜ01 erwärmt und gelangt über HV01 in den Rührbehälter B02. Im Anschluss wird das 30-40 $°C$ warme Öl unter Rühren mit einem Laborrührwerk RW01 entgast, siehe Abb.4.5. Im Detail erfolgt die Desorption durch Stoßrühren (Flüssigkeitstrombe erreicht Rührerblätter, so dass feine Blasen erzeugt werden und den Entgasungsvorgang durch Phasengrenzflächenerhöhung beschleunigen) und kontinuierlicher Druckabsenkung durch die Vakuumpumpe VP01. Nach einiger Zeit läuft der PIR04-Wert gegen 40 *mbar*, so dass bereits beim ersten

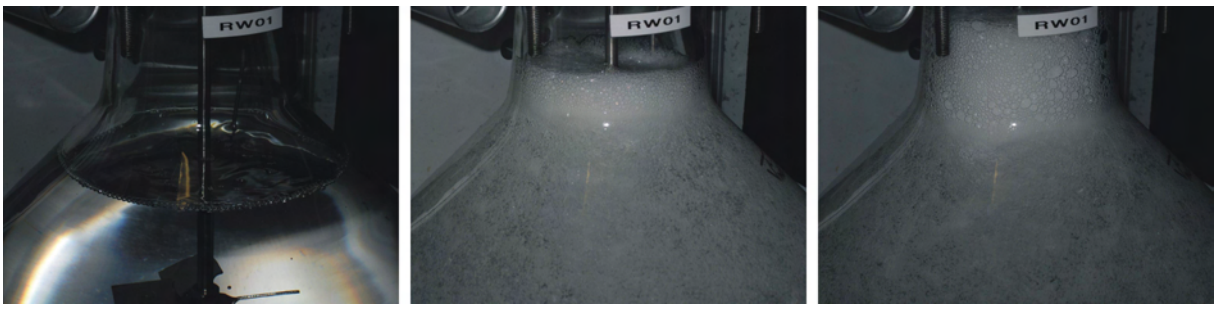

Abbildung 4.5.: B02 vor und während dem Entgasen. Obwohl Silikonöl häufig als Entschäumer Anwendung findet, neigt es beim Entgasen selbst zur Schaumbildung, allerdings löst sich der Schaum innerhalb weniger Sekunden wieder auf.

Schritt ein Großteil des CO_2-Gases entzogen wird. Im Anschluss wird über HV06 Umgebungsdruck eingestellt und einige Minuten unter Stoßrühren Umgebungsluft absorbiert. Der Vorgang der Desorption im Vakuum (40 $mbar$) sowie die Anreicherung mit Luft wird zweimal wiederholt, wobei bei der abschließenden Luftabsorption circa 20 Minuten Stoßrühren erfolgt. Somit wird die Luftsättigung des Öls garantiert; diese Tatsache kann durch Verschließen des Behälters geprüft werden, bei Sättigung bleibt der Druck PIR04 konstant.
Mit dieser Prozedur liegt das Silikonöl schließlich im Gleichgewicht mit der Luft vor. Da im Allgemeinen eine CO_2-Luftkonzentration von etwa 330 ppm vorherrscht, lässt sich aus den Daten von Abschnitt 3.2.1 der CO_2-Anteil im Öl berechnen. Für den Fall größter Löslichkeit (DC1) folgt nach dem Henry-Gesetz:

$$x_{CO_2}(30\ °C, 1\ atm) = \frac{p\ y_{CO2}}{\widetilde{H}_{CO2,DC1}(30\ °C)} = \frac{1{,}013\ bar\ 330 \cdot 10^{-6}\ mol/mol}{(2{,}962 \cdot 303{,}15 + 143{,}9)\ bar} \approx 0{,}3\ ppm \quad (4.6)$$

Damit liegt zwischen unbeladenem und beladenem Öl stets ein sehr großer Beladungsunterschied um den Faktor 10^3-10^4, so dass die Eintrittsbeladung im Rahmen der vorliegenden Messkampagnen vernachlässigt werden kann.

FTIR-Analyse Die analytische Bestimmung des CO_2-Gehalts in den Silikonölproben erfolgt wie in 3.2.3 beschrieben mit der FTIR-Analyse. Hierzu wird zu Beginn mit einer unbeladenen Referenzprobe das Hintergrundrauschen (*Background*) aufgenommen, das heißt die Nulllinie festgelegt (vergleiche Abb.B.3). Anschließend werden die beiden Proben von Q01 analysiert, um gleichbleibende Eintrittsbedingungen zu bestätigen. Schließlich werden die Q02-Proben analysiert und die Fläche unterhalb der Extinktion E_λ mit dem Absorptionsmaximum bei der Wellenzahl 2337,72 cm^{-1} bestimmt. Die Berechnung der Fläche bezieht sich dabei stets auf die durch das Hintergrundrauschen festgelegte Nullinie, diese wird daher als korrelierte Fläche A_{korr} bezeichnet. Die Umrechnung in die Beladung erfolgt durch die experimentell bestimmten Kalbriergleichungen. Hier ist zu erwähnen, dass sich aufgrund der kleinen Beladungen bei DC10 ein breiter Abstandshalter mit 1 mm Schichtdicke d und bei den höher beladenen Ölen DC1 und DC5 der Abstandshalter mit $d = 0{,}5\ mm$ als geeignet erwiesen. Es gilt folgende Kalibrier-

gleichung:

$$X_{CO2,aus} = A_{korr}/k_{IR} \tag{4.7}$$

Für die unterschiedlichen Öle und Abstandshalter werden folgende Kalibrierparameter bestimmt: $k_{IR,DC1} = 21{,}7$, $k_{IR,DC5} = 20{,}7$ und $k_{IR,DC10} = 44$. Nach (3.10) wäre bei gleichem d jedoch ein konstantes k_{IR} zu erwarten, wenn man unabhängig vom Öl gleichbleibende Extinktionskoeffizienten voraussetzen würde. Das trifft hier annähernd zu; wenn man den Mittelwert bezogen auf $d = 0{,}5\ mm$ bestimmt, so erhält man $k_{IR} \approx 21{,}5$ mit einer Varianz von etwa 3%. Die Ursache dieser Ungenauigkeit liegt offenbar in der Kalibriermethode, wobei die Zugabe kleiner Mengen an Trockeneis (wasserfreies, festes CO_2) in Silikonöl gravimetrisch bestimmt wurde. Bei einer derartigen Kalibrierung wurde eine Messunsicherheit von etwa 3% bestimmt, was ziemlich genau der obigen Abweichung entspricht, siehe Anhang B für weitere Informationen.
Diese Tatsache muss bei dem Messwertvergleich für unterschiedliche Öle berücksichtigt werden; vergleicht man jedoch die Beladungen bei unterschiedlichen Mikrostrukturen, so ist der Analysefehler als sehr gering einzustufen ($\leq 2\%$).
Zur weiteren Veranschaulichung sei auf die Abb.B.2 verwiesen. Dort wird die zerlegbare Küvette (*OmniCell* von Specac) dargestellt. Das Zerlegen, Reinigen sowie der erneute Zusammenbau der Küvette vor jeder einzelnen Analyse ist mit relativ hohem Zeitaufwand verbunden, so dass empfohlen wird in zukünftigen Vorhaben die Realisierung einer kontinuierlichen Analyse im Betrieb (*Online-Analyse*) in Betracht zu ziehen.

Prozessparameter Obwohl die vorliegenden Grundlagenuntersuchungen im Labormaßstab stattfinden, soll jedoch ein enger Bezug zu den Prozessparametern Gasbelastung F und Flüssigkeitsbelastung B_f in praktisch relevanter Größenordnung hergestellt werden.

Im Kolonnenbetrieb ist der F-Faktor mit $F = \bar{w}_g \sqrt{\rho_g}$ die charakteristische Größe für die Gasströmung und repräsentiert die Impulsstromdichte des Gases. Für die Berechnung des F-Faktor am Eintritt in die Messzelle wird $\bar{w}_g$ aus dem Quotienten des Volumenstroms in der Messzelle, der dort genau so groß ist wie bei FIR03, sowie den geometrischen Abmessungen des freien Querschnitts in der Messzelle berechnet. Die Volumenstromberechnung erfolgt durch das Prandtl-Rohr (FIR03), welches im Vorfeld kalibriert wurde. Im Betrieb sind schließlich insgesamt drei Werte für den F-Faktor eingestellt worden: $F = 0;\ 1{,}5;\ 2{,}5\ Pa^{0,5}$. $F = 0$ bedeutet, dass G01 während der Absorptionsmessungen ausgeschaltet bleibt und nur soviel CO_2 über FIR02 zu dosiert wird, so dass die Absorptions- sowie Leckrate kompensiert wird. Somit kann der Einfluss des Gasgegenstroms unterhalb des Staupunkts im gesamten Untersuchungsbereich erfolgen.

Des Weiteren sind im Kolonnenbetrieb Flüssigbelastungen von B_f = 10-100 m^3/m^2h üblich [Raynal et al., 2009]. Diese Geschwindigkeitsangabe beschreibt den Volumenstrom bezogen auf die Querschnittsfläche einer leeren Packungskolonne [Mackowiak, 2010]. Im Folgenden wird als Referenzpackung die Mellapak^{TM} 250.X mit einer spezifischen Oberfläche von 250 m^2/m^3 verwendet. Reduziert man die Packungsgeometrie auf die Dimension des Kolonnenquerschnitts, so ergibt sich im Mittel eine Kantenlänge von 250 m/m^2. Die installierte Plattenbreite im Ver-

suchsstand beträgt 10 cm, weshalb sich Volumenstrom $\dot{V}_f$ und Flüssigbelastung B_f bezogen auf eine Mellapak^{TM} 250.X wie folgt umrechnen lassen:

$$\dot{V}_f = B_f \, \frac{0{,}1 \; m}{250 \; m/m^2} \tag{4.8}$$

Für den oben genannten Belastungsbereich von B_f = 10-100 m^3/m^2h folgt demnach für den Volumenstrombereich $\dot{V}_f$ = 4-40 l/h. Dieser Bereich wird im Rahmen der Untersuchungen abgedeckt, wobei insbesondere der Bereich B_f = 25-90 m^3/m^2h detailliert vermessen wurde. Für die drei eingesetzten Silikonöle liegen die möglichen Nusselt-Filmdicken somit etwa bei $0{,}2 \leq \delta_N \leq 0{,}8$ und es kann der Bereich $3 \leq Re \leq 100$ abgedeckt werden, vergleiche Tab.2.4.

Anmerkungen Das vorgestellte Messsystem ist geeignet, um unterschiedlich mikrostrukturierte Oberflächen auf deren Beeinflussung des flüssigkeitsseitigen Stofftransports zu charakterisieren; man erhält reproduzierbare Ergebnisse und die Unterschiede im Stofftransport zwischen Referenzoberfläche und Mikrostrukturen liegen signifikant oberhalb der Messungenauigkeiten, siehe Abschnitt 5.1. Dennoch soll an dieser Stelle auf mögliches Verbesserungs- sowie Erweiterungspotential hingewiesen werden.

Zur weiteren Steigerung der Messgenauigkeit der *IR-Methode* wird empfohlen den CO_2-Gehalt am Zellenaustritt *online*, also ohne Probenentnahme, mittels FTIR-Analyse zu bestimmen. Die *FI-Methode* könnte durch Reduktion der Leckrate, insbesondere durch ein absolut gasdichtes Gebläses, sowie der Kenntnis des Druckverlustes über der Absorptionsstrecke ebenfalls verbessert werden. Weiterhin wäre die Überprüfung des CO_2-Gehalts im Gaskreislauf nützlich, um eventuelles Ausgasen von Luft aus dem Silikonöl in die CO_2 reiche Phase zu beurteilen.

Die verwendete Messtechnik könnte insbesondere in zweierlei Hinsicht erweitert werden. Zum einen würde die Messung lokaler CO_2-Konzentrationen mittels FTIR-Technik zur Beurteilung lokaler Stofftransport-Schlüsselparameter in Anlehnung an Schagen und Modigell [2005] sehr aufschlussreich sein. Zudem besteht das Erweiterungspotential die vorgestellte Messtechnik ebenfalls für Packungskolonnen zur Charakterisierung des gas- und flüssigkeitsseitig dominierten Stofftransports bei der Neuentwicklung von Hochleistungspackungen anzuwenden. Ein Verfahrenskonzept zur Beschreibung flüssigkeitsseitig dominierter Systeme ist bereits vorgestellt worden; die Erweiterung auf gasseitig dominierte Problemstellungen könnte durch Zugabe von Luft oder N_2 aufgrund der relativ hohen CO_2-Selektivität der Silikonöle (siehe 3.2.1) realisiert werden.

4.2. Strömungsmessungen

Im Rahmen dieser Arbeit kommen verschiedene optische Strömungsmessverfahren zum Einsatz, um die komplexen Strömungsvorgänge mit den Stofftransporteffekten in Zusammenhang zu bringen und damit das Verständnis der gekoppelten Transportmechanismen zu verbessern.

Hierzu werden ausschließlich optische, das heißt berührungslose (*nicht-intrusive*) Messverfahren verwendet. Diese unterscheiden sich von den intrusiven Messverfahren in den vorliegenden Fällen dadurch, dass kleine Mengen optisch aktiver Substanzen (Farbstoffe oder Tracerpartikel) dem strömenden Fluid zugeführt werden, wodurch sich Strömungsvorgänge visualisieren lassen. Dabei ist zu beachten, dass die zugeführten Substanzmengen klein genug sind, um die fluiddynamischen Eigenschaften nicht wesentlich zu stören.
Für die Filmdickenmessungen in 4.2.1 wird der fluoreszente Farbstoff C152A in den Silikonölen gelöst sowie ein Zusammenhang zwischen Fluoreszenzintensität und Dicke hergestellt. Bei den Farbfadentests in 4.2.2 wird dem nicht beziehungsweise nur schwach fluoreszenten Silikonöl eine geringe Menge an hochkonzentrierter Öl-C152A-Lösung im Sinne klassischer Tracer-Experimente (vergleiche Reynolds [1894]) zugeführt. Die Beobachtung des Farbstoffverlaufs in der Filmströmung lässt Rückschlüsse auf die vorherrschenden Stromlinien, Diffusions- oder Mischungseffekte sowie Verweilzeiten zu. Bei den Benetzungstests mit Silikonöl, Wasser und Wasser-Glyzerin werden die Flüssigkeiten mit einem Farbstoff (C152A oder Rhodamin B) versehen, um sie besser von der überströmten Oberfläche unterscheiden zu können. Bei den Geschwindigkeitsmessungen in 4.2.3 werden schließlich etwa 4-10 μm große fluoreszente Partikel in den Ölen dispergiert. Diese werden mittels Laser zur Fluoreszenz angeregt, so dass von der aufgenommenen Partikelbewegung auf die Fluidgeschwindigkeit geschlossen werden kann.

4.2.1. Filmdickenmessung (LIF-Methode)

Einleitung und Erweiterung des Versuchsaufbaus Die Messung von Filmdicken beziehungsweise deren ortsabhängige Verteilung wird im Rahmen dieser Arbeit genutzt, um strömungstechnische Unterschiede bei der Filmströmung auf der glatten Referenzplatte sowie auf den mikrostrukturierten Platten zu visualisieren. Somit können Strömungscharakteristika wie

- Wellenevolution beziehungsweise Wellenunterdrückung aufgrund der Mikrostrukturen
- Flüssigkeitsinhalt (*Hold Up*), Randeffekte und Fehlverteilung
- Um- oder Überströmung bei 3d-Typen
- Phasengrenzfläche zwischen Flüssigkeitsfilm und umgebender Gasphase

experimentell untersucht und schließlich quantifiziert werden.
Eine ausführliche Literaturübersicht unterschiedlicher Filmdicken-Messverfahren der letzten 100 Jahre wird von Al-Sibai [2005] angegeben. An dieser Stelle soll jedoch nur auf das verwendete Fluoreszenz-Intensitätsverfahren nach dem Prinzip der Licht Induzierten Fluoreszenz (LIF) eingegangen werden. Wie in Abschnitt 3.2.3 dargelegt, wird der fluoreszente Farbstoff C152A in den verwendeten Silikonölen gelöst, während der Experimente mit UV-Licht analog zum Schwarzlicht-Effekt angeregt und schließlich die Fluoreszenzintensität mittels Bandpassfilter und CCD-Kamera (*pco.2000* von ILA) detektiert. Die UV-LED-Lampe sowie die Kamera mit lichtsensitivem Normalobjektiv (*AF Nikkor f/1,4D* von Nikon) werden jeweils annähernd orthogonal zur Plattenoberfläche in einem Abstand von etwa 60 *cm* zur Messzelle angeordnet. Dieser Abstand ist groß genug, um eine hohe Parallelität der Strahlung zu gewährleisten, so dass

Reflexions- und Brechungseffekte minimiert werden können. Aufgrund der flachen Flanken der Wellen können diese somit in der Regel reflektionsfrei abgebildet werden [Adomeit, 1996]. Wie in 3.2.3 beschrieben ist eine Totalreflexion möglich, wenn der Grenzeinfallswinkel überschritten wird, was insbesondere bei den 3d-Typen und dünnen Filmen auftreten kann. Im Gegensatz zu den Stofftransportmessungen wird eine weiterentwickelte LIF-Messzelle eingesetzt, die mit oder ohne Deckel betrieben werden kann (sonstige Konstruktionsmerkmale bleiben unverändert). Der Versuchsaufbau wird für die Filmdickenmessung weiterhin durch eine Keilküvette erweitert. Die Küvette ist direkt neben der Messzelle angebracht und wird mit demselben Fluid durchströmt wie die Platte überströmt wird, siehe Abb.4.6. Diese Durchfluss-Keilküvette besitzt zwei etwa

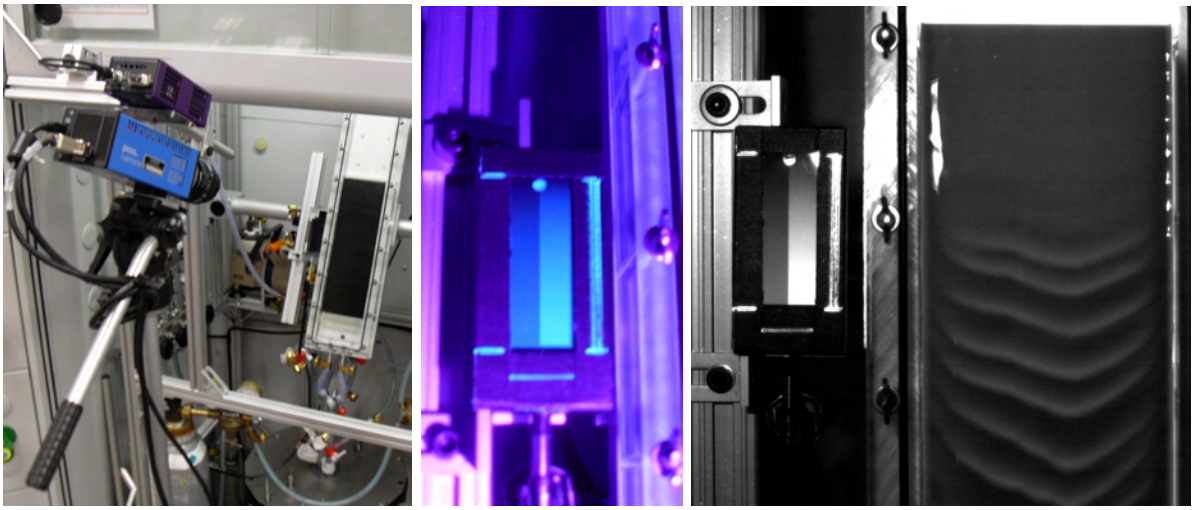

Abbildung 4.6.: Anordnung der LIF-Messtechnik mit LIF-Messzelle (links). Zweikeilige Durchflussküvette bei ungefilterter Digitalkamera-Aufnahme (mittig) sowie bei gefilterter *pco.2000*-Aufnahme mit DC10-Strömung auf glatter Platte (rechts).

6 cm lange Kanäle mit jeweils unterschiedlicher Keilsteigung (1,5° und 5,1°) sowie definierten Schichtdicken d (0 bis etwa 1,8 mm und 5,2 mm). In Anlehnung an Ausner [2006] kann somit mit einer Aufnahme die Dicken-Intensitäts-Kalibrierung sowie die Messung oben genannter Filmcharakteristika erfolgen.

Messprinzip und Kalibriermethode Um das Messprinzip zu veranschaulichen, werden die unter 3.2.3 genannten Grundlagen verwendet. Zum einen ergibt sich die Fluoreszenzintensität I_F in Abhängigkeit der vom Farbstoff absorbierten Intensität I_{abs}, wobei gilt $I_{abs} \geq I_F$. Die absorbierte Intensität entspricht der Differenz von aufgeprägter und transmittierter Lichtintensität; mit dem Lambert-Beer'schen Gesetz, Gleichung (3.10), folgt:

$$I_{abs} = I - I_0 = I_0 \left(1 - 10^{-\epsilon_\lambda \; c_{C152A} \; d}\right) \tag{4.9}$$

Der Extinktionskoeffizient ϵ_λ besitzt neben der Wellenlängen- und Stoffabhängigkeit auch eine geringe Temperaturabhängigkeit. Aus diesen Gründen sowie des möglichen Ausbleichens von dem Farbstoff mit der Zeit (*Photobleaching*) werden Messzelle und Keilküvette während der Experimente parallel durchströmt. Aus Gleichung (4.9) sowie $I_{abs} \geq I_F$ wird klar, dass bei

konstanter Farbstoffkonzentration c_{C152A} die vom Fluid abgegebene Lichtintensität nur von der Schichtdicke des Fluids abhängig ist.
Der Zusammenhang von Intensität und Filmdicke wird mit der Bildbearbeitungssoftware SigmaScan durch die Intensitätsanalyse der beiden Keilbereiche der Küvette und manueller MS-Excel®-Auswertung hergestellt. Zunächst erhält man für die Pixelkoordinaten (x_{pix}, z_{pix}) dieser Linien die Lichtintensität I, siehe Abbildung 4.7 (a). Der Küvettenrand bei $d \to 0\ mm$ ist bear-

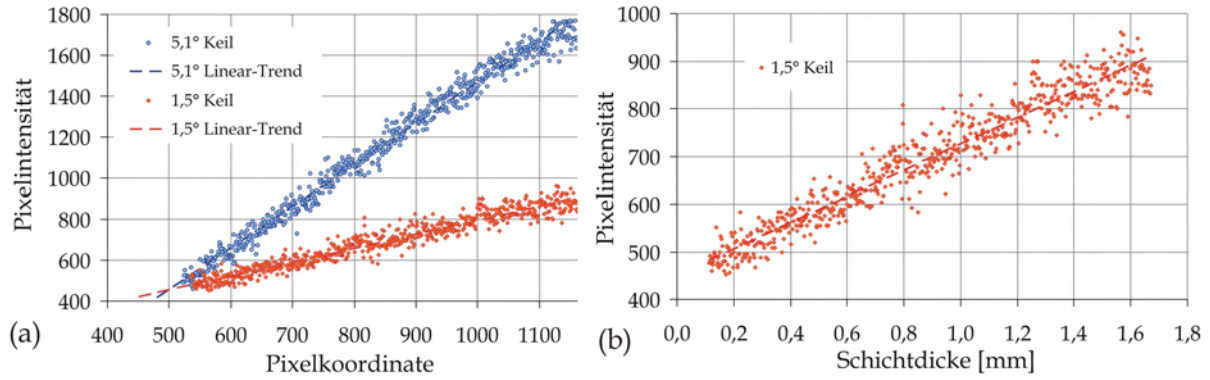

Abbildung 4.7.: Pixelintensitäten $I(x_{pix})$ im Keilbereich ergeben lineare Trends; der Schnittpunkt beider Trends legt den Nullpunkt $\delta_F(I_{HR}, x_{pix,0}) = 0\ mm$ der Keile fest (a). Abbildung einer Kalibrierfunktion $I = f(\delta_F)$ für den Keilbereich mit 1,5° (b). Alle Angaben für DC10 mit $t_B = 10\ ms$.

beitungsbedingt mit größerer Messwertstreuung behaftet, so dass in Abbildung 4.7 (b) dieser Bereich ausgespart wird. Der Schnittpunkt (I_{HR}, $x_{pix,0}$) beider linearer Trendkurven $I(x_{pix})$ ergibt den Helligkeitswert des Hintergrundrauschens mit $\delta_F(I_{HR}, x_{pix,0}) = 0\ mm$, welcher überwiegend aus anderen fluoreszenten Gegenständen des Messsystems resultiert. Da die zu messenden Filmdicken δ_F im Bereich der definierten Küvettenabmaße der 1,5°-Küvette liegt, wird diese für die Kalibrierfunktion verwendet. Hierzu wird ausgehend von der oben bestimmten Pixelkoordinate $x_{pix,0}$ die Schichtdicke in der 1,5°-Keilküvette wie folgt berechnet:

$$\delta_F(x_{pix}) = L_{pix}\ tan(1{,}5°)\ x_{pix} \tag{4.10}$$

Hierin wird zudem der Längenwert eines Pixels L_{pix} in $mm/Pixel$, welcher nach Mittelwertbildung mehrerer definierter Längen der Fluoreszenzmarkierungen in Abb.4.6 bestimmt wird, verwendet. Da zudem aus der Intensitätsanalyse in SigmaScan der Verlauf $x_{pix} = f(I)$ entlang des 1,5°-Keils bekannt ist (siehe Abb.4.7 (a)), kann mit Gleichung (4.10) der Zusammenhang $\delta_F = f(I)$ und damit auch der gesuchte Zusammenhang $I = f(\delta_F)$ hergestellt werden, vergleiche Abb.4.7 (b).
Die Kalibrierfunktion $I = f(\delta_F)$ wird schließlich verwendet, um zum Beispiel die gemessenen Intensitäten entlang der Laufkoordinate der Filmströmung in Filmdicken umzurechnen. Die Ergebnisse dieser Analysen werden in Abschnitt 5.2.1 ausgewertet, damit die oben genannten Strömungscharakteristika näher beschrieben werden können.

Anmerkungen In der Entwicklungsphase der vorgestellten LIF-Methode wurde festgestellt, dass Reflexionen der Edelstahlplatte die Fluoreszenzintensitäten bei der Dickenmessung verstärken. Aus diesem Grund sind alle untersuchten Platten sowie die Durchfluss-Keilküvette mit einer dünnen schwarzen Acryl-Lack-Schicht versehen worden. Reflexionseffekte der festen Oberfläche werden dadurch merklich reduziert, so dass die Dickenmessungen Ergebnisse liefern, die mit theoretischen Werten von δ_N nach Gleichung (2.4) sehr gut übereinstimmen, siehe 5.2.1. Diese Maßnahme stellt nur einen geringfügigen Eingriff auf die zu untersuchenden Systeme dar, weil die Kontaktwinkeländerung aufgrund der äußerst geringen Oberflächenspannung des Öls zu vernachlässigen ist, vergleiche 3.2.4. Die Lackschicht ist bei fachgerechter Auftragung nur einige Nanometer dünn, so dass dadurch die Topographien der Mikrostrukturen quasi unverändert bleiben.

Weiterhin sollen die Größenordnungen zweier wichtiger Prozessparameter (Belichtungszeit t_B und Farbstoffkonzentration c_{C152A}) angegeben werden. Der t_B-Wert muss zum Beispiel klein genug gewählt werden, um die zeitliche Auflösung von Wellen zu garantieren (5-10 ms); jedoch nicht zu klein, da dann die Lichtintensitäten für die Kalibrierung zu gering würden (< 3 ms) und das Messrauschen zunähme. Für große t_B-Werte von 20-100 ms werden Wellen in der Regel zeitlich nicht mehr aufgelöst, jedoch kann die Kalibrierung in Abb.4.7 mit verringerter Messwertstreuung erfolgen, so dass sich hohe Belichtungszeiten insbesondere für die Bestimmung des Flüssigkeitsinhalts eignen. Die Wahl der Belichtungszeit ist dabei stets abhängig von der Farbstoffkonzentration c_{C152A}. Der c_{C152A}-Wert muss hoch genug sein, um ausreichende Fluoreszenzintensitäten zu gewährleisten; er muss jedoch klein genug sein, um die Fluideigenschaften nicht zu verändern. Während der Messungen haben sich Beladungen um 0,3 mg/g als praktikabel erwiesen.

Während der Messungen wird zudem zwischen den Positionen I und II unterschieden. Bei Position I beträgt der Arbeitsabstand von der UV-LED-Lampe und der Kamera in etwa 65 cm, so dass etwa 18 cm Fallfilmstrecke analysiert werden kann, siehe Abb.4.6 rechts. Hierbei liegt im Auswertungsbereich eine hohe Homogenität der Ausleuchtung vor und für die Bildauswertung stehen vergleichsweise viele Pixel zur Verfügung. Damit jedoch die gesamte Plattenlänge von 30 cm abgebildet werden kann muss die Position II gewählt werden. Hierzu wird der LED-Abstand beibehalten und die Kameradistanz zum Objekt beträgt etwa 100 cm. Aufgrund abnehmender Lichtintensität kann dabei die Messgenauigkeit jedoch abnehmen beziehungsweise müssen die Belichtungszeiten erhöht werden, um vergleichbare Genauigkeiten zu erzielen. Analog zu obiger Anmerkung bezüglich der Belichtungszeit muss entsprechend des Messziels, zum Beispiel Auflösung von Filmwellen oder Flüssigkeitsinhaltsbestimmung, ein Kompromiss getroffen werden.

Der Messort für die Filmdickenanalyse entlang einer Linie befindet sich stets mittig auf der Platte. Für die 3d-Strukturen ergeben sich zum Teil Ausnahmen, es muss zum Beispiel zwischen *Peaklinie* und *Passlinie* unterschieden werden, siehe Abschnitt 3.3.

4.2.2. Farbfaden- und Benetzungstests

Die Farbfadenuntersuchungen zur Visualisierung von Stromlinien können Hinweise auf Mischungseffekte sowie Geschwindigkeitsverteilungen geben. Dabei wird Öl mit hoher Farbstoffkonzentration dem geschlossenen, stationären Rieselfilm in kleinen Mengen zugeführt und mittels UV-Strahlung analog zu der LIF-Methode sichtbar gemacht. Bei den Benetzungstests wird hingegen die trockene Oberfläche mit eingefärbter oder zur Fluoreszenz angeregter Flüssigkeit beaufschlagt. Dabei kann zum Beispiel der Effekt von Mikrostrukturen auf die Flüssigkeitsverteilung beziehungsweise Phasengrenzflächenvergrößerung untersucht werden.

Farbfadentests Zur Durchführung der Farbfadentests (Tracer-Experimente) wird dieselbe Messzelle wie bei der LIF-Methode in 4.2.1 verwendet. Da hier keine Dickenbestimmung erfolgt wird zusätzlich zur oben genannten UV-LED-Lampe ein UV-LED-Ringlicht (*TPL-ANNU12-405-A* von TPL Vision) so installiert, dass man noch geringste Mengen an Farbstoff sichtbar machen kann. Dies ist insbesondere für die Bestimmung von Verweilzeiten bei starken Mischungseffekten, unter anderem durch Wellenbildung, notwendig. Die Anordnung beider Lichtquellen (jeweils etwa 45° zur Platte) ist der Abbildung 4.8 zu entnehmen. Diese Anordnung ist besonders vorteilhaft, da Reflexionen auch für Spezialfälle weitestgehend vermieden werden können. Die Tracerzugabe erfolgt in der Regel mittels Spritzenpumpe (*Fusion 200* von Chemyx), womit über eine Kanüle kleine Tracer-Mengen mit gleichbleibendem Vorschub reproduzierbar dem Rieselfilm beigemengt werden. Am Ende der Kanüle ist eine dünne Nadel fixiert, welche an definierten Positionen im Film beziehungsweise auf der Plattenoberfläche platziert wird.

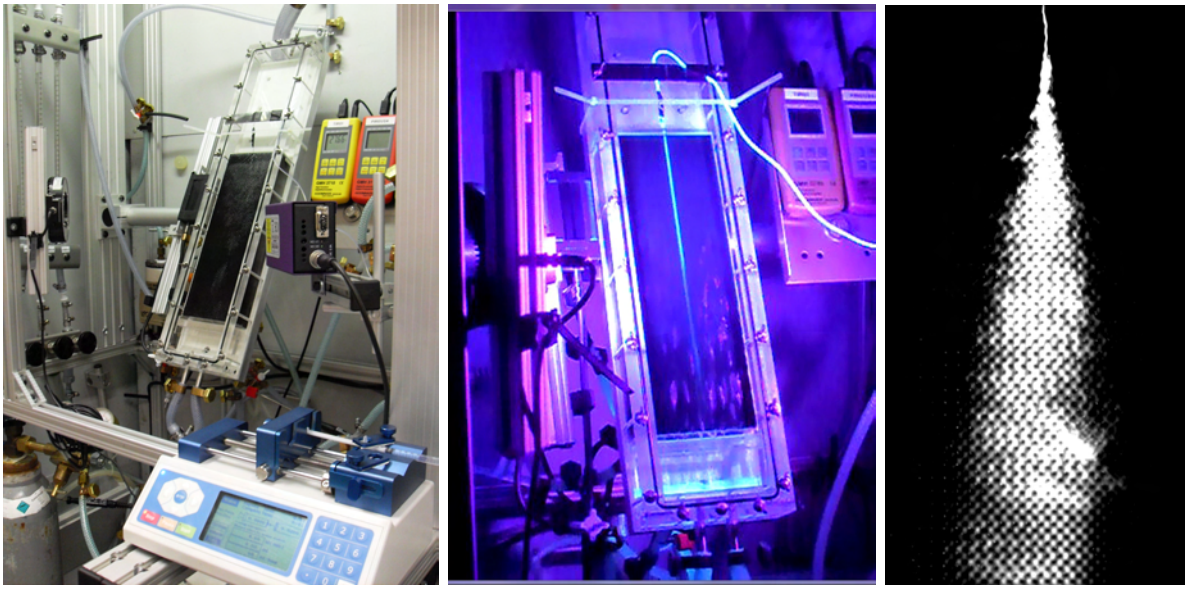

Abbildung 4.8.: Aufbau mit Spritzenpumpe und LED-Anordnung, Schnappschuss einer Tracer-Messung mit DC1 und Beispiel eines Tracer-Experiments mit DC1 auf 3d-Typ.

Benetzungstests an geneigter Platte Die Benetzungseigenschaften unterschiedlich strukturierter Oberflächen ist für die Silikonöle DC1 bei gleicher sowie für DC5 bei vergleichbarer

Versuchsanordnung wie bei obigen Farbfadentests (Abb.4.8) untersucht worden. Allerdings wird die Farbstoffkonzentration etwa in der Größenordnung wie bei der LIF-Methode gewählt, da somit der Kontrast zwischen unbenetzter und benetzter Oberfläche bei UV-Anregung bereits hoch genug ist.
Für Benetzungstest mit Wasser beziehungsweise Wasser-Glyzerin werden diese Flüssigkeiten mit Rhodamin B Pulver versetzt, so dass sie rötlich erscheinen. Gegenüber dem Blech besitzt die Flüssigkeit somit einen genügend großen Kontrast und kann ohne UV-Anregung sichtbar gemacht werden. Bei Verwendung dieser Stoffsysteme werden glatte oder mikrostrukturierte Edelstahloberflächen verwendet und die Effekte der Flüssigkeitsausbreitung bei unterschiedlichen Prozessbedingungen studiert. Der Versuchsaufbau ist in Abb.4.9 links zu erkennen. Während

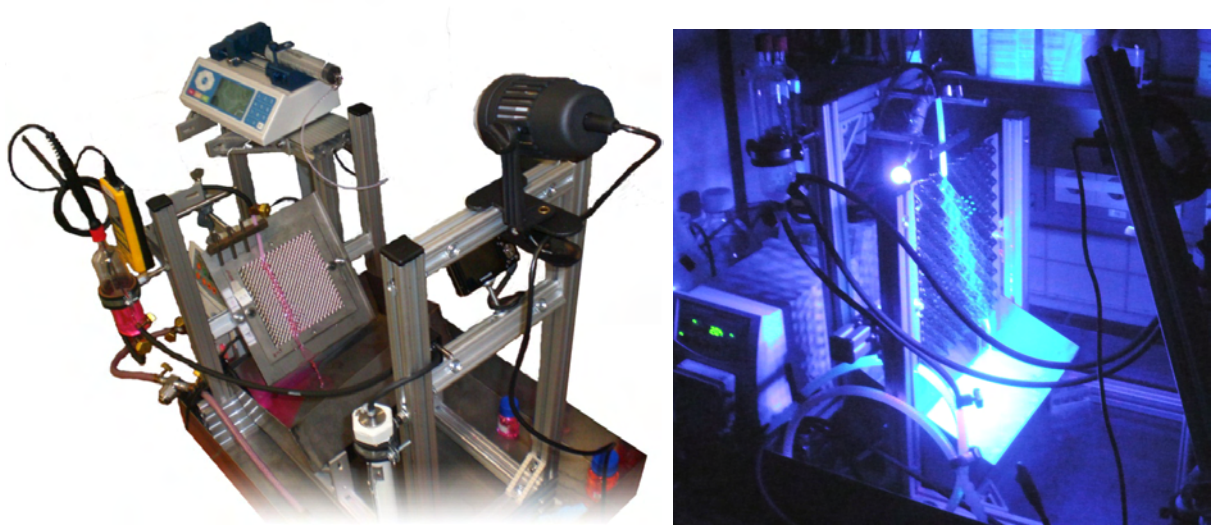

Abbildung 4.9.: Aufbau für Benetzungstests an geneigten Platten (links) sowie für Tests an makrostruktierten Blechen am Beispiel eines perforierten Bleches mit DC5-Aufgabe (rechts).

der Experimente wird die eingefärbte Flüssigkeit mittels Schlauchpumpe im Kreis gefördert, wobei zur Reduktion der Pumpenpulsation ein Puffertank zwischen Rotameter und Rohraufgabe geschaltet ist. Zudem wird für sehr kleine Belastungen die oben genannte Spritzenpumpe genutzt.

Benetzungstests an makrostrukturierten Packungsblechen Hier werden lediglich die geneigten Platten durch makrostrukturierte Bleche, siehe Abschnitt 3.3, ausgetauscht und die Stellung des Auffangsbeckens verschoben. Für vergleichbare Messergebnisse ist insbesondere auf die Position des Zugabeschlauches zu achten, welche so gewählt wurde, dass der Einlass im Tal der Makrostruktur parallel zur Gravitation erfolgt. Bei perforierten Blechen kann die Flüssigkeit zudem auf beiden Seiten des Bleches entlang fließen; da die Perforierungen an den verwendeten Musterblechen nicht identisch sind kann die Charakterisierung der Benetzungseigenschaften durch Beobachten der Flüssigkeitsausbreitung allein nur qualitativ erfolgen. Zur Quantifizierung müsste im Sinne klassischer Flüssigkeits-Verteilungsversuche an dem Blechende eine segmentierte Auffangvorrichtung installiert werden, vergleiche Methoden in [Plüss, 1991; Thiele, 2007].

4.2.3. Geschwindigkeitsmessungen (PIV-Methode)

Einleitung Die Messung von zweidimensionalen Geschwindigkeitsfeldern im Flüssigkeitsfilm wird mit der Methode der *Particle Image Velocimetry* (PIV) durchgeführt, um ein tieferes Verständnis der Strömungsphänomene, insbesondere bei 3d-Topographien, zu erhalten. Somit können Beobachtungen der LIF- und Tracer-Experimente mit einer weiteren Strömungsmessmethode bestätigt sowie neue Phänomene beschrieben werden, siehe 5.2.3.
Grundsätzlich handelt es sich bei der PIV-Methode um ein optisches Messverfahren bei dem die Partikelbewegungen im Flüssigkeitsfilm anhand von Doppelbildern mit kurzen Zeitschrittweiten (hier $\Delta t = 50\text{-}1000\ \mu s$) bestimmt werden. Hierbei wird die Pixelgröße in Abhängigkeit des Objektivs kalibriert, so dass aus dem ermittelten Pixelversatz der Partikel im Fluid (Δx und Δz) sowie der Zeitschrittweite Δt die 2d-Partikelgeschwindigkeiten im Film berechnet werden können. Für die hier genutzte Vogelperspektive folgt für die Filmhöhe der PIV-Messung y_{PIV}:

$$\mathbf{w}_{x,z}(y_{PIV}) = \begin{pmatrix} w_x(y_{PIV}) \\ w_z(y_{PIV}) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \Delta x/\Delta t \\ \Delta z/\Delta t \end{pmatrix} \tag{4.11}$$

Darin hängt die Filmschichtdicke um die Messebene y_{PIV} von der Schärfentiefe des verwendeten Objektivs ab.

Bei der Verwendung eines Mikroskops beziehungsweise Makro-Objektivs (zum Beispiel MX6- und MX5-Objektiv in Tab.4.1) wird die Bezeichnung μPIV verwendet. Hier wird das Beobachtungsfeld stark vergrößert und Strömungsvorgänge können im Mikrometerbereich visualisiert werden. Somit ist es analog zu Paschke [2012] möglich für unterschiedliche Filmschichten der y-Ebene (für MX6-Objektiv 60-80 μm-Schichten) das Geschwindigkeitsfeld aus der Vogelperspektive experimentell zu ermitteln. Hierzu wurde eigens die konventionelle μPIV-Methode mit Bildaufnahme durch den transparenten, starren Strömungsuntergund in so fern erweitert, dass Messungen durch die Gas-Flüssig-Phasengrenzfläche ebenfalls möglich sind [Kohrt et al., 2008; Paschke et al., 2008]. Damit können Geschwindigkeitsmessungen in Filmströmungen auf nichttransparenten Oberflächen, also auch auf Packungsmaterialien, durchgeführt werden.

Tabelle 4.1.: Übersicht relevanter Objektiv-Eigenschaften für PIV- und μPIV-Messungen bei mittlerem Arbeitsabstand aus Infinity [2009]. Die angegebene Schärfentiefe ist aufgrund des Linsen-Adapters sowie $n^* \neq 1$ jedoch etwas größer. So wird von Paschke [2012] für das MX6-Objektiv eine Abbildungsschärfe von $\pm$30-40 μm angegeben.

	MX6-Objektiv	MX5-Objektiv	MX3-Objektiv	MX1-Objektiv
Arbeitsabstand $[mm]$	66	140	178	335
Vergrößerung [-]	2,90	1,42	1,00	0,63
Sichtfeld $[mm]$	2,2	4,5	6,4	10,2
Schärfentiefe $[\mu m]$	24	47	80	270

Insgesamt werden im Rahmen dieser Arbeit sowohl Strömungsinformationen über einen größeren Bildausschnitt bis maximal 3 *cm* x 4 *cm* (Pentax-Objektiv) mittels PIV und über lokale Bereiche 2 *mm* x 3 *mm* (MX6-Objektiv) mittels μPIV gewonnen. Bei der Wahl zwischen PIV und μPIV muss man folgenden Kompromiss eingehen: Bei Vergrößerung des betrachteten Bildausschnittes nimmt die Tiefenunschärfe zu, so dass zum Beispiel mit dem Pentax-Objektiv Partikelbewegungen quasi über die gesamte Filmdicke berücksichtigt werden. Mit dem MX6-Objektiv werden zwar Filmgeschwindigkeiten für Schichtdicken ermittelt, die etwa 5- bis 20-fach kleiner sind als der Film selbst, allerdings können so nur sehr stark ortsgebundene Messwerte gesammelt werden. Eine Übersicht der eingesetzten Objektive gibt die Tabelle 4.1.

Versuchsaufbau und Durchführung Der Versuchsaufbau gestaltet sich relativ einfach, da lediglich Flüssigkeit im Kreis gepumpt wird und Volumenstrom sowie Temperatur analog zu vorher beschriebenen Versuchsständen aufgenommen werden, siehe Abb.4.10. Allerdings muss zusätz-

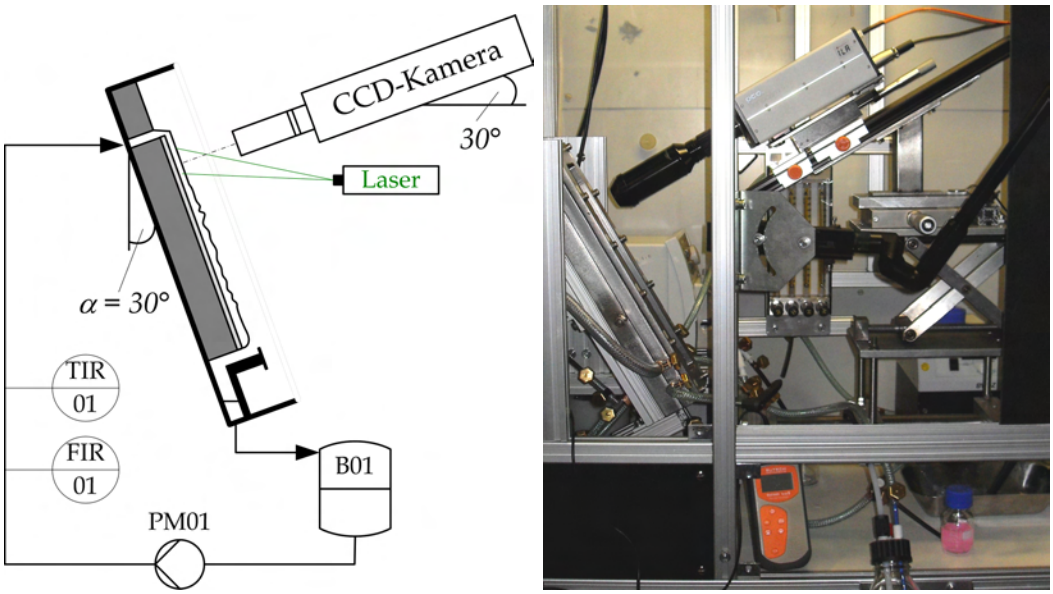

Abbildung 4.10.: Fließbild und Foto des PIV-Messstands.

lich eine CCD-Kamera (*pco.sensicam qe* von ILA) sowie ein damit synchronisierter Nd:YAG-Laser installiert werden. Dabei wird die Kamera orthogonal zur Oberfläche ausgerichtet, um Fehler durch Brechungsphänomene zu reduzieren. Weiterhin ist in Abb.4.10 zu erkennen, dass für die PIV-Messungen eine andere Messzelle (Details siehe Paschke et al. [2009], Paschke [2012]) verwendet wird. Diese besitzt eine Plattenbreite von 5 *cm* und eine Länge von 30 *cm*. Es wird zunächst angenommen, dass die Randeffekte zu vernachlässigen sind und somit die beobachtete Strömung mittig bezüglich der Plattenbreite auf umliegende Elemente übertragbar sind. Weiterhin wird als Messort der wellenfreie Eingangsbereich je nach Objektiv mit x = 0-6 *cm* gewählt. Für die μPIV-Messung selbst wird das von Paschke [2012] entwickelte Scan-Verfahren angewendet. Hierzu wird die Film- oder Topographieoberfläche bei vorliegender Filmströmung fokussiert und die erste Geschwindigkeitsmessung gestartet. Im nächsten Schritt wird mittels Mikrometerschraube am Kameraschlitten die Kamera inklusive Objektiv orthogonal zum Film

um die gewünschte Mikrometeranzahl verschoben. Somit kann die nächste Ebene vermessen werden; diese Prozedur wird solange fortgesetzt bis der gesamte Film oder der relevante Filmdickenbereich untersucht wurde.

Anmerkungen Ein wichtiger Aspekt bei der vorgestellten Messmethode ist die Änderung des Strahlengangs aufgrund der Lichtbrechung an Phasengrenzen mit unterschiedlichen optischen Dichten (siehe 3.2.3). Da die verwendeten Öle eine größere optische Dichte als Luft besitzen, bewirkt dies eine Verschiebung der Schärfeebene, so dass die mit der Mikrometerschraube eingestellte Tiefe im Film korrigiert werden muss [Kohrt et al., 2008]. Diese Tiefenkorrektur aufgrund der Brechung y_B kann für kleine Einfallswinkel wie folgt berechnet werden [Paschke, 2012]:

$$y_{PIV} = y_{CCD} + y_B \qquad \text{mit } y_B = y_{CCD}\ (n_f/n_g - 1) \tag{4.12}$$

$$= y_{CCD}\ n_f/n_g \tag{4.13}$$

Die tatsächliche Position im Film y_{PIV} ergibt sich demnach näherungsweise aus der CCD-Kameraverschiebung in der Luft y_{CCD} mit $y_{CCD} = 0$ an der Gas-Flüssig-Phasengrenze und den Brechungsindizes der beteiligten Phasen.

Für die μPIV-Messungen wurde im Allgemeinen auf die Vorarbeiten von Paschke [2012] zurückgegriffen. Demnach sind je Filmebene 300 Doppelbilder aufgenommen worden. Diejenigen Partikel, die außerhalb der Schärfeebene liegen und damit unscharf erscheinen werden mittels Matlab-Filter eliminiert, so dass nur Partikel nahe der eingestellten Schärfeebene in Betracht gezogen werden. Die Geschwindigkeitswerte werden nach der Methode der Kreuz-Korrelation mit der Software VidPIV bestimmt, wobei grobe Ausreißer manuell entfernt werden können. Zur Ergebnisdarstellung werden schließlich die 2d-Vektorinformationen nach Matlab exportiert, worin eine farbliche Kennzeichnung der Vektorinformationen erfolgt, siehe 5.2.3. Auf die Darlegung weiterer Details zur Mess- und Auswertemethodik wird auf Raffel et al. [2007] und Paschke [2012] verwiesen. Falls jedoch die Auswertemethodik der Bilddaten für die Ergebnisdiskussion relevant sein sollte, wird an den entsprechenden Textstellen darauf eingegangen.

5. Ergebnisse und Diskussion

Im Folgenden werden die Ergebnisse der gekoppelten Messung von Stofftransport und Fluiddynamik für glatte und mikrostrukturierte Oberflächen für drei Silikonöle und unterschiedliche Flüssig- und Gasbelastungen dargestellt und diskutiert. Die Grundlage dieser Untersuchungen bilden die Stofftransportmessungen in Abschnitt 5.1, die eine allgemeine Charakterisierung des vorhandenen Struktureinflusses in Abhängigkeit der Prozessparameter ermöglichen. Zur detaillierten Aufklärung der Ursachen der Stofftransportcharakteristika werden für Spezialfälle die Ergebnisse der Strömungsmessungen in Abschnitt 5.2 diskutiert. Der Zusammenhang zwischen Stofftransportergebnissen und der zugrunde liegenden Fluiddynamik wird zur besseren Übersicht in 5.3 dargelegt.
Abschließend werden die Ergebnisse der Benetzungseigenschaften komplex strukturierter Packungsmaterialien in 5.4 vorgestellt und diskutiert.

5.1. Stofftransportmessungen

Die Ergebnisse der Stofftransportmessungen nach der Methodik in Abschnitt 4.1 werden zunächst für den Referenzfall der glatten Platte in 5.1.1 präsentiert. Somit kann die Bewertung der Messgenauigkeit des neu entwickelten Messsystems erfolgen und die Ergebnisse können mit Literaturdaten für glatte Oberflächen verglichen werden. In Abschnitt 5.1.2 werden die Stofftransportergebnisse der glatten Platte im Rahmen des Messprogramms um die der Mikrostrukturen erweitert. Damit kann der Mikrostruktureinfluss in Abhängigkeit der Viskosität sowie der Flüssig- und Gasbelastungen mit dem Referenzfall verglichen und bewertet werden.

