

Mehrphasige Durchströmung
heterogener kompressibler poröser Medien

Zur Erlangung des akademischen Grades eines

Dr.-Ing.

vom Fachbereich Bio- und Chemieingenieurwesen
der Universität Dortmund
genehmigte Dissertation

vorgelegt von

Dipl.-Ing. Tim Neumann

aus

Dortmund

Berlin, 2007

Zusammenfassung

Mehrphasenströmungen durch poröse Medien sind in der Verfahrens- und Energietechnik Grundlage einer Vielzahl technischer Anwendungen. Die dabei auftretenden Vorgänge sind komplex und so kommt es bereits bei einer isothermen zweiphasigen Durchströmung zu einem Zusammenwirken mehrerer, sich gegenseitig beeinflussender Effekte.

Bislang konzentrierten sich die Untersuchungen auf einphasige Strömungsvorgänge, die wesentlich durch Reibungskräfte dominiert sind. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit werden die Einflüsse mehrphasiger Durchströmungsprozesse in kapillarporösen Materialien und dispersen Haufwerken bei hohen Strömungsgeschwindigkeiten untersucht.

Dazu werden zunächst anhand verschiedener Schüttgüter, bei denen sich gezielt einzelne Eigenschaften der porösen Matrix variieren lassen, die Modellvorstellungen analysiert, um anschließend die erzielten Erkenntnisse auf reale poröse Medien zu übertragen.

Als Parameter dienen der mittlere Partikeldurchmesser, die Benetzbarkeit der Oberfläche sowie die Porosität. Die Strömungsmedien bei den experimentellen Untersuchungen sind Luft und Wasser. Stellvertretend für reale Schüttgüter kommen Erdboden und Braunkohle zum Einsatz, für heterogene poröse Medien Membrane von Direkt-Methanol-Brennstoffzellen.

Mit Hilfe des Kapillarmodells lassen sich für geordnete poröse Medien die Haufwerkeigenschaften annähernd theoretisch ableiten. Aufgrund der geometrischen Komplexität muss jedoch häufig auf empirische Ansätze, wie das Darcy-Gesetz und die Ergun-Forchheimer-Gleichung, zur Modellierung des Impulstransportes zurückgegriffen werden.

Im Fall der einphasigen Durchströmung wird gezeigt, dass die Haufwerkskenngrößen Permeabilität und Passabilität sowohl bei kompressiblen als auch bei nicht deformierbaren Haufwerken Funktionen des mittleren Partikeldurchmessers, der Porosität sowie der Tortuosität und der Geometrie der Porenerweiterungen sind.

Dem Vorhandensein zusätzlicher fluider Phasen bei mehrphasigen Prozessen wird durch Einführung der relativen Permeabilitäten und relativen Passabilitäten Rechnung getragen, die zum einen von der Verteilung der fluiden Phasen im Haufwerk, zum anderen von den Oberflächenspannungen und den Verhältnissen der fluiden Dichten abhängen. Ein zusätzlicher Druckverlust wird durch die z.T. sehr großen Unterschiede der Strömungsgeschwindigkeiten und die daraus resultierenden Schubkräfte an den Phasengrenzflächen hervorgerufen. Diesem wird durch Einführung einer Wechselwirkungskraft Rechnung getragen. Zur Beschreibung der Phasenverteilung sind Untersuchungen der kapillaren Eigenschaften durchgeführt worden. Für die Auswertung der mehrphasigen Untersuchungen ist ein numerischer Algorithmus entwickelt worden, der die Impulsbilanzen und die Erhaltungsgleichungen der fluiden Phasen gemeinsam löst. Die Untersuchungen belegen, dass für niedrige Permeabilitäten der Widerstand der flüssigen Phase bedingt durch die zunehmenden Kapillarkräfte steigt. Dies hat zum einen eine geringere Beweglichkeit des Wassers zur Folge. Zum anderen bedeutet dies, dass kleine mit Flüssigkeit blockierte Poren erst durch einen zusätzlichen Energieeintrag in Form eines erhöhten Druckabfalls wieder freigegeben werden müssen. In heterogenen Medien sind der Strömungswiderstand und Anteil benetzbarer zu nichtbenetzbarer Oberflächen direkt von einander abhängig.

Der Vergleich mit den realen porösen Medien zeigt, dass die Modellvorstellungen grundsätzlich auch für diese Gültigkeit besitzen. Zur Beschreibung kolloidaler Stoffe wie der Braunkohle sind jedoch empirische Ansätze unerlässlich. Bei den Brennstoffzellenmembranen wird deutlich, dass sich der komplexe Aufbau durch eine Reduzierung des gesamten Prozesses auf einzelne Teilbereiche, in diesem Fall die abschnittsweise Definition der Sättigung, mit den Modellansätzen recht gut beschreiben lässt. So bedingt eine Hydrophobisierung unterschiedliche Strömungswiderstände der flüssigen und gasförmigen Phase, wodurch die Mobilitäten der fluiden Medien gezielt beeinflusst werden können.

Abstract

The influencing factors and the properties of multiphase flow processes in porous media and disperse beds are investigated for high flow velocities, i.e. for an inertial dominated flow. Therefore the processes are first analysed with different disperse model systems, in which various properties of the porous matrix are varied, and then this knowledge is transferred to real porous media.

As important characteristics the mean diameter of the particles, the wettability of the surface and the porosity are changed. The used fluids are water and air. As model systems beds of glass spheres and polystyrene particles are investigated. As examples for real porous media beds of soil and of lignite are used. In addition porous membranes represented by diffusion layers of direct methanol fuel cells are tested.

With the use of the capillary model the properties of simple porous media can be deduced theoretically. In contrast to this for common systems it is generally necessary to use empirical functions like Darcy's law or the Ergun-Forchheimer-equation to model the transport of momentum because of the geometric complexity.

In case of a single phase flow the results show a dependence of the characteristic values permeability and passability on the mean diameter of the particles, the porosity, the tortuosity and the geometry of the pores' expansion for compressible as well as non-deformable disperse systems.

The existence of various fluidal phases in multiphase flow is balanced with the introduction of the relative permeability and relative passability. These depend on the distribution and proportion of the different fluid phases, the surface tension and the ratio of the fluids' densities. The description of the phase distribution is deduced from investigations on the capillary properties. An additional pressure loss is caused by differences in the fluids' velocity and the resulting shear forces at the interface. This leads to the introduction of an interaction force in the momentum equation.

For the evaluation of the multiphase flow a numerical algorithm is developed which solves the equation of momentum and conservation for both fluids in one step. The results show in the range of low permeability an increasing resistance of the liquid phase because of increasing capillary forces. This leads on the one hand to a lower mobility of the water. On the other hand small pores blocked by liquid have to be released by an additional energy input as the increased pressure loss. In heterogeneous media the flow resistance and the ratio of wettable to non-wettable surface are direct dependent on one another.

The comparison with the results of real porous media shows a general validity of the found concepts even for these systems. However, in case of the colloidal media lignite empirical functions are indispensable. Because of the hydrophobisation in case of the fuel cell membrane different flow resistances for the liquid and the gaseous phases are created, by which the mobility of the fluids is influenced directly. This makes it necessary to define the saturation in two stages. Doing so it becomes possible to describe the processes also within this media quite well with the confirmed model functions.

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Angestellter am Lehrstuhl Energieprozesstechnik und Strömungsmechanik des Fachbereiches Bio- und Chemieingenieurwesen der Universität Dortmund.

An dieser Stelle möchte all denjenigen, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben, meinen Dank aussprechen. Insbesondere gilt mein Dank aber auch Herrn Prof. Dr.-Ing. Karl Strauß für die Betreuung der Arbeit und den gewährten wissenschaftlichen Freiheiten sowie Herrn Prof. Dr.-Ing. David W. Agar für die Übernahme des Koreferates. Für die Mitwirkung an der Prüfung möchte ich mich bei Herrn Prof. Dr.-Ing. Peter Ehrhard und dem Vorsitzenden der Prüfungskommission, Herrn Prof. Dr.-Ing. Rolf Wichmann, bedanken.

Nicht unerwähnt bleiben sollen an dieser Stelle meine Kolleginnen und Kollegen am Lehrstuhl und im Fachbereich, deren Unterstützung mir durch ihre Anregungen und stete Diskussionsbereitschaft zuteil wurde.

Dank gilt auch den Mitarbeitern sowohl des Lehrstuhls als auch der gemeinsamen Werkstätten des Fachbereichs ohne deren Hilfe die Aufbauten der Versuchsanlagen nicht möglich gewesen wären und die mir bei den experimentellen Arbeiten unerwartet auftretenden Problemen und kleinen Katastrophen schnell Hilfe zu Teil werden ließen.

Nicht vergessen werden sollen auch die Studien- und Diplomarbeiter sowie Vertiefungspraktikanten und studentische Hilfskräfte, die durch ihre sorgfältigen Arbeiten einen nicht unerheblichen Anteil an den erzielten Ergebnissen hatten.

Ein besonderer Dank gebührt zum Schluss meiner Familie für den langjährigen Rückhalt während des Studiums und der Promotionszeit.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theorie – Stand des Wissens	4
2.1	Charakterisierung poröser Systeme	4
2.2	Kapillarkräfte	5
2.3	Durchströmung poröser Medien	8
2.3.1	Einphasige Durchströmung	8
2.3.2	Mehrphasige Durchströmung	10
3	Einflussgrößen der Durchströmung poröser Medien	15
3.1	Kapillarmodell	15
3.2	Struktureigenschaften poröser Medien	16
3.2.1	Partikelgeometrie	16
3.2.2	Oberflächeneigenschaft	18
3.2.3	Porosität	20
4	Experimentelle Grundlagen	23
4.1	Schüttgüter	23
4.1.1	Modellschüttgüter	23
4.1.2	Reale poröse Medien	23
4.2	Versuchsaufbauten	24
4.2.1	Untersuchung der kapillaren Eigenschaften	24
4.2.2	Bestimmung der Sättigung	28
4.2.3	Ein- und mehrphasige Durchströmungsuntersuchungen	30
5	Auswertung der Durchströmungsuntersuchungen	37
5.1	Einphasenströmungen	37
5.2	Mehrphasenströmungen	40
5.3	Numerische Umsetzung der Auswertung mehrphasiger Strömungen	42
5.4	Einfluss der Phasenwechselwirkung	47
6	Ergebnisse	49
6.1	Kapillare Eigenschaften	49
6.2	Einphasige Durchströmung	50
6.2.1	Einfluss der Partikelgröße	50
6.2.2	Einfluss der Porosität	53
6.3	Mehrphasige Durchströmung	58
6.3.1	Veränderung Partikelgröße	58
6.3.2	Veränderung Oberflächeneigenschaften	59
6.4	Reale poröse Medien	61
6.4.1	Erdboden	61
6.4.2	Braunkohle	63
6.4.3	Membrane der DMFC	64
7	Zusammenfassung	73
8	Anhang	75
8.1	Symbolverzeichnis	75
8.1.1	Lateinische Buchstaben	75
8.1.2	Griechische Buchstaben	76
8.1.3	Indizierungen	77
8.1.4	Abkürzungen	77
8.2	Literaturverzeichnis	78

1 Einleitung

Mehrphasenströmungen durch poröse Medien haben in den letzten Jahren durch ihre vielfältigen Anwendungsmöglichkeiten zunehmend an Bedeutung gewonnen. Schon bei einer zweiphasigen Durchströmung kommt es zur Überlagerung mehrerer sich gegenseitig beeinflussender Effekte. Die Herausforderung der Prozessintensivierung besteht in einer das Verfahren fördernden und zielgerichteten Nutzung der Effekte unter gleichzeitiger Unterdrückung der Hemmnisse.

Eine erste großtechnische Anwendung mehrphasiger Strömungsverfahren stellte die Förderung von Erdöl dar, und die damit verbundenen Forschungsarbeiten führten zu einem wesentlich besseren Verständnis der Vorgänge [ABT88, Sch74]. Zur Beschreibung und Optimierung der Verfahren sind bereits in der ersten Hälfte des 20. Jahrhunderts eine Reihe experimenteller und theoretischer Untersuchungen durchgeführt worden [WB36, MM36, Lev38]. So lassen sich z.B. mit Hilfe von Dampf injektionsprozessen oder additiven Polymerzusätzen [TF02] gezielt die Mobilitäten der einzelnen fluiden Komponenten durch eine Änderung der Benetzungsfähigkeit des Gesteins erhöhen, um eine effektivere Ausbeutung der Lagerstätten zu erzielen. In den letzten Jahren sind durch die zunehmende Bedeutung des Umweltschutzes als weitere Anwendungsgebiete die Beschreibung der Ausbreitung von Schadstoffen im Erdreich sowie die Möglichkeiten der Dekontamination hinzugekommen [MCI⁺98, AP95]. Ein mit wachsendem Interesse untersuchtes Forschungsgebiet sind die Transportvorgänge in Brennstoffzellen. Hier wird versucht, durch Herstellung gemischt benetzbarer Materialien bevorzugte Stofftransportporen für die gasförmigen und flüssigen Produkte und Edukte bereitzustellen. Aber auch auf dem Gebiet der chemischen Verfahrenstechnik kommt den mehrphasigen Strömungen eine wichtige Rolle zu. So lassen sich in technischen Anwendungen, wie z.B. der heterogenen Katalyse in Festbettreaktoren, die Vorteile einer großen Schüttgutoberfläche mit einer intensiven Durchmischung der Reaktionspartner sehr gut kombinieren [Sha79]. Weitere nennenswerte technische Verfahren sind die Filtrations- und Trocknungsprozesse.

Zur Intensivierung der verschiedenen Prozesse ist ein besseres Verständnis der Vorgänge bei der mehrphasigen Durchströmung notwendig. Dies stellt, insbesondere bezogen auf die beiden technischen Verfahren der Mechanisch/Thermischen Entwässerung und der elektrochemischen Energieumsetzung in Methanol-Brennstoffzellen, die Motivation für die vorliegende Arbeit dar.

Die Mechanisch/Thermische Entwässerung ist ein Verfahren zur energetisch effizienten Entwässerung kolloidaler Feststoffe [BBS⁺99, BCB⁺99, Ber01], siehe Abbildung 1.1. Ein Aufheizen des Feststoffes mit heißem Wasser und kondensierendem Dampf mobilisiert bei Temperaturen bis 190°C das im Feststoff gebundene Wasser, welches in einem nachfolgenden Verfahrensschritt durch Aufbringen mechanischer Kräfte im flüssigen Zustand entfernt werden kann. Durch eine abschließende Druckentlastung erfolgt eine Entspannungsverdampfung, die zu einer weiteren Reduzierung des Wassergehaltes und einer Vorzerkleinerung des verdichteten Feststoffes führt.

zu nichtbenetzender Oberfläche. Zur Auswertung der mehrphasigen Vorgänge ist ein numerisches Modell entwickelt worden, mit dem die Impulsbilanzen und die Kontinuitätsgleichungen der fluiden Phasen unter Berücksichtigung der Druck- und Sättigungsgradienten gemeinsam löst. Um die bei den Modellstoffen gefundenen Zusammenhänge abschließend auf reale poröse Medien zu übertragen, sind ein- und mehrphasige Durchströmungsuntersuchungen an Braunkohle und Erdboden sowie an unterschiedlichen Brennstoffzellenmembranen durchgeführt worden.

2 Theorie – Stand des Wissens

2.1 Charakterisierung poröser Systeme

Eine exakte Beschreibung des Aufbaus von Haufwerken lässt sich nur für ideal gepackte, kugelförmige Einkornschüttungen vornehmen. Für praktische Betrachtungen ist es hingegen nicht möglich, eine homogene Schüttung bestehend aus gleichgroßen, uniformen Partikeln mit einheitlicher Koordinationszahl herzustellen. Wesentlich komplizierter wird die Aufgabe selbst bei der Idealvorstellung kugelförmiger Mehrkornschüttungen, also Haufwerken mit mehreren verschiedenen Partikeldurchmessern. Aus diesem Grund wird zur Beschreibung der geometrischen Eigenschaften auf statistische Methoden zurückgegriffen. Die für diese Arbeit bedeutenden Charakteristika poröser Medien sind der mittlere Partikeldurchmesser, die spezifische Oberfläche sowie der Hohlraumanteil und seine geometrische Dimension, mit deren Hilfe sich im Vorfeld allgemeine Aussagen über die Durchströmbarkeit treffen lassen. Für Mehrkornschüttungen ist ein repräsentativer Partikeldurchmesser d_p mit dem auf das gesamte Feststoffvolumen V_P bezogenen Volumenanteil V_n und dem äquivalenter Teilchendurchmesser d_n der n -ten Fraktion noch eindeutig definierbar [Jes64].

$$d_p = \left(\sum_i^n \frac{V_n}{V_P \cdot d_n} \right)^{-1} \quad (2.1)$$

Ein gängiger Äquivalentdurchmesser zur Beschreibung disperser Systeme ist der Sauterdurchmesser d_{32} , bei dem die Partikel durch volumen- (V_P) und oberflächengleiche (A_P) Kugeln angenähert werden.

$$d_{32} = 6 \cdot \frac{V_P}{A_P} \quad (2.2)$$

Im Idealfall runder Partikel, lässt sich d_{32} mit Hilfe des vollständigen Momentes aus der Verteilungssumme des Gutes errechnen, worauf an dieser Stelle mit dem Verweis auf entsprechende Quellen in der Literatur [Sti92, LR92] nicht detaillierter eingegangen werden soll.

Ein weiteres charakteristisches Merkmal ist die spezifische Oberfläche a_{spez} eines porösen Mediums. Sie ist das Verhältnis von Volumen zu Oberfläche und lässt sich bei Partikelkollektiven, wie der Sauterdurchmesser, aus den Mengenverteilungen berechnen [Sti92, LR92].

$$a_{spez} = \frac{V_P}{A_P} \quad (2.3)$$

Die spezifische Oberfläche gewinnt bei heterogenen Stoffsystemen mit gemischt benetzbaren Eigenschaften hinsichtlich der Verteilung fluider Phasen an Bedeutung, da aus den verschiedenen Randwinkeln unterschiedliche Grenzflächenspannungen an den Phasengrenzen resultieren.

Die Porosität oder auch der Lückengrad wird hier zur Charakterisierung als makroskopische Eigenschaft poröser Medien angenommen, also unter Vernachlässigung lokal variierender Packungsstrukturen, und beinhaltet Angaben über die Form der Partikel sowie deren gegenseitige Orientierung und Lage [Bra71]. Mit ihr lässt sich somit ein charakteristisches Maß für eine Schüttung ohne Berücksichtigung der Partikelgrößenverteilung angeben. Sie ist definiert als das Verhältnis des Hohlraums V_H - also dem gesamten Schüttungsvolumen V_S reduziert um das Volumen der Partikel V_P - zum Gesamtvolumen.

$$= \frac{V_S - V_P}{V_S} = \frac{V_H}{V_S} \quad (2.4)$$

Das Volumen der Partikel ergibt sich hierbei aus dem Gewicht der Probe m_S und deren Dichte ρ , die für jeden untersuchten Stoff bekannt sein muss.

In den Modellvorstellungen für poröse Medien wird vereinfachend davon ausgegangen, dass sich das für die Durchströmung zur Verfügung stehende Hohlraumvolumen auf eine Vielzahl von Kanälen verteilt. Eine weitere entscheidende geometrische Kenngröße ist daher die mittlere Porengröße bzw. der hydraulische Durchmesser d_H der Strömungskanäle, der aus dem Verhältnis von Hohlraumvolumen zur Oberfläche der Partikel A_p abgeleitet wird [Bar51].

$$d_H = \frac{4 \cdot V_H}{A_p} = \frac{2}{3} \cdot \frac{1}{1 - \epsilon} \cdot d_p \quad (2.5)$$

2.2 Kapillarkräfte

Sind in einem porösen Medium mindestens zwei nicht miteinander mischbare fluide Phasen zugegen, treten Kapillardrücke auf, die neben der Porengröße noch von dem Randwinkel und der Oberflächenspannung der benetzenden Phase abhängig sind. Als Konsequenz gekrümmter Grenzflächen sind die Drücke in den beiden fluiden Phasen (p_v , p_l) ungleich. Der Kapillardruck p_K , der sich aus dieser Differenz ergibt, lässt sich mit Hilfe der Laplace-Gleichung als Funktion der Oberflächenspannung der benetzenden Phase σ_l und den Krümmungsradien (r_1 , r_2), dargestellt in Abbildung 2.1, beschreiben.

$$p_K = p_v - p_l = \sigma_l \left(\frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2} \right) \quad (2.6)$$

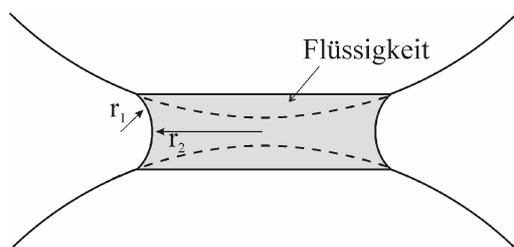


Abbildung 2.1: Krümmungsradien der Laplace-Gleichung

Ausschlaggebend für die Krümmungsradien sind die Flüssigkeitsbindung und die Phasenverteilung in den porösen Schichten, die von der Benetzbarkeit der Feststoffmatrix abhängt. Abbildung 2.2 zeigt eine schematische Darstellung möglicher Flüssigkeitsverteilungen in einem Haufwerk.

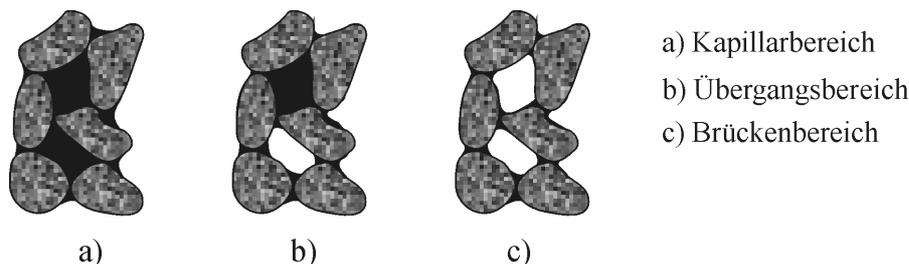


Abbildung 2.2: Verteilung der fluiden Phasen im porösen Medien [Schu82]

Im Kapillarbereich ist der Hohlraum soweit mit Flüssigkeit ausgefüllt, dass noch keine Flüssigkeitsbrücken vorhanden sind. Die nicht benetzende Phase, die nicht im Kontakt zum Feststoff ist, liegt als residuale Phase inselförmig vor. Erniedrigt man den Flüssigkeitsanteil, gelangt man in den Übergangsbereich, in dem sich erste Brücken bilden. Die Flüssigkeit ist aber in der Regel immer noch in den Zwickeln miteinander verbunden. Bei hinreichend kleinem Flüssigkeitsgehalt existieren schließlich nur noch hydraulisch isolierte Bereiche, die immobil sind und mechanisch nicht mehr entfernt werden können.

Beschreiben lassen sich diese Zustände mit Hilfe des Sättigungsgrades s_i , der das Verhältnis des Volumens der fluiden Phase V_i zum gesamten Hohlraumvolumen V_H darstellt.

$$s_i = \frac{V_i}{V_H} = \frac{V_i}{V_H + V_P} \quad (2.7)$$

Für den hier behandelten Fall einer gasförmigen und einer flüssigen Phase existieren umfangreiche experimentelle und theoretische Untersuchungen des Zusammenhanges zwischen Phasenverteilung und Kapillardruck [Schu82, Lev40].

Die Hohlräume in einem Haufwerk lassen sich vereinfachend als ein System von parallelen Kapillaren mit variierenden Abmessungen und unzähligen Querverbindungen begreifen. Durch diese Vernetzungen sind die Unterschiede der kapillaren Steighöhen nicht größer als wenige Partikeldurchmesser. Der Kapillardruck in einem porösen Medium ist somit keine konstante Größe mehr, sondern eine Funktion des Sättigungsgrades. Abbildung 2.3 zeigt eine Kapillardruckkurve in einem Haufwerk mit der Flüssigkeit als benetzender Phase.

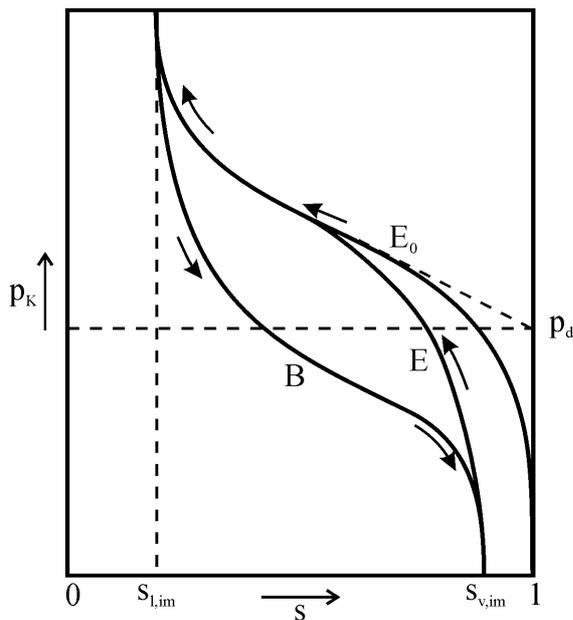


Abbildung 2.3: Kapillardruckkurve eines Haufwerkes

Bei der Entwässerung eines vollständig gesättigten Porensystems ($s_l = 1$) durch eine von außen aufgeprägte Kraft steigt der Kapillardruck entlang der Entfeuchtungskurve (E_0) zunächst steil an und an den Porenhälsen bilden sich erste Flüssigkeitsmenisken aus. Im weiteren Verlauf werden zuerst die großen Poren entfeuchtet, bis schließlich die kleineren zugänglich sind. Ab Erreichen der immobilen Restsättigung $s_{im,l}$, lässt sich durch äußeren Druck keine weitere Flüssigkeit mehr entziehen, da nur noch hydraulisch isolierte Flüssigkeitsbrücken vorliegen. Wird dem Haufwerk anschließend wieder Wasser zugegeben, gelangt man auf der kapillaren Befeuchtungskurve (B) bis zur Endsättigung $s_{im,v}$ der Gasphase. Da durch Gaseinschlüsse nicht alle Poren mit Flüssigkeit gefüllt werden können, wird der Zustand vollständiger Sättigung nicht mehr erreicht. Bei erneuter Entwässerung (E) gelangt man wieder auf die erste Entfeuchtungskurve.

Die gängigsten Modelle zur Parametrisierung des Zusammenhanges zwischen Sättigung und Kapillardruck eines Zweiphasensystems bestehend aus einer wässrigen Phase und einer Gasphase sind die Ansätze von Brooks und Corey [BC64]

$$p_K = p_d \left(\frac{s_l - s_{im,l}}{1 - s_{im,l}} \right)^{-1/\lambda} \quad (2.8)$$

sowie von Van Genuchten [Gen80].

$$p_K = \frac{1}{g} \left[\left(\frac{s_l - s_{im,l}}{1 - s_{im,l}} \right)^{-1/m} - 1 \right]^{1-m} \quad (2.9)$$

Die in den Gleichungen (2.8) und (2.9) enthaltenen Parameter dienen der Charakterisierung der Geometrie des Porenraums und werden aus der Anpassung experimenteller Daten gewonnen. So stellen die Koeffizienten g und m ein Maß für die Partikelgrößenverteilung und p_d den kapillaren Eintrittsdruck, bei dem die benetzende Phase aus den größeren Poren ausgetrieben werden kann, dar. Nachteilig bei diesen Modellen ist, dass sie die bei den Be- und Entfeuchtungsprozessen auftretenden Hystereseeffekte in der Kapillardruckkurve nicht wiedergeben können. Wyllie [Wyl62] konnte jedoch an den von ihm untersuchten Gesteinsproben mittlerer Porengröße zeigen, dass bei der Durchströmung annähernd identische Zustände vorliegen, weshalb davon ausgegangen wird, dass eine explizite Abbildung der Hysterese im Rahmen dieser Arbeit nicht erforderlich ist.

Aus experimentellen Untersuchungen [Schu82] an Glaskugelschüttungen ergibt sich für den kapillaren Eintrittsdruck p_d in Abhängigkeit der Korngröße d_p , der Porosität ε und der Oberflächenspannung σ :

$$p_d = 6,97 \cdot \frac{1 - \sigma}{0,85} \cdot \frac{1}{d_p} \quad (2.10)$$

Die Abbildung 2.4 zeigt entsprechend die isobaren Kapillarlinien in dem Bereich der untersuchten mittleren Partikeldurchmesser und Lückengrade.

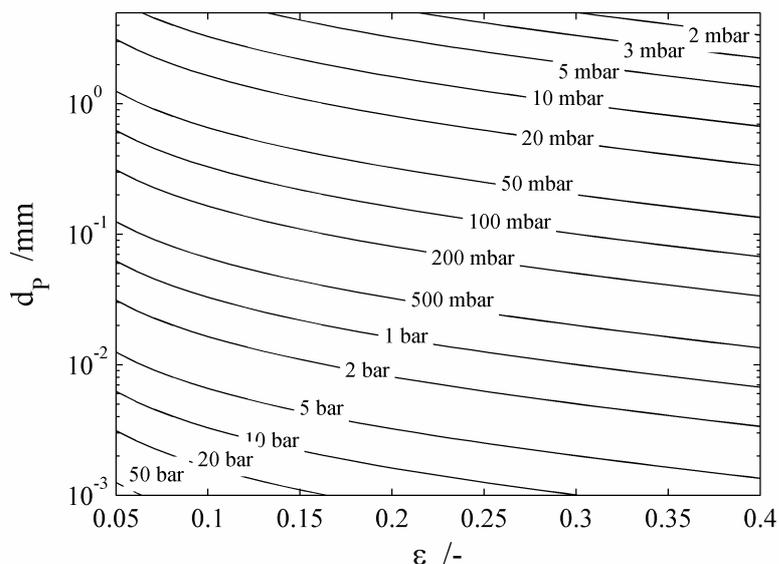


Abbildung 2.4: Kapillarer Eintrittsdruck in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers und der Porosität gemäß Gleichung (2.10)

2.3 Durchströmung poröser Medien

Zur Beschreibung des Druckabfalls bei Strömungsprozessen in porösen Medien wird aufgrund der Komplexität realer Schüttgüter häufig auf empirische Ansätze zurückgegriffen. Es existieren zwar auch eine Reihe theoretischer Überlegungen zur Modellbildung, jedoch stellt gerade die exakte Berechnung geometrisch komplexer Systeme und eine hinreichend detaillierte Abbildung des porösen Mediums hohe Anforderungen an die Rechenkapazität.

Einige dieser theoretischen Ansätze basieren auf Verwendung der Navier-Stokes-Gleichungen. So entwickelte [Dul88] eine Lösung für eine ausgebildete inkompressible Strömung eines newtonschen Fluids in einem starren porösen Medium. Brauer [Bra71] beschreibt ausgehend von dem Spezialfall der Umströmung einzelner Kugeln die Durchströmung von Schüttschichten und Drahtgeweben. Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen zur Beschreibung des Einflusses poröser Medien eignen sich die empirischen Ansätze zur Modellierung des Impulstransportes daher besser als die rein theoretischen Betrachtungen. Im Folgenden werden die Grundlagen und Zusammenhänge der empirischen Impulsbilanzen für die ein- und mehrphasige Durchströmung dargestellt.

2.3.1 Einphasige Durchströmung

Die Grundlage der Formulierung empirischer Impulsbilanzen bilden die experimentellen Untersuchungen von Darcy [Dar56]. Er beobachtete bei der Durchströmung einer vertikalen homogenen Sandschüttung mit Wasser einen linearen Zusammenhang zwischen dem Druckgradienten p/x und der auf den Leerrohrquerschnitt bezogenen Anströmgeschwindigkeit u_0 .

$$-\frac{\partial p}{\partial x} = \frac{\mu}{K} \cdot u_0 \quad (2.11)$$

Unter Berücksichtigung der dynamischen Viskosität μ lässt sich als Proportionalitätskonstante die Permeabilität K definieren.

Obwohl die Permeabilität eine fluidunabhängige Stoffeigenschaft des porösen Mediums ist, wie Muskat [Mus49] bei der Untersuchung grobkörniger Gesteinsproben bestätigte, wurden vielfach Unterschiede bei sehr niedrigen Strömungsgeschwindigkeiten zwischen Gasen und Flüssigkeiten beobachtet [FL33]. Die Ursache hierfür wurde, unter der Voraussetzung, dass zwischen porösem Medium und der Flüssigkeit keine Reaktionen stattfinden, anfangs auf Messungenauigkeiten zurückgeführt. Klinkenberg [Kli41] beobachtete jedoch besonders bei Stoffen niedriger Permeabilität Wechselwirkungen des Gases mit dem porösen Medium, wenn die mittlere freie Weglänge der Moleküle nicht vernachlässigbar klein im Vergleich zur Porengröße ist. Die wahre Permeabilität erhält man bei einer Auftragung der Messwerte gemäß Gleichung (2.11) durch Extrapolation der Strömungsgeschwindigkeit gegen Null. Für detailliertere Ausführungen wird, mit dem Hinweis auf das „Dusty-Gas-Modell“ zur Beschreibung von Diffusionsvorgängen, auf [CW80] verwiesen.

Die Anwendung des Gesetzes von Darcy ist auf rein laminare Strömungen beschränkt, bei denen die Reibungskräfte dominieren. Dieser Bereich wird auch als „viscous flow“ bezeichnet. Eine Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit führt zum Abweichen vom linearen Verhalten und Trägheitskräfte gewinnen zunehmend an Bedeutung, bis diese beim Erreichen einer turbulenten Strömungsform dominieren („inertial flow“). Bear [Bea72] vermutet als Ursache, dass die Trägheitskräfte zu Ablösungen an den Stellen des Porenraumes führen, an denen sich Verzweigungen oder Richtungsänderungen der Strömung ergeben.