5.1.1. Glatte Oberfläche

Test des Messsystems Zu Beginn der Untersuchungen stellt sich die Frage, ob es mit dem verwendeten Messsystem möglich ist unterschiedliche Stofftransportleistungen für glatte und mikrostrukturierte Oberflächen mit hinreichender Genauigkeit zu bestimmen, das heißt die Messfehler müssen deutlich kleiner sein als Unterschiede bezüglich der verwendeten Oberflächen.
Wie in 4.1.1 aufgeführt kommt mit der *FI-Methode* und der *IR-Methode* eine redundante Stofftransportmessung zum Einsatz, die es ermöglichen soll die Messwertgüte zu steigern beziehungsweise grobe Messfehler ausschließen zu können.
An dieser Stelle erfolgt zunächst der Vergleich der Messmethoden für zwei unterschiedliche Silikonöle. Als erstes werden die Messergebnisse für DC10 mit den drei Standardeinstellungen in Abbildung 5.1 vorgestellt. Darin werden die Ergebnisse der vier Messwerte eines Batches als Mittelwert für jede Einstellung (Batch-MW) zusammengefasst. Weiterhin sind die Mittelwer-

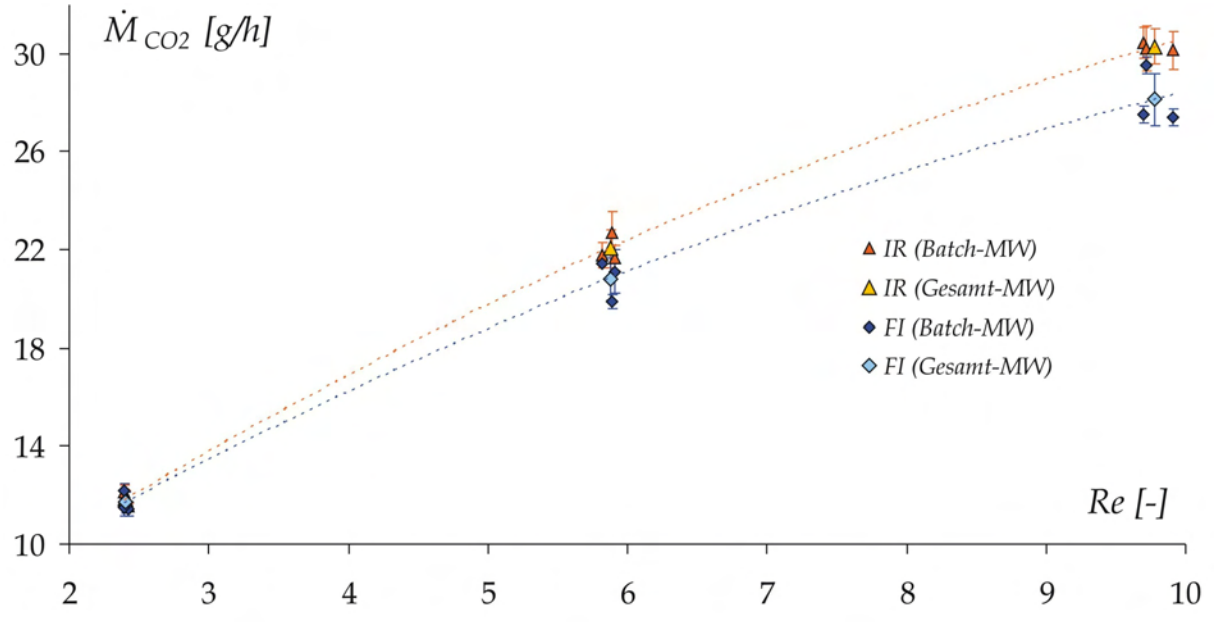

Abbildung 5.1.: Vergleich der redundanten Stofftransportmessmethoden für DC10 (Mittelwerte je Batch für die drei Standardbelastungen sowie Mittelwert für die Standardbelastung).

te aller Messwerte bezüglich einer Einstellung (Gesamt-MW) sowohl für die *FI-Methode* nach Gleichung (4.1) als auch für *IR-Methode* nach Gleichung (4.2) dargestellt. Man erkennt, dass die Reproduzierbarkeit dieser Methoden für unterschiedliche Batches jeweils sehr hoch ist, wobei die Messwertstreuung bei der *FI-Methode* sichtbar höher liegt. Der prozentuale Varianzkoeffizient liegt bei den Ergebnissen der *IR-Methode* um 3-4% und bei der *FI-Methode* um circa 4%. Der Unterschied der redundanten Messmethoden liegt bei kleinster Flüssigbelastung bei 1% und steigt mit der Belastung auf 6% und dann auf 7% an. Daraus folgt, dass die Messmethoden jeweils für sich genommen eine hohe Genauigkeit aufweisen und bei dem Vergleich der Messmethoden untereinander allerdings mit steigender Flüssigbelastung beziehungsweise Absorptionsrate die Ergebnisse zunehmend verschieden sind. Dieser Trend ist ebenfalls für DC5 in Abbildung 5.2 zu entnehmen. Während bei kleinen Absorptionsraten mit beiden Messmethoden noch sehr ähnliche Werte bestimmt werden können (10-20% Abweichung), so driften die Absolutwerte mit zunehmender Absorption weiter auseinander (20-30% Abweichung).
Die festgestellten Unterschiede zwischen der *IR-* und der *FI-Methode* können folgende Fehlerursachen haben: Als systematische Fehler kommen Kalibrierungenauigkeiten bei der Volumenstrommessung mit FIR01 und FIR02 sowie der FTIR-Analyse mit Gleichung (4.8) in Frage. Diese Fehler betragen jeweils maximal 3%, siehe 4.1.2. Zufällige Fehler können bei der Probenentnahme dadurch entstehen, dass es zum Ausgasen von CO_2 bei der Entnahme oder dem Umfüllen der Proben kommt. Durch diesen Fehler würden allerdings die Ergebnisse der *IR-Methode* zu niedrig anstatt zu hoch ausfallen. Da die zuvor genannten Fehlerquellen als sehr gering eingestuft werden können, ist es naheliegend, dass durch die *FI-Methode* weitere systembedingte Messfehler verursacht werden. Hierbei sind insbesondere die Tatsachen, dass die Gasseite nicht absolut dicht ist und somit die Bestimmung der Leckrate $\dot{M}_L$ fehlerbehaftet sein

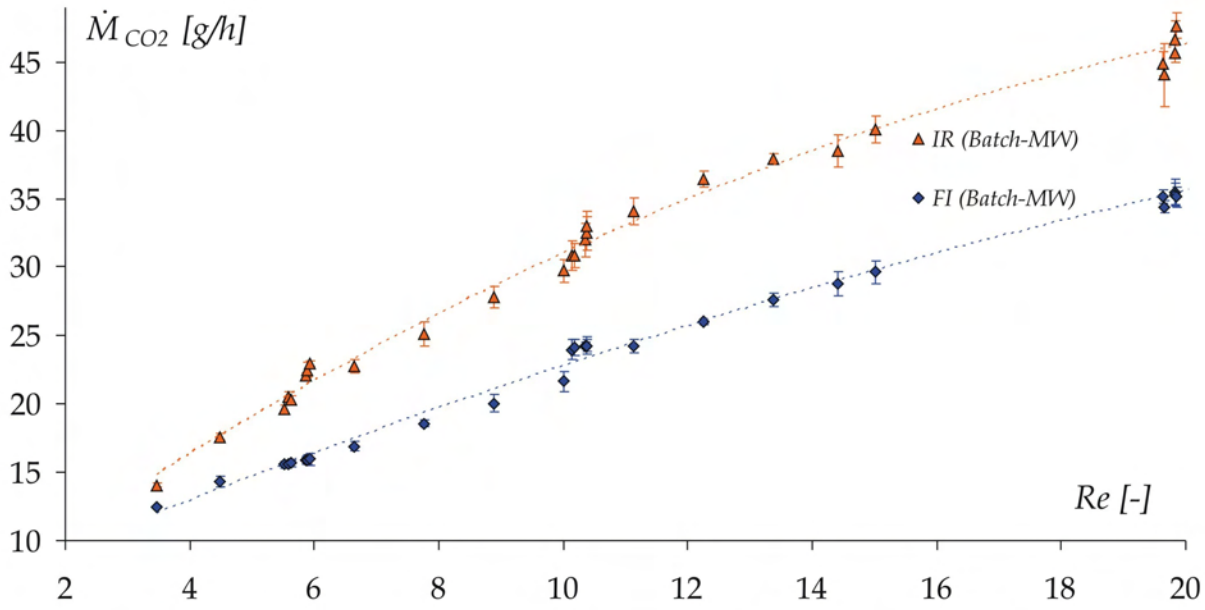

Abbildung 5.2.: Vergleich der redundanten Stofftransportmessungen für DC5 (Mittelwerte verschiedener Batches).

kann entscheidend. Wie in 4.1.2 beschrieben kann $\dot{M}_L$ bei Betriebsdruck und Betriebsgasvolumen mit hoher Genauigkeit bestimmt werden. Allerdings werden im Absorptionsbetrieb deutlich größere Gasmengen absorbiert als bei der Leckratenbestimmung zugeführt wird, so dass diese Systemänderung einen Einfluss auf die tatsächliche Leckrate haben könnte. Zum einen ergibt sich aufgrund der CO_2-Absorption über dem Fallfilm ein Druckabfall, welcher allerdings für unterschiedliche Betriebsbedingungen annähernd konstant bleibt, siehe Nebenrechnung in Anhang C.1. Dies könnte zwar den Absolutwert von $\dot{M}_L$ verfälschen, allerdings würde dieser Fehler mit steigender *Re*-Zahl konstant bleiben.
Schließlich kann die Diskrepanz zwischen *IR*- und *FI-Methode* nur dadurch erklärt werden, dass mit steigendem $\dot{M}_{CO2}$ der über FIR02 zu dosierte Gasstrom und damit die Gasgeschwindigkeit ansteigt, so dass sich die tatsächliche Leckrate gegenüber dem gemessenen Wert $\dot{M}_L$ verringert. Nach Gleichung (4.1) würde somit $\dot{M}_{CO2}$ mittels *FI-Methode* als zu niedrig berechnet werden, was mit steigendem Absorptionsstrom entsprechend der Messergebnisse weiter zunimmt.
Insgesamt erscheint die *IR-Methode* als sichere Messmethode, da die Konzentrationsänderungen in der Flüssigphase direkt bestimmt werden, was unabhängig von den gasseitigen Bedingungen erfolgt. Zudem ist die FTIR-Analyse mit sehr hoher Genauigkeit/ Konsistenz behaftet, so dass Fehler dieser Methode nur durch die Kalibrierung verursacht werden können. Dieser Fehler ist aufgrund verwendeter Verdünnungsreihen als gering einzuschätzen (etwa 3%). Aus diesem Grund wird sich die Ergebnisdiskussion im Folgenden auf die Resultate der *IR-Methode* beschränken. Schließlich ist es das Ziel den Einfluss mikrostrukturierter Oberflächen unter sonst gleichen Bedingungen zu bewerten, so dass sich die in sich konsistente *IR-Methode* im Rahmen dieser Arbeit als hinreichend genau erweist, vergleiche 5.1.2.

Messwertvergleich mit der Theorie Als weiterer Aspekt soll nun der Vergleich experimenteller Messwerte mit theoretischen Vorausberechnungsmethoden für den glatten Fallfilm aus 2.1.2 erfolgen. Die Lösung der Konvektions-Diffusions-Gleichung (2.14) mittels *pdepe*-Funktion in Matlab liefert das Beladungsprofil $X_{CO2}(y)$ in Abhängigkeit der Lauflänge x. Ausgewählte Ergebnisse der so berechneten Profile für $x = 0{,}3\ m$ (entspricht experimentellen Wert) sowie der mit Gleichung (2.16) ermittelten Austrittsbeladungen werden in Abbildung 5.3 präsentiert. Hierin werden zudem theoretische Austrittsbeladungen mit experimentellen Werten bei klei-

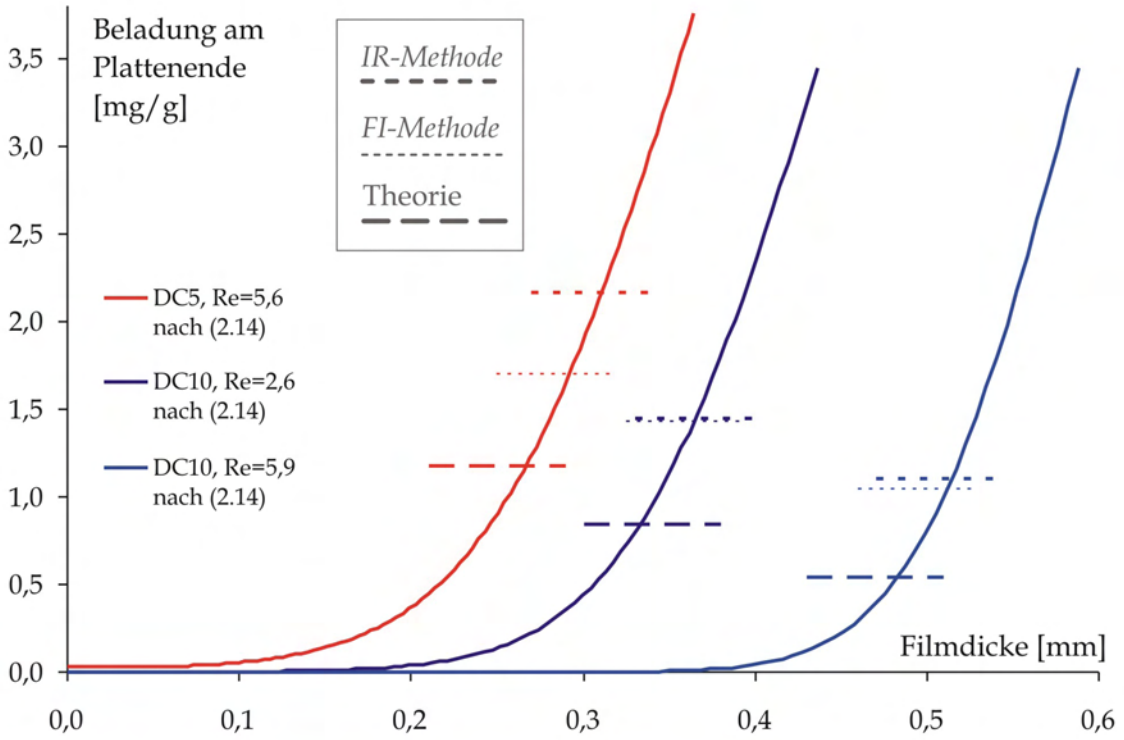

Abbildung 5.3.: Beladungsprofile entsprechend Gleichung (2.14) nach $x = 0{,}3\ m$ sowie mittlere Austrittsbeladungen in der Theorie nach Gleichung (2.16) sowie nach den redundanten Messmethoden.

nen *Re*-Zahlen verglichen. Die experimentellen Werte liegen aufgrund auftretender Filmwellen (vergleiche 2.1.2) um circa 45-105% oberhalb der theoretischen Resultate. In der Absorptionsmesszelle (Abb.4.4) kann zusätzlich zur Filmströmung ein geringer Anteil CO_2 am Überlaufwehr sowie im Ablaufschacht absorbiert werden. Im Vergleich zur Gesamtlänge der Filmströmung kann diese Menge jedoch vernachlässigt werden.
Abschließend werden in Abbildung 5.4 die Lösungen der Gleichungen (2.14) und (2.17) für die drei untersuchten Silikonöle bei jeweils kleinster *Re*-Zahl (bzgl. der Standardeinstellung) mit einander verglichen. Während die Annahme geringer Eindringtiefen für die dickeren Filme bei DC5 und DC10 noch eine gute Näherung darstellt, so ergeben sich bei DC1 mit signifikant dünneren Nusselt-Filmdicken sowie größeren Diffusionskoeffizienten größere Abweichungen. Insgesamt können diese Vorausberechnungsmethoden nur als erste Näherung sinnvoll genutzt werden. In Abhängigkeit der Wellendynamik werden jedoch im Allgemeinen höhere Absorptionsraten er-

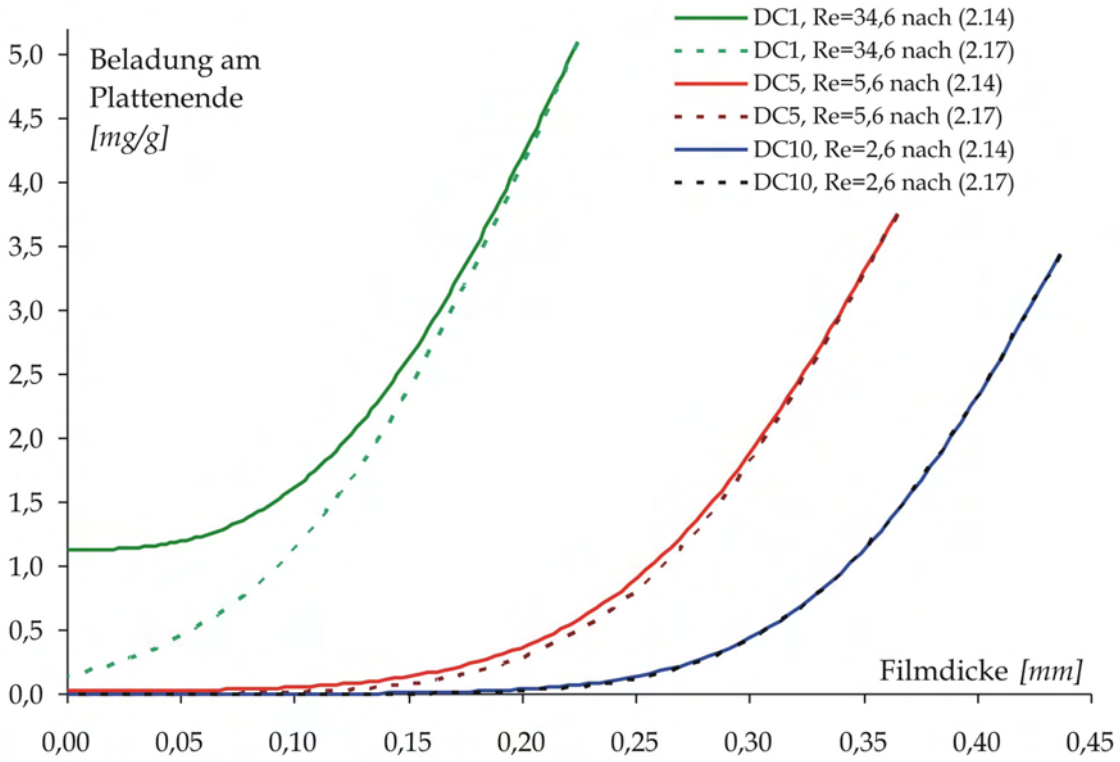

Abbildung 5.4.: Berechnete Beladungsprofile für $x = 0{,}3\ m$ nach Lösen der Konvektions-Diffusions-Gleichung (2.14) und der Näherungslösung für geringe Eindringtiefen in Gleichung (2.17) für die drei Silikonöle bei jeweils minimaler Standardbelastung.

reicht, vergleiche Abb.2.4
Neben den oben genannten Vorausberechnungsmethoden kann weiterhin als *Short-Cut*-Methode die Penetrationstheorie mit Gleichung (2.18) genutzt werden, um die übergehende Stoffmenge abzuschätzen. Analog zu anderen theoretischen Methoden, bei denen die Filmwelligkeit vernachlässigt werden, ergeben sich bei der Penetrationstheorie zu niedrige Austrittsbeladungen, siehe Anhang C.2. Aus diesem Grund wird im Folgenden die Anwendbarkeit von den in 2.1.2 genannten Stoffübergangskorrelationen geprüft.

Dimensionslose Betrachtungen Als eine weitere Möglichkeit zur Beschreibung von Stofftransportcharakteristika für die Filmströmung wird in 2.1.2 die Bedeutung von halb-empirischen, dimensionslosen Korrelationen erläutert. Hierbei hat sich die Form $Sh = a\ Re^b\ Sc^{0,5}$ (entspricht Gl. (2.19)) etabliert beziehungsweise wird sie für Wasser so eingesetzt. Der zugehörige konventionelle Plot wird in Abbildung 5.5 sowohl für Wasser als auch für die drei Standardbelastungen der drei Silikonöle wiedergegeben. Prinzipiell besitzen alle Kurven qualitativ die Eigenschaft mit steigender *Re*-Zahl ebenfalls anzusteigen. Der positive Einfluss der Gasgegenströmung ist wie erwartet ebenfalls in Abb.5.5 zu erkennen. Der aufgeprägte Gegenstrom reduziert die Flüssigkeitsgeschwindigkeiten, so dass die Verweilzeit und damit der Stoffübergang erhöht wird. Diese Erhöhung von $\dot{M}_{CO2}$ um circa 3-10% ist unterhalb des Staupunkts jedoch nur sehr gering, so dass die Unterschiede im Bereich der Fehlertoleranzen 3-6% liegen. Insgesamt lässt sich der er-

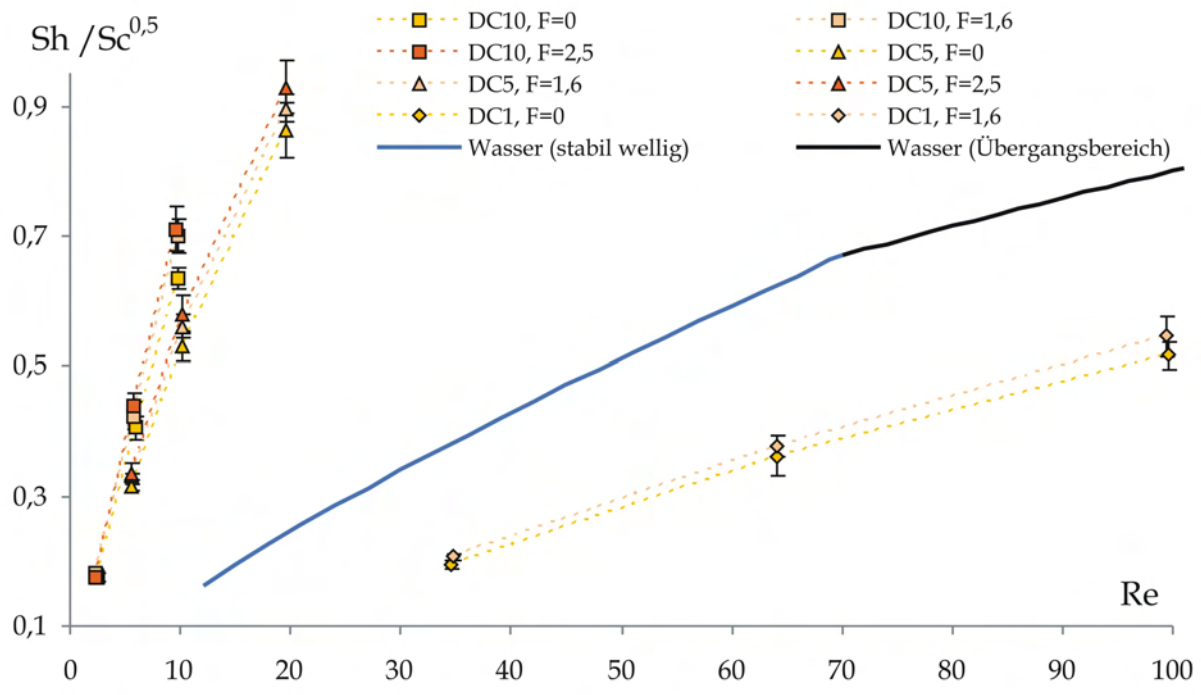

Abbildung 5.5.: Dimensionslose Darstellung der Stofftransportergebnisse nach konventionellem Plot (2.19) für die untersuchten Silikonöle (jeweils drei Standardbelastungen, F in $Pa^{0,5}$) und für Wasser bei $F = 0$ nach Tab.2.2 zum Vergleich.

wartete Trend trotz Messunsicherheiten eindeutig bestätigen.

In Abb.5.5 ergeben sich allerdings nicht nur signifikante Unterschiede bei der Steigung, sondern auch bei vergleichbaren Re-Zahlen sehr verschiedene $Sh/Sc^{0,5}$-Werte. Demnach ist die direkte Übertragbarkeit von Gleichung (2.19) auf Silikonöle nicht gegeben. Des Weiteren ist der Trend erkennbar, dass mit abnehmender Viskosität ($\nu_{DC10} > \nu_{DC5} > \nu_{Wasser} > \nu_{DC1}$) der Winkel zur Re-Achse bezüglich des Ursprungs ebenfalls abnimmt. Offenbar wird der Viskositätseinfluss der Flüssigkeiten in Abb.5.5 trotz dimensionsloser Kennzahlen nicht ausreichend berücksichtigt.

Wie in 2.1.1 erwähnt, bestimmen Won und Mills [1982] Stofftransportkorrelationen für unterschiedliche Flüssigkeiten (0,661 $mm^2/s \leq \nu \leq$ 2,8 mm^2/s, 22 $mN/m \leq \sigma \leq$ 72 mN/m) im turbulenten Bereich und führen hierzu zusätzlich zu Sh, Sc und Re die Filmzahl in einer komplexen Weise ein. In Anlehnung an Won und Mills [1982] wird die konventionelle Korrelation (2.19) in einfacher Weise um den Faktor $Fi^{-0,25}$ erweitert:

$$Sh = a\ Re^{b}\ Sc^{0,5}\ Fi^{-0,25} \tag{5.1}$$

Wendet man diese neue Korrelation auf die gewonnenen Messergebnisse der untersuchten Silikonöle für $F = 0$ an, so ergibt sich der Plot in Abbildung 5.6. Man erkennt, dass für den stabil welligen Strömungsbereich (Einteilung nach Tab.2.1) einzelne Messwerte der Silikonöle, trotz großer Viskositätsunterschiede ($\approx$ 1-10 mm^2/s), einen einheitlichen Trend ergeben:

$$Sh = 2{,}55\ Re^{0,795}\ Sc^{0,5}\ Fi^{-0,25} \tag{5.2}$$

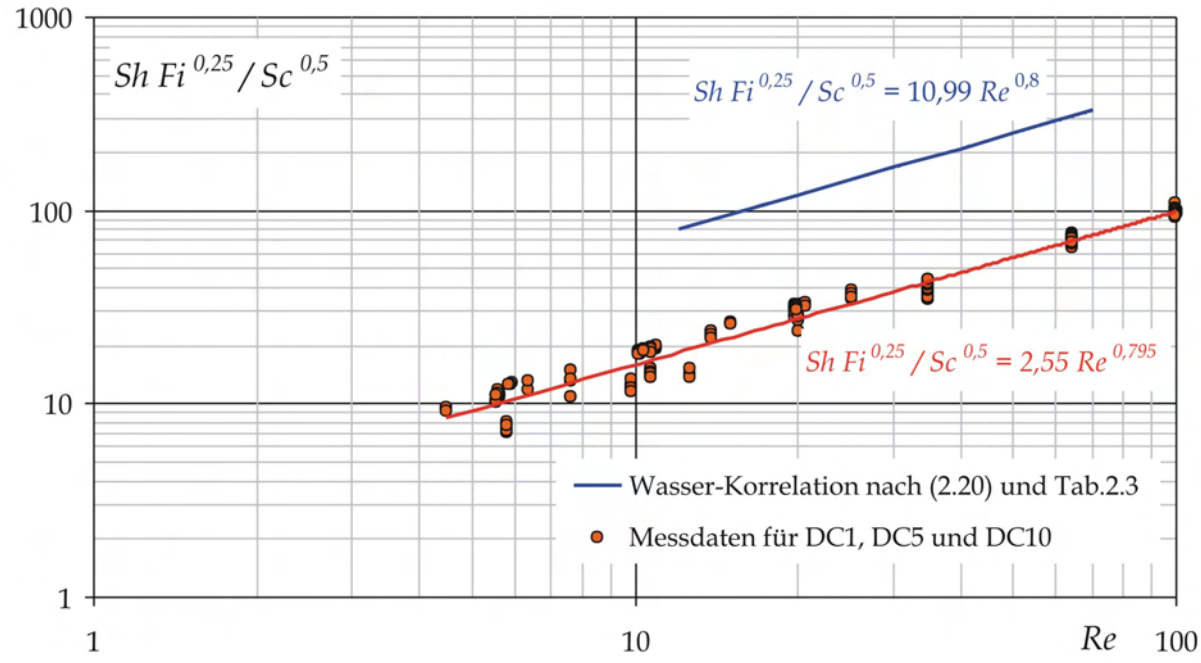

Abbildung 5.6.: Plot der erweiterten *Sh*-Korrelation (5.1) für 200 Messpunkte der untersuchten Silikonöle und für Wasser nach Tab.2.2 und mit $Fi = 5{,}8 \cdot 10^{10}$ jeweils im stabil welligen Bereich.

Dieser Trend besitzt annähernd die gleiche *Re*-Abhängigkeit ($b \approx 0{,}8$) wie für Wasser, allerdings unterscheiden sich die Absolutwerte noch um den Faktor vier. Es folgt, dass sich mit Gleichung (5.2), also mit geeigneter Berücksichtigung des Viskositätseinflusses, für die drei Silikonöle und sonst ähnlichen Stoffeigenschaften innerhalb des stabil welligen Regimes eine Vorausberechnungsformel für die Stofftransportcharakteristik ableiten lässt. Diese Korrelation müsste demnach auf andere Silikonöle (Methylsiloxane) in dem Viskositätsbereich von 1-10 mm^2/s übertragbar sein. Die Genauigkeit der Vorhersage mittels (5.2) beträgt im Mittel 12,4% und die maximale Abweichung beträgt 30%. Diese Zahlen ergeben sich aus den bereits genannten Messunsicherheiten sowie der empirischen Abschätzung für die Diffusionskoeffizienten mit 3.8 und sind im Vergleich zu Stoffübergangskorrelationen für Packungskolonnen (vergleiche Mackowiak [2008]) als gering zu bewerten.
Der Unterschied zwischen den Silikonölen und Wasser in Abb.5.6 ergibt sich vermutlich aus den unterschiedlichen Stoffeigenschaften wie die Diffusionskoeffizienten $D_{CO2,LM}$ (siehe Abb.3.2.2) und insbesondere die Oberflächenspannung σ_f (etwa Faktor 3,5-4,5).

Bei dem Wechsel des Strömungsregimes ergibt sich für Wasser jeweils eine Steigungsänderung in der Darstellung von $Sh/Sc^{0,5}$ als Funktion von *Re* (siehe Abbn.2.4, 2.6). Für die untersuchten Silikonöle kann dieser Trend für den Übergang von stabil welliger Strömung zur laminaren Filmströmung mit Abbildung 5.7 ebenfalls identifiziert werden. In Analogie zu Literaturwerten für Wasser kann somit auch für Silikonöl eine Steigungszunahme im $Sh\ Fi^{0,25}/Sc^{0,5}$-*Re*-Diagramm für diesen Übergangsbereich festgestellt werden (*Fi* hängt nur von Stoffdaten ab). Weitere ver-

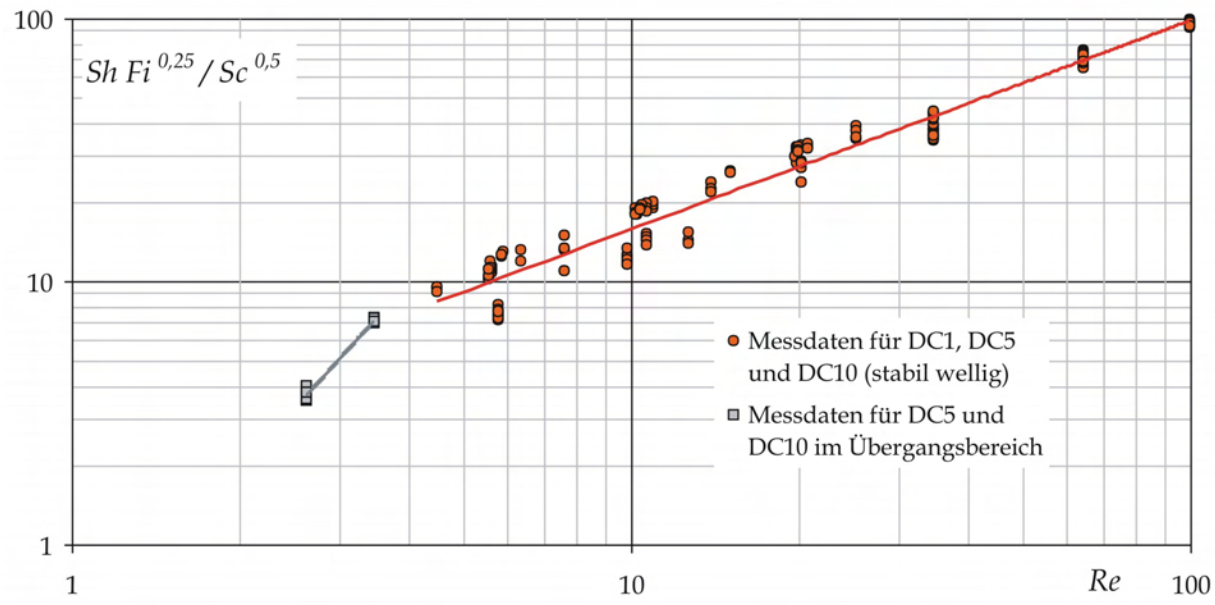

Abbildung 5.7.: Steigungsänderung beim Übergang der Strömungsbereiche für Silikonöl analog zur Literatur, vergleiche Abb.2.4.

tiefende Untersuchungen bezüglich des Stofftransports bei der glatten Oberfläche sind nicht durchgeführt worden, so dass im Folgenden die Erkenntnisse von diesem Abschnitt zusammengefasst und Schlussfolgerungen für das weitere Vorgehen festgehalten werden.

Zusammenfassung Die Ergebnisse der redundanten Stofftransportmessungen zeigen gleiche Trends, aber unterschiedliche Absolutwerte, die je nach Stoffsystem im Mittel um 5-20% voneinander abweichen. Man kann ableiten, dass die Fehlerursachen vornehmlich durch die *FI-Methode* verursacht werden, da die gasseitigen Gegebenheiten von den Prozessparametern selbst abhängen beziehungsweise veränderlich sind. Mit der *IR-Methode* wird hingegen die Beladung in der Flüssigkeit direkt gemessen, so dass die Untersuchung des flüssigkeitsseitigen Stofftransports effizient erfolgen kann. Die dabei möglichen zufälligen Fehler werden durch die entwickelten Standardarbeitsanweisungen SOP-Nr.62 [2009] und SOP-Nr.63 [2009] weitestgehend minimiert. Die Ergebnisdiskussion bezüglich der Stofftransportmessungen bezieht sich daher im Weiteren auf die konsistente *IR-Methode*.
Messwertvergleiche mit gängigen Vorausberechnungsmethoden für glatte Filme zeigen, dass entsprechend dem Stand des Wissens die Filmwellen in der Realität höhere Stofftransportraten bewirken. In Abhängigkeit der Wellendynamik ergeben sich Unterschiede im Bereich von 50-200% für den laminaren bis stabil welligen Strömungsbereich.
Die Übertragbarkeit der konventionellen Korrelation $Sh = a\ Re^b\ Sc^{0,5}$ auf Silikonöl ist aufgrund von unzureichender Viskositätsberücksichtigung nicht gegeben. Mit der Erweiterung auf $Sh = a\ Re^b\ Sc^{0,5}\ Fi^{-0,25}$ lassen sich die Silikonölergebnisse trotz großer Viskositätsunterschiede in einer Korrelation vereinen.
Zudem kann der positive Einfluss des Gasgegenstroms bestätigt werden; dieser ist wie erwartet

relativ klein und liegt in etwa bei 3-10% Stofftransportsteigerung. Obwohl die Messunsicherheiten bei 3-6% liegen kann der geringe Gegenstromeinfluss eindeutig identifiziert werden.
Insgesamt sind die so erhaltenen Messergebnisse für die glatte Platte plausibel und werden mittels *IR-Methode* mit hoher Reproduzierbarkeit bereitgestellt. Insbesondere mit Hinblick auf die Untersuchung einer Flüssigkeit bei unterschiedlichen Oberflächen überzeugt die in sich konsistente FTIR-Analyse und untermauert damit die Eignung des hier entwickelten Messsystems zur experimentellen Untersuchung des Mikrostruktureinflusses auf den flüssigkeitsseitigen Stofftransport. Zudem wird dadurch eine solide Basis für den Referenzfall der glatten Platte geschaffen, um die richtigen Schlüsse bei der Bewertung der Mikrostrukturen ziehen zu können.

5.1.2. Mikrostrukturierte Oberflächen

Einleitung und Gliederungsübersicht Für die systematische Charakterisierung des Mikrostruktureinflusses auf den flüssigkeitsseitig dominierten Stofftransport wurden für die glatte Referenzoberfläche sowie vier mikrostrukturierte Oberflächen (siehe 3.3) bei unterschiedlichen Gas- und Flüssigkeitsbelastungen für drei verschieden viskose Silikonöle durchgeführt. Unabhängig von Zusatzuntersuchungen ergeben sich daraus für die ausgewählten Standardeinstellungen bereits 120 Messpunkte, die sich auf verschiedenen Arten miteinander vergleichen lassen. Damit eine übersichtliche Darstellung gewährleistet werden kann, wird sich die Ergebnisdiskussion auf die mit Gleichung (2.13) bestimmten $(k_L A)$-Werte sowie die daraus resultierenden prozentualen Änderungen bezüglich des Referenzfalls fokussieren. Die prozentuale Änderung (ϵ_{kA}: $(k_L A)$-Enhancement) wird dabei wie folgt berechnet:

$$\epsilon_{kA} = 100 \left(\frac{(k_L A)_{Textur}}{(k_L A)_{Glatt}} - 1 \right) \tag{5.3}$$

Zusätzlich werden die Messergebnisse inklusive deren experimentellen Schwankungen für die Standardeinstellungen im Anhang C.3 tabellarisch aufgeführt. Als weitere Form der Ergebnisdarstellung erfolgt eine dimensionslose Übersicht in Anlehnung an die Abb.5.6, um allgemein gültige Aussagen in einem Diagramm zusammenzufassen.
Die Gliederung ist so aufgebaut, dass zunächst die Ergebnisse der Öle DC1 und DC10, also kleinste und größte Viskosität, jeweils einzeln und abschließend dimensionslos zusammengefasst werden, so dass erste Erkenntnisse beziehungsweise allgemein gültige Heuristiken für die Grenzen des Versuchsumfangs festgehalten werden können. Da die Messreihe für die mittlere Viskosität DC5 einen Spezialfall darstellt, erfolgt hier eine gesonderte Ergebnisdiskussion. Abschließend werden die Stofftransportergebnisse zusammengefasst und die wichtigsten Erkenntnisse beziehungsweise Hypothesen festgehalten sowie die Notwendigkeit der Strömungsmessungen für deren Vertiefung verdeutlicht.

DC1-Ergebnisse Für das niedrig-viskose Silikonöl DC1 ergeben sich im Vergleich mit den Ölen DC5 und DC10 für gleiche Flüssigbelastungen B_f dünnere Filmdicken und zugleich höhere Re-Zahlen, siehe Anhang C.4. Die Nusselt-Filmdicken liegen demnach bei 0,22 $mm \leq \delta_N \leq$ 0,32 mm, so dass der charakteristische Filmdickenparameter δ^* in etwa zwischen 0,2 und 4 liegt.

Damit wird nach den fluiddynamisch basierten Erkenntnissen von Zhao und Cerro [1992] sowohl der Bereich mit den „interessantesten Effekten“ ($0{,}1 \leq \delta^* \leq 1$) als auch der Bereich mit annähernd glatter Filmoberfläche ($\delta^* > 1$) abgedeckt. Tatsächlich ergeben sich bei DC1 auch die größten Stofftransportsteigerungen durch die Mikrostrukturen, was im Folgenden erläutert wird.

Für die Ergebnisdiskussion werden die volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten für die fünf standardmäßig untersuchten Oberflächen jeweils mit und ohne Gasgegenstrom in Abbildung 5.8 zusammengefasst. Die darin enthaltenen Mittelwerte für minimale, mittlere und maximale Belas-

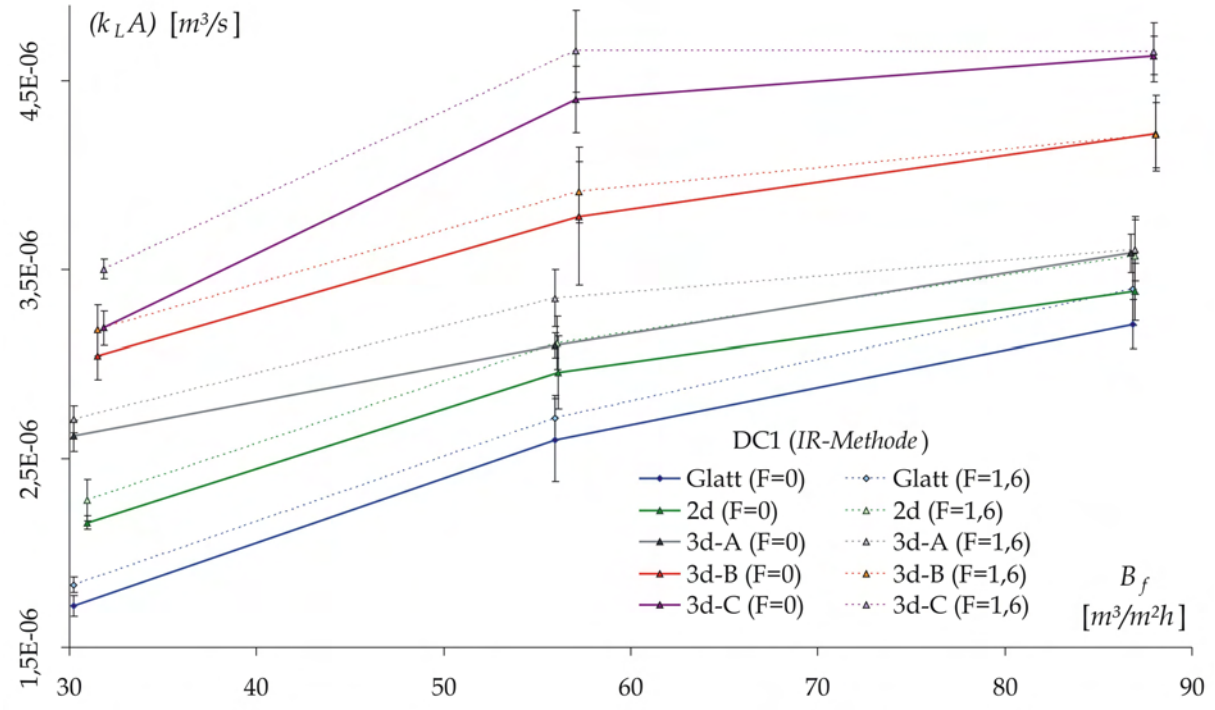

Abbildung 5.8.: Volumetrische Stoffübergangskoeffizienten für DC1 bei unterschiedlichen Oberflächen sowie Flüssig- und Gasbelastungen.

tung werden jeweils einer Belastung in Abbildung 5.9 zugeordnet und die Werte entsprechend (5.3) berechnet. Die Abb.5.9 gibt eine übersichtliche Darstellung des Mikrostruktureinflusses wieder, allerdings gehen die Informationen über die Messwertstreuung verloren, so dass die dort angegeben Absolutwerte als Trendwerte beziehungsweise zur Orientierung zu behandeln sind.

Man erkennt in Abb.5.8 für alle Oberflächen mit steigender Flüssigbelastung B_f auch eine Erhöhung der $(k_L A)$-Werte, so dass zunächst qualitativ ähnliche Abhängigkeiten vorliegen. Zudem fällt auf, dass für jede Einstellung (B_f und F jeweils gleich) die Stofftransportleistung bei mikrostrukturierter Oberfläche jeweils oberhalb der glatten Platte liegt ($\epsilon_{kA} > 0\%$). Es ergibt sich der Trend, dass mit größerer Strukturamplitude eine höhere Stofftransportleistung ermöglicht wird. Der Abb.5.9 ist zu entnehmen, dass die prozentualen Unterschiede bei den drei Belastungen jeweils nahezu unabhängig von der Gasgegenströmung sind. Insgesamt ist die Stofftransportsteigerung durch die Mikrostrukturen deutlich höher als die Messunsicherheiten sowie

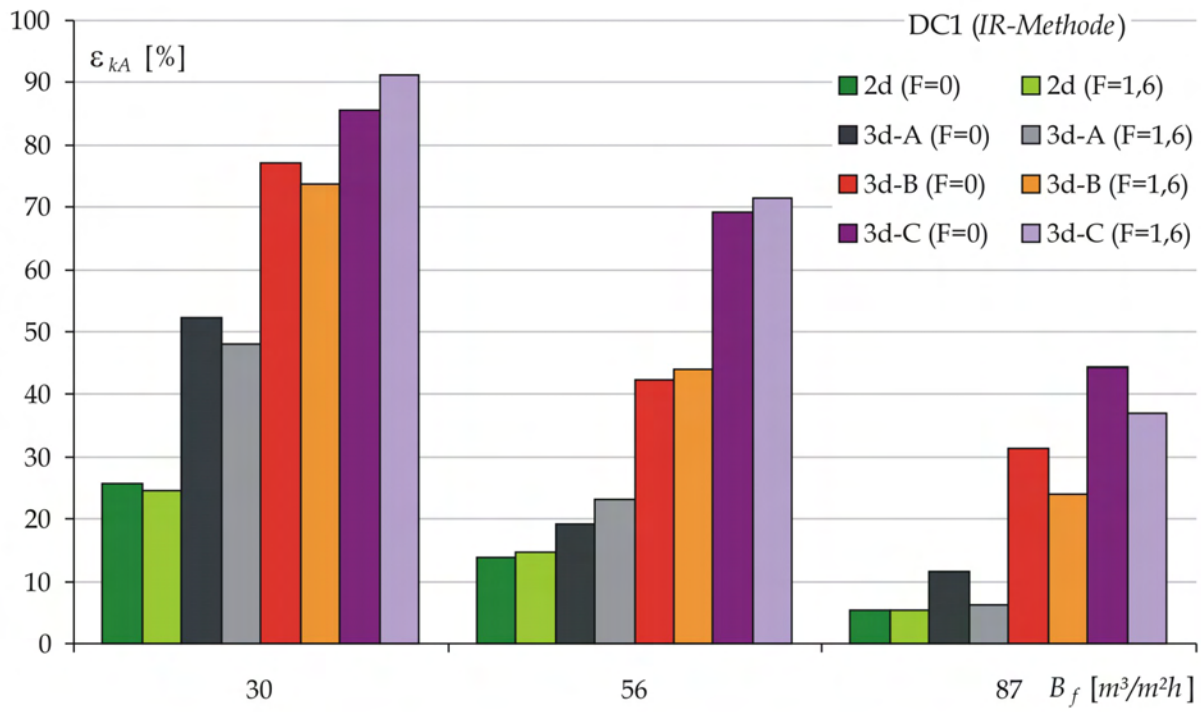

Abbildung 5.9.: Prozentuale Steigerung der ($k_L A$)-Werte für DC1 nach (5.3).

der Gasgegenstromeffekt.

Für die glatte Platte und die 2d-Struktur ergeben sich qualitativ annähernd dieselben Verläufe bei beiden F-Faktoren in Abb.5.8. Bei kleinen B_f-Werten liegen die größten Steigerungen mit 25% vor; mit zunehmender Belastung wird dieser relative Vorteil jedoch geringer und liegt bei maximaler Belastung mit 5% im Bereich der Messungenauigkeit. Zur Erklärung dieser Ergebnisse ist die Betrachtung des Filmdicken-Struktur-Verhältnisses nützlich; bei kleiner Belastung sind Amplituden und Filmdicken noch in ähnlicher Größenordnung ($\delta^* \approx 3$); bei zunehmender Belastung sind die Amplituden nur noch verschwindend klein gegenüber der Filmdicke ($\delta^* \approx 4{,}5$). Es ist somit klar, dass für diesen Fall mit steigender Belastung der Mikrostruktureinfluss abnimmt, da die Filmströmung die Struktur flutet und sich ähnliche Verhältnisse wie auf glatter Oberfläche einstellen. Vergleicht man dieses Ergebnis mit den fluiddynamisch basierten Erfahrungen anderer Autoren, so können die Aussagen von Zhao und Cerro [1992] in so fern bestätigt werden, dass für $0{,}1 \leq \delta^* \leq 1$ (trifft für DC1 auf alle 3d-Typen zu) größere Effekte auftreten als bei $\delta^* > 1$. Im Gegensatz zu den Vermutungen von Zhao und Cerro [1992] können für den 2d-Typ auch für $\delta^* > 3$ positive Stofftransporteffekte gemessen werden, was zum Beispiel in Anlehnung an die Experimente von Argyriadi et al. [2006] mit Resonanzerscheinungen im Film in Verbindung stehen kann. Die Zunahme der Filmdeformation, insbesondere im sonst glatten Einlaufbereich, könnte eine geringfügig größere Phasengrenzfläche bereitstellen beziehungsweise den konvektiven Stoffaustausch zwischen grenzflächennahen hochbeladenen und weniger belade-

nen Fluidelementen aus unteren Filmschichten fördern.

Verglichen mit dem 2d-Typ werden mit den 3d-Typen signifikant höhere Stofftransportleistungen erzielt und die ϵ_{kA}-Werte der 3d-Typen nehmen analog zum 2d-Typ mit steigender Belastung ab. Allerdings wird in diesen Fällen $0{,}1 \leq \delta^* \leq 1$ erfüllt, so dass ein quasi glatter Film eher unwahrscheinlich ist, siehe 5.2.1. Dennoch werden mit steigender Belastung die Strukturtäler vermehrt gefüllt, so dass zum Beispiel angenommen werden kann, dass die Phasengrenzfläche abnimmt. Ein weiteres Argument, weshalb die ϵ_{kA}-Werte bei hohen Belastungen am kleinsten sind, könnte mit der Ausbildung von 3d-Wellen auf glatter Oberfläche zusammenhängen. Dieser Effekt konnte während eigener Experimente beobachtet werden. Dass insbesondere bei 3d-Wellen (bzw. 3d-Kapillarwellen) erhöhte Stoffaustauschvorgänge zu erwarten sind geht aus den Grundlagen in 2.1.2 hervor und wird durch die neuen Erkenntnisse von Dietze [2010] zusätzlich begründet. An dieser Stelle bleibt jedoch offen, ob aufgrund der 3d-Typen die Wellenausbildung unterdrückt wird, ob durch die dreidimensionale Struktur bereits früher 3d-Wellen induziert werden oder weitere Phänomene die beobachteten Stofftransportsteigerungen verursachen können. Zur Klärung dieser Fragestellung sind jedoch Strömungsmessungen notwendig, um die vorliegenden komplexen Strömungsvorgänge näher beschreiben zu können.

DC10-Ergebnisse Für das hoch-viskose Silikonöl DC10 ergeben sich nach Anhang C.4 im Untersuchungsbereich relativ dicke Filme ($0{,}44\ mm \leq \delta_N \leq 0{,}7\ mm$) bei gleichzeitig geringen Fließgeschwindigkeiten. Damit nimmt das Verhältnis aus Nusselt-Filmdicke und Strukturamplituden gegenüber DC1 deutlich ab, so dass sehr feine Texturen vermutlich nur als Oberflächenrauhigkeit ohne bemerkenswerten Stofftransporteinfluss wirken. Diese Vermutung trifft bei der kleinsten Mikrostruktur 2d mit etwa $6 \leq \delta^* \leq 9$ zu. Die Messergebnisse sind aus Übersichtsgründen in einem ϵ_{kA}-B_f-Diagramm dargestellt, siehe Abbildung 5.10. Man erkennt für den 2d-Typ, dass für alle Flüssig- und Gasbelastungen die ϵ_{kA}-Werte um circa $\pm 5\%$ des Referenzwertes schwanken. Für die kleinste Belastung ergibt sich noch ein einheitliches Bild mit einer 5-6%-igen Stofftransportabsenkung für alle drei F-Faktoren; bei höheren Belastungen ist jedoch kein sinnvoller Trend abzulesen. Insgesamt liegt der Messfehler hier etwa bei 4-5%, so dass sich aus diesen Stofftransportmessungen kein signifikanter Einfluss des 2d-Typs auf den Stofftransport nachweisen lässt. In Übereinstimmung mit den DC1-Ergebnissen ist für $\delta^* > 4{,}5$ die Mikrostrukturierung offenbar unwirksam.

Bei den Typen 3d-A und 3d-B liegen nun jeweils δ^*-Werte um 1 vor (für 3d-A circa 40-100% oberhalb und für 3d-B etwa 0-30% unterhalb von $\delta^* = 1$) und es ergeben sich Stofftransportsteigerungen für beide Typen in der gleichen Größenordnung um 10-16%. Tendenziell werden durch die Gasgegenströmung die ϵ_{kA}-Werte verringert, dass heißt der positive Effekt des Gasgegenstroms besitzt bei glatter Oberfläche einen größeren Einfluss als bei mikrostrukturierter Oberfläche 3d-A und 3d-B. Zusammenfassend lässt sich festhalten, dass die Stofftransportsteigerungen für 3d-A und 3d-B höher sind als die Messunsicherheiten, so dass mindestens von einer mittleren Stofftransportsteigerung von 10% ausgegangen werden kann. Somit ist nachgewiesen,

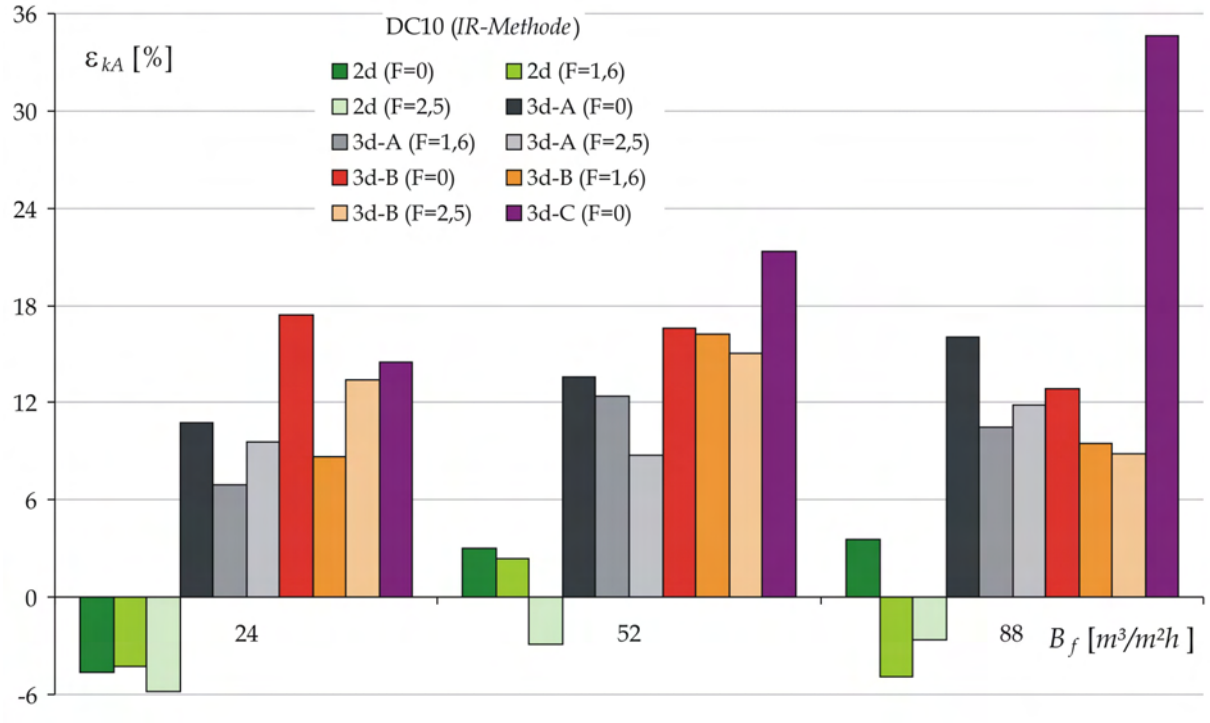

Abbildung 5.10.: Prozentuale Änderung der ($k_L A$)-Werte für DC10 nach (5.3).

dass auch bei sehr langsamen Strömungen mit δ^*-Werten nahe 1 mikrostrukturierte Oberflächen positiv wirken können.

Die deutlichsten Vorteile zeigt der Typ 3d-C mit etwa $0{,}3 \leq \delta^* \leq 0{,}6$, so dass über den Belastungsbereich die ϵ_{kA}-Werte von circa 14 auf 35% ansteigen. Analog zu 3d-A steigen also die Vorteile von 3d-C mit der Belastung an. Interessanterweise ergibt sich bei DC1 genau ein umgekehrtes Verhalten (ϵ_{kA}-Abnahme mit B_f). Daraus folgt, dass es offenbar keinen monotonen Trend bezüglich der δ^*-Werte gibt; es scheint zumindest für 3d-C besonders positiv zu sein, wenn gilt $\delta^* \to 1$ und $\delta^* \to 0{,}1$. Demnach müsste zwischen diesen Grenzen ein lokales Minimum existieren, was sich auch anhand der DC5-Ergebnisse bestätigen lässt, siehe unten.

Abschließend lässt sich zusammenfassen, dass positive Effekte analog zu DC1 auftreten können, wenn die charakteristische Größe δ^* zwischen 0 und 1 liegt sowie auch für δ^*-Werte bis etwa 2. Bei größeren δ^*-Werten (etwa $\delta^* > 4{,}5$) ist der Mikrostruktureffekt auf den Stofftransport bei den hier untersuchten *Re*-Zahlen bereits zu vernachlässigen. Die Steigerungen sind für DC1 deutlich höher als für DC10, wobei eine Ursachendiskussion ohne Strömungsmessungen nur von hypothetischer Natur wäre, so dass diese Diskussion zurückgestellt wird.

Dimensionslose Betrachtung DC1/ DC10 Bevor auf den Sonderfall DC5 eingegangen wird erfolgt die dimensionslose Darstellung der Messergebnisse für die Grenzen (hinsichtlich Viskosität bzw. *Re*-Zahl) des Messbereichs damit die Abb.5.6 um die Ergebnisse der Mikrostrukturen

erweitert werden kann. Hierzu werden die Mittelwerte der drei Standardbelastungen für DC1 und DC10 in Abbildung 5.11 zusammengefasst. Im Gegensatz zu Abb.5.6 ist der Messwert-

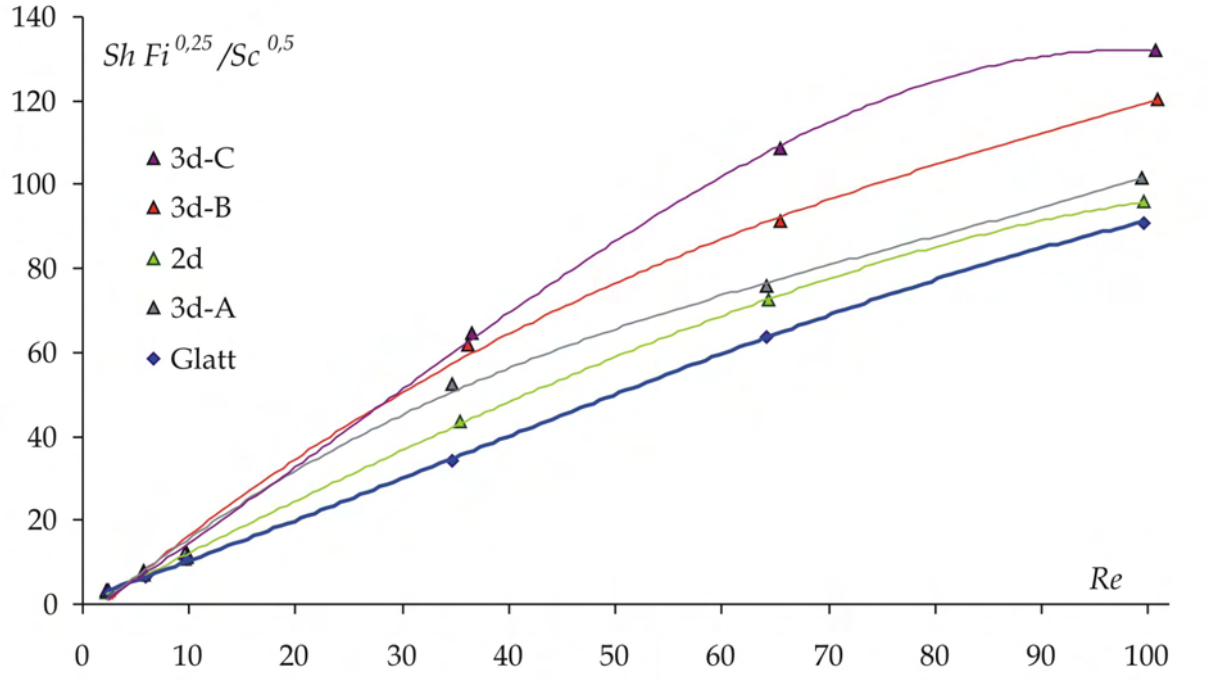

Abbildung 5.11.: Dimensionslose Darstellung der DC1- und DC10-Messergebnisse für eine glatte und vier unterschiedlich mikrostrukturierte Oberflächen.

trend in dem $Sh\ Fi^{0,25}/Sc^{0,5}$-Re-Plot nicht für alle Oberflächen mittels Potenzfunktion sinnvoll anzunähern, weshalb in Abb.5.11 ein Polynom 3. Grades als Trendkurve ausgewählt wurde. Damit können die Messpunkte im oberen Re-Bereich zwar sehr gut beschrieben werden, allerdings ergeben sich für die DC10-Ergebnisse bei $Re \approx 2{,}4$ und $Re \approx 9{,}8$ größere Abweichungen. Dennoch können mit Abb.5.11 die dimensionslosen Abhängigkeiten bei der CO_2-Absorption in Silikonöl für glatte und unterschiedlich mikrostrukturierte Oberflächen übersichtlich wiedergegeben werden. Bei hohen Re-Zahlen besitzen die Mikrostrukturen offenbar ein größeres Potential, so dass im laminaren bis stabil welligen Bereich ($2{,}4 \leq Re \leq 10$) in etwa eine 10-30%-ige ($k_L A$)-Steigerung erzielt werden kann und im stabil welligen Bereich mit $35 \leq Re \leq 100$ diese Steigerung 20-90% betragen kann. Dieser Trend steht durchaus in Einklang mit den Ergebnissen von Davies und Warner [1969], die für den turbulenten Bereich Steigerungen von 50-250% nachweisen konnten. Dieser globale Trend, dass mit steigenden Re-Zahlen das Potential von Oberflächenstrukturen zur Stofftransportintensivierung zunimmt ist zwar qualitativ richtig, allerdings ergeben sich sowohl bei Davies und Warner [1969] als auch in dieser Arbeit komplexere Zusammenhänge, die sowohl von der Texturtopographie als auch von der Re-Zahl abhängig sind. Verwendet man das fluiddynamisch basierte δ^*-Konzept von Zhao und Cerro [1992], so hat eine Erhöhung von Re eine Zunahme der Filmdicke und damit von δ^* zur Folge, so dass bei Überschreiten des Wertes von etwa $\delta^* > 4{,}5$ trotz Re-Erhöhung keine Verbesserungen mehr erzielt werden können. Besonders effektiv wäre demnach der Einsatz von Mikrostrukturen bei

sehr niedrig-viskosen Medien wie zum Beispiel bei Flüssiggasen mit hohen Re-Zahlen, vergleiche Fluiddynamik-Simulationen von Trifonov [2004]. In diesem Fall ist die Filmdickenzunahme mit steigender Re-Zahl relativ gering, so dass besonders vorteilhafte Betriebsbereiche für Flüssiggasanwendungen entstehen können. Zum Beispiel ergeben sich nach Trifonov [2004] bei $Re = 5$ noch annähernd laminare Strömungsverhältnisse und bei $Re = 45$ bereits Wirbelstrukturen im Tal, die zu einen verbesserten Gas-Flüssig-Stofftransport führen könnten. Welche Ursachen im vorliegenden Fall der drei untersuchten Silikonöle entscheidend sind wird in den Abschnitten zur Strömungsmessung 5.2 diskutiert. Vorher werden noch die Ergebnisse des mittel-viskosen Öls DC5 im folgenden Abschnitt vorgestellt.

DC5-Ergebnisse Für das mittel-viskose DC5 kann für die glatte, die 2d- und die 3d-A-Oberfläche in Abbildung 5.12 jeweils ein sehr ähnlicher Verlauf mit nahezu gleichen Steigungen und Absolutwerten entnommen werden. Dies gilt für alle F-Faktoren und ist der Tatsache geschuldet, dass die Mikrostrukturen in diesen Fällen im Verhältnis zur Filmdicke sehr klein sind, so dass kaum Unterschiede zur glatten Oberflächen entstehen können.

Ein anderes Bild ergibt sich für den 3d-C-Typ in Abb.5.12, wofür anstelle einer Steigungsabflachung mit zunehmender Flüssigbelastung für $F = 0$ ein linearer Verlauf und für $F > 0$ sogar eine Steigungsumkehrung zu erkennen ist. Im Gegensatz zu den feinen Texturen 2d und 3d-A besitzt der Gasgegenstrom hier nur bei maximaler Flüssigbelastung einen markanten Einfluss auf den Stofftransport. Als Ursache kann man vermuten, dass aufgrund der groben 3d-C-Struktur für kleine B_f-Werte die Kanalströmung zwischen den pyramidischen Maxima dominiert, so dass dort eventuell höhere Fließgeschwindigkeiten vorliegen und damit der Gegenstromeinfluss vernachlässigt werden kann. Nimmt man weiter an, dass bei maximaler Belastung die Pyramidenspitzen bereits mit dünnen Filmen überströmt werden, so erscheint auch der einsetzende positive Gegenstromeinfluss analog zu feinen Texturen plausibel zu sein.

Die Steigungsänderung von 3d-C ist bei 3d-B in Abb.5.12 noch deutlicher zu erkennen und bei Verwendung von 3d-B* führt diese Steigungsänderung sogar zur Stagnation beziehungsweise Abnahme der $(k_L A)$-Werte mit ansteigender Flüssigbelastung B_f. Dieses Phänomen ist bei glatter Oberfläche unmöglich und stellt im Bereich der Filmströmungen ein bisher unbekanntes Phänomen dar.
Lediglich bei dem Stoffübergang von umströmten Partikeln in das umgebende Fluid kann für den Fall der Überlagerung von freier und erzwungener Konvektion eine Abnahme von Sh mit steigender Re-Zahl auftreten [Brauer, 1971]. Die Übertragbarkeit auf das vorliegende Problem, welches man als Umströmung von 3d-Mikrostrukturen interpretieren könnte ist jedoch nicht trivial, da der Stofftransport nicht durch die Strukturen sondern durch die freie Phasengrenzfläche erfolgt. Dennoch könnten Effekte der Strömungsablösung analog zur Partikelumströmung relevant sein, siehe 5.2.3.

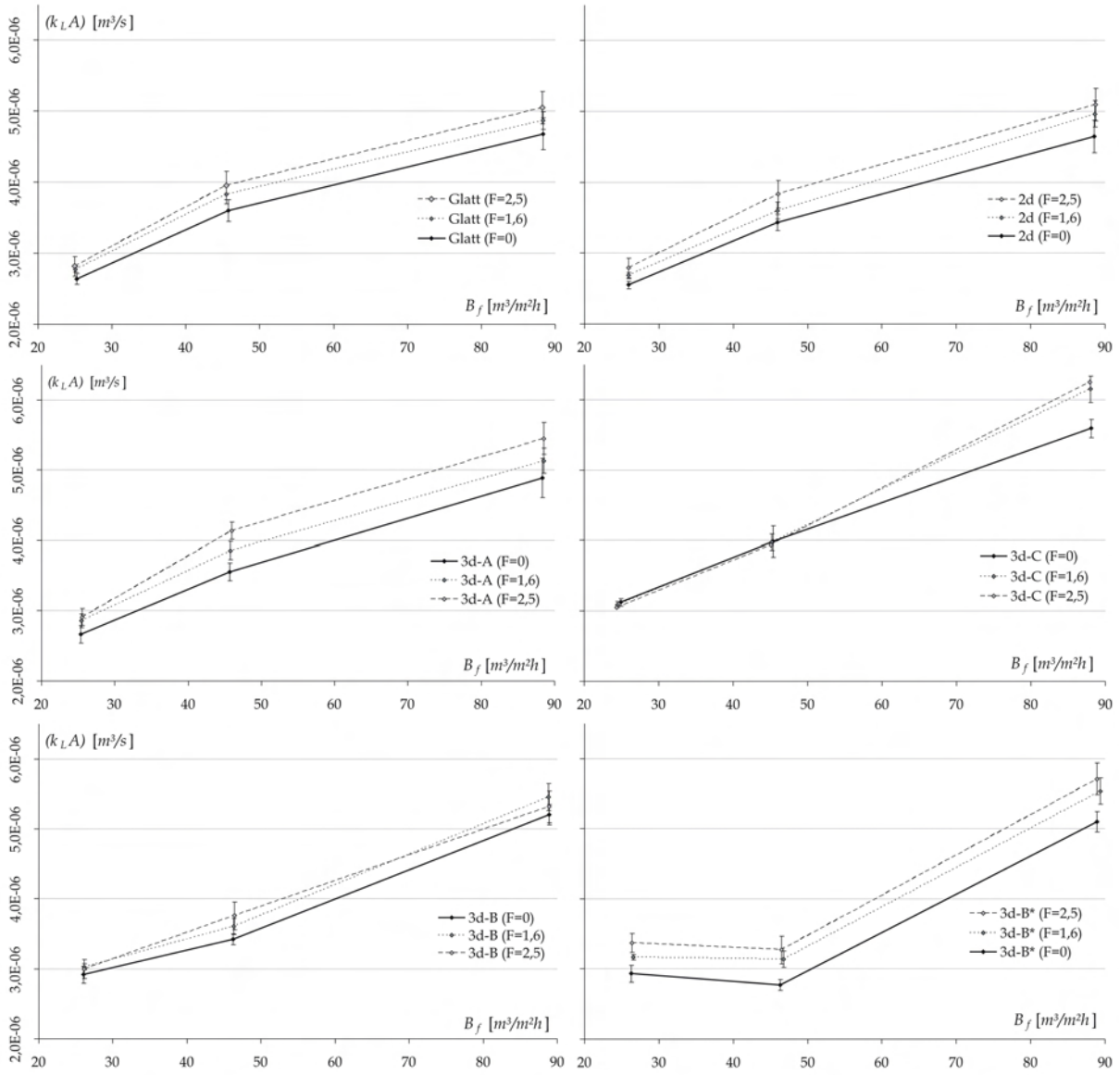

Abbildung 5.12.: $(k_L A)$-Werte für DC5-Messungen bei verschiedenen F-Faktoren.

Vergleicht man weiterhin die $(k_L A)$-Werte mit denen der glatten Oberfläche, so fällt auf, dass in Abbildung 5.13 mit Ausnahme von 3d-A bei $F = 2{,}5\ Pa^{0,5}$ für insgesamt 16 Konstellationen der Stofftransport bei mittlerer Belastung gegenüber mini- und maximaler Belastung stets am kleinsten ist. Es scheint somit ein systematisch begründetes Phänomen eines lokalen Stofftransportminimums bei $B_f \approx 46\ m^3/m^2h$ vorzuliegen. Deshalb muss unter anderem ausgeschlossen werden, dass keine systematischen Messfehler dieses Phänomen verursachen, siehe unten.

Am deutlichsten ist dieses lokale Stofftransportminimum bei den größeren Strukturen 3d-B, 3d-B* und 3d-C zu erkennen. Während bei 3d-C in der Regel noch signifikante Vorteile gegenüber der glatten Platte nachgewiesen werden können, so ergeben sich für 3d-B bei mittlerer Belastung für alle Gasbelastungen bereits geringe Nachteile. Diese liegen für 3d-B zwar noch im Bereich

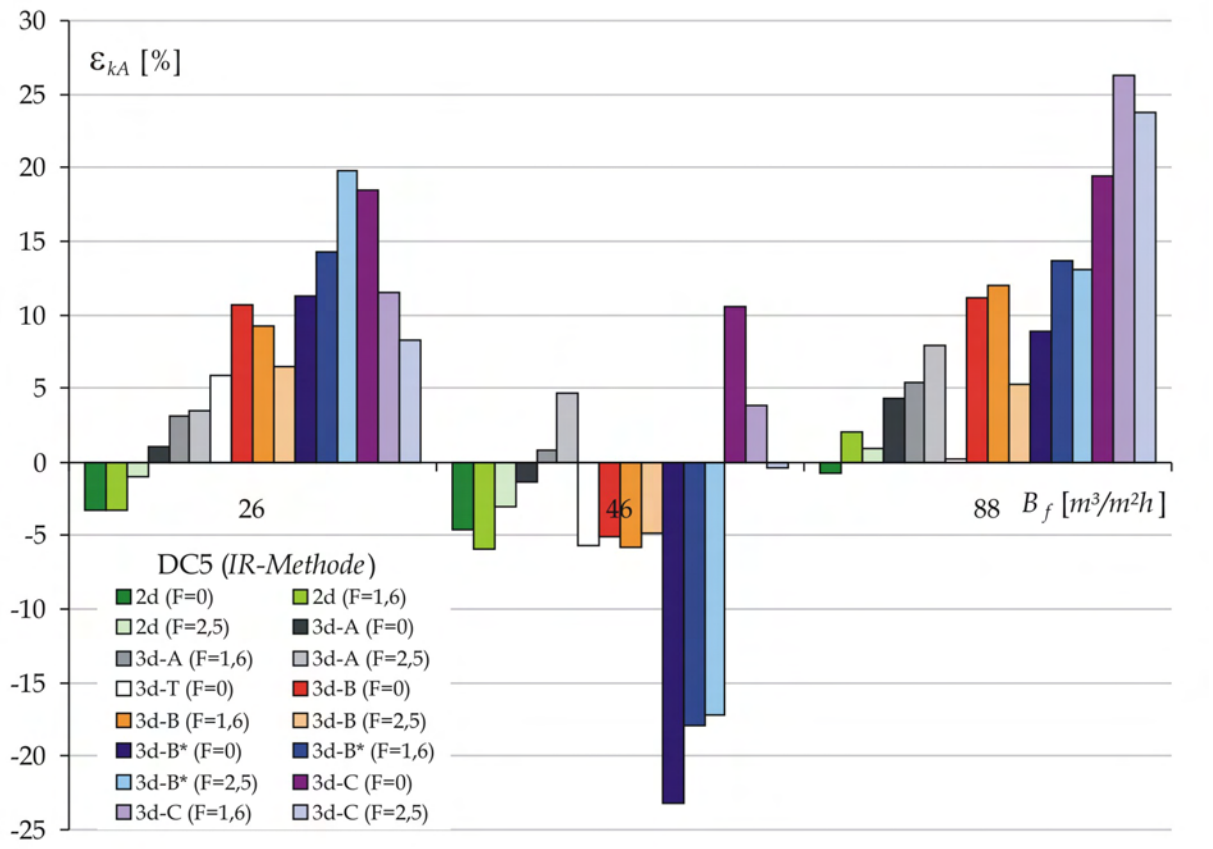

Abbildung 5.13.: Prozentuale Änderung der $(k_L A)$-Werte für DC5 nach (5.3).

der Messungenauigkeiten; allerdings kann aufgrund geringer Designänderung und sonst gleicher Größenordnung bei dem 3d-B*-Typ bereits ein massiver Einbruch der Stofftransportleistung um etwa 25% festgestellt werden. Dieser Trend ist für 3d-B* bei allen Gasbelastungen deutlich ausgeprägt, so dass man von einem relativ stabilem Phänomen in der Flüssigphase ausgehen kann.

Wie oben erwähnt wäre es möglich, dass das messbare lokale Stofftransportminimum systematische Ursachen haben könnte, die nicht zwangsläufig mit einem Mikrostruktureinfluss zusammenhängen müssten. Eine Möglichkeit wäre, dass für den Referenzfall der glatten Platte fälschlicher Weise zu hohe Werte aus den Messungen resultierten. Weiterhin besteht die Möglichkeit, dass aufgrund spezieller Wellenformationen analog zu den Simulationsergebnissen von Rastaturin et al. [2006], siehe 2.1.2, durch gezielte Frequenzaufprägung lokale Stofftransportmaxima entstünden. Beide hier genannten Möglichkeiten müssten genau im Bereich des lokalen Stofftransportminimums für die untersuchten Mikrostrukturen ein lokales Stofftransportmaximum für die glatte Oberfläche bewirken. Betrachtet man allerdings den monotonen Trend in Gleichung (5.2) in der Abb.5.6 so tritt offensichtlich kein Stofftransportmaximum bei glatter Oberfläche auf, was zudem durch Zusatzmessungen in Abbildung 5.14 verdeutlicht wird. Hier sind zusätzlich zu den Standardeinstellungen die Mittelwerte zahlreicher Messreihen dargestellt, so dass sich für die glatte Oberfläche eindeutig ein monotoner Trend ableiten lässt. Obwohl dort

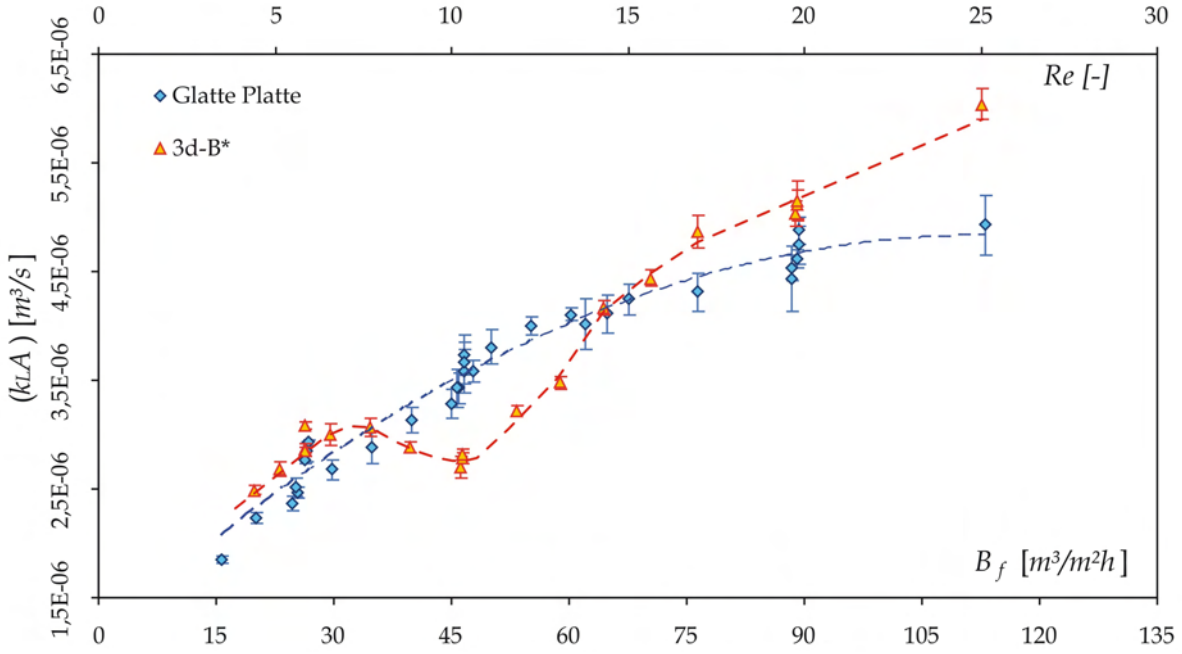

Abbildung 5.14.: ($k_L A$)-Zusatzergebnisse für DC5 für die glatte Oberfläche sowie der 3d-B*-Struktur.

vereinzelt Messwerte aus der Testphase mit größeren Abweichungen enthalten sind, so genügt bereits ein einfaches Polynom 2. Grades, um den Messwerteverlauf mit einer Varianz kleiner 2,5% anzunähern. In selbiger Abbildung werden zudem Zusatzmesswerte für den Extremfall 3d-B* dargestellt. Bei sehr kleinen Belastungen ($B_f \approx$ 20-25 m^3/m^2h) ergeben sich für 3d-B* noch deutliche Vorteile mit etwa 10%, für $B_f \approx$ 28-35 m^3/m^2h sind die Unterschiede beider Oberflächen zu vernachlässigen und für $B_f \approx$ 40-65 m^3/m^2h zeichnet sich ein signifikanter Stofftransportnachteil mit $\epsilon_{kA} \approx -25\%$ ab. Erst bei höheren Beladungen ($B_f > 80\ m^3/m^2h$) überwiegen die Vorteile dieser Mikrostruktur wieder. Für $B_f > 113\ m^3/m^2h$ beträgt $\epsilon_{kA} = 23\%$, wobei in späteren Strömungsmessungen vermutlich eine Resonanzerscheinung beobachtet wurde, siehe Anhang D.2.

Zur Aufklärung dieses speziellen Strömungsphänomens sind analog zur Diskussion der DC1- sowie der DC10-Ergebnisse Strömungsmessungen am Rieselfilm notwendig. Ein möglicher Erklärungsansatz für den Spezialfall DC5-3d-B* bezieht sich auf aktuelle Strömungsergebnisse von Wierschem et al. [2010]. Dort kann für eine 2d-Struktur mit steigender Re-Zahl eine Wirbelbildung für $Re =$ 12-35, eine Wirbelunterdrückung für $Re =$ 25-35 sowie die erneute Wirbelausbildung für $Re > 35$ experimentell und mittels Simulation nachgewiesen werden. Ob dieses Phänomen auch bei einer dreidimensionalen Mikrostruktur auftreten kann oder andere Ursachen ausschlaggebend sind, wird im Folgenden nach der Vorstellung der Strömungsergebnisse weiter diskutiert werden.

Zusammenfassung Mit Hilfe von Stofftransportmessungen bei der CO_2-Absorption in verschieden viskose Silikonöle ist es möglich im praxisnahen Betriebsbereich von Packungskolon-

nen einen signifikanten Einfluss von mikrostrukturierten Oberflächen auf den flüssigkeitsseitigen Stofftransport nachzuweisen. In diesem Zusammenhang ist es erstmalig gelungen den positiven Effekt von Mikrostrukturen unabhängig vom Benetzungsverhalten sowie vom gasseitigen Stofftransportwiderstand zu belegen. Die ermittelten Unterschiede zwischen glatter und mikrostrukturierter Oberfläche liegen dabei in der Regel deutlich oberhalb der Messungenauigkeiten sowie der positiven Wirkung des Gasgegenstroms unterhalb des Staupunkts.

Bei kleinen Viskositäten (DC1) beziehungsweise großen *Re*-Zahlen ist der positive Mikrostruktureinfluss mit einer ($k_L A$)-Steigerung bis zu 90% im Rahmen dieser Untersuchungen am stärksten ausgeprägt. Für hohe Viskositäten (DC10) können trotz überwiegend laminarer Schichtenströmung noch ($k_L A$)-Steigerungen bis zu 35% erzielt werden. Diese Maximalwerte werden jeweils bei der gröbsten Mikrostruktur 3d-C erzielt, wobei scheinbar vorteilhafte δ^*-Verhältnisse vorliegen. Obwohl bei DC5 die δ^*-Werte zwischen denen von DC1 und DC10 liegen, konnten bei 3d-C nur 20-25% ($k_L A$)-Steigerung erreicht werden und für die mittlere Flüssigbelastung nur noch 10%. Für dasselbe Stoffsystem wurde zudem ermittelt, dass bei dem Typ 3d-B* sogar eine ($k_L A$)-Verschlechterung gegenüber glatter Oberfläche um bis zu 25% bei mittlerer Belastung auftritt, obwohl bei mini- und maximaler Belastung ein positiver Einfluss vorliegt.
Insgesamt kann die fluiddynamisch basierte Aussage aus Zhao und Cerro [1992], dass in dem Bereich $0{,}1 \leq \delta^* \leq 1$ die „interessantesten Effekte“ bei 2d-Mikrostrukturen vorliegen anhand von Stofftransportmessungen bestätigt werden. In den meisten Fällen ist dieser Effekt positiv, in Ausnahmesituationen kann der flüssigkeitsseitige Stofftransportwiderstand aufgrund einer Mikrostruktur jedoch auch negativ beeinflusst werden.

Offenbar können insbesondere dreidimensional mikrostrukturierte Oberflächen den Stofftransport gegenüber einer glatten Oberfläche maßgeblich beeinflussen. Die Designempfehlung $0{,}1 \leq \delta^* \leq 1$ führt zwar in der Regel zu positiven Effekten, ein negativer Einfluss ist jedoch im gleichen Bereich ebenfalls möglich. Es kann angenommen werden, dass mit den Prozessparametern variierende sehr komplexe Strömungsvorgänge vorliegen können. Für die Stofftransportsteigerung sind als mögliche Ursachen eine Erhöhung der Phasengrenzfläche, eine verbesserte Vermischung im Film (eventuell induziert durch Wirbel), die Erhöhung lokaler Fluidgeschwindigkeiten durch Kanaleffekte (bei 3d-Typen), die Erhöhung von Verweilzeiten beziehungsweise Kontaktlängen sowie Resonanzphänomene zu berücksichtigen. Die beobachtete Stofftransportverschlechterung könnte zum Beispiel mit einer Wirbelbildung oder Wirbelunterdrückung je nach Wirkweise zusammenhängen. Ein weiterer Aspekt ist die Wellendynamik, die durch die Mikrostrukturen gegebenenfalls massiv beeinflusst werden kann. Zur näheren Beurteilung dieser Hypothesen beziehungsweise Schlüsselkriterien erscheint es notwendig zu sein Strömungsmessungen durchzuführen, zumal 3d-Strömungssimulationen den Rahmen dieser Arbeit sprengen würde.

5.2. Strömungsmessungen

In diesem Abschnitt werden die wesentlichen Ergebnisse der unterschiedlichen Strömungsmessungen innerhalb der Hauptuntersuchungen diskutiert, um schließlich ein besseres Verständnis der Stofftransportresultate aus 5.1 zu erhalten. Hierzu werden die Messergebnisse der Filmdickenverteilung in 5.2.1, der Tracer-Experimente in 5.2.2 sowie der Filmgeschwindigkeiten in 5.2.3 präsentiert und bewertet.
Bei diesen Untersuchungen werden nicht alle Kombinationen aus Oberflächenmaterial und Silikonöltyp wie in 5.1 durchgeführt, sondern der Schwerpunkt auf diejenigen Fälle gelegt, bei denen man systematische Schlussfolgerungen ziehen kann. So wird zum Beispiel der Einfluss des Gasgegenstroms nicht weiter untersucht, da dieser unterhalb des Staupunkts im Vergleich zu den Mikrostrukturen keinen nennenswerten Einfluss auf den Stofftransport besitzt (siehe vorigen Abschnitt).

5.2.1. Fluidverteilung (LIF-Ergebnisse)

Messungen bei glatter Oberfläche Zur Überprüfung der Messgenauigkeit der LIF-Messungen erfolgt im ersten Schritt die Ergebnisdiskussion für die glatte Platte. Hierzu wird zunächst der Fall einer Messung von DC10 bei Position I sowie $t_B = 50\ ms$ für unterschiedliche Volumenströme diskutiert, siehe Abbildung 5.15. Hierin sind die Messdaten wie in 4.2.1 beschrieben in

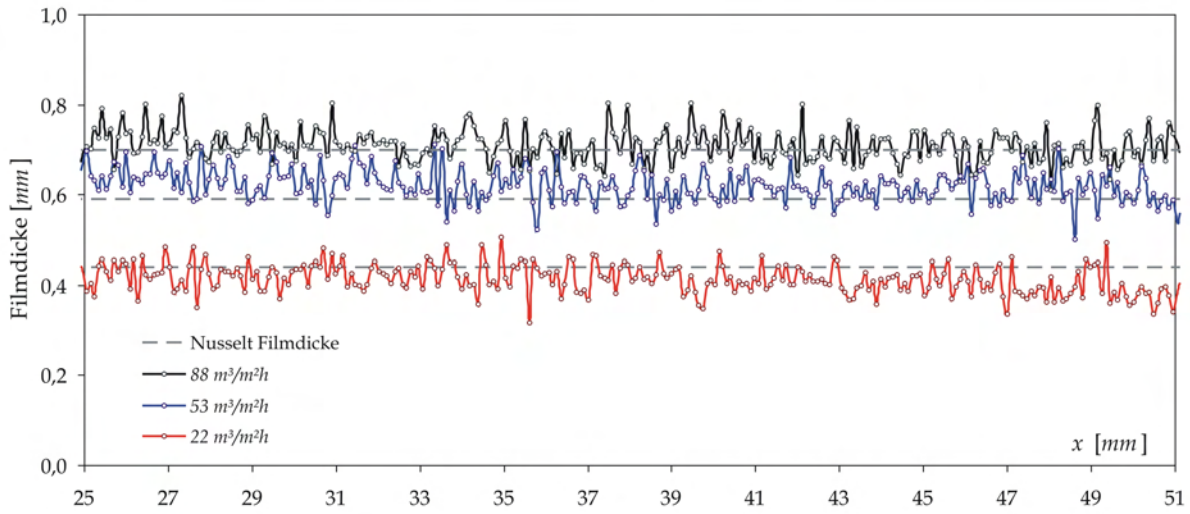

Abbildung 5.15.: LIF-Messungen für DC10 auf glatter Oberfläche bei unterschiedlichen Belastungen mit einer Belichtungszeit von $t_B = 50\ ms$ sowie der Naheinstellung Position I.

Filmdicken umgerechnet worden und in Abhängigkeit der Lauflänge x dargestellt. Die Lauflänge beschränkt sich in Abb.5.15 auf den nahezu wellenfreien Anfangsbereich mit x = 2,5-5,1 cm, um einen sinnvollen Vergleich mit der Nusselt-Lösung, Gleichung (2.4), herzustellen. Man erkennt für alle Flüssigbelastungen B_f eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Messwerten und theoretischer Lösung nach Gleichung (2.4). Die Messergebnisse weichen in der Regel um 5% von der theoretischen Lösung ab. Für die kleinste Belastung von $B_f = 22\ m^3/m^2h$ liegen die

Werte jedoch im Mittel 10% unterhalb der Nusselt-Lösung, weil der Flüssigkeitsanteil durch die Keilküvette von etwa 1 m^3/m^2h den realen Volumenstrom über die Platte reduziert. Dieser Küvettenstrom ist für größere Volumenströme zu vernachlässigen, allerdings ist diese Ungenauigkeit des Volumenstroms bei den jeweils kleinsten Belastungen von DC10 und DC5 bei der weiteren Auswertung zu beachten. Im Falle von DC1 wird während der Aufnahmen nur durch die Messzelle Flüssigkeit geführt und die Küvette kurz vor jeder Messung gespült, so dass diese Ungenauigkeit bei DC1 nicht auftritt.
Bezüglich der Messwertstreuung ergibt sich bei DC10 und obiger Einstellung in Abb.5.15 bezüglich der gemessenen mittleren Filmdicke eine Standardabweichung von 0,035 mm für 25 $mm < x < 45$ mm und die Größe eines Pixels (entspricht einem Messpunkt) liegt bei 0,1 mm. Damit können ähnliche Genauigkeiten wie bei den örtlich und zeitlich hoch aufgelösten Filmdickenmessungen von Al-Sibai [2005], der eine Standardabweichung von 0,1 mm bezüglich der mittleren Filmdicke angibt, erreicht werden. Allerdings können bei $t_B = 50$ ms Wellen nicht mehr fein genug aufgelöst werden, so dass hierfür kürzere Belichtungszeiten eingestellt werden müssten, siehe unten.

Als Beispiel kurzer Belichtungszeit ($t_B = 10$ ms) werden die Ergebnisse bezüglich der Position II in Abbildung 5.16 dargestellt. Darin sind die Messergebnisse über die gesamte Plattenlänge angegeben, wobei am Ein- und Austritt aufgrund erhöhter Lichtintensität einige Messwerte nicht mehr dargestellt werden. Man kann hierin die Filmevolution über circa 29 cm Lauflänge verfolgen. Während bei minimaler Belastung $B_f = 22$ m^3/m^2h der Film annähernd wellenfrei bleibt treten bei höheren Belastungen sichtbar Wellen auf. Die Wellenfreiheit bei minimaler Belastung bestätigt die Grundlagenkenntnisse in 2.1.1, dass für $Re < 3$ ein glatter Film vorliegen kann. Man erkennt analog zu Abb.5.15, dass die theoretischen Werte mit experimentellen Ergebnissen in Abb.5.16 im Eintrittsbereich sehr gut korrelieren. Die Messwertstreuung erfährt im Vergleich zu Abb.5.15 in etwa eine Verdopplung, so dass die Standardabweichung bei den Ergebnissen in Abb.5.16 bei 0,07 mm (berechnet für x = 2,5-30 mm) liegt. Nach einer gewissen Einlauflänge bilden sich dann Wellen aus, vergleiche Abb.2.2, wobei deren Intensität mit der Flüssigbelastung wie erwartet zunimmt. Die Auflösung von Kapillarwellen, vergleiche Simulationsergebnis in Abb.2.6, ist aufgrund zu geringer zeitlicher sowie örtlicher Auflösung nicht möglich; hierzu müsste ein mikroskopisches Objektiv sowie eine leistungsstärkere Lichtquelle für die Messungen eingesetzt werden. Dennoch kann man den Messergebnissen die charakteristische Filmwellenform mit flachem Dickenanstieg zum Wellenmaximum sowie steilem Abfall der Filmdicke an der Wellenfront entnehmen.

Im Vergleich zu DC10 ergeben sich für DC5 in Abbildung 5.17 flachere Wellen mit höherer Frequenz sowie bei dieser Momentaufnahme zudem eine höhere Regelmäßigkeit der Wellenformation, wobei die Wellenamplituden mit der Lauflänge tendenziell zunehmen. Die Standardabweichung der mittleren Filmdicke in Abb.5.17 liegt für 15 $mm < x < 35$ mm bei 0,053 mm und der relative Fehler bezogen auf die theoretische Lösung bei 0,1%. Für kleinere Belastungen liegt die Abweichung zur Nusselt-Lösung bei etwa 5%; die zugehörigen Ergebnisse der Standardbelas-

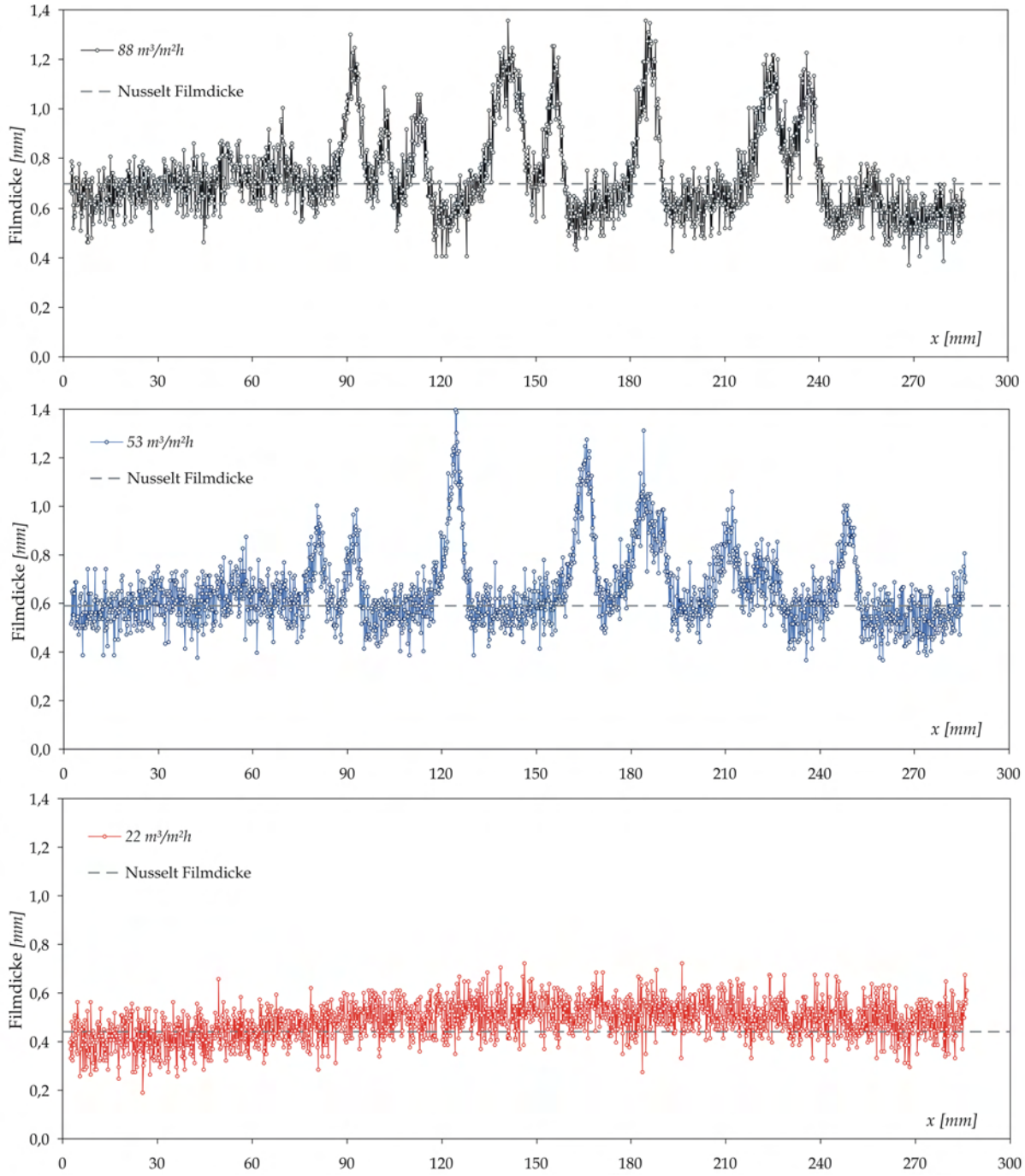

Abbildung 5.16.: Filmdickenergebnisse für DC10 auf glatter Oberfläche bei unterschiedlichen Belastungen mit $t_B = 10\ ms$ (Position II).

tungen werden im Anhang in Abbildung D.1 für ersten 15 *cm* abgebildet. Bei mittlerer Viskosität (DC5) ergeben sich analoge Aussagen wie für die anderen Öle bezüglich der Einlaufstrecke zur Ausbildung von Wellen sowie der Wellenfrequenz in Abhängigkeit der Flüssigkeitsbelastung, wobei im Allgemeinen die beobachteten Charakteristika entsprechend der Stoffeigenschaften von DC5 zwischen denen von DC1 und DC10 liegen.

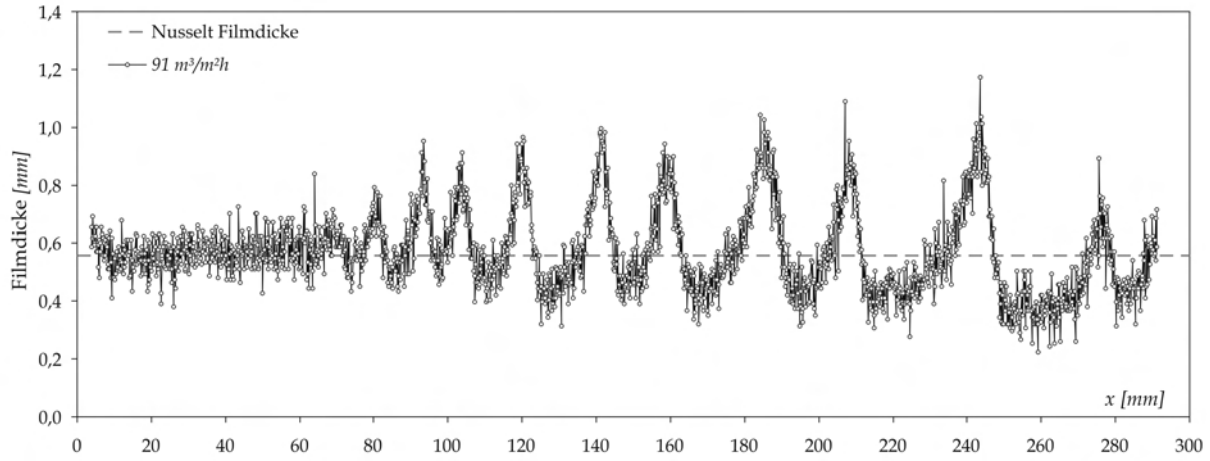

Abbildung 5.17.: LIF-Ergebnis für DC5 auf glatter Oberfläche mit $B_f = 91\ m^3/m^2h$ mit $t_B = 10\ ms$ (Position II).

Die Filmströmungen von DC1 weisen innerhalb der Standardeinstellungen die dünnsten Filme sowie höchsten Fließgeschwindigkeiten beziehungsweise *Re*-Zahlen auf. Ein typischer Verlauf der Filmdickenevolution bei DC1 ist in Abbildung 5.18 dargestellt. Man erkennt, dass die Messwerte

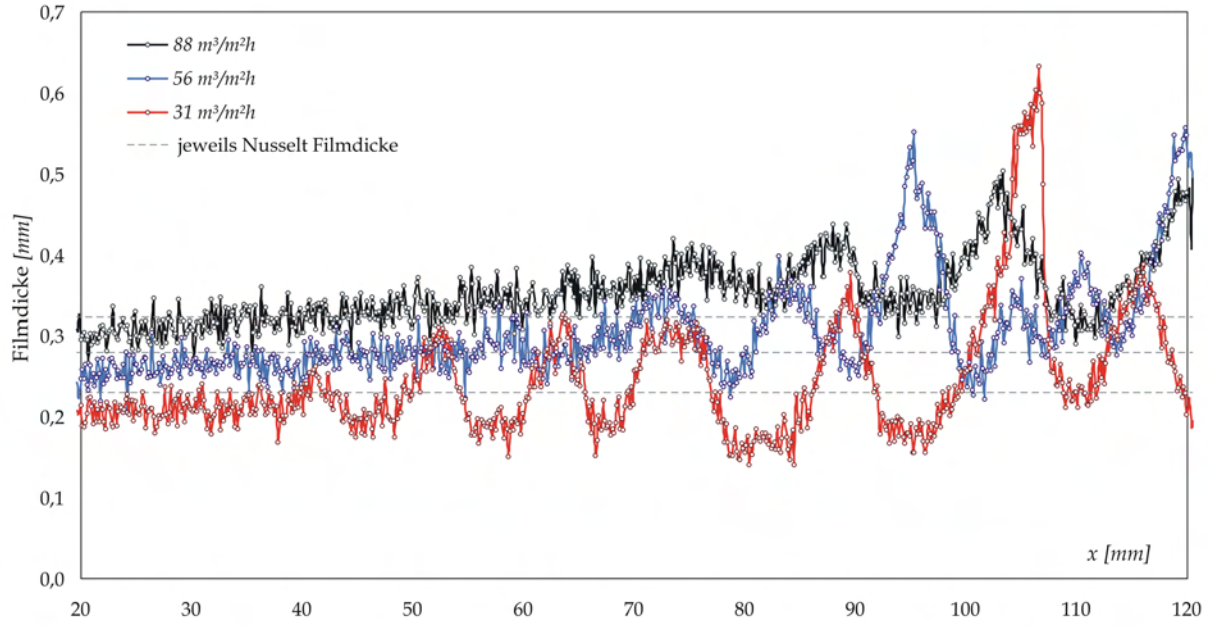

Abbildung 5.18.: Filmdickenergebnisse für DC1 auf glatter Oberfläche bei unterschiedlichen Belastungen mit $t_B = 10\ ms$ (Position II).

eine sehr gute Übereinstimmung mit der Theorie sowie eine relativ geringe Messwertstreuung aufweisen; für $20\ mm < x < 40\ mm$ erhält man Standardabweichungen kleiner 0,02 mm und Unterschiede zur Nusselt Lösung von 4-10% (mit sinkender Filmdicke steigende Abweichung). Die vorliegende Messgenauigkeit genügt, um zu erkennen, dass sich Filmwellen mit steigender Belastung erst nach einer längeren Strecke x ausbilden, siehe auch Abb.2.2. Auf die Darstel-

lung des weiteren Verlaufs der Filmevolution wird an dieser Stelle verzichtet, da die Wellen einen zunehmend chaotischen Charakter erhalten (siehe Abbildung D.2) und Regelmäßigkeiten wie Wellenfrequenz und Amplitude nur durch statistische Mittelung sinnvoll erfolgen kann. Zur Veranschaulichung dieser Tatsache werden in Abbildung 5.19 LIF-Aufnahmen für DC10 mit

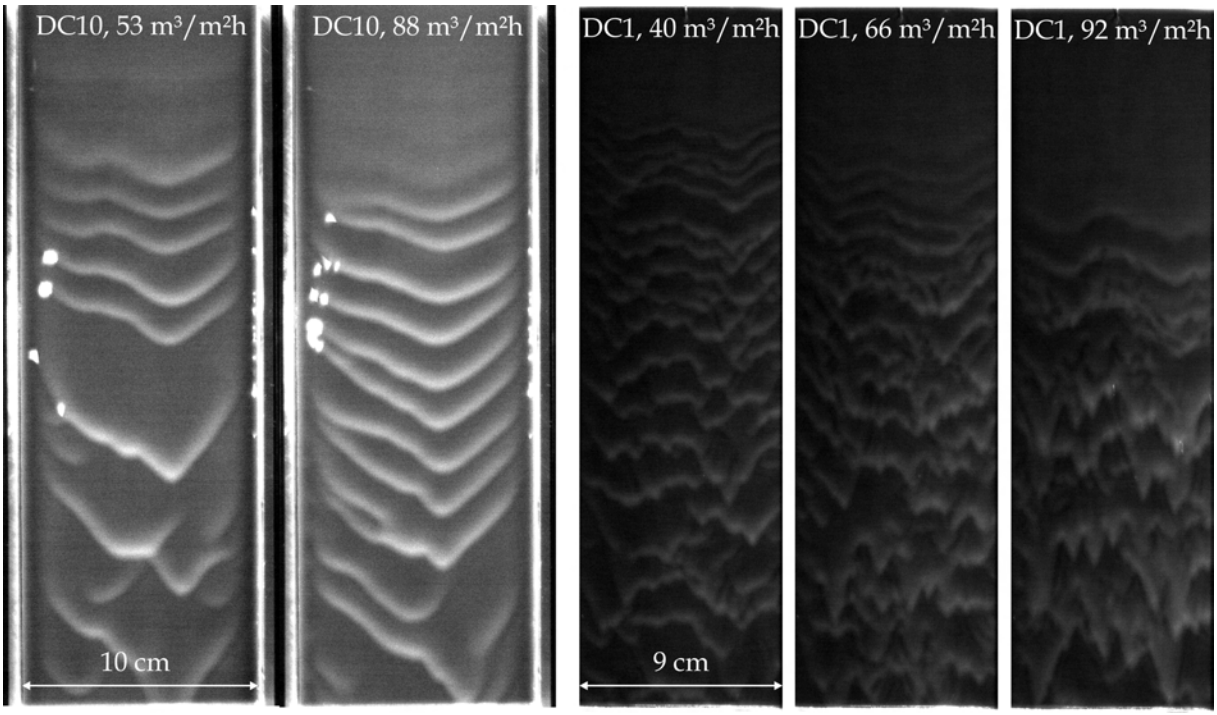

Abbildung 5.19.: Momentaufnahmen für DC1 und DC10 auf glatter Oberfläche bei unterschiedlichen Belastungen mit $t_B = 10\ ms$ (Position II); DC5-Wellenbilder siehe Abb.2.2.

denen von DC1 verglichen. Bei dem direkten Vergleich von DC1 und DC10 in Abb.5.19 wird der Einfluss der *Re*-Zahl beziehungsweise der Viskosität bei vergleichbarer Flüssigbelastung eindrucksvoll visualisiert. Die langsamere DC10-Strömung weist relativ gleichmäßige 2d-Wellen auf, während bei der wesentlich schnelleren DC1-Strömung die Welligkeit komplexeren Charakter besitzt und ab einer bestimmten Lauflänge der Umschlag von 2d- auf 3d-Wellen zu erkennen ist. Theoretisch müssten die 2d-Wellen bei DC10 über die gesamte Plattenbreite parallel verlaufen, aufgrund der Randeffekte (links und rechts) besitzen die Wellen in etwa in der Plattenmitte die größte Geschwindigkeit und erhalten deshalb eine V-Form, vergleiche Abb.2.2. Bei DC1 verlieren die Wellen bereits nach relativ kurzem Einlauf ihren 2d-Charakter und verlaufen (aufgrund der geringen Viskosität) stärker versetzt, so dass sich einzelne 3d-Wellen ausbilden können. Man erkennt zudem für DC1 bei zunehmender Belastung, dass die Belichtungszeit zu lang ist, um die Wellenkontur noch definiert auflösen zu können.

Abschließend werden die gemittelten Messergebnisse der Standardbelastungen für alle drei Silikonöle mit den zugehörigen Theoriewerten der Nusselt-Lösung in Gleichung (2.4) in Abbildung 5.20 miteinander verglichen. Offenbar liegen für alle Silikonöle sehr gute Übereinstimmungen mit der Theorie vor (0,1-10%) und der Viskositätseinfluss bei vergleichbarer Flüssigkeitsbelas-

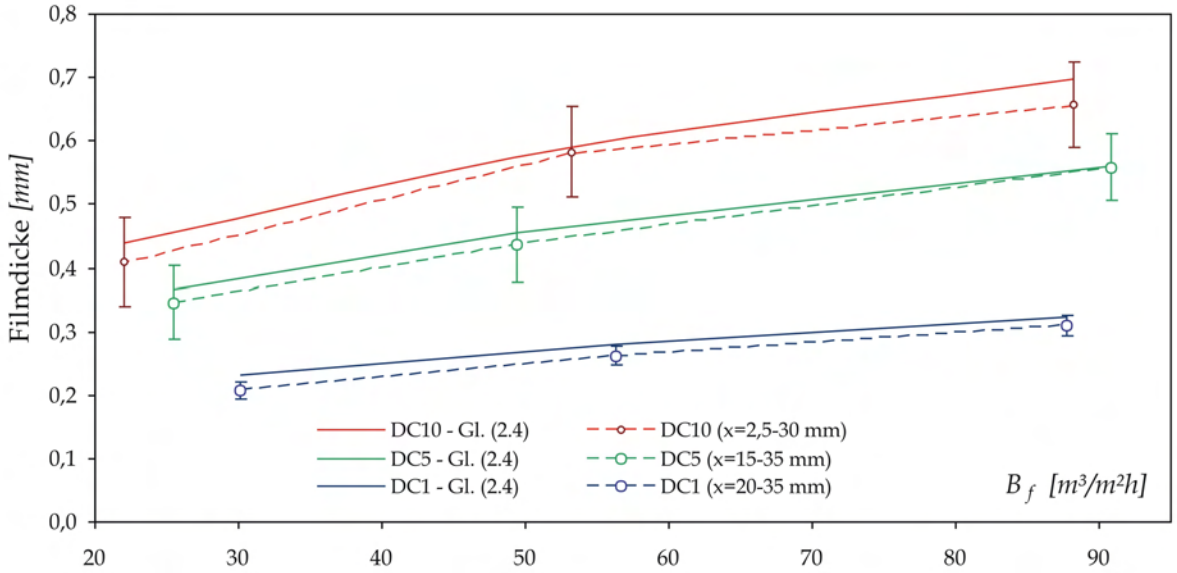

Abbildung 5.20.: Übersicht der mittleren Filmdickenergebnisse bezüglich der Wegstrecke x mit der Belichtungszeit $t_B = 10\ ms$ bei der Position II.

tung kann experimentell eindeutig zugeordnet werden. Generell nehmen die Absolutwerte der Standardabweichungen bezüglich der jeweiligen Mittelwertbildung mit steigender gemessener Filmdicke ebenfalls zu, so dass eine Varianz von 5-17% für die abgebildeten Messwerte angegeben werden kann. Allerdings können bei dieser Mittelwertbildung neben der tatsächlichen Messungenauigkeit aufgrund der Messmethode, die etwa bei 4-5% der absoluten Filmdicken liegt, folgende Aspekte die Varianz zusätzlich erhöhen:

- Im Einlaufbereich bildet sich die Filmströmung aus und erfährt einen geringen Anstieg
- Für den Bereich der Mittelwertbildung können bereits sehr flache Wellen vorliegen

Für kleinere Varianzen sowie eventuell bessere Übereinstimmungen mit Theoriewerten müssten größere Datensätze (höhere Anzahl an LIF-Aufnahmen) gemittelt sowie der Auswertebereich angepasst werden, siehe Ausner [2006].