Forchheimer [For01] untersuchte das Verhalten bei sehr großen Druckgefällen und stellte fest, dass die Permeabilität keine Konstante mehr sei. Er schlug daher Zusammenhänge höherer Ordnung zwischen Druckgradient und Strömungsgeschwindigkeit vor, siehe Gleichungen (2.12) bis (2.14).

$$-\frac{\partial p}{\partial x} = c_1 \cdot u + c_2 \cdot u^2 \quad (2.12)$$

$$-\frac{\partial p}{\partial x} = c_1 \cdot u + c_2 \cdot u^2 + c_3 \cdot u^3 \quad (2.13)$$

$$-\frac{\partial p}{\partial x} = c_1 \cdot u^{c_2} \quad (2.14)$$

Unabhängig voneinander wurden in mehreren Arbeitsgruppen die Abweichungen vom Darcy-Gesetz für höhere Strömungsgeschwindigkeiten untersucht. Ruth und Ma [RM92] gingen von geschwindigkeitsabhängigen Permeabilitäten aus. Dudgeon [Dud66] dagegen favorisierte Gleichung (2.14) und schlug für die verschiedenen Strömungsbereiche unterschiedliche Exponenten vor. Brauer [Bra71] stellt verschiedene Widerstandsgesetze für die Zusammenhänge zwischen Druckverlust und Strömungsgeschwindigkeit, ausgehend von der Strömung in Rohren, gegenüber. Weitere Gesetzmäßigkeiten, analog zum Darcy-Gesetz und Ansätze zur Berücksichtigung des Trägheitseffektes, gibt Kavany [Kav95].

Aufbauend auf den semiheuristischen Konzepten von Forchheimer entwickelte sich unter Berücksichtigung eines „non-Darcy flow coefficient“ [Gee74,]

$$-\frac{\partial p}{\partial x} = \frac{\mu}{K} \cdot u_0 + \dots \cdot u_0^2 \quad (2.15)$$

bzw. in Analogie zur Definition der Permeabilität unter Verwendung der Passabilität [SM87, BS87] die so genannte Ergun-Forchheimer-Gleichung.

$$-\frac{\partial p}{\partial x} = \frac{\mu}{K} \cdot u_0 + \dots \cdot u_0^2 \quad (2.16)$$

Neben den Stoffwerten Dichte ρ und dynamische Viskosität μ des Fluids bestimmen Permeabilität K und Passabilität β den Zusammenhang zwischen dem Druckgradienten und der Anströmgeschwindigkeit u_0 . K und β sind ausschließlich Konstanten des porösen Mediums, die von den Eigenschaften Porosität, Poren- oder Partikelgrößenverteilung des Haufwerkes sowie Oberfläche und Form der Partikel abhängen. Wobei die Permeabilität ein Maß für den Durchströmungswiderstand infolge der Reibungskräfte ist und die Passabilität die Verluste durch Trägheitseffekte beschreibt.

Die Abgrenzung der verschiedenen Strömungsgebiete ist mit der Reynoldszahl Re als dimensionsloses Verhältnis von Trägheits- und Zähigkeitskräften möglich. Im Rahmen dieser Arbeit wird sie analog zu der einer Rohrströmung durch Anströmgeschwindigkeit u_0 , Dichte ρ , dynamische Viskosität μ sowie charakteristischen Durchmesser d gebildet.

$$Re = \frac{u_0 \cdot d \cdot \rho}{\mu} \quad (2.17)$$

Der haufwerksspezifische Durchmesser d wird sehr unterschiedlich definiert, mit der Konsequenz, dass in der Literatur keine einheitlichen Werte für die Abgrenzung der Strömungsregime zu finden sind. Weit verbreitet ist die Verwendung von Haufwerkskenngrößen wie dem mittleren Partikeldurchmesser d_{32} [Kav95] oder auch von Längen zur Beschreibung der Strömungskanäle $d = \sqrt{K/\beta}$ [Col61], $d = \sqrt{K}$ [WA64] sowie dem hier bevorzugten hydraulischen Durchmesser d_H [Bra71]. In Anlehnung an die allgemeine Definition wird die Reynoldszahl in [Gee74] als Anteil des „inertial flow“ zum „viscous flow“ formuliert, wodurch sich dann als charakteristische Länge das Verhältnis Permeabilität zu Passabilität, $d = K/\beta$, ergibt.

Dybb's und Edwards unternahmen den Versuch der Strömungssichtbarmachung mittels einer Laseranemometrie in geordneten Schüttungen aus Plexiglaskugeln [DE84] und identifizierten, neben den bereits beschriebenen, zwei weitere Strömungsgebiete. Fand et al. [FKL⁺87] ergänzten die Regime um das von Bear [Bea72] und Klinkenberg [Kli41] beschriebene Phänomen, so dass sich abschließend folgende Übersicht ergibt, vgl. Abbildung 2.5.

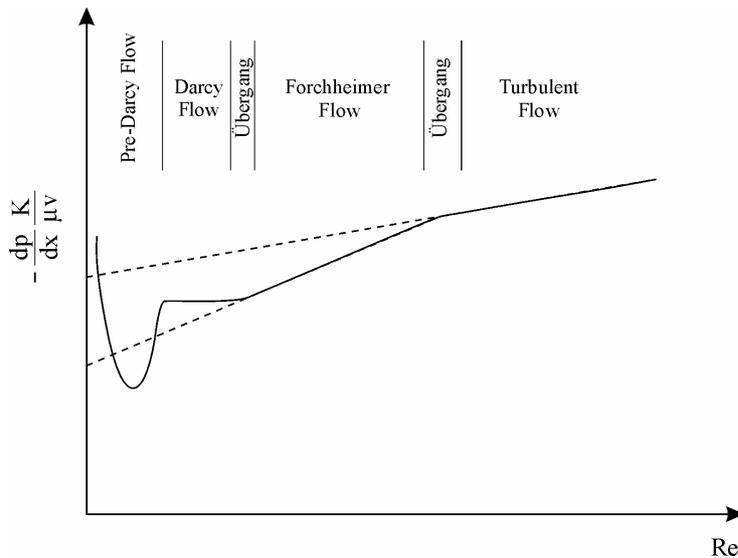


Abbildung 2.5: Regime der Durchströmung poröser Medien [KJ94]

Im „Pre-Darcy-Bereich“ der sehr niedrigen Durchströmungsgeschwindigkeiten prägen die Wechselwirkungen zwischen Fluid und Haufwerk („molecular streaming“) das Verhalten. Im anschließenden „Darcy-Regime“ dominieren die viskosen Reibungskräfte. Ab mit d_{32} gebildeten Reynoldszahlen von etwa 1 bis 10 beginnt das „inertial flow regime“ und erste Grenzschichten in den Poren werden gebildet. Die Folge ist ein nichtlinearer Zusammenhang zwischen dem Druckgradient und der Strömungsgeschwindigkeit. Dieses „Forchheimer-Regime“, das auch als „steady nonlinear flow regime“ bezeichnet wird, reicht bis Re von ungefähr 200 und wird dann vom „unsteady laminar flow regime“ abgelöst, in dem bereits erste Wirbel zu beobachten sind. Ab $Re > 350$ liegt eine turbulente Strömung vor.

2.3.2 Mehrphasige Durchströmung

In einem Mehrphasensystem sind die Hohlräume der Haufwerksmatrix mit mehreren, nicht mischbaren Fluiden gefüllt. Bei der Durchströmung müssen sie sich das zur Verfügung stehende freie Hohlraumvolumen teilen und es kommt durch deren gegenseitige Beeinflussung zu Wechselwirkungen an den Phasengrenzflächen. Zur Beschreibung des Impulstransports ist es deshalb erforderlich, die Strömungszustände anhand der Phasenverteilung mit Hilfe der Sättigung s_i der jeweiligen Phase, vgl. Gleichung (2.7), genauer zu charakterisieren. Abbildung 2.6 zeigt schematisch in Anlehnung an Dracos [BB91] die Verteilung eines Zweiphasensystems in einem Haufwerk bestehend aus Wasser als benetzender und Luft als nicht-benetzender Phase.

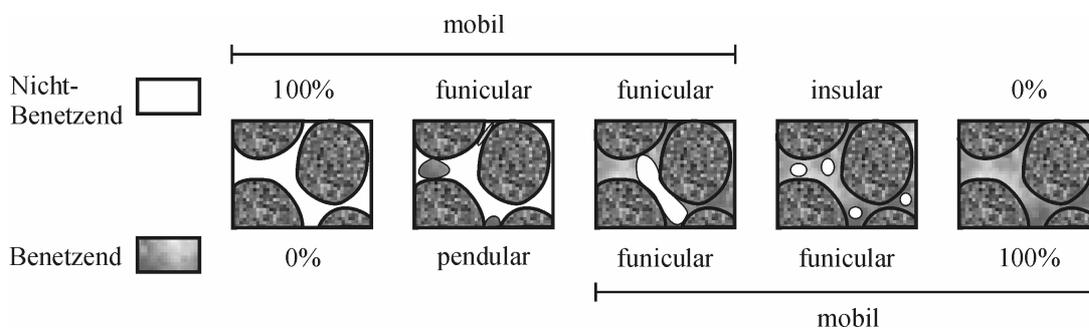


Abbildung 2.6: Phasenverteilung im Haufwerk

Das Strömungsverhalten dagegen hängt neben der Sättigung auch vom Verhältnis der Volumenströme und der Benetzbarkeiten ab. Nach Dullien [Dul88] können dabei die vier in Abbildung 2.7 schematisch dargestellten Fälle in Abhängigkeit der Benetzbarkeit unterschied-

den werden. Für den Fall, dass beide Fluide mobil sind, Abbildung 2.7 d), unterscheiden Tung und Dhir [TD88] ferner zwischen „bubbly“, „slug“ und „annular flow“.

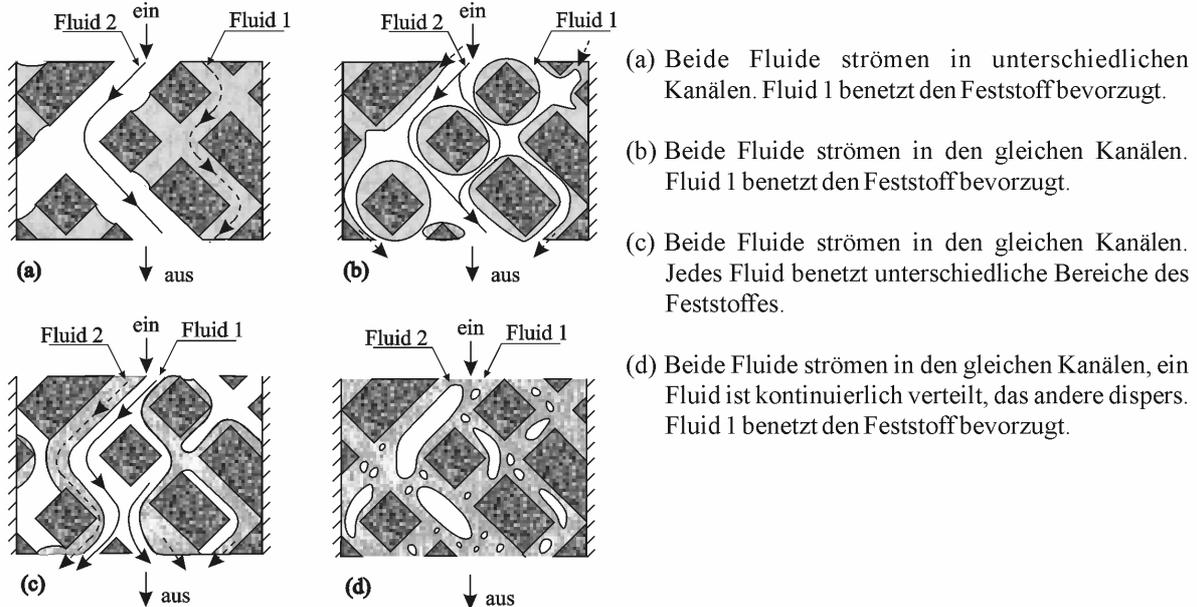


Abbildung 2.7: Varianten der mehrphasigen Durchströmung in porösen Medien [Dul88]

Rechnung getragen wird dem Vorhandensein mehrerer Phasen und deren gegenseitiger Beeinflussung in der Impulsbilanz mit dem Konzept der effektiven Permeabilitäten [WB36].

$$K_{eff,i} = K \cdot k_{rel,i} \quad (2.18)$$

Die effektiven Durchströmungswiderstände $K_{eff,i}$ jeder Phase ergeben sich dabei aus der intrinsischen Haufwerksgröße K der Einphasenströmung und den relativen Permeabilitäten $k_{rel,i}$. Sie sind dabei im Wesentlichen abhängig von der Verteilung der fluiden Phasen im Haufwerk, also der Sättigung s_i , und ob es sich um einen Be- oder Entwässerungsvorgang handelt [NWH62, JS90]. Des Weiteren hängen sie von den kapillaren Eigenschaften des porösen Mediums [Lev40], dem Verhältnis der Viskositäten [Pre73] sowie den Benetzungseigenschaften [OA71], also der Oberflächenspannung und dem Randwinkel zwischen Matrix und Fluid, ab. In Abbildung 2.8 ist der Verlauf der relativen Permeabilitäten einer Luft-Wasser-Strömung in Abhängigkeit von der Phasenverteilung in einem Haufwerk dargestellt.

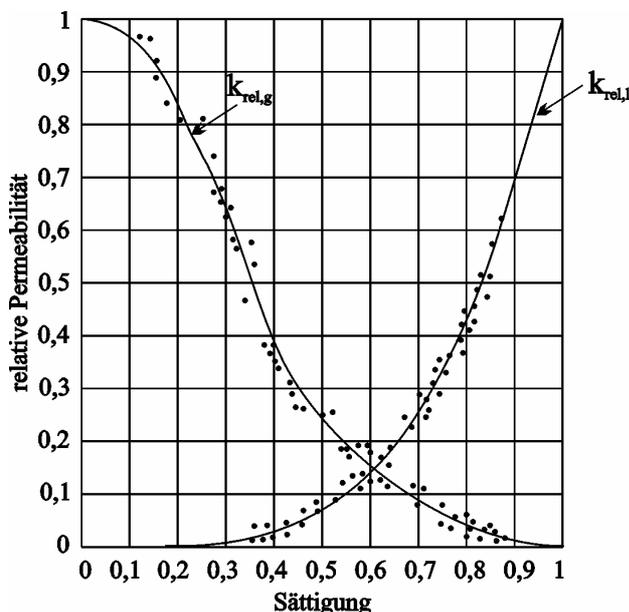


Abbildung 2.8:
Relative Permeabilitäten in Abhängigkeit der Sättigung einer Zweiphasenströmung nach [WB36]

Auffallend ist, dass bei einem niedrigen Volumenanteil der benetzenden Phase, in diesem Fall Wasser, die relative Permeabilität $k_{rel,l}$ nur sehr langsam ansteigt, während bei fast vollständiger Sättigung eine starke Zunahme erfolgt. Die Ursache hierfür ist in den kapillaren Eigenschaften zu sehen, die dazu führen, dass das Wasser bevorzugt die kleineren Poren belegt, in denen eine Strömung ohnehin schwer möglich ist. In dem Bereich kleiner Sättigungen ist die Wahrscheinlichkeit, zusammenhängende Flüssigkeitsbrücken zu finden, sehr gering und der hydraulische Kontakt geht verloren, weshalb die relative Permeabilität annähernd null ist. Erst bei höheren Sättigungen kommt es zu den konkurrierenden Wechselwirkungen in den größeren Poren, die beiden Phasen für die Durchströmung zur Verfügung stehen, weshalb erst nach Überschreiten der immobilen Sättigung der flüssigen Phase eine signifikante Einflussnahme erfolgt. Entsprechend lässt sich das Verhalten der nichtbenetzenden Phase erklären. Auch hier gibt es analog einen Bereich der kritischen Gassättigung, ab der die nicht benetzende Phase immobil vorliegt [Wyl62]. Jedoch wirkt sich bereits ein geringer Volumenanteil der Gasphase wesentlich stärker auf das Durchströmungsverhalten der flüssigen aus. Experimentelle Beobachtungen zeigen, dass sich bei einer Belegung von bis zu 20% des Hohlraumvolumens durch eine immobile Phase die Haufwerkskenngrößen verdreifachen können [EE88]. Berücksichtigung findet dies durch Verwendung der effektiven Sättigung $s_{eff,i}$, bei deren Beschreibung der Anteil der immobilen Sättigung $s_{im,i}$ eingeht.

$$s_{eff,i} = \frac{s_i - s_{i,im}}{1 - s_{i,im}} \quad (2.19)$$

Es wird auch in Abbildung 2.8 deutlich, dass die Summe der relativen Permeabilitäten stets kleiner 1 ist, d.h. dass gegenüber der Einphasenströmung ein Exzesswiderstand auftritt.

Die Ansätze zur Formulierung einer Zweiphasenströmung können in zwei Gruppen unterteilt werden. Die der ersten Gruppe basieren auf den Konzepten von Burdine [Bur53], Wyllie und Gardner [WG58] sowie Mualem [Mua76], die mit Hilfe der Kapillardruckkurven Beziehungen zwischen der relativen Permeabilität und der Sättigung entwickelten. Gemäß Burdine ergibt sich für die Strömung einer benetzenden flüssigen (l) und einer nichtbenetzenden gasförmigen (v) Phase:

$$k_{rel,l} = s_{eff,l}^2 \frac{\int_0^{s_{eff,l}} \frac{ds_{eff,l}}{p_K^2}}{\int_0^1 \frac{ds_{eff,l}}{p_K^2}}; \quad k_{rel,v} = (1 - s_{eff,l}^2)^{s_{eff,l}} \frac{\int_0^1 \frac{ds_{eff,l}}{p_K^2}}{\int_0^1 \frac{ds_{eff,l}}{p_K^2}} \quad (2.20a, b)$$

Mit Hilfe der Gleichungen (2.20a, b) und einer geeigneten Parametrisierung der Kapillardruckkurven, z.B. gemäß Brooks/Corey, Gleichung (2.8), oder van Genuchten, Gleichung (2.9), lassen sich nach einer analytischen Integration Ausdrücke für die relativen Permeabilitäten bestimmen, vgl. Tabelle 2.1. Einen Überblick über die bekanntesten Modelle geben Chen et al. [CHG99].

Die zweite Gruppe basiert auf empirischen Abhängigkeiten der relativen Permeabilität von der Sättigung. Die für die weiteren Betrachtungen im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Ansätze sind Potenzfunktion folgender Gestalt:

$$k_{rel,l} = s_{eff,l} \quad \text{und} \quad k_{rel,v} = (1 - s_{eff,v}) \quad (2.21a, b)$$

Eine umfassende Zusammenstellung der gängigsten Ansätze gibt Kavany [Kav95]. Wie die experimentellen Untersuchungen von Averjanow [Ave50] mit $n = 3,5$ oder die theoretische Herleitung durch Imray [Im54] mit $n = 3,0$ liefern die meisten dieser Studien Werte für die Exponenten in Abhängigkeit des porösen Mediums zwischen 2 und 4 [SC85, Piq94]. Eine Übersicht verschiedener sowohl analytischer als auch empirischer Ansatzfunktionen weiterer Autoren gibt Tabelle 2.1.

Tabelle 2.1: Vergleich verschiedener Ansätze der relativen Permeabilitäten

	Flüssige Phase	Gasphase
Van Genuchten-Burdine (VGB)	$k_{rel,l} = s_{eff,l}^2 \left[1 - \left(1 - s_{eff,l}^{1/m} \right)^m \right]$	$k_{rel,v} = \left(1 - s_{eff,v} \right)^2 \left(1 - s_{eff,v}^{1/m} \right)^m$
Brooks/Corey-Burdine (BCB)	$k_{rel,l} = s_{eff,l}^{3+2/}$	$k_{rel,v} = \left(1 - s_{eff,v} \right)^2 \left(1 - s_{eff,v}^{1+2/} \right)$
	$k_{rel,l} = s_{eff,l}$	$k_{rel,v} = \left(1 - s_{eff,l} \right)$
Scheidegger (1974)	$k_{rel,l} = s_{eff,l}^3$	$k_{rel,v} = 1 - 1,11 \cdot s_{eff,l}$
Verma et al. (1984)	$k_{rel,l} = s_{eff,l}^3$	$k_{rel,v} = 1,2984 - 1,9832 \cdot s_{eff,l} - 0,7432 \cdot s_{eff,l}^2$
Mualem (1976)		$k_{rel,v} = \sqrt{1 - s_{im,l} - s_{im,v} - s_{eff,l}} \cdot \left\{ \left(1 - s_{eff,l}^{1/m} \right)^m - \left[1 - \left(1 - s_{im,l} - s_{im,v} \right)^{1/m} \right]^m \right\}^2$

Bedingt durch den reduzierten freien Durchströmungsquerschnitt erhöhen sich zwangsläufig auch die Strömungsgeschwindigkeiten der fluiden Phasen in den Poren und gerade bei erhöhten Volumenströmen sind Abweichungen zwischen den oben dargestellten Modellen und experimentellen Untersuchungen zu beobachten. Analog zu den Einphasenströmungen wird auch für die trägheitsdominierte Strömung ein effektiver Durchströmungswiderstand, die effektive Passabilität $s_{eff,i}$, eingeführt.

$$s_{eff,i} = \dots \cdot s_{rel,i} \quad (2.22)$$

Die Beschreibung der relativen Passabilität $s_{rel,i}$ erfolgt ebenfalls unter Verwendung empirischer Potenzansätze, wobei sich für die Exponenten aufgrund verschiedener experimenteller Untersuchungen Werte zwischen 3 und 6 [SM87] ergeben.

$$s_{rel,l} = s_{eff,l} \quad \text{und} \quad s_{rel,v} = (1 - s) \quad (2.23a, b)$$

Letztendlich bleiben für eine Zweiphasenströmung vier zu bestimmende Anpassungsparameter, zwei für die flüssige Phase, $s_{rel,l}$, $s_{eff,l}$, sowie $s_{rel,v}$, $s_{eff,v}$ für die Gasphase. Die relativen Kenngrößen sind analog zur Permeabilität und Passabilität neben den Eigenschaften des porösen Systems auch von den Stoffwerten der Strömungsmedien abhängig. So beeinflusst das Verhältnis der Dichten die Trägheitskräfte und das Verhältnis der Viskositäten die relativen Strömungsgeschwindigkeiten sowie die Scherkräfte an den Phasengrenzflächen. Der Vergleich mit Literaturdaten ist dabei problematisch, da sich sowohl Mess- als auch Auswertemethoden unterscheiden.

Evans und Evans [EE88] gingen dagegen in ihren Untersuchungen nur von einer beweglichen gasförmigen Phase aus, während die flüssige immobil bleibt. Geertsma [Gee74] fand für diesen Fall für die relative Passabilität der Gasphase:

$$s_{rel,v} = \frac{5,5 \cdot \sqrt{K \cdot k_{rel,v}}}{0,005} \cdot (1 - s)^{5,5} \quad (2.24)$$

Eine weitere Möglichkeit die relative Permeabilität zu bestimmen, ist die Betrachtung einer Strömung, bei der die Trägheitseffekte im Vergleich zu den viskosen Kräften vernachlässigbar sind [Lip84]. Hierbei müsste jedoch die kritische Reynoldszahl gefunden werden, die den Übergang kennzeichnet, was schon bei der einphasigen Strömung schwierig ist. Ein zweiter wesentlicher Einwand gegen diese Methode ist, dass der experimentell bestimmte Datensatz für eine zuverlässige Bestimmung der Exponenten deutlich eingeschränkt wird.

Zur näheren Beschreibung der konkurrierenden Strömungsphasen existieren verschiedene Ansätze. Whitaker [Whi86] und Kalaydjian [Kal90] verfolgen einen Ansatz, in dem sie die

3 Einflussgrößen der Durchströmung poröser Medien

Nachdem die Grundlagen zur Modellbildung der Ein- und Mehrphasenströmungen dargelegt worden sind, stellt sich die Frage der physikalischen Bedeutung der Haufwerkskonstanten Permeabilität und Passabilität. Hierzu gibt es eine Vielzahl sowohl experimenteller als auch theoretischer Untersuchungen zur Ermittlung der Einflüsse der Haufwerkeigenschaften. Für einfache Geometrien lassen sich noch theoretisch Ansätze ableiten und verifizieren. Ausgehend von einem mittleren Partikeldurchmesser und der Porosität sind diverse Ansätze zur Berechnung von K und β entstanden.

3.1 Kapillarmodell

Eine Darstellung des Stofftransportes in Haufwerken ist in Analogie zur Durchströmung von Kanälen zu sehen, wobei sich die poröse Struktur durch die Einführung geeigneter Faktoren berücksichtigen lässt. So basieren einige Ansätze auf dem Gesetz von Hagen-Poiseuille zur Beschreibung von Strömungen in Kapillaren [Kav95] und auf den Arbeiten von Kozeny und Carman [Car37].

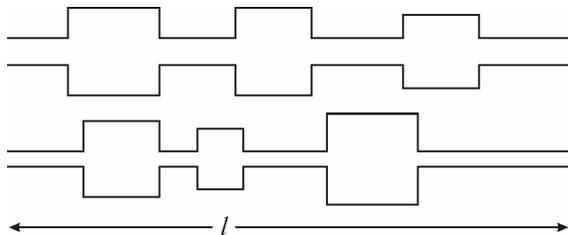


Abbildung 3.1:
Modell zur Durchströmung nichtgerader Kapillaren

Unter der Modellannahme, dass das Haufwerk aus einer Anordnung einzelner nichtgerader Kapillaren mit dem mittleren Durchmesser d und der Länge l besteht, lässt sich Gleichung (3.1) formulieren.

$$p_0 - p_1 = \frac{\lambda}{2} \cdot u^2 \cdot \frac{l}{d} \cdot \left(\frac{1}{\beta} + \beta \right) \quad (3.1)$$

bezeichnet den Widerstandsbeiwert der laminaren Durchströmung als Funktion der Reynoldszahl Re , siehe Gleichung (3.2), und β die Verlustziffer oder Formwiderstandsbeiwert durch Ablösungen hinter den Haufwerkspartikeln bzw. durch die auftretenden Porenerweiterungen.

$$\lambda = \frac{64}{Re} \quad (3.2)$$

Unter Verwendung des hydraulischen Durchmessers und der Anström- u_0 anstelle der Porengeschwindigkeit u

$$u_0 = u \cdot \beta \quad (3.3)$$

und für den Fall einer inkompressiblen Flüssigkeitsströmung

$$\frac{p_0 - p_1}{l} = \frac{32 \mu}{d_H^2} \cdot u_0 + \frac{\lambda}{2 d_H} \cdot u_0^2 \quad (3.4)$$

ergeben sich im Vergleich zu der Ergun-Forchheimer-Gleichung folgende Abhängigkeiten für Permeabilität und Passabilität.

$$K = \frac{1}{A} \cdot \frac{d_p^3}{(1 - \epsilon)^2} \cdot d_p^2; \quad \beta = \frac{1}{B} \cdot \frac{d_p^3}{1 - \epsilon} \cdot d_p \quad (3.5a, b)$$

Wird zudem berücksichtigt, dass das poröse Medium von den Modellvorstellungen geradlinig verlaufender Kanäle abweicht und aus mäandrierenden Strömungsporen besteht, lassen sich A und B mit den Gleichungen (3.6 a, b) beschreiben.

$$A = 72 \cdot \quad ; \quad B = 3/4 \cdot \quad \quad (3.6a, b)$$

Unter der Annahme eines Verlustfaktors von $\lambda = 1$ und dass die Strömungswege um den Umwegfaktor $\lambda = 2,5$ länger sind, leitet Kozeny [Koz27] die Parameter theoretisch ab, siehe Tabelle 3.1. Ergun [Erg52] und Macdonald et al. [MEM79⁺] bestimmten die Konstanten empirisch für unterschiedliche Haufwerke, wobei Macdonald für ingenieurtechnische Anwendungen zwischen rauen und glatten Partikeloberflächen unterscheidet.

Tabelle 3.1: Parameter nach Kozeny, Ergun und Macdonald

	Kozeny	Ergun	Macdonald
A	180	150	180
B	1,875	1,75	1,8 (glatt); 4,0 (rau)

Geeignet sind diese Korrelationen jedoch nur zur Beschreibung des Strömungsdruckverlusts in homogenen Schüttungen. Wie aus Tabelle 3.1 ersichtlich wird, sind die Koeffizienten selbst für ähnliche poröse Medien je nach Quelle unterschiedlich. Letztendlich ist somit die experimentelle Bestimmung unerlässlich.

Zur Modellierung realer Schüttgüter sind diese Modelle jedoch nicht hinreichend genau. Auf Basis einer Dimensionsanalyse lassen sich ferner als geometrische Einflussgrößen zur Charakterisierung einer Schüttung der mittlere Partikeldurchmesser sowie Parameter der Korngrößenverteilung, Formparameter der Körnung, Struktur und mittlere Porosität der Packung identifizieren [RG71].

Aufgrund der umfangreichen Diskussionen dieser Parameter in der Literatur, einerseits durch experimentelle Untersuchungen [Car37, Erg52, MEM79⁺, RG71], andererseits durch eine verstärkte Modellierung [BB86a, BB86b, TM98], soll im Folgenden versucht werden, die einzelnen Einflüsse darzulegen und gegeneinander abzugrenzen.

3.2 Struktureigenschaften poröser Medien

Unter dem Begriff der Struktureigenschaften werden die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Kenngrößen der porösen Matrix verstanden. Es handelt sich hierbei sowohl um die geometrischen Abmessungen der Partikel und deren Oberflächeneigenschaften, als auch um die Haufwerksfaktoren Anteil und Größe des für die Durchströmung zur Verfügung stehenden Volumens.

3.2.1 Partikelgeometrie

Ein fundamentales Problem der Verwendung eines charakteristischen Durchmessers gerade bei Schüttgütern mit Partikelgrößenverteilungen zu deren Beschreibung und besonders bei von der idealen Kugelgestalt abweichenden Partikeln ist, wie in Kapitel 2.1 bereits kurz erwähnt, seine Definition. Für Ergun [Erg52] ist das Konzept des mittleren hydraulischen Durchmessers hinreichend genau, wohingegen bei ingenieurtechnischen Berechnungen vereinfachend auf einen aus einer Siebanalyse bestimmten mittleren Partikeldurchmesser zurückgegriffen wird [Bra71, MEM79⁺]. Eine umfangreiche Diskussion hierzu ist bei Muskat [Mus49] zu finden. Rumpf und Gupte [RG71] führten Untersuchungen mit unterschiedlichen Partikelverteilungen durch, mit dem Ergebnis, das zusätzlich zu einem charakteristischen Durchmesser ebenfalls noch Formverteilungsparameter zu beachten sind. Aus diesen Gründen erwies sich für die hier durchgeführten Untersuchungen der Sauterdurchmesser d_{32} gemäß Gleichung (2.2) als idealer repräsentativer Äquivalentdurchmesser der verwendeten Schüttgüter.

Zur Bestimmung der Haufwerksparameter A und B , vgl. Tabelle 3.1, wählten Ergun [Erg52], Macdonald et al. [MEM79⁺] und Brauer [Bra71] dimensionslose Darstellungen der Druckverlustcharakteristika in Analogie zur Ermittlung der Widerstandsbeiwerte f_K von Strömungen

durch Kanäle und Rohre, siehe Abbildung 3.2. Die Abbildung fasst die Ergebnisse verschiedener experimenteller Untersuchungen, bei denen neben der Partikelgröße auch deren Geometrie variiert wurde, zusammen. Sie zeigt auch die beiden durch viskose und Trägheitskräfte dominierten Strömungsbereiche, die sich zum gesamten Druckverlust zusammensetzen, als Funktion der Reynoldszahl.

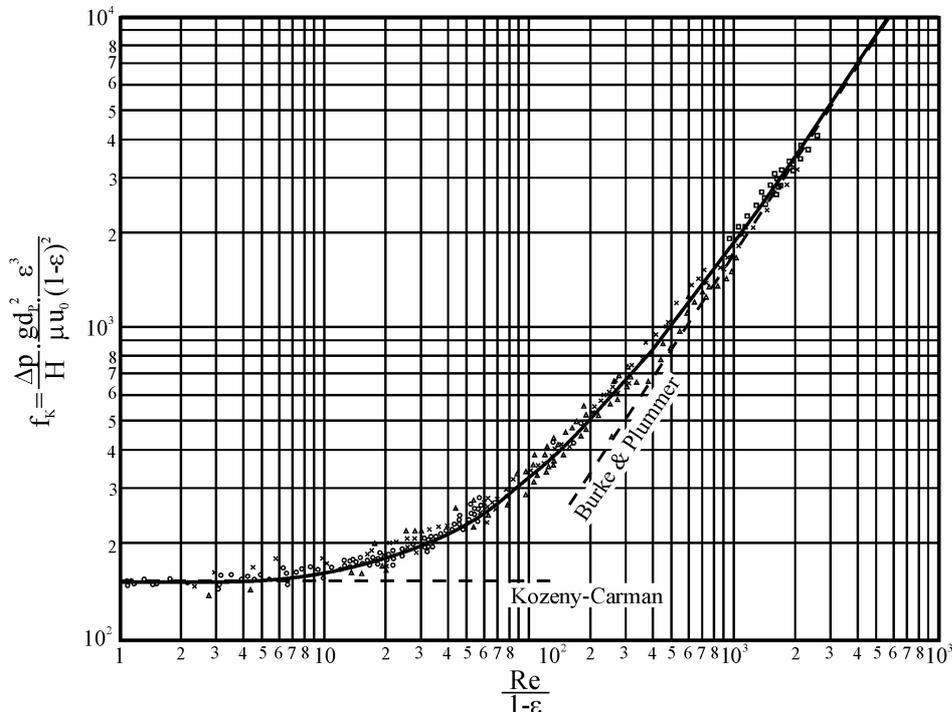


Abbildung 3.2: Dimensionslose Darstellung der Druckverlustcharakteristik für verschiedene Schüttgüter nach [Erg52]

Aufgetragen ist auf der Ordinate der Verlustfaktor f_K , der den gesamten Druckverlust über die Schüttungshöhe H , ins Verhältnis gesetzt zu dem durch kinetische Effekte verursachten, wiedergibt.

$$f_K = \frac{p}{H} \cdot \frac{g \cdot d_p}{\mu \cdot u_0} \cdot \frac{\varepsilon^3}{(1-\varepsilon)^2} \quad (3.7)$$

Für die Untersuchungen der niedrigen Durchströmungsgeschwindigkeiten gelangt man auf der waagerechten Tangente zu dem von Carman und Kozeny vorausgesagten Verhalten, für die höheren Geschwindigkeiten nähert man sich asymptotisch dem Profil turbulenter Strömungen an. Vergleicht man den Verlustfaktor mit der Reynoldszahl gemäß Gleichung (2.17) ergibt sich ein einheitlicher theoretischer Zusammenhang, sowohl für die viskosen als auch die trägheitsdominierten Strömungen mit den Haufwerkskonstanten für A und B von Ergun.

$$f_K = 1,75 + 150 \frac{1-\varepsilon}{Re} \quad (3.8)$$

Anhand der Darstellung ist weiterhin zu erkennen, dass es keine eindeutige Trennung zwischen laminarem und turbulentem Strömungsregime gibt, sondern dass der Übergang fließend verläuft.