Für die Betrachtungen der Unterschiede bei glatter und mikrostrukturierter Oberfläche interessieren neben der oben ausführlich beschriebenen Filmwelligkeit auch der Flüssigkeitsinhalt (*Hold Up*) sowie die Phasengrenzfläche.
Der *Hold Up* lässt sich mit hoher Genauigkeit über die Mittelung der Filmdicken bei langen Belichtungszeiten berechnen. Aufgrund der angesprochenen Randeffekte beziehungsweise Mehrdimensionalität der Strömung sollten hierzu entweder mehrere Linien entlang x oder direkt Flächen der Ebene (x, z) mittels Software ausgewertet werden. Der *Hold Up* gibt in der Regel ein Flüssigkeitsvolumen oder eine Masse je benetzte Fläche an, so dass die Filmdicken entsprechend der Geometrie umzurechnen sind.
Die freie, bewegliche Phasengrenze zwischen Flüssigkeit und Gasphase kann aus der Oberflächenkontur abgelesen werden. Dies soll beispielhaft für die relativ hohe Welle in Abb.5.16 bei mittlerer

Belastung und $x \approx 120\ mm$ berechnet werden. Hierzu werden die Achsenskalen in Abbildung 5.21 gleichgesetzt und die Welle mit Geraden (Flanke I und II) angenähert. Die Gesamtlänge

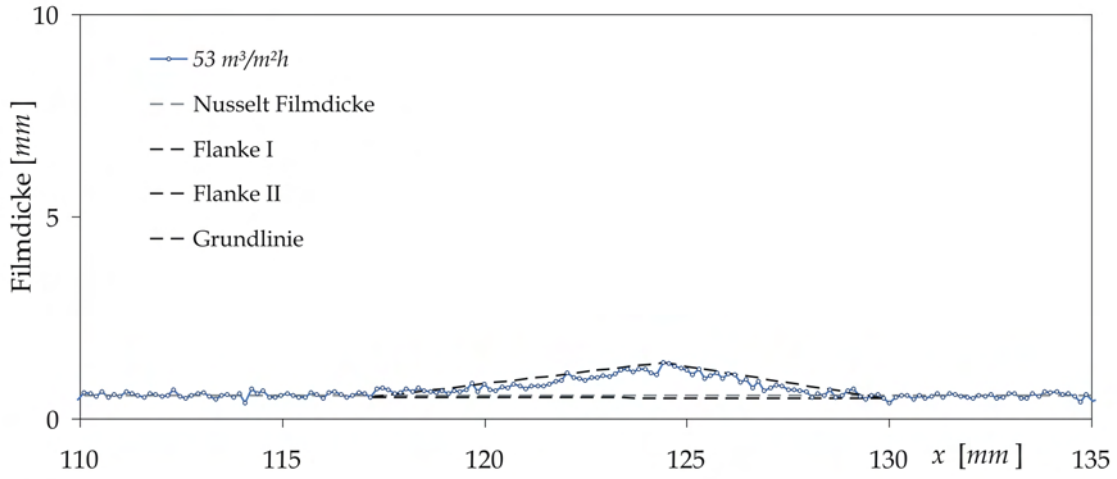

Abbildung 5.21.: Abschätzung der Phasengrenzflächenänderung am Beispiel von DC10 (Ausschnitt von Abb.5.16 bei mittlerer Belastung).

beider Flanken beträgt 12,8019 mm und die zugehörige Grundlinie 12,6800 mm. Im Bereich der Welle ergibt sich somit eine Erhöhung der Phasengrenzfläche um weniger als 1%. Berücksichtigt man zusätzlich den wellenfreien Bereich, so wird klar, dass die vorher genannten Annahmen gerechtfertigt sind und eine Änderung der Phasengrenzfläche durch Filmwellen vernachlässigt werden kann.
Im Folgenden können sowohl für glatte als auch für mikrostrukturierte Oberflächen die Phasengrenze aus der Länge der Filmkontur und der Flüssigkeitsinhalt aus dem Integral der Filmkontur abgeschätzt werden.

Filmevolution auf mikrostrukturierten Oberflächen Bevor der Mikrostruktureinfluss auf eine Änderung der Phasengrenzfläche sowie des *Hold Ups* näher bestimmt wird, sollen in diesem Abschnitt zunächst die Besonderheiten bei der Flüssigkeitsverteilung diskutiert werden. Eine vollständige Auswertung für DC1 und DC5 kann aufgrund von Reflexionen bei den 3d-Typen nicht erfolgen, wobei für DC1 noch der Vergleich zwischen glatter Oberfläche sowie 3d-C möglich ist. Insgesamt können jedoch die Filmdickenverteilungen für die Betriebsgrenzen bezüglich der *Re*-Zahl sowie der Kennzahl δ^* analysiert werden.

Für den Fall der hochviskosen DC10-Strömung erhält man im Rahmen dieser Arbeit die größten δ^*-Werte. Somit besitzen die flachsten Strukturen (2d und 3d-A) in diesem Fall den kleinsten Einfluss auf die Strömung, so dass entsprechend dieser Tatsache auch der kleinste Einfluss auf den Stofftransport in 5.1.2 nachgewiesen werden konnte. Aus den LIF-Messungen für 2d und 3d-A können schließlich auch kaum nennenswerte Unterschiede zu der glatten Oberfläche festgestellt werden; die Mikrostrukturen werden mit Flüssigkeit ausgefüllt und die Filmoberfläche ist in Analogie zur glatten Platte glatt beziehungsweise nach entsprechender Lauflänge wellig.

Zusätzliche Aufnahmen mit mikroskopischer Optik bei der 2d-Struktur zeigen, dass in den transversal angeströmten Kanälen eine höhere Filmdicke vorliegt als auf den Strukturspitzen, so dass auf eine annähernd glatte Filmoberfläche geschlossen werden kann.
Für den 3d-A-Typ kann man mit zunehmender Belastung eine höhere Regelmäßigkeit der Wellen beobachten. Hierbei besteht zudem die Tendenz dass verglichen mit der glatten Oberfläche Wellen mit höherer Frequenz auftreten. Diese könnten aufgrund der vorhandenen Strukturwellenlänge induziert werden und so den ansteigenden Stofftransportvorteil gegenüber der glatten Platte mit der Belastung erklären.
Einen deutlich größeren Einfluss auf die Filmevolution von DC10 kann bei den etwas gröberen Mikrostrukturen 3d-B (bzw. 3d-B*) sowie 3d-C nachgewiesen werden. Bei diesen Strukturen ist zudem die in Abb.3.9 angedeutete Unterscheidung zwischen *Peaklinie* und *Passlinie* unbedingt notwendig. Während sich auf den *Passlinien* annähernd Filmdicken wie auf glatter Oberfläche einstellen, so ergibt sich auf den *Peaklinien* im wellenfreien Bereich ein gänzlich neues Bild, siehe Abbildung 5.22. Diese Filmdickeninformationen geben direkt Auskunft darüber, in wie fern die

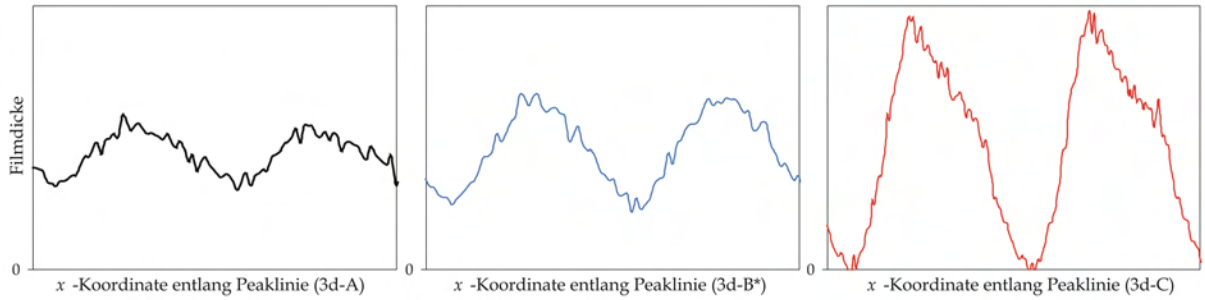

Abbildung 5.22.: Beispiel einer DC10-Filmdickenmessung für 3d-A, 3d-B* sowie 3d-C im Eintrittsbereich bei 53 m^3/m^2h für jeweils zwei Perioden bei gleicher Filmdickenskala. Die hohe Regelmäßigkeit dieses Verlaufs wird für fünf P_S-Strecken in Abbildung D.3 veranschaulicht.

Filmströmung in Abhängigkeit des Strukturtyps entlang einer *Peaklinie* verändert wird. Offenbar gibt es starke Variationen der lokalen Filmdicken, welche bei größerer Struktur entsprechend größer ausfallen und deren Form an Wellen erinnert. Im gleichen Längenabschnitt besitzt der Film bei glatter Oberfläche eine konstante Filmdicke, so dass es offenbar zu einer massiven Beeinflussung der Strömungsführung aufgrund der mikrostrukturierten Oberfläche kommt.
In Abb.5.22 sind in erster Näherung die Dickenmaxima den Talbereichen und die Dickenminima den Bergbereichen zuzuordnen (Details siehe unten). Somit ergibt sich bei 3d-A sowie 3d-B* eine nahezu glatte Oberfläche, vergleiche Abbildung 5.23. Für 3d-C werden im Bereich der Strukturspitzen Dicken nahe Null gemessen, so dass diese nur sehr dünn überströmt beziehungsweise umströmt werden, vergleiche Abbildung 5.24. Insgesamt kommt es je nach Amplitude der Mikrostrukturen zu kleinen oder großen Schwankungen um die Nusselt-Filmdicke; in Abhängigkeit der Flüssigbelastungen können Werte um Null (trockene Stellen) sowie zwei- bis dreimal dickere Filme verglichen mit der glatten Oberfläche erreicht werden. Dies gilt insbesondere für die *Peaklinien* der Mikrostrukturen; bei den *Passlinien* sind die Amplituden der Filmdicken deutlich geringer und deren Filmdicke entspricht in etwa der von der glatten Oberfläche, so dass auf die

Darstellung der Passlinienergebnisse verzichtet wird.

Damit Aussagen über eine Änderung der Phasengrenze möglich sind, müssen die Filmdickeninformationen und die Topographiedimensionen miteinander addiert werden. Dies kann im Folgenden nur mit Näherungen der realen Mikrostrukturen geschehen, wobei charakteristische Effekte noch zu erkennen sind. Abschließend können die experimentellen Werte zur Phasengrenzflächenänderung bezüglich der glatten Platte angegeben werden.
Am Beispiel von DC10 und 3d-B* wird in Abbildung 5.23 veranschaulicht wie aus der Filmdickeninformation die Filmkontur bestimmt werden kann. Hierzu wird die Topographie entlang der

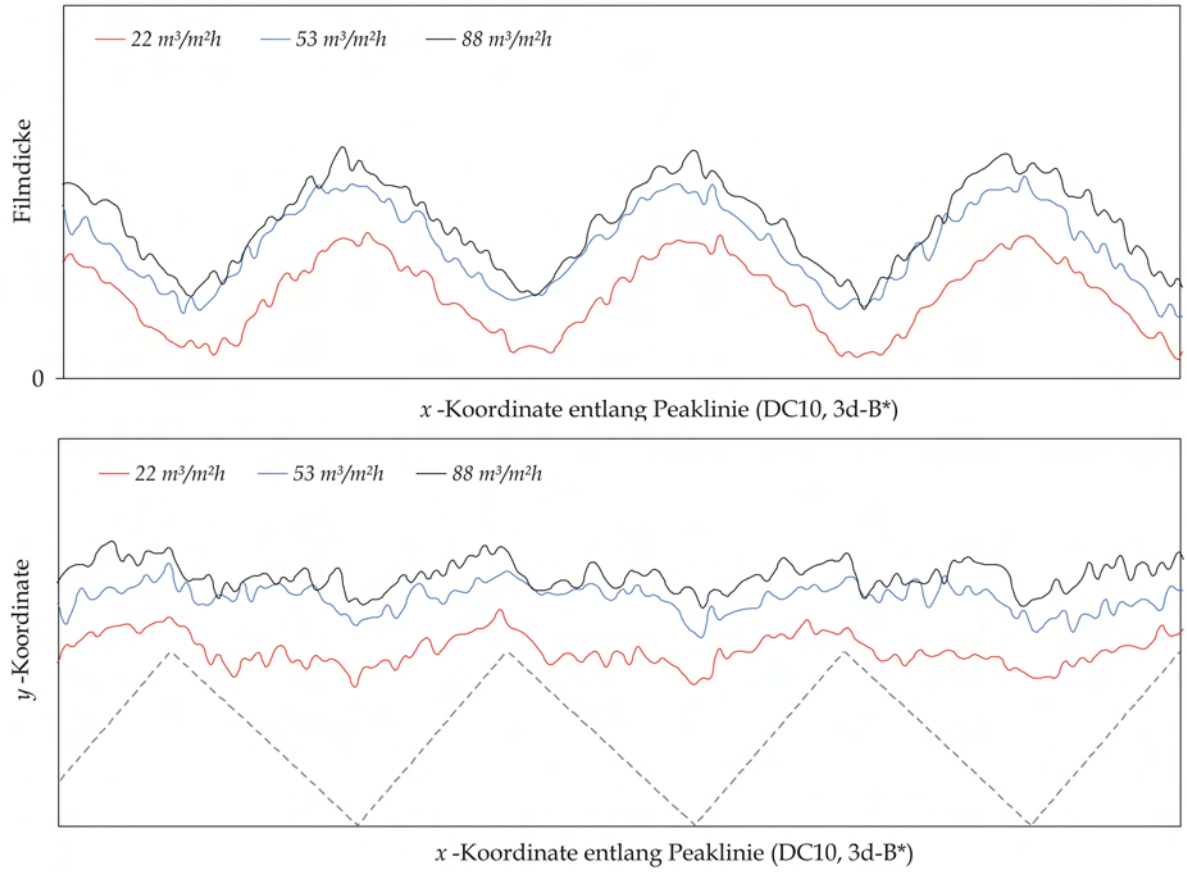

Abbildung 5.23.: Dickenprofile (oben) sowie Filmkonturen (unten) für DC10-Strömungen auf 3d-B*-*Peaklinie* in einem wellenfreien Bereich bei unterschiedlichen B_f-Werten.

Peaklinie auf selbiger Linie die gemessene Filmdicke addiert. Die Koordinatenzuordnung kann bei trockener und benetzter Platte aufgrund gleichbleibender Objekt-Kamera-Konstellationen mit hoher Genauigkeit erfolgen.
Den Filmkonturen in Abb.5.23 kann entnommen werden, dass die Phasengrenze entlang der stark strukturierten *Peaklinie* annähernd glatt verläuft. Es gibt jedoch die Tendenz, dass es auf der Anströmseite eines Berges zur Anstauung von Flüssigkeit analog zu 2d-Typen kommt, vergleiche 2.2.2. Am Bergrücken ist für die minimale sowie maximale Belastung ein relativ steiler Abfall der Filmdicke zu entnehmen, was mit den lokalen Neigungswinkeln der Mikrostrukturen

zu erklären ist. Beachtet man die vorliegende Plattenneigung von $\alpha = 30°$, so wird klar, dass am Bergrücken die Strukturflanke annähernd parallel zur Erdbeschleunigung verläuft, vergleiche Abbildung D.4. In Abb.5.23 ist zwar eine schwache Oberflächenkrümmung zu erkennen, insgesamt ergibt die Berechnung der Phasengrenzfläche für DC10-3d-B* jedoch keine signifikante Änderung gegenüber der glatten Oberfläche, siehe unten.
Für die gröbste Struktur 3d-C werden in Abbildung 5.24 die Filmkonturen für DC10 und DC1 entlang einer *Peaklinie* angegeben. Die Mikrostrukturtopographie wird schematisch angedeutet

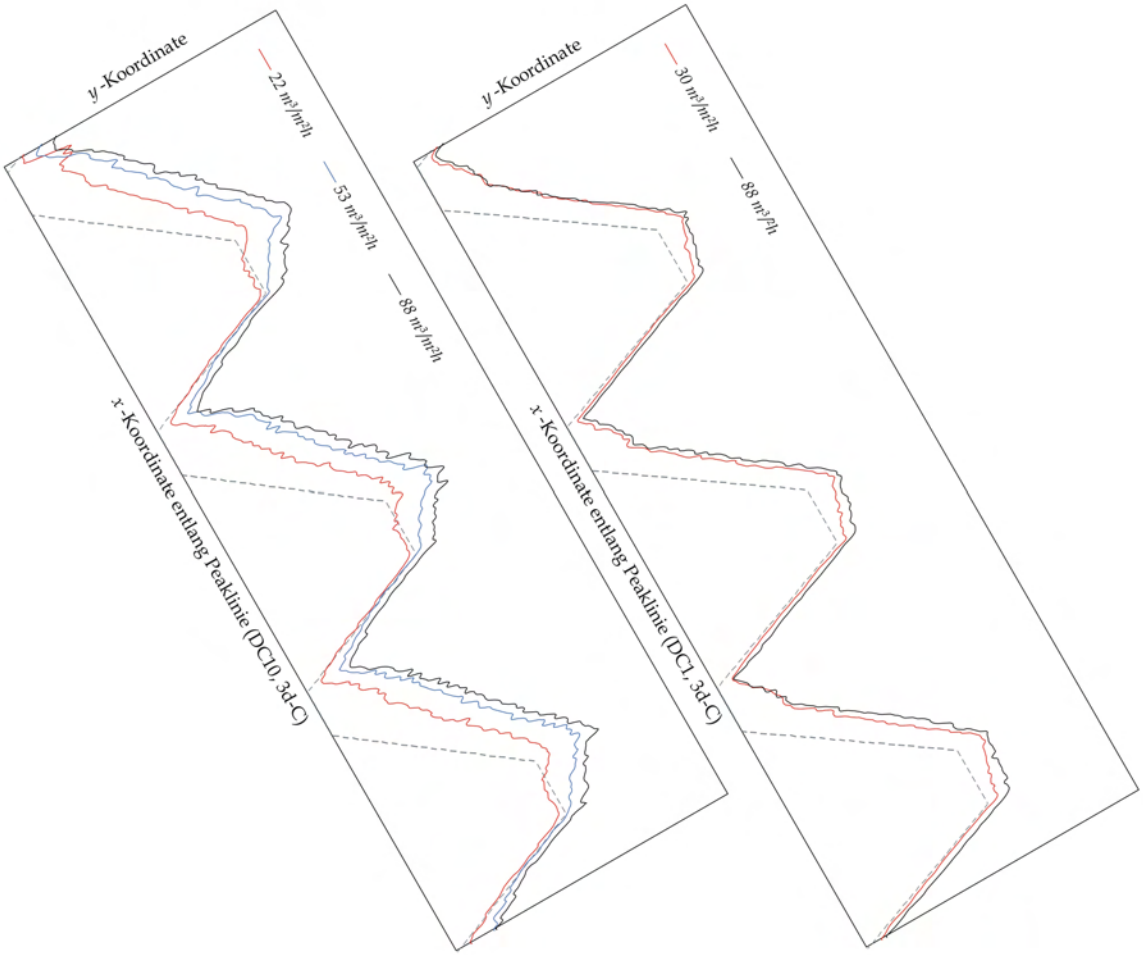

Abbildung 5.24.: Filmkonturen für DC1- und DC10-Strömungen auf einer 3d-C-*Peaklinie* im wellenfreien Bereich unter Berücksichtigung des Einbauwinkels ($\alpha = 30°$).

und es ist jeweils der Einlaufbereich in gleichem Abstand von der Flüssigkeitsaufgabe dargestellt. Man erkennt zunächst dickere Filme mit steigender Belastung wie erwartet. Aufgrund der relativ kleinen δ^*-Werte ergibt sich zudem eine starke Ungleichverteilung vor- und nach der Strukturspitze sowie scheinbar eine enorme Verschiebung der Phasengrenze gegenüber der Horizontalen für beide Öltypen.
Für das hoch-viskose DC10 wurde bei kleiner Flüssigbelastung ein großer Bereich mit Filmdicken um 0 mm bestimmt. Damit ergeben sich für die zugehörige Konturlinie der Filmdicke in

Abb.5.24 aufgrund von geringen Kalibrierungenauigkeiten Messwerte, die sowohl oberhalb als auch unterhalb der gestrichelten Linie (3d-C-Struktur) liegen. Dies ist gleichbedeutend mit trockenen beziehungsweise sehr dünn benetzten Bereichen auf der Mikrostruktur. Im Detail ergibt sich bei der minimalen DC10-Belastung demnach eine trockene Strukturspitze sowie trockene bis sehr dünn benetzte Bergrücken. Berücksichtigt man erneut die Plattenneigung, so erkennt man für $B_f = 22\ m^3/m^2h$ den Anstaueffekt bis zur Strukturspitze und das Umströmen des Berges parallel zur Gravitation (Verbindungslinie zwischen den Positionen mit Nulldicke umschließt 30°-Winkel zur Vertikalen, siehe maßstabstreue Skizze in Abb.D.4). Mit steigender Flüssigbelastung wird der Berg zunehmend überströmt und ein Abfließen von der Strukturspitze in das Tal erfolgt in etwa entsprechend dem Plattenneigungswinkel von $\alpha = 30°$ beziehungsweise parallel zur Gravitation. Um das belastungsabhängige Strömungsverhalten bei DC10 und 3d-C abschließend zu veranschaulichen, muss man sich zunächst einen einzelnen, dreidimensionalen und um 30° gegen die Vertikale geneigten Kegelstumpf vorstellen beziehungsweise die Geschwindigkeitsinformationen der PIV-Messungen berücksichtigen, siehe D.4. Bei geringer Flüssigbelastung wird der Kegelstumpf bis zur Strukturspitze angeströmt und stark tangential umströmt; die Flüssigkeit bewegt sich dabei auf ovalen Stromlinien nach schräg unten vom Berg ins Tal. Mit zunehmender Belastung steigen die Filmdicken an, die Berge werden vermehrt überströmt und die Tangentialströmungen nehmen ab.
Für das niedrig-viskose DC1 liegen nun für alle untersuchten Flüssigbelastungen Dicken größer Null vor. Im Gegensatz zu DC10 besitzt DC1 aufgrund signifikant größerer *Re*-Zahlen auch bei minimaler Belastung genügend kinetische Energie, um den Berg vollständig zu überströmen (siehe auch Geschwindigkeitsmessergebnisse in Abbildung 5.30. Obwohl die Flanken am Bergrücken etwas unterspült werden ($\alpha < 0°$) sind sie trotzdem dünn überströmt. Analog zu DC10 liegen bei der Anströmseite des Berges größere Filmdicken vor als auf der Abströmseite in das Tal.

Abschätzung von Phasengrenzfläche und Flüssigkeitsinhalt Wie im vorigen Abschnitt beschrieben lassen sich die Phasengrenzflächen aus den Filmkonturen ableiten. Hierbei ist zu beachten, dass aufgrund von Mess- und Kalibrierfehler, ungenauer Angabe der Strukturtopographie sowie nicht exakter Anpassung der x-Koordinate bezüglich der Summation von Topographieverlauf sowie Filmdickenwerte Fehler entstehen können. Weiterhin ist zu beachten, dass bei der Auswertung von *Peaklinien* stets die maximalen Phasengrenzflächenänderungen ΔA_{max} berechnet werden. Diese Ergebnisse sind in Abhängigkeit der Werte bezüglich der *Passlinie* (minimale Phasengrenzflächenänderung ΔA_{min}) zu wichten.
Für DC10 liegen die dicksten Flüssigkeitsfilme im Untersuchungsbereich vor, so dass die resultierenden δ^*-Werte am größten sind. Wie erwartet ergeben sich hierbei die kleinsten Änderungen der Phasengrenzfläche gegenüber der glatten Platte. Es können für die Typen 2d, 3d-A, 3d-B und 3d-B* im Bereich der Standardbelastungen der Stofftransportmessungen keine Änderungen der Phasengrenzfläche festgestellt werden. Für die grobe Struktur 3d-C werden für die maximale Belastung Werte von etwa $\Delta A_{max} = 12\%$ berechnet und für die minimale Belastung ergibt sich jedoch $\Delta A_{max} \approx 0\%$, da ein gewisser Anteil der Struktur unbenetzt ist. Bei 3d-C gibt es demnach den Trend, dass mit zunehmenden ϵ_{kA}-Werten (14-35 %) auch steigende ΔA_{max}-Werte

(0-12%) auftreten. Berücksichtigt man zusätzlich, dass die gesamte Phasengrenzflächenänderung stets kleiner als ΔA_{max} sein muss, dann ist die Erhöhung der Phasengrenzfläche um mehrere Größenordnungen kleiner als die Erhöhung der $(k_L A)$-Werte.
Bei DC1 und 3d-C liegen die kleinsten untersuchten δ^*-Werte vor, so dass bei vollständiger Benetzung der größte Einfluss auf die Phasengrenzfläche zu erwarten ist (die weiteren 3d-Typen wurden aufgrund von Reflexion nicht näher untersucht). Im Gegensatz zu DC10 steigt hier ΔA_{max} mit abnehmender Flüssigbelastung und man erhält als Ergebnis $\Delta A_{max} = 20\text{-}30\%$. Entsprechend obiger Aussagen liegt die effektive Phasengrenzflächenänderung gegenüber der glatten Platte deutlich unterhalb dieser Werte, so dass man von etwa 10-15% Erhöhung von A ausgehen kann. Diese Ergebnisse liegen erneut deutlich unterhalb der $(k_L A)$-Werte (44-90%), so dass offensichtlich weitere Phänomene die Verbesserung des flüssigkeitsseitigen Stofftransportkoeffizienten k_L verursachen müssen.

Die Abschätzung des Flüssigkeitsinhalts für die 3d-Strukturen kann zum Beispiel so erfolgen, dass man die Flächen unter den gemessenen Filmdicken (Integral der Filmkonturen) für die charakteristischen Orte *Peaklinie* sowie *Passlinie* arithmetisch mittelt. Es ist jedoch effizienter eine flächige Intensitätsauswertung mittels Software (SigmaScan) vorzunehmen, dass heißt anstelle von Linien ($I(x) \rightarrow \delta_F(x)$) werden Flächen ($I(x\ z) \rightarrow \delta_F(x, z)$) auf der Platte ausgewertet. Hierbei muss lediglich darauf geachtet werden, dass ein periodisches Gebiet analysiert wird, um eine sinnvolle Mittelung zu realisieren. Nach dieser Methode sind die Konstellationen ohne Reflexionen ausgewertet worden und in Tabelle 5.1 dargestellt. Für die feinen Mikrostrukturen 2d und

Tabelle 5.1.: Abschätzung der Änderung des flüssigen Hold Ups bei mikrostrukturierter Oberfläche gegenüber der glatten Platte in %.

	2d	3d-A	3d-B	3d-B*	3d-C
DC1	-	-	-	-	10-35
DC5	≈ 0	-	-	-	10-20
DC10	≈ 0	≈ 0	5...10	10...15	20-25

3d-A können aufgrund der Messmethode keine signifikanten Änderungen bestimmt werden. Für die gröberen Strukturen 3d-B, 3d-B* und 3d-C können die Hold-Up-Vergrößerungen angegeben werden, welche tendenziell mit der Strukturamplitude zunehmen. Für 3d-C ergibt sich zudem die Viskositätstendenz, dass in etwa die jeweils größere Hold-Up-Erhöhung auch mit der $(k_L A)$-Erhöhung korreliert, so liegt zum Beispiel bei mittlerer Viskosität und mittlerer Belastung (also im Stofftransportminimum) die geringste Hold-Up-Änderung bei 3d-C vor.

Fazit der LIF-Messungen und Abschlussbemerkungen Mittels der LIF-Messungen ist nachgewiesen worden, dass ein großer Einfluss auf die Strömungsstrukturen aufgrund der eingesetzten Mikrostrukturen vorliegt. Weiterhin können anhand der Abschätzung von Filmkonturen lokale Erhöhungen der Phasengrenzfläche nachgewiesen werden. Allerdings ist diese Erhöhung nicht an jedem Ort der Struktur zu erzielen. Insgesamt kann man mit Sicherheit schließen, dass die in Ab-

schnitt 5.1.2 diskutierte ($k_L A$)-Erhöhung nicht allein auf die Erhöhung der Phasengrenzfläche A zurückzuführen ist. Demnach reduzieren die Mikrostrukturen effektiv die flüssigkeitsseitige Stofftransportlimitierung, so dass die k_L-Werte zunehmen. Welche Ursachen dafür verantwortlich sind soll mittels weiterer Strömungsmessungen in 5.2.2 und 5.2.3 näher untersucht werden. Hinsichtlich der Hold-Up-Berechnungen lässt sich schließen, dass der Flüssigkeitsinhalt aufgrund der Mikrostrukturen im Allgemeinen stets zunimmt. Eindeutig nachweisen lässt sich diese Zunahme nur für die gröberen Typen 3d-B, 3d-B* und 3d-C. Tendenziell stimmen für diese Typen die Hold-Up- und ($k_L A$)-Erhöhungen qualitativ überein; es lässt sich jedoch an dieser Stelle noch nicht auf einen konkreten negativen oder positiven Stofftransporteffekt im Zusammenhang mit dem Hold Up schließen. Zum einen könnte eine Hold-Up-Erhöhung negativ wirken, wenn damit Totzonen einhergehen, das heißt der statische Flüssigkeitsanteil nimmt zu. Zum anderen wären als positive Merkmale eine Verweilzeiterhöhung (höherer Hold Up induziert geringere mittlere Fließgeschwindigkeiten bei gleichem Gesamtmassenstrom) sowie gegebenenfalls eine Durchmischung in größeren Flüssigvoluma auf gleicher Trennstufe (hier x-Koordinate) zu nennen. Analog zu vorigem Absatz sind zur Aufklärung weitere Strömungsmessungen erforderlich.

Abschließend soll an dieser Stelle auf die Aspekte der Wellenunterdrückung durch Mikrostrukturen sowie Phasengrenzflächenänderung aufgrund Resonanzinduktion eingegangen werden.
Für die glatte Platte können für etwa $Re > 3$ stets Filmwellen beobachtet werden, wobei sich der wellenfreie Eintrittsbereich mit der Flüssigkeitsbelastung zu längeren Strecken verlagert. In Abhängigkeit der Mikrostruktur sowie der Viskosität (Öltyp) ergeben sich jedoch sehr unterschiedliche Einlaufstrecken bis zur Ausbildung von Wellen. So können zum Beispiel für die minimale und die mittlere Flüssigbelastung bei DC5 und den Typen 3d-B, 3d-B* und 3d-C sowie bei DC10 und 3d-C Wellen für eine Lauflänge von mindestens 30 *cm* vollständig unterdrückt werden. Als wichtige Ursache für die Wellenunterdrückung kann die vorherrschende Umströmung der dreidimensionalen Mikrostrukturen gesehen werden. Dadurch wird zum einen die Bildung eines in der Breite (z-Koordinate) zusammenhängenden Films reduziert und zum anderen treten dann größere Geschwindigkeitskomponenten quer zur Hauptströmungsrichtung auf. Bei Anwachsen der Filmdicke (durch größere Flüssigbelastungen oder längere Lauflängen) setzt zunehmend Überströmen ein und die Querkomponenten werden sehr klein gegenüber der Hauptströmungsrichtung. In diesem Fall nähern sich die Werte der wellenfreien Strecken an die von glatten Platten an. Bezüglich der verwendeten Silikonöle lässt sich festhalten, dass bei DC1 die Wellenunterdrückung am geringsten ausfällt (aufgrund hoher Re-Zahlen überwiegen die Hauptströmungskomponenten w_x). Beim Vergleich von DC5 und DC10 ist die Wellenunterdrückung für 3d-C in beiden Fällen vergleichbar und für 3d-A, 3d-B und 3d-B* setzt die Wellenbildung (jeweils bezogen auf die glatte Platte) bei DC10 bereits nach kürzeren Strecken ein.
Betrachtet man das trockene Packungsblech, so vergrößert sich die Oberfläche aufgrund der Mikrostrukturen um maximal 20% (aus Geometriewerten berrechnet). Bereits bei geringer Benetzung ist aufgrund des Ausfüllens der Täler der Endwert der Phasengrenzflächenänderung nochmals kleiner als der der trockenen Mikrostruktur, was auch mittels Strömungsmessungen

nachgewiesen werden konnte. In diesem Zusammenhang könnte jedoch eine Ausnahme entstehen, wenn es gelänge die Strömungs- und Strukturparameter derart anzupassen, dass man Resonanzphänomene induziert (vergleiche Abschnitt 2.2.2 beziehungsweise [Argyriadi et al., 2006; Häcker und Uecker, 2009]). Die damit möglichen Deformationen der Phasengrenzfläche gehen über die Amplituden der Mikrostrukturen hinaus und könnten so die effektive Phasengrenzfläche signifikant erhöhen. Zusätzlich wären aufgrund der vorliegenden Strömungsinstabilitäten weitere Steigerungen hinsichtlich des Stoffaustauschs innerhalb des Films denkbar. Im Rahmen der vorliegenden Untersuchungen wird vermutet, dass eine Resonanzerscheinung für DC1 und 3d-B* ab einer bestimmten *Re*-Zahl beobachtet werden kann, siehe D.2. Hierzu liegen jedoch keine Stofftransportergebnisse vor, so dass dieser Effekt nicht weiter bewertet werden kann.

5.2.2. Tracer-Experimente (Farbfadentests)

Im Folgenden werden ausgewählte Beispiele der Tracer-Messungen diskutiert, um zum einen zusätzliche Strömungscharakteristika mikrostrukturierter Oberflächen zu visualisieren und zum anderen eine Verknüpfung zu weiteren Ergebnissen der anderen Messmethoden herzustellen.

Visualisierung von Mischungseffekten sowie Stromlinienindikation Am Beispiel von DC1 und der glatten Platte sind in Abbildung 5.25 drei Momentaufnahmen eines Farbfadenversuchs bei

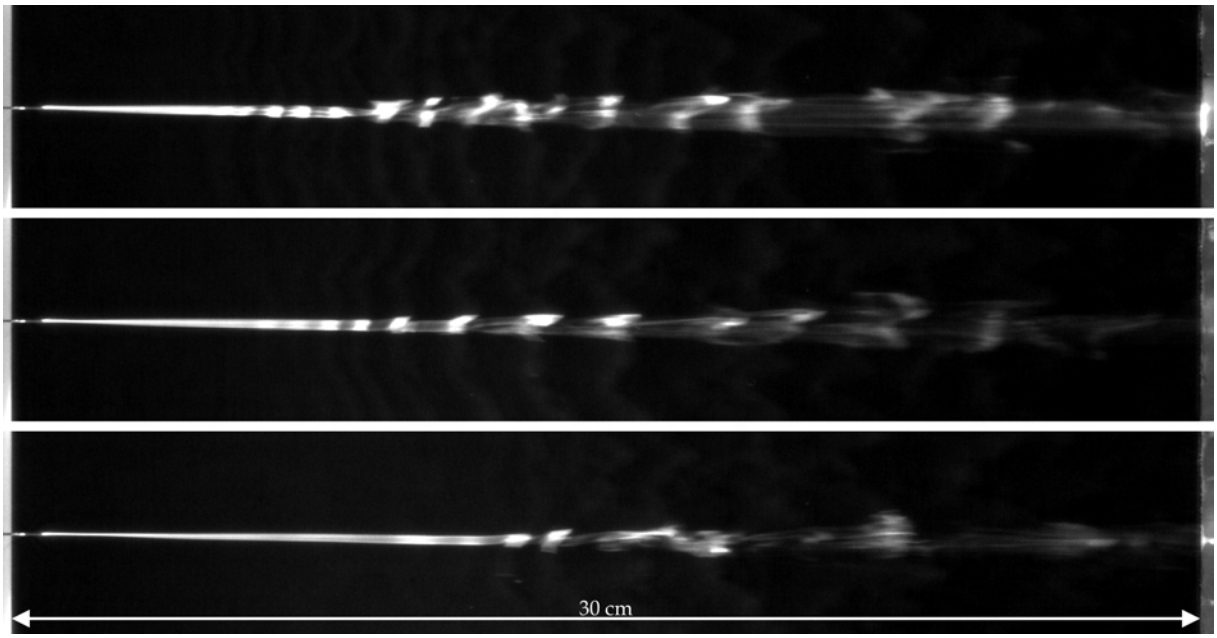

Abbildung 5.25.: Tracer-Ergebnisse für DC1 auf glatter Platte mit B_f = 40; 66; 92 m^3/m^2h von oben nach unten aufsteigend (Strömung von links nach rechts; Aufnahmen um 90° gedreht).

unterschiedlichen Belastungen wiedergegeben. Man erkennt im glatten Einlaufbereich, dass der Farbfaden zusammenhängend und relativ homogen erscheint. Ab dem Einsetzen von Filmwellen erscheinen abwechselnd hellere und dunklere Bereiche (Wellenberge mit höherer Lichtintensität). Entsprechend der LIF-Ergebnisse in 5.2.1 verschiebt sich der wellenfreie Bereich mit steigender

Belastung in die positive x-Richtung. Weiterhin ist der Abb.5.25 anhand von Breite und Intensität des Farbfadens zu entnehmen, dass die auftretenden Wellen aufgrund ihres dreidimensionalen Charakters für einen erheblichen Queraustausch beziehungsweise für radiale Vermischung sorgen.

Im Vergleich zur glatten Platte verläuft der Farbfaden bei den 3d-Strukturen in Abbildung 5.26 nur in den ersten 1-3 *cm* als schmaler Stromfaden; hier kommt es bereits nach sehr kurzer Stre-

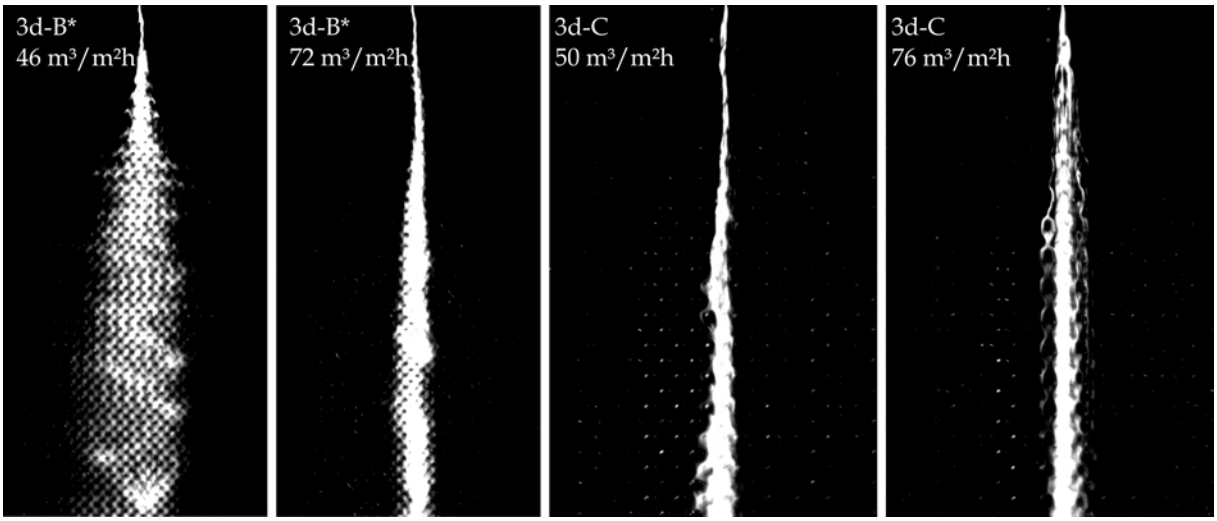

Abbildung 5.26.: Tracer-Ergebnisse für DC1 jeweils mit hoch konzentrierter Tracerzugabe im Tal der 3d-Strukturen 3d-B* und 3d-C.

cke sowie ohne Filmwellen zu einem erheblichen Queraustausch der Flüssigkeitselemente. Bei 3d-B* und $B_f = 46\ m^3/m^2h$ entsteht eine 3- bis 4-fache Verbreiterung des Farbfadens. Für $B_f = 72\ m^3/m^2h$ überwiegen die Geschwindigkeitsanteile in x-Richtung, so dass der Farbfaden schmaler wird.
Bei der gröberen 3d-C-Struktur nimmt die Stromfadenbreite im Einlaufbereich mit der Belastung tendenziell zu; während bei $B_f = 50\ m^3/m^2h$ der erste Berg noch weitestgehend umströmt wird und der Stromfaden sich in etwa auf der Passlinie fortbewegt, so wird bei $B_f = 76\ m^3/m^2h$ der Stromfaden zum Teil über den Berg geleitet und erfährt dabei eine Aufspaltung in mehrere Teilstromfäden. Neben einem Hauptstromfaden sind nun dünne S-förmige Stromfäden zu erkennen, die den umliegenden *Passlinien* folgen (vergleiche Abb.3.9). Im Vergleich zur glatten Oberfläche ergibt sich bei 3d-C und DC1 eine Farbfadenverbreiterung um den Faktor 1 bis 2.

Als weiteres Beispiel der Strömungsvisualisierung mit Hilfe einer Farbstoffzugabe werden mehrere Momentaufnahmen für DC10 in Abbildung 5.27 gegenübergestellt. In Abb.5.27 links ist ein stationärer Farbfaden auf glatter Platte bei $B_f = 22\ m^3/m^2h$ dargestellt, wobei die Farbfadenverbreiterung bei dieser laminaren, wellenfreien Strömung durch Diffusion zu erklären ist. Weiterhin werden vier Momentaufnahmen zu Beginn einer Tracerzugabe in das Tal der 3d-C-Struktur im Eintrittsbereich ($x \approx 0{,}5...\ cm$) und weitere zwei Aufnahmen für einen tiefer liegenden Strömungsabschnitt ($x \approx 25...\ cm$) ebenfalls bei $B_f = 22\ m^3/m^2h$ dargestellt. Im

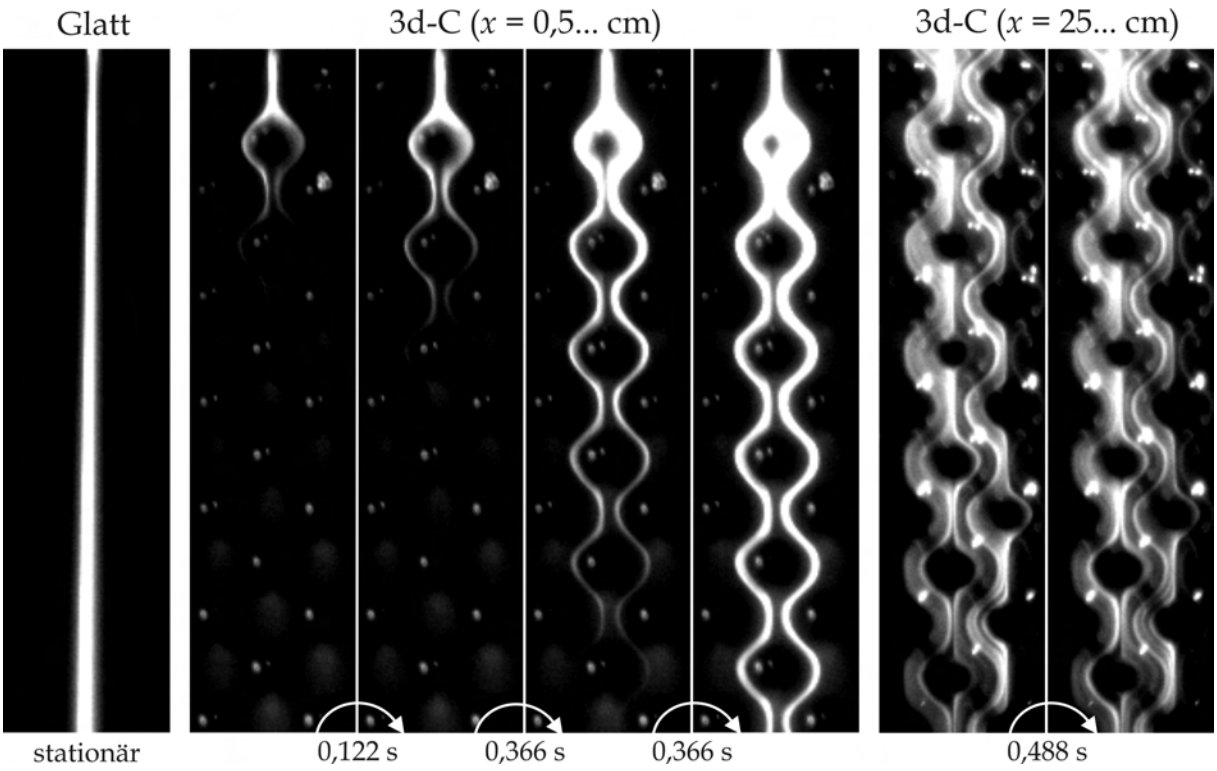

Abbildung 5.27.: Ergebnisse eines Tracerimpulses für die glatte Platte sowie 3d-C mit DC10 und jeweils $B_f = 22\ m^3/m^2h$. Bei 3d-C erfolgt die Tracerzugabe im Tal und der zeitliche Farbfadenverlauf ist für $x = 0{,}5...\ cm$ und $x = 25...\ cm$ gegeben.

Gegensatz zu DC1 in Abb.5.26 werden die Berge der 3d-C-Struktur nun laminar umströmt und der Tracer verläuft symmetrisch auf zwei S-förmigen Stromlinien. Man kann erkennen, dass sich im Talbereich die Stromlinien nicht kreuzen und es erst nach gewisser Zeit aufgrund von Diffusion zu einer Berührung beider Stromlinien kommt. Im unteren Plattenabschnitt hat sich die Tracerspur aufgrund zunehmender Diffusion verbreitert sowie verdünnt (geringere Helligkeit); die S-förmigen Strömungsstrukturen bleiben jedoch erhalten, vergleiche hierzu die Ergebnisse der Geschwindigkeitsmessungen im Anhang D.4.

Verweilzeittests Neben der oben beschriebenen Strömungsvisualisierung mittels Farbfaden ist es möglich einen hoch konzentrierten Farbstoffimpuls der Strömung beizumengen und damit Verweilzeitmessungen durchzuführen. Im Rahmen dieser Untersuchungen sind jedoch keine klassischen Verweilzeitmessungen mit Bestimmung der Normalverteilung in einem Tracerintensität-Zeit-Diagramm erfolgt, sondern lediglich die minimalen Verweilzeiten, dass heißt die Ankunftszeiten des ersten Tracerpartikels nach 30 *cm* Plattenlänge bestimmt worden. Diese Testmessungen geben erste Hinweise auf die Stofftransportwirkung; für quantitative Korrelationen zum Stofftransport wären jedoch Verweilzeitverteilungen notwendig, siehe unten.
Für die eingesetzten Silikonöle kann man festhalten, dass die minimalen Verweilzeiten auf mikrostrukturieren Oberflächen im Allgemeinen oberhalb der Zeiten auf glatter Oberfläche liegen. Dieses Ergebnis steht in Übereinstimmung mit den LIF-Ergebnissen, bei denen sich im Mittel

ein höherer *Hold Up* sowie eine geringe Fließgeschwindigkeit (bei konstantem Massenstrom) resultiert, wenn Mikrostrukturen verwendet werden. Für DC1 und DC10 ergibt sich jedoch das unerwartete Ergebnis, dass die Stofftransportsteigerungen ϵ_{kA} und die relativen minimalen Verweilzeiterhöhungen zum Teil gegenläufig sind. Bei DC1 sinken die ϵ_{kA}-Werte mit steigender Flüssigbelastung, während die Unterschiede der Verweilzeiterhöhungen zunehmen (gilt für alle vier untersuchten Mikrostrukturen). Als Ursache hierfür ist offenbar die Wellendynamik zu sehen, welche sich bei glatter Oberfläche besonders vorteilhaft (ungestört) ausbilden kann und aufgrund hoher Wellengeschwindigkeiten zu sehr kurzen minimalen Verweilzeiten führen kann.
Bei DC10 und 3d-C steigen nun die ϵ_{kA}-Werte mit steigender Flüssigbelastung an, wobei die Unterschiede der minimalen Verweilzeiten zur glatten Platte abnehmen, siehe Abbildung 5.28. Dieses zunächst widersprüchlich erscheinende Phänomen lässt sich schließlich mit dem Wech-

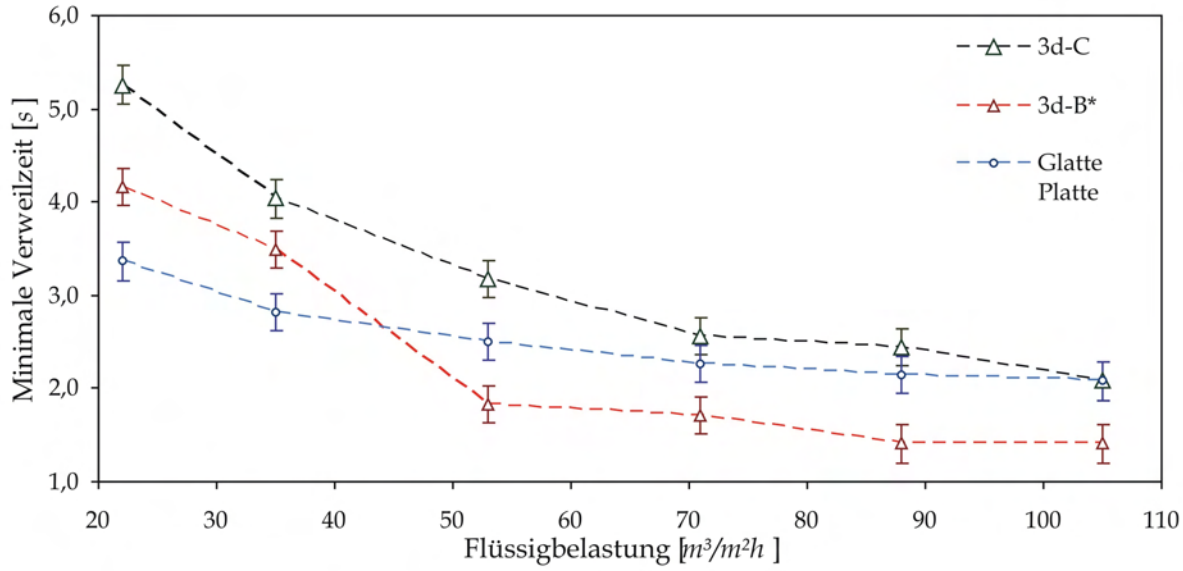

Abbildung 5.28.: Minimale Verweilzeiten nach Tracerzugabe in DC10-Strömungen für $x = 30\ cm$.

sel von Umströmung und Überströmung erklären, vergleiche Dicken- und Geschwindigkeitsmessungen in 5.2.1 sowie D.4. Wie bereits erläutert steigt die lokale Phasengrenzfläche beim Überströmen der Strukturberge an und das Überströmen resultiert in zusätzliche konvektive y-Strömungsanteile, die den Stoffaustausch innerhalb des flüssigen Films intensivieren.
In Abb.5.28 ist zudem der Spezialfall DC10-3d-B* dargestellt, bei dem die minimalen Verweilzeiten ab einer gewissen Belastung plötzlich kürzer sind als bei glattem Referenzfall. Dies steht zunächst im Widerspruch mit den vorigen Bemerkungen zum Hold Up beziehungsweise der mittleren Fließgeschwindigkeit; bei genauem Betrachten der Messergebnisse kann die Ursache dieses Ergebnisse jedoch eindeutig identifiziert werden. Bei kleiner Flüssigbelastung werden Filmwellen weitestgehend unterdrückt und es erfolgt eine laminare Umströmung der relativ flachen 3d-Mikrostukturen, was zu erhöhten Verweilzeiten gegenüber dem Referenzfall führt. Mit steigender Belastung werden die Mikrostrukturen weitestgehend ausgefüllt, wodurch die Wellenausbildung gefördert wird, vergleiche Abschnitt 5.2.1. In diesem speziellen Fall entstehen Filmwellen, de-

ren Transportgeschwindigkeiten über denen bei Wellen auf glatter Platte liegen. Diese, speziell aufgrund der 3d-Mikrostrukturen induzierten Wellen können den Farbstoff schneller an das Plattenende führen als die gewöhnlichen 2d-Wellen auf glatter Oberfläche, so dass der Verlauf in Abb.5.28 erklärt werden kann. Setzt man dieses Resultat in Zusammenhang mit den Stofftransportergebnissen von DC10-3d-B (annähernd gleiche Struktur wie 3d-B*) so lässt sich erklären, weshalb die ϵ_{kA}-Werte entgegen des allgemeinen Trends bei DC10 für den Spezialfall 3d-B mit der Belastung nicht weiter ansteigen, sondern sogar abnehmen. Die Ursache hierfür sind die verkürzten Verweilzeiten, die nur einen geringeren Stofftransport zulassen.

Abschlussbemerkungen Mit Hilfe der Farbfadentests ist es mit einer relativ einfachen Methode ermöglicht worden komplexe Strömungsvorgänge zu visualisieren und somit einerseits das Verständnis des fluiddynamischen Mikrostruktureinflusses zu schärfen sowie zum anderen Ergebnisse von Geschwindigkeitsmessungen zu prüfen. Die durchgeführten Messungen der minimalen Verweilzeit (Tracer-Ankunftszeiten) geben qualitative Hinweise auf Veränderungen von Strömungsgeschwindigkeiten und können zum Beispiel eine plausible Erklärung für ein unerwartetes Ergebnis der Stofftransportmessungen (DC10-3d-B) liefern. Insgesamt zeigen diese Verweilzeittests jedoch, dass die minimalen Verweilzeiten nicht direkt als Kriterium zur Bewertung der beobachteten Stofftransporteffekte genutzt werden können, da weitere Strömungsphänomene wie beispielsweise Filmwellendynamik sowie Phasengrenzflächenänderungen einen großen Einfluss besitzen.
Für eine weitergehende beziehungsweise quantifizierbare Korrelation mit dem Stofftransport sind jedoch Verweilzeitmessungen im klassischen Sinne notwendig, vergleiche Bonitz und Grabbert [1990]. Hierbei sind jedoch mehrere Aspekte bei der experimentellen Untersuchung zu beachten, welche insbesondere den Aufgabeort des Tracers betreffen. Zur Bewertung des Stofftransports ist sicherlich die Zugabe von Farbstoff auf die Filmoberfläche sinnvoll, wobei diese mit steigendem Volumenstrom entsprechend anzupassen wäre. Bei dreidimensionalen Mikrostrukturen ist zudem zwischen den möglichen unterschiedlichen Zugabeorten zu differenzieren, so dass sich insgesamt der experimentelle Aufwand einer wissenschaftlichen Untersuchung schnell potenzieren kann. Schließlich muss es die Messtechnik ermöglichen den zeitlichen Verlauf der Tracerintensitäten nach diskreten Lauflängen zu bestimmen, um die benötigten Verweilzeitverteilungen zu erstellen.

5.2.3. Fluidgeschwindigkeiten (PIV-Ergebnisse)

Einleitung Die Entwicklung und Validierung der hier genutzten μPIV-Methode ist weitestgehend durch Paschke [2012] erfolgt und wird im Folgenden auf unterschiedliche Silikonölströmungen angewendet. In Abbildung 5.29 werden für den Fall der höchsten Fließgeschwindigkeiten (DC1) die gemessenen Maximalgeschwindigkeiten (jeweils bezüglich des gesamten Bildausschnittes) für die glatte Platte mit theoretischen Werten nach Gleichung (2.3) verglichen. Man erkennt eine sehr gute Übereinstimmung, wobei die experimentellen Werte etwa 4-10% unterhalb von Gleichung (2.3) liegen. Die Maximalgeschwindigkeiten $|w_{xz}|_{max}$ für 3d-C liegen deutlich oberhalb der Messpunkte für die glatte Oberfläche, so dass man zumindest lokal erhöhte Oberflächenge-

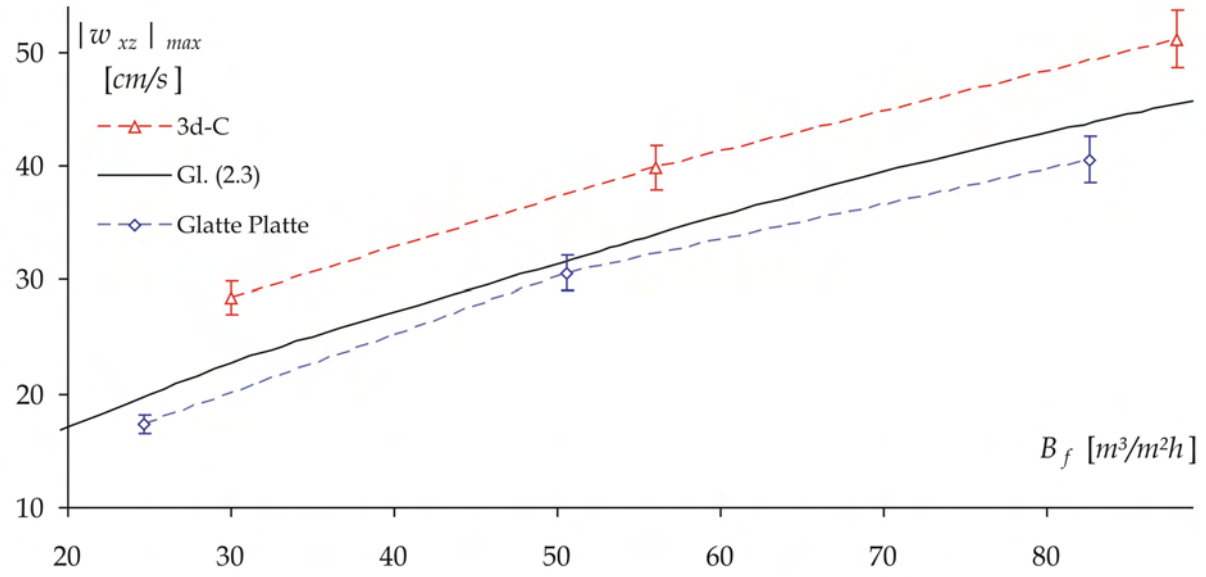

Abbildung 5.29.: Maximalgeschwindigkeiten aus μPIV-Messungen bei DC1-Strömungen im Vergleich zur Nusselt-Lösung einer glatten Platte.

schwindigkeiten bei Verwendung von Mikrostrukturen nachweisen kann; deren Effekt auf den Stofftransport wird im Folgenden diskutiert.

Als einen möglichen positiven Stofftransporteffekt von dreidimensional mikrostrukturierten Oberflächen kann die Induktion von Kanaleffekten angesehen werden. Damit ist gemeint, dass es aufgrund vorhandener Engstellen zwischen den dreidimensionalen Erhebungen zu einer lokalen Geschwindigkeitserhöhung kommt und an dieser Stelle entsprechend der Sh-Korrelation (5.1) der Stofftransport intensiviert wird. Zur Bewertung dieses Effektes sind die μPIV Messreihen für die oberen Filmlayer der Ergebnisse für 3d-C ausgewertet worden. Es handelt sich dabei um die größte untersuchte Struktur, so dass die Kanaleffekte und somit die zu erwartenden Stofftransporteffekte dabei am größten sein müssten. Die Auswertemethode für die Bestimmung der maximalen lokalen Geschwindigkeiten w_{max} erfolgt nach der Filterung deutlich fehlerhafter Vektoren durch Ablesen des Maximalwerts in der Auswertesoftware VidPIV. Die zugehörigen Ergebnisse sind in Tabelle 5.2 angegeben. Die Resultate für die Silikonöle DC1 und DC10 zeigen,

Tabelle 5.2.: Relative Stofftransport- sowie Maximalgeschwindigkeitsänderungen für 3d-C bezüglich der glatten Oberfläche bei den Standardbelastungen von DC1 und DC10.

	DC10			DC1		
Re	2	6	10	35	65	100
B_f $[m^3/m^2h]$	20	50	90	30	56	87
ϵ_{kA} [%]	14	21	35	85	69	44
Δw_{max} [%]	0	14	35	25	20	15

dass die Stofftransportänderungen ϵ_{kA} sowie die Maximalgeschwindigkeitsänderungen Δw_{max} jeweils den gleichen Trend bezüglich der Flüssigbelastungen besitzen. Es scheint in etwa der Zusammenhang $\epsilon_{kA} \propto \Delta w_{max}$ vorzuliegen, was die angesprochene positive Wirkung des Kanaleffektes bestätigen würde.
Anhand einer Überschlagsrechnung sollen nun die gewonnenen Messwerte zur Abschätzung des Einflusses auf den Stofftransport genutzt werden. Im stabil welligen Bereich bedeutet das Ergebnis $\Delta w_{max} = 35\%$ nach Annahme der Gültigkeit von Gleichung (5.1), dass heißt $Sh \propto Re^{0,8}$ (es folgt mit $Sh \propto k_L$ und $Re \propto w$ die Beziehung $k_L \propto w^{0,8}$), dass theoretisch eine Änderung des flüssigkeitsseitigen Stofftransportkoeffizienten von $k_L = 27\%$ möglich wäre. Es bleibt allerdings zu beachten, dass dieser Wert nur eine maximale Abschätzung sein kann, da die verwendeten Messwerte einzelne und lediglich lokal gemessene Vektoren repräsentieren.
Insgesamt kann in Tab.5.2 zwar die Tendenz von steigenden Stofftransportvorteilen mit steigender Geschwindigkeitserhöhung abgelesen werden. Die Steigerung des Stofftransports kann jedoch nicht allein auf die lokale Erhöhung von Oberflächengeschwindigkeiten zurückgeführt werden. Hierzu sind weitere Faktoren wie Queraustausch, Verweilzeitänderung oder Phasengrenzflächenänderung von Bedeutung.

Im Folgenden werden ausgewählte Messergebnisse bezüglich der Fluidgeschwindigkeiten zur Visualisierung spezieller Strömungsereignisse präsentiert und deren Zusammenhang mit den Stofftransportergebnissen diskutiert.

Strömungsvisualisierung ausgewählter PIV- und μPIV-Ergebnisse in Vogelpersepektive Die hier angewandte PIV- sowie μPIV-Methode ermittelt für verschieden große Filmschichten um die Filmebene y_{PIV} das zweidimensionale Geschwindigkeitsfeld $\mathbf{w}_{x,z}(y_{PIV})$ nach Gleichung (4.11) in der Vogelperspektive, vergleiche 4.2.3. Als Beispiel werden in Abbildung 5.30 Geschwindigkeitsfelder aus PIV-Messungen an dem System DC1-3d-C dargestellt. Dort sind

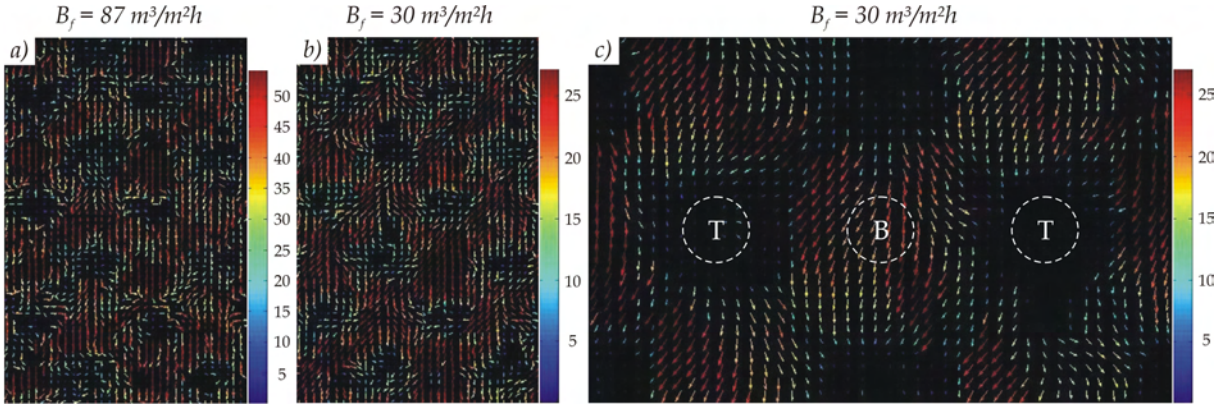

Abbildung 5.30.: Bildausschnitte von PIV-Ergebnissen der oberflächennahen Geschwindigkeitsverteilung $\mathbf{w}_{x,z}(y_{PIV})$ in cm/s für DC1-Strömungen auf 3d-C mit den Objektiven Pentax für a-b) und MX1 für c).

die Schärfeebenen der jeweiligen Objektive im Bereich der Strukturspitzen gewählt worden, so dass in Abb.5.30 Geschwindigkeitswerte nahe der Gas-Flüssig-Phasengrenze abgebildet werden.

Die Abbn.5.30 a-b) zeigen einen größeren Ausschnitt mit mehreren Perioden und jeweils gleicher Position auf 3d-C, wobei die Täler den Orten mit kleinen Geschwindigkeiten zuzuordnen sind. Die höchsten Geschwindigkeiten sind bei $B_f = 87\ m^3/m^2h$ auf beziehungsweise hinter den Bergen und bei $B_f = 30\ m^3/m^2h$ auf den Pässen zu erkennen. Offenbar überwiegen bei $B_f = 87\ m^3/m^2h$ die w_x-Komponenten gegenüber der w_z-Anteile und bei $B_f = 30\ m^3/m^2h$ sind stärkere Umlenkungen aufgrund der Berge zu erkennen, vergleiche DC10-Ergebnisse im Anhang in Abbildung D.10.
Des weiteren geben die Strömungsmessungen mit dem Pentax-Objektiv Auskunft über die örtliche Abhängigkeit der Geschwindigkeitsfelder beziehungsweise zeigen sie, dass es im Eingangsbereich zwischen 1 und 4 cm keine größeren Unterschiede gibt und lokale Messungen im wellenfreien Bereich, zum Beispiel innerhalb eines periodischen Elementes wie es in Abb.3.9 angedeutet ist, auch für größere Abschnitte repräsentative Messergebnisse liefern können.
Für ein besseres Verständnis der Strömung sowie eine höhere Messgenauigkeit beziehungsweise Auflösung im Mikrometerbereich sind zudem Messungen mit Objektiven in Tab.4.1 notwendig. Als Beispiel wird hierzu in Abb.5.30 c) ein Ausschnitt einer Messung mit dem MX1-Objektiv angegeben. Aufgrund der Tiefenschärfe sowie der Fokussierung auf das Niveau der Strukturspitze können im Tal keine Geschwindigkeiten mehr bestimmt werden. Die örtliche Auflösung der Vektoren $\mathbf{w}_{x,z}(y_{PIV})$ erfolgt jedoch mit höherer Präzision und zeigt erneut die Periodizität der stationären DC1-Strömung auf 3d-C. Auffällig an dem Strömungsbild ist die Umströmung eines Berges mit positiven und negativen w_z-Anteilen, dass heißt die Berge werden nach links und rechts umströmt. Auf der strömungsabgewandten Seite eines Berges liegt jedoch kein symmetrisches Zuströmen in das Tal wie vor dem Berg vor. Als Ursache hierfür sind unterschiedliche Passhöhen zu sehen, wobei deren weitere Wirkweise auf das lokale Strömungsfeld mittels μPIV-Messungen im Folgenden näher beschrieben werden kann.

Die in Abb.5.30 aufgrund von unterschiedlichen Passhöhen gemessene Asymmetrie der Talzuströmung kann mittels hochaufgelöster μPIV-Ergebnisse im Tal näher untersucht werden, siehe Abbildung 5.31. Dort zeigen die $\mathbf{w}_{x,z}(y_{PIV})$-Felder für unterschiedliche Filmschichten im unteren Talbereich eine starke Rechtsströmung, die in höheren Filmlagen von einer erhöhten Linksströmung überlagert wird. Offenbar führen die Querströmungsanteile, die für $\delta_F = 347$-$486\ \mu m$ sogar parallel zu w_z verlaufen können, zu einer Verweilzeiterhöhung der Flüssigkeit, so dass sich diese Fluidelemente bezüglich des Stofftransports mit mehr Gas beladen können. Würden diese hochbeladenen Talabschnitte mit der schnelleren Hauptströmung über die Pässe in Kontakt geraten, so ergäbe sich gegenüber der reinen Gasseite eine zusätzliche CO_2-Anreicherung über die Flüssigphase im Talbereich. Dieses Phänomen wäre positiv für die integrale CO_2-Absorption, so dass somit eine weitere mögliche Ursache für die qualitative Erklärung der größten gemessenen Stofftransportsteigerungen bei der Kombination DC1-3d-C und $B_f = 30\ m^3/m^2h$ gegeben ist.

Bei maximalen DC1-Belastungen können mit $\epsilon_{kA} = 44\%$ weiterhin große Vorteile gegenüber der glatten Oberfläche erzielt werden. In den Strömungsbildern der Abbildung 5.32 werden für diese Einstellung weitere Strömungsergebnisse in Vogelperspektive angegeben. In tieferen Schichten

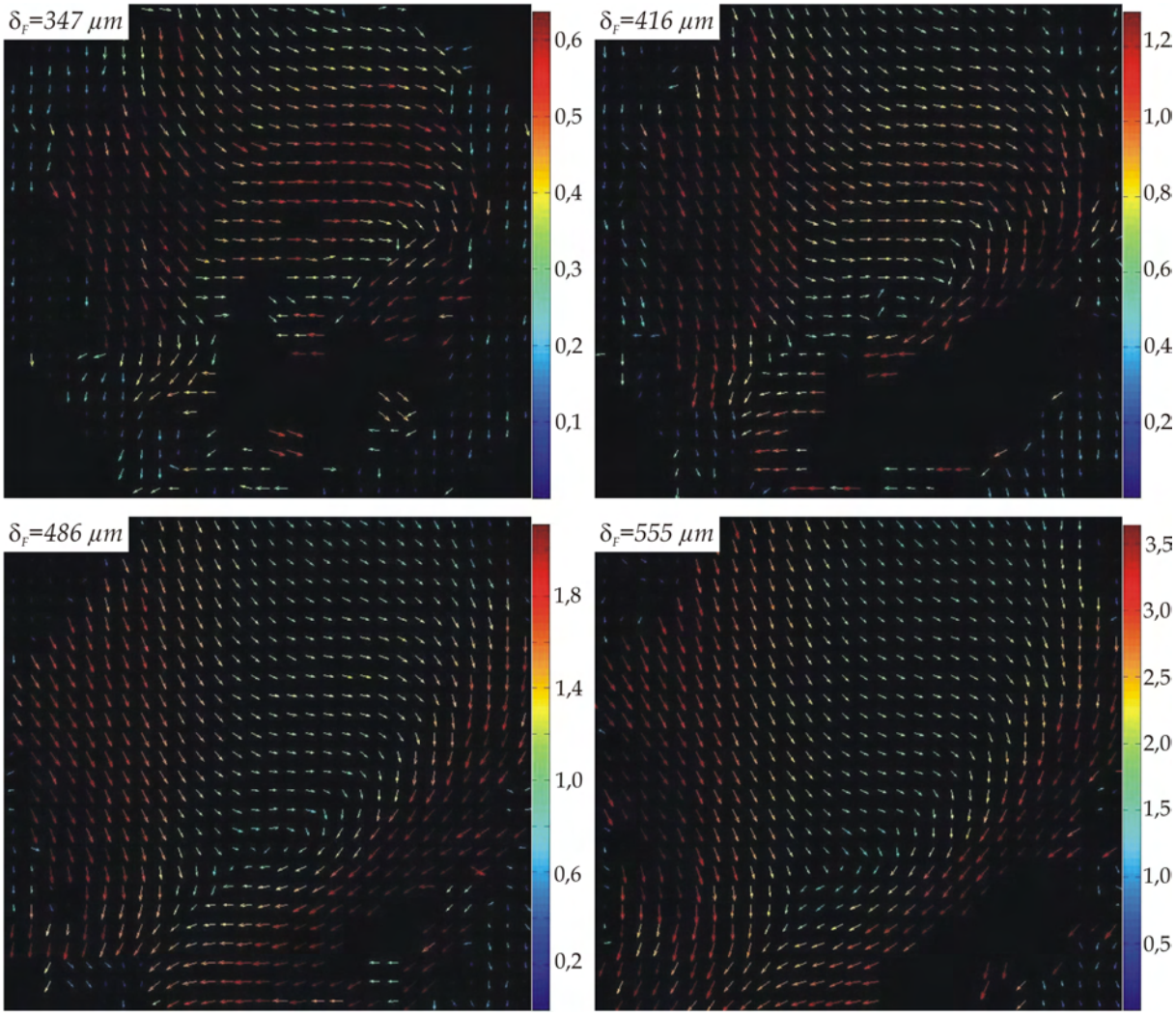

Abbildung 5.31.: μPIV-Ergebnisse für DC1 und 3d-C im Talbereich bei unterschiedlichen Filmdicken δ_F oberhalb des Strukturminimums ($B_f = 30\ m^3/m^2h$, Skala in cm/s).

(δ_F = 416-486 μm) ist analog zu Abb.5.31 eine hohe Querströmung zu erkennen und führt in diesem Fall sogar annähernd zu einem Wirbel. In höheren Filmschichten (δ_F = 555-765 μm) erscheinen nun über mehrere Layer hinweg Doppelwirbel oberhalb des Tals. Analog zur Umströmung von Kugeln und Zylindern, siehe [Brauer, 1971], kann als Ursache der Wirbelbildung die Zunahme der Scherkräfte bei höheren Re-Zahlen angesehen werden.
Diese Wirbelbildung im Tal der 3d-C-Struktur sorgt für eine gewisse Rückvermischung und somit, im Vergleich zur glatten Oberfläche, für eine höhere CO_2-Anreicherung im Flüssigkeitsfilm. Diese Beobachtungen geben somit ein weiteres Argument zur Erklärung der gemessenen Stofftransportsteigerung durch den 3d-C-Typ gegenüber der glatten Platte. Man könnte zunächst vermuten, dass der positive Stofftransporteffekt eines solchen Doppelwirbels zu größeren Steigerungen als den gemessenen führen müsste. Wie bereits in Abschnitt 5.2.1 erläutert treten bei DC1 auf glatter Platte mit steigender Belastung vermehrt dreidimensionale Wellen auf, die besonders vorteilhaft für den Stofftransport sind, siehe Abb.2.6. Diese 3d-Wellen werden aufgrund

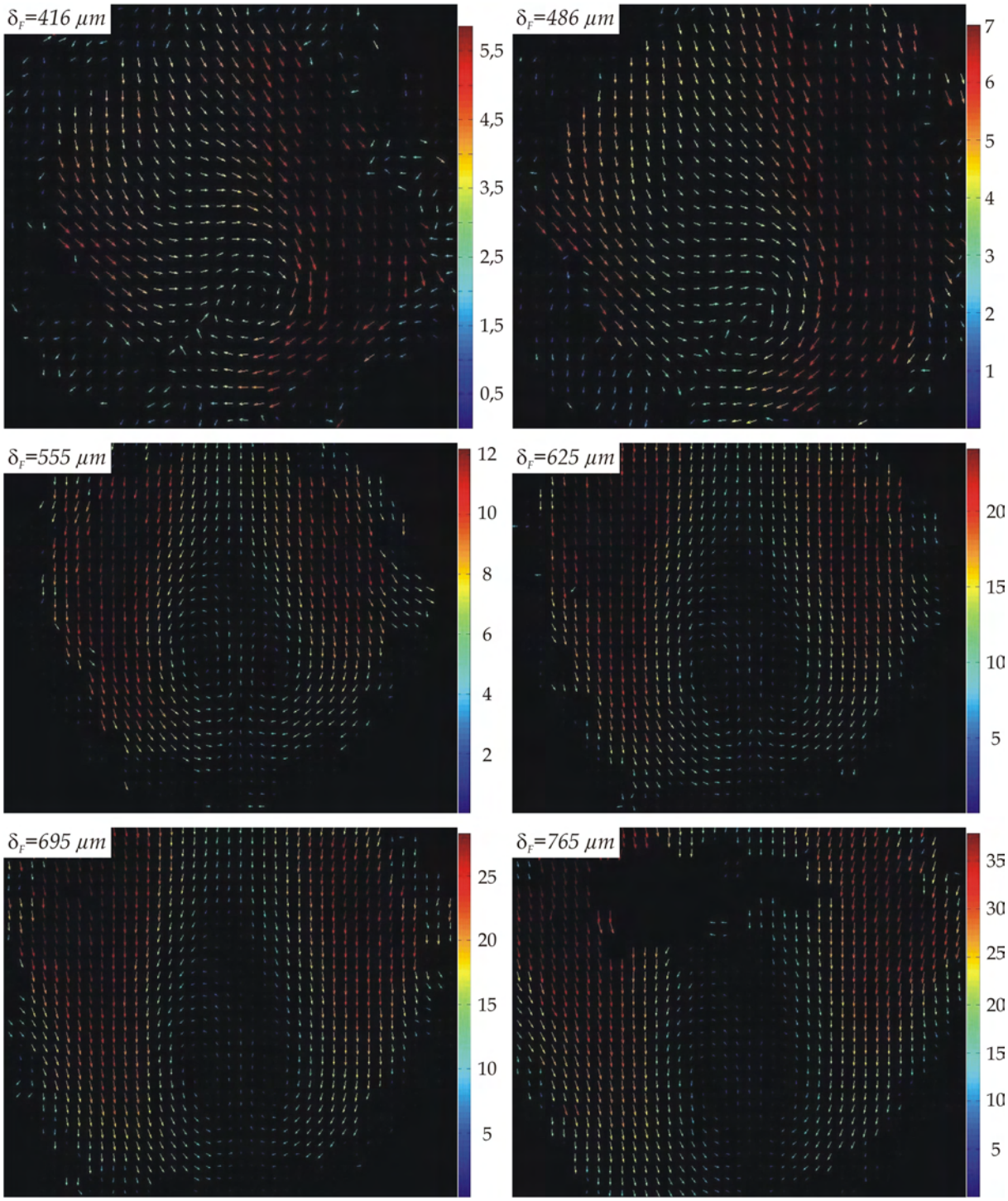

Abbildung 5.32.: μPIV-Ergebnisse für DC1 und 3d-C im Talbereich bei unterschiedlichen Filmdicken δ_F oberhalb des Strukturminimums ($B_f = 87\ m^3/m^2h$, Skala in cm/s).

der unterliegenden Mikrostruktur weitestgehend unterdrückt, so dass diese Vorteile nicht mehr gegeben sind und die ϵ_{kA}-Werte für DC1 mit steigender Belastung abnehmen. In dem Fall von DC1-3d-C bedeutet dies, dass im Vergleich zur glatten Platte die Vorteile des Doppelwirbels durch den Mangel an 3d-Wellen zum Teil kompensiert werden.

Strömungsvisualisierung ausgewählter μPIV-Ergebnisse in Schnittdarstellung Als weitere Darstellungsweise der μPIV-Messungen bietet sich die Schnittdarstellung an. Aus den zweidimensionalen Geschwindigkeitsinformationen $\mathbf{w}_{x,z}(y_{PIV})$ wird zunächst ein dreidimensionaler Raum (Quader) abgebildet, indem die Messebenen von $y = 0$ bis $y = \delta_F$ entsprechend der Höhe y zugeordnet werden. Zwischen den einzelnen Schichten liegen diskrete Geschwindigkeitswerte vor, welche mittels einer Matlab-Routine linear interpoliert werden, so dass die $\mathbf{w}_{x,z}(y)$-Werte für beliebige Höhen im Film y angegeben werden können. Schließlich kann der so erstellte Quader an beliebigen Stellen entlang einer x- oder z-Linie geschnitten werden, so dass sich zum Beispiel Strömungsprofile entlang von *Peak-* oder *Passlinien* abbilden lassen, siehe Abbildungen 5.33 und 5.34. Ein großer Vorteil dieser Darstellungsweise ist, dass sich sowohl der mikrostrukturierte Untergrund als auch die Phasengrenze visualisieren lassen. In der gasförmigen sowie in der festen Phase existieren keine bewegten PIV-Tracer, so dass für diese Bereiche keine Geschwindigkeiten berechnet, also auch kein Wert in der Schnittdarstellung angegeben werden kann. Der dabei mögliche Höhenfehler entspricht in etwa der Tiefenschärfe, dass heißt maximal 60-80 μm bei Verwendung eines MX6-Objektives. Weiterhin kann man aufgrund der farblichen Kodierung Bereiche mit hohen oder niedrigen Geschwindigkeiten besser unterscheiden; so ist den Abbn.5.33-5.34 zu entnehmen, dass an der freien Phasengrenzfläche die w_x-Werte erwartungsgemäß höher sind als an der festen Oberfläche.

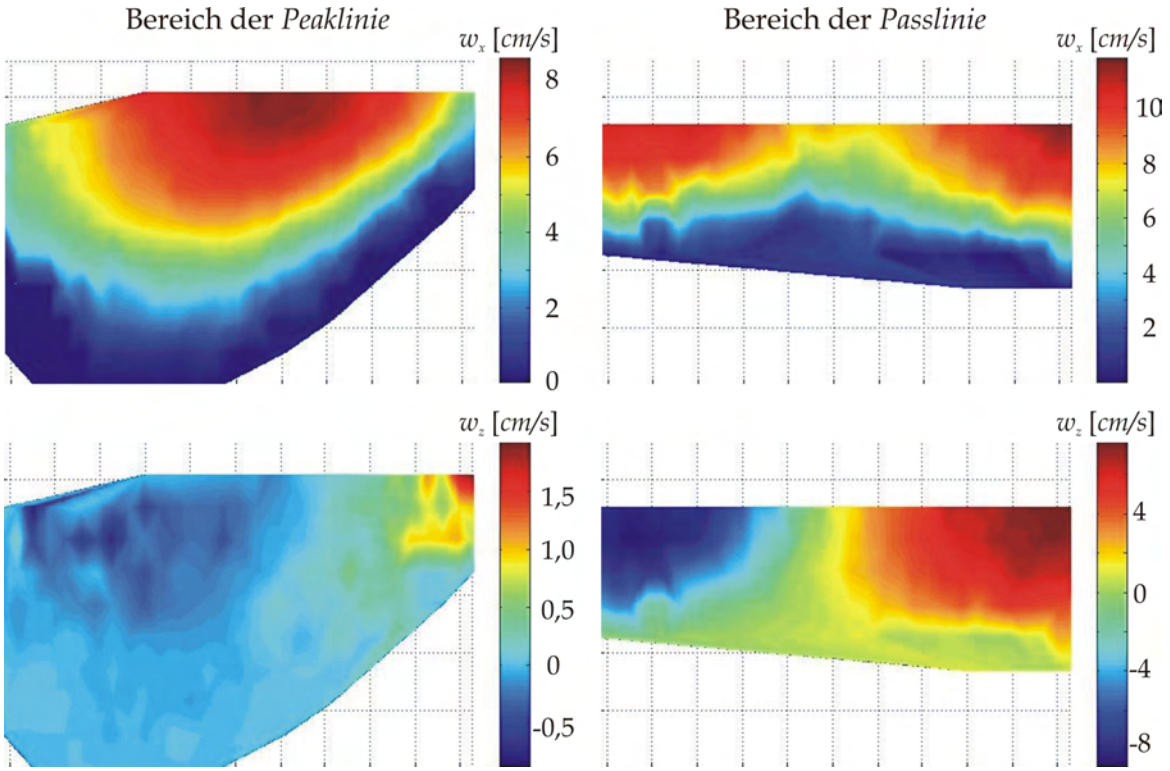

Abbildung 5.33.: PIV-Ergebnisse für die DC5-Strömung bei $B_f = 30\ m^3/m^2h$ auf 3d-B*.

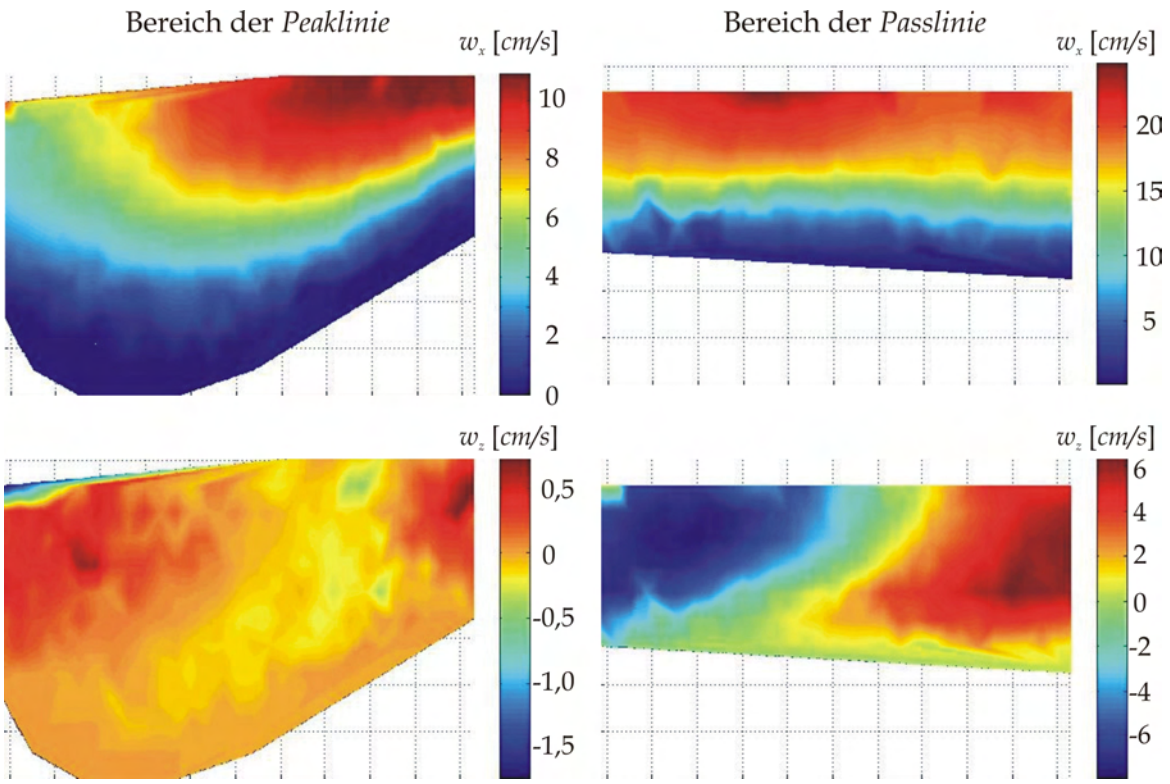

Abbildung 5.34.: μPIV-Ergebnisse für die DC5-Strömung bei $B_f = 60\ m^3/m^2h$ auf 3d-B*.

Die Festlegung welcher Quaderschnitt der *Peaklinie* entspricht erfolgt für DC5 schließlich dadurch, dass derjenige Ebenenschnitt mit den kleinsten w_z-Werte gewählt wird. Da in den Vogelperspektiven von DC5 keine Wirbel sichtbar wurden, kann also von einer symmetrischen Strömung ausgegangen werden, deren Mittellinie der *Peaklinie* entspricht (vergleiche Tracer-Tests in Abb.5.26). Den *Peaklinien* bei 3d-B* für $B_f = 30\ m^3/m^2h$ sowie $B_f = 60\ m^3/m^2h$ kann man die Gemeinsamkeit entnehmen, dass die w_x-Werte auf der Anströmungsseite des Berges am größten sind. Die Maxima der w_z-Werte liegen in der Nähe der Phasengrenzfläche jeweils kurz hinter oder kurz vor einem Berg und deuten auf die vorliegende Umströmung hin. Diese Querströmungseffekte werden jedoch am Messort des Passbereichs umso deutlicher. Hier kommt es zu großen Unterschieden zwischen positiven und negativen w_z-Werten, was die Zuströmung vom Pass in das Tal sowie die Abströmung aus dem Tal auf den nächsten Pass repräsentiert.

Wie in Abschnitt 2.2.2 erläutert wird in dieser Arbeit im Vergleich zu Paschke [2012] die μPIV-Technik auf Konfigurationen mit $\delta^* < 1$ erweitert. Diese Erweiterung könnte insbesondere bei stark gekrümmten Phasengrenzflächen zu unerwünschten Lichtbrechungen führen, so dass fehlerhafte Geschwindigkeitswerte ermittelt werden könnten. Dieser Einfluss soll im Folgenden an dem Beispiel der DC5-Strömung mit $B_f = 50\ m^3/m^2h$ überprüft werden. Hierzu werden μPIV-Messungen aus zwei verschiedenen Ansichten I und II auf das gleiche Tal bei gleicher Flüssigbelastung miteinander vergleichen, siehe Abbildung 5.35. Die Ansichten überschneiden sich im kongruenten Bildbereich, so dass die dortigen Messwerte dem Vergleich dienen können. Die Aus-

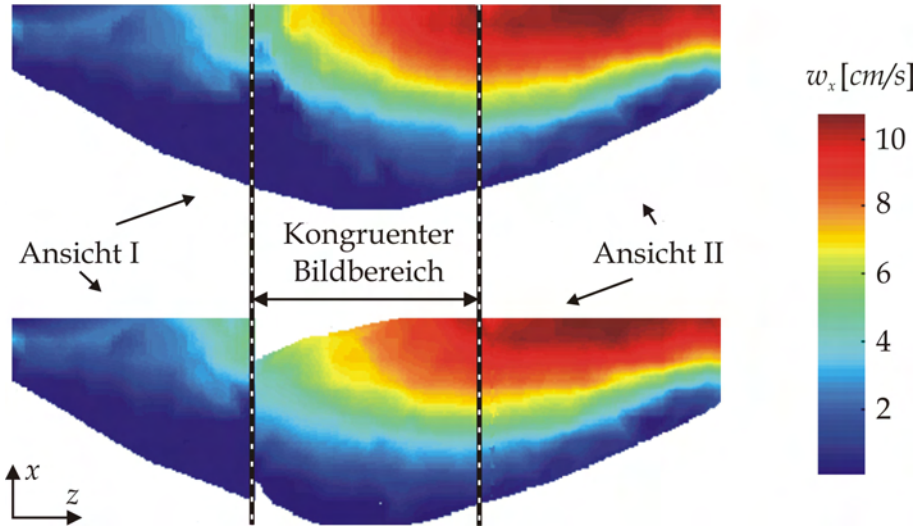

Abbildung 5.35.: μPIV-Ergebnisse der DC5-Strömung mit $B_f = 50\ m^3/m^2h$ auf 3d-B* aus unterschiedlichen Ansichten (Kamerapositionen) in ein Tal. In dem oberen Bild ist der gesamte Aufnahmebereich von Ansicht I sowie ein kleiner Teil von Ansicht II dargestellt und in dem unteren Bild umgekehrt.

wertung erfolgt entlang der *Peaklinie*, da dort mit der größten Krümmung der Phasengrenzfläche zu rechnen ist (vergleiche 5.2.1).
Aus Abb.5.35 kann entnommen werden, dass im kongruenten Bildbereich für beide Ansichten vergleichbare Absolutgeschwindigkeiten sowie Gradienten auftreten. Lediglich am linken Bildrand der Ansicht II werden Phasengrenzfläche und Topographie der Mikrostruktur mit größeren Unterschieden wiedergegeben. Dies kann der Brechung an der Phasengrenzfläche, aber auch der generellen Messungenaugkeiten an den Bildrändern aufgrund der Linsenkrümmung geschuldet sein. Insgesamt scheint es nur einen vernachlässigbar kleinen Messfehler aufgrund von Brechung an der Phasengrenzfläche zu geben und der Ergebnisvergleich unterschiedlicher Flüssigbelastungen bei gleicher Ansicht sollte somit gegeben sein.

Als abschließendes Beispiel der Schnittdarstellung soll die Ergebnisdiskussion für den Fall des Stofftransportminimums bei DC5-3d-B* erfolgen. Hierzu werden in Abbildung 5.36 Ergebnisse für ein Tal bei unterschiedlichen Flüssigbelastungen B_f dargestellt. Für B_f = 30-50 m^3/m^2h treten trotz zunehmender Belastung annähernd gleiche Maximalgeschwindigkeiten im Talbereich auf. Die Massenerhaltung ist trotzdem erfüllt, da es beim Wechsel von 30 m^3/m^2 auf 40 m^3/m^2h zu einem Filmdickenanstieg kommt sowie bei weiterer Belastungssteigerung zu höheren Passgeschwindigkeiten. Weiterhin kann man für den Belastungsbereich mit stärkster Ausprägung des Strofftransportminimums (40-50 m^3/m^2h) in Abb.5.36 entnehmen, dass es auf der strömungsabgewandten Seite des Berges zu einer enormen Strömungsberuhigung kommt. Diese Zone geringer Fließgeschwindigkeiten ist für 40 m^3/m^2h sowie 50 m^3/m^2h im Vergleich zu allen anderen Flüssigbelastungen am stärksten ausgeprägt und kann deshalb als Totzone bezüglich der Strömung interpretiert werden. Als Ursache der Totzonenausbildung können die zunehmenden Scherkräfte bei der Umströmung der Strukturspitzen angesehen werden, welche für die Verlage-

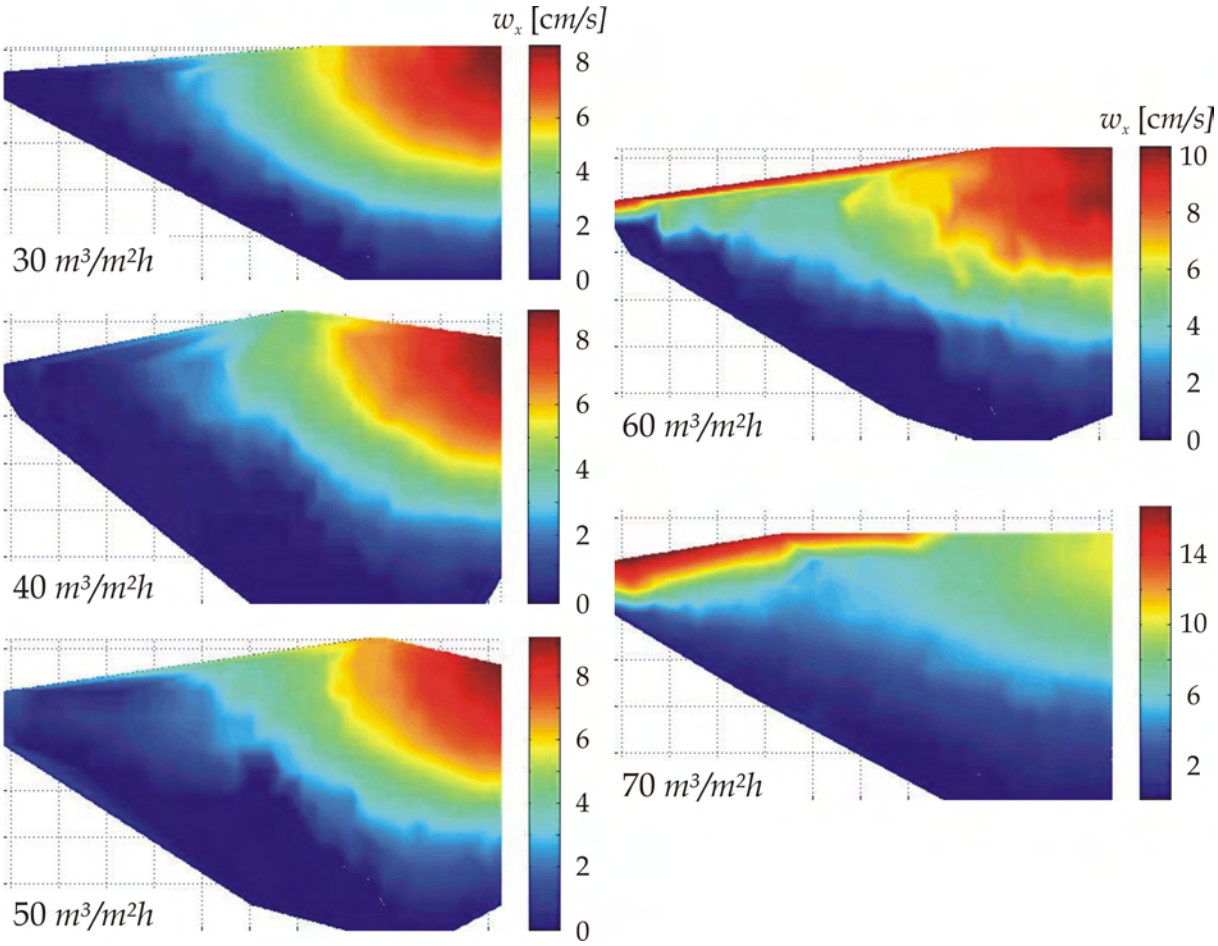

Abbildung 5.36.: μPIV-Ergebnisse für DC5-3d-B* entlang einer *Peaklinie* im Talbereich auf der strömungsabgewandten Seite eines Berges bei verschiedenen Flüssigbelastungen um den Bereich des Stofftransportminimums (jeweils gleiche x- und y-Längenskalen).

rung hoher Fließgeschwindigkeiten an das Talende sorgt und somit die Geschwindigkeiten am Beginn des Tals reduzieren. Bei weiter steigender Flüssigbelastung ($B_f > 60\ m^3/m^2h$) führt die zunehmende Verlagerung zu einer Überströmung der Strukturspitzen, so dass die Flüssigkeit von der Strukturspitze in das Tal hinein strömen kann und somit zur Auflösung der Totzone beiträgt. Diese Tatsache kann man den Strömungsbildern mit B_f = 60-70 m^3/m^2h in Abb.5.36 anhand der erhöhten Oberflächengeschwindigkeiten im vorderen Bildbereich entnehmen.
Diese Messergebnisse sind insofern der Erklärung des Stofftransportminimums dienlich, dass die Ausbildung einer Totzone im Bereich des Minimums nachgewiesen wird. Außerhalb des Stofftransportminimums ($B_f < 30\ m^3/m^2h$ und $B_f < 60\ m^3/m^2h$) liegen die Stofftransortvorteile jedoch wieder auf der Seite der 3d-B*-Struktur. Diese ergeben sich bei kleinen Belastungen aus den starken Umlenkungen aufgrund der Umströmung der Strukturspitzen, die eine signifikante Verweilzeiterhöhung herbeiführen, vergleiche Abb.5.33, wo die w_z-Werte etwa 60-80% der w_x-Werte erreichen können. Bei den hohen Belastungen führt die Überströmung der Strukturspitzen zum einen zu einer Erhöhung der Strömungsaktivität im Tal und im Vergleich zu der glatten Oberfläche zu einer geringfügig gestiegenen Phasengrenzfläche sowie den weiteren

oben genannten Vorteilen von Mikrostrukturen wie der Induktion von Queraustausch und Verweilzeiterhöhung. Zusätzlich zu der Totzone kann im Bereich des Stofftransportminimums eine Unterdrückung von Filmwellen bei 3d-B* für die gesamte Plattenlänge mittels LIF-Messungen festgestellt werden. Bei glatter Oberfläche treten im gleichen Bereich Filmwellen auf, so dass der Aspekt der Wellenunterdrückung als weiterer negativer Faktor bezüglich des Stofftransports angesehen werden.

Abschlussbemerkungen/ Fazit Mit Hilfe der Ergebnisse von PIV- und μPIV-Messungen lassen sich zum einen Phänomene der LIF- und Tracer-Messungen bestätigen sowie deren Verständnis vertiefen und zum anderen neue Strömungsphänomene wie stationäre Wirbel- oder Totzonenausbildung aufdecken. Der Einfluss von Strömungsgeschwindigkeiten auf den Stofftransport wurde anhand von Oberflächengeschwindigkeiten sowie der Sh-Korrelation aus Gleichung (5.1) für den Fall der größten Kanaleffekte bewertet. Die so abgeschätzten lokalen Werte werden jedoch nach Mittelung über die verfügbare Oberfläche gegenüber den Stofftransportsteigerungen verschwindend gering.
Weitere Ergebnisdiskussionen anhand von vogelperspektivischen Bildern zeigen, dass Verweilzeiterhöhungen sowie Wirbelbildungen aufgrund von erhöhten w_z-Anteilen möglich sind. Diese Phänomene beeinflussen den Stofftransport positiv, allerdings lässt sich damit ohne dreidimensionale Strömungssimulation kein quantitativer Zusammenhang herstellen. Weiterhin bleibt die Bestimmung der w_y-Komponenten offen, was insbesondere für den konvektiven Stoffaustausch innerhalb des Films (entlang der y-Achse) von großer Bedeutung wäre. In Zukunft müsste man diese Informationen zum Beispiel mittels Stereo-PIV ermitteln und mit einer Strömungssimulation koppeln, um quantitative Aussagen über die Stofftransportwirkung treffen zu können.
Zusätzlich können plausible Erklärungsansätze des Stofftransportminimums bei DC5 gegeben werden. Dabei kann als entscheidendes Kriterium der Umschlagpunkt beziehungsweise Bereich zwischen Umströmung sowie Überströmung gesehen werden. Zwischen diesen Strömungszuständen kommt es im speziellen Falle von DC5-3d-B* zur Ausbildung einer Strömungstotzone.

5.3. Fazit der Hauptuntersuchungen

Die Ziele der Hauptuntersuchungen konnten insofern erfüllt werden, dass sich das entwickelte Messsystem als geeignet erweist, um den Mikrostruktureinfluss auf den flüssigkeitsseitigen Stofftransport zu bewerten sowie deren fluiddynamische Ursachen qualitativ zuzuordnen. Es kann gezeigt werden, dass Mikrostrukturen die CO_2-Absorption in Rieselfilmströmungen signifikant intensivieren können. Dabei führen die mikrostrukturierten Oberflächen zum Teil zu Vergrößerungen der Phasengrenzfläche A; es gilt jedoch $\Delta(k_L A) >> \Delta A$, so dass eine Reduktion des flüssigkeitsseitigen Transportwiderstandes k_L^{-1} eindeutig nachgewiesen werden kann.
Zur Ursachenklärung sind diverse Strömungseffekte mittels optischer Messverfahren näher untersucht worden. Hierdurch können lokal erhöhte Oberflächengeschwindigkeiten im Vergleich zur glatten Oberfläche im wellenfreien Eingangsbereich nachgewiesen werden. Die damit einhergehenden lokalen Stofftransportsteigerungen erweisen sich global gesehen als vernachlässig-

bar. Allerdings stimmen die Tendenzen des Stofftransportanstiegs mit denen der Phasengrenzflächen- sowie der lokalen Geschwindigkeitserhöhung am Beispiel für 3d-C bei DC1- sowie DC10-Strömungen (trotz gegenläufiger Belastungsabhängigkeit) nachweislich überein, so dass hier insbesondere die Kombination beider Effekte als besonders positiv einzustufen ist. In Summe müssen jedoch weitere positive Stofftransporteffekte auftreten, um die beobachteten Stofftransportsteigerungen erklären zu können.
Filmdicken- und Tracer-Experimente weisen darauf hin, dass aufgrund von Mikrostrukturen im Allgemeinen der Flüssigkeitsinhalt erhöht, die Verweilzeit reduziert und der Queraustausch intensiviert wird. Hierdurch gewonnene Erkenntnisse erlauben weitere qualitative Rückschlüsse auf die Stofftransportergebnisse. Zur quantitativen Beurteilung müssten an dieser Stelle aufwendige Messungen der Verweilzeitverteilung durchgeführt werden.
Weiterhin folgt aus unterschiedlichen Strömungsmessungen, dass insbesondere der Umschlagpunkt zwischen Um- und Überströmung der 3d-Strukturen einen massiven Einfluss auf die Rieselfilmströmung besitzt, vergleiche Abb. 2.9. Bei der Umströmung kann als positiver Effekt die Verweilzeiterhöhung sowie als negative Effekte die Verringerung der Phasengrenzfläche und die Wellenunterdrückung gesehen werden. Im Bereich des Umschlagpunktes kann es zu erhöhten Scherkräften kommen, die vermutlich zur Ausbildung einer Strömungstotzone führen kann, wodurch sich zum Beispiel ein ausgeprägtes Stofftransportminimum im Bereich $0{,}1 \leq \delta^* \leq 1$ erklären lässt. Beim Überströmen können wieder vorteilhafte Effekte wie eine intensivere Durchmischung des Films sowie Phasengrenzflächen- oder Verweilzeiterhöhungen auftreten.
Schließlich können anhand von Strömungsmessungen zusätzlich unerwartete beziehungsweise neuartige Strömungsphänomene für 3d-Mikrostrukturen festgestellt werden. Hierzu zählen die Möglichkeit der Ausbildung von Wirbelstrukturen, die Induktion von speziellen Wellentypen sowie von Resonanzphänomenen, welche im praxisnahen Bereich für Packungsanwendungen bisher nur für 2d-Mikrostrukturen publiziert wurden. Im Rahmen dieser Arbeit kann deren Zusammenhang zum Stofftransport allerdings nicht abschließend geklärt werden.

Die detaillierte Zuordnung zwischen gemessenen Stofftransporteffekten und deren fluiddynamischen Ursachen sind den vorangegangenen Abschnitten zu entnehmen. Um einen etwas allgemeineren Überblick der Ergebnisse zu ermöglichen, dient der folgende Absatz.
Tendenziell gibt es den Trend, dass mit höheren *Re*-Zahlen größere Stofftransportsteigerungen aufgrund von Mikrostrukturen ermöglicht werden können, was allerdings nur eine grobe Näherung darstellt, da in Abhängigkeit von Strukturdesign und Viskosität lokale Extrema auftreten können. Die fluiddynamisch basierte Aussage aus Zhao und Cerro [1992], dass für praktische Anwendungen 2d-Strukturen mit $0{,}1 \leq \delta^* \leq 1$ besonders geeignet seien, kann im Allgemeinen mittels Stofftransportmessungen bestätigt werden. Allerdings ergeben sich noch Stofftransportvorteile bis $\delta^* \leq 4{,}5$ für eine 2d-Struktur. Weiterhin existiert für $0{,}1 \leq \delta^* \leq 1$ kein monotoner Trend bezüglich der Stofftransportsteigerung, wenn 3d-Mikrostrukturen verwendet werden. Vielmehr hat sich gezeigt, dass in Abhängigkeit der Topographie zwei Maxima bei $\delta^* \to 0{,}1$ sowie $\delta^* \to 1$ vorliegen und es im Bereich von $0{,}1 \leq \delta^* \leq 1$ zu einem Minimum kommt. Schließlich ist es nicht möglich eine einfache *Re*-δ^*-Heuristik bezüglich des Mikrostrukturdesigns für unterschied-

lich viskose Flüssigkeiten abzuleiten, da mit veränderlicher *Re*-Zahl die Filmdicken und somit die δ^*-Werte variieren. Für weitere Verbesserungen von Mikrostrukturen müssten schließlich in Abhängigkeit der Prozessparameter in Zusammenhang mit einer dreidimensionalen Strömungssimulation entwickelt werden, was allerdings eine hohe Rechenleistung erfordert.

5.4. Benetzungstests

Zusätzlich zu den vorher detailliert beschriebenen Hauptuntersuchungen sind im Rahmen dieser Arbeit Benetzungstests durchgeführt worden, siehe Abschnitte 2.3 und 4.2.2. Dabei soll einerseits grundlegendes Benetzungsverhalten in Abhängigkeit von Stoff- und Oberflächeneigenschaften bei einer geneigten Platte diskutiert werden. Andererseits ergibt sich die Frage der Übertragbarkeit von der relativ einfachen Geometrie einer geneigten Platte zu der eines makrostrukturierten Bleches, welche gegebenenfalls in weiteren Schritten nach Möglichkeit bis zu der komplexen Geometrie einer Packungskolonnen weitergeführt werden könnte, siehe Abbildung 5.37. In die-

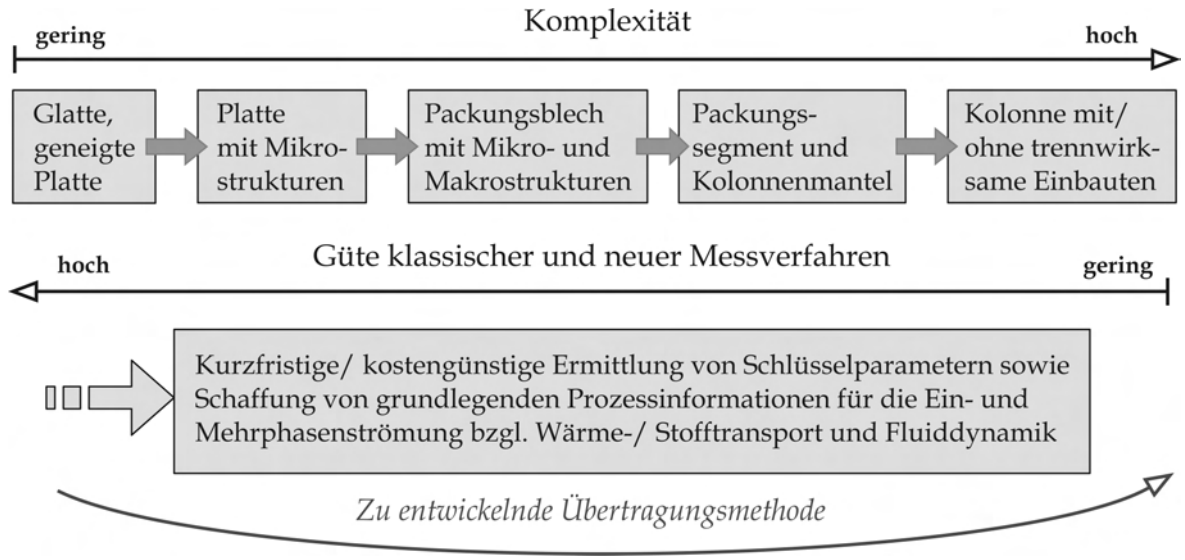

Abbildung 5.37.: Mögliche Methodik zur Vorhersage komplexer Vorgänge in Packungskolonnen anhand einfacher Tests an geneigten Platten mittels geeigneter Übertragungsmodelle nach Repke et al. [2011].

sem Fall sollen einfache Überströmversuche mittels punktueller Flüssigkeitsaufgabe auf reale makrostrukturierte Packungsbleche erste Hinweise auf die Möglichkeit der Modellübertragung für zukünftige Forschungen geben.

Tests an geneigter Platte Als erstes Bespiel der Benetzungstests wird für sehr geringe DC1-Flüssigkeitsströme (0,6 l/h) die Flüssigkeitsausbreitung auf glatter, 2d- und 3d-B*-Oberfläche in Abbildung 5.38 dargestellt. Man erkennt eine signifikante Verbreiterung des Flüssigkeitsfilms, was bei dem 2d-Typ aufgrund von Kapillarkräften und bei dem 3d-Typ aufgrund der Kanäle zwischen den pyramidischen Erhebungen verursacht wird. Dies führt bei dem 2d-Typ etwa zu einer Verdopplung und bei dem 3d-Typ zu einer Verdreifachung der Rinnsalbreite. In weiteren

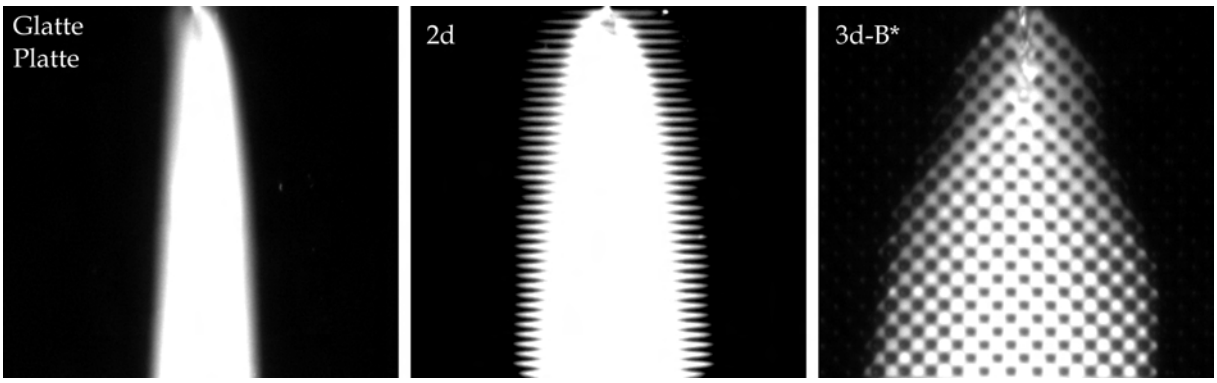

Abbildung 5.38.: Benetzungstests für DC1 bei Flüssigkeitszugabe über eine Kanüle mit $\dot{V}_f = 0{,}6\ l/h$.