Wie bereits erwähnt, sind die Form der Partikel sowie deren Anordnung von Bedeutung. Für Anwendungen, bei denen eine detailliertere Beschreibung erforderlich ist, konnte Coulson [Cou49] zeigen, dass selbst in einem begrenzten Porositätsbereich von 30% bis 45% die Carman-Kozeny-Konstante signifikant abhängig von der Partikelform ist. Die bekannten Gesetzmäßigkeiten lassen sich jedoch durch Einführen von Formfaktoren auf andere von der Kugelform abweichende Geometrien, wie z.B. Zylinder, Raschigringe oder Prismen übertragen [Cou49, Bra71].

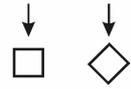
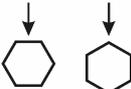
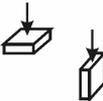
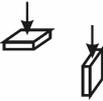
Schüttgut	Anströmrichtung	Formfaktor
Würfel		$\frac{2}{3}$
Prisma		$\frac{5}{8}$
		$\frac{3}{4}$
Platte $h=1$		$\frac{1}{3}$ 1
		$\frac{1}{5}$ 1
Kugel		$\frac{2}{3}$
Zylinder		$\frac{1}{2}$
		1

Abbildung 3.3: Einfluss der Partikelform [Cou49]

Ähnliches gilt auch für die Anordnung und Ausrichtung der Füllkörper im Vergleich zur regellosen Schüttung [Cou49]. Sullivan und Hertel [WG55] untersuchten die Anströmrichtung und fanden, dass bei einer Anströmung senkrecht zur Faserachse der Druckverlust doppelt so hoch wie bei der parallelen ist. Für die Beschreibung technischer Systeme mit zufällig angeordneten Schüttungen ist die Ausrichtung der Partikel jedoch irrelevant.

3.2.2 Oberflächeneigenschaft

Zur Beschreibung der Oberflächenbeschaffenheit des porösen Mediums werden zwei Merkmale verwendet. Das erste bezeichnet die sichtbare Struktur, also die Rauigkeit des Stoffes. Für regellose Partikelschüttungen konnten jedoch keine Unterschiede beim Vergleich der Strömungsdruckverluste zwischen polierten und aufgerauten Kugeln beobachtet werden [Bar72].

Die zweite wesentliche Oberflächeneigenschaft, die das Strömungsverhalten insbesondere bei mehrphasigen Vorgängen beeinflusst, ist die Benetzungsfähigkeit, die sich mit Hilfe des Kontaktwinkels der benetzenden Phase bzw. des Verhältnisses der nichtbenetzenden zur benetzenden spezifischen Oberfläche des porösen Mediums, $x_{heterogen}$, beschreiben lässt.

$$x_{heterogen} = \frac{a_{spez,nichtbenetzend}}{a_{spez,benetzend}} \quad (3.9)$$

Wyckoff und Botset [WB36] berichteten bereits in ihren Untersuchungen ohne weitere Ausführungen von Oberflächenphänomenen bei Strömungen mit Wasser-Öl und Wasser-CO₂-Mischungen.

Anderson [And87] gibt eine umfangreiche Übersicht über den Einfluss der Benetzbarkeit auf die kapillaren Eigenschaften. So können z.B. extreme Benetzungswinkels spontane Be- bzw. Entwässerungsvorgänge der flüssigen Phase zur Folge haben. Abbildung 3.4 verdeutlicht den Einfluss des Kontaktwinkels benetzender und nichtbenetzender Oberflächen.

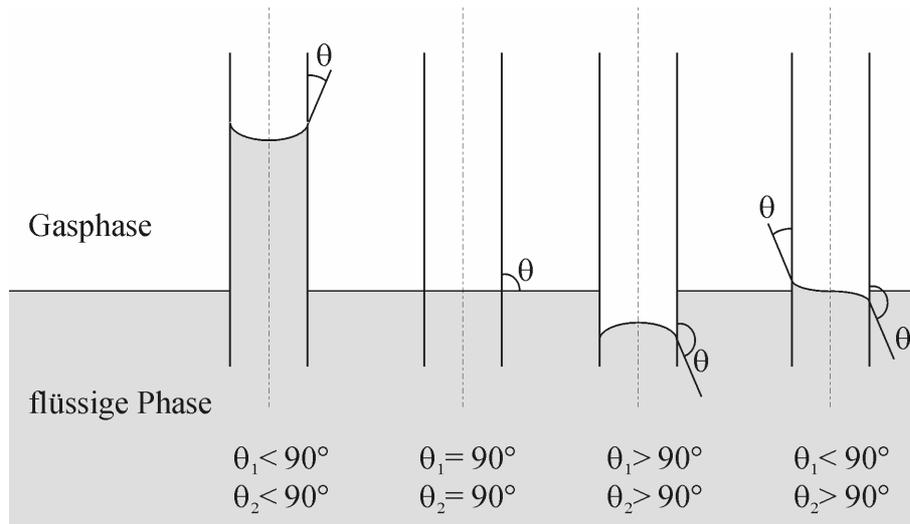


Abbildung 3.4: Einfluss des Kontaktwinkels auf die Benetzungseigenschaften

Ustohl et al. [USD98] untersuchten die Auswirkungen variierender Benetzungsfähigkeiten, indem sie Kapillardruckkurven granularer Medien mit unterschiedlichen Kontaktwinkeln aufzeichneten, um anschließend mit Hilfe der Beziehungen von Brooks und Corey [BC64] die relativen Permeabilitäten bestimmen zu können. So beobachteten sie bei Schüttungen aus Quarzsand und Teflonkörnern bei zunehmender Hydrophobisierung, also bei einer Erhöhung des Anteils hydrophober Oberfläche, ein bezogen auf Wasser geringeres Rückhaltevermögen des Haufwerks in Form von negativen Kapillardrücken, vgl. Abbildung 3.5.

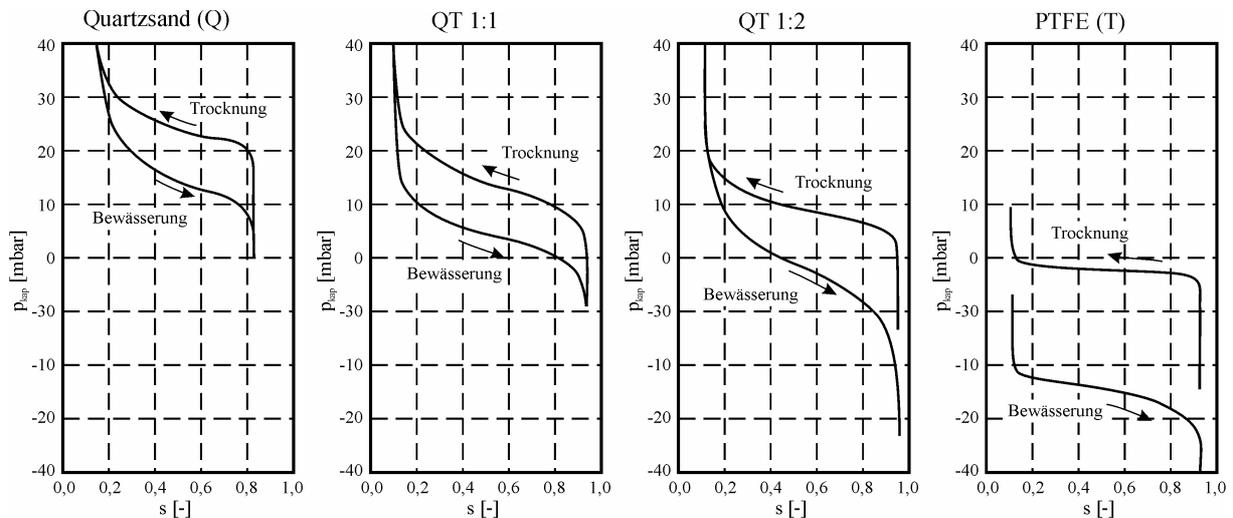


Abbildung 3.5: Kapillardruckkurven verschiedener Schüttungen aus Quarzsand und PTFE [USD98]

Tang und Firoozabadi [TF02] änderten die Benetzungsfähigkeit der fluiden Phasen in Strömungsprozessen durch Sandsteine, indem sie unterschiedliche Mengen an Polymeranteilen beimengten, und bestimmten für die beiden Fluidsysteme Luft/Wasser und Luft/Öl jeweils die relativen Permeabilitäten. In der Abbildung 3.6 sind diese Verläufe für eine Luft-Wasser-Strömung in Abhängigkeit der Sättigung dargestellt. Zu erkennen ist, dass sich durch eine Änderung der Benetzbarkeit mit additiven Zusätzen, sich die Mobilität der flüssigen Phase signifikant steigern lässt.

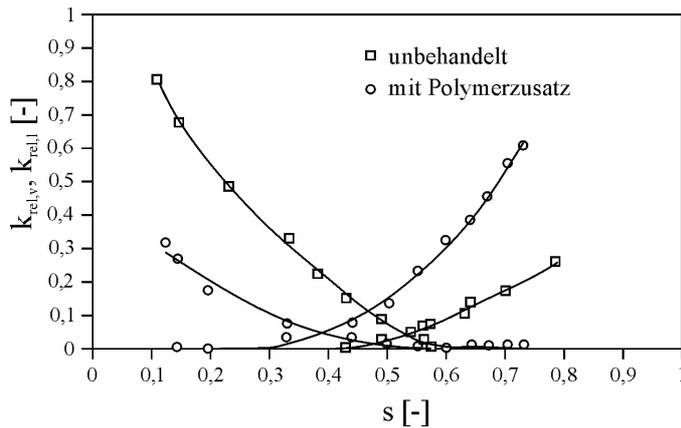


Abbildung 3.6: relative Permeabilitäten einer Luft-Wasser-Strömung mit und ohne Polymerzusatz [TF02]

Um zu einem besseren Verständnis dieser Vorgänge zu gelangen, erweiterten Bradford et al. [BAL97] das Porenmodell von Burdine [Bur53] um den Einfluss des Kontaktwinkels. Nach der Verifizierung mit experimentellen Daten konnten Parameterstudien durchgeführt werden, mit dem Ergebnis, dass größere Randwinkel höhere relative Permeabilitäten bei konstanter Sättigung bedeuten, vgl. Abbildung 3.7.

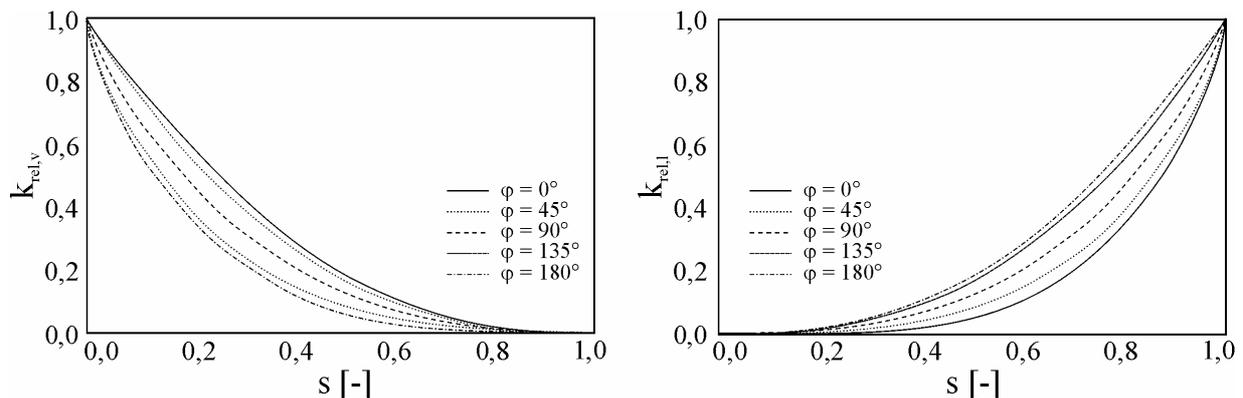


Abbildung 3.7: relative Permeabilitäten für verschiedene Kontaktwinkel [BAL97]

3.2.3 Porosität

Ein wesentlicher Einflussparameter des porösen Mediums auf die Durchströmungseigenschaften ist der Lückengrad. Bereits Forchheimer [For01] stellte bei seinen Untersuchungen fest, dass bei größer werdenden Hohlräumen die Strömungsgeschwindigkeiten zunehmen und der quadratische Term dominiert. Seit dem ist die Porositätsfunktion kontrovers diskutiert worden [TP61, Car37, Koz27]. Erste Überlegungen gehen auf Carman und Blake zurück, aus denen sich für den viskosen Term folgende Abhängigkeit ergibt, die Kozeny experimentell bestätigen konnte.

$$viscous \sim \frac{3}{(1 - \epsilon)^2} \quad (3.10)$$

Für den Trägheitsterm dagegen verwendeten Burke und Plummer [BP28] folgenden Ansatz:

$$inertial \sim \frac{3}{(1 - \epsilon)} \quad (3.11)$$

Ergun [Erg52] konnte beim Vergleich verschiedener Untersuchungen beide Funktionen auf Basis eines breiten Parametersatzes experimentell verifizieren, vgl. Abbildung 3.2.

Allerdings stellten schon Rumpf und Gupte [RG71] kritisch fest, dass der Lückengrad hierbei nur in engen Grenzen variierte. Sie führten daraufhin Untersuchungen an gleichmäßigen Zufallspackungen kugelförmiger Teilchen mit Porositäten im Bereich zwischen 0,35 und 0,7 bei kleinen Reynoldszahlen durch. Aus einer Regressionsanalyse der Messwerte erhielten sie die folgende Potenzfunktion, wobei (3.12b) vorzuziehen sei, da sie beim Übergang $\epsilon \rightarrow 1$ physikalisch sinnvoll bleibt [MPR71].

$$\sim \epsilon^{-5,5} \tag{3.12a}$$

$$\sim 4 \cdot (1 - \epsilon) \cdot \epsilon^{-4,55} \tag{3.12b}$$

Tabelle 3.2 listet abschließend einige in der Literatur vorgeschlagene und mit Messungen belegte Porositätsfunktionen für das viskose Strömungsregime auf, die in Abbildung 3.8 vergleichend dargestellt sind.

Tabelle 3.2: Porositätsfunktionen für kleine Strömungsgeschwindigkeiten

Porositätsfunktion	Autor
$\frac{(1 - \epsilon)^2}{3}$	Kozeny [Koz27], Carman [Car37]
$\left[\frac{(1 - \epsilon)^{1/3}}{(1 - 0,13)} \right]^2$	Terzaghi [TP61]
$\epsilon^{-5,5}$ bzw. $4 \cdot (1 - \epsilon) \cdot \epsilon^{-4,55}$	Rumpf und Gupte [RG71]
$\epsilon^{-1,0}$	Krüger [RG71]
$\frac{1,115 \cdot (1 - \epsilon)}{1,5} [(1 - \epsilon)^2 + 0,018]$	Rapier [RG71]
$(1 - \epsilon)^2$	Zunker [RG71]

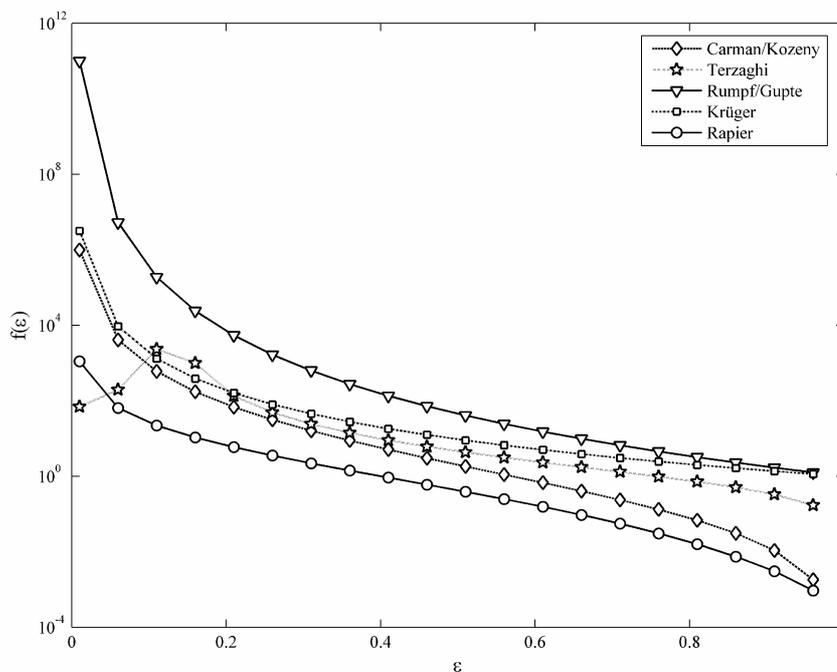


Abbildung 3.8: Vergleich verschiedener Porositätsfunktionen gemäß Tabelle 3.2

Prinzipiell zeigen alle dargestellten Funktionen für den hier untersuchten Bereich der Porositäten bis ungefähr 0,5, mit Ausnahmen des Verhaltens nach Terzaghi bei niedrigen Lückengraden, ähnliche Verläufe. Um die Auswertung der Durchströmungsuntersuchungen auf der Grundlage des Kapillarmodells aufbauen zu können, werden für die weiteren Betrachtungen die Porositätsfunktionen entsprechend Gleichung (3.10) und (3.11) verwendet.

4 Experimentelle Grundlagen

Zur Untersuchung und Abgrenzung der Einflüsse des porösen Mediums auf die Durchströmungseigenschaften in isothermen Systemen wurden mehrere Versuchsanlagen verwendet. Die Variationsgrößen der festen Phase waren dabei die Porosität, der mittlere Partikeldurchmesser und die Oberflächeneigenschaften.

4.1 Schüttgüter

4.1.1 Modellschüttgüter

Um die unterschiedlichen Struktureigenschaften des porösen Mediums auf die Kenngrößen der Haufwerksdurchströmung separat zu untersuchen, ist auf ideale Modellschüttgüter zurückgegriffen worden, die sich zum einen durch ihr inertes Verhalten gegenüber den fluiden Phasen und zum anderen durch eine uniforme Gestalt auszeichnen. Für die Untersuchungen des Einflusses des Partikeldurchmessers wurden 19 verschiedene Glaskugelschüttungen (GK) mit Größenverteilungen von 45-63 μm bis 4 mm verwendet. Für die Bestimmung der Eigenschaften kompressibler Haufwerke kamen Polystyrol (PS) sowie Polyethylen (PE), für den Einfluss der Benetzungsfähigkeit verschiedene Mischungen aus Glaskugeln und Polystyrol gleichen Partikeldurchmessers zum Einsatz. Tabelle 4.1 gibt einen Überblick der experimentell untersuchten Modellstoffe, deren Dichten nach dem Archimedeschen Verdrängungsprinzip bestimmt worden sind.

Tabelle 4.1: Übersicht der Modellschüttgüter

Stoff	Fraktionen	d_{min} / μm	d_{max} / μm	Dichte / kg/m^3
Glaskugeln (GK)	19	45-63	4000	2476
Polystyrol (PS)	2	710	1000	1038
Polyethylen (PE)	1	1000		919

Da es sich bei den untersuchten Proben um Schüttungen mit engen Partikelgrößenverteilungen handelt, werden direkt abbildende optische Methoden zur Bestimmung eines repräsentativen mittleren Korndurchmessers verwendet. Mikroskopische Betrachtungen zeigten weiterhin, dass auch die Polystyrol- und Polyethylenpartikel eine annähernd kugelförmige Gestalt aufweisen, weshalb kein wesentlicher Einfluss der Partikelform bzw. deren Orientierung auf die Durchströmungseigenschaften zu erwarten ist.

4.1.2 Reale poröse Medien

Zur Verifizierung und Übertragung der Zusammenhänge auf andere Systeme sind reale poröse Medien untersucht worden. Dies sind zum einen die Schüttgüter Braunkohle und Erdboden, deren charakteristische Kennwerte in der Tabelle 4.2 eingetragen sind, sowie zum anderen als Beispiel für poröse Membrane kathodische Diffusionsschichten aus Brennstoffzellen. Die rheinische Braunkohle und der sandige Erdboden wurden bezüglich des Einflusses der Porosität auf einphasige Durchströmungsprozesse näher betrachtet.

Tabelle 4.2: Übersicht der realen Schüttgüter

Stoff	Verteilung /mm	d_p /mm	Wassergehalt /%	Dichte / kg/m^3
Braunkohle (BK)	0-10	3,27	53	1540
Erdboden (EB)	0-8	0,223	14	2536

Trotz der breiten Korngrößenverteilung der Braunkohle-Schüttung, zeigten Mikroskopuntersuchungen, dass wegen des sehr hohen Feinkornanteils nur ein geringes Hohlraumvolumen

für die Durchströmung zur Verfügung steht. Eine weitere Besonderheit dieser heterogenen Stoffe im Vergleich zu den Modellschüttgütern besteht insbesondere bei der Braunkohle in dem hohen eingeschlossenen Wassergehalt von etwa 53 Massenprozent.

Die kathodischen Diffusionsschichten aus den Direktmethanol-Brennstoffzellen (DMFC) zeichnen sich durch ihre unterschiedlich benetzbare Oberfläche, also den Anteil an hydrophilen zu hydrophoben Poren, aus. Bei diesen Membranen handelt es sich um geflochtene Graphitfasern mit eingesintertem PTFE, wodurch gezielt die bevorzugten Poren für den Stofftransport bereitgestellt werden können. In den Messungen sind, um den Einfluss von hydrophilen zu hydrophoben Poren untersuchen zu können, verschiedene Diffusionsschichten mit unterschiedlichen PTFE-Beladungen zum Einsatz gekommen, vgl. Tabelle 4.3. Die Porositäten sind anhand der Schichtdicken sowie den Dichten des PTFE $\rho_{PTFE} = 2,14 \text{ kg/m}^3$ und des Graphitgewebes $\rho_{Graphit} = 1,78 \text{ kg/m}^3$ berechnet worden.

Tabelle 4.3: Eigenschaften der untersuchten Diffusionsschichten

Proben-Nr.	Belegung PTFE		Schichtdicke	Porosität
	mg/cm^2	%		
#1	0,5	3%	0,323 mm	0,79
#2	6,3	40%	0,369 mm	0,70
#3	4,3	28%	0,388 mm	0,74

4.2 Versuchsaufbauten

Die Versuchsaufbauten lassen sich in zwei Kategorien unterteilen, vgl. Tabelle 4.4. Zum einen die für die gasdurchsatzlosen Messungen zur Bestimmung der kapillaren Eigenschaften der porösen Medien, Kapitel 4.2.1, und zum anderen die Anlagen für die isothermen Durchströmungsuntersuchungen, mit denen sich der Einfluss der Porosität, des Partikeldurchmessers und der Oberflächeneigenschaften bestimmen lässt, Kapitel 4.2.3.

Tabelle 4.4: Überblick der Untersuchungsmethoden

	Kapillaruntersuchungen	Durchströmungsuntersuchungen
Zielgrößen	p_K, s_{im}	$K, \eta, k_{rel}, \eta_{rel}$
Einflussgrößen	$d_p, x_{heterogen}$	$d_p, \epsilon, x_{heterogen}$
Stoffe	GK, DMFC	GK, PS, PE, BK, EB, DMFC
Versuchsanlagen	Druckmethode Fliehkraftmethode	Versuchsanlage I Versuchsanlage II Versuchsanlage DMFC

4.2.1 Untersuchung der kapillaren Eigenschaften

Eine wichtige Einflussgröße, besonders bei der mehrphasigen Durchströmung poröser Medien, ist, wie in Kapitel 2.3.2 beschrieben, die durch die Kapillarkräfte bedingte immobile Fluidphase. Für die experimentellen Untersuchungen war es erforderlich, in einem vorangehenden Schritt die immobile Sättigung s_{im} für die einzelnen Haufwerke zu bestimmen. Hierzu wurden Versuchsanlagen konzipiert, mit denen auch die Kapillardruck-Sättigungs-Beziehungen gemessen werden konnten. Im Wesentlichen existieren zwei Messmethoden, die sich durch die auf die Flüssigkeit wirkenden Kräfte von einander unterscheiden. Zum einen gibt es die Druckmessmethode, bei der aufgeprägte Druckunterschiede die Sättigungsänderungen verursachen, und zum anderen die Fliehkraftmethode, bei der zentrifugale Massenkraft zur Entwässerung führen.

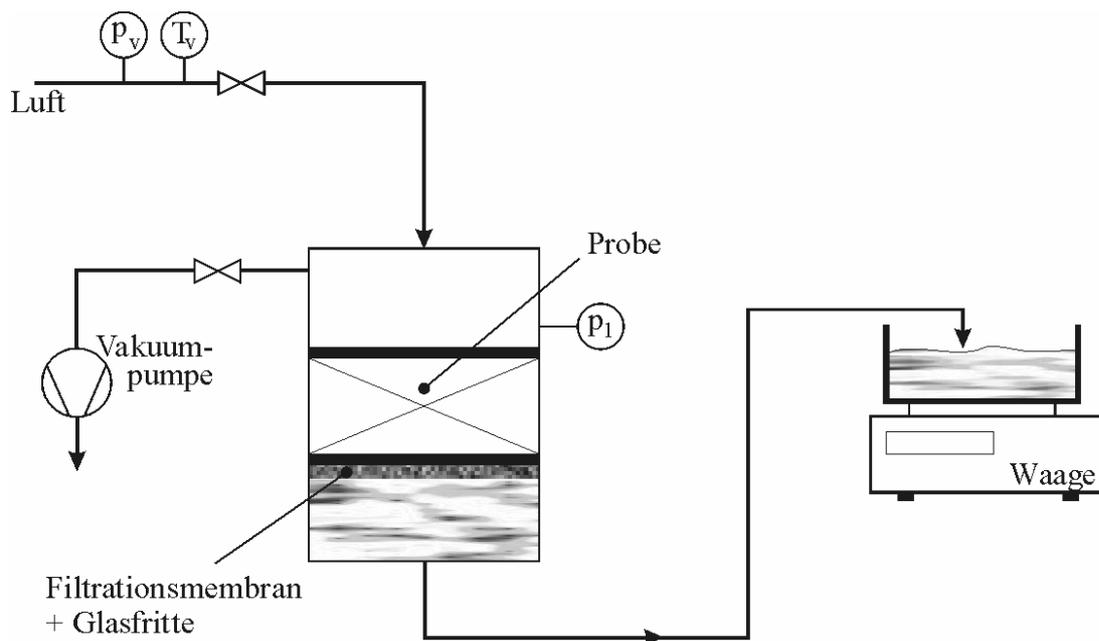
Druckmessmethode

Abbildung 4.1: Versuchsanlage zur Bestimmung der Kapillardruckkurven mit der Druckmethode

Die schematische Darstellung der Druckmethode zur Bestimmung der Kapillardruckkurven ist in der Abbildung 4.1 zu sehen. Hierbei ist ein zylindrischer Behälter aus Acrylglas mit einem Innendurchmesser von 50 mm und einer Höhe von 81 mm verwendet worden, dessen unteres Ende mit einer Glasfritte, mit einem Porendurchmesser von $1\ \mu\text{m}$, verschlossen ist. Zusätzlich ermöglicht eine hydrophile Ultrafiltrationsmembran mit einem Porendurchmesser von $0,45\ \mu\text{m}$, die nur noch für die flüssige Phase durchlässig ist, die erforderliche gasdurchsatzlose Messung. Zur Versuchsdurchführung wird der Behälter mit dem zu untersuchenden Schüttgut befüllt, die Flüssigkeitsmenge zum Erreichen des vollständig gesättigten Zustandes zugegeben und der Behälter gasdicht verschlossen. Damit eine vollständige Sättigung erreicht wird, also alle Hohlräume mit Flüssigkeit gefüllt sind, kann mit Hilfe einer Vakuumpumpe ein Unterdruck erzeugt werden, um so die in Zwickeln eingeschlossenen Luftblasen zu entfernen. Um zu vermeiden, dass die Filtrationsmembran austrocknet und somit luftdurchlässig wird und um den an der Phasengrenzfläche zusätzlich auftretenden kapillaren Austrittsdruck zu unterdrücken, wird der Raum unterhalb der Probe vollständig mit Versuchsflüssigkeit gefüllt.

Die Messung der Kapillardrücke geschieht mittels eines aufgeprägten Luftdrucks, wobei das aus dem Haufwerk verdrängte Wasser zur Ermittlung der korrespondierenden Sättigung auf eine Waage geleitet wird. Während des Versuchs wird der mit einem Manometer gemessene Luftdruck jeweils nach Erreichen des Gleichgewichtszustandes, also wenn kein Wasser mehr austritt, stufenweise erhöht, wodurch die Kapillardruckkurve punktuell vermessen werden kann. Sämtliche Daten werden kontinuierlich mit einer Messwerterfassung auf einem PC gespeichert. In Abbildung 4.2 ist die beschriebene Versuchsdurchführung dargestellt. Zur besseren Übersicht sind der Luftdruck und die verdrängte Menge Wasser jeweils mit ihrem Maximalwert normiert. Es ist zu erkennen, dass mit zunehmendem Luftdruck über der Schüttung immer mehr Wasser ausgetrieben wird.

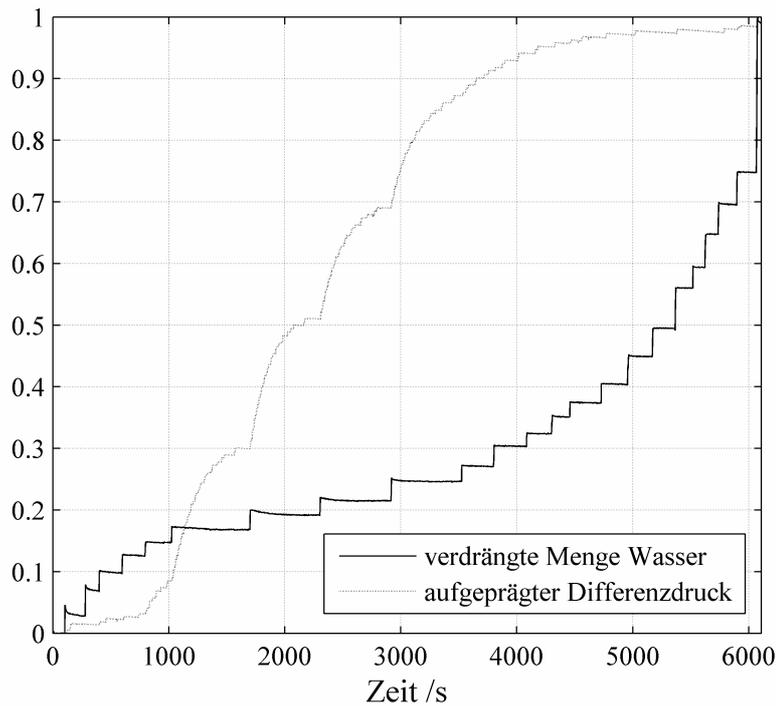


Abbildung 4.2: Versuchsdurchführung zur Bestimmung der Kapillardruckkurven, exemplarisch für GK 180-300

Im Trockenschrank wird nach Versuchende die immobile Wassersättigung s_{im} bestimmt und mit der experimentell ermittelten verglichen.

Fliehkraftmethode

Der Vorteil dieses Messprinzips besteht darin, dass auf eine für die flüssige Phase selektiv-durchlässige Membran, wie sie bei der Druckmessmethode unbedingt erforderlich ist, verzichtet werden kann. Ferner können mit dem Druckverfahren isolierte Flüssigkeitsbereiche nicht erfasst werden. Für die Membrane der DMFC ist dies aber in besonderer Weise erforderlich, da die unterschiedlichen Oberflächeneigenschaften eine Separation der Phase verursachen. Bei den Messungen nach dem Fliehkraftprinzip ist es gerade möglich, auch diese isolierten Bereiche zu erreichen, da die Zentrifugalkräfte auf die Flüssigkeit unabhängig von deren Verteilung wirken. Eine schematische Darstellung der Versuchsanlage ist in Abbildung 4.3 zu sehen.