Tests mit DC10 und gleichem Volumenstrom wird dieser Effekt verstärkt und nach wenigen Zentimetern Lauflänge verteilt sich die Flüssigkeit bei den 3d-Typen über die gesamte Plattenbreite. Dieser Einfluss der Viskosität beziehungsweise der *Re*-Zahl ist analog zu den Hauptuntersuchungen durch die veränderten Fließgeschwindigkeiten und damit der resultierenden Neigung zum Um- oder Überströmen der pyramidischen Erhebungen erklärbar.

Im zweiten Beispiel werden höhere Volumenströme betrachtet, wobei die Flüssigkeiten Wasser, eine Wasser-Glyzerin-Lösung und DC5 nach Tab.3.7 jeweils über ein Rohr mit $d_R = 4\ mm$ aufgegeben wird; zugehörige Volumenströme sowie Rohr-Reynolds Zahlen Re_R sind im Anhang D.5 dokumentiert. Zur Veranschaulichung der Benetzungseffekte in Abhängigkeit der Stoffeigenschaften werden in Abbildung 5.39 zunächst Strömungsbeispiele auf glatter Oberfläche bei vergleichbaren Re_R-Zahlen dargestellt und in Abbildung 5.40 die Auswertungen der Rinnsalbreite wiedergegeben. Hierbei wird die Rinnsalbreite (in mm) anhand der gemessenen Rinnsal-Pixelbreite nach einer Pixel-Längen-Kalibrierung berechnet; der Messfehler beträgt dabei etwa $\pm 1\ mm$.
Die Grundlagenkenntnisse bezüglich des Kontaktwinkels in Abhängigkeit der Stoffeigenschaften (siehe Abschnitt 3.2.4) können bei vergleichbaren Aufgabebedingungen ($Re_R \approx konst.$) somit wie erwartet auf die Benetzungseigenschaften übertragen werden. Bei vergleichbarer Oberflächenspannung sowie unterschiedlicher Viskosität sind die Unterschiede relativ klein (vergleiche Wasser und 45 Gew.-% Glyzerin). Die Oberflächenspannung beeinflusst die Ausbreitung der Flüssigkeit jedoch enorm (vergleiche 45 Gew-% Glyzerin und DC5).

Neben diesen Grundkenntnissen ist zudem zu beachten, dass im Gegensatz zur Aufgabe mittels Überlaufwehr (Hauptuntersuchungen) bei der punktuellen Rohraufgabe spezielle Effekte auftreten können. Diese äußern sich bei kleinen Wasser-Volumenströmen durch chaotische Rinnsale in Mäanderform sowie bei Wasser und wässrige Glyzerin-Lösungen durch eine Buckelbildung, siehe Abb.5.39. Als Ursache hierfür ist zu sehen, dass zunächst die Flüssigkeit durch den Aufgabeimpuls seitlich verteilt wird und sich die Flüssigkeit aufgrund der hohen Grenzflächenspannung beziehungsweise geringer Adhäsionskräfte bezüglich der unbewegten Phase jedoch wieder zu-

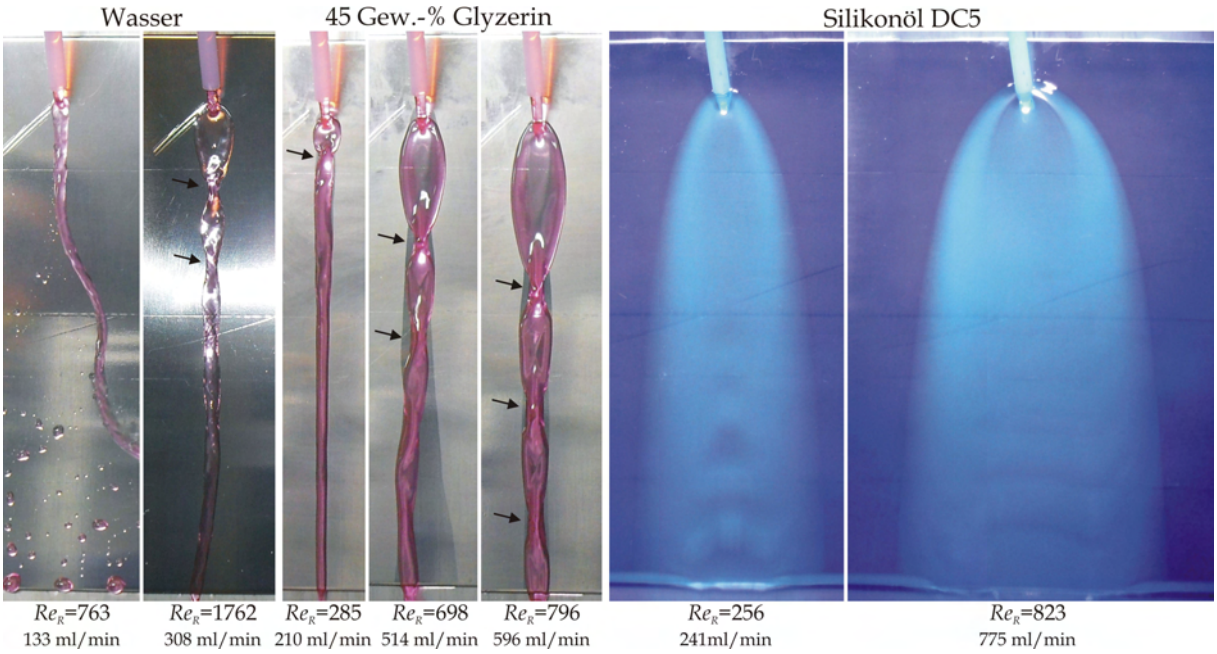

Abbildung 5.39.: Benetzungstests für Wasser, 45%-ige Wasser Glyzerin Lösung und DC5 zur Veranschaulichung grundlegender Effekte auf polierter Edelstahlplatte mit $\alpha = 45°$ (Pfeile kennzeichnen die Buckelbildung).

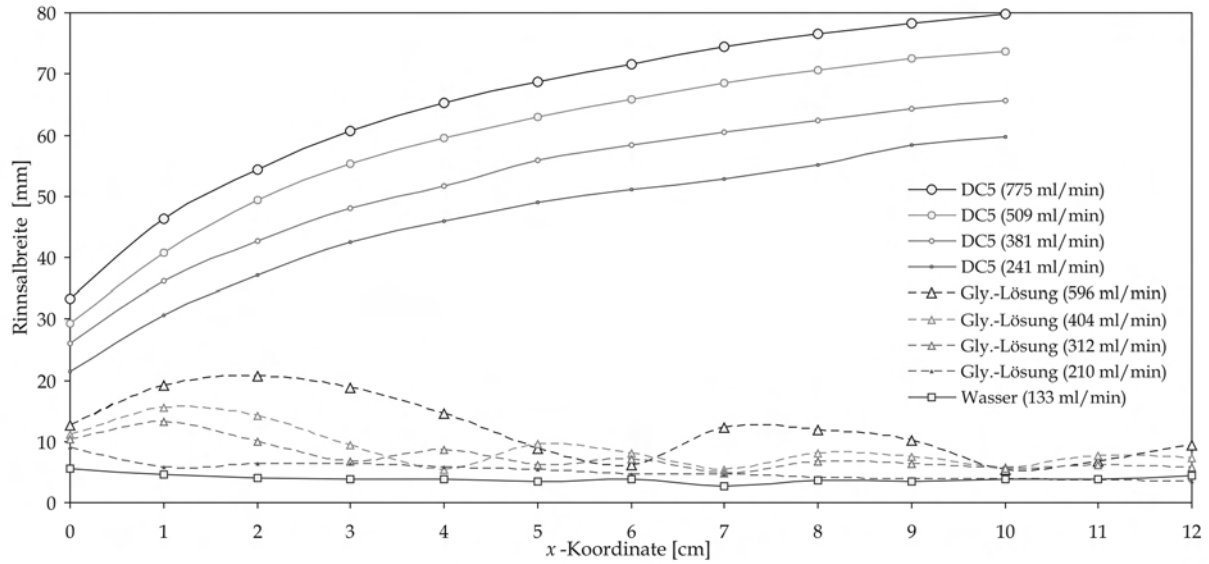

Abbildung 5.40.: Rinnsalbreiten für diskrete x-Werte bei punktueller Rohraufgabe von Wasser, 45%-ige Wasser-Glyzerin-Lösung und DC5 auf eine polierte Edelstahlplatte ($\alpha = 45°$, $d_R = 4\ mm$, zugehörige Re-Zahlen siehe Tabelle D.1).

sammenzieht. Im Punkt der Buckelbildung werden die Flüssigelemente überlagert und bilden ein sehr schmales und dickes Rinnsal. Aufgrund der Massenträgheit kommt es nach einem Buckel wieder zu einer Vergrößerung der Rinnsalbreite und so weiter, wobei die auftretende Reibung die kinetische Energie der Strömung reduziert und somit die Verbreiterung sowie die Buckelbildung

nur noch abgeschwächt auftreten kann. Je größer der Volumenstrom ist, desto stärker sind diese Eintrittseffekte, was anhand der Rinnsalbreite in Abb.5.40 für die Wasser-Glyzerin-Lösung zu entnehmen ist. Dort erkennt man zudem den großen Unterschied zwischen hoher sowie geringer Oberflächenspannung. Aufgrund der geringen Oberflächenspannung von DC5 wirken nur sehr schwache Kräfte zur Ausbildung eines Rinnsals und es entsteht ein Bach, dessen Breite mit der Flüssigbelastung sowie der Lauflänge kontinuierlich zunimmt.

Bei den Benetzungsexperimenten an mikrostrukturierten Oberflächen kann insbesondere für die verwendeten 3d-Typen im Allgemeinen eine Vergrößerung der Flüssigkeitsausbreitung gegenüber der glatten Edelstahloberfläche beobachtet werden, wodurch sich die Gas-Flüssig-Phasengrenzfläche signifikant vergrößern lässt. Bei genügend kleinen δ^*-Werten können die Eintrittseffekte der Buckelbildung wie auf glatter Platte vollständig unterdrückt werden und die Flüssigkeit bildet analog zu den Hauptuntersuchungen eine relativ gleichmäßige Filmströmung (mit dickeren Filmen in den Täler sowie dünneren Filmen auf den Strukturspitzen) aus.
Weiterhin werden die unterschiedlichen Anströmkonfigurationen aus Abb.3.9 untersucht. Für die *Anströmung II* werden die unerwünschten Eintrittseffekte wie Buckelbildung stärker reduziert als für die *Anströmung I*, allerdings ist die Rinnsalverbreiterung im Allgemeinen etwas kleiner, weil die Flüssigkeit vornehmlich entlang der parallelen Kanäle geführt wird. Zur weiteren Bewertung wären zusätzliche Flüssigkeitsaufgabestellen sowie Filmdicken- und Phasengrenzflächenmessungen vorteilhaft.
Der größte Effekt von Mikrostrukturen auf das Benetzungsverhalten tritt auf, wenn die Platte vorher großflächig benetzt wurde. Im Gegensatz zur glatten Oberfläche können sich dann kleine Flüssigkeitsmengen statisch anlagern und erhöhen damit signifikant die benetzte Breite. Wie stark sich der Effekt der Vorbenetzung bemerkbar macht ist der Abbildung 5.41 zu entnehmen.

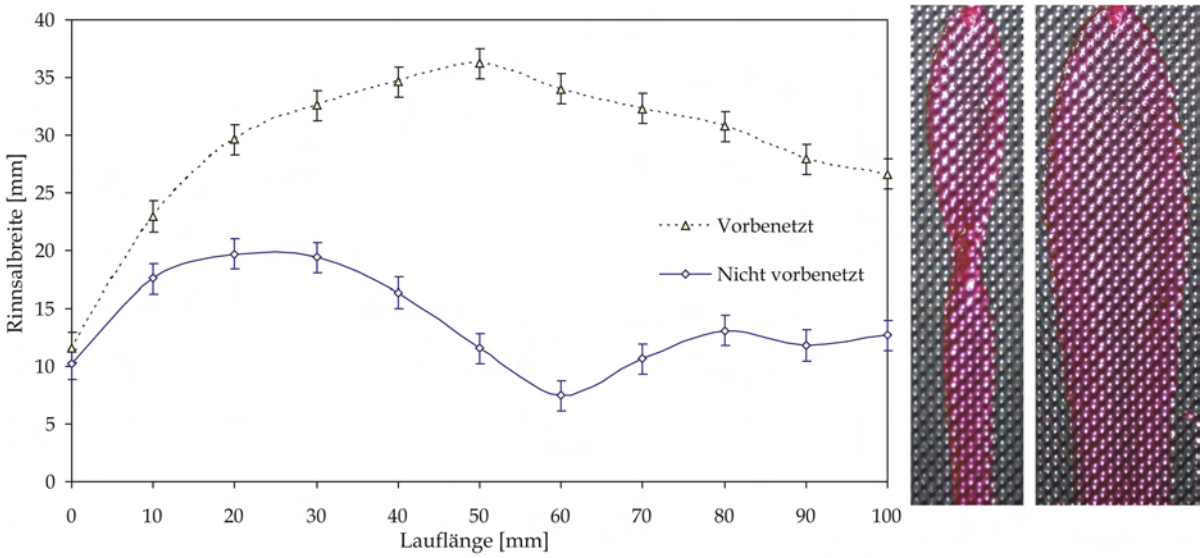

Abbildung 5.41.: Ergebnisse eines Benetzungstests an einer 3d-Struktur mit 50 Gew.-% Glyzerin und $Re_R = 538$ (Auswertung der nebenstehenden Fotographien ohne und mit Vorbenetzung).

Man erkennt, dass zum einen die Buckelbildung deutlich reduziert wird und die Rinnsalbreite um das Zwei- bis Dreifache erhöht werden kann. Bezogen auf den jeweils nicht vorbenetzten Fall ergibt sich der Trend, dass tendenziell mit steigender Mikrostrukturdimension die Erhöhung der benetzten Breite abnimmt. Selbst bei grober Struktur können dann trotz der bereits gegenüber der glatten Oberfläche erhöhten benetzten Breite zusätzliche Rinnsalverbreiterungen von 50-100% aufgrund der Vorbenetzung erzielt werden. Bei Verwendung von mikrostrukturierten Oberflächen in Stoffaustauschapparaten ist demnach eine Vorbenetzung zur Erhöhung der benetzten Breite sowie der Phasengrenzfläche eine empfehlenswerte Maßnahme.

Tests an makrostrukturierten Packungsblechen Der Effekt von unterschiedlichen Stoffeigenschaften auf die Benetzung eines mikro- und makrostrukturierten Bleches ist in der Abbildung 5.42 beispielhaft für eine konstante Re_R-Zahl dargestellt. Analog zu den Tests an geneigter

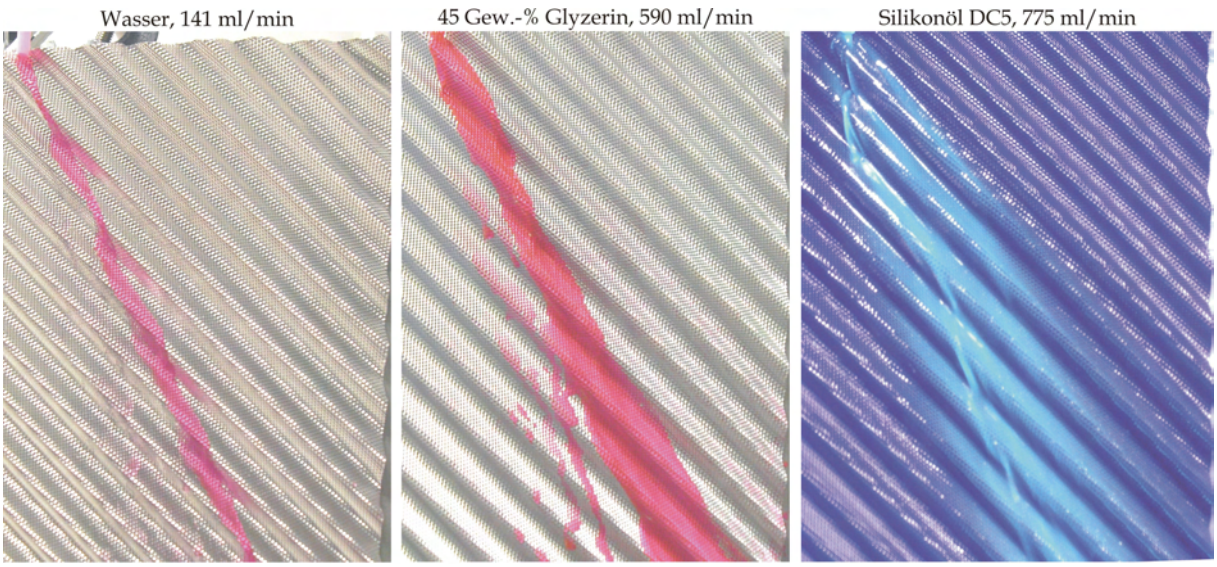

Abbildung 5.42.: Einfluss der Stoffeigenschaften auf die Benetzung von B1-300® bei $Re_R = 742$.

Platte führt die reduzierte Oberflächenspannung zu deutlich höherer Benetzung, siehe DC5. Bei dem Vergleich von Wasser und einem Wasser-Glyzerin-Gemisch ist trotz gleicher Re_R-Zahl und vergleichbarer Oberflächenspannung die Benetzung bei Wasser-Glyzerin etwas besser. Diese Beobachtung konnte ebenfalls bei den mikrostrukturierten Platten und gleicher Stoffpaarung gemacht werden. Insgesamt ist die Oberflächenspannung der entscheidende Parameter für die Benetzungseigenschaften auf den verwendeten Edelstahlblechen, wenn die punktuelle Rohraufgabe auf die trockene Packungsoberfläche erfolgt. Dies gilt gleichermaßen für die untersuchten mikro- und makrostrukturierten Bleche.
Als wiederkehrende Strömungscharakteristik für alle makrostrukturierten Bleche ist die Tatsache, dass die Flüssigkeit nicht wie auf einer geneigten Platte senkrecht zur Betrachtungsebene abfließt. Aufgrund der Blechfaltung strömt die Flüssigkeit entlang des kürzesten Weges in Gravitationsrichtung für die eingesetzten Bleche nach rechts, wobei diese Tendenz durch die Kanäle der Makrostruktur verstärkt werden kann. Somit ergibt sich in etwa jeweils die gleiche Flüssigkeits-

position auf der linken Seite der Strömung. Rechts davon kann die Breite in Abhängigkeit von Volumenstrom und Oberflächenspannung variieren. Damit wird die Gas-Flüssig-Phasengrenzfläche durchaus verändert, aber der Großteil des Volumenstroms fließt weiterhin entlang des kürzesten Weges.

Der Effekt der Vorbenetzung bei makrostrukturierten Blechen wird in den folgenden Abbildungen 5.43 und 5.44 verdeutlicht. Die Maßnahme der Vorbenetzung kann bei den eher schlecht

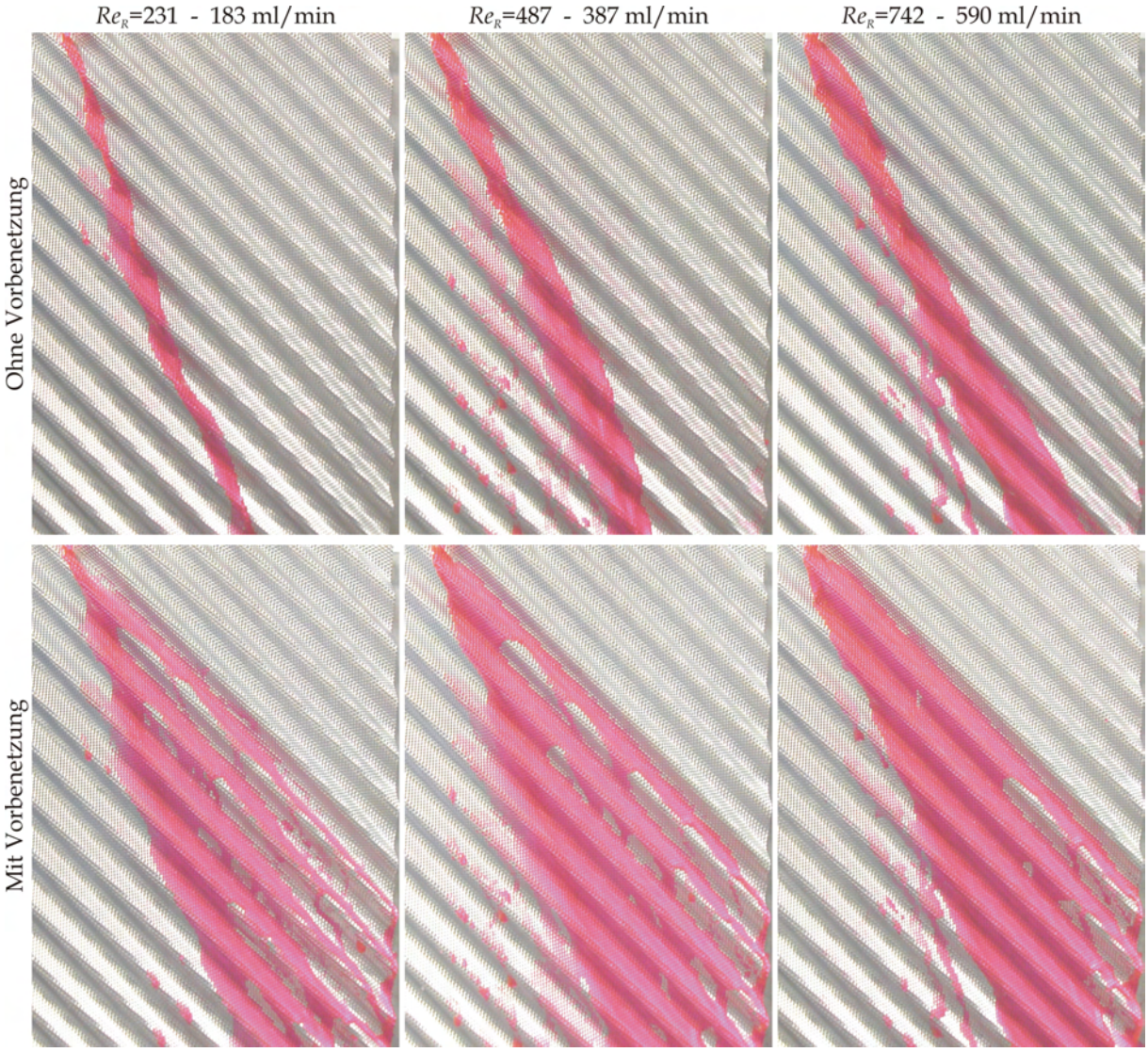

Abbildung 5.43.: Vorbenetzungseffekt bei 45-Gew.% Glyzerin und B1-300®.

benetzenden wässrigen Medien analog zur geneigten mikrostrukturierten Platte bei mikrostrukturierten Makrostrukturen ebenfalls zu großen Verbesserungen der Benetzung führen. Dies wird beispielhaft für unterschiedliche Volumenströme der 45%-igen Glyzerin-Lösung auf B1-300® in Abb.5.43 deutlich gemacht. Dort erkennt man mit steigendem Volumenstrom die Zunahme der benetzten Oberfläche sowie die Tendenz, dass sich die Flüssigkeit am unteren Ende des Bleches bei annähernd gleichem linken Rand zunehmend nach rechts verschiebt. Erhöht man kurzzeitig

den Volumenstrom lokal an der Aufgabestelle, so ergibt sich im stationären Fall eine großflächigere Verteilung der Flüssigkeit mit einer entsprechend dünneren sowie langsameren Filmströmung. Mit der Erhöhung des Volumenstroms bleibt die Anzahl der von der Flüssigkeit genutzten Kanäle annähernd gleich; die Überströmung der höher gelegenen Makrostrukturen nimmt jedoch zu, so dass das Blech insgesamt besser benetzt ist. An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, dass in einer realen strukturierten Packung in der Regel Kreuzungspunkte der anliegenden Bleche vorliegen, welche der besseren Flüssigkeitsverteilung dienen. Diese Kreuzungspunkte können jedoch nur genutzt werden, wenn die Flüssigkeit aus den Kanälen über die Makrostruktur strömt. Hierzu muss entweder die entsprechende Anzahl an Tropfstellen gewählt oder der Flüssigvolumenstrom erhöht werden.

Als Beispiel für perforierte Bleche werden in der Abb.5.44 glatte sowie mikrostrukturierte Ma-

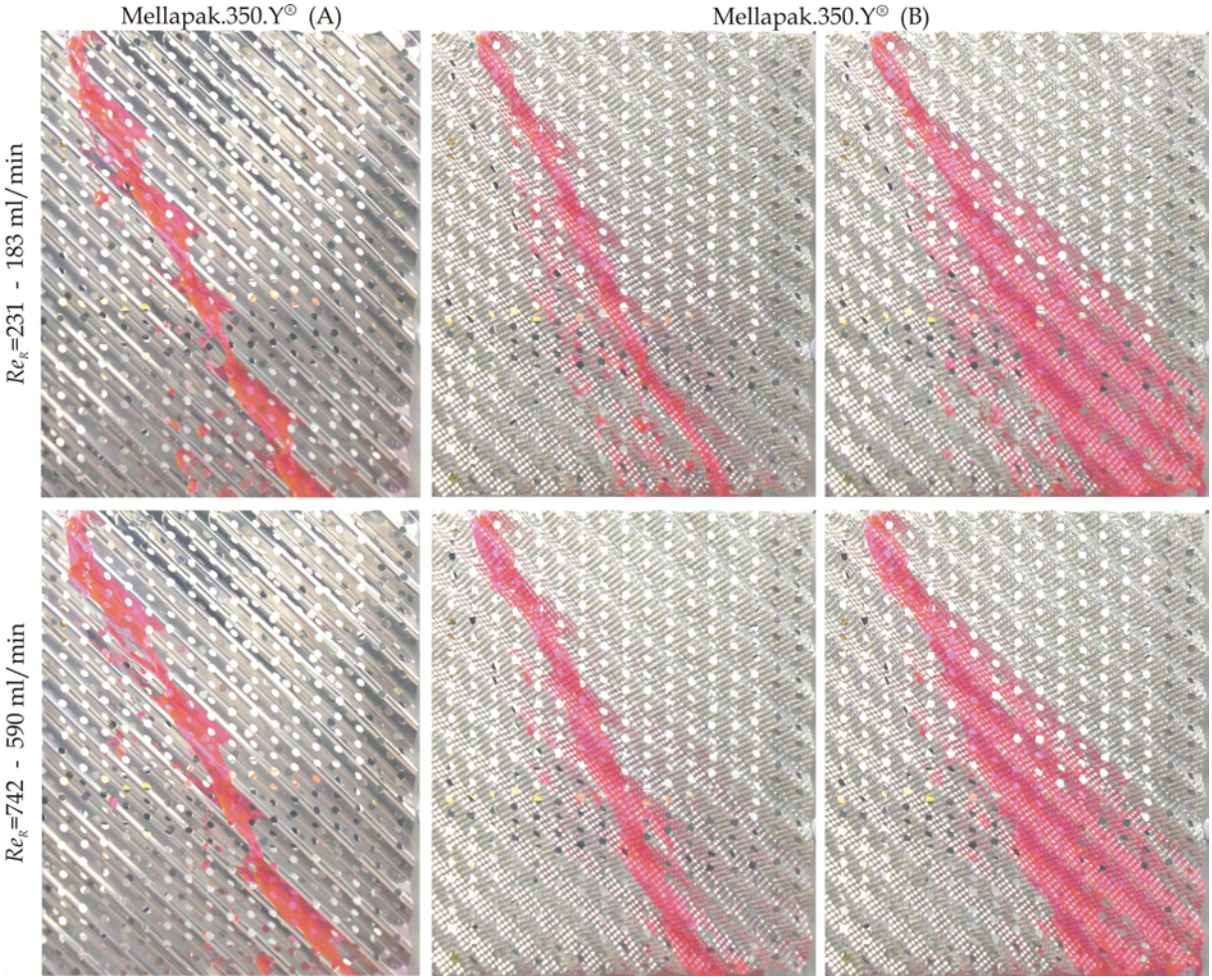

Abbildung 5.44.: Einfluss der Mikrostrukturen sowie der Vorbenetzung auf die Flüssigkeitsausbreitung von 45%-iger Wasser-Glyzerin-Lösung.

krostrukturen am System 45 Gew.-% Glyzerin für zwei Flüssigbelastungen untersucht. Bei dem mikrostrukturiertem Blech vom Typ Mellapak.350.Y® (B) erkennt man erneut den positiven Einfluss der Vorbenetzung. Dieser Effekt erscheint hier etwas geringer zu sein als bei dem unge-

lochten Blech in Abb.5.43, allerdings ist zu beachten, dass die Rückseite der perforierten Bleche ebenfalls benetzt sind. Bei dem glatten Blech vom Typ Mellapak.350.Y® (A) führt eine Vorbenetzung beziehungsweise eine kurzzeitige Erhöhung des Volumenstroms zu keiner bemerkenswerten Änderung. In diesem Fall wird die Benetzung nur bei hohem Volumenstrom verbessert; nach Reduktion auf den kleineren Wert bleiben zum Teil größere Tropfen an den vorher benetzten Stellen haften, aber die Rinnsalbreite bleibt schließlich nahezu unverändert.
Als weitere Beobachtung bleibt festzuhalten, dass bei der Wasserströmung auf Mellapak.350.Y® (A) bei $Re_R = 742$ analog zur glatten Platte eine chaotische Rinnsalströmung vorliegt, so dass abwechselnd verschiedene Kanäle benetzt werden. Bei gleichem Stoffsystem und gleicher Re_R-Zahl wird die Flüssigkeit bei Mellapak.350.Y® (B) deutlich stabilisiert und läuft in festen Bahnen entlang der Mikrostrukturierung. Ebenfalls kann man in diesem Fall beobachten, dass der Film etwas flacher sowie breiter abrieselt. Die Form eines schmalen und relativ hohen Rinnsals bei glatter Makrostruktur wird also gegen die Form einer annähernd geschlossenen Filmströmung bei mikrostrukturierter Makrostruktur getauscht. Dieser beobachtete Effekt lässt sich jedoch mit der verwendeten, sehr einfachen Digital-Kamera nicht darstellen.

Fazit Mikrostrukturen können in gewissen Belastungsbereichen in Abhängigkeit der Topographiedimension die Benetzung verbessern, d.h. für eine bessere Flüssigkeitsverteilung sorgen. Diese Tatsache kann sowohl an der geneigten Platte als auch am makrostrukturiertem Blech beobachtet werden. Für eine tiefergehende wissenschaftliche Bewertung sind jedoch weitere Messungen notwendig bei denen die Wirkweisen von Volumenstrom, Viskosität, Oberflächenspannung und Mikrostrukturgröße quantitativ zum Beispiel durch Filmdicken- und Flüssigkeitsverteilungsmessungen erfasst werden.
Eine wichtige Erkenntnis der bisherigen Untersuchungen ist hervorzuheben: Der größte positive Effekt kann durch eine vorausgegangene vollständige Benetzung (zum Beispiel durch Anfahren mit sehr hohem Volumenstrom und anschließendem Einstellen des kleineren Sollwerts) erreicht werden. Dieser Effekt konnte jedoch nur bei mikrostrukturierten Oberflächen, nicht aber bei glatten Oberflächen beobachtet werden. Demnach kann man folgern, dass bei dem Betrieb technischer Packungskolonnen (inklusive mikrostrukturierter trennwirksamer Einbauten) ein höherer Benetzungsgrad erzielt wird, wenn die beschriebene Vorbenetzung beim Anfahren von Kolonnen eingestellt wird. Die bessere Benetzung führt dann zu größeren Stoffaustauschflächen, womit die Trennleistung des Apparates im Allgemeinen deutlich gesteigert werden kann.
Somit können die Aussagen von Repke et. al (2011), dass bereits anhand einfacher Überstromversuche an geneigten Platten wertvolle Rückschlüsse auf den Betrieb von industriellen Packungskolonnen gezogen werden können, beispielhaft bestätigt werden.

Ein weiteres wichtiges Ergebnis dieser Benetzungstests an geneigten, mikrostrukturierten Platten sowie an mikro- und makrostrukturierten Packungsblechen ist zum einen die qualitative Übertragbarkeit dieser Untersuchungen untereinander und zum anderen, dass die Strömungsvorgänge bei komplexen Geometrien durchaus vergleichbar mit denen an der einfachen Platte sind. Dies lässt den Schluss zu, dass obige Detailbetrachtungen zur Wirkweise von Mikrostruk-

turen auf Stofftransport und Fluiddynamik im Rahmen der Hauptuntersuchungen an geneigten, vollständig benetzten Platten übertragbar und damit von großem Nutzen für reale Anwendungen von Hochleistungspackungen sind.

Die in Abb.5.37 dargestellte Methodik zur Skalenübertragung von einfacher Platte zur komplexen Kolonne erscheint langfristig betrachtet als zielführend, wenn vorhandene leistungsfähige Messverfahren auf kleinen Skalen angewendet und daran angepasste Übertragungsmodelle entwickelt werden.

6. Zusammenfassung und Ausblick

Zusammenfassung Im Rahmen dieser Arbeit ist es gelungen den Einfluss von Mikrostrukturen auf den flüssigkeitsseitigen Stofftransport bei Rieselfilmströmungen im praxisnahen Betriebsbereich technischer Kolonnen experimentell zu bestimmen. Hierzu sind die Prozessparameter Gas- und Flüssigbelastung sowie Flüssigkeitsviskosität und Topographie der Mikrostrukturen systematisch variiert worden, um ein weites Anwendungsspektrum abzudecken. Mit Hilfe von Strömungsmessungen können die Stofftransportergebnisse schließlich qualitativ richtig erklärt sowie neue Strömungsphänomene identifiziert werden.

In einem ersten Schritt musste zunächst ein geeignetes Stoffsystem ausgewählt sowie ein neues Messsystem entwickelt und aufgebaut werden, um sowohl Stofftransport- als auch Strömungsmessungen unter gleichen Bedingungen durchführen zu können. Für die Auslegung präziser Messmethoden sowie für die wissenschaftliche Auswertung der Messergebnisse sind diverse Stoffeigenschaften experimentell ermittelt sowie aus Literaturdaten gewonnen beziehungsweise abgeleitet worden. Das so entwickelte Messsystem basiert auf der CO_2-Absorption in verschieden viskose Silikonöle und erweist sich als geeignet, um den Stofftransporteinfluss von Mikrostrukturen sowie von Gasgegenstrom bei der Fallfilmabsorption mit hinreichender Genauigkeit zu bestimmen. Die Messunsicherheiten liegen bei 3-6%, was im Allgemeinen unterhalb des Stofftransporteinflusses von Mikrostrukturen liegt. Für die CO_2-Absorption in Rieselfilmströmungen auf einer glatten Oberfläche wurde eine neue Stofftransportkorrelation abgeleitet mit der es möglich ist die vorliegenden Ergebnisse für die drei untersuchten Silikonöle mit einer Gleichung zu beschreiben, so dass schließlich eine Interpolation für andere Silikonöle mit $1\ mm^2/s < \nu < 10\ mm^2/s$ gegeben ist. Dabei ist hervorzuheben, dass hierzu lediglich eine dimensionslose, stoffwertabhängige Kennzahl ($Fi^{-0,25}$) zur Erweiterung der herkömmlichen Stofftransportkorrelationen mit $Sh = a\ Re^b\ Sc^{0,5}$ herangezogen werden muss, so dass die neue Korrelation weiterhin einen halb-empirischen Charakter beibehält.

Schließlich ist experimentell nachgewiesen worden, dass aufgrund von mikrostrukturierten Oberflächen der flüssigkeitsseitige Stofftransport unabhängig von dem Benetzungsverhalten (d.h. bei vollständiger Benetzung) gegenüber einer glatten Oberfläche signifikant gesteigert werden kann. Weiterhin ist für das verwendete Stoffsystem der Einfluss von Mikrostrukturen von größerer Bedeutung als der des Gasgegenstroms unterhalb des Staupunktes. Für kleine Viskositäten von $1\ mm^2/s$ ist der Mikrostruktureinfluss mit bis zu 90% (k_LA)-Steigerung am größten und für hohe Viskositäten von $10\ mm^2/s$ können noch um bis zu 35% größere (k_LA)-Werte im Vergleich zur glatten Platte erzielt werden. In diesem Zusammenhang kann man aus der Messung der Phasengrenzflächen mittels LIF-Messungen ableiten, dass für kleine Viskositäten eine 75%-ige

k_L-Steigerung sowie für hohe Viskositäten eine 30%-ige k_L-Steigerung erreicht wird. Die flüssigkeitsseitige Stofftransportlimitierung beziehungsweise der Stofftransportwiderstand kann somit mittels Mikrostrukturen im praxisnahen Betriebsbereich signifikant reduziert werden.

Global betrachtet ergibt sich der Trend, dass mit steigender *Re*-Zahl das Potential der Mikrostrukturen zur Stofftransportintensivierung ebenfalls ansteigt. Diese Schlussfolgerung lässt sich sowohl aus eigenen Messungen im laminaren bis stabil welligen Strömungsbereich als auch aus den Messungen von Davies und Warner [1969] im turbulenten Strömungsbereich ableiten. Ein wesentlicher Aspekt ist jedoch hierbei, dass zwischen *Re*-Zahl und Strukturdesign kein einfacher beziehungsweise monotoner Zusammenhang besteht. Es ergeben sich in der vorliegenden Arbeit sowie bei Davies und Warner [1969] jeweils lokale Extrema in Abhängigkeit von *Re*-Zahl und Mikrostrukturdesign.
Weiterhin kann die fluiddynamisch basierte Heuristik von Zhao und Cerro [1992], welche aussagt, dass für 2d-Mikrostrukturen der Bereich mit $0{,}1 \leq \delta^* \leq 1$ für praktische Anwendungen von besonderem Interesse ist, anhand von Stofftransportmessungen in dieser Arbeit grundsätzlich bestätigt werden. Allerdings kann nachgewiesen werden, dass auch für 2d-Mikrostrukturen mit $\delta^* \leq 4{,}5$ eine relevante Stofftransportintensivierung auftritt. Zudem ergeben sich für 3d-Mikrostrukturen nicht zwangsläufig monotone Trends für $0{,}1 \leq \delta^* \leq 1$ und es können neben Stofftransportvorteilen auch Nachteile gegenüber einer glatten Oberfläche entstehen, wenn 3d-Mikrostrukturen eingesetzt werden.
Schließlich lässt sich für ein optimales Mikrostrukturdesign keine allgemein gültige *Re*-δ^*-Heuristik bei veränderlicher Viskosität ableiten. Vielmehr belegen die unterschiedlichen Strömungsmessungen zur Fluidverteilung, Wellendynamik, Verweilzeit sowie von lokalen 2d-Geschwindigkeitsfeldern, dass es zu einer komplexen Interaktion verschiedener Effekte kommen kann. Anhand dieser Effekte lassen sich die Stofftransportergebnisse im Allgemeinen qualitativ sehr gut erklären, allerdings können die quantitativen Zusammenhänge nicht abschließend erfasst werden. Hierzu wären weitere Messungen notwendig, siehe Ausblick. Insgesamt bleibt festzuhalten, dass in weiteren Untersuchungen dreidimensionale Strömungssimulationen notwendig sind, um allgemeingültige Designkriterien für Mikrostrukturen zur Stofftransportintensivierung festzulegen.

Mit Hinblick auf die Übertragbarkeit der vorliegenden Ergebnisse bei vollständiger Benetzung einer geneigten Platte sind zudem weitere Tests zur Benetzung an der Plattengeometrie sowie an makrostrukturierten Packungsblechen durchgeführt worden. Diese Ergebnisse zeigen, dass grundsätzlich eine Übertragbarkeit von der geneigten Platte auf ein makrostrukturiertes Packungsblech gegeben ist. Hierbei sind die bobachteten Strömungscharakteristika prinzipiell gleich beziehungsweise liegt insbesondere bei mikrostrukturierten Materialien eher eine Filmströmung als eine Rinnsalströmung vor.
Weiterhin zeigen die Benetzungstests, dass aufgrund von Vorbenetzung eine deutlich verbesserte Flüssigkeitsverteilung und damit eine höhere Phasengrenzfläche erreicht werden kann, wenn

3d-Mikrostrukturen eingesetzt werden. Je nach Prozessparameter kann somit mittels adäquaten Mikrostrukturdesigns die Effizienz von strukturierten Packungen weiter gesteigert werden.

Ausblick Mit Hilfe bisheriger Untersuchungen ist es gelungen den Mikrostruktureinfluss auf den flüssigkeitsseitigen Stofftransport prozesswertabhängig zu bewerten sowie die fluiddynamischen Ursachen qualitativ zuzuordnen. Für die Ermittlung der quantitativen Abhängigkeiten wären jedoch weitere Messungen notwendig, welche nach Möglichkeit mit computerbasierten Strömungssimulationen zu koppeln sind. Als messtechnische Option kommt zum einen die Bestimmung der Verweilzeitverteilung in Frage, um quantitative Zusammenhänge zum Stofftransport herzustellen. Zum anderen erscheinen die Optionen, lokale Stofftransportmessungen (vergleiche Schagen und Modigell [2005]) sowie dreidimensionale Strömungsmessungen (zum Beispiel mittels Stereo-μPIV) durchzuführen, als besonders zielführend. Damit könnten im Gegensatz zur integralen Betrachtung über die gesamte Plattenlänge (Verweilzeitmessungen sowie bisherige Stofftransportmessungen) der Mikrostruktureffekt auf den Stofftransport sowie deren Ursache lokal bestimmt werden. Diese lokalen Ergebnisse könnten zur Validierung von Simulationsmodellen genutzt werden, so dass eine computerbasierte Erweiterung auf größere Bereiche sowie schließlich die Optimierung des Mikrostrukturdesigns in Abhängigkeit der Prozessparameter erfolgen kann.

Weiterhin sind im Rahmen der Strömungsmessungen neue Strömungsphänomene (vermutetes Resonanzphänomen sowie spezielle Wellenformen) aufgetreten, die aufgrund der dreidimensionalen Topographie der Mikrostruktur induziert werden. Diese für 3d-Mikrostrukturen vorher unbekannten Effekte sollten weitergehend untersucht werden, wofür sich ebenfalls die oben genannten lokalen Messmethoden eignen würden.

Anhand der Benetzungstests kann, aufgrund der großen phänomenologischen Ähnlichkeit der Filmströmung auf makrostrukturierten Packungsblechen mit der auf Platten, grundsätzlich die Übertragbarkeit der Messungen an einer einfachen Plattengeometrie auf reale makrostrukturierte Packungsbleche angenommen werden. Hierfür sind jedoch detailliertere Messungen notwendig, um die benötigten Übertragungsmodelle zu entwickeln. Diese Messungen könnten zum Beispiel das Ziel haben, die auftretenen Filmdicken- und Phasengrenzflächen zu bestimmen sowie den Stofftransport verschieden mikrostrukturierter Makrostrukturen zu untersuchen.

A. Ergänzungen zu den Stoff- und Materialeigenschaften

A.1. Flüssigkeitsdichte

Die Dichte der eingesetzten Silikonöle wurde im Rahmen der Untersuchungen temperaturabhängig bestimmt und stimmen gut mit Literaturdaten überein, siehe Abbildung A.1. Für

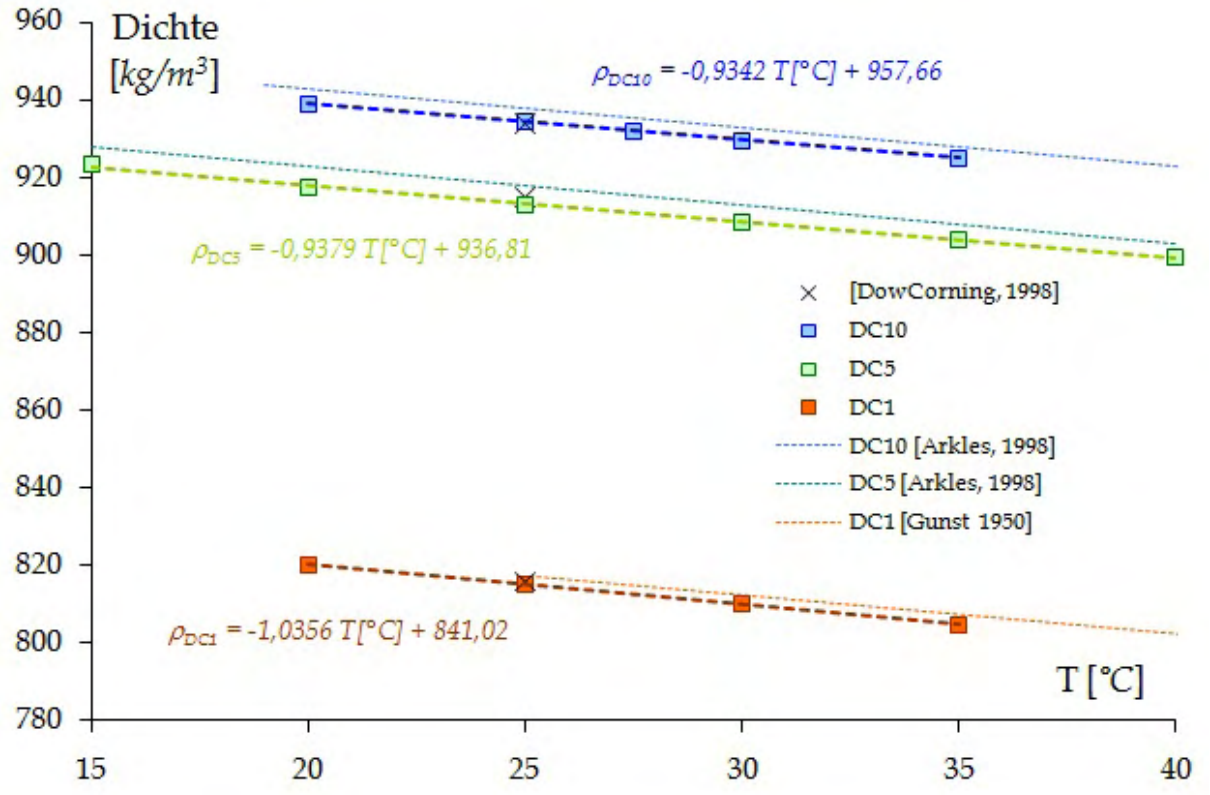

Abbildung A.1.: Literatur und Messdaten für die Temperaturabhängigkeit der Silikonöl-Dichten.

die Berechnung der Dichte innerhalb des Temperaturintervalls 20-35 $°C$ kann mit der Geradengleichung:

$$\rho_f(T) = a - b\ T[°C] \tag{A.1}$$

erfolgen. Die zugehörigen Parameter sind in Abb.A.1 aufgeführt.

A.2. GLE Literaturdaten

Es sind für den Viskositätsbereich 1-10 mm^2/s von Silikonölen bisher keine Gaslöslichkeitsinformationen in der offenen Literatur verfügbar, so dass diese im Rahmen dieser Arbeit gemessen worden sind, siehe Abschnitt 3.2.1. Allerdings sind für das Silikonöl *AK 100* von Wacker mit gleicher Molekülstruktur jedoch höherer Repitiereinheit r und somit höherer Viskosität (100 mm^2/s) Gaslöslichkeitsmessungen veröffentlicht worden, siehe Abbildung A.2. Aus Anfragen beim Her-

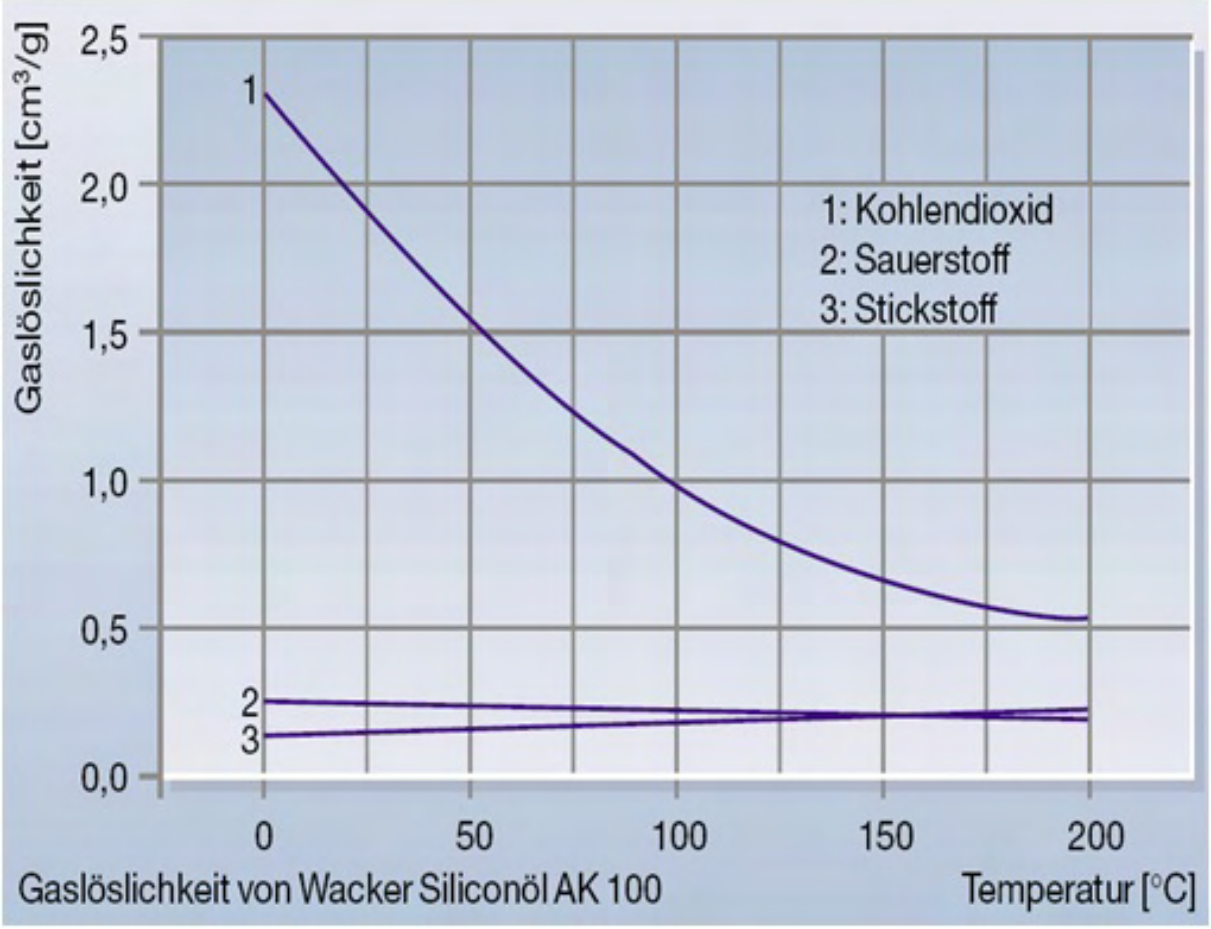

Abbildung A.2.: GLE-Daten für das Methylsiloxan AK 100 von Wacker bei Umgebungsdruck aus [Wacker-Chemie, 2001]

steller geht hervor, dass diesen GLE-Messdaten eine isobare Messmethode bei Umgebungsdruck zugrunde liegen, jedoch für hohe Genauigkeiten der Absolutwerte nicht garantiert werden kann. Dennoch kann man aus Abb.A.2 ablesen, dass eine hohe Selektivität von CO_2 gegenüber den Luftbestandteilen N_2 und O_2 analog zu eigenen Messungen gegeben ist. Weiterhin liegen die so ermittelten Gaslöslichkeiten im Bereich der hier ermittelten Löslichkeiten beziehungsweise etwas unterhalb der Werte für DC10. Somit kann der im Rahmen dieser Arbeit ermittelte Trend der Viskositäts- beziehungsweise Dichteabhängigkeit der Gaslöslichkeiten (kleinere Dichte beziehungsweise kleinere Repitiereinheit führt zu höherer Gleichgewichtsbeladung) bestätigt werden.

A.3. Diffusionskoeffizienten

Für die Sammlung der Diffusionskoeffizienten von CO_2 in nicht wässrigen Lösemitteln in Abb.3.8 sind in den folgenden Tabellen A.1 und A.2 die relevanten Zahlenwerte sowie die Abweichung

Tabelle A.1.: Auflistung der Stoffdaten sowie Originalquellen bezüglich der Diffusionskoeffizienten von CO_2 in nicht wässrigen Lösungsmitteln in Abb.3.5 bei 25 $°C$ und 1,013 bar. Bei abweichender Temperatur wird die zugehörige Viskosität verwendet.

Flüssigkeit	Summenformel	$D_{CO2,LM}$ $[10^{-5}\ cm^2/s]$	η_f $[mPas]$	Autoren	Abweichung zu (3.8) [%]
Hexan	C_6H_{14}	8,20	0,319	Takeuchi et al. [1975]	-16
Heptan	C_7H_{16}	6,03	0,411	Davies et al. [1967]	0
		6,89	0,331	Takeuchi et al. [1975]	-2
		7,24		Khristoforov und Dautov [1987]	-7
Heptanol	$C_7H_{16}O$	1,80	5,85	Dim et al. [1971]	-11
		1,66		Takeuchi et al. [1975]	-3
Butanol	$C_4H_{10}O$	2,55	2,57	Takeuchi et al. [1975]	-5
		2,50		Littel et al. [1991]	-3
Isobutanol	$C_4H_{10}O$	2,13	3,36	Takeuchi et al. [1975]	-1
		2,20		Davies et al. [1967]	-4
Chlorbenzol	$C_5H_{12}O$	2,16	3,87	Takeuchi et al. [1975]	-9
		1,91		Davies et al. [1967]	3
Methylisobutylketon	$C_6H_{12}O$	4,40	0,54	McManamey und Woollen [1973]	20
		6,47 $^{(50\ °C)}$	0,405		-6
Chlorobenzol	C_6H_5Cl	3,93	0,76	Littel et al. [1992]	13
		3,69			21
Isooktan	C_8H_{18}	6,34 $^{(22\ °C)}$	0,51	Chen und Chen [1985]	-14
Oktanol	$C_8H_{18}O$	1,46	7,58	McManamey und Woollen [1973]	-3
		1,46		Dim et al. [1971]	-3
		1,53		Littel et al. [1991]	-6
		1,50		Takeuchi et al. [1975]	-5
Methanol	CH_4O	5,55	0,56	Chen und Chen [1985]	-7
		5,13		Frank et al. [1996]	1
		4,54		Littel et al. [1991]	14
		4,95		Takeuchi et al. [1975]	5

der jeweils gemessenen Diffusionskoeffizienten von dem ermittelten Trend, Gleichung (3.8), aufgeführt.

Die Abweichungen bezüglich der Messwerte verschiedener Autoren für eine Stoffpaarung können sogar bis circa 20% voneinander abweichen. Die größte Abweichung der viskositätsabhängigen

Trendfunktion in Gleichung (3.8) liegt bei 26% und Mittel weichen die aufgeführten Messdaten um 8% von der genannten Trendfunktion ab.

Tabelle A.2.: Fortsetzung der Tabelle A.1.

Flüssigkeit	Summenformel	$D_{CO2,LM}$ $[10^{-5}\ cm^2/s]$	η_f $[mPas]$	Autoren	Abweichung zu (3.8) [%]
Ethanol	C_2H_6O	3,42	1,08	Davies et al. [1967]	9
		4,11		Snijder et al. [1995]	-9
		4,04		Takeuchi et al. [1975]	-8
		3,46		Dim et al. [1971]	8
		3,88		Won et al. [1981]	-4
		3,86		Littel et al. [1991]	-3
Propanol	C_3H_8O	3,06	1,94	Littel et al. [1991]	-9
Decahydro-Naphtalin	$C_{10}H_{18}$	2,33	2,42	McManamey und	7
		3,25 $^{(50\ °C)}$	1,392	Woollen [1973]	1
Tetradekan	$C_{14}H_{30}$	2,95	2,04	McManamey und	-8
		3,96 $^{(50\ °C)}$	1,293	Woollen [1973]	-14
Benzol	C_6H_6	4,46	0,599	Takeuchi et al. [1975]	12
Toluol	C_7H_8	6,69 $^{(50\ °C)}$	0,425	McManamey und	14
		4,60		Woollen [1973]	-11
		4,89	0,552	Snijder et al. [1995]	7
		4,33		Takeuchi	21
		4,61		et al. [1975]	13
Xylene	C_8H_{10}	4,37	0,757	Takeuchi et al. 1975	2
Kerosine		2,50	1,8		16
Gas Öl BP200-300		1,95	3,9		1
Gas Öl BP300-400		0,728	26,5	Davies et al. [1967]	4
Destillat BP300-400		0,694	19,7		26
Fluorokarbon FC75	$C_8F_{16}O$	3,36	1,36	McManamey und Woollen [1973]	-1

A.4. Kontaktwinkel bei unterschiedlichen Systemen

In Ergänzung zu Abschnitt 3.2.4 werden hier beispielhaft experimentelle Werte für den Kontaktwinkel verschiedener Flüssigkeiten auf unterschiedlichen Oberflächen in Abbildung A.3 wiedergegeben. Hierin werden Messwerte an ebenen Platten mit Literaturwerten verglichen (rechts)

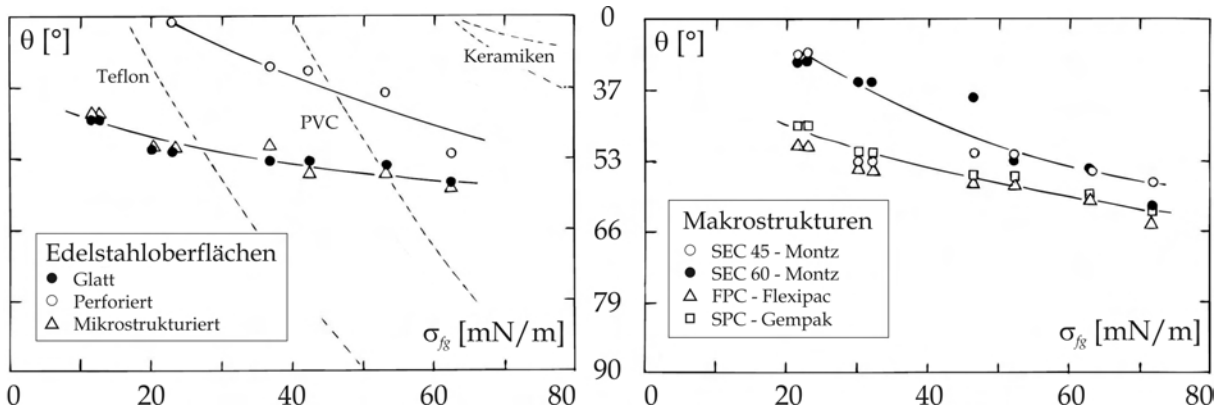

Abbildung A.3.: Kontaktwinkel θ (Messpunkte entsprechen Fortschreitwinkel) verschiedener Oberflächen und Flüssigkeiten als Funktion der Oberflächenspannung σ_{fg} nach Nicolaiewsky und Fair [1999].

sowie Messwerte an unterschiedlich mikrostrukturierten Makrostrukturen aufgetragen (Spezifikationen sind Nicolaiewsky und Fair [1999] zu entnehmen). Die mit Perforierungen (Durchmesser 0,235 mm) versehene Oberfläche in Abb.A.3 links zeigt den größten, für die Benetzung positiven Einfluss; jedoch werden diese Ergebnisse von Nicolaiewsky und Fair [1999] für diesen Spezialfall aufgrund der Messmethode als fragwürdig bezeichnet und sollten daher nicht übertragen werden. Interessant ist der Einfluss des Oberflächenmaterials bei vergleichbarer Oberflächenspannung und gibt eine gute Übersicht typischer Werte bzw. Materialabhängigkeiten.
Aus dem Vergleich beider Diagramme in Abb.A.3 kann geschlossen werden, dass der Zusammenhang zwischen Oberflächenspannung und Kontaktwinkel nahezu unabhängig davon ist, ob eine Makrostruktur vorliegt oder nicht. Aus Abb.A.3 rechts kann man entnehmen, dass die verwendeten Montz-Texturen (jeweils $P_S = 1{,}65\ mm$, SEC-45 mit $A_S = 0{,}325\ mm$ und SEC-60 mit $A_S = 0{,}4\ mm$) bei kleinen Oberflächenspannungen durchaus für eine signifikante Erniedrigung des Kontaktwinkels sorgen. Analog zu den Aussagen von Paschke [2012] ergeben sich jedoch bei den Texturen Schwierigkeiten bei der Auswertung des Kontaktwinkels, so dass die Aussagekraft durchaus relativiert werden muss und insbesondere für 3d-Strukturen Überströmversuche für die Bewertung der Benetzungseigenschaften notwendig sind.

B. Ergänzungen zu der FTIR-Analyse

In Ergänzung zu den Abschnitten 3.2.3 und 4.1.2 werden an dieser Stelle weitere Details bezüglich der FTIR-Analyse dokumentiert.

Erwähnenswert ist hierbei die Bereitstellung von Kalibrierproben für die FTIR-Analyse, dass heißt das Ansetzen von Silikonöl-Lösungen mit definierten CO_2-Beladungen. Hierzu wird zunächst der Aufbau in Abbildung B.1 verwendet, um das vorgelegte Silikonöl mittels Vakuum-

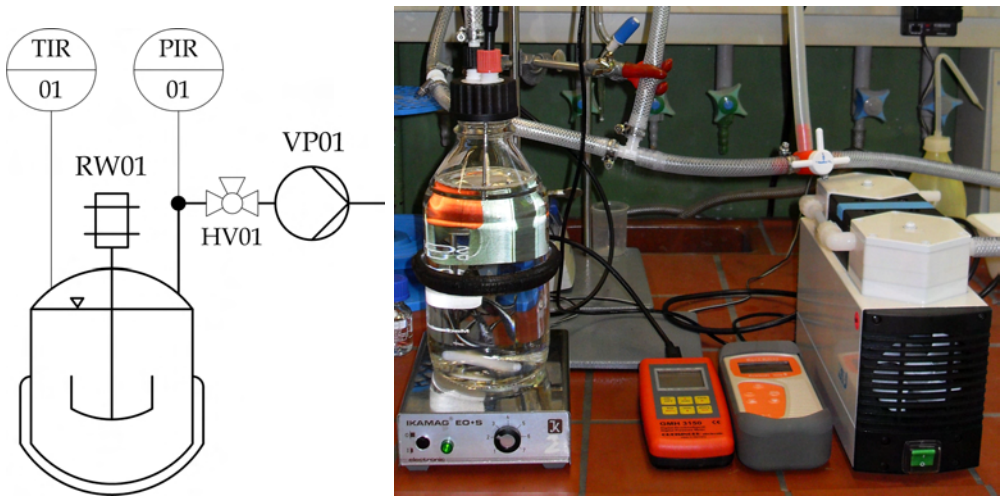

Abbildung B.1.: Teststand zur FTIR-Kalibrierprobenherstellung von Silikonölen und Trockeneis.

pumpe zu entgasen. Nach Bestimmung der Silikonölmasse wird schrittweise Trockeneis (wasserfreies, festes CO_2) unter Rühren sowie Überwachung von Temperatur und Druck zugegeben. Im geschlossenen System lässt sich somit abschätzen welche Beladungen vorliegen beziehungsweise ob ein Gleichgewicht vorliegt. Erneutes Einwiegen ergibt die zugegebene CO_2-Masse, woraus die Beladung der Lösung berechnet werden kann. Alle weiteren Lösungen werden als Verdünnungsreihen dieser Ausgangsmischung angesetzt, wobei nur ein kleiner Messfehler aufgrund vergleichbarer Massen entstehen kann. Der Messfehler der Kalibrierung wird demnach nur durch die erste Einwaage bestimmt, so dass insgesamt eine höhere Genauigkeit bei dem Zusammenhang zwischen Beladung und Extinktionsfläche erreicht werden kann.

Weiterhin ist in Abbildung B.2 der Aufbau der zerlegbaren Küvette skizziert und ein zugehöriges Foto abgebildet. Abgesehen von der zusätzlichen Distanzscheibe sind die eingezeichneten Komponenten verwendet worden.

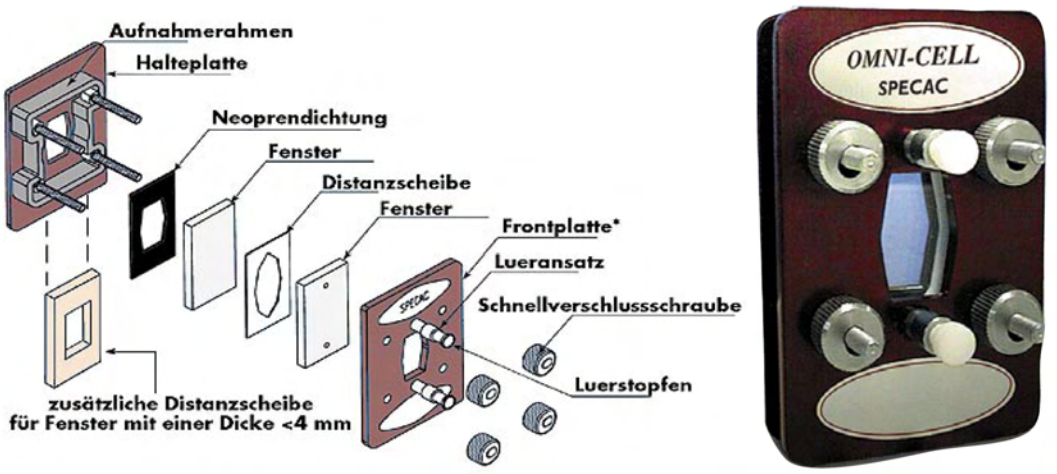

Abbildung B.2.: Zerlegbare Küvette (*Omni-Cell* von Specac) für FTIR-Analysen [LOT-Oriel].

Abschließend zeigt Abbildung B.3 ein Beispiel für die Beladungsanalyse von Ein- und Aus-

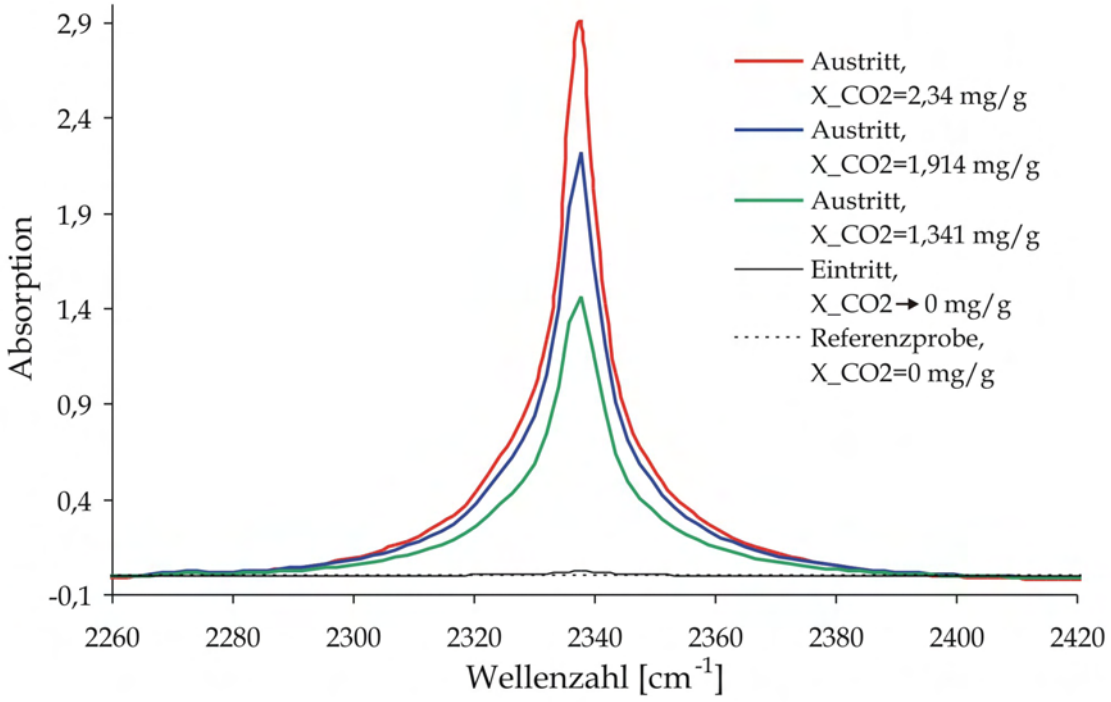

Abbildung B.3.: Relevante Peaks zur Bestimmung der CO_2 Beladung in DC5 von Proben am Ein- und Austritt der Fallfilmsaborption.

trittsproben einer Messreihe für DC5. Man erkennt, dass die unbeladene Referenzprobe und die Probe am Eintritt quasi gleich sind, also die Beladung 0 mg/g aufweisen. Für die beladenen Proben ist eine typische Zunahme der Peakflächen zu beobachten, welche von der Analysesoftware (*IR-Solution*) berechnet und ausgegeben wird.

C. Ergänzungen zu den Stofftransportergebnissen

C.1. Druckabfall aufgrund der Gasabsorption

Wie in 5.1.1 angesprochen tritt über der Rieselfilmströmung aufgrund der CO_2-Absorption ein Druckabfall auf. Dieser wird im Folgenden mit Hilfe des Gesetzes idealer Gase abgeschätzt. Bilanziert man den isochoren Gasraum (Änderung der Filmdicke wird vernachlässigt) oberhalb des Fallfilms so ergibt sich unter Annahme der Isothermie eine Druckänderung aus der übergehenden Gasmenge:

$$\Delta p_{abs} = \Delta m_{CO2} \, \frac{R \, T}{\widetilde{M}_{CO2} \, V_g} \tag{C.1}$$

Das Gasvolumen V_g ergibt sich aus den Messzellenabmaßen mit $V_g = 0{,}3 \cdot 0{,}1 \cdot 0{,}011 \; m^3$ und die gelöste CO_2-Menge Δm_{CO2} entspricht dem Produkt aus Beladung $X_{CO2,aus}$ und Flüssigkeitsmasse m_f:

$$\Delta m_{CO2} = X_{CO2,aus} \; m_f = X_{CO2,aus} \; \rho_f \; B \; L \; \delta_N \tag{C.2}$$

Die so ermittelten Ergebnisse des Druckabfalls durch Absorption sind für die in 5.1.1 diskutierten Fälle der Standardeinstellungen für DC5 und DC10 in Tabelle C.1 aufgelistet. Man erkennt, dass trotz größerer absorbierter Gasmengen bei höheren Re-Zahlen aufgrund der dünner werdenden Filme der Druckabfall fast unverändert bleibt beziehungsweise bei maximaler Belastung sogar am niedrigsten ausfällt.

Tabelle C.1.: Abschätzung des Druckabfalls durch CO_2-Absorption nach (C.1) und (C.2). Die angegeben Austrittsbeladungen sind mittels *IR-Methode* aus Messungen an glatter Platte bestimmt worden.

	Re	δ_N $[mm]$	ρ_f $[kg/m^3]$	m_f $[g]$	$X_{CO2,aus}$ $[mg/g]$	Δm_{CO2} $[mg]$	Δp $[mbar]$
	2,4	0,437	930,91	12,2	1,44	17,6	30,4
DC10	5,9	0,588	930,99	16,4	1,10	18,1	31,2
	9,8	0,697	931,05	19,5	0,76	14,8	25,5
	5,6	0,365	910,06	10,0	2,22	22,1	38,2
DC5	10,2	0,445	910,10	12,1	1,85	22,5	38,9
	19,6	0,554	910,02	15,1	1,38	20,9	36,1

C.2. Penetrationstheorie versus Messergebnisse

Mit der Penetrationstheorie lässt sich der flüssigkeitsseitige Stoffübergangskoeffizient mit Gl. (2.18) berechnen, wenn man die Kontaktzeit gleich der mittleren Verweilzeit ($\tau = L/\bar{w}_N$) setzt. Einsetzen in Gl. (2.13) liefert die Austrittsbeladung $X_{CO2,pen}$ in Abhängigkeit der Prozessparameter. Für die drei Silikonöle werden die zugehörigen Rechen- und Messergebnisse mittels *IR-Methode* in Tabelle C.2 gegenübergestellt. Offenbar wird der Stoffübergang mit der Penetrationstheorie zu niedrig berechnet, was sich wiederum mit dem Einfluss der Wellendynamik auf die Stofftransport-Steigerung erklären lässt.

Tabelle C.2.: Gegenüberstellung der abgeschätzten Austrittsbeladungen mittels Penetrationstheorie und der experimentellen Werte bei glatter Platte nach der *IR-Methode*.

	Re	$\dot{V}_f$ $[l/h]$	τ $[s]$	$X_{CO2,eq}$ $[mg/g]$	$\beta_{f,Pen}$ $[m/s]$	$X_{CO2,pen}$ $[mg/g]$	$X_{CO2,aus}$ $[mg/g]$	Relative Abw. [%]
	2,4	8,7	5,45	3,45	$1{,}72 \cdot 10^{-5}$	0,67	1,44	-116,4
DC10	5,9	21,1	3,00	3,45	$2{,}32 \cdot 10^{-5}$	0,39	1,10	-185,6
	9,8	35,2	2,14	3,45	$2{,}75 \cdot 10^{-5}$	0,28	0,76	-172,2
	5,6	10,1	3,91	3,76	$2{,}43 \cdot 10^{-5}$	0,86	2,22	-158,0
DC5	10,2	18,3	2,63	3,76	$2{,}96 \cdot 10^{-5}$	0,60	1,85	-206,9
	19,6	35,4	1,69	3,76	$3{,}69 \cdot 10^{-5}$	0,40	1,38	-244,5
	34,6	12,1	2,00	5,10	$5{,}23 \cdot 10^{-5}$	1,90	2,05	-7,5
DC1	64,1	22,4	1,33	5,10	$6{,}42 \cdot 10^{-5}$	1,36	1,74	-28,2
	99,6	34,7	0,99	5,10	$7{,}42 \cdot 10^{-5}$	1,05	1,44	-37,3

C.3. Volumetrische Stoffübergangskoeffizienten

An dieser Stelle erfolgt die Auflistung der volumetrischen Stoffübergangskoeffizienten, welche aus Messwerten mit Gl. (2.13) berechnet werden. Die sich für die unterschiedlichen Probenentnahmen ergebenen Messwertschwankungen werden in Form von Standardabweichungen in den folgenden Tabellen zusätzlich zu Flüssig- und Gasbelastungen angegeben. In Tabelle C.3 werden die Ergebnisse von DC1 und in Tabelle C.4 die Ergebnisse von DC5 und DC10 bezüglich der Standardeinstellungen angegeben.
Für DC1 wird als maximale Gasbelastung $F = 1{,}6\ Pa^{0,5}$ gewählt, da es bei $F = 2{,}5\ Pa^{0,5}$ bereits zur Tropfenablösung aus der Filmströmung und somit zum Tropfenmitriß (Entrainment) gekommen ist. Für DC5 und DC10 werden Gegenstromversuche mit $F = 1{,}6\ Pa^{0,5}$ und $F = 2{,}5\ Pa^{0,5}$ gefahren, wobei $F = 2{,}5\ Pa^{0,5}$ deshalb als Obergrenze gewählt wurde, weil bei etwa $F > 3\ Pa^{0,5}$ bei glatter Oberfläche der Flüssigkeitsfilm aufgerissen ist. Bei mikrostrukturierten Platten konnte beobachtet werden, dass größere F-Faktoren als bei glatter Oberfläche ohne Aufreißen gefahren werden konnte. Damit liegt für die gesamten Versuche bzgl. der Fallfilmabsorption eine vollständig benetzte Platte vor.

Tabelle C.3.: Volumetrische Stoffübergangskoeffizienten und Standardabweichung der DC1-Messungen.

	F	$(k_LA)_{DC1}$ $[10^{-6}\ m^3/s]$		
	$[Pa^{0,5}]$	$Re \approx 35$	$Re \approx 65$	$Re \approx 100$
Glatt	0,0	$1{,}72 \pm 0{,}05$	$2{,}60 \pm 0{,}22$	$3{,}21 \pm 0{,}13$
	1,6	$1{,}83 \pm 0{,}04$	$2{,}71 \pm 0{,}12$	$3{,}39 \pm 0{,}19$
2d	0,0	$2{,}16 \pm 0{,}04$	$2{,}96 \pm 0{,}19$	$3{,}38 \pm 0{,}15$
	1,6	$2{,}28 \pm 0{,}11$	$3{,}11 \pm 0{,}14$	$3{,}57 \pm 0{,}21$
3d-A	0,0	$2{,}62 \pm 0{,}08$	$3{,}10 \pm 0{,}07$	$3{,}59 \pm 0{,}10$
	1,6	$2{,}71 \pm 0{,}07$	$3{,}35 \pm 0{,}15$	$3{,}60 \pm 0{,}16$
3d-B	0,0	$3{,}05 \pm 0{,}13$	$3{,}78 \pm 0{,}37$	$4{,}22 \pm 0{,}20$
	1,6	$3{,}18 \pm 0{,}13$	$3{,}91 \pm 0{,}16$	$4{,}21 \pm 0{,}17$
3d-C	0,0	$3{,}19 \pm 0{,}09$	$4{,}40 \pm 0{,}18$	$4{,}63 \pm 0{,}10$
	1,6	$3{,}50 \pm 0{,}05$	$4{,}66 \pm 0{,}22$	$4{,}65 \pm 0{,}16$

Tabelle C.4.: Volumetrische Stoffübergangskoeffizienten und Standardabweichung für die DC5- und DC10-Messungen.

	F	$(k_LA)_{DC5}$ $[10^{-6}\ m^3/s]$			$(k_LA)_{DC10}$ $[10^{-6}\ m^3/s]$		
	$[Pa^{0,5}]$	$Re \approx 5{,}5$	$Re \approx 10$	$Re \approx 20$	$Re \approx 2{,}3$	$Re \approx 5{,}8$	$Re \approx 9{,}7$
Glatt	0,0	$2{,}64 \pm 0{,}07$	$3{,}60 \pm 0{,}16$	$4{,}86 \pm 0{,}23$	$1{,}31 \pm 0{,}05$	$2{,}26 \pm 0{,}10$	$3{,}00 \pm 0{,}15$
	1,6	$2{,}77 \pm 0{,}04$	$3{,}83 \pm 0{,}13$	$4{,}87 \pm 0{,}12$	$1{,}39 \pm 0{,}05$	$2{,}37 \pm 0{,}11$	$3{,}30 \pm 0{,}12$
	2,5	$2{,}82 \pm 0{,}14$	$3{,}95 \pm 0{,}20$	$5{,}05 \pm 0{,}23$	$1{,}34 \pm 0{,}07$	$2{,}48 \pm 0{,}10$	$3{,}37 \pm 0{,}16$
2d	0,0	$2{,}55 \pm 0{,}06$	$3{,}43 \pm 0{,}12$	$4{,}65 \pm 0{,}23$	$1{,}25 \pm 0{,}04$	$2{,}33 \pm 0{,}10$	$3{,}11 \pm 0{,}07$
	1,6	$2{,}69 \pm 0{,}15$	$3{,}60 \pm 0{,}17$	$4{,}97 \pm 0{,}23$	$1{,}33 \pm 0{,}02$	$2{,}43 \pm 0{,}09$	$3{,}14 \pm 0{,}06$
	2,5	$2{,}79 \pm 0{,}10$	$3{,}83 \pm 0{,}13$	$5{,}10 \pm 0{,}16$	$1{,}26 \pm 0{,}03$	$2{,}41 \pm 0{,}08$	$3{,}28 \pm 0{,}12$
3d-T	0,0	$2{,}81 \pm 0{,}06$	$3{,}45 \pm 0{,}09$	$4{,}70 \pm 0{,}15$			
3d-A	0,0	$2{,}66 \pm 0{,}12$	$3{,}55 \pm 0{,}12$	$4{,}89 \pm 0{,}28$	$1{,}45 \pm 0{,}02$	$2{,}57 \pm 0{,}05$	$3{,}48 \pm 0{,}09$
	1,6	$2{,}86 \pm 0{,}10$	$3{,}86 \pm 0{,}13$	$5{,}13 \pm 0{,}18$	$1{,}48 \pm 0{,}02$	$2{,}66 \pm 0{,}09$	$3{,}65 \pm 0{,}10$
	2,5	$2{,}91 \pm 0{,}12$	$4{,}14 \pm 0{,}12$	$5{,}45 \pm 0{,}23$	$1{,}47 \pm 0{,}01$	$2{,}69 \pm 0{,}08$	$3{,}76 \pm 0{,}11$
3d-B	0,0	$2{,}92 \pm 0{,}14$	$3{,}42 \pm 0{,}10$	$5{,}20 \pm 0{,}14$	$1{,}54 \pm 0{,}08$	$2{,}64 \pm 0{,}08$	$3{,}39 \pm 0{,}11$
	1,6	$3{,}03 \pm 0{,}05$	$3{,}61 \pm 0{,}06$	$5{,}46 \pm 0{,}25$	$1{,}51 \pm 0{,}04$	$2{,}75 \pm 0{,}10$	$3{,}62 \pm 0{,}17$
	2,5	$3{,}00 \pm 0{,}05$	$3{,}76 \pm 0{,}13$	$5{,}32 \pm 0{,}24$	$1{,}52 \pm 0{,}04$	$2{,}85 \pm 0{,}07$	$3{,}66 \pm 0{,}20$
3d-B*	0,0	$2{,}93 \pm 0{,}12$	$2{,}77 \pm 0{,}08$	$5{,}10 \pm 0{,}14$			
	1,6	$3{,}17 \pm 0{,}08$	$3{,}14 \pm 0{,}10$	$5{,}54 \pm 0{,}19$			
	2,5	$3{,}37 \pm 0{,}15$	$3{,}27 \pm 0{,}04$	$5{,}71 \pm 0{,}07$			
3d-C	0,0	$3{,}12 \pm 0{,}08$	$3{,}98 \pm 0{,}13$	$5{,}59 \pm 0{,}27$	$1{,}50 \pm 0{,}03$	$2{,}75 \pm 0{,}10$	$4{,}04 \pm 0{,}11$
	1,6	$3{,}09 \pm 0{,}09$	$3{,}98 \pm 0{,}16$	$6{,}15 \pm 0{,}21$			
	2,5	$3{,}05 \pm 0{,}12$	$3{,}94 \pm 0{,}10$	$6{,}25 \pm 0{,}27$			

C.4. Standardeinstellungen DC1, DC5 und DC10

In der folgenden Tabelle C.5 werden die Flüssigbelastungen B_f sowie die zugehörigen Re-Zahlen der Standardeinstellungen für die Stofftransportmessungen aufgelistet. Weiterhin sind dort die Nusselt-Filmdicken δ_N und die mittlere Nusselt-Geschwindigkeit $\bar{w}$ angegeben.

Tabelle C.5.: Fluiddynamische Randbedingungen für die Standardeinstellungen bei den Stofftransportmessungen bezüglich der drei eingesetzten Silikonöle. Die angegeben Werte für δ_N und $\bar{w}$ gelten für die glatte Platte nach der Nusselt-Theorie.

Silikonöl	B_f $[m^3/m^2h]$	Re	δ_N $[mm]$	$\bar{w}$ $[cm/s]$
	22	2,4	0,437	5,5
DC10	53	5,9	0,588	10,0
	88	9,8	0,697	14,0
	25	5,6	0,365	7,7
DC5	46	10,2	0,445	11,4
	84	19,6	0,554	17,7
	30	34,6	0,224	15,0
DC1	56	64,1	0,275	22,6
	87	99,6	0,319	30,3

D. Ergänzungen zu den Strömungsmessungen

D.1. Filmdickenmessungen

In Ergänzung zu den Abbildungen 5.17 und 5.20 sind in Abbildung D.1 die Ergebnisse der Filmdickenmessungen bei DC5 auf glatter Platte für den Eintrittsbereich dargestellt.

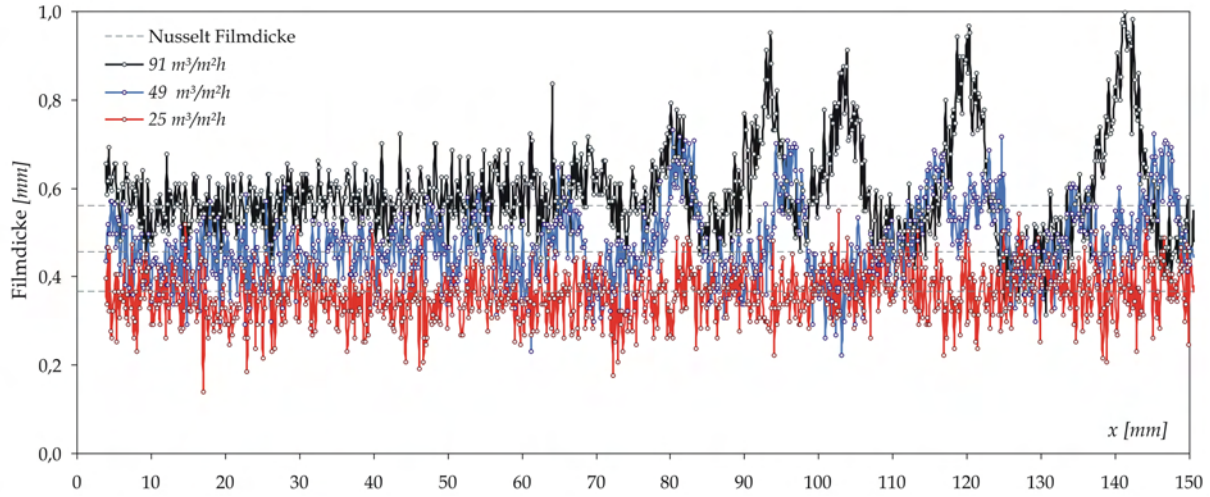

Abbildung D.1.: Filmdickenvergleich für DC5 bei den Standardbelastungen auf glatter Platte.

Zur weiteren Veranschaulichung der relativ starken Wellenaktivität der DC1-Strömungen wird in Ergänzung zu Abb.5.18 in Abbildung D.2 ein Ergebnis der Filmdickenmessungen dargestellt. Man erkennt eine sehr starke Wellendynamik bereits bei kleinen Flüssigbelastungen.

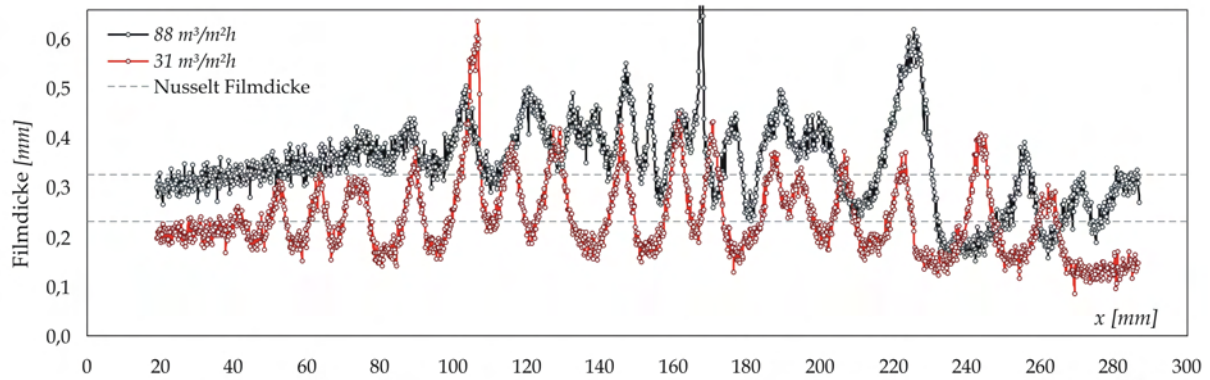

Abbildung D.2.: Filmdickenvergleich für DC1 bei minimaler und maximaler Standardeinstellung auf glatter Platte bestätigt hohe Unregelmäßigkeit der Wellenaktivität von Abb.5.19.

Die folgende Abbildung D.3 veranschaulicht die Periodizität der Filmdickenevolution auf unterschiedlichen 3d-Strukturen bei $B_f = 53\ m^3/m^2h$ während einer DC10-Überströmung in Ergänzung zu Abb.5.22. Gewisse Unregelmäßigkeiten ergeben sich zum einen aus den Messunsicherheiten sowie aufgrund fertigungsgsbedingter Unterschiede der Mikrostrukturen.

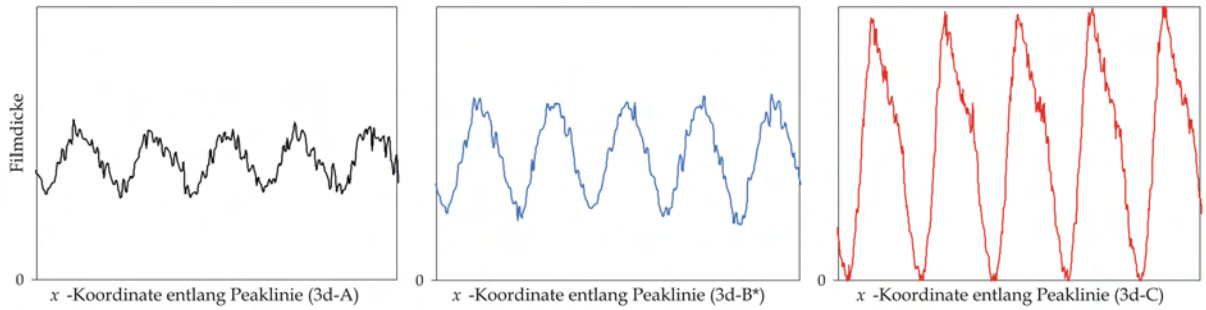

Abbildung D.3.: Filmdickenvergleich analog zu Abb.5.22 für je fünf Perioden bei gleicher Dickenskalierung (DC10, 53 m^3/m^2h).

Zum besseren Verständnis der Strömungsverhältnisse werden in Abbildung D.4 die Achsen gleich skaliert sowie die Schwerkraft g markiert.

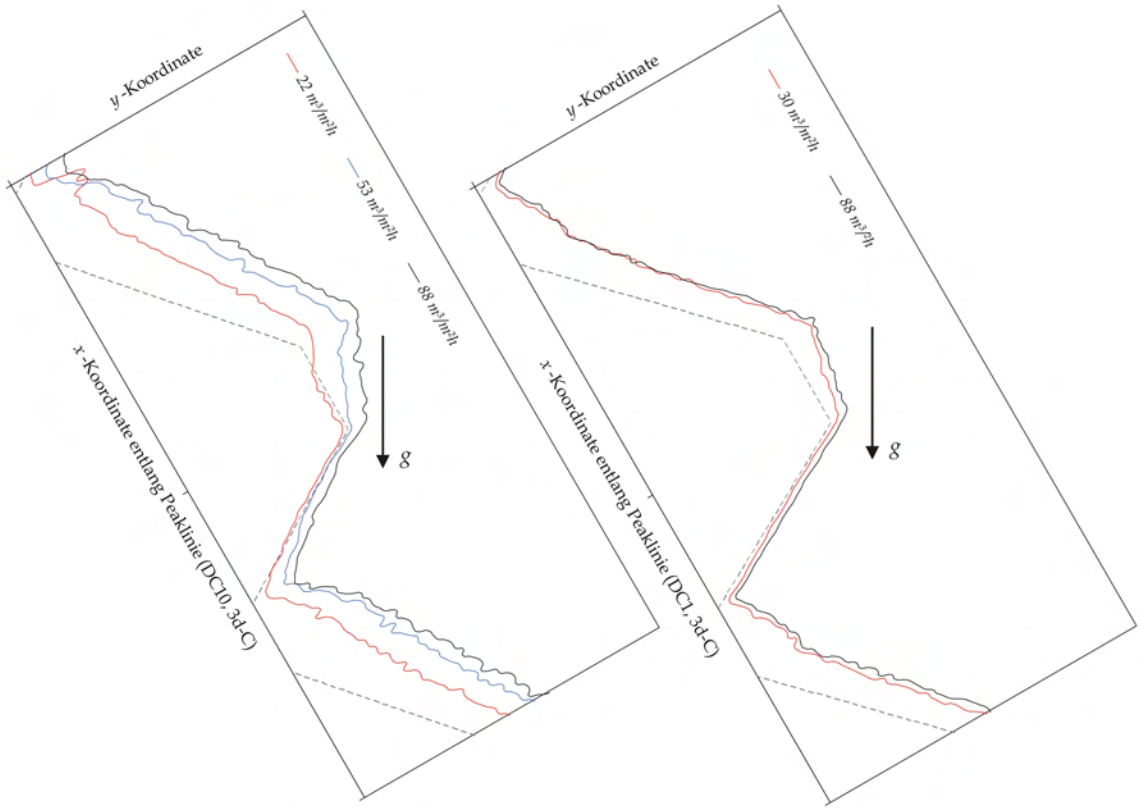

Abbildung D.4.: Filmkonturen der DC1- und DC10-Strömung auf 3d-C-*Peaklinie* als Ausschnitt von Abb.5.24 bei gleichskalierter x- und y-Achse.

D.2. Mögliche Resonanzerscheinung

Wie in Abschnitt 5.2.1 angegeben, ist es möglich, dass für den Typ 3d-B* mit dem System DC1 ab einer gewissen Flüssigbelastung (etwa $B_f > 50 m^3/m^2h$) die Filmströmung einem Resonanzeffekt unterworfen sein könnte. Im Falle der Filmströmung kann man unter Resonanz ein enormes Aufschwingen der Filmdicke verstehen, was zu Deformationen der Filmoberfläche sowie zu Instabilitäten führen kann. Die Vermutung, dass ein solches Ereignis für DC1-3d-B* auftreten kann, begründet sich dadurch, dass für $x =$ 0-10 cm während der Experimente eine sonderbare Filmwölbung beobachtet werden konnte. Die folgenden Abbildungen zeigen sowohl Fotografien (Abb.D.5) als auch LIF-Aufnahmen (Abb.D.6) dieses Strömungsphänomens. Aus den Fo-

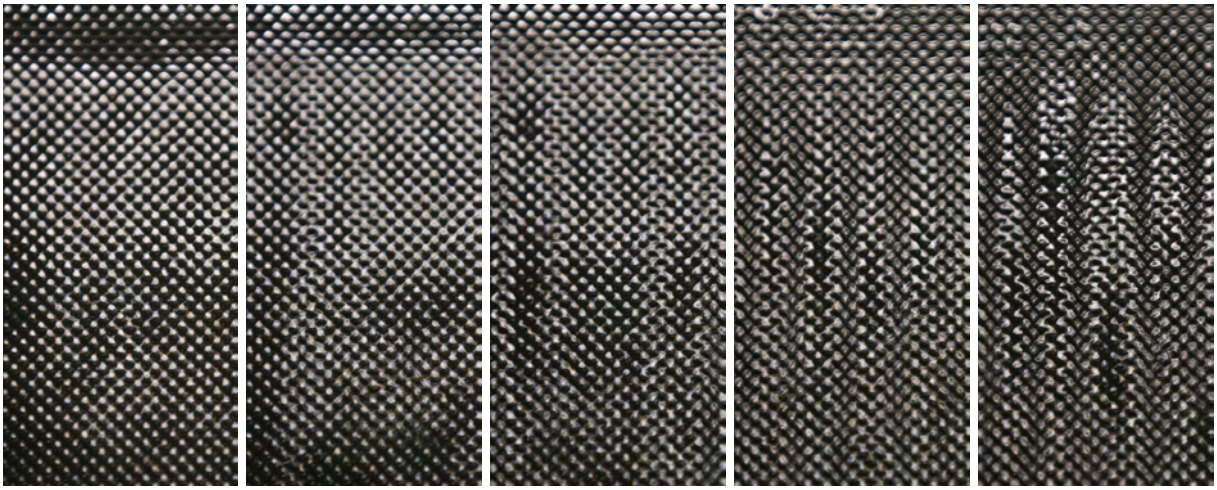

Abbildung D.5.: Fotografien im Einlaufbereich der DC1-Strömung auf der 3d-B*-Struktur bei $B_f =$ 43; 53; 73; 94; 107 m^3/m^2h zeigen eine Zunahme der Filmwölbung mit steigender Flüssigbelastung (Strömung von oben nach unten).

tografien in Abb.D.5 kann man anhand der Lichtverhältnisse Rückschlüsse auf die vorliegende Strömungsform ziehen. So erkennt man zum Beispiel bei den Belastungen $B_f = 43\ m^3/m^2h$ und $B_f = 53\ m^3/m^2h$ noch ein relativ ähnliches Bild im Anfangsbereich sowie bei $B_f = 53\ m^3/m^2h$ erste Anzeichen der Filmaufwölbung in der linken Bildhälfte sowie eine Zunahme von Schlieren in der unteren Bildhälfte. Vergleicht man nun das obere Drittel aller Bilder, so kann mit der Zunahme der Flüssigbelastung eine signifikante Änderung der Strömungsform entnommen werden. Die entstehenden optischen Effekte sind schließlich Resultat einer starken Filmaufwölbung, die während der Experimente beobachtet wurden. Unterhalb des ersten Drittels der Bildausschnitte kann man zum einen die Bildung dicker werdender Bereiche in Streifenform (vergleiche hierzu Abb.D.6) und zum anderen eine zunehmende Verwischung der Schlieren entnehmen.
In Abb.D.6 werden nun etwas schmalere sowie längere Ausschnitte derselben Strömungsverhältnisse anhand von LIF-Aufnahmen illustriert. Dementsprechend sind helleren Bereichen größere Filmdicken zuzuordnen; vereinzelt auftretende weiße Punkte im oberen Bildbereich entstammen Reflexionen am Berg, so dass sich daraus die Position von Berg und Tal in Anlehnung an Abb.3.9 bestimmen lässt. Demnach erkennt man im oberen Bereich eine etwa kreisrunde Umströmung der Strukturspitzen, welche mit steigender Belastung in eine Dreiecksform übergeht. Weiterhin

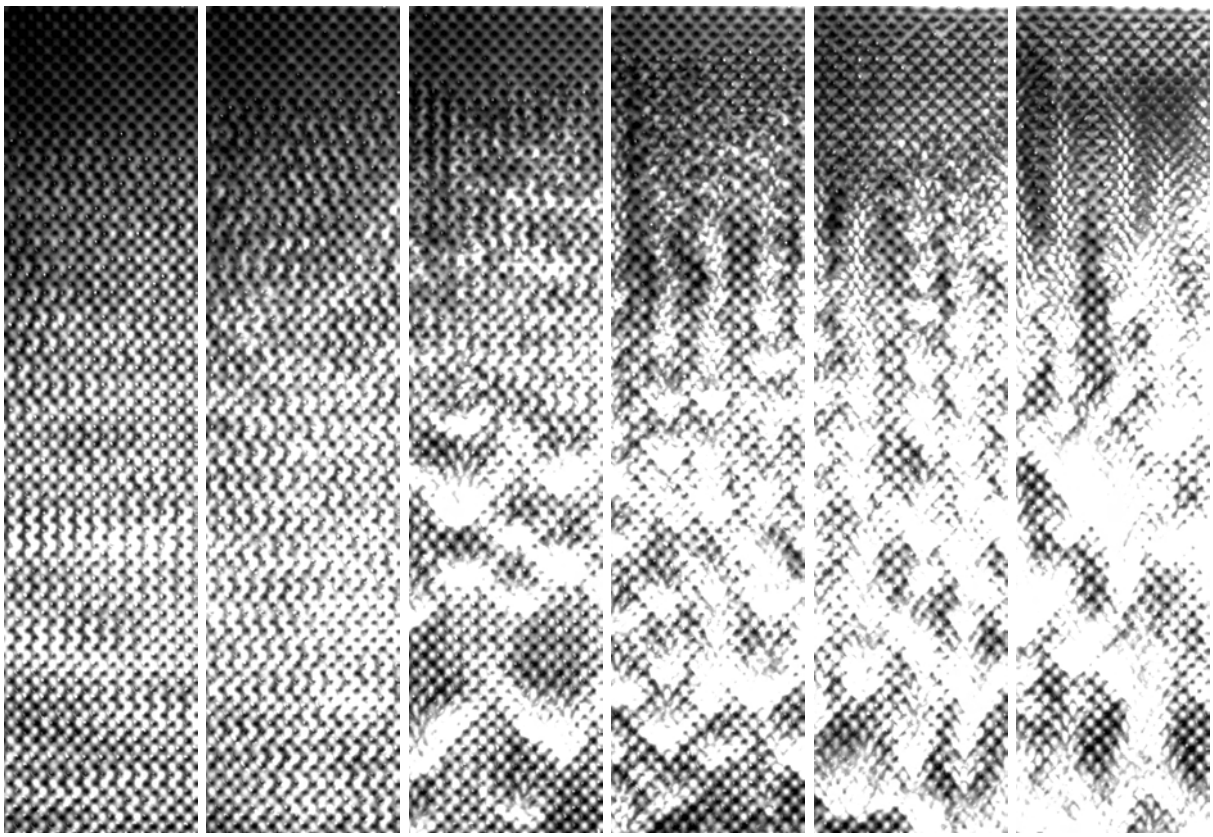

Abbildung D.6.: Ausschnitte von LIF-Aufnahmen der DC1-Strömung auf 3d-B* mit $t_B = 5\ ms$ und $B_f = 30;\ 43;\ 56;\ 76;\ 88;\ 100\ m^3/m^2h$ visualisieren den Strömungswechsel im Einlaufbereich sowie die nachfolgenden Wellenregime (Strömung von oben nach unten).

sind die unterschiedlichen Wellenformationen im unteren Bildbereich ab 56 m^3/m^2h zu erkennen; für $B_f < 56\ m^3/m^2h$ sieht man kaum Wellen beziehungsweise sind diese sehr flach und mit steigender Belastung werden die V-förmigen Wellen schmaler beziehungsweise verwischen diese bei maximaler Belastung. Zur besseren Auflösung beziehungsweise zeitlicher Trennung einzelner Wellen ist eine kürzere Belichtungszeit zu wählen, siehe Abbildung D.7. Insgesamt ist für die nähere fluiddynamische Untersuchung eine leistungsfähigere Kamera (Highspeed-Kamera) mit sehr hohen Bildraten sowie großer Lichtempfindlichkeit bei kleinen Belichtungszeiten notwendig.

In weiteren Untersuchungen konnte am System DC5 und 3d-B* für sehr hohe Belastungen (etwa $B_f > 100\ m^3/m^2h$) ebenfalls eine Filmaufwölbung im Eintrittsbereich beobachtet werden, siehe Abbildung D.8. Vergleicht man diese Beobachtungen mit den Stofftransportergebnissen in Abb.5.14, so fällt auf, dass für hohe Belastungen wieder größere Stofftransport-Vorteile gegenüber der glatten Platte gemessen werden können. Möglicherweise können Resonanzerscheinungen wie vermutet einen positiven Stofftransporteffekt bewirken, eine systematische Untersuchung wäre jedoch vorzugsweise am System DC1-3d-B* vorzunehmen.
Im Rahmen dieser Untersuchungen wurden für die Systempaarung DC1-3d-B* jedoch keine Stofftransportmessungen durchgeführt, was in Folgearbeiten zu erledigen wäre. Man kann jedoch an dieser Stelle festhalten, dass Resonanzphänomene, denen bisher nur für 2d-Mikrostrukturen eine

Oberflächendeformation zugeschrieben werden konnte, bei 3d-Mikrostrukturen ebenfalls auftreten können, wenn die entsprechenden Skalenverhältnisse von Rieselfilm und Mikrostruktur sowie die geeigneten Fließgeschwindigkeiten vorliegen.

D.3. Beispiele zur Wellendynamik

In Ergänzung zu Abschnitt D.2 werden in Abbildung D.7 zusätzliche Wellenbilder bei geringer Belichtungszeit dargestellt. Während bei der kleineren DC1-Belastung in Abb.D.7 die V-förmi-

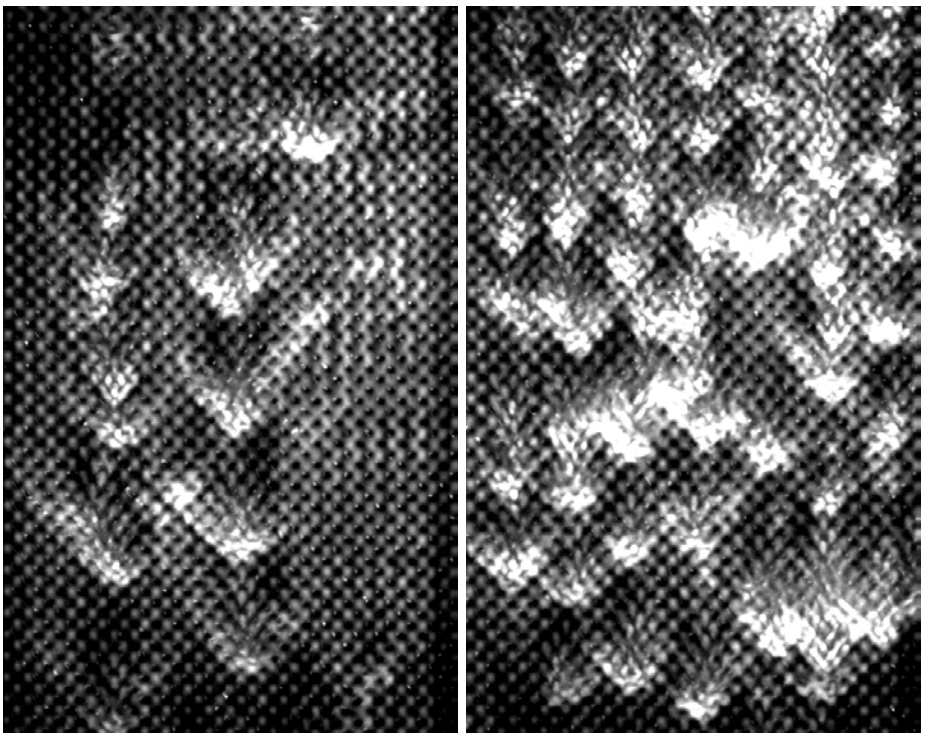

Abbildung D.7.: Jeweils gleich großer Ausschnitt zur Visualisierung der unterschiedlichen Wellenformationen bei DC1 auf 3d-B* für $B_f = 56\ m^3/m^2h$ sowie $B_f = 88\ m^3/m^2h$ mit $t_B = 3\ ms$.

gen Wellen breiter sind beziehungsweise insgesamt stärker zusammenhängen, so bilden sich bei $B_f = 88\ m^3/m^2h$ vermehrt kleinere schuppenartige V-Wellen. Diese neuartigen Wellenformen werden offenbar durch die unterliegenden Mikrostrukturen induziert; der resultierende V-Winkel ergibt sich schließlich aus den Kanalwinkeln zwischen den 3d-Strukturen.

Ein vergleichbares Wellenphänomen wurde bei derselben Oberfläche (3d-B*) sowie DC5 ebenfalls beobachtet, siehe Beispielbilder in Abbildung D.8. Die Momentaufnahmen in Abb.D.8 zeigen, dass sich ab $B_f = 65\ m^3/m^2h$ schuppenartige V-Wellen nach einer gewissen Lauflänge ausbilden können. Bei $B_f = 65\ m^3/m^2h$ nimmt die Größe sowie Dicke der Schuppenwellen weiter zu und in Richtung Plattenende können sich diese Wellen bisweilen vereinen und größere V-Wellen ausbilden. Bei weiterhin steigender Belastung verschwinden die Schuppenwellen gänzlich, so dass im oberen Wellenbereich annähernd parallele Wellen und im unteren Wellenbereich wieder

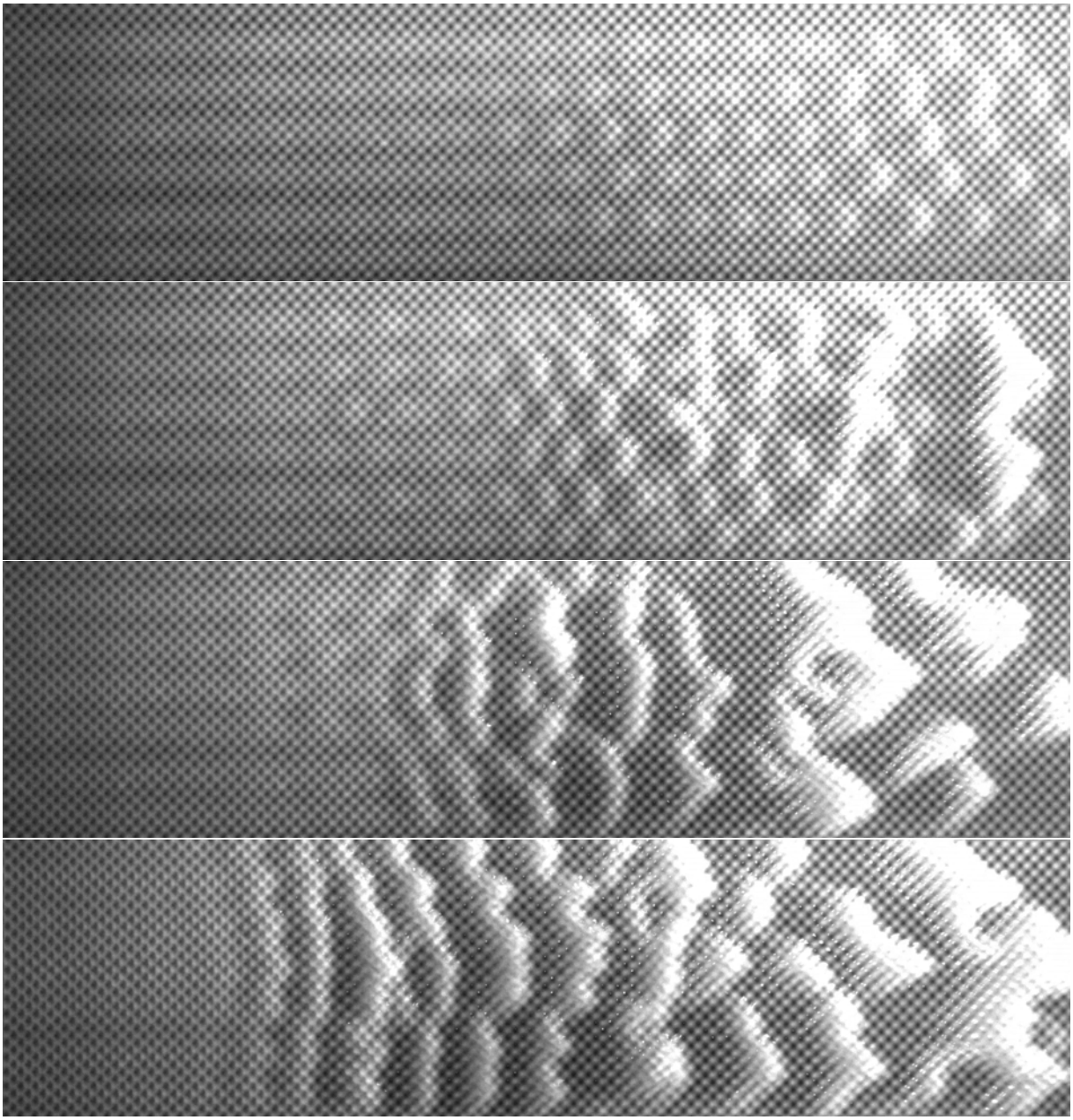

Abbildung D.8.: Jeweils gleich großer Ausschnitt zur Visualisierung der unterschiedlichen Wellenformationen bei DC5 auf 3d-B* für $B_f = 65;\ 77;\ 91;\ 111\ m^3/m^2h$ mit $t_B = 10\ ms$.

großflächige V-Wellen auftreten. Für die beiden höchsten Belastungen ist zudem im wellenfreien Eingangsbereich analog zu Abb.D.6 eine Veränderung der Bergumströmung von kreisrunder Form zur Dreiecksform zu erkennen. Wie bereits in Abschnitt D.2 erwähnt wurde bei hohen Belastungen für $B_f > 100\ m^3/m^2h$ ebenfalls eine Filmwölbung beobachtet und es kann schließlich eine Resonanzerscheinung vermutet werden.