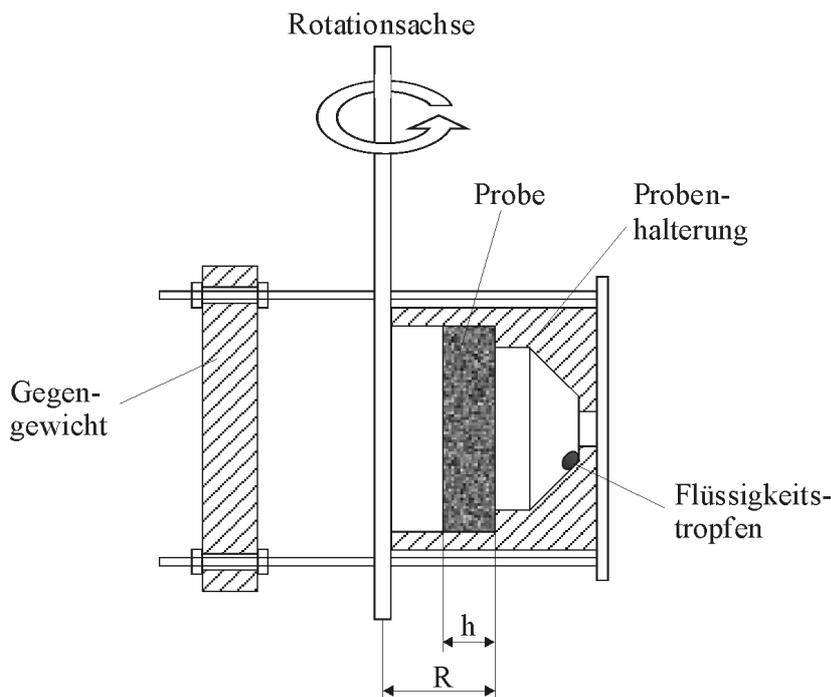


Abbildung 4.3: Versuchsanlage zur Bestimmung der Kapillardruckkurven nach dem Fliehkraftprinzip

Durch die Rotationsbewegung stellt sich in Abhängigkeit von der Winkelgeschwindigkeit ein Gleichgewicht zwischen Kapillar- und Zentrifugalkräften ein.

$$p_K = (\rho_l - \rho_v) \cdot h \cdot \omega^2 \cdot \left(R - \frac{h}{2} \right) \quad (4.1)$$

Zur besseren Erfassung des Wasseranteils in der Probe werden mehrere Diffusionsschichten übereinander eingespannt. Um eine möglichst vollständige Sättigung zu erreichen, also alle Poren der Diffusionsschichten mit Wasser zu benetzen, wird die zu untersuchende Probe vor Versuchsbeginn in ein Wasserbad gelegt. Die verbliebene Luft lässt sich mit Hilfe der Vakuumpumpe analog zur Druckmessmethode entfernen. Anschließend wird die Anlage in Rotation versetzt und das ausgetriebene Wasser gesammelt und die Sättigung gravimetrisch bestimmt.

Für die Modellschüttgüter erwies sich die Druckmethode als die geeignete, da hier erstens die Flüssigkeit die zu benetzende Phase darstellt. Zweitens ist eine genauere Bestimmung der Sättigung mit der Erhöhung des Volumens an zu verdrängender Phase einfacher realisierbar. Eine Vergrößerung des Probenvolumens wirft demgegenüber bei der Fliehkraftmethode durch die erhöhten Massenkräfte konstruktive und sicherheitstechnische Probleme auf. Bei den Brennstoffzellen-Membranen haben die Versuche gegenüber den Erwartungen zu deutlich niedrigeren Kapillardrücken geführt. Ein Vergleich der aus der Probe verdrängten Wassermenge mit der theoretisch enthaltenen hat einen vorzeitigen Luftdurchbruch gezeigt, der durch die hydrophoben Poren verursacht wurde. Mit diesem Versuchsaufbau war daher eine ausreichend genaue Bestimmung der Kapillardruckkurven für den Bereich niedriger Sättigungen bei diesem Material nicht möglich. Für dieses Material ist deshalb auf das Fliehkraftprinzip zurückgegriffen worden.

4.2.2 Bestimmung der Sättigung

Die Messtechnik zur Bestimmung der Sättigung sollte einerseits nicht-invasiv sein, um die Strömung und die Benetzungseigenschaften nicht zu beeinflussen. Andererseits sollte es sich um ein Verfahren handeln, mit dem sich kontinuierlich und ohne große zeitliche Verzögerung die Messwerte aufzeichnen lassen. Methoden wie „Video Imaging Analysis“ [AP95], Computertomographie sowie Röntgen-, Gamma- oder Mikrowellenstrahlentechniken [HHA96] scheiden folglich aus, wodurch sich aufgrund ihrer vergleichsweise einfacheren Handhabung und ihres geringeren apparativen Aufwandes gravimetrische oder konduktometrische Verfahren anbieten. Nachteilig bei der gravimetrischen Messmethode im Rahmen der Versuchsdurchführung bei den Durchströmungsversuchen wirkt sich aus, dass

- a) aufgrund der hohen Impulskräfte an den zu- und abführenden Rohrleitungen nicht der gesamte Versuchsbehälter gravimetrisch mit ausreichender Genauigkeit gemessen werden kann,
- b) durch den Ein- und Ausbau des besonders bei kleinen Partikeln erforderlichen kleineren Versuchsbehälters die Fehler durch die prozentual größeren Totvolumina (Filtermittel und am Behälter montierte Rohrstücke) zu hoch sind und
- c) bei großen Partikeln ($d_p > 700 \mu\text{m}$) die Kapillarkräfte nicht ausreichen, das Wasser in der Schüttung zu halten, so dass der Zustand der Schüttung beim zeitlich verzögerten Wiegen in keinem Fall den während der Durchströmung wiedergibt.

Um diese Nachteile zu umgehen, wird bei den Schüttgütern eine elektrische Leitfähigkeitsmessung eingesetzt, die sich neben einer einfachen Handhabung und der höheren Genauigkeit vor allem durch die Möglichkeit der nicht-invasiven in-situ Messung auszeichnet [WL91]. Konduktometrische Verfahren zur Charakterisierung poröser Medien sind in der Förderindustrie und bei geologischen Problemstellungen gängige Messprinzipien. Sie finden u.a. Anwendung bei der Identifizierung von Erdöllagerstätten und Wasservorkommen, sowie bei der Bestimmung von Gesteinsporositäten und -permeabilitäten. Grundlage hierzu sind die empirischen Untersuchungen von Archie [Arc42] an Sandstein, bei denen er einen linearen Zusammenhang zwischen dem elektrischen Widerstand der vollständig gesättigten R_0 und der trockenen Probe R_u gefunden hat.

$$R_0 = F \cdot R_u \quad (4.2)$$

Die Proportionalitätskonstante F wird als Widerstands-Bildungs-Faktor bezeichnet und ist abhängig von der untersuchten Probe, insbesondere von den geometrischen Größen Tortuosität und Porosität aber auch von der Permeabilität, siehe Abbildung 4.4.

$$F = \dots^{-m} \quad (4.3)$$

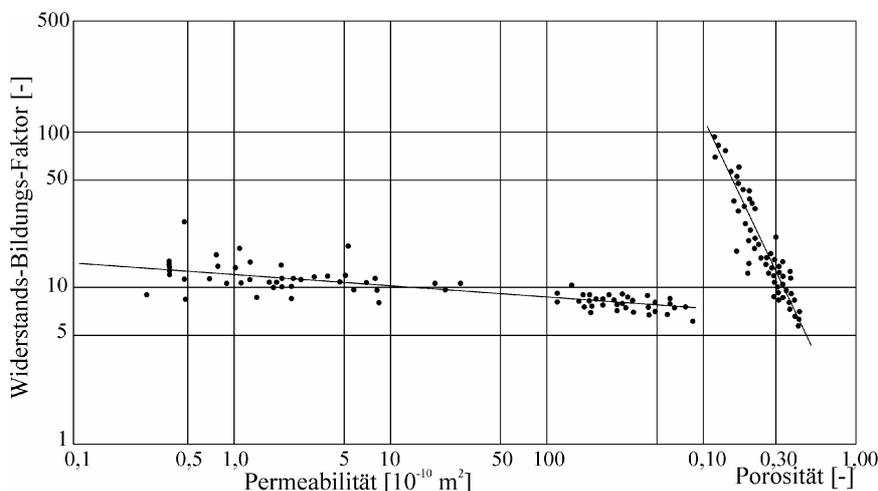


Abbildung 4.4: Einfluss der Gesteinseigenschaften auf den elektrischen Widerstand [Arc42]

Wird das Konzept von Porositäten auf Fluidsättigungen übertragen, folgt daraus ein exponentieller Zusammenhang zwischen der Sättigung s und dem elektrischen Widerstand R in Schüttgütern.

$$s = \left(\frac{R_0}{R} \right)^{1/n} \quad (4.4)$$

Für Wassersättigungen in reinen verdichteten und unverdichteten Sandschüttungen bestimmte Archie [Arc42] Exponenten in der Nähe von 2. De Witte [Wit50] sowie Patnode und Wyllie [PW50] untersuchten den Einfluss der Probe auf die elektrische Leitfähigkeit und bestätigten für nicht leitende poröse Medien den Exponent 2 und die Gültigkeit von Gleichung (4.4). Für gemischt benetzbare Haufwerke ist der Exponent ebenfalls unabhängig von der Sättigung [MM68], allerdings verschiebt sich hierbei die untere Gültigkeitsgrenze zu höheren Sättigungen.

Bei den Messzellen gibt es zwei verschiedene Ausführungsformen, die 2 und die 4-Elektroden-Variante. Die 2-Elektroden oder Kohlrausch-Messzelle besteht gewöhnlich aus zwei sich gegenüberliegenden, zumeist ebenen Festkörperelektroden, wodurch ein möglichst homogenes elektrisches Feld erzeugt werden kann. Auftretende Polarisationserscheinungen an den Elektroden lassen sich neben der Steigerung der Messfrequenz auch durch eine Vergrößerung der Elektrodenfläche verringern. Die Frequenz ist jedoch bei Stoffen hoher Leitfähigkeit auf etwa 4 kHz und die Fläche durch konstruktive Gegebenheiten begrenzt, weshalb der Materialauswahl eine entscheidende Bedeutung zukommt. Gängige Festkörperelektroden bestehen aus Graphit, nichtrostendem Stahl oder Platin. Eine Weiterentwicklung stellt die 4-Elektroden-Messzelle dar, die aus zwei strom- und zwei spannungsführenden Elektroden besteht. Aus der bekannten Stromstärke und dem gemessenen Spannungsabfall ergibt sich der Leitwert der Lösung. Der Vorteil dieser Methode ist, dass die an den Elektroden hervorgerufenen Polarisationswiderstände nicht erfasst werden und somit keine Verfälschung bewirken. Der konstruktive Nachteil ist allerdings, dass die Spannungselektroden an einen Ort niedriger Stromdichte platziert werden müssen, aber der Spannungsabfall noch hinreichend hoch sein muss. In Voruntersuchungen mit einer 4-Elektroden-Zelle wurde deutlich, dass der Phasenabgleich zwischen Spannung und Stromstärke problematisch ist. Lewis [LSD⁺88] verglich beide Messtechniken zur Bestimmung der elektrischen Eigenschaften von Sandsteinproben und stellte bei hohen Sättigungen keine wesentlichen Unterschiede zwischen der 2 und der 4-Elektrodenmethode fest. Diesen Erkenntnissen folgend wurde eine 2-Elektrodenzelle verwendet, deren Festkörperelektroden aus grobmaschigen Platinnetzen bestehen, um ein möglichst homogenes elektrisches Feld zu erzeugen. Die Messstellen befinden sich nicht direkt im Ein- bzw. Auslauf, da dort bedingt durch den Grenzflächenübergang zwischen porösem Medium und Umgebung große Sättigungsgradienten auftreten, sondern etwas innerhalb der Schüttung.

Um Polarisationseffekte, die zu verfälschten Ergebnissen führen, zu vermeiden, wird zum einen mit einer Frequenz von 4 KHz gemessen und zum anderen durch die Netze eine große Elektrodenfläche erreicht, die die Strömung nicht beeinträchtigt. Da zudem die Elektroden während der Messung ständig umströmt werden, sind ausgeprägte Einflüsse der Polarisierungen nicht zu erwarten. Als Elektrolyt wird Na_2SO_4 verwendet, welches sich weniger korrosiv auf die vorhandenen Metalle in den Messgeräten und der Pumpe auswirkt als vergleichbare Salze. Die Konzentration wird hierbei so bemessen, dass sich eine Änderung in Abhängigkeit der Sättigung des Haufwerkes mit den vorhandenen Messgeräten deutlich erkennen lässt. Die elektrische Leitfähigkeit der reinen wässrigen Phase liegt bei etwa 5 mS/cm; dies entspricht einer Konzentration von ungefähr 5 g/l und einem pH-Wert von ca. 5,5.

Die elektrische Leitfähigkeit ist das Produkt aus dem elektrischen Leitwert G , dem reziproken elektrischen Widerstand R und der Zellkonstante, die sich aus den geometrischen Abmessungen Elektrodenabstand l und -fläche A zusammensetzt.

$$= G \cdot \frac{l}{A} \quad (4.5)$$

Da zum einen die elektrische Leitfähigkeit nicht unmittelbar messbar ist, sondern nur der Leitwert, und da zum anderen der Abstand der Elektroden je nach Schüttungshöhe variiert, weshalb auch die Zellkonstante nicht allgemeingültig bestimmbar ist, wird an ihrer Stelle der Leitwert zur Quantifizierung des Wassergehaltes herangezogen.

Die notwendigen Kalibrierfunktionen erhält man, indem an der zu untersuchenden Schüttung jeweils für verschiedene Leitwerte die entsprechenden Sättigungen in Vorversuchen gravimetrisch bestimmt werden. In der Abbildung 4.5 sind exemplarisch für zwei verschiedene Glas-Kugelschüttungen der Korngröße 240-420 μm und 180-300 μm mit unterschiedlichen Porositäten die Abhängigkeiten zwischen Leitwert und Sättigung dargestellt.

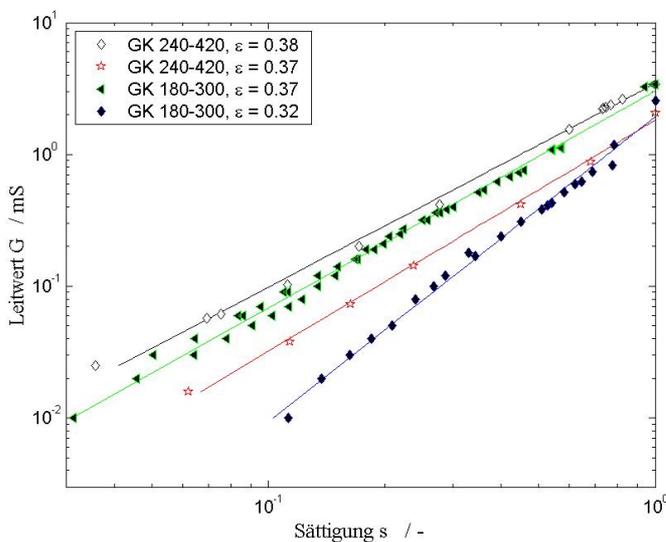


Abbildung 4.5: Zusammenhang zwischen Leitwert und Sättigung

In der doppelt logarithmischen Auftragung ist zu erkennen, dass sich fast im gesamten untersuchten Sättigungsbereich das Gesetz von Archie in der folgenden Form anwenden lässt:

$$s = (G/G_0)^n \quad (4.6)$$

Allerdings wird deutlich, dass weder für gleiche Schüttungsfractionen noch für gleiche Porositäten ein allgemeingültiger Parametersatz bestimmt werden kann. Da ein Einfluss der Schüttungsstruktur vorliegt, ist es für jeden Versuch notwendig, eine Kalibrierfunktion zu ermitteln.

4.2.3 Ein- und mehrphasige Durchströmungsuntersuchungen

Das Grundprinzip der durchgeführten Versuchsreihen besteht darin, die resultierenden Drücke am Probenein- und -austritt in Abhängigkeit von den Volumenströmen zu erfassen. Das Verfahrensschema der verwendeten Versuchsanlagen ist in Abbildung 4.6 dargestellt. Die wesentlichen Komponenten hierbei sind die beiden Druckaufnehmer (p_0 , p_1) zur Messung des Druckverlustes in Abhängigkeit der Volumenströme der fluiden Phasen Wasser und Luft (Q_l , Q_v) sowie, für die mehrphasigen Untersuchungen, die Messeinrichtung zur Bestimmung der Sättigung s . Zur Umrechnung der Gasvolumenströme auf den Normzustand sind in beiden Zuleitungen zusätzlich Thermoelemente (T_l , T_v) und ein Manometer für den Luftdruck (p_v) installiert.

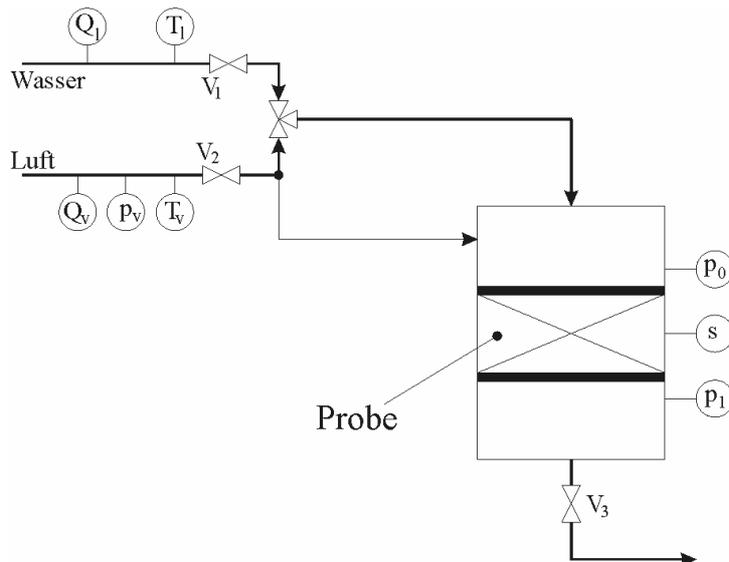


Abbildung 4.6: Versuchsaufbau zur Bestimmung der Durchströmungseigenschaften

Die Messmethoden der mehrphasigen Strömungen lassen sich in zwei Kategorien einteilen [Wyl62], die dynamischen und die statischen Methoden. Bei den ersteren wird die das poröse Medium sättigende Phase durch die andere verdrängt und die relativen Permeabilitäten können aus dem Austrittsverhältnis der Phasen errechnet werden. Mit diesem Prinzip sind allerdings nur langsame Strömungen realisierbar und es ist somit für die hier zu betrachtenden Fälle ungeeignet. Bei den statischen Methoden dagegen durchströmen beide Phasen das Haufwerk. Sind die Volumenströme ausreichend hoch, ist zudem auch der Sättigungsgradient unabhängig von den Fluidgeschwindigkeiten [ORK⁺51]. Beim Erreichen eines makroskopisch stationären Zustandes werden dann die Volumenströme jeder Phase bei der dazugehörigen Sättigung und dem entsprechenden gesamten Druckverlust gemessen.

Untersuchung kompressibler Haufwerke

Für die Untersuchungen zum Einfluss des Lückengrades auf die einphasigen Durchströmungseigenschaften verdichtbarer poröser Medien wurde die Versuchsanlage I entsprechend der Abbildung 4.7 verwendet. Hierbei ist der zylindrische Versuchsbehälter in eine Zug-Druck-Prüfmaschine eingebaut. Mit Hilfe eines höhenverstellbaren Kolbens lassen sich verschiedene Verdichtungsgrade herstellen. Der Versuchsbehälter ist dabei doppelwandig ausgeführt, um das Haufwerk während der Verdichtungsphase erwärmen und somit homogener komprimieren und anschließend vor Beginn der Messung wieder auf Umgebungstemperatur abkühlen zu können. Die maximale Schüttungshöhe beträgt 120 mm bei einem Innendurchmesser von 70 mm. Die Druckmessstellen sind in die zu- und abführenden Rohrleitungen eingebaut. Im Austritt aus dem Versuchsbehälter ist ein Thermoelement zur Berechnung der Stoffdaten des Strömungsmediums und ein Schwebekörperdurchflussmesser zur Bestimmung des Volumenstromes installiert.

Um die bei größeren Verdichtungen noch erforderlichen höheren Strömungsgeschwindigkeiten zu gewährleisten, wurden nur Durchströmungen mit Luft, die dem Netz der Universität Dortmund entnommen wurde, untersucht. Der maximal mit den beiden Druckaufnehmern messbare Differenzdruck über die Probenhöhe ist deshalb auf 6 bar begrenzt.

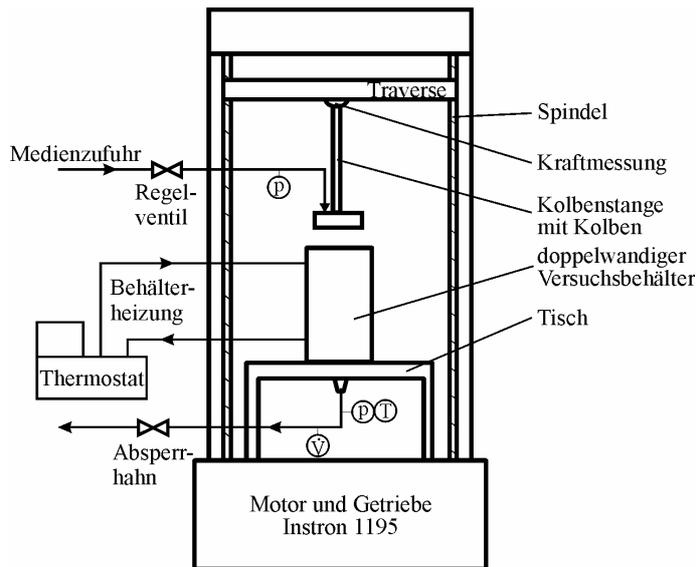


Abbildung 4.7: Schematische Darstellung der Versuchsanlage I zur Untersuchung des Porositätsinflusses

Untersuchung inkompressibler Haufwerke

Für die Untersuchungen der Durchströmungseigenschaften inkompressibler Schüttgüter und des Impulsaustausches zwischen zwei fluiden Phasen wurde die in Abbildung 4.8 schematisch dargestellte Versuchsanlage II errichtet.

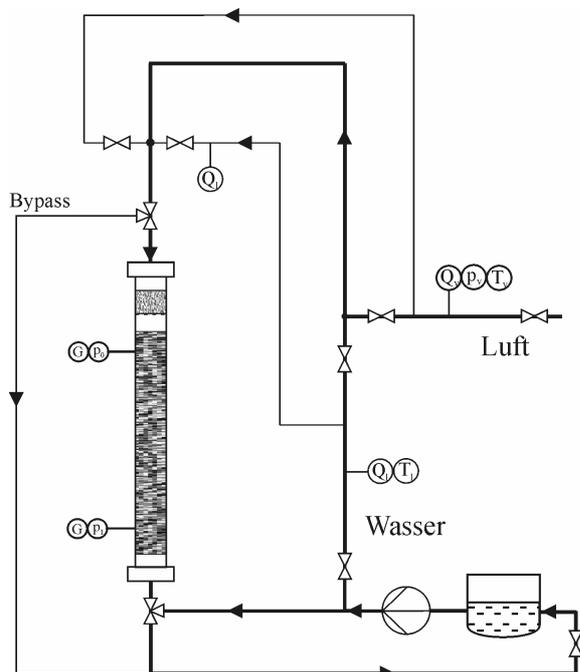


Abbildung 4.8: Schematische Darstellung der Versuchsanlage II

Die wesentliche Komponente der Versuchsanordnung ist ein Behälter, der das zu untersuchende Schüttgut enthält und in dem Zweiphasenströmungen mit den Medien Luft und Wasser realisiert werden können. Zur Messung des Druckabfalls im Haufwerk stehen zwei Druckaufnehmer mit einem Messbereich von 0 bis 10 bar Überdruck zur Verfügung. Der Wassergehalt wird, wie in 4.2.2 bereits dargelegt, mittels eines konduktometrischen Verfahrens bestimmt.

Die Luft wird ebenfalls dem Druckluftnetz der Universität entnommen, mit dem ein Absolutdruck bis 7 bar und der Anlage Volumenströme bis $200 \text{ m}^3/\text{h}$ i.N. bereitgestellt werden kön-

nen. Der Luftvolumenstrom lässt sich über ein Ventil und einen Druckminderer stufenlos einstellen sowie mit einem Turbinenradzähler und, um bei den Mehrphasenströmungen die Gasgeschwindigkeiten genauer bestimmen zu können, mit zwei Schwebekörperdurchflussmessern mit unterschiedlichen Bereichen messen. Zur Umrechnung der Volumenströme auf den Normzustand ist ebenfalls eine gekoppelte Druck- und Temperaturmessung in der Luftleitung installiert. Um die erforderlichen hohen Volumenströme der Flüssigkeit bei entsprechendem Druck erreichen zu können, wird eine zwangsfördernde Pumpe verwendet. Es handelt sich hierbei um eine Exzentrerschneckenpumpe vom Typ BN 10-12 der Firma Seepex, mit der Volumenströme von $0,5 - 10 \text{ m}^3/\text{h}$ bei bis zu 10 bar Förderdruck eingestellt werden können. Damit ist auch für die kleinen Glaskugelfraktionen ($45 - 100 \mu\text{m}$) die Untersuchung bei Reynoldszahlen von $Re > 1$, bei denen die Trägheitskräfte einen dominierenden Einfluss haben, möglich. Für die Erfassung des Wasservolumenstromes stehen zur Abdeckung eines größeren Messbereiches zwei magnetisch-induktive Durchflussmesser und zur Bestimmung der Temperatur ein Thermoelement (PT 100) zur Verfügung.

Bei der Durchführung durchströmt das Luft-Wasser-Gemisch das Haufwerk und wird in den Wasservorratsbehälter zurückgeführt, aus dem die Luft über eine Entlüftungsöffnung in die Umgebung entweichen kann. Sämtliche Versuchsdaten werden mit einem Messwerterfassungssystem kontinuierlich aufgezeichnet.

Abbildung 4.9 zeigt eine schematische Darstellung der Versuchsbehälter, die zur optischen Kontrolle der Durchströmungen aus Acrylglas gefertigt wurden. Aufgrund der gewählten zylindrischen Geometrie des Behälters lässt sich das Problem auf eine eindimensionale Strömung, ohne radiale Komponente, reduzieren. Der Säulendurchmesser der eingebrachten Glaskugelschüttung beträgt zur Unterdrückung der Randgängigkeit bei den größeren Fraktionen 50 mm. Um auch die Schüttungen, bei denen größere Strömungsdruckverluste auftreten, bei höheren Reynoldszahlen durchströmen zu können, sind Versuchsbehälter unterschiedlicher Höhen verwendet worden. Der Abstand der Druckmessstutzen liegt in der großen Schüttung bei 122 mm und in der kleinen bei 72,5 mm. Durch den Einsatz zusätzlicher Plexiglasringe lassen sich weitere kleinere Schüttungshöhen (15-45 mm) realisieren. Die beiden Druckmessstellen befinden sich, wie die Leitfähigkeitselektroden, innerhalb der Schüttung, zur Vermeidung von Randeffekten durch Kapillarkräfte an den Phasengrenzflächen am Ein- und Auslauf.

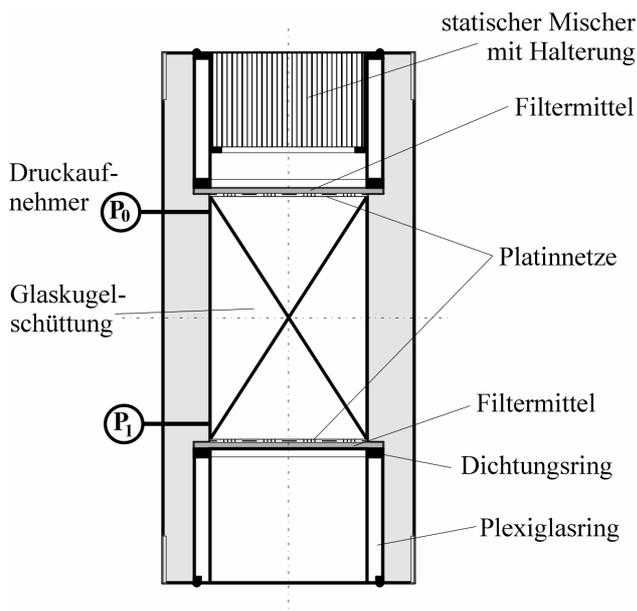


Abbildung 4.9: Schematische Darstellung der Versuchsbehälter

Weiterhin wurde die Stabilität des Strömungszustandes der Zweiphasenströmung dahingehend optimiert, dass es bei stark unterschiedlichen Volumenströmen (Sättigung nahe 0 oder 1) möglich ist, die jeweils andere Phase kurz oberhalb der Schüttung mittels einer Düse gezielt zuzugeben, wodurch eine Entmischung vermieden wird. Eine zusätzliche Homogenisierung der Strömung erfolgt dabei mit Hilfe eines statischen Mischers direkt vor dem Eintritt in das Haufwerk.

Untersuchung der Membrane

Zur Durchführung der Untersuchungen an den kathodischen Diffusionsschichten von Direktmethanolbrennstoffzellen war es erforderlich, eine entsprechend der Geometrie der Membranen dimensionierte Versuchsanlage (Anlage DMFC) zu entwerfen. Der Aufbau orientierte sich dabei an der Versuchsanlage zur Untersuchung inkompressibler Haufwerke, an der auch die für die Konstruktion notwendigen Vorversuche durchgeführt wurden. Hierbei konnten bereits erste Erkenntnisse im Hinblick auf die Durchströmbarkeit und eine Größenabschätzung der Permeabilität gewonnen werden. Der entwickelte Versuchsbehälter wurde wegen der geringen Membrandicken entsprechend klein dimensioniert, siehe Abbildung 4.10. Die maximale Größe der Probengeometrie ist auf 50 mm im Durchmesser und 15 mm in der Höhe festgelegt.

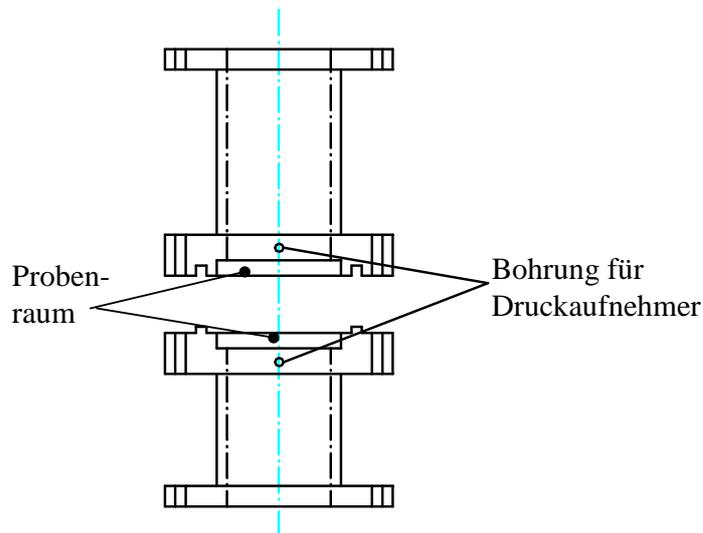


Abbildung 4.10: Schematische Darstellung des Versuchsbehälters der Anlage DMFC

Die Probenhalterung besteht aus zwei Ringen, zwischen denen die Membranen eingespannt werden können und einem in einen PTFE-Dichtungsring eingepressten Gitter zur Stabilisierung. Zur Erhöhung des Druckverlustes bei der Durchströmung, wodurch eine bessere Messbarkeit gegeben ist, werden mehrere Membranen übereinander gespannt. Vergleichende Vorversuche mit einer unterschiedlichen Anzahl an Membranen zeigten keine Unterschiede bei den Charakteristika. Zur Durchführung der Versuche wird die Probenhalterung mit den Diffusionsschichten zwischen den beiden Flanschen eingeklemmt und abgedichtet.

Der Behälter wird gemäß der Abbildung 4.6 in die hierfür konstruierte Versuchsanlage integriert, mit dem Unterschied, dass die Fluiddrücke aufgrund der geringen Probenhöhe hier direkt vor und hinter dem Probenkörper (p_0 , p_1) aufgenommen werden. Mit einem Schwebekörperdurchflussmesser lassen sich Luftvolumenströme bis $5,5 \text{ m}^3/\text{h}$ i.N. und mit dem magne-

tisch-induktiven Durchflussmesser Wasservolumenströme bis 24 l/min bei Fluiddrücken bis maximal 6 bar Überdruck messen. Zur Durchführung der mehrphasigen Experimente wurde die flüssige Phase mit Hilfe der Bypass-Leitung direkt oberhalb der Probe zudosiert. Die Bestimmung der zugehörigen Sättigung konnte, bedingt durch die elektrisch leitenden Membrane, nur gravimetrisch erfolgen.

5 Auswertung der Durchströmungsuntersuchungen

Zuerst wurden die Haufwerkskonstanten Permeabilität K und Passabilität der einphasigen Durchströmungen mit Luft bzw. Wasser ermittelt. Im anschließenden Schritt wurden die mehrphasigen Strömungen durchgeführt, um die relativen Kenngrößen $k_{rel,i}$ und $\mu_{rel,i}$ zu bestimmen.