In einem weiteren Beispiel für DC5 erfolgt nun der Vergleich zwischen glatter Oberfläche sowie der 3d-T- und der 3d-A-Mikrostruktur in Abbildung D.9.

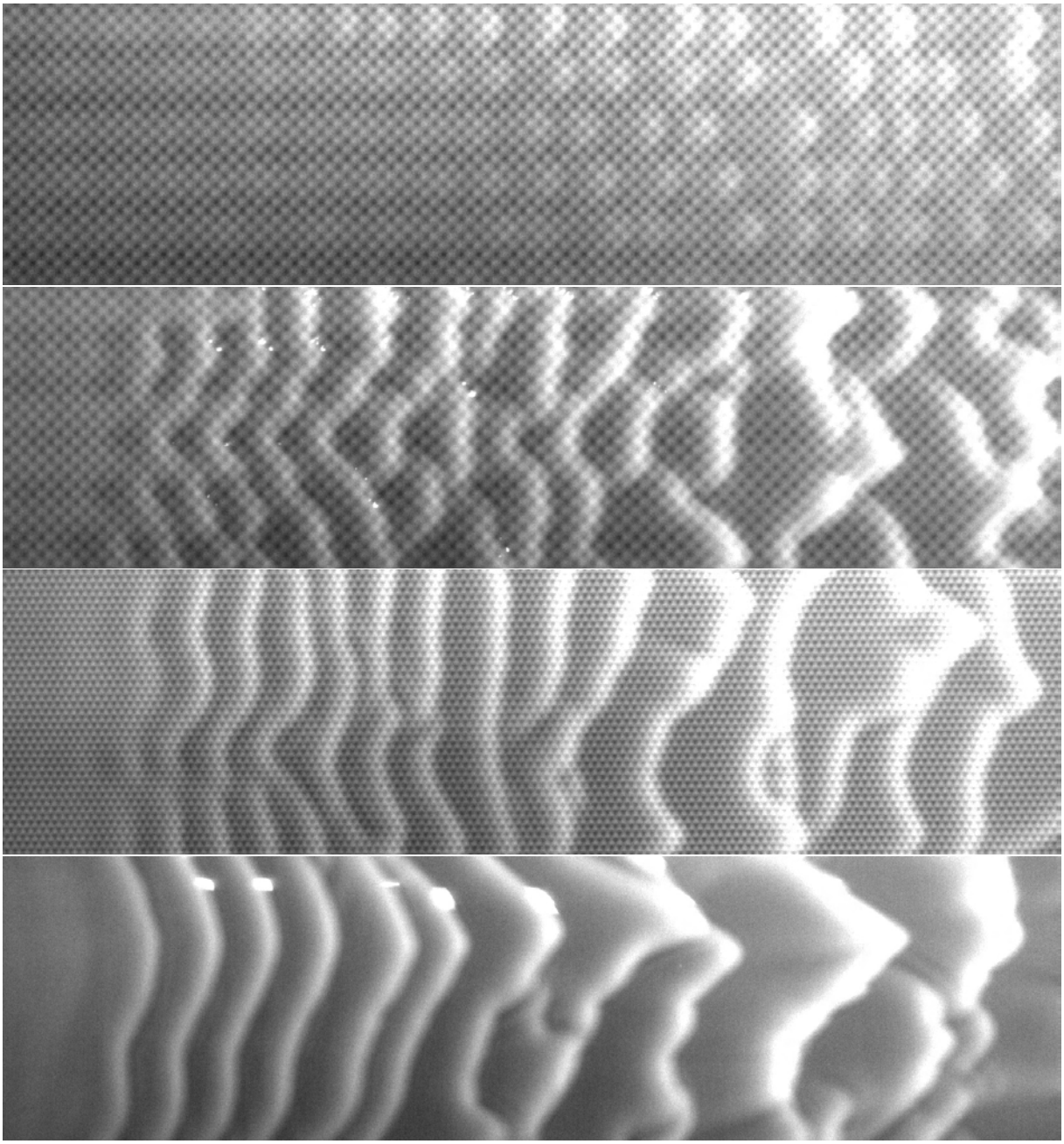

Abbildung D.9.: Visualisierung unterschiedlicher Wellenformationen bei DC5 auf 3d-A mit $B_f = 49;\ 91\ m^3/m^2h$, auf 3d-T mit $B_f = 91\ m^3/m^2h$ sowie auf glatter Oberfläche mit $B_f = 91\ m^3/m^2h$ bei jeweils $t_B = 10\ ms$.

D.4. Geschwindigkeitsmessungen

Zum besseren Verständnis der Filmdickenevolution bei DC10 und 3d-C in Abschnitt 5.2.1 werden im Folgenden Filmgeschwindigkeiten mit der PIV-Methode (in etwa mittlere Filmgeschwindigkeiten) in Abbildung D.10 sowie sehr lokale Geschwindigkeiten mittel μPIV in Abbildung D.11 dargestellt. Aufgrund der geringen *Re*-Zahlen während der DC10-Messungen ergeben sich im Wesentlichen laminare Strömungsverhältnisse, was in relativ regelmäßig erscheinenden, S-förmi-

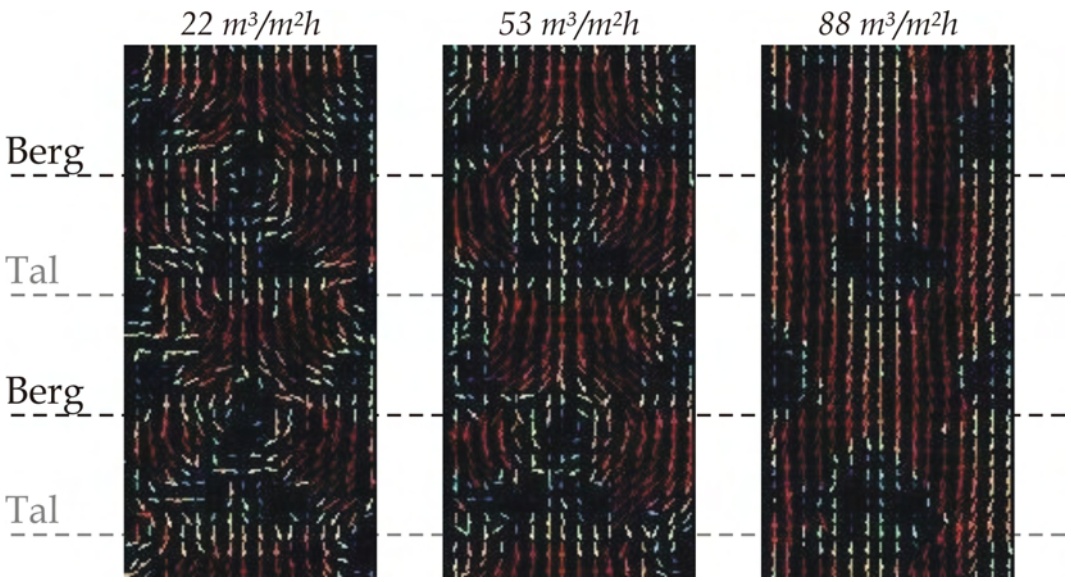

Abbildung D.10.: PIV-Messung am Beispiel DC10-3d-C unter Andeutung der Berg- und Talpositionen.

gen Fluidbahnen resultiert, siehe auch Abb.5.26.
Weiterhin kann mit der Abb.D.11 der Wechsel von Um- und Überströmung der Strukturspitzen

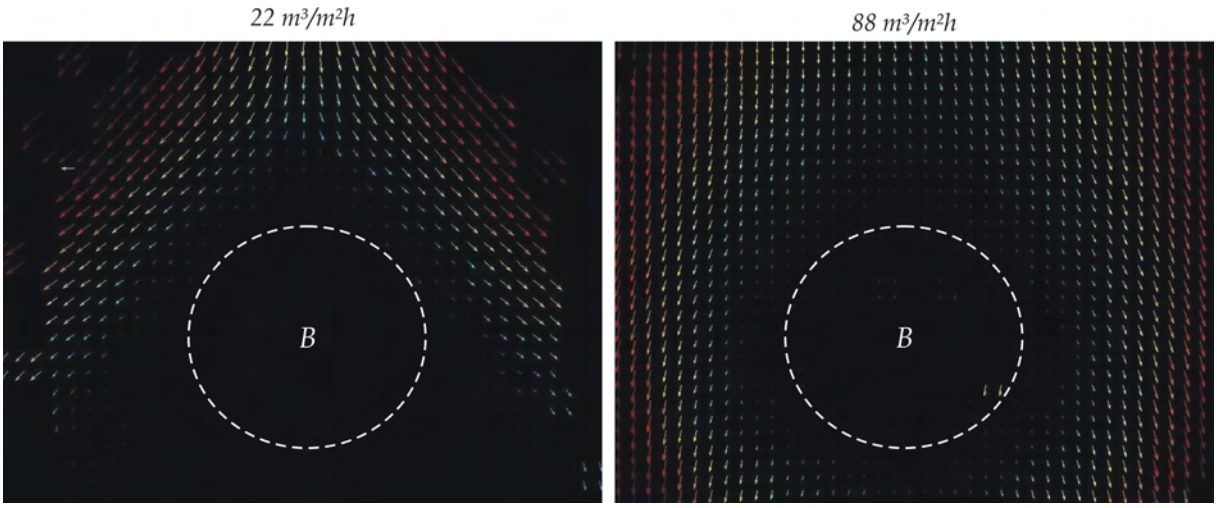

Abbildung D.11.: μPIV-Messung am Beipiel DC10-3d-C in etwa 100 μm unterhalb der Strukturspitze ($\Delta y = -100\ \mu m$), vergleiche Abbildung D.12.

visualisiert werden. Dieser Effekt wird besonders deutlich, wenn man sich zu den verschiedenen Ebenenmessungen des Bildausschnittes in Abb.D.11 die gemittelten Geschwindigkeiten als Profil plottet, siehe Abbildung D.12. Die Höhe $\Delta y = 0\ \mu m$ entspricht hierin dem Niveau der Strukturspitze, so dass das Einsetzen der Überströmung bei 53 m^3/m^2h insbesondere dadurch verdeutlicht wird, dass für 22 m^3/m^2h auf der Ebene der Strukturspitze keine Vektoren mehr ermittelt werden können. Zudem zeigt der Vergleich mit der Nusselt-Lösung bei 88 m^3/m^2h, dass auf dem Berg von 3d-C annähernd gleiche Verhältnisse wie bei glatter Platte vorliegen. Damit kann für DC10 von einer annähernd laminaren Um-/ Überströmung der 3d-C-Struktur

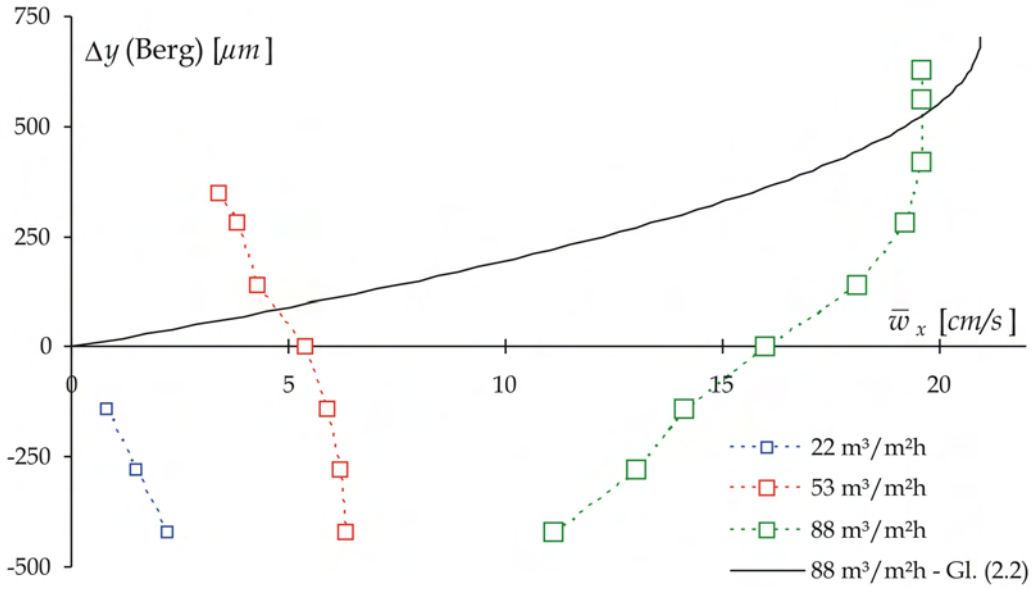

Abbildung D.12.: $\bar{w}_x$-Profile aus Mittelung der Ebenenvektorfelder (Messort mit Berg in Bildmitte) für verschiedene Höhendifferenzen bzgl. der Strukturspitze Δy $(Berg)$ bei den Standardbelastungen und dem System DC10-3d-C.

gesprochen werden.

Zur weiteren Veranschaulichung der hohen Ortsabhängigkeit der Strömungsverhältnisse auf einer mikrostrukturierten Oberfläche werden in Abbildung D.13 analog zu Abb.D.12 gemittelte $\bar{w}_x$-

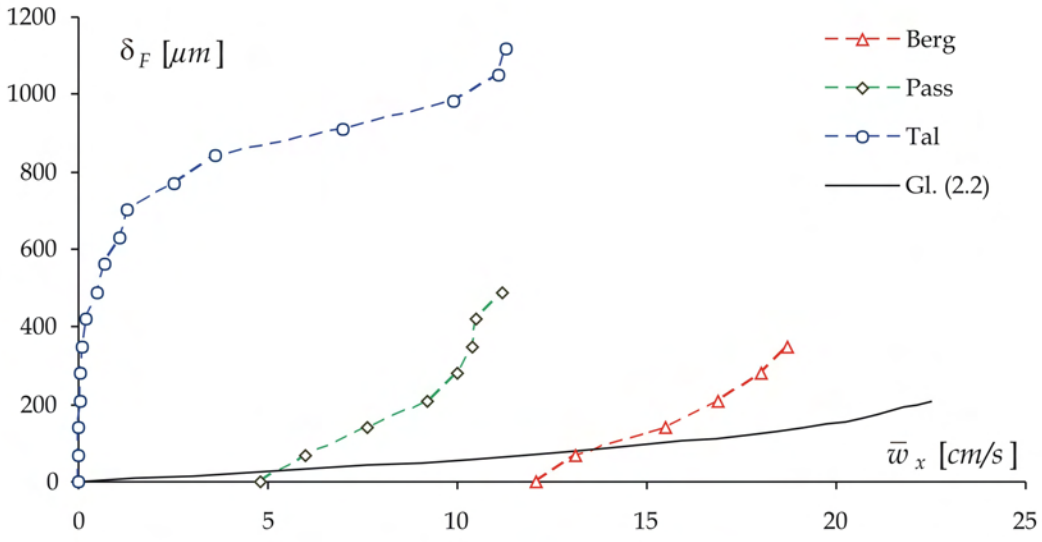

Abbildung D.13.: $\bar{w}_x$-Profile aus Mittelung der Ebenenvektorfelder für verschiedene Positionen oberhalb der Mikrostruktur mit jeweils $\delta_F = 0$ auf fester Tal-, Pass- oder Berg-Oberfläche sowie Vergleich mit theoretischer Lösung auf glatter Oberfläche, Gl. (2.2), bei dem System DC1-3d-C und $B_f = 30\ m^3/m^2h$.

Profile für DC1 auf 3d-C dargestellt. Im Vergleich mit der Nusselt-Lösung in Gl. (2.2) sind die bestimmten $\bar{w}_x$-Werte deutlich geringer und die Filme signifikant dicker. Aufgrund der Mittelung (langsame Randbereiche werden insbesondere beim Tal mit berücksichtigt und entsprechend gewichtet) sowie zusätzlicher w_z- und w_y-Anteile würden die Geschwindigkeitswerte absolut gesehen zwar größer ausfallen, alerdings liegt für die Mikrostruktur im Vergleich zur glatten Oberfläche offensichtlich eine deutliche Reduktion der mittleren Fließgeschwindigkeit vor. Dieses Ergebnis steht in Übereinstimmung mit der Messung höherer Hold-Ups (LIF-Ergebnisse) und ist aufgrund der größeren spezifischen Oberfläche des Packungsmaterials auch zu erwarten gewesen. Weiterhin kann der Abb.D.13 entnommen werden, dass für DC1 und 3d-C bereits bei minimaler Flüssigbelastung die Strukturspitzen (im Gegensatz zu DC10) überströmt werden. Dies bestätigt die Aussagen der LIF-Messungen in Abb.5.24.

D.5. Benetzungstests

Zur besseren Übersicht der untersuchten Flüssigkeitsströme während der Benetzungsexperimente werden in Tabelle D.1 Volumenströme und Rohr-Reynolds-Zahlen Re_R angegeben.

Tabelle D.1.: Übersicht der Volumenströme und Re_R-Zahlen für $d_R = 4\ mm$ der Benetzungsversuche.

	$\dot{V}_f\ [ml/min]$	Re_R
Wasser	133	763
	308	1762
	477	2730
	697	3992
	910	5211
45 Gew.-% Glyzerin	210	285
	321	435
	404	548
	514	698
	596	796
DC5	241	256
	381	404
	509	540
	643	683
	775	823

E. Eigene Veröffentlichungen und betreute Arbeiten

E.1. Publikationen in Fachzeitschriften

J.-U. Repke, M. Kohrt und G. Wozny: Untersuchung mehrphasiger Strömungen an einfachen geneigten Platten als potentielles Auslegungswerkzeug für technische Trennapparate. In Chemie Ingenieur Technik 83 (7), S. 1107-1114, 2011.

M. Kohrt, I. Ausner, J.-U. Repke und G. Wozny: Texture influence on liquid-side mass transfer. In Chemical Engineering Research and Design 89 (8), S.1405-1413, 2011.

E.2. Vorträge bei Fachtagungen

M. Kohrt, S. Paschke, J.-U. Repke und G. Wozny: Validation of a new μPIV method for falling liquid films. In Proceedings of 12th Workshop on Transport Phenomena in Two-phase Flow, Sunny Beach, September 13-18, 2008, Bulgaria, Herausgeber: C. Boyadjiev and J. Hristov, S. 27-34, 2008.

M. Kohrt, I. Ausner, J.-U. Repke, G. Wozny: Determination of Henry and Mass Transfer Coefficients for the CO_2 Absorption in Dimethyl Siloxanes. 5th International Berlin Workshop on Transport Phenomena with Moving Boundaries (IBW5), October 8-9, 2009, Berlin, Germany, Herausgeber: F.-P. Schindler, 2011.

M. Kohrt, I. Ausner, J.-U. Repke: Wie beeinflusst die Mikrostruktur von Packungsoberflächen den flüssig-seitigen Stofftransport? Jahrestreffen der ProcessNet-Fachausschüsse Fluidverfahrenstechnik und Hochdruckverfahrenstechnik, 4.-5. März 2010 in Fulda, Germany, 2010.

M. Kohrt, I. Ausner und J.-U. Repke: Experimental investigation on the effect of packing material textures on the liquid-side mass transfer. In Proceedings of Distillation and Absorption 2010, Sept. 12-15, 2010 Eindhoven, the Netherlands, Herausgeber: A. de Haan and H. Kooijman and A. Gorak, S. 593-598, 2010.

E.3. Betreute Arbeiten

Gu, Buram R.: Modelling of physical absorption into a falling liquid film on a vertical and inclined plate. Internship report TU Berlin/ Korea University Seoul, 2008.

Kamaryt, Simon: Aufbau und Inbetriebnahme einer Anlage zur experimentellen Untersuchung der CO_2-Absorption in Filmströmungen. Studienarbeit TU Berlin, 2008.

Lorenz, Hilke-Marie, Experimentelle Untersuchung der CO_2-Absorption in Siliconöl an Filmströmungen. Studienarbeit TU Berlin, 2009.

Marek, André: Theoretische Untersuchungen zur Absorption im Fallfilm auf strukturierten Platten. Masterarbeit TU Berlin/ BTU Cottbus, 2009.

Touzeau-Airé, Elise: Experimentelle Untersuchungen zur CO_2-Absorption in Filmströmungen. Internship report TU Berlin/ ENSIACET Toulouse, 2009.

Griveau, Raphael: Mesures optiques de vitesse d'écoulements liquides sur structure tridimensionelles. Internship report TU Berlin/ ENSIACET Toulouse, 2010.

Lemarchand, David: Analyse du comportement de fluides sur des surfaces structurées. Internship report TU Berlin/ ENSIACET Toulouse, 2010.

Illmer, Daniel: Analyse von Rieselfilmströmungen auf dreidimensionalen Mikrostrukturen mittels Micro Particle Image Velocimetry. Studienarbeit TU Berlin, 2011.

Powilleit, Marion: Benetzungsverhalten mikrostrukturierter Oberflächen. Bachelorarbeit TU Berlin, 2011.

Literaturverzeichnis

Adomeit, P.: *Experimentelle Untersuchung der Strömung laminar-welliger Rieselfilme.* Dissertation, RWTH Aachen, 1996.

Adomeit, P., Leefken, A. und Renz, U.: Experimental and numerical investigations on wavy films. In: *3rd European Thermal Science Conference 2000, Heidelberg, Germany.* 2000.

Adomeit, P. und Renz, U.: Hydrodynamics of three-dimensional waves in laminar falling films. In: *International Journal of Multiphase Flow*, Band 26(7):S. 1183–1208, 2000. ISSN 0301-9322. doi:10.1016/S0301-9322(99)00079-8.

Al-Sibai, F.: *Experimentelle Untersuchung der Strömungscharakteristik und des Wärmeübergangs bei welligen Rieselfilmen.* Dissertation, RWTH Aachen, 2005.

Alekseenko, S.V., Markovich, D.M., Evseev, A.R., Bobylev, A.V., Tarasov, B.V. und Karsten, V.M.: Experimental investigation of liquid distribution over structured packing. In: *AlChE J.*, Band 54:S. 1424–1430, 2008.

Alekseenko, S.V., Nakoryakov, V.E. und Pokusaev, B.G.: *Wave Flow of Liquid Films.* New York: Begell House, 1994.

Ansyco: IR-Spektrensammlung der Ansyco GmbH (www.ansyco.de). 2011.

Anthony, J.A., Anderson, J.L., Maginn, E.J. und Brennecke, J.F.: Anion effects on gas solubility in ionic liquids. In: *J. Phys. Chem. B*, Band 109:S. 6366–6374, 2005.

Argyriadi, K., Vlachogiannis, M. und Bontozoglou, V.: Experimental study of inclined film flow along periodic corrugations: The effect of wall steepness. In: *Physics of Fluids*, Band 18(1):012102 (Seiten 15), 2006. doi:10.1063/1.2163810.

Arkles, B.: Gelest 2000 - Silanes, Silicones and Metal-Organics. 1998.

Arnold, J.H.: Studies in diffusion I - Estimation of diffusivities in gaseous systems. In: *Industrial and Engineering Chemistry*, Band 22:S. 1091–1095, 1930.

Ataki, A.: *Wetting of Structured Packing Elements - CFD and Experiment.* Dissertation, TU Kaiserslautern, 2006.

Ataki, A., Kolb, P., Bühlmann, U. und Bart, H.-J.: Wetting performance and pressure drop of structured packings: CFD and experiment. In: Sorensen, E. (Hg.) *Distillation and Absorption 2006.* 2006, S. 534–543.

Ausner, I.: *Experimentelle Untersuchungen mehrphasiger Filmströmungen.* Dissertation, TU Berlin, 2006.

Baehr, H.D. und Stephan, K.: *Wärme- und Stoffübertragung.* Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, fünfte Auflage, 2006.

Bakopoulos, A.: Liquid-side controlled mass transfer in wetted-wall tubes. In: *Ger. Chem. Eng.*, Band 3:S. 241–252, 1980.

Banerjee, S., Rhodes, R. und Scott, D.S.: Mass transfer to falling wavy liquid films at low reynolds numbers. In: *Chemical Engineering Science*, Band 22(1):S. 43–48, 1967. ISSN 0009-2509. doi:DOI: 10.1016/0009-2509(67)80103-9.

Baxter, S.J., Power, H., Cliffe, K.A. und Hibberd, S.: Three-dimensional thin film flow over and around an obstacle on an inclined plane. In: *Physics of Fluids*, Band 21(3):032102 (Seiten 23), 2009. doi:10.1063/1.3082218.

Baxter, S.J., Power, H., Cliffe, K.A. und Hibberd, S.: Free surface stokes flows obstructed by multiple obstacles. In: *Int. J. Numer. Meth. Fluids*, Band 62(5):S. 530–564, 2010. ISSN 1097-0363.

Bechert, D.W., Bruse, M., Hage, W. und Meyer, R.: Fluid mechanics of biological surfaces and their technological application. In: *Naturwissenschaften*, Band 87:S. 157–171, 2000. ISSN 0028-1042. 10.1007/s001140050696.

Bühlmann, U.: Performance of Rombopak, structured column packing, in distillation. In: *I.CHEM.E. Symposium Series No. 104; Distillation and Absorption, Brighton, 7.-9. Sept. 1987.* 1987, S. A115–A127. ISSN 0888-5885.

Bird, R.B., Stewart, W.E. und Lightfoot, E.N.: *Transport Phenomena.* Wiley, zweite Auflage, 2001.

Blyth, M.G. und Pozrikidis, C.: Film flow down an inclined plane over a three-dimensional obstacle. In: *Physics of Fluids*, Band 18(5):052104 (Seiten 14), 2006. doi:10.1063/1.2198749.

Bonitz, R. und Grabbert, G.: *Verweilzeituntersuchungen als Mittel zur Modellierung des Impuls-, Wärme- und Stofftransportes in welligen Rieselfilmen.* Freiberger Forschungshefte A856, 1990.

Bontozoglou, V.: Laminar film flow along a periodic wall. In: *Computer Modeling in Engineering & Sciences*, Band 1(2):S. 133–142, 2000. ISSN 1526-1492.

Bontozoglou, V. und Papapolymerou, G.: Laminar film flow down a wavy incline. In: *International Journal of Multiphase Flow*, Band 23(1):S. 69–79, 1997. ISSN 0301-9322. doi: 10.1016/S0301-9322(96)00053-5.

Brackmann, U.: *Lambdachrome Laser Dyes.* Lambda Physik, www.lambdaphysik.com, 2000.

Brauer, H.: *Strömung und Wärmeübergang bei Rieselfilmen.* VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf, 1956.

Brauer, H.: *Grundlagen der Einphasen- und Mehrphasenströmung.* Sauerländer Verlag, Aarau, 1971.

Brauer, H.: Turbulenz in mehrphasigen Strömungen. In: *Chem. Ing. Tech.*, Band 10:S. 934–948, 1979.

Chang, H.-C. und Demekhin, E.A.: *Complex Wave Dynamics on Thin Films.* Elsevier Science B.V., 2002.

Chen, B.H.C. und Chen, S.H.: Diffusion of slightly soluble gases in liquids: Measurement and correlation with implifications on liquid structures. In: *Chem. Eng. Sci.*, Band 40:S. 1735–1741, 1985.

Cheng, N.S.: Formula for viscosity of water-glycerol mixtures. In: *Ind. Eng. Chem. Res.*, Band 47(9):S. 3285–3288, 2008.

Clausen, I.: *Experimentelle und theoretische Analyse der Anwendbarkeit von COSMO-RS für Verteilungskoeffizienten.* Dissertation, TU Berlin, 2000.

Craster, R.V. und Matar, O.K.: Dynamics and stability of thin liquid films. In: *Reviews of Modern Physics*, Band 81(3):S. 1131–1198, 2009.

Danckwerts, P.V.: Significance of liquid-film coefficients in gas absorption. In: *Industrial & Engineering Chemistry*, Band 43(6):S. 1460–1467, 1951. doi:10.1021/ie50498a055.

Davies, G.A., Ponter, A.B. und Craine, K.: The diffusion of carbon dioxide in organic liquids. In: *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, Band 45:S. 372–376, 1967.

Davies, J.T. und Lozano, F.J.: Turbulence characteristics and mass transfer at air-water surfaces. In: *AIChE J.*, Band 25(3):S. 405–415, 1979. ISSN 1547-5905.

Davies, J.T. und Warner, K.V.: The effect of large-scale roughness in promoting gas absorption. In: *Chemical Engineering Science*, Band 24(2):S. 231–240, 1969. ISSN 0009-2509. doi: 10.1016/0009-2509(69)80032-1.

Demekhin, E. A., Kalaidin, E.N., Kalliadasis, S. und Vlaskin, S.Yu.: Three-dimensional localized coherent structures of surface turbulence. i. scenarios of two-dimensional–three-dimensional transition. In: *Physics of Fluids*, Band 19(11):114103 (Seiten 15), 2007. doi:10.1063/1.2793148.

Dietze, G.F.: *Flow Separation in Falling Liquid Films.* Dissertation, RWTH Aachen, 2010.

Dim, A., Gardner, G.R., Ponter, A.B. und Wood, T.: Diffusion of carbon dioxide into primary alcohols and methyl cellulose ether solutions. In: *J. Chem. Eng. Japan*, Band 4:S. 92–95, 1971.

Dow: Density of Glycerine-Water Solutions. URL *http : //www.dow.com/glcerine/recources/physicalprop.htm.*

DowCorning: Product Information Dow Corning Fluid(R) 200 Fluid (Ref. No. 22-0069N-03). 1998.

Dressaire, E., Courbin, L., Crest, J. und Stone, H.A.: Inertia dominated thin-film flows over microdecorated surfaces. In: *Physics of Fluids*, Band 22(7):073602 (Seiten 13), 2010. doi: 10.1063/1.3454769.

Fischer, L., Bühlmann, U. und Melcher, R.: In: *Trans. IChemE A*, Band 81:S. 79–84, 2003.

Flaningam, O.L.: Vapor pressures of poly(dimethylsiloxanes) oligomers. In: *J. Chem. Eng. Data*, Band 31:S. 266–272, 1986.

Frank, M.J.W., Kuipers, J.A.M. und van Swaaij, W.P.M.: Diffusion coefficients and viscosities of CO2 + H2O, CO2 + CH3OH, NH3 + H2O, and NH3 + CH3OH liquid mixtures. In: *J. Chem. Eng. Data*, Band 41:S. 297–302, 1996.

Gambaryan-Roismann, T. und Stephan, P.: Gravity- and shear-driven liquid films on grooved surfaces: Heat transfer and flow stability analysis. In: Schindler, F.-P. (Hg.) *2nd Intanational Berlin Workshop - IBW2 on Transport Phenomena with Moving Boundaries, Berlin , Germany*. 2003, S. 95–109.

Gey, M.H.: *Instrumentelle Analytik und Bioanalytik*. Springer Verlag, Berlin/ Heidelberg, 2008.

Günzler, H. und Gremlich, H.U.: *IR-Spektroskopie - Eine Einführung*. Wiley-VCH, Weinheim, 2003.

Gunst, S.B.: Density-pressure relationship for two low-pressure dimethyl siloxanes. In: *Transction of the ASME*, Band 72:S. 401–407, 1950.

Haroun, Y., Legendre, D. und Raynal, L.: Volume of fluid method for interfacial reactive mass transfer: Application to stable liquid film. In: *Chemical Engineering Science*, Band 65(10):S. 2896 – 2909, 2010. ISSN 0009-2509. doi:10.1016/j.ces.2010.01.012.

Hayduk, W. und Cheng, S.C.: Review of relation between diffusivity and solvent viscosity in dilute liquid solutions. In: *Chem. Eng. Sci.*, Band 26:S. 635–646, 1971.

Häcker, T. und Uecker, H.: An integral boundary layer equation for film flow over inclined wavy bottoms. In: *Physics of Fluids*, Band 21(9):092105 (Seiten 15), 2009. doi:10.1063/1.3224858.

Hecht, E.: *Optik*. Oldenbourg Verlag München, 2009.

Heining, C. und Aksel, N.: Effects of inertia and surface tension on a power-law fluid flowing down a wavy incline. In: *International Journal of Multiphase Flow*, Band 36(11-12):S. 847–857, 2010. ISSN 0301-9322. doi:10.1016/j.ijmultiphaseflow.2010.07.002.

Heining, C., Bontozoglou, V., Aksel, N. und Wierschem, A.: Nonlinear resonance in viscous films on inclined wavy planes. In: *International Journal of Multiphase Flow*, Band 35(1):S. 78–90, 2009. ISSN 0301-9322. doi:10.1016/j.ijmultiphaseflow.2008.07.005.

Herminghaus, S., Brinkmann, M. und Seemann, R.: Wetting and dewetting of complex surface geometries. In: *Annual Review of Materials Research*, Band 38(1):S. 101–121, 2008. doi: 10.1146/annurev.matsci.38.060407.130335.

Higbie, R.: The rate of absorption of absorption of a pure gas into still liquid during short periods of exposure. In: *Trans. Am. Inst. Chem. Eng.*, Band 31:S. 365–389, 1935.

Hobler, T. und Kedzierski, S.: Analysis of the equations of mass transfer in the liquid phase in the flow down a wall. In: *International Chemical Engineering*, Band 7:S. 654–666, 1967.

Infinity: Long-Distance Microscope System Infinimax^{TM}, www.infinity-usa.com. 2009.

Ishigai, S., Nakanisi, S., Koizumi, T. und Oyabu, Z.: Hydrodynamics and heat transfer of vertical falling liquid films (part 1, classification of flow regimes). In: *Bulletin of the Japan Society of Mechanical Engineers*, Band 15:S. 594–602, 1972.

Kammermayer, K. und Sollami, B.J.: Method of recovering carbon dioxide from a fluid. 1972.

Khristoforov, A.V. und Dautov, R.A.: CO2 Gaslöslichkeit in n-Heptan (in russisch). In: *Zh. Fiz. Khim. (Russian Journal of Physical Chemistry A)*, Band 61:S. 2656–2659, 1987.

Knapp, H.: Methoden zur Beschaffung von Information über Stoffeigenschaften. In: *Chem.-Ing.-Tech.*, Band 59(5):S. 367–376, 1987.

Koch, M.V., VandenBussche, K.M. und Chrisman, R.W.: *Micro Instrumentation for high throughput experimentation and process intensification*. Wily-VCH, Weinheim, 2007.

Koeltzsch, K., Dinkelacker, A. und Grundmann, R.: Flow over convergent and divergent wall riblets. In: *Experiments in Fluids*, Band 33:S. 346–350, 2002. ISSN 0723-4864. 10.1007/s00348-002-0446-3.

Kohrt, M., Ausner, I. und Repke, J.-U.: Experimental investigation on the effect of packing material textures on the liquid-side mass transfer. In: de Haan, A., Kooijman, H. und Gorak, A. (Hg.) *Distillation and Absorption 2010*. 2010, S. 593–598.

Kohrt, M., Ausner, I., Repke, J.-U. und Wozny, G.: Texture influence on liquid-side mass transfer. In: *Chemical Engineering Research and Design*, Band 89(8):S. 1405–1413, 2011. doi: 10.1016/j.cherd.2011.01.010.

Kohrt, M., Paschke, S., Repke, J.-U. und Wozny, G.: Validation of a new μPIV method for falling liquid films. In: Boyadjiev, C. und Hristov, J. (Hg.) *Proceedings of 12th Workshop on Transport Phenomena in Two-phase Flow, Sunny Beach, Sept. 13-18, 2008, Bulgaria*. 2008, S. 27–34.

Kraume, M.: *Transportvorgänge in der Verfahrenstechnik*. Springer-Verlag GmbH, 2004.

Lehnberger, A.: *Wärmeübergang im Fallfilmverdampfer mit glatten und profilierten Rohren bei kleinen Temperaturgefällen*. Dissertation, TU Braunschweig, 2002.

Lewis, W.K. und Whitman, W.G.: Principles of gas absorption. In: *Inustrial and Engineering Chemistry*, Band 16:S. 1215–1220, 1924.

Littel, R.J., Versteeg, G.F. und van Swaaij, W.P.M.: Physical absorption into non-aqueous solutions in a stirred cell reactor. In: *Chem. Eng. Sci.*, Band 46:S. 3308–3313, 1991.

Littel, R.J., Versteeg, G.F. und van Swaaij, W.P.M.: Diffusivity measurements in some organic solvents by a gas-liquid diaphragm cell. In: *J. Chem. Eng. Data*, Band 37:S. 42–45, 1992.

LOT-Oriel: Transmissionszubehör (Omni-Küvettensystem für die FT-IR-Spektroskopie). URL $http://www.lot-oriel.com/files/download/nanometrics/de/Omni-Kuvettebsystem.pdf$.

Lozano-Aviles, M.: *Experiments on falling film evaporation of a water-ethylene glycol mixture on a surface with longitudinal grooves*. Dissertation, TU Berlin, 2007.

Luo, H. und Pozrikidis, C.: Effect of inertia on film flow over oblique and three-dimensional corrugations. In: *Physics of Fluids*, Band 18(7):078107 (Seiten 4), 2006. doi:10.1063/1.2227050.

Luo, H. und Pozrikidis, C.: Gravity-driven film flow down an inclined wall with three-dimensional corrugations. In: *Acta Mechanica*, Band 188:S. 209–225, 2007. ISSN 0001-5970. 10.1007/s00707-006-0351-6.

Maaßen, S., Reichl, A. und Knapp, H.: Measurements at high dilution: ecological significance. In: *Fluid Phase Equilibria*, Band 82:S. 71–78, 1993.

Mackowiak, J.: Modellierung des flüssigkeitsseitigen Stoffüberganges in Kolonnen mit klassischen und gitterförmigen Füllkörpern. In: *Chemie Ingenieur Technik*, Band 80(1-2):S. 57–77, 2008. ISSN 1522-2640.

Mackowiak, J.: *Fluid Dynamics of Packed Columns*. Springer VDI, 2010.

McManamey, W.J. und Woollen, J.M.: The diffusivity of carbon dioxide in some organic liquids at 25 $^{\circ}C$ and 50 $^{\circ}C$. In: *AIChE Journal*, Band 19:S. 667–669, 1973.

Müller, I. und Müller, W.H.: *Fundamentals of Thermodynamics and Applications - With historical annotations and many citations from Avogadro to Zermelo*. Springer Berlin / Heidelberg, 2009.

Narasimhan, S. und Jordache, C.: *Data Reconciliation and Gross Error Detection*. Gulf Publishing Company, Houston, Texas, 2000.

Negny, S., Meyer, M. und Prévost, M.: Modelling of the coupling hydrodynamic transfer for a gas-liquid countercurrent flow on a wavy surface. In: *Chemical Engineering Science*, Band 58(12):S. 2705–2714, 2003. ISSN 0009-2509. doi:10.1016/S0009-2509(03)00123-4.

Nicolaiewsky, E.M.A. und Fair, J.R.: Liquid flow over textured surfaces. 1. contact angles. In: *Ind. Eng. Chem. Res.*, Band 38(1):S. 284–291, 1999. doi:10.1026/ie9800344.

Nusselt, W.: Die Oberflächenkondensation des Wasserdampfes. In: *VDI-Zs*, Band 60(27):S. 541–546, 1916.

Oliver, D.R. und Atherinos, T.E.: Mass transfer to liquid films on an inclined plane. In: *Chemical Engineering Science*, Band 23(6):S. 525–536, 1968. ISSN 0009-2509. doi:10.1016/0009-2509(68)89001-3.

Olujic, Z., Jödecke, M., Shilkin, A., Schuch, G. und Kaibel, B.: Equipment improvement trends in distillation. In: *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, Band 48(6):S. 1089–1104, 2009. ISSN 0255-2701. doi:10.1016/j.cep.2009.03.004.

Pak, M.I. und Hu, G.H.: Numerical investigations on vortical structures of viscous film flows along periodic rectangular corrugations. In: *International Journal of Multiphase Flow*, Band 37(4):S. 369–379, 2011. ISSN 0301-9322. doi:10.1016/j.ijmultiphaseflow.2010.12.001.

Park, C.D. und Nosoko, T.: Three-dimensional wave dynamics on a falling film and associated mass transfer. In: *AIChE J.*, Band 49(11):S. 2715–2727, 2003. ISSN 1547-5905.

Paschke, S.: *Experimentelle Analyse ein- und zweiphasiger Filmströmungen auf glatten und strukturierten Oberflächen*. Dissertation, TU Berlin, 2012.

Paschke, S., Repke, J.-U. und Wozny, G.: Untersuchungen von Filmströmungen mittels eines neuartigen Micro Particle Image Velocimetry Messverfahrens. In: *Chemie Ingenieur Technik*, Band 80(10):S. 1477–1485, 2008.

Paschke, S., Thiele, R. und Repke, J.-U.: Untersuchung des Stoffübergangverhaltens dreiphasig betriebener Fallfilmabsorber. In: *Chemie Ingenieur Technik*, Band 81(3):S. 297–304, 2009.

Plüss, R.: Regular packing element of thin foil-like material for mass transfer and heat exchange columns. 1991.

Pozrikidis, C.: The flow of a liquid film along a periodic wall. In: *J. Fluid. Mech.*, Band 188:S. 275–300, 1988.

Pozrikidis, C.: Unsteady viscous flow over irregular boundaries. In: *J. Fluid Mech.*, Band 255:S. 11–34, 1993.

Quéré, D.: Wetting and roughness. In: *Annual Review of Materials Research*, Band 38(1):S. 71–99, 2008. doi:10.1146/annurev.matsci.38.060407.132434.

Raffel, M., Willert, C.E., Wereley, S.T und Kompenhans, J.: *Particle Image Velocimetry - A practical guide*. Springer, Berlin Heidelberg, 2007.

Rastaturin, A., Demekhin, E. und Kalaidin, E.: Optimal regimes of heat-mass transfer in a falling film. In: *Journal of Non-Equilibrium Thermodynamics*, Band 31(1):S. 1–10, 2006. ISSN 0340-0204.

Raynal, L., Rayana, F.B. und Royon-Labeaud, A.: Use of CFD for CO2 absorbers optimum design: From local scale to large industrial scale. In: *Energy Procedia*, Band 1:S. 917–924, 2009. doi:10.1016/j.egypro.2009.01.122.

Repke, J.-U., Wozny, G. und Kohrt, M.: Untersuchung mehrphasiger Strömungen an einfachen geneigten Platten als potentielles Auslegungswerkzeug für technische Trennapparate. In: *Chemie Ingenieur Technik*, Band 83(7):S. 1–9, 2011. doi:10.1002/cite.201100048.

Reynolds, O.: Study of fluid motion by means of coloured bands. In: *Nature*, Band 50(1285):S. 161–164, 1894.

Richter, D.: *Untersuchungen zum Einsatz alternativer Waschmedien für die Rückgewinnung aromatischer Kohlenwasserstoffe aus Kokereigasen.* Dissertation, TU Berlin, 2010.

Roberts, R.M. und Chang, H.-C.: Wave-enhanced interfacial transfer. In: *Chemical Engineering Science*, Band 55(6):S. 1127–1141, 2000. ISSN 0009-2509. doi:10.1016/S0009-2509(99)00391-7.

Romero, C.M. und Paez, M.S.: In: *Phys. Chem. Liq.*, Band 44:S. 61, 2006.

Santos, J.M. De, Melli, T.R. und Scriven, L.E.: Mechanics of gas-liquid flow in packed-bed contactors. In: *Annu. Rev. Fluid Mech.*, Band 23:S. 233–260, 1991.

Sattler, K.: *Thermische Trennverfahren - Grundlagen, Auslegung, Apparate.* Wiley-VCH, Weinheim, 2001.

Schagen, A. und Modigell, M.: Luminescence technique for the measurement of local concentration distribution in thin liquid films. In: *Exp. Fluids*, Band 38:S. 174–184, 2005.

Schlichting, H. und Gersten, K.: *Grenzschicht-Theorie.* Springer Berlin / Heidelberg, 2006.

Scholle, M. und Aksel, N.: Shark skin effect in creeping films. arXiv:physics/0605232v1, 2006.

Scholle, M., Haas, A., Aksel, N., Wilson, M.C.T., Thompson, H.M. und Gaskell, P.H.: Competing geometric and inertial effects on local flow structure in thick gravity-driven fluid films. In: *Physics of Fluids*, Band 20(12):123101 (Seiten 10), 2008. doi:10.1063/1.3041150.

Schultes, M.: Raschig Super-Pak – Eine neue Packungsstruktur mit innovativen Vorteilen im Vergleich. In: *Chemie Ingenieur Technik*, Band 80(7):S. 927–933, 2008. ISSN 1522-2640.

Schwab, P.F., Seiler, H.M. und Weyershausen, B.: CO2 absorption using ionic liquids. In: *Chemistry Today*, Band 24:S. 21–23, 2006.

Shen, Z.-Q., Liu, C.-H. und Luan, S.-D.: Transfer of heat and mass in falling liquid film on a screw grooved surface tube. In: *Chemical Engineering Communications*, Band 77:S. 209–217, 1989.

Shetty, S. und Cerro, R.L.: Flow of a thin fiom over a periodic surface. In: *International Journal of Multiphase Flow*, Band 19(6):S. 1013–1027, 1993. ISSN 0301-9322. doi:10.1016/0301-9322(93)90075-6.

Shetty, S. A. und Cerro, R. L.: Spreading of a liquid point source over a complex surface. In: *Ind. Eng. Chem. Res.*, Band 37(2):S. 626–635, 1998.

Sisoev, G.M., Matar, O.K., Craster, R.V. und Kumar, S.: Coherent wave structures on falling fluid films flowing down a flexible wall. In: *Chemical Engineering Science*, Band 65(2):S. 950–961, 2010. ISSN 0009-2509. doi:10.1016/j.ces.2009.09.046.

Snijder, E.D., te Riele, M.J.M., Versteeg, G.F. und van Swaaij, W.P.M.: Diffusion coefficients of CO, CO2, N2O and N2 in Ethanol and Toluene. In: *J. Chem. Eng. Data*, Band 40:S. 37–39, 1995.

SOP-Nr.62: *Standardarbeitsanweisung Nr. 62: Fallfilmabsorber. Gasgegenstrom CO_2-Absorption in Silikonöl-Filmströmungen und gerührte Batch-Desorption (Vakuum).* TU Berlin, Fachgebiet Dynamik und Betrieb technischer Anlagen. 2009.

SOP-Nr.63: *Standardarbeitsanweisung Nr. 63: IR-Analytik. CO_2-Konzentrationsanalyse für CO_2-Silikonölmischungen mit FTIR-Gerät.* TU Berlin, Fachgebiet Dynamik und Betrieb technischer Anlagen. 2009.

Takeuchi, H., Fujine, M., Sato, T. und Onda, K.: Simultaneous determination of diffusion coefficient and solubility of gas in liquid by a diaphragm cell. In: *J. of Chem. Eng. of Japan*, Band 8:S. 252–253, 1975.

Tatsuo, N., Shinichiro, M., Shingho, A. und Yuji, K.: Flow observations and mass transfer characteristics in symmetrical wavy-walled channels at moderate Re numbers for steady flow. In: *Int. J.Heat Mass Transfer*, Band 33:S. 835–845, 1990.

Tatsuo, N., Yoshiji, O., Yoshihiko, K. und Yuji, K.: Mass transfer characteristics in a channel with symmetric wavy wall for steady flow. In: *Journal of Chemical Engineering of Japan*, Band 18:S. 550–555, 1985.

Thiele, R.: *Selektive Absorption innerhalb der Kokereigasreinigung.* Dissertation, TU Berlin, 2007.

Trifonov, Yu.Ya.: Viscous film flow down corrugated surfaces. In: *Journal of Applied Mechanics and Technical Physics*, Band 45:S. 389–400, 2004. ISSN 0021-8944. 10.1023/B:JAMT.0000025021.41499.e1.

Trifonov, Yu.Ya.: Stability of a viscous liquid film flowing down a periodic surface. In: *International Journal of Multiphase Flow*, Band 33(11):S. 1186–1204, 2007. ISSN 0301-9322. doi:10.1016/j.ijmultiphaseflow.2007.05.004.

Trifonov, Yu.Ya.: Counter-current gas-liquid wavy film flow between the vertical plates analyzed using the Navier-Stokes equations. In: *AIChE J.*, Band 56(8):S. 1975–1987, 2010. ISSN 1547-5905.

Valluri, P., Matar, O.M., Hewitt, G.F. und Mendes, M.A.: Thin Film flow over Structered Packings at Moderate Reynolds Numbers. In: *Chem. Eng. Sci.*, Band 60(7):S. 1965–1975, 2005.

VDI-Wärmeatlas: *VDI-Wärmeatlas*. VDI-Verlag, Düsseldorf, 2006.

Vlachogiannis, M. und Bontozoglou, V.: Experiments on laminar film flow along a periodic wall. In: *J. Fluid Mech.*, Band 457(1):S. 133–156, 2002.

Wacker-Chemie: Wacker Siliconöle AK. 2001. URL *http* : *//www.wacker.com*.

Wang, G. und Rothmayer, A.P.: Thin water films driven by air shear stress through roughness. In: *Computers & Fluids*, Band 38(2):S. 235–246, 2009. ISSN 0045-7930. doi: 10.1016/j.compfluid.2008.02.009.

Wehrli, M. B.: Byond Cross-Corrugated Structured Packing For Destillation ans Absorption. In: Schindler, F.P. (Hg.) *5th Int. Berlin Workshop - IBW 5 on Transport Phenomena with Moving Boundaries, 8.-9. Okt. 2009, Berlin, Germany*. 2011, S. 263–278.

Wierschem, A. und Aksel, N.: Hydraulic jumps and standing waves in gravity-driven flows of viscous liquids in wavy open channels. In: *Physics of Fluids*, Band 16(11):S. 3868–3877, 2004. doi:10.1063/1.1789431.

Wierschem, A., Bontozoglou, V., Heining, C., Uecker, H. und Aksel, N.: Linear resonance in viscous films on inclined wavy planes. In: *International Journal of Multiphase Flow*, Band 34(6):S. 580–589, 2008. ISSN 0301-9322. doi:10.1016/j.ijmultiphaseflow.2007.12.001.

Wierschem, A., Pollak, T., Heining, C. und Aksel, N.: Suppression of eddies in films over topography. In: *Physics of Fluids*, Band 22(11):113603 (Seiten 8), 2010. doi:10.1063/1.3504374.

Wierschem, A., Scholle, M. und Aksel, N.: Vortices in film flow over strongly undulated bottom profiles at low reynolds numbers. In: *Phys. Fluids*, Band 15(2):S. 426–435, 2003.

Wilke, C.R. und Chang, P.: Correlation of diffusion coefficients in dilute solutions. In: *A.I.Ch.E. Journal*, Band 1:S. 264–270, 1955.

Wille, C.: *Entwicklung und Charakterisierung eines Mikrofallfilm- Reaktors für stofftransportlimitierte hochexotherme Gas/ Flüssig-Reaktionen*. Dissertation, TU Clausthal, 2000.

Winkelmann, J.: *Diffusion in Gases, Liquids and Electrolytes. Subvolume A Gases in Gases, Liquids and their Mixtures (Landolt-Börnstein IV-15)*. Springer Berlin / Heidelberg, 2007.

Won, Y.S., Chung, D.K. und Mills, A.F.: Density, viscosity, surface tension, and carbon dioxide solubility and diffusivity of methanol, ethanol, aqueous propanol and aqueous ethylene glycol at 25 $^{\circ}C$. In: *J. Chem. Eng. Data*, Band 26(2):S. 140–141, 1981. ISSN 0017-9310. doi: 10.1016/0017-9310(82)90008-4.

Won, Y.S. und Mills, A.F.: Correlation of the effects of viscosity and surface tension on gas absorption rates into freely falling turbulent liquid films. In: *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Band 25(2):S. 223 – 229, 1982. ISSN 0017-9310. doi:10.1016/0017-9310(82)90008-4.

Xu, Y., Schutte, R.P. und Hepler, L.G.: Solubilities of carbon dioxide, hydrogen sulfide and sulfur dioxide in physical solvents. In: *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, Band 70:S. 569–573, 1992.

Xu, Z.F., Khoo, B.C. und Wijeysundera, N.E.: Mass transfer across the falling film: Simulations and experiments. In: *Chemical Engineering Science*, Band 63(9):S. 2559–2575, 2008. ISSN 0009-2509. doi:10.1016/j.ces.2008.02.014.

Yu, L.-M., Zeng, A.-W. und Yu, K.T.: Effect of interfacial velocity fluctuations on the enhancement of the mass-transfer process in falling-film flow. In: *Ind. Eng. Chem. Res.*, Band 45(3):S. 1201–1210, 2006. ISSN 0888-5885.

Zanfir, M., Gavriilidis, A., Wille, C. und Hessel, V.: Carbon dioxide absorption in a falling film microstructured reactor: Experiments and modeling. In: *Ind. Eng. Chem. Res*, Band 44:S. 1742–1751, 2005.

Zhao, L. und Cerro, R.L.: Experimental characterization of viscous film flows over complex surfaces. In: *International Journal of Multiphase Flow*, Band 18(4):S. 495–516, 1992. ISSN 0301-9322. doi:10.1016/0301-9322(92)90048-L.