5.1 Einphasenströmungen

Für die Betrachtung der flüssigen inkompressiblen Strömungsphase ergibt die Integration des differentiellen Druckgradienten der Impulsbilanz gemäß Gleichung (2.16) die auf die Schüttungshöhe H bezogene Druckdifferenz $p_0 - p_1$.

$$\frac{p_0 - p_1}{H} = \frac{\mu_l}{K} \cdot u_{l,0} + \frac{\rho_l}{2} \cdot u_{l,0}^2 \quad (5.1)$$

Bei der Betrachtung der Gasströmungen dagegen ist aufgrund der hohen Druckverluste bei der Durchströmung feinkörniger Schüttungen eine inkompressible Auswertung der Impulsbilanz nicht mehr zutreffend. Zur Lösung des kompressiblen Falls wird isothermes Verhalten auf Grundlage des idealen Gasgesetzes angenommen ($p \cdot u_v = konst.$ bzw. $p / \rho_v = konst.$). Die Integration der Gleichung (2.16) über die Höhe ergibt:

$$\frac{p_0^2 - p_1^2}{2 \cdot p_0 \cdot H} = \frac{\mu_v}{K} \cdot u_{v,0} + \frac{\rho_v}{2} \cdot u_{v,0}^2 \quad ((5.2)$$

Zur Bestimmung von K und μ werden die gelösten Impulsbilanzen in der Form linearisiert, dass die Kennwerte nach einer Regression dem reziproken Ordinatenabschnitt bzw. dem Kehrwert der Steigung entsprechen. Durch die Normierung mit der Dichte und der Viskosität des Fluids ist eine fluidunabhängige Darstellungsweise möglich.

$$\frac{p_0 - p_1}{H \cdot \mu_l \cdot u_{l,0}} = \frac{1}{K} + \frac{1}{2} \cdot \frac{\rho_l \cdot u_{l,0}}{\mu_l} \quad (5.3)$$

bzw.

$$\frac{1}{2} \cdot \frac{p_0^2 - p_1^2}{p_0 \cdot H \cdot \mu_v \cdot u_{v,0}} = \frac{1}{K} + \frac{1}{2} \cdot \frac{\rho_v \cdot u_{v,0}}{\mu_v} \quad (5.4)$$

Abbildung 5.1 zeigt die entsprechende Darstellung der Messwerte und die ermittelte Regressionsfunktion. Aufgetragen ist somit auf der Ordinate eine Größe, die den Druckverlust über die Schüttung beschreibt, und auf der Abszisse ein Maß für die Reynoldszahl.

Ersichtlich wird aus dieser Darstellung, dass Permeabilität und Passabilität reine Kenngrößen der Haufwerksmatrix und somit unabhängig vom durchströmenden Medium sind. Da die Messpunkte eine Ausgleichsgerade mit einer positiven Steigung ergeben, ist der Einfluss der Trägheitseffekte, wie zu erwarten, nicht zu vernachlässigen.

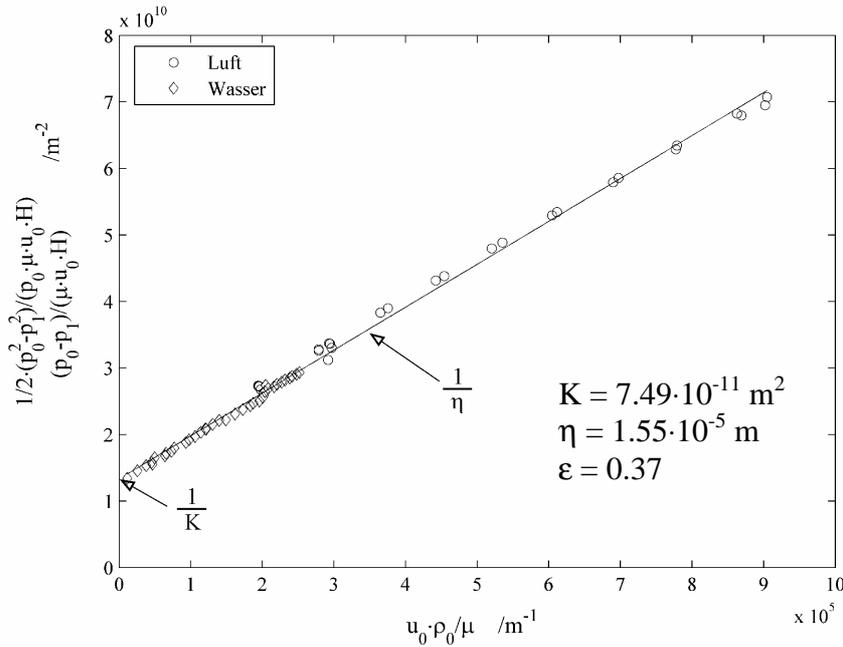


Abbildung 5.1: Ergebnisse der einphasigen Durchströmung der 315-350 µm Glaskugeln

In Abbildung 5.2 werden Versuche mit Luft, die in einem Zeitraum von über einem Jahr durchgeführt worden sind, miteinander verglichen. Die vorhandenen geringfügigen Abweichungen sind auf die unterschiedlichen Haufwerksstrukturen zurückzuführen, deren Lückengrade zwischen 0,32 und 0,33 lagen. Folglich zeigen die Untersuchungen an der Glaskugelschüttungen GK 1000-1200 die Reproduzierbarkeit der Messmethode.

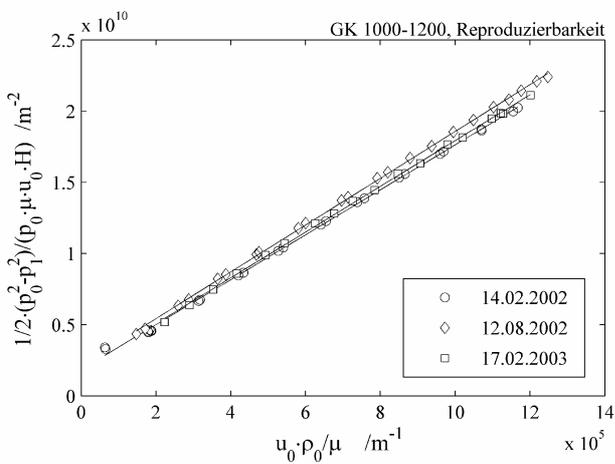


Abbildung 5.2: Reproduzierbarkeit der Messergebnisse

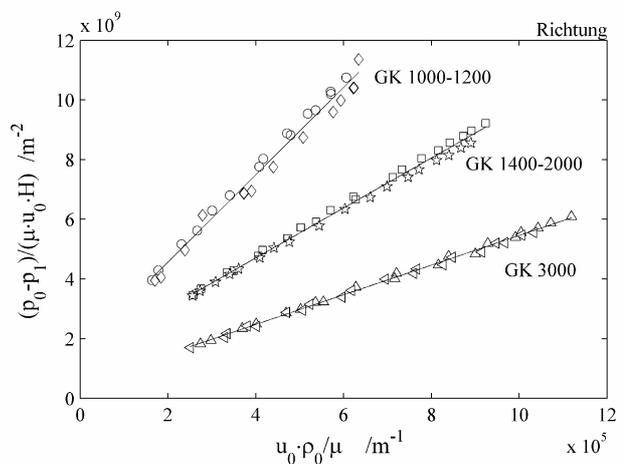


Abbildung 5.3: Einfluss der Durchströmungsrichtung

Ebenfalls ist der mögliche Einfluss der Gravitation untersucht worden. Hierzu wurde die Versuchsanlage II um ein Ventil unterhalb des Austritts erweitert, wodurch sich die Richtung der Strömung umkehren lässt. Abbildung 5.3 zeigt den Vergleich der Durchströmungsverläufe drei verschiedener Glaskugelschüttungen mit Wasser. Es sind keine Unterschiede der Kennlinien zu beobachten, d.h. dass aufgrund der hohen Volumenströme ein Einfluss der Gravitation zu vernachlässigen ist.

Abschließend wurden für die einphasigen Durchströmungen Vergleichsuntersuchungen an allen Versuchsständen durchgeführt. Für die Anlagen I und II wird im Folgenden stellvertretend die Glaskugelfraktion 240-420 µm betrachtet, deren Durchströmungsversuche mit Luft in Abbildung 5.4 dargestellt sind. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Verläufe der Mess-

punkte übereinstimmend sind. Eine Regression aller Punkte gemäß der linearisierten Impulsbilanz ergibt die in das Diagramm eingetragene Gerade.

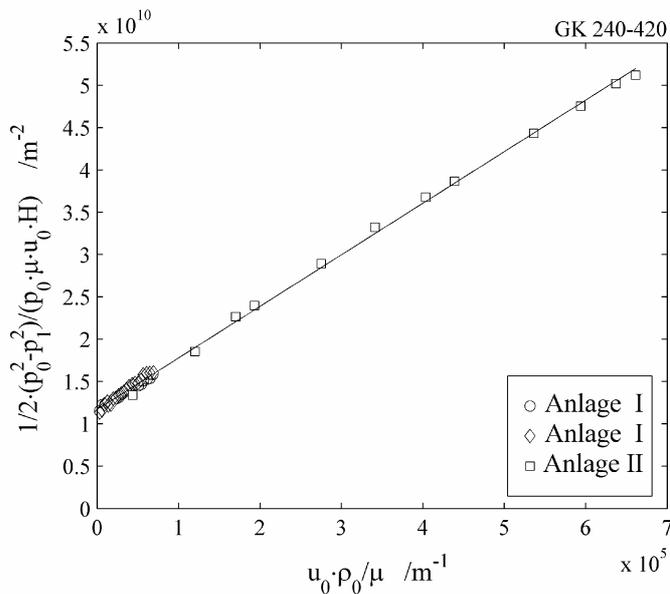


Abbildung 5.4: Vergleich der Luftmessungen in Anlage I und II

Anhand von Abbildung 5.4 fällt ferner auf, dass mit der Anlage II weitaus größere Reynoldszahlen erreicht werden. Dies ist zum einen auf die kleineren Schüttungsdurchmesser, zum anderen aber auch auf die höheren zur Verfügung stehenden Luftvolumenströme zurückzuführen. Demgegenüber war die Aufgabe der Anlage I die Untersuchung des Einflusses der Kompressibilität bei einphasigen Durchströmungen insbesondere bei niedrigen Porositäten, weshalb bei unverdichteten Schüttgütern keine großen Fluidgeschwindigkeiten erforderlich waren. Die Tabelle 5.1 zeigt die charakteristischen Daten Permeabilität, Passabilität, maximal auftretende Reynoldszahl entsprechend den Gleichungen(2.17) und (2.5) sowie die Porosität der in der Abbildung 5.4 dargestellten Versuchsreihen.

Tabelle 5.1: Übersicht Vergleichsmessungen mit Luft der Anlagen I / II

Anlage	Schüttung	Permeabilität /m ²	Passabilität /m	Lückengrad /%	Re _{max} /-
I	GK 240-420	8,58·10 ⁻¹¹	1,67·10 ⁻⁵	41,50	16,56
I		8,80·10 ⁻¹¹	1,37·10 ⁻⁵	40,72	16,71
II		8,42·10 ⁻¹¹	1,65·10 ⁻⁵	33,99	159,29

Weiterhin wurden mit einer exemplarischen Glaskugelschüttung vergleichende Versuche zur Verifizierung der Ergebnisse der Anordnung für die Untersuchung der Diffusionsschichten mit Partikelgrößen von 100-125 µm durchgeführt und diese den Ergebnissen der Anlage II zum Vergleich und zur Beurteilung gegenübergestellt, vgl. Tabelle 5.2.

Tabelle 5.2: Übersicht der Vergleichsmessungen mit Luft der Anlage II / DMFC

Anlage	Schüttung	Permeabilität /m ²	Passabilität /m	Lückengrad /%	Re _{max} /-
II	GK 100-125	5,63·10 ⁻¹²	3,01·10 ⁻⁶	37,6	0,90
DMFC		5,67·10 ⁻¹²	1,08·10 ⁻⁶	33,1	0,25
DMFC		5,41·10 ⁻¹²	1,88·10 ⁻⁶	33,1	0,14

Grundsätzlich ist die gute Übereinstimmung der Messwerte festzustellen. Zu beachten sind in der Anlage DMFC ebenfalls die geringeren Gasgeschwindigkeiten als bei der Anlage II, sichtbar beim Vergleich der maximal auftretenden Reynoldszahlen. Die verschiedenen Geschwindigkeitsbereiche sind mit der Reduzierung der Fluidgeschwindigkeiten für diese Untersuchungen zu erklären, da dadurch die unter realen Bedingungen in der Brennstoffzelle vorzufindenden langsamen Strömungszustände nachgebildet werden sollten. Die Permeabilitäten konnten bei geringen Abweichungen, die auf die unterschiedlichen Packungszustände zurückzuführen sind, bestätigt werden. Bei den Passabilitäten, die nur eingeschränkt vergleichbar sind, da der Übergang von der reibungs- zur trägheitsdominierten Strömung in einem Reynoldsbereich von 0,1 bis 1 erfolgt, ist der Unterschied hingegen deutlich größer. Diese Differenzen sind jedoch mit dem eingeschränkten Messbereich der Strömungsgeschwindigkeiten zu erklären. Da die Transportprozesse in den Brennstoffzellensystemen reibungsdominiert sind, stand bei den Untersuchungen nur der Einfluss der Permeabilität, also bei den niedrigen Strömungsgeschwindigkeiten, im Vordergrund.

Zusammengenommen zeigt sich für die drei Versuchsstände zum einen die Bestätigung der Systematik der Versuchsdurchführung sowie -auswertung und zum anderen das Ermitteln plausibler sowie reproduzierbarer Ergebnisse.

5.2 Mehrphasenströmungen

Die zur Beschreibung der Mehrphasenströmungen verwendeten Impulsbilanzen sind im Kapitel 2.3.2 in der Gleichung (2.28) dargelegt. Zunächst ist der Einfluss der Kapillarität zu diskutieren. Fourar und Lenormand [FL01] vermuten, dass die Kapillarkräfte im Vergleich zu den viskosen Kräften vernachlässigbar sind, d.h. dass überall gleiche Druckgradienten vorliegen. Da das Ziel dieser Arbeit die Untersuchung von Durchströmungen insbesondere bei höheren Strömungsgeschwindigkeiten ist, ist anzunehmen, dass in diesem Fall die Kapillarkräfte von untergeordneter Bedeutung sind. Zur Veranschaulichung zeigt Abbildung 5.5 eine Schar von Kapillardruckkurven als Funktion des mittleren Partikeldurchmessers gemäß Gleichung (2.10). Der Bereich für die hier untersuchten Porositäten ist schraffiert hinterlegt.

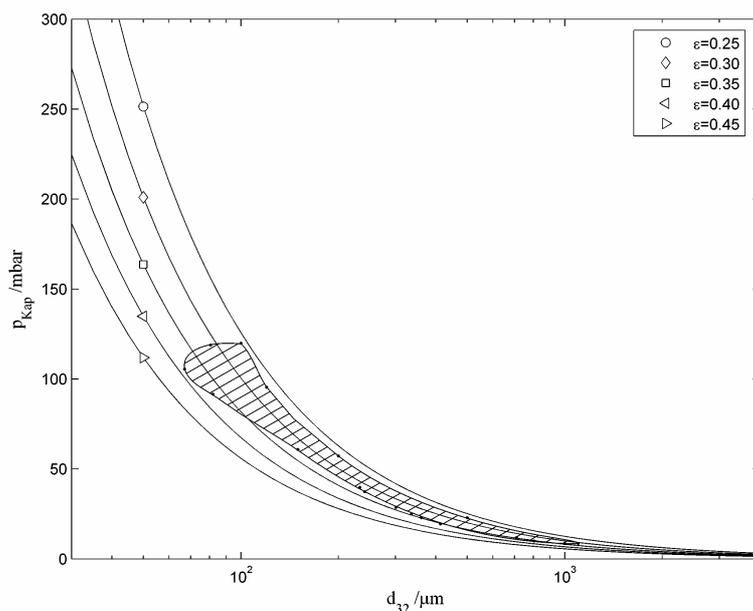


Abbildung 5.5: Kapillardruckkurven in Abhängigkeit des Lückengrades und des mittleren Partikeldurchmessers [Schu82], ergänzt um den Arbeitsbereich

In dem hier untersuchten Gebiet sind die maximal auftretenden Kapillardrücke kleiner als 150 mbar und somit im Vergleich zu Fluiddrücken bis 7 bar bei den Durchströmungen vernachlässigbar. Folglich wird die Annahme gleicher Drücke in beiden Phasen ($p_v - p_l = 0$) bestätigt,

$$\frac{\partial p_l}{\partial x} = \frac{\partial p_v}{\partial x} = \frac{\partial p}{\partial x} \quad (5.5)$$

womit sich für die verwendete Impulsbilanz unter Berücksichtigung der relevanten Einflusssterme Gleichung (5.6) ergibt.

$$\frac{\partial p}{\partial x} = -\frac{\mu_i}{k_{rel,i} \cdot K} \cdot u_{i,0} - \frac{i}{rel,i} \cdot u_{i,0}^2 - i \cdot g \pm \frac{F_{lv}}{s_i} \quad (5.6)$$

Im Gegensatz zu der Auswertung der einphasigen Versuche können die Impulsbilanzen nicht mehr getrennt für jede Phase gelöst werden. Die analytische Lösung für eine inkompressible Flüssigkeitsströmung, Gleichung (5.1), gibt einen linearen Druckverlauf über die Schüttungshöhe vor, vgl. Gleichung (5.7),

$$p_l(x) = p_0 - \frac{x}{H}(p_0 - p_1) \quad (5.7)$$

diejenige für eine kompressible Gasströmung, Gleichung ((5.2), ein Wurzelprofil, siehe Gleichung (5.8).

$$p_v(x) = \sqrt{p_0^2 - \frac{x}{H}(p_0^2 - p_1^2)} \quad (5.8)$$

Der Druckverlauf für die mehrphasige Durchströmung ist hingegen eine Kombination beider Profile. In der Abbildung 5.6 sind normiert die verschiedenen Verläufe der Fluiddrücke über die Schüttungshöhe dargestellt.

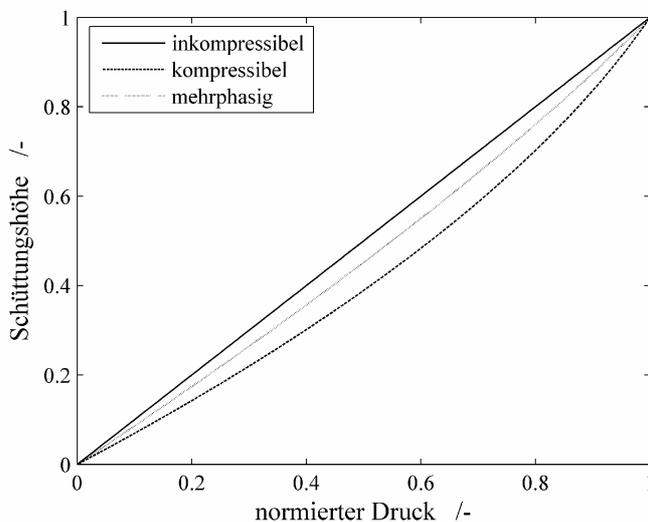


Abbildung 5.6: Druckprofile der Durchströmungsprozesse

Da in Strömungsrichtung sowohl in der flüssigen als auch in der gasförmigen Phase gleiche Drücke herrschen, ist eine Auswertung mit analytischen Methoden analog zur Einphasenströmung nicht mehr möglich. Der in axialer Richtung variierende Druck verursacht durch die Volumenabhängigkeit der Gasphase in jedem Höhenelement der Schüttung eine Veränderung der Strömungsgeschwindigkeit. Folglich liegt somit auch eine an den Druck gekoppelte örtliche Abhängigkeit der Sättigung vor. Zur Auswertung der Messergebnisse ist deshalb ein numerischer Algorithmus entwickelt worden, der unter Berücksichtigung sowohl lokaler Sättigungen als auch gleicher Drücke und Druckgradienten in beiden Phasen gemeinsam die Impulsbilanzen und Kontinuitätsgleichung der Gasphase löst.

5.3 Numerische Umsetzung der Auswertung mehrphasiger Strömungen

Der entwickelte Algorithmus besteht aus zwei Teilen. Zuerst löst ein mehrdimensionales Newton-Verfahren die Bilanzgleichungen bei gegebenen Startwerten der Modellparameter. Der zweite, äußere Schritt besteht aus dem Optimieren dieser Parameter, so dass die Abweichungen zwischen den berechneten und den gemessenen Drücken sowie den mittleren experimentell bestimmten Sättigungen minimal sind. Hierzu wurde die Schüttung in axialer Richtung in mehrere Volumenelemente konstanter Höhe eingeteilt, siehe Abbildung 5.7. Die Lösung des Algorithmus erfolgt in entgegengesetzter Richtung zur Durchströmung, da sich zur Minimierung der Fehlerfunktionen die größeren Drücke am Schüttungseintritt besser eignen als die kleineren am Austritt.

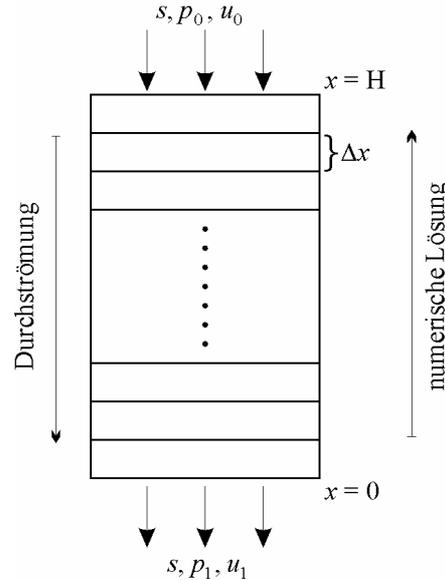


Abbildung 5.7: Lösungsprinzip des Auswertungsalgorithmus

Das dem Algorithmus zugrunde liegende Gleichungssystem ist im Folgenden dargestellt. Im Einzelnen sind dies die differentiellen Impulsbilanzen, (5.9) und (5.10),

$$f_v(x) = \frac{\mu_v}{k_{rel,v} \cdot K} \cdot u_v + \frac{v}{k_{rel,v}} \cdot u_v^2 - v \cdot g + \frac{F_{lv}}{(1-s')} - \frac{p' - p_1}{x} \quad (5.9)$$

$$f_l(x) = \frac{\mu_l}{k_{rel,l} \cdot K} \cdot u_l + \frac{l}{k_{rel,l}} \cdot u_l^2 - l \cdot g - \frac{F_{lv}}{s_{eff}} - \frac{p' - p_1}{x} \quad (5.10)$$

die Massenerhaltungsgleichungen der fluiden Phase, (5.11) und (5.12),

$$v = \frac{p'}{R \cdot T}; \quad l = konst. \quad (5.11)$$

$$u_v = -\frac{v_{v,0} \cdot u_{v,0}}{v}; \quad u_l = konst. \quad (5.12)$$

sowie die Ansätze zur Beschreibung des Mehrphasensystems, (5.13), (5.14) und (5.15),

$$k_{rel,v} = (1-s')^v; \quad k_{rel,l} = s_{eff}^l \quad (5.13)$$

$$k_{rel,v} = (1-s')^v; \quad k_{rel,l} = s_{eff}^l \quad (5.14)$$

$$s_{eff} = \frac{s' - s_{im}}{1 - s_{im}} \quad (5.15)$$

und des Einflusses der Wechselwirkungen an den Phasengrenzflächen, (5.16).

$$F_{lv} = \left(\rho_l - \rho_v \right) \cdot g \cdot W_0 \cdot s_{eff}^m \cdot (1 - s') \cdot \frac{l \cdot K}{\mu} \cdot \left(\frac{u_v}{1 - s'} - \frac{u_l}{s_{eff}} \right)^2 \quad (5.16)$$

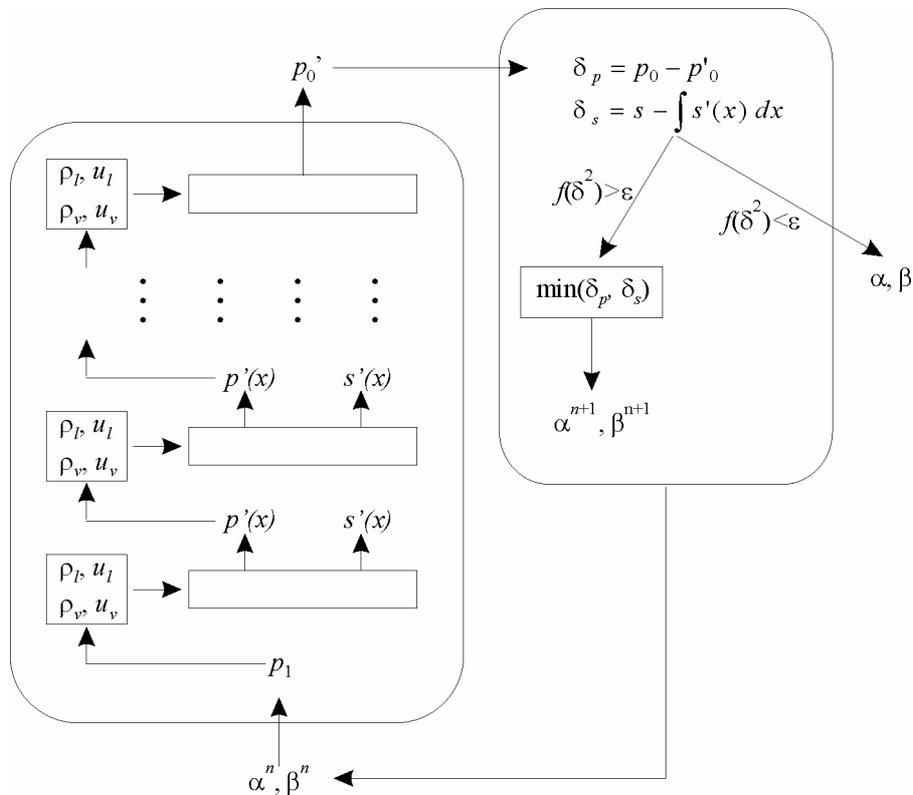


Abbildung 5.8: Ablaufschema des Auswertungsalgorithmus

Die Abbildung 5.8 zeigt das Ablaufschema des Auswertungsalgorithmus. Ausgehend von dem gemessenen Druck p_1 und konstanten Massenströmen der fluiden Phasen werden mit den Startwerten α^n, β^n für jedes differentielles Höhenelement x der jeweilige Eintrittsdruck p' und die korrespondierende Sättigung s' berechnet. Der so bestimmte Druck entspricht dem Austrittsdruck des folgenden Bilanzraumes, mit dessen Hilfe sich dann die Austrittsgeschwindigkeiten der fluiden Phasen u_i sowie deren Dichten ρ_i für dieses Höhenelement ermitteln lassen. Diese Schritte werden bis zum obersten Volumenelement am Schüttungseintritt wiederholt und nach einer vollständigen Berechnungsschleife die Fehlerfunktionen $f(\delta^2)$ aus den experimentellen und den berechneten Eintrittsdrücken sowie den mittleren Sättigungen bestimmt. Mit einem Simplex-Verfahren lassen sich dann die Fehlerfunktionen minimieren, um die Startwerte $\alpha^{n+1}, \beta^{n+1}$ des folgenden Iterationsschrittes zu erhalten. Bei Abweichungen von weniger als 0,2 Prozent zum vorangegangenen Zyklus, wird die Berechnung mit dem Lösungsvektor für α und β abgebrochen.

Die sich schließlich für zwei exemplarische Glaskugelschüttungen ergebenden Verläufe der relativen Permeabilitäten und relativen Passabilitäten als Funktion der Sättigung sind zusammen mit den Regressionsparametern in Abbildung 5.9 dargestellt.

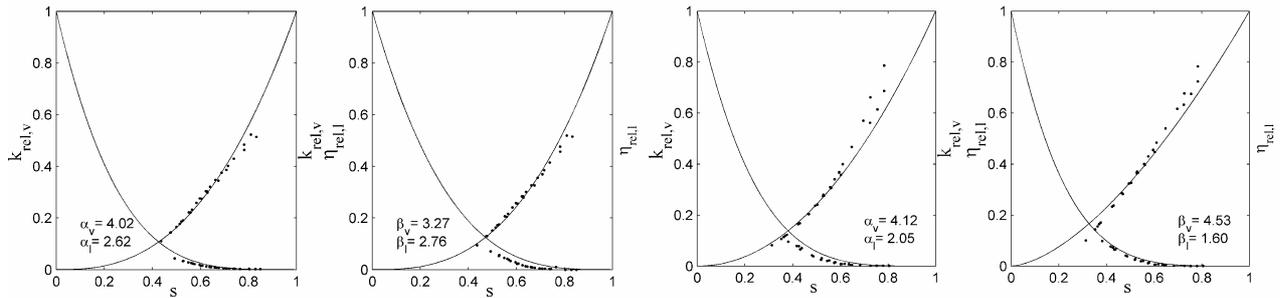


Abbildung 5.9: Verläufe von k_{rel} und η_{rel} für GK 710-800 (links) und GK 1000 (rechts)

Für eine reine Wasserströmung ($s = 1$) bzw. Luftströmung ($s = 0$) kommt es zu keiner gegenseitigen Beeinträchtigung der fluiden Phasen, weshalb die Verläufe gegen 0 und 1 streben. Bereits bei geringen Abweichungen von einer gesättigten bzw. trockenen Schüttung geht erwartungsgemäß die Durchlässigkeit für die jeweilige Phase stark zurück.

Levec, Sáez und Carbonell [LSC86] ermittelten in ihren Untersuchungen an Glaskugelschüttungen mit Partikeldurchmessern von 300 und 600 μm von der Reynoldszahl abhängige Parameter für $k_{rel,i}$ von 3,5 und 5,5, die in einem mit den hier erzielten Ergebnissen vergleichbaren Bereich liegen. Untersuchungen an anderen Schüttungen ergaben Exponenten für die relative Permeabilität von 4,8 [SC85].

Bei der Auswertung aller mehrphasigen Durchströmungen zeigten sich bei einigen Versuchsreihen Schwierigkeiten im Lösen vier voneinander unabhängigen Exponenten für die Potenzansätze der relativen Kenngrößen entsprechend den Gleichungen (5.13) und (5.14). Die Ursachen hierfür sind mathematischer und experimenteller Natur.

Wenn in jeder Impulsbilanz jeweils zwei Parameter, die physikalisch nicht voneinander abhängig sind, angepasst werden sollen, können sie sich dennoch bei der mathematischen Lösung gegenseitig beeinflussen. Eine Erhöhung des Exponenten der relativen Permeabilität zum Beispiel führt, um zu dem gleichen Ergebnis zu gelangen, zu einer entsprechenden Veränderung der Funktion der relativen Passabilität.

Ein erster Schritt zur Lösung dieser Schwierigkeit war der Versuch mit mehreren Iterationsschritten eine Lösung zu erhalten, also den Auswertungsalgorithmus dahingehend zu modifizieren, dass im Wechsel die Ansatzfunktionen für den Darcy und den Ergun-Term gelöst werden. Dabei stellte sich heraus, dass die Datenbasis der Messpunkte, die zur Bestimmung der Trägheitseinflüsse höhere Durchströmungsgeschwindigkeiten erforderten, zu gering war. Da bedingt durch das Vorhandensein mehrerer fluiden Phasen ein zusätzlicher Druckverlust auftritt, sinken zwangsläufig die Strömungsgeschwindigkeiten bei vergleichbaren Drücken. Insbesondere bei den Wasserströmungen war die Limitierung der Reynoldszahlen deutlich ausgeprägter als bei der Luftphase. Durch eine Erhöhung der Drücke wurde bei der Durchführung der Messungen versucht, diesem Effekt entgegen zu wirken, allerdings ließ sich dann keine homogene Phasenverteilung mehr erreichen. In der Schüttung war eine wechselnde stoßweise Strömung der flüssigen und gasförmigen Phase zu beobachten, weshalb eine Auswertung mit diesem Ansatz nicht weiter verfolgt wurde.

Des Weiteren konnten die Messdaten mit Sättigungen nahe s_{im} oder 1 nicht zur Auswertung herangezogen werden, da ein Ziel der Arbeit die Beschreibung mehrphasiger Prozesse mit zwei strömenden Phasen war. Eine Selektion der Messwerte im Vorfeld schloss die Fälle mit nur einer mobilen Phase, also bei denen nur ein Volumenstrom messbar war, aus. Gerade in dem untersuchbaren Sättigungsbereich treten jedoch die größten Exzesswiderstände durch die gegenseitige Beeinflussung der fluiden Phasen auf, siehe Abbildung 5.10.

Dieser zusätzliche Widerstand ist physikalisch dadurch motiviert, dass bei Anwesenheit mehrerer Phasen sich die für die Durchströmung zur Verfügung stehende effektive freie Quer-

schnittsfläche für jede einzelne Phase verringert [TD88], und es zu Wechselwirkungen an den Phasengrenzflächen kommt.

$$\begin{aligned}
 k_{l,rel} + k_{v,rel} &\leq 1 \\
 l_{,rel} + v_{,rel} &\leq 1
 \end{aligned}
 \quad , \text{ bei } s = \text{konst.}
 \tag{5.17}$$

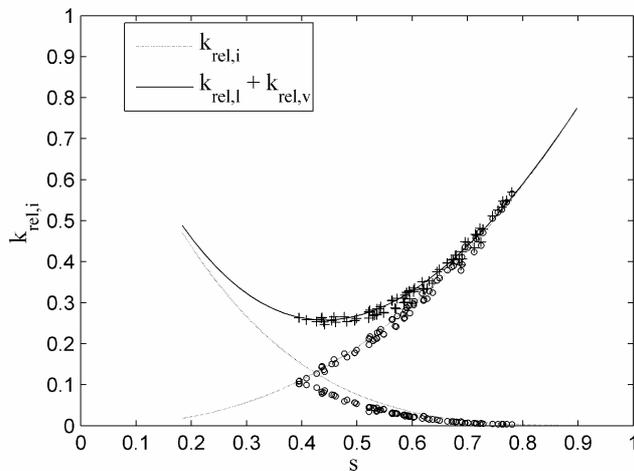


Abbildung 5.10: Summe der relativen Permeabilitäten der Gas- und Flüssigphase

Da die relativen Kenngrößen die Beeinflussung, sowohl für den reibungs- als auch den trägheitsdominierten Strömungsbereich, durch das Vorhandensein mehrerer fluiden Phasen beschreiben, lag die Annahme gleicher relativer Permeabilitäten und relativer Passabilitäten nahe [SC85, FL00].

$$k_{rel,i} = \dots_{rel,i}
 \tag{5.18}$$

Die Methodik ist ähnlich zu den Untersuchungen von Fourar und Lenormand [FL01], die auch die Problematik bei vier anzupassenden Funktionen erkannten und für ihre Weiterentwicklung des Lockhart-Martinelli-Modells von gleichen relativen Kenngrößen für dieselbe Phase ausgingen.

Diejenigen Versuchsreihen, bei denen eine ausreichende Datenbasis zur Verfügung stand, wurden sowohl mit dem 4 als auch mit dem 2-Parameteransatz ausgewertet. Die Ergebnisse für zwei exemplarische Glaskugelschüttungen sind in der Tabelle 5.3 zum Vergleich eingetragen. Zur Kontrolle, dass der Anteil des Trägheitseinflusses nicht zu vernachlässigen ist, sind ferner die maximal aufgetretenen Reynoldszahlen gemäß den Gleichungen (5.19a, b) berechnet worden.

$$\begin{aligned}
 Re_l &= \frac{2}{3} \cdot \frac{u_{l,0} \cdot d_{32} \cdot l}{\mu_l} \cdot \frac{1}{1 - s_{eff}} \\
 Re_v &= \frac{2}{3} \cdot \frac{u_{v,0} \cdot d_{32} \cdot v_0}{\mu_v} \cdot \frac{1}{1 - s}
 \end{aligned}
 \tag{5.19a, b}$$

Tabelle 5.3: Vergleich exemplarischer Exponenten der 4- und 2-Parameter-Anpassung

GK	4 Parameter				2 Parameter		$Re_{l,max}$	$Re_{v,max}$
	l	l	v	v	l, l	v, v		
GK 710-800	2,62	2,75	4,02	3,26	2,60	3,83	142,0	72,5
GK 1000	2,05	1,60	4,12	4,54	1,90	4,28	158,0	113,0

Es zeigt sich, dass zum einen bei vier freien Parametern die Exponenten einer Phase und zum anderen im Vergleich beider Anpassungen untereinander annähernd gleich sind, womit die oben getroffene Annahme gleicher Widerstände gerechtfertigt werden. Letztendlich müssen

somit anstelle der vier nur noch zwei Parameter, α_l und α_v , bestimmt werden, wodurch das zu lösende Gleichungssystem bestimmter, die Lösung physikalisch sinnvoller und nicht mathematisch dominiert wird.

Exemplarische Druck- und Sättigungsverläufe, die sich aus der gekoppelten numerischen Berechnung mit zwei Parametern ergeben, sind in Abbildung 5.11 aufgetragen.

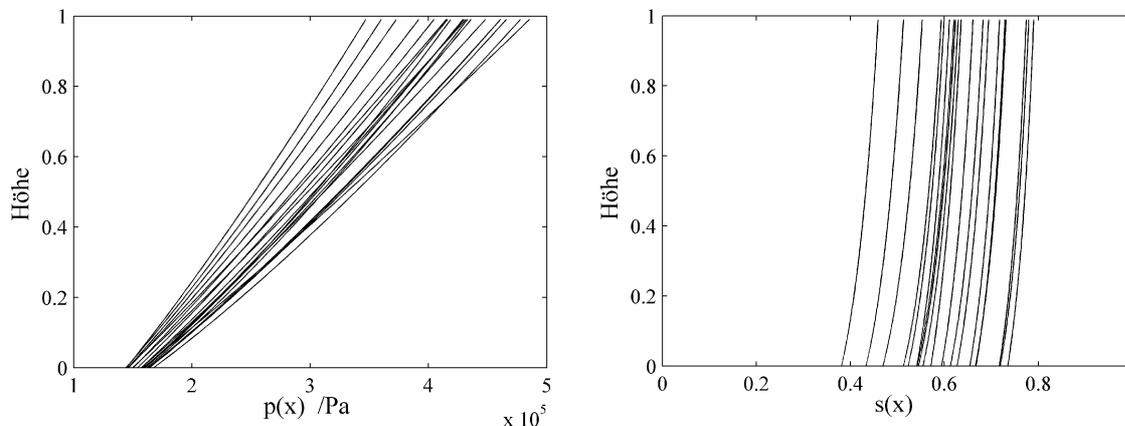


Abbildung 5.11: Druck- und Sättigungsprofile über die Schüttungshöhe

Zur Bewertung der Qualität der numerischen Berechnung ist in Abbildung 5.12 links die mittlere berechnete Sättigung gegen die experimentell gemessene aufgetragen und rechts dazu der Vergleich der berechneten mit der gemessenen Druckdifferenz Δp dargestellt.

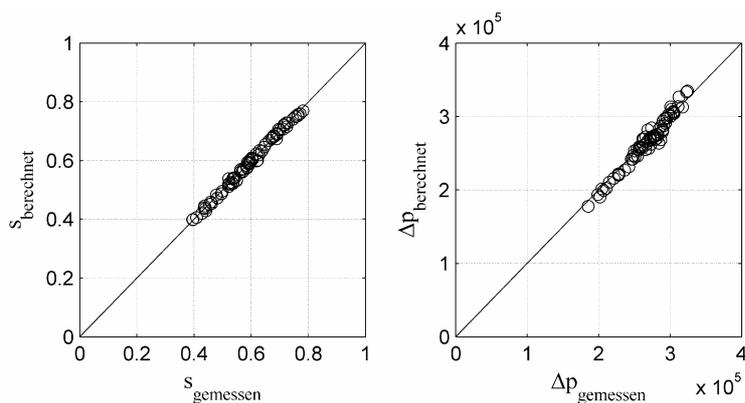


Abbildung 5.12:
Vergleich der numerisch bestimmten Werte mit Messdaten

Die Verläufe der relativen Permeabilitäten für die Glaskugelfraktion 315-350 μm sind abschließend in Abbildung 5.13 in Abhängigkeit der Sättigung dargestellt.

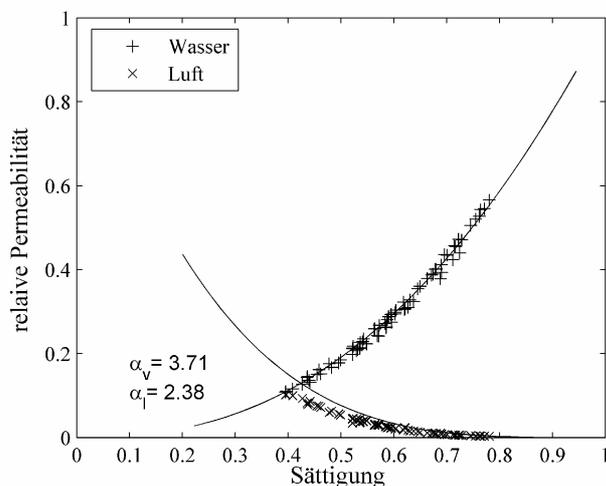


Abbildung 5.13:
Relative Permeabilität für GK 315-350

Mit dem entwickelten numerischen Algorithmus zur Auswertung mehrphasiger Strömungen durch poröse Medien lässt sich, wie in der Abbildung zu sehen, das Verhalten der relativen Permeabilitäten sehr gut abbilden. Es ist somit eine Basis geschaffen worden, die zugrunde gelegten physikalischen Modellvorstellungen hinsichtlich des Einflusses der verschiedenen Haufwerkparameter zu bewerten.

5.4 Einfluss der Phasenwechselwirkung

Um den Einfluss des Phasenwechselwirkungsterms näher zu bestimmen, wird zunächst eine Separation der einzelnen Einflussterte der Impulsbilanz vorgenommen, siehe Abbildung 5.14.

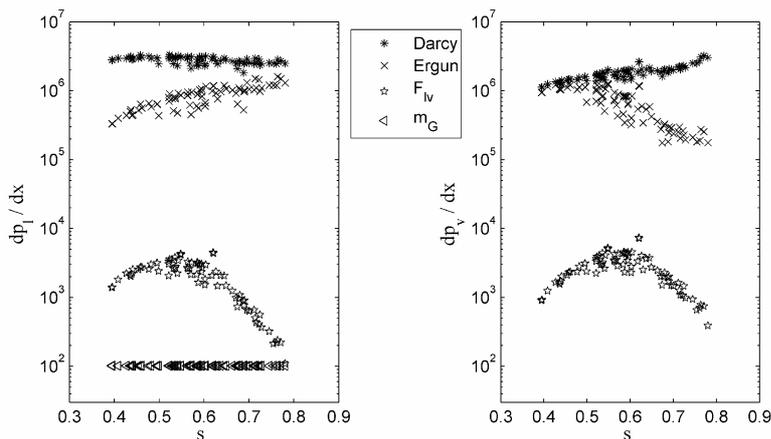


Abbildung 5.14:
Druckgradient aufgeschlüsselt in
die Terme der Impulsbilanz in
Abhängigkeit der Sättigung;
links für die Flüssigkeit,
rechts für die Gasphase

Aufgetragen sind in Abbildung 5.14 die Anteile gemäß Darcy, Ergun, der Phasenwechselwirkungs- sowie der Gravitationskraft auf den Druckgradienten als Funktion der Sättigung, vgl. Gleichung (2.28), für die zur Diskussion exemplarisch ausgewählte Glaskugelschüttung GK 315-350. Links sind Anteile der flüssigen, rechts die der gasförmigen Phase dargestellt.

Die wesentlichen den Druckverlust bestimmenden Größen sind die Reibungs- und Trägheitskräfte. Insbesondere für die Gasphase fällt auf, dass der Trägheitseinfluss mit steigender Sättigung abnimmt, bei einem simultanen Anstieg der viskosen Kräfte. Bei der Durchführung der Versuche konnte beobachtet werden, dass eine Erhöhung des Anteils der flüssigen Phase zu einer Abnahme der Gasströmungsgeschwindigkeit führt und umgekehrt. Sinkende Geschwindigkeiten entsprechen einer Reduzierung der jeweiligen Reynoldszahl, gleichbedeutend mit einer dominierenden Einflussnahme des Darcy-Anteils. Ein vergleichbares Verhalten ist in der Abbildung links für die flüssige Phase bei niedrigen Sättigungen zu erkennen.

Deutlich sichtbar ist des Weiteren der Einfluss der konkurrierenden Phasen in Form des Phasenwechselwirkungsterms. Im Vergleich zu den beiden dominierenden Kräften stellt er zwar eine untergeordnete, jedoch eine nicht zu vernachlässigende Größe dar. Zur näheren Untersuchung ist in der Abbildung 5.15 für drei verschiedene Konfigurationen die Abhängigkeit der Anpassungsparameter W_0 und m auf die empirische Phasenverteilungsfunktion $W(s)$, vgl. Gleichung (2.27), dargestellt.

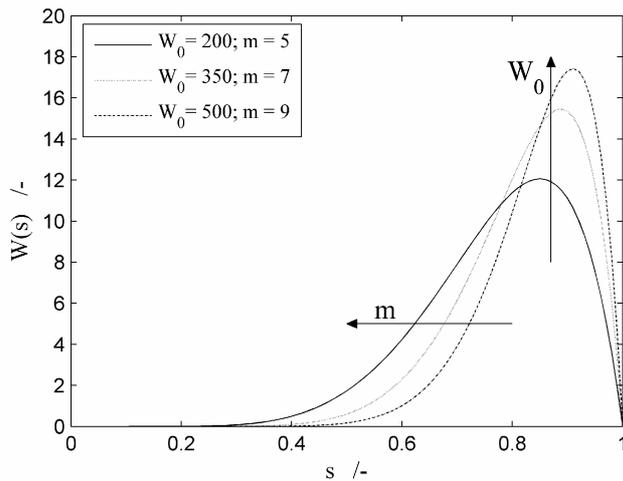


Abbildung 5.15: Einfluss der Anpassungsparameter auf den Phasenwechselwirkungsterm

Ein steigender Exponent m sorgt für eine Verschiebung des Maximums zu niedrigeren Sättigungen, wohingegen sich der Parameter W_0 auf die Amplitude auswirkt. Da schon geringe Variationen der Parameter erhebliche Auswirkungen auf die Verteilungsfunktion zeigen, ist diese mit dem Auswertalgorithmus für die Mehrphasenströmungen optimiert worden. Um die Anzahl der Freiheitsgrade klein zu halten, werden hierzu die Exponenten der relativen Permeabilitäten und relativen Passabilitäten gleichgesetzt, so dass nur vier Parameter (β , ν , W_0 und m) anzupassen sind. Abbildung 5.16 zeigt die so bestimmten Regressionsparameter des Phasenwechselwirkungsterms für die untersuchten Glaskugelschüttungen.

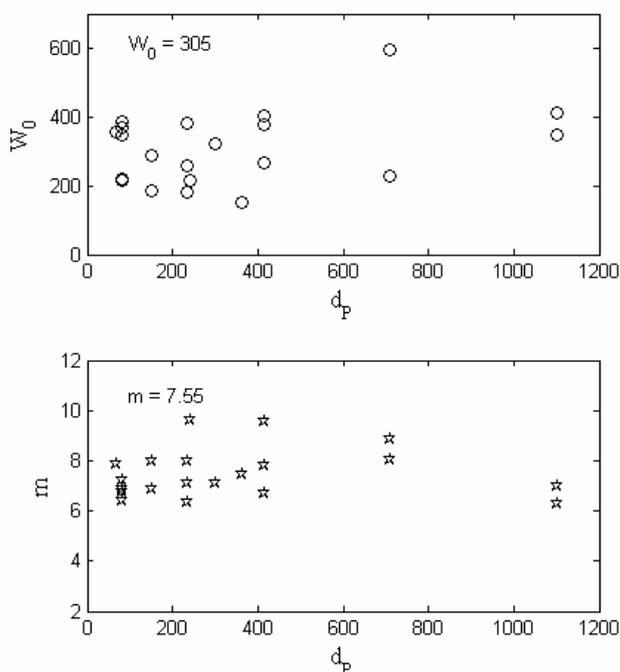


Abbildung 5.16: Experimentell bestimmte Anpassungsparameter

Festzustellen ist, dass beide Parameter unabhängig vom mittleren Partikeldurchmesser sind und für die hier untersuchten Mehrphasensysteme der Modellschüttgüter als konstant anzusehen sind. Im Mittel ergibt sich $W_0 = 305$ und $m = 7,55$, die zur weiteren Auswertung der mehrphasigen Durchströmungsuntersuchungen verwendet worden sind.

6 Ergebnisse

6.1 Kapillare Eigenschaften

Abbildung 6.1 zeigt zwei experimentell bestimmte Kapillardruckkurven von Glaskugelschüttungen mit Partikelgrößenverteilung von 50-105 μm sowie von 180-300 μm . Ebenfalls dargestellt sind die Anpassungen der Messdaten an die Kapillarmodelle von Brooks & Corey, vgl. Gleichung (2.8), sowie Van Genuchten, Gleichung (2.9).

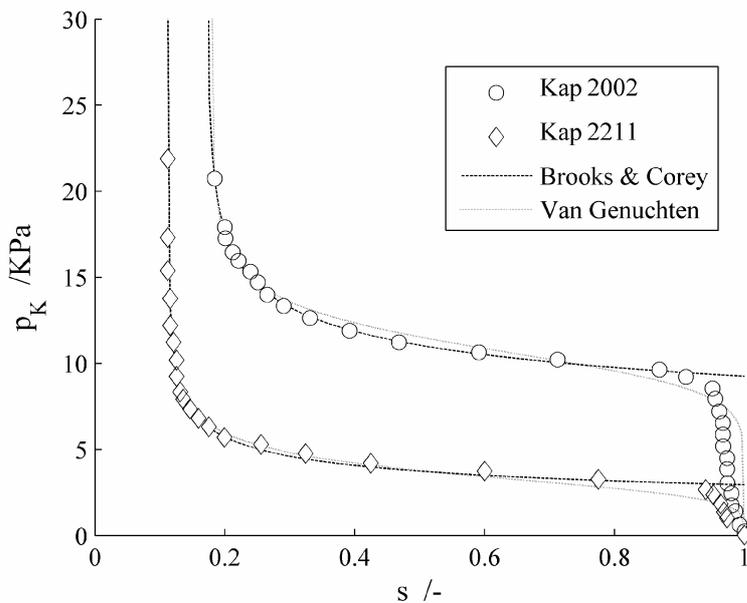


Abbildung 6.1:
Kapillardruckkurven der
Glaskugelschüttung 50-
105 μm und 180-300 μm

Die Ausgangssättigung liegt nahe bei 1, eine vollständige Sättigung wird aufgrund eingeschlossener Luftpolster im Experiment nicht erreicht. Ab dem kapillaren Eintrittsdruck bei etwa 9 bzw. 3 KPa wird die Flüssigkeit durch die Luft aus den Poren verdrängt. Zum Ende der Messung wird beim maximal aufprägbarsten Druck die immobile Sättigung s_{im} erreicht. Deutlich sichtbar ist der Einfluss der Porengröße auf s_{im} , die für die kleineren Partikel bei 0,18 liegt, wohingegen für die Fraktion 180-300 μm $s_{im} = 0,11$ gemessen wird. Diese Restsättigungen wurde nach Versuche mittels Auswiegen und Trocknen bei 100°C bestimmt.

Die folgende Tabelle gibt eine zusammenfassende Gegenüberstellung der für diese beiden Schüttungen berechneten Parameter sowie der immobilen Sättigungen. Sie verdeutlicht wie Abbildung 6.1 die gute Übereinstimmung der gemessenen Werte mit den jeweiligen Modellen. Weiterhin sind zur Verifikation des Messprinzips und der Regression die kapillaren Eintrittsdrücke p_d , die sich gemäß den Untersuchungen nach Schubert, vgl. Kapitel 2.2 Gleichung (2.10), ergeben, aufgelistet.

Tabelle 6.1: Parameter der exemplarisch dargestellten Kapillardruckkurven

Schüttung				Brooks und Corey (2.8)			Van Genuchten (2.9)			Schubert (2.10)
	d_{32} / μm		s_{im}	p_d /KPa		s_{im}	m	m	s_{im}	p_d /KPa
GK 50-105	81,9	0,36	0,18	9,26	5,19	0,17	0,91	0,88	0,18	9,19
GK 180-300	233	0,39	0,11	2,95	3,46	0,11	2,93	0,80	0,11	2,97

Diese Ergebnisse bestätigen ferner die bereits in Kapitel 5.2 getroffene Annahme der im Vergleich zu den Strömungsdrücken vernachlässigbaren kapillaren Drücke, auch bei den Haufwerken geringerer Porengröße.

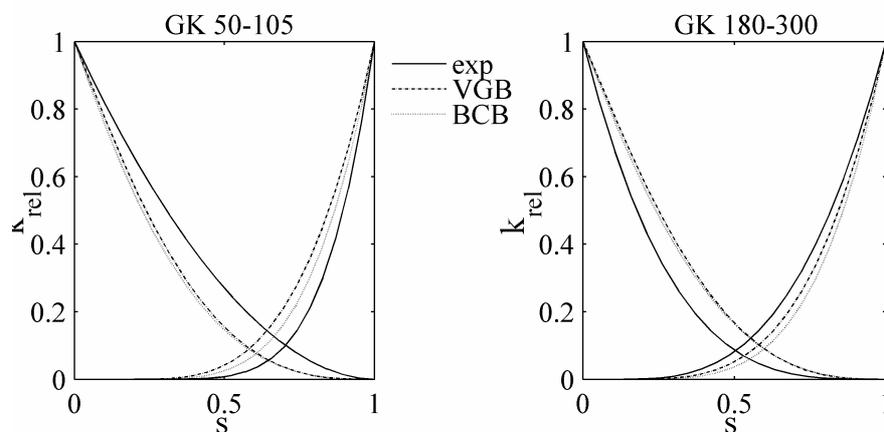


Abbildung 6.2: Vergleich der relativen Permeabilitäten aus Strömungs- und Kapillardruckmessungen

Zusätzlich erlauben diese Ergebnisse eine erste Einordnung der mehrphasigen Durchströmungsuntersuchungen. In der Abbildung 6.2 sind die mit Hilfe des Modells von Burdine (BCB, VGB) ermittelten relativen Permeabilitäten der Gas- und Flüssigphase, vgl. Tabelle 2.1, den aus den Durchströmungsuntersuchungen experimentell bestimmten, gegenübergestellt. Zur Auswertung ist für diesen Fall der Trägheitsterm in der Impulsbilanz vernachlässigt worden, da nur Messpunkte mit niedrigen Reynoldszahlen berücksichtigt wurden. Grundsätzlich ist eine Übereinstimmung der verschiedenen Modelle zu beobachten. Dies bedeutet, insbesondere vor dem Hintergrund der jeweils verwendeten unterschiedlichen Messprinzipien, dass die relativen Kenngrößen Eigenschaften des Stoffsystems sind.

6.2 Einphasige Durchströmung

6.2.1 Einfluss der Partikelgröße

Zur Untersuchung des Einflusses der Partikelgröße auf einphasige Durchströmungsvorgänge sind Glaskugel-Schüttungen mit unterschiedlichen Partikelgrößenverteilungen zum Einsatz gekommen, deren Lückengrade zwischen 0,32 und 0,38 lagen. Abbildung 6.3 zeigt in der linearisierten Darstellung, aus der sich Permeabilität und Passabilität ableiten lassen, die Durchströmungscharakteristika vier exemplarisch ausgewählter Glaskugelfraktionen mit verschiedenen mittleren Partikeldurchmessern. Deutlich zu sehen ist, dass mit feiner werdendem Schüttgut der Druckverlust steigt und die maximal erreichbare Strömungsgeschwindigkeit sinkt.

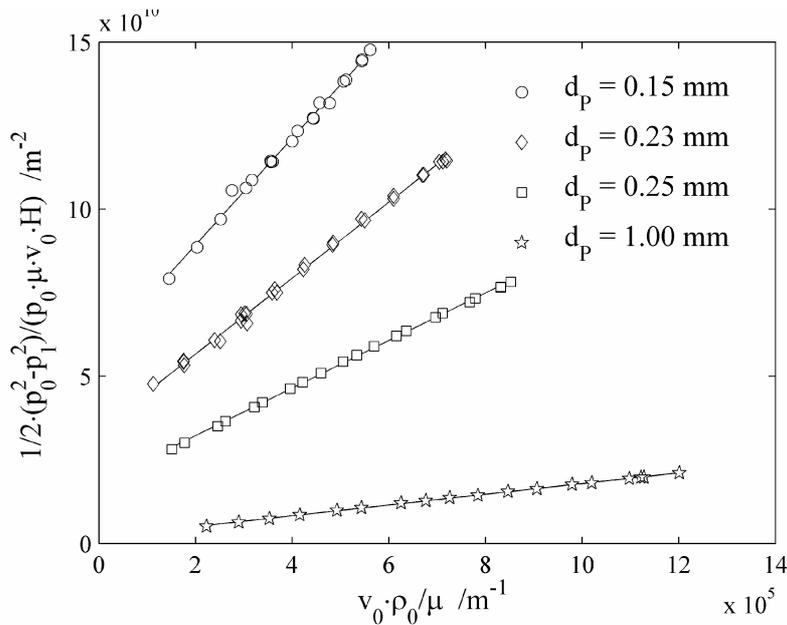


Abbildung 6.3: Durchströmungscharakteristika von Schüttungen unterschiedlicher Partikel-durchmesser

Die experimentell bestimmten Permeabilitäten und Passabilitäten aller untersuchten Glaskugelschüttungen sind in Abhängigkeit des mittleren Partikeldurchmessers in der Abbildung 6.4 dargestellt. Die gestrichelte Linie entspricht den theoretischen Verläufen gemäß Carman/Kozeny bzw. Ergun, gemäß den Gleichungen (3.5a, b), die durchgezogene der Regression der Messwerte mit einem Potenzansatz der Form $y \sim x^a$. Als erste Aussage ist festzuhalten, dass die Permeabilität direkt proportional zum Quadrat ($a_1 = 1,8$) und die Passabilität eine nahezu lineare Funktion ($a_2 = 1,1$) des mittleren Partikeldurchmessers ist. Die Abweichungen der Kenngrößen bei gleichen Partikelgrößen sind dabei auf die unterschiedlichen Packungszustände, bedingt durch den Einfüllvorgang, zurückzuführen. Aus diesem Grund wurden auch nur diejenigen Versuche mit der o.a. engen Porositätsverteilung ausgewertet.

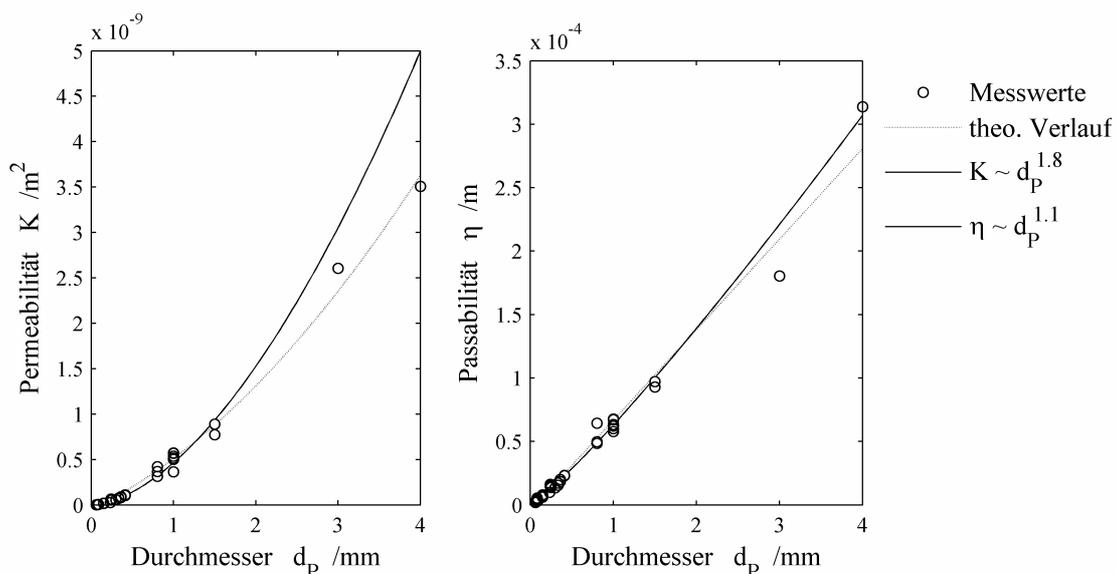


Abbildung 6.4: Einfluss des mittleren Partikeldurchmessers auf Permeabilität und Passabilität

Auch aus Abbildung 6.4 ist zu erkennen, dass erwartungsgemäß die Durchströmbarkeit als Konsequenz der sinkenden Partikeldurchmesser schlechter wird. Abbildung 6.5 verdeutlicht

den Zusammenhang zwischen dem mittleren Partikeldurchmesser und der Porengröße repräsentiert durch den hydraulischen Durchmesser gemäß Gleichung (2.5). Ferner ist zu erkennen, dass durch die Limitierung der Lückengrade, die Porengröße bei gleichen Schüttungsfraktionen nur unwesentlich variieren. Somit ist auszuschließen, dass die Porosität für diese Untersuchungsreihen eine Einflussgröße darstellt.

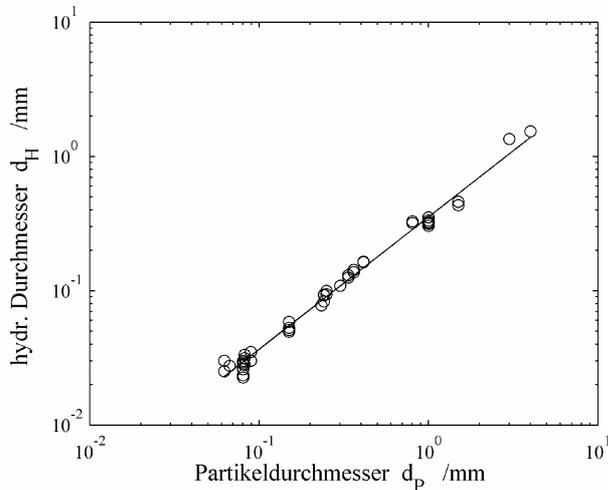


Abbildung 6.5: Einfluss des Partikeldurchmessers auf den hydraulischen Durchmesser

Abbildung 6.6 zeigt zur besseren Übersicht abschließend in der doppeltlogarithmischen Darstellung die Abhängigkeiten der Durchströmungskenngrößen vom Partikeldurchmesser. Die gestrichelten Linien entsprechen einer Regression der experimentell bestimmten Permeabilitäten und Passabilitäten gemäß den Beziehungen nach Carman/Kozeny und Ergun, vgl. Gleichungen (3.5a, b) mit A und B als Anpassungsparametern.

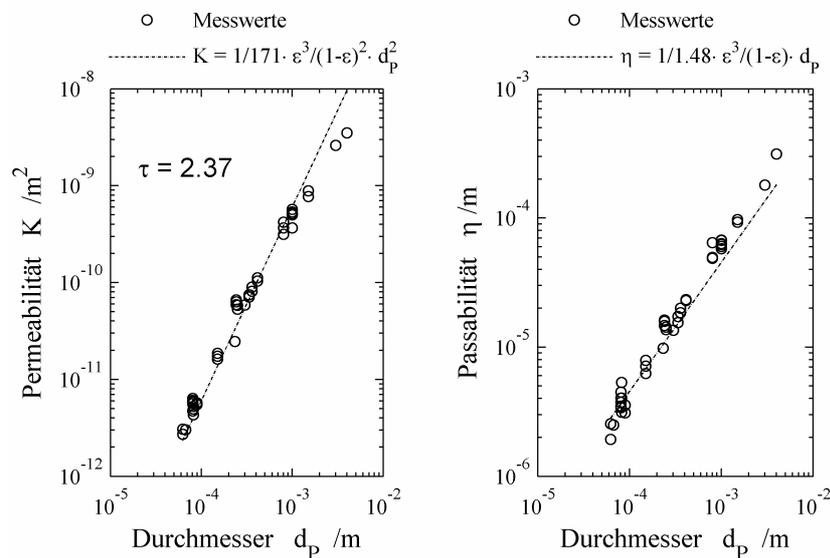


Abbildung 6.6: Einfluss des mittleren Partikeldurchmessers auf Permeabilität und Passabilität der einphasigen Durchströmung

Zu erkennen ist, dass sich die theoretisch abgeleiteten Zusammenhänge ausgehend von dem Kapillarmodell experimentell bestätigen lassen. Für den viskosen Einflusssterm wurde der Parameter zu $A = 171$ bestimmt, der für den durch Trägheitskräfte dominierten liegt im Mittel bei $B = 1,48$, vgl. Tabelle 3.1.

Ausgehend von dem in Kapitel 3.1 vorgestellten vereinfachten Modell, lassen sich aus ihnen geometrische Informationen bzgl. Tortuosität und Verlustfaktor des porösen Mediums entsprechend den Gleichungen (3.5a, b) bzw. (3.6a, b) ableiten. Die mittlere Tortuosität für die hier untersuchten monodispersen Haufwerke liegt bei $\tau = 2,37$. Die Abweichungen der experimentell bestimmten Permeabilitäten in Abbildung 6.6 links sind auf die geringfügig um den Mittelwert variierenden Umwegfaktoren zurückzuführen. Bei den Passabilitäten fallen die Schwankungen etwas deutlicher aus. Die Ursache ist hauptsächlich in dem Einfluss des Verlustfaktors zu sehen.

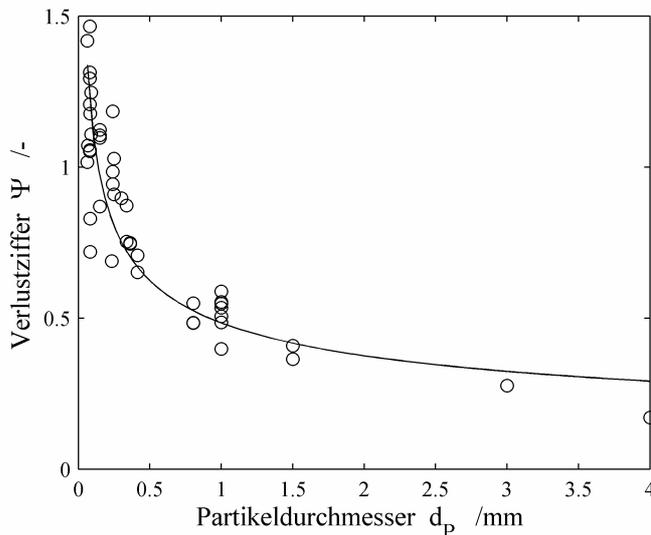


Abbildung 6.7: Abhängigkeit des Verlustfaktors vom Partikeldurchmesser

Bei der Herleitung der Haufwerksparameter ist von einem konstanten Verlustfaktor von 1 ausgegangen worden. Tatsächlich ist er aber, wie Abbildung 6.7 zeigt, eine Funktion des mittleren Partikeldurchmessers. Wie aus Abbildung 6.5 hervorgeht, nimmt mit sinkendem Durchmesser auch die Größe der Strömungskanäle ab. Dies hat wiederum höhere Strömungsgeschwindigkeiten zur Folge und erhöht den Verlust an kinetischer Energie durch Ablösungen hinter den Partikeln, wodurch der Verlauf der Werte in Abbildung 6.6 erklärbar ist.

6.2.2 Einfluss der Porosität

Die Porositätsabhängigkeit der Durchströmungseigenschaften ist an Polyethylen- und Polystyrolhaufwerken untersucht worden. Die Partikel wurden mechanisch verdichtet und bei verschiedenen Verdichtungsgraden mit Luft in der Versuchsanlage I durchströmt. Abbildung 6.8 zeigt exemplarisch einige Durchströmungsverläufe einer Polyethylenschüttung bei verschiedenen Lückengraden. Die Probe wurde von einer Schüttungshöhe zu Beginn von 211,4 mm mit einer Porosität von 0,35 auf letztendlich 53,2 mm mit $\epsilon = 0,05$ komprimiert. Analog zu den Ergebnissen in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser ist an dem mit fallendem Lückengrad zunehmendem Druckverlust zu erkennen, dass mit kleineren Porositäten die Durchströmbarkeit schlechter wird, welches einer steigenden Permeabilität und Passabilität entspricht.

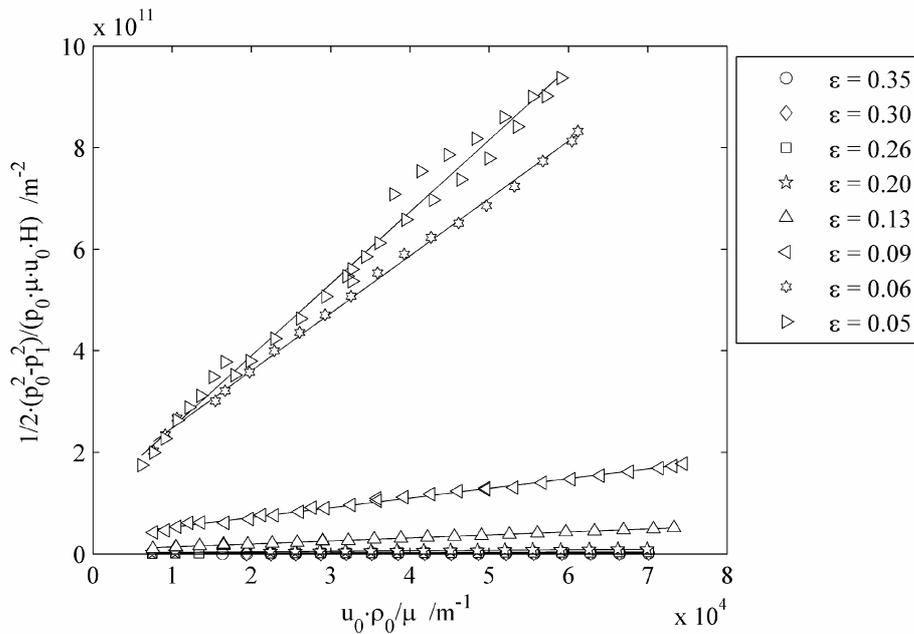


Abbildung 6.8: Durchströmungscharakteristika bei unterschiedlichen Verdichtungsgraden

In der Abbildung 6.9 ist gemäß Gleichung (2.5) der Zusammenhang zwischen Porosität und hydraulischen Durchmesser bei konstanter Partikelgröße zur Verdeutlichung eingetragen. Analog zum mittleren Partikeldurchmesser, vgl. Abbildung 6.5, sinkt mit abnehmendem Lückengrad ebenfalls die Größe der Strömungsporen.

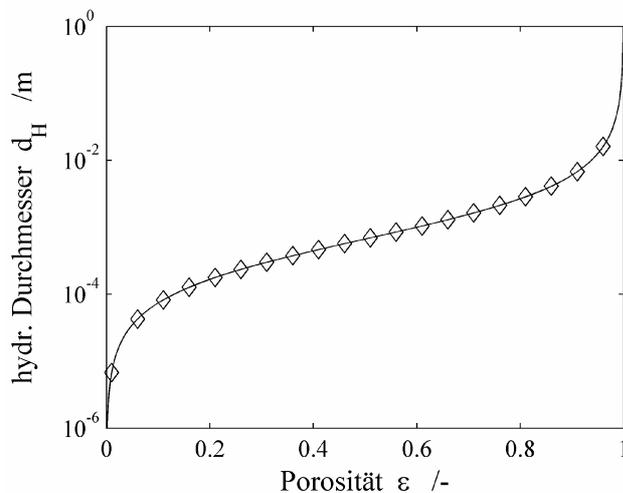


Abbildung 6.9: Einfluss der Porosität auf die Porengröße

Die experimentell bestimmten Werte für K und λ sind in Abbildung 6.10 als Funktion der Porosität aufgetragen, um die mit zunehmender Verdichtung sinkenden Permeabilitäten und Passabilitäten zu veranschaulichen. Zur besseren Übersicht ist die doppeltlogarithmische Darstellung gewählt worden.

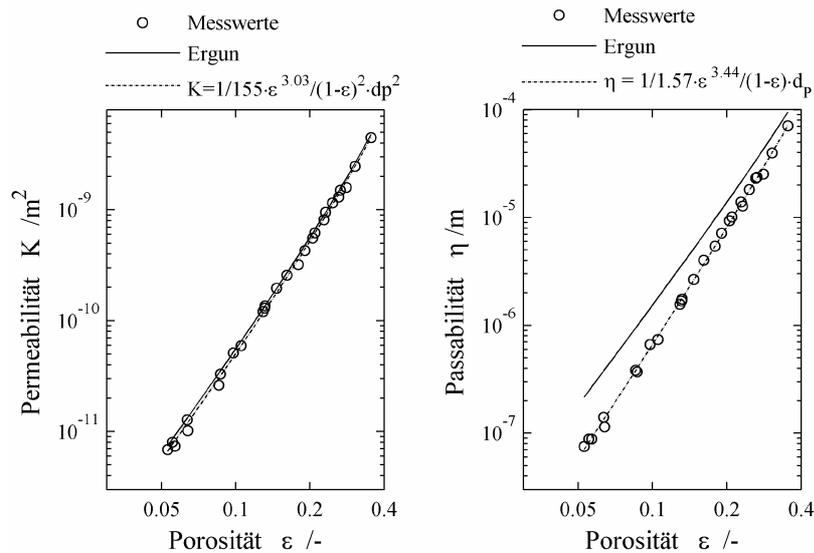


Abbildung 6.10: Einfluss der Porosität auf Permeabilität und Passabilität für PE-Schüttungen

Die gestrichelten Linien in Abbildung 6.10 stellen die Regression der Messwerte gemäß den Gleichungen (6.1a, b) dar.

$$K = \frac{1}{A_1} \cdot \frac{A_2}{(1-\epsilon)^2} \cdot d_p^2; \quad = \frac{1}{B_1} \cdot \frac{B_2}{1-\epsilon} \cdot d_p \quad (6.1a, b)$$

Als Anpassungsparameter werden hierbei wieder die Haufwerkskonstanten, A_1 und B_1 , sowie zusätzlich die Exponenten der Porositätsfunktion A_2 und B_2 gewählt. Zum Vergleich sind die Verläufe gemäß Ergun als durchgezogene Funktionen eingezeichnet. Für die Permeabilitäten ist eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den Modellen und Messwerten zu erkennen, womit die Verwendung der Porositätsfunktion nach Carman und Kozeny gerechtfertigt ist. Berechnet man ausgehend von der Permeabilität den Umwegfaktor, ist festzustellen, dass dieser ebenfalls unabhängig von der Verdichtung ist, vgl. Abbildung 6.11. Für die Polyethylenschüttung ergibt sich eine im Vergleich zu den Glaskugelschüttungen ähnliche mittlere Tortuosität von $\tau = 2,3$.

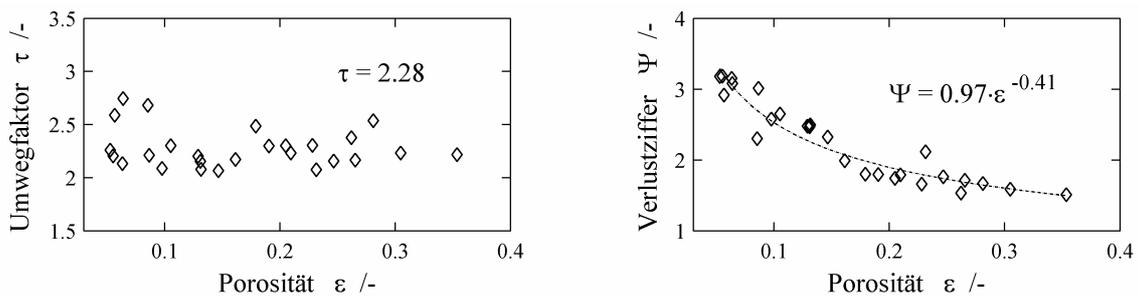


Abbildung 6.11: Abhängigkeit des Umweg- und Verlustfaktors von der Porosität

Im Gegensatz zu den Permeabilitäten weichen die Passabilitäten stärker vom theoretischen Verlauf ab. Vergleicht man das Haufwerk bei zwei verschiedenen Verdichtungszuständen, siehe Abbildung 6.12, wird deutlich, dass, wie beim Partikeldurchmesser, die Durchströmungskanäle kleiner werden, welches sich in höheren Porengeschwindigkeiten äußert und somit auch hier ein erhöhter Verlust an kinetischer Energie durch Ablösungen auftritt. Hinzu kommt, dass bei zunehmender Verdichtung die Partikelform immer weiter von der Kugelgestalt abweicht, wodurch die Querschnittserweiterungen un stetiger werden, vgl. Abbildung 6.12, und der Formwiderstand entsprechend zunimmt, Abbildung 6.11. Dies ist vergleichbar mit den von Macdonald gefundenen Effekten der Partikelrauigkeit [MEM79⁺] und zeigt, dass die Annahme eines konstanten Verlustfaktors, ähnlich wie bei den

dass die Annahme eines konstanten Verlustfaktors, ähnlich wie bei den unterschiedlichen Partikeldurchmessern, für verdichtbare Haufwerke nicht mehr gerechtfertigt ist.

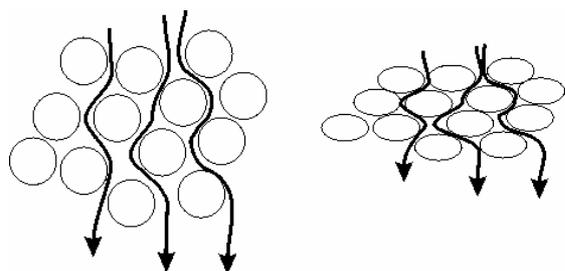


Abbildung 6.12: Querschnitte durch die Probe links: unverdichtet; rechts: verdichtet

Bereits Ruth und Ma [RM92] vermuteten, dass der Trägheitsterm, also die Passabilität, von mehreren Größen als nur Partikeldurchmesser, Porosität und Tortuosität abhängt. Die dargestellten Ergebnisse zeigen, dass eine Komprimierung des Haufwerks ebenfalls den Verlustfaktor erheblich beeinflusst. Vergleichbare experimentelle Untersuchungen sind jedoch in der Literatur nicht zu finden.

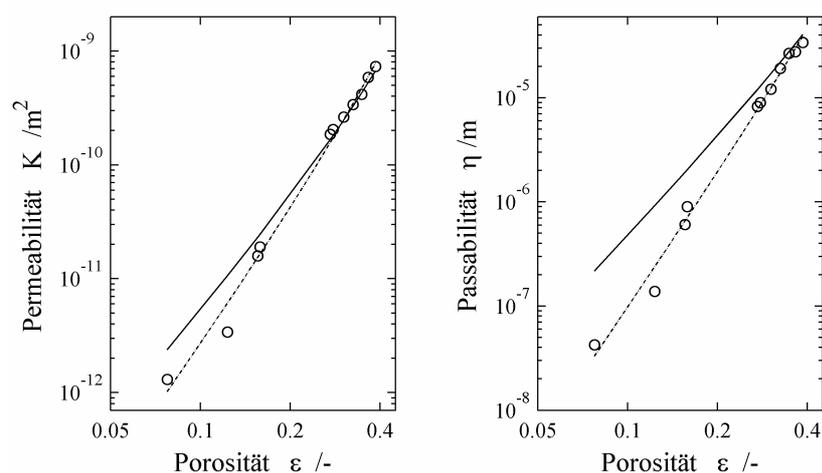


Abbildung 6.13: Einfluss der Porositätsänderung auf die einphasige Durchströmung bei Styrol

Um die Bedeutung der Partikelform in diesem Zusammenhang herauszustellen, wurde das Messprinzip mit Styrolpartikeln wiederholt, die sich unkomprimiert im Vergleich zum Polyethylen, mit eher einer elliptischen Form, durch eine kugelähnlichere Gestalt auszeichnen. Abbildung 6.13 zeigt im Vergleich zu Abbildung 6.10 die Abhängigkeiten der Permeabilitäten und Passabilitäten bei verschiedenen Verdichtungen des Polystyrols als Funktion der Porosität. Die durchgezogenen Linien entsprechen wiederum den theoretischen Verläufen, die gestrichelten dem Ergebnis der Regression mit Gleichung (6.1a, b).

Bei den Styrolpartikeln fällt das wesentlich deutlichere Abweichen zwischen der Theorie und den Messwerten im Vergleich zum Polyethylen - besonders bei den niedrigen Lückengraden - auf. Nach Beendigung des Versuches ist zu beobachten gewesen, dass durch die Beheizung des Behältermantels die Partikel im Zusammenwirken mit den höheren Verdichtungsdrücken vor allem im Bereich des Randes zu einem Block zusammen geschmolzen sind. Die schlechtere Durchströmbarkeit bei den geringen Porositäten wird durch die ausgeprägten radialen Porositätsgradienten, die eine Verkleinerung der durchströmbareren Querschnittsfläche des Haufwerkes zur Folge haben, ausgelöst. Es handelt sich im eigentlichen Sinne somit nicht mehr um ein Schüttgut, vergleichbar zum Polyethylen, weshalb die Ergebnisse bei den niedri-

gen Porositäten nur bedingt interpretierbar sind. Die beobachteten Tendenzen belegen jedoch die Erkenntnisse bzgl. der Variation des Lückengrades.

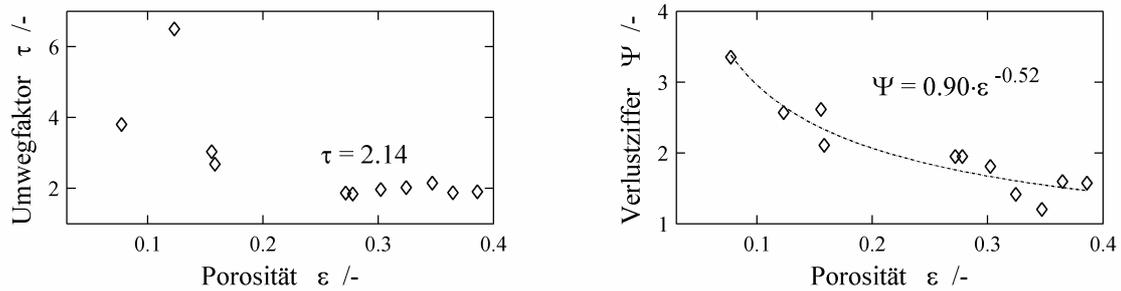


Abbildung 6.14: Abhängigkeit des Umwegfaktors und der Verlustziffer von der Porosität für Styrol

Als Konsequenz des Verschmelzens der Poren steigt, wie die Abbildung 6.14 veranschaulicht, der Umwegfaktor bei kleinen Porositäten überproportional an. Bis zu Lückengraden von 0,15 ergibt sich, vergleichbar zu den bisher dargestellten Untersuchungen, eine mittlere Tortuosität von $\tau = 2,14$. Ähnliches zeigt sich bei der Verlustziffer. Für die höheren Porositäten liegt sie, wie zu erwarten, näher an dem Wert für kugelförmige Partikel als die des Polyethylens. Bei den höheren Verdichtungen werden diese Ergebnisse aufgrund der zu hohen Tortuositäten jedoch unterschätzt.

Zusammengefasst zeigen die hier für die einphasigen Untersuchungen vorgestellten Ergebnisse die grundsätzliche Anwendbarkeit der empirischen Impulsbilanzen sowie die Gültigkeit des vereinfachten Kapillarmodells. Bei der Diskussion stellte sich heraus, dass der Haufwerkparameter B zur Beschreibung der Passabilität, entgegen den bisherigen Annahmen, keine Konstante ist, sondern entscheidend durch die Geometrie der Strömungsporen beeinflusst wird.

6.3 Mehrphasige Durchströmung

Aufbauend auf den Untersuchungen der einphasigen Durchströmungsprozesse wurden Messungen der Druckverlustcharakteristika verschiedener Strömungsgeschwindigkeiten beider fluiden Phasen, Wasser und Luft, in Abhängigkeit der Sättigung durchgeführt. Ähnliche Messungen wurden bereits mehrfach allerdings nur bei reibungsbehafteten Strömungen vorgenommen. Die experimentelle Untersuchung weiterer Einflüsse insbesondere dem der Trägheit fand bislang wenig Beachtung. Um die Eigenschaften der relativen Kenngrößen mehrphasiger Haufwerksdurchströmung zu untersuchen, wurde zunächst der Partikeldurchmesser von Glaskugelschüttungen und anschließend die Struktur durch Variation des Anteils an benetzender zu nicht benetzender Feststoffphase verändert.

Da wie in Kapitel 5.3 erläutert, die relative Permeabilität und die relative Passabilität einer Phase gleich sind, werden im Folgenden nur die Ergebnisse für k_{rel} diskutiert.

6.3.1 Veränderung Partikelgröße

Zur Bestimmung des Einflusses der Partikelgröße wurden 13 verschiedene Kugelfractionen mit Durchmessern von 63-71 μm bis 1000-1200 μm vermessen. Dargestellt sind in Abbildung 6.15 die Verläufe der relativen Permeabilitäten $k_{rel,i}$ der Gas- und der Flüssigphase für zwei exemplarische Partikelgrößen als Funktion der Sättigung.

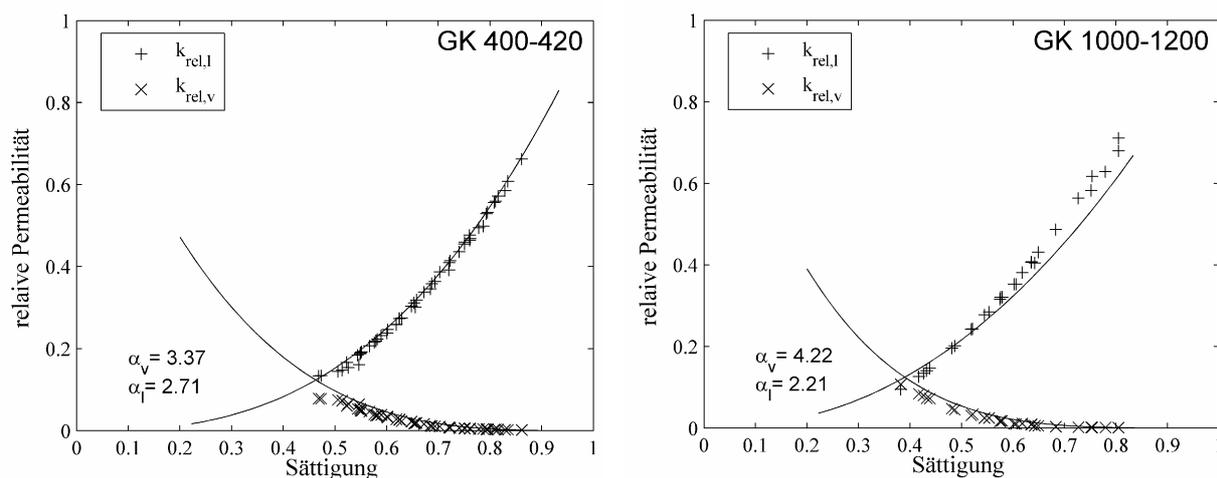


Abbildung 6.15: Verlauf der relativen Permeabilitäten für GK 400-420 und GK 1000-1200

Aus der Abbildung 6.15 wird ersichtlich, dass die Exponenten der Modellansätze α_i und α_v , vgl. Gleichungen (2.21) und (2.23), ebenso wie Permeabilität und Passabilität bei den Einphasenströmungen, durch die Partikelgröße, also durch die hydraulischen Eigenschaften des porösen Mediums beeinflusst werden.

Des Weiteren ist zu erkennen, dass bei den kleineren Partikeln das Minimum des durch die Anwesenheit einer zusätzlichen Phase hervorgerufenen Widerstandes zu größeren Sättigungen verschoben ist. Die Ursache hierfür liegt in der Änderung der Dynamik der Durchströmung. Deutlicher wird dieses anhand der Abbildung 6.16, in der die Ergebnisse aller untersuchten Glaskugelfractionen als Funktion des mittleren Partikeldurchmessers dargestellt sind.

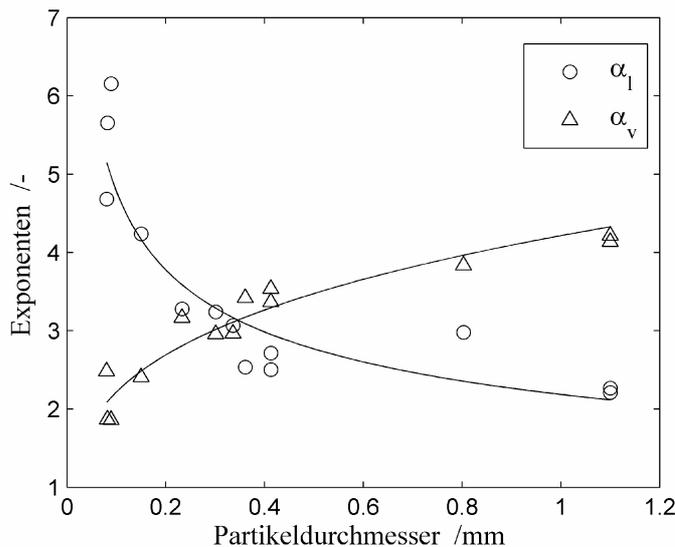


Abbildung 6.16: Abhängigkeit der Exponenten der relativen Permeabilitäten $\alpha_{l,v}$ von dem mittleren Partikeldurchmesser

Für Schüttungen größerer Durchlässigkeit nähern sich die ermittelten Exponenten asymptotisch 4,1 (Luft) bzw. 2,2 (Wasser). Ein Grenzwert von 2 für die Gasphase bei kleinen hydraulischen Durchmessern ergibt sich dabei analytisch aus der Annahme, dass allein die Querschnittsversperrung aufgrund der Anwesenheit einer zweiten Phase zu höheren Geschwindigkeiten und somit höheren Reibungsdruckabfällen führt [BCS90, FL01]. Dies bedeutet, dass für die kleinen Korngrößen bzw. Porendurchmesser, also somit auch die niedrigen Permeabilitäten, der Widerstand der flüssigen Phase, bedingt durch die zunehmenden Kapillarkräfte, steigt. Der Grund ist eine geringere Mobilität des Wassers, d.h. dass Flüssigkeitspfropfen die kleineren Zwickel blockieren und erst durch einen zusätzlichen Energieeintrag diese wieder freigeben. Sowohl der höhere kapillare Eintrittsdruck als auch die größeren immobilen Sättigungen, die dieses belegen, konnten experimentell verifiziert werden, vgl. Kapitel 6.1.

Bei den größeren Partikeln bildet die Flüssigkeit als benetzende Phase einen Film aus, der ungestört von der Luft das poröse Medium durchströmt. Die größeren Luftblasen werden jedoch gezwungen sich diesen Verhältnissen anzupassen. Sie müssen Energie für die Veränderung ihrer Oberfläche, sei es in Form von Deformation oder Zerkleinerung, aufwenden, welches letztendlich wiederum in einem effektiven höheren Druckverlust zum Ausdruck kommt. Dieser Vorgang ist analog zu dem steigenden Formwiderstandsbeiwert bei den Einphasenströmungen zu sehen, da auch hier dissipative Effekte zu beobachten sind.

6.3.2 Veränderung Oberflächeneigenschaften

Um die veränderten Strömungszustände in unterschiedlich benetzbaren Haufwerken zu untersuchen, wurden bei gleichen Partikeldurchmessern Glas-Polystyrol-Schüttungen mit verschiedenen Mengenverhältnissen, von einer reinen Glaskugel- bis zu einer reinen Styrolschüttung, verwendet.

Bei einer Einphasenströmung sind, siehe Abbildung 6.17, keine Unterschiede der Verläufe festzustellen, die auf eine Änderung des Mischungsverhältnisses des Schüttguts hinweisen. Die Abweichungen sind auf die technisch bedingten minimal variierenden Packungsstrukturen zurückzuführen.

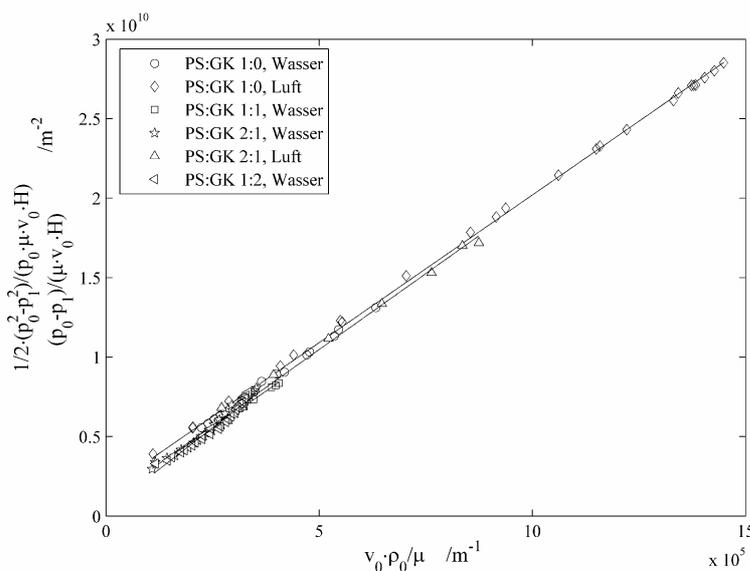


Abbildung 6.17: Einphasige Durchströmung bei verschiedenen Mischungsverhältnissen

Mit den Kennwerten der Einphasenströmungen sind anschließend die mehrphasigen Untersuchungen ausgewertet worden. Die Exponenten der relativen Permeabilitäten sind in der folgenden Abbildung in Abhängigkeit der benetzbaren Oberfläche, wiedergegeben durch das Verhältnis von Polystyrol zu Glaskugeln, aufgetragen.

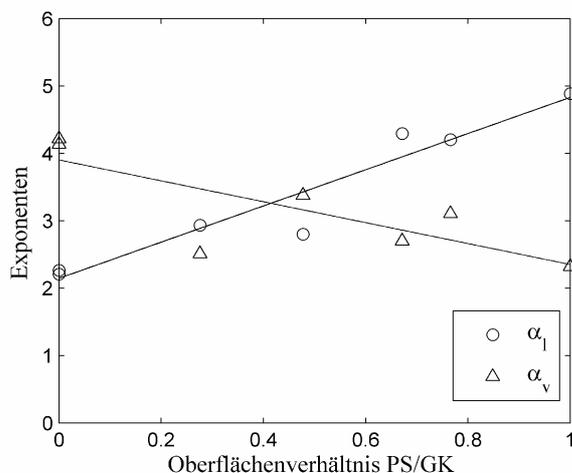


Abbildung 6.18: Zusammenhang der Exponenten der relativen Permeabilitäten $\alpha_{l,v}$ als Funktion der benetzbaren Oberfläche

Deutlich zu erkennen ist, dass der Exponent der flüssigen Phase α_l mit zunehmendem Styrolanteil steigt, es also zu einem erhöhten Druckverlust des nichtbenetzenden Mediums bei der mehrphasigen Durchströmung kommt. Im Gegenzug verringert sich mit einer größer werdenden Benetzbarkeit der Feststoffoberfläche der Widerstand für diese Phase, zu erkennen an dem sinkenden α_v . Dies ist zu erklären mit einer analog zu dem sinkenden Strömungsporendurchmessern bei den Untersuchungen an reinen Glaskugelschüttungen, vgl. Abbildung 6.16, erforderlichen erhöhten Oberflächenbildungsarbeit in der flüssigen Phase.

Bei den mehrphasigen Prozessen dominieren die Interaktionen der fluiden Phasen untereinander und mit der porösen Matrix das Strömungsverhalten. So ist im Wesentlichen die Phasenverteilung, vgl. Abbildung 2.7, für die auftretenden Widerstände verantwortlich.

Ferner zeigen die dargelegten Ergebnisse, dass mit Hilfe kapillarer Modelle eine anschauliche Beschreibung der Vorgänge möglich ist.

6.4 Reale poröse Medien

Abschließend soll geprüft werden, ob die bei den Modellschüttgütern gefundenen Zusammenhänge auf reale Systeme übertragbar sind. Hierfür wurden exemplarisch für reale Haufwerke, wie in Kapitel 4.1.2 beschrieben, ein sandiger Erdboden sowie rheinische Braunkohle ausgewählt, um den Einfluss der Kompressibilität und des mittleren Partikeldurchmessers bei den Einphasenströmungen zu veranschaulichen.

Als Beispiel für die mehrphasigen Durchströmungsprozesse wurden Membrane aus Methanol-Brennstoffzellen herangezogen, die sich zusätzlich durch heterogene Oberflächeneigenschaften auszeichnen.

6.4.1 Erdboden

Da es sich bei der Erde um einen überwiegend sandigen Boden handelt, sind vergleichbare Eigenschaften zu den Glaskugelschüttungen zu erwarten. Zur Untersuchung wurde die entsprechende Menge in Anlage I eingefüllt und bei sukzessiv steigenden Verdichtungsdrücken mit verschiedenen Luftvolumenströmen durchströmt. Die Schüttungshöhe reduzierte sich dabei von anfangs 40 mm auf 23,9 mm bei 1 MPa. Dies entspricht in etwa einer Halbierung der Ausgangsporosität von 0,47 auf 0,24. Abbildung 6.19 gibt die Verläufe der einphasigen Durchströmung des Erdbodens wieder. Es wird deutlich, dass die Ergun-Gleichung auch auf andere poröse Medien übertragbar ist und zur Auswertung dieser Versuche herangezogen werden kann.

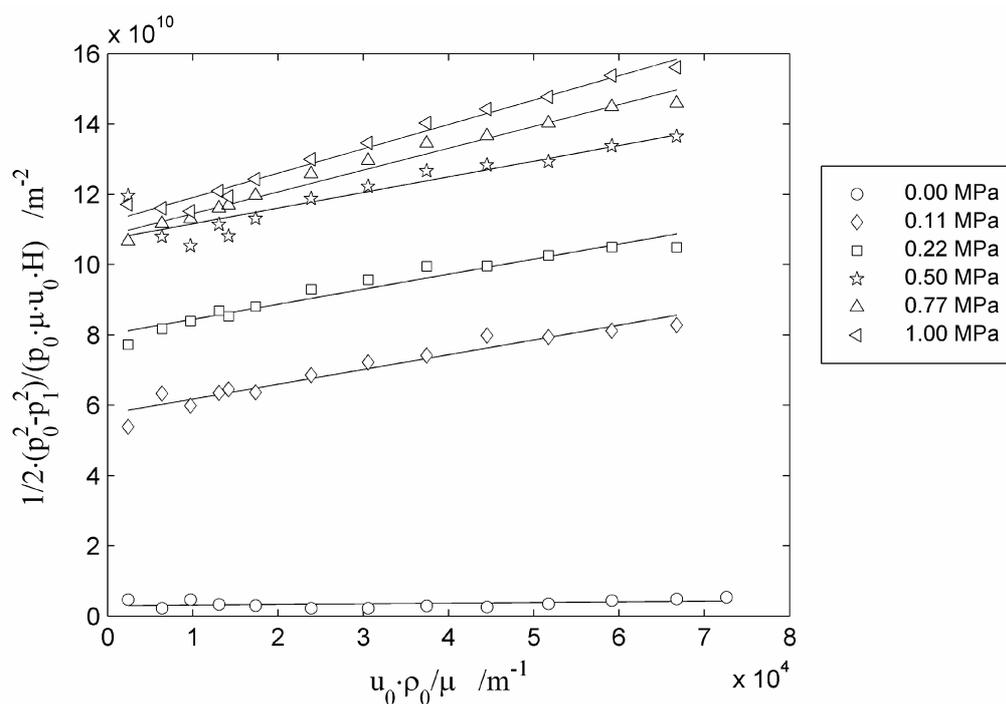


Abbildung 6.19: Einphasige Durchströmung des Erdbodens bei verschiedenen Verdichtungen

Werden für alle durchgeführten Versuche die Durchströmungsverläufe ausgewertet und die Permeabilitäten und Passabilitäten in Abhängigkeit des Lückengrades aufgetragen, ergibt sich die Abbildung 6.20. Die gestrichelten Linien stellen die Regression der Messwerte gemäß den Gleichungen (6.1a, b) dar, die durchgezogenen zum Vergleich die Verläufe nach Kozeny bzw. Ergun. Wie schon von den Modellschüttgütern bekannt, nimmt auch hier die Durchlässigkeit mit sinkendem Hohlraumvolumenanteil ab.

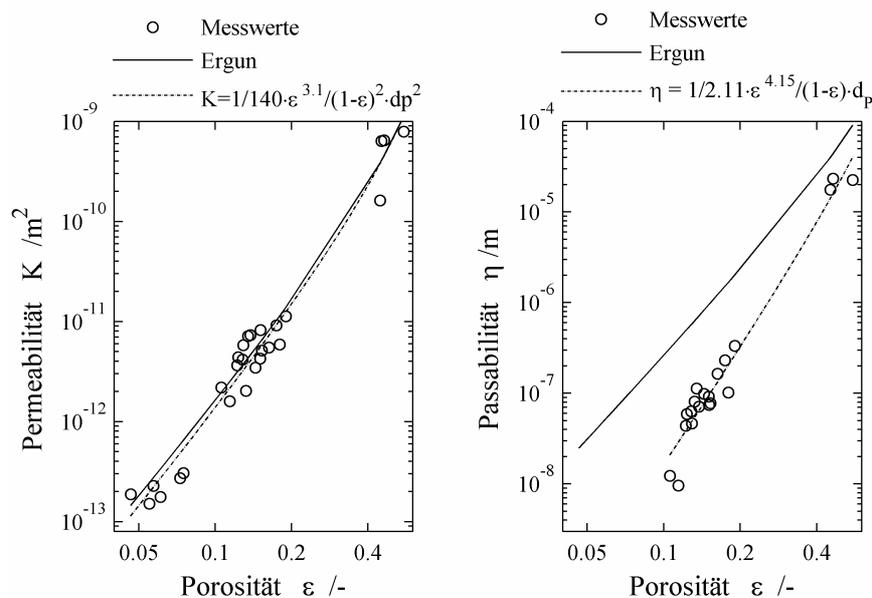


Abbildung 6.20: Permeabilität und Passabilität in Abhängigkeit der Porosität bei der einphasigen Durchströmung des Erdbodens

Die wesentlich größeren Streuungen beim realen porösen Medium sind im Vergleich zu den Modellschüttgütern, siehe Abbildung 6.10, zum einen auf das inhomogenere Stoffsystem zurückzuführen und zum anderen darin begründet, dass für jede Verdichtungsstufe eine neue Probe verwendet wurde, um Vorbelastungen auszuschließen. Der Vergleich der experimentell bestimmten Permeabilitäten mit den theoretischen gemäß den Beziehungen von Carman/Kozeny vorausgesagten zeigt eine sehr gute Übereinstimmung. Ausgehend von den Permeabilitäten lässt sich auch hierfür wieder ein porositätsunabhängiger Umwegfaktor von $= 2,66$ bestimmen, vgl. Abbildung 6.21.

Bei den Passabilitäten ist, wie bereits bei den Untersuchungen der kompressiblen Eigenschaften in Kapitel 6.2.2, eine deutlich ausgeprägtere Differenz zu den Beobachtungen von Ergun zu erkennen. Die Ursache hierfür ist ebenfalls wieder die drastische Änderung der Strömungsporengeometrie im Haufwerk bei sinkenden Lückengraden, welches sich im Verlauf der Verlustziffer in Abbildung 6.21 widerspiegelt.

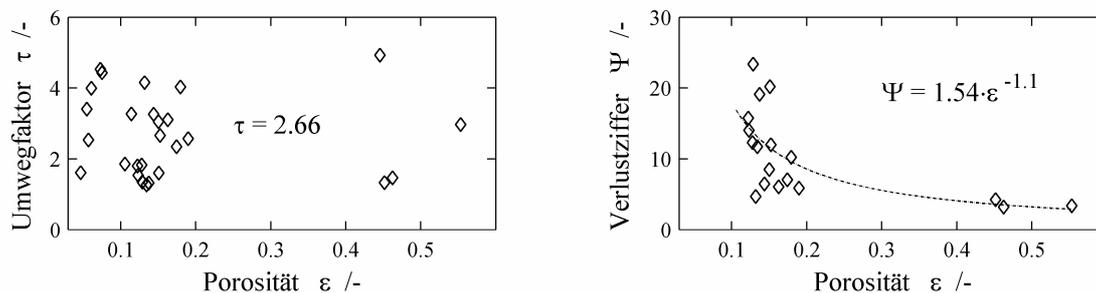


Abbildung 6.21: Einfluss der Porosität auf Tortuosität und Verlustziffer beim Erdboden

6.4.2 Braunkohle

Da sich die Braunkohle aufgrund ihrer inhomogenen und heterogenen Struktur wesentlich vom Erdboden unterscheidet, wurde sie als „idealtypisches“ reales Haufwerk ausgewählt, welches mit Stoffmodellen nicht beschreibbar ist. Sie enthält einen deutlich höheren Wassergehalt als der Boden und ist aufgrund ihrer Entstehungsgeschichte ein ausgeprägt heterogenes Kolloidsystem. Zur Bestimmung der Durchlässigkeitseigenschaften sind einphasige Gasströmungen realisiert worden, um zum einen höhere Strömungsgeschwindigkeiten zu erzielen und um zum anderen ein Aufquellen bzw. Aufschlängen der Stoffe durch die flüssige Phase zu vermeiden. Die Abbildung 6.22 zeigt exemplarisch ausgewählte einphasige Durchströmungsverläufe mit Luft an einer Probe bei unterschiedlichen Verdichtungsgraden. Die Messreihen sind bei Schüttungshöhen von 46 mm bis 34 mm aufgezeichnet worden. Dies entspricht Porositäten zwischen 0,41 und 0,21 bei maximaler Verdichtung.

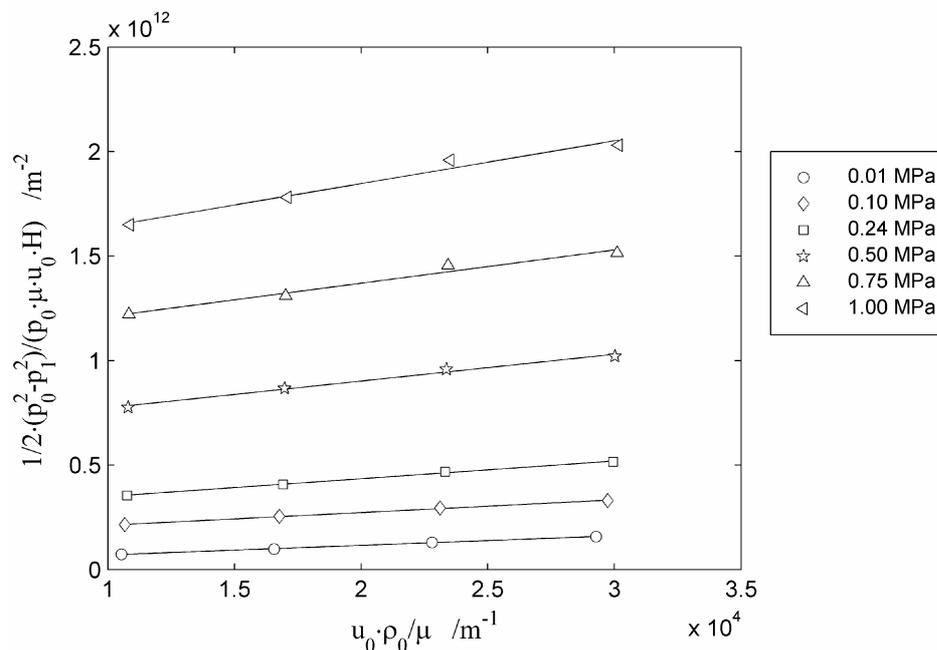


Abbildung 6.22: Einphasige Durchströmung der Braunkohle bei verschiedenen Verdichtungen

Mit zunehmender Versuchsdauer insbesondere bei den höheren Verdichtungen ist ein wesentlich ausgeprägteres Abflachen der Durchströmungsprofile im Vergleich zu Abbildung 6.19 für den Erdboden zu beobachten. Die Ursache hierfür ist in der kolloidalen Struktur des porösen Mediums zu finden. Vergleichende Wassergehaltsbestimmungen haben bei längeren Versuchszeiten Reduzierungen der Wassergehalte von anfangs 53 auf 45 Massenprozent ergeben. Zur Vermeidung dieses Trocknungseffektes und der damit verbundenen Veränderung der Haufwerkmatrix wurde im Weiteren für jeden Versuch eine neue Schüttung verwendet und mit weniger Punkten, also innerhalb einer kürzeren Zeit vermessen. In der Abbildung 6.23 sind für die durchgeführten Versuchsreihen die Einphasen-Permeabilitäten und Passabilitäten in Abhängigkeit des Lückengrades als Folge der Verdichtung aufgetragen. Die maximalen Belastungen bei den durchgeführten Messungen betragen 1 MPa, um eine mechanische Entwässerung der Kohle, die nach [NJ56, Ros63] bei Verdichtungen über 1 MPa auftritt, auszuschließen.

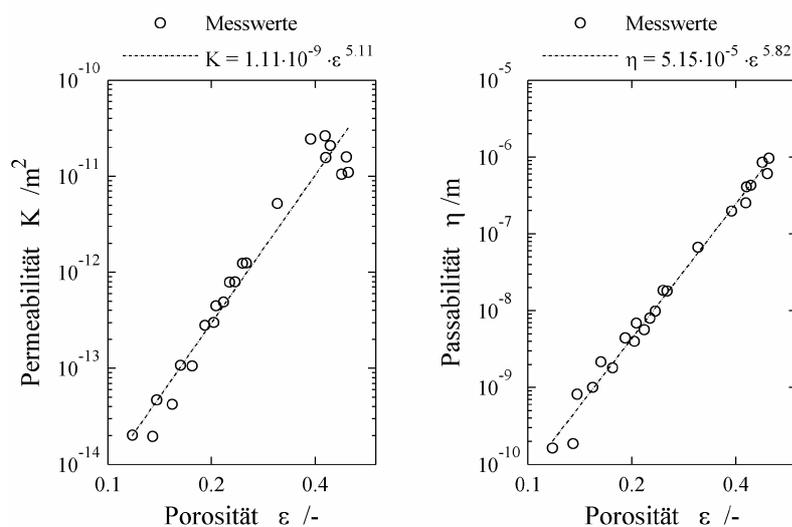


Abbildung 6.23: Permeabilität und Passabilität in Abhängigkeit der Porosität bei der einphasigen Durchströmung von Braunkohle

Für die Beschreibung des Druckverlustes als Funktion der Strömungsgeschwindigkeit sind, wie in Abbildung 6.22 gut zu erkennen, die verwendeten Impulsbilanzen auch für diese Stoffklasse anwendbar. Die Modellvorstellungen des Kapillarmodells gemäß Carman und Kozeny, vgl. Kapitel 3.1 und Kapitel 6.2, zur Formulierung des Einflusses der Porosität auf die Durchströmungskennwerte besitzen dafür im Gegensatz zum Erdboden keine Gültigkeit mehr, wodurch eine Anpassung der Messwerte, wie es noch für den Erdboden möglich ist, nicht mehr sinnvoll erscheint. Bergins [Ber01] schlägt für K und η stattdessen empirische Potenzfunktionen, siehe Abbildung 6.23, vor, da bei kolloidalen Stoffen die Konsolidierung neben der Reduzierung des Lückengrades auch eine Deformation des Feststoffgerüsts bewirkt.

$$K = A_1 \cdot \varepsilon^{B_1} \quad \text{bzw.} \quad \eta = A_2 \cdot \varepsilon^{B_2} \quad (6.2a, b)$$

Die gestrichelten Linien in der Abbildung stellen das Resultat dieser Regression der Durchströmungskennwerte gemäß der Gleichungen (6.2a, b) dar, die das Stoffverhalten gut wiedergeben.

6.4.3 Membrane der DMFC

Als exemplarisches reales poröses Medium mit gemischt benetzbaren Oberflächen ist die Membran der Direktmethanol-Brennstoffzellen ausgewählt worden, da bei der Modellierung der Transportvorgänge die Kenntnisse der mehrphasigen Strömungsprozesse für eine effiziente Nutzung von Bedeutung sind.

Kapillare Eigenschaften

Zur ersten Charakterisierung der Diffusionsschichten sind die kapillaren Eigenschaften bestimmt worden. Für die im Folgenden diskutierte Versuchsreihe wurde ein Stapel von 11 Membranen verwendet.

Unter der Annahme, dass zu Versuchsbeginn die Probe vollständig gesättigt ist, berechnet sich die Sättigung aus der Menge der verdrängten Flüssigkeit. Die so erhaltene Kapillardruckkurve der Diffusionsschichten mit 28% PTFE ist in Abbildung 6.24 dargestellt.

Im Vergleich zu den Glaskugelschüttungen, vgl. Abbildung 6.1 ist der dominierende Einfluss des PTFE deutlich zu erkennen. Schon geringe Luftdrücke reichen aus, um erste Poren zu entwässern. Wie aufgrund der wesentlich kleineren Strömungsporen zu erwarten, liegt das

Plateau der kapillaren Eintrittsdrücke über dem für die kleinsten Kugelschüttungen. Der steile Anstieg bei niedrigen Sättigungen ist hier jedoch nicht messbar gewesen, da durch die hydrophoben Poren der Luftdurchbruch begünstigt wird.

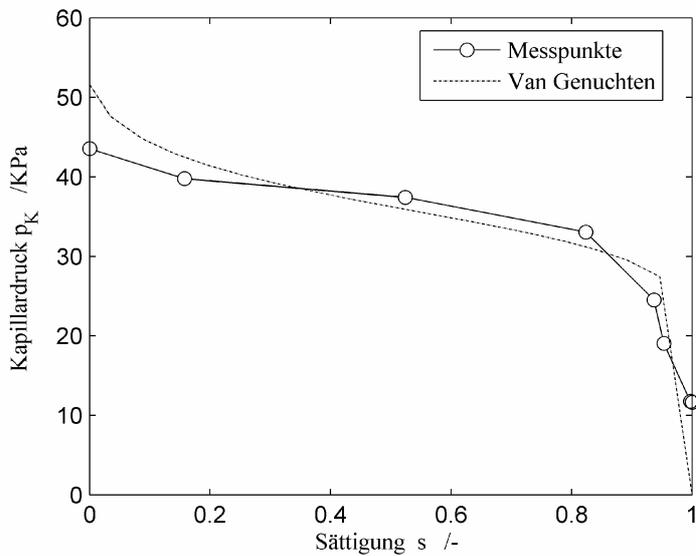


Abbildung 6.24: Kapillardruckkurve für Diffusionsschichten mit 28% PTFE

Aus diesem Grund lassen sich die Modelle von Brooks & Corey und van Genuchten nur eingeschränkt anwenden. Eine an die Messpunkte angepasste Kapillardruckkurve gemäß van Genuchten ist in der Abbildung eingezeichnet, um die Problematik zu verdeutlichen.

Einphasige Durchströmung

Der Verlauf der einphasigen Strömungen mit Luft und Wasser durch eine Brennstoffzellen-Membran ist in Abbildung 6.25 dargestellt. Sie zeigt durch den linearen Verlauf auch für diese Stoffgruppe die Anwendbarkeit der Ergun-Gleichung. Bei einem Vergleich der Verläufe untereinander fällt auf, dass die Durchströmungseigenschaften für beide Medien schon bei einer geringen PTFE-Beladung verschieden voneinander sind.

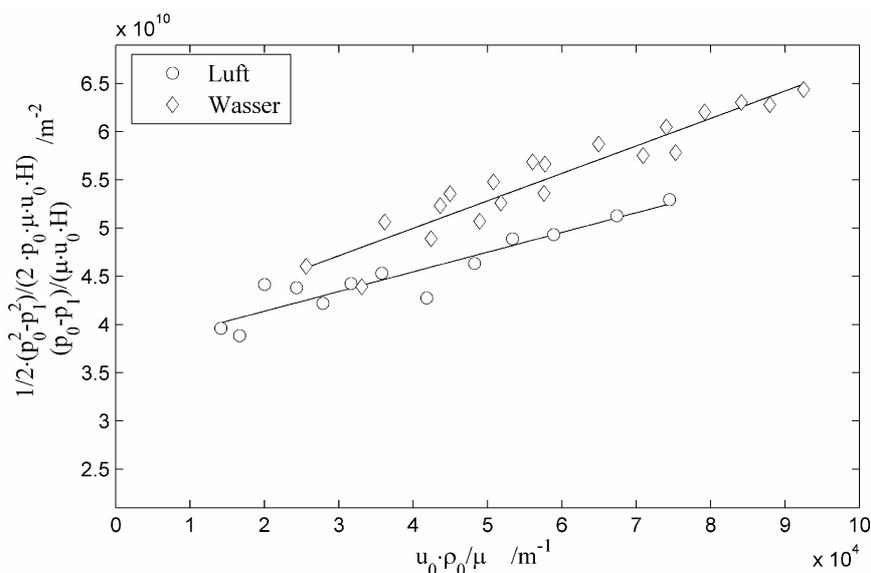


Abbildung 6.25: Verlauf der einphasigen Durchströmung durch Brennstoffzellen-Membranen mit einer Beladung von 3% PTFE

Entgegen den Beobachtungen der medienunabhängigen Permeabilitäten und Passabilitäten bei den Modellschüttgütern mit unterschiedlich benetzbaren Oberflächen sind bei den Diffusionschichten deutliche Unterschiede in den Ergebnissen für die einphasigen Luft- und Wasserdurchströmungen zu erkennen. Zur genaueren Untersuchung sind auf gleichem Graphitgewebe unterschiedliche Mengen an PTFE aufgebracht worden. Die dargestellten Ergebnisse in Abbildung 6.26 und Tabelle 6.2 verdeutlichen, dass bei der untersuchten Diffusionsschicht mit einer PTFE-Beladung von 40% die Permeabilität einer reinen Luftdurchströmung etwa doppelt so groß wie die einer reinen Durchströmung mit Wasser ist. Bei dem geringeren Anteil von 28% liegt das Verhältnis nur noch bei 1,5.

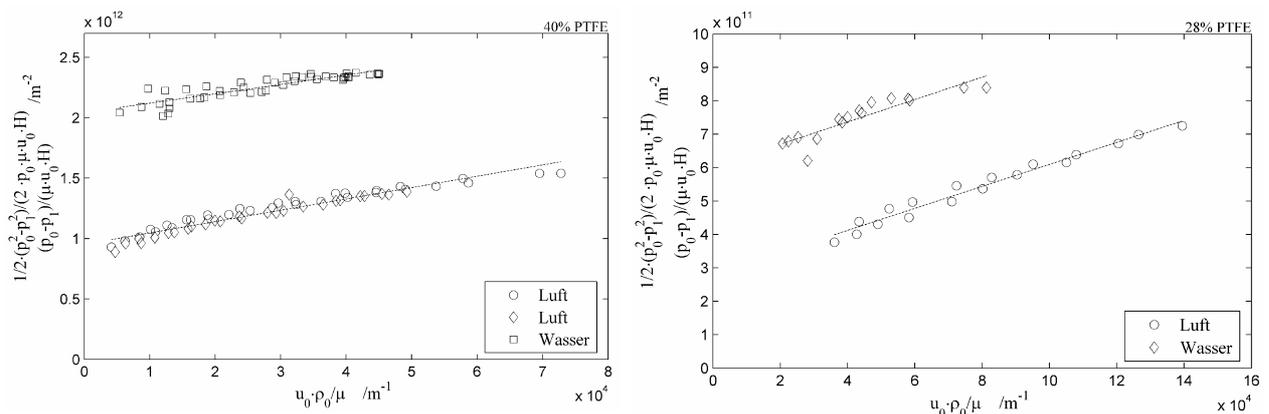


Abbildung 6.26: Vergleich der Luft- und der Wasserdurchströmungen bei verschiedenen PTFE-Gehalten

Tabelle 6.2: Vergleich der einphasigen Durchströmungskennwerte

PTFE-Gehalt	Permeabilität	Passabilität
40%	$\frac{K_v}{K_l} \approx 2$	$\frac{v}{l} \approx 1$
28%	$\frac{K_v}{K_l} \approx 1,5$	$\frac{v}{l} \approx 1,5$

Die Ursache für die verschiedenen Verhältnisse ist auf das Vorhandensein der teils hydrophilen, teils hydrophoben Poren mit kleinen Durchmessern zurückzuführen, die sich unterschiedlich auf die Durchströmung auswirken. So wird es bei einer reinen Strömung mit Wasser nicht möglich sein, alle hydrophoben Poren zu benetzen, da einige bereits durch Luft blockiert sind. Damit verringert sich der zur Verfügung stehende Durchströmungsquerschnitt, welches wiederum als Konsequenz größere Druckverluste verursacht. Eine Abschätzung dieses nichtdurchströmbar Anteils kann mit der Carman-Kozeny-Gleichung vorgenommen werden. Hierzu wird davon ausgegangen, dass bei einer Durchströmung mit Wasser das zur Verfügung stehende Hohlraumvolumen $l = s \cdot v$ ist.

$$\frac{K_l}{K_v} = \frac{\frac{1}{180} \cdot \frac{s^3}{(1-l)^2} \cdot d_p^2}{\frac{1}{180} \cdot \frac{v}{(1-v)^2} \cdot d_p^2} = \frac{s^3 \cdot (1-v)^2}{(1-s \cdot v)^2} \quad (6.3)$$

Für die untersuchte Probe mit einem Anteil von 40% PTFE ergibt sich eine maximale Sättigung $s_{40\%} = 0,91$.

Analog zu den Ergebnissen der 40% PTFE-Proben konnten auch bei der mit einem Anteil von 28% PTFE aus dem Verhältnis der Permeabilitäten zwischen gasförmiger und flüssiger Phase von 1,5 die maximale Wassersättigung berechnet werden. Sie beträgt hier $s_{28\%} = 0,95$ und

verdeutlicht die bei zunehmender Hydrophobisierung zu erwartende schlechtere Durchströmung mit Wasser.

Eine detaillierte Untersuchung des Verhältnisses hydrophober zu hydrophiler Poren führt zu Abbildung 6.27. Hierbei ist festzustellen, dass durch einen höheren PTFE-Anteil die Druckverluste bei der Durchströmung größer werden. Dieser Zusammenhang der Durchströmungskennwerte stellt ebenfalls Tabelle 6.3 dar.

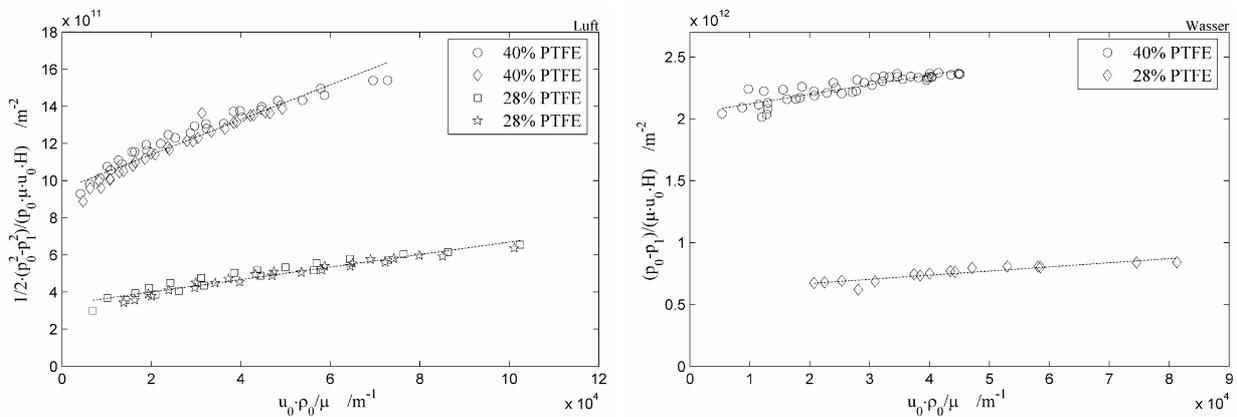


Abbildung 6.27: Vergleich einphasige Durchströmung bei 28% und 40% PTFE-Anteil

- links: Durchströmungsverlauf bei Luft-Messungen;
- rechts: Durchströmungsverlauf bei Wasser-Messungen

Tabelle 6.3: Vergleich der Durchströmungskennwerte bei verschiedenen PTFE-Beladungen

Medium	Permeabilität	Passabilität
Luft	$\frac{K_{28\%}}{K_{40\%}} \approx 3$	$\frac{28\%}{40\%} \approx 2,6$
Wasser	$\frac{K_{28\%}}{K_{40\%}} \approx 3,4$	$\frac{28\%}{40\%} \approx 2,4$

Die theoretische Überprüfung dieser Abhängigkeit ist ebenfalls mit Hilfe der Carman-Kozeny-Gleichung möglich. Wird analog zu dem Verhältnis der Permeabilitäten für beide Diffusionsschichten das charakteristische Verhältnis der Porositäten gebildet, offenbart sich der Einfluss der Lückengradsänderung.

$$\frac{\frac{3}{28\%} \cdot (1 - 40\%)^2}{\frac{3}{40\%} \cdot (1 - 28\%)^2} \approx 1,5 \quad (6.4)$$

Dies bedeutet, dass, wenn zur Hydrophobisierung der Poren eine größere Menge PTFE aufgesprüht wird, sich die für die Durchströmung zur Verfügung stehende freie Querschnittsfläche reduziert. Somit lassen sich teilweise die experimentell gefundenen höheren Druckverluste und folglich auch die niedrigeren Permeabilitäten direkt durch eine Veränderung des PTFE-Anteils erklären. Ein erhöhter hydrophober Porenanteil bedingt zwar auch eine geringere Rückhaltefähigkeit der porösen Matrix für das Wasser. Es ist jedoch auch zusätzlich ein erhöhter Kraftaufwand in Form eines größeren Druckverlustes nötig, damit die wässrige Phase in die Membran eindringen kann, vergleichbar mit den Beobachtungen der gemischt benetzbaren Oberflächen der Untersuchungen der Modellstoffe.

Mehrphasige Durchströmung

Bei der Untersuchung mussten die unterschiedlichen Permeabilitäten der einzelnen Strömungsphasen durch eine veränderte Versuchsdurchführung berücksichtigt werden. Aufgrund dessen konnten nicht, wie bei den Glaskugelschüttungen, Mehrphasenströmungen mit zwei mobilen Phasen durchgeführt werden, sondern es wurden Einphasenströmungen mit Luft durch unterschiedlich wassergesättigte Proben realisiert. Aus diesem Grund ist auch eine analytische Auswertung der Messdaten mit Gleichung ((5.2) wieder zulässig. Die Abbildung 6.28 zeigt den Verlauf der Messwerte für eine Durchströmung einer anfangs gesättigten Diffusionsschicht mit stufenweise erhöhten Luftvolumenströmen analog zur einphasigen Versuchsdurchführung. Es ist deutlich zu erkennen, dass sich mit steigender Gasgeschwindigkeit der über die Probenhöhe einstellende Druckverlust verringert. Hervorgerufen wird dies durch die zunehmende Verdrängung der flüssigen Phase aus den Poren, wodurch der zur Verfügung stehende Durchströmungsquerschnitt vergrößert.

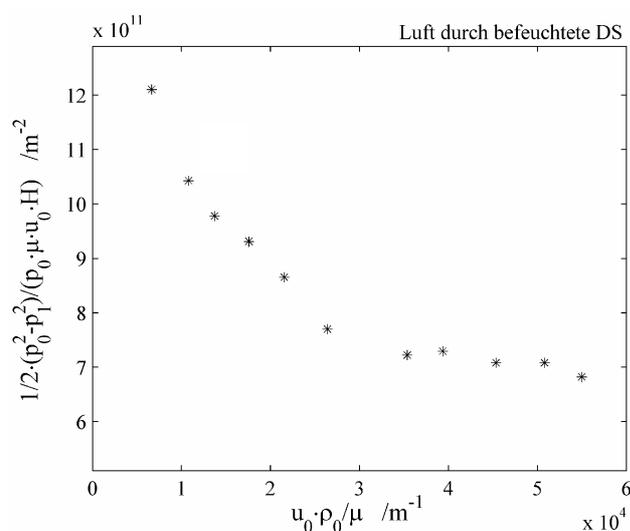
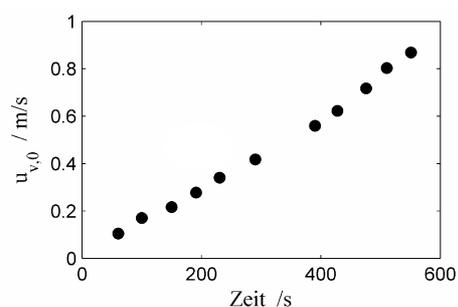


Abbildung 6.28:

Messwerte der Durchströmung gemischt befeuchteter Membrane bei steigender Gasgeschwindigkeit $u_{v,0}$



Um im Weiteren den Wasseranteil in der Membran mit in die Untersuchung einbeziehen zu können, wurde eine gesättigte Diffusionsschicht bei konstantem Luftvolumenstrom untersucht. Hierdurch war der Druckverlust keine Funktion der Gasgeschwindigkeit mehr, sondern konnte in Abhängigkeit des Wasseranteils bestimmt werden. Die Messwerte einer solchen Versuchsführung sind in Abbildung 6.29 dargestellt. Man erkennt bei konstanter Anströmgeschwindigkeit eine nur geringfügige Verringerung des Druckverlustes über die Diffusionsschichten.

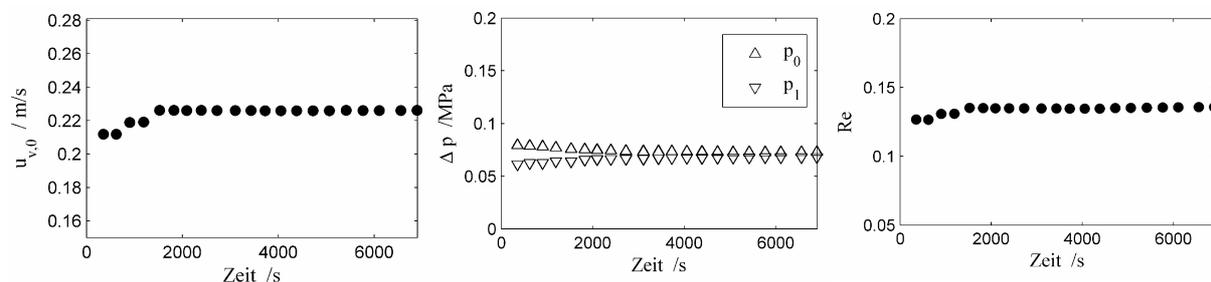


Abbildung 6.29: Gasgeschwindigkeits-, Druck- und Reynoldsverlauf

Die Ermittlung der Sättigung erfolgte gravimetrisch an jedem Messpunkt. Der Zustand vollständiger Sättigung wurde unter der Annahme, dass alle Poren mit Flüssigkeit gefüllt sind, nach Beendigung eines Durchströmungsversuches mit Wasser definiert. Die so erhaltenen Sättigungen berücksichtigten allerdings nur den Porenanteil, der mit Wasser benetzbar ist. Sie

sind daher, wie weiter oben erläutert, im Vergleich zu denen mit dem tatsächlichen Hohlraumvolumen bestimmten durchweg kleiner.

In der Abbildung 6.30 sind Messwerte gegen die Sättigung aufgetragen. Es ist zu erkennen, dass mit steigender Sättigung ebenfalls die Druckverluste zunehmen, wodurch der Effekt der Reduzierung des freien Durchströmungsquerschnittes durch die flüssige Phase verdeutlicht wird.

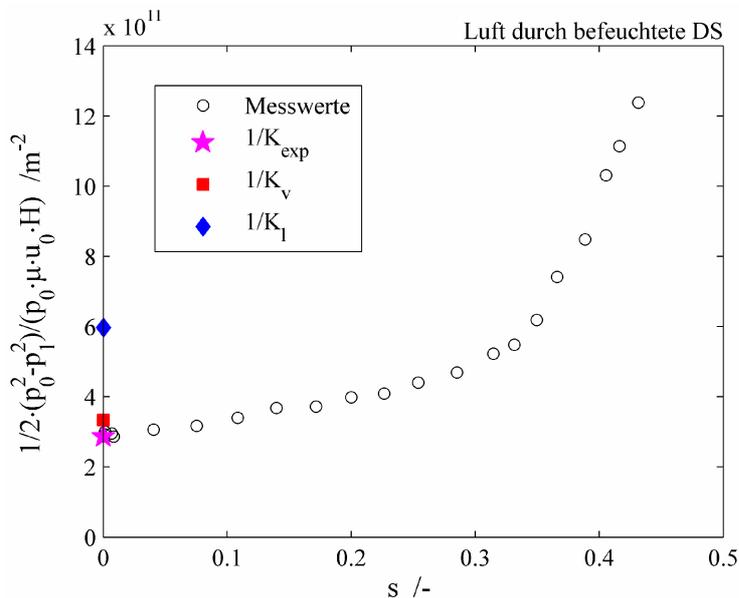


Abbildung 6.30:

Abhängigkeit des Druckverlustes von der Sättigung bei $u_{v,0} = \text{konst.}$ sowie die verschiedenen Permeabilitäten

$$K_v = 3,0 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2 (\hat{\phi})$$

$$K_l = 6,5 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2 (\hat{\iota})$$

$$K_{exp} = 3,5 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2 (\hat{\epsilon})$$

Zusätzlich sind in Abbildung 6.30 die Permeabilitäten der einphasigen Durchströmungen mit Luft ($\hat{\phi}$) und mit Wasser ($\hat{\iota}$) eingezeichnet. Die dritte eingetragene Permeabilität ($\hat{\epsilon}$) stellt die aus den Messwerten der Durchströmung der gemischt befeuchteten Diffusionsschichten ermittelte Kenngröße für eine reine Luftströmung in der trockenen Probe, also für $s = 0$, dar. Diese liegt in derselben Größenordnung wie die der Einphasenpermeabilität mit Luft. Ursache für die geringe Abweichung der beiden Werte ist ein nicht mehr messbarer Restwasseranteil, den die Probe noch enthält und der einen nicht zu vernachlässigen Effekt auf die Durchströmungseigenschaften ausübt.

Analog zu den Untersuchungen der mehrphasigen Durchströmung von Glaskugelschüttungen wird auch hier zur Beschreibung des Zusammenhanges zwischen Strömungswiderstand und Sättigung folgende Potenzfunktion gewählt:

$$k_{rel,v} = (1-s) \quad (6.5)$$

Für die Auswertung wird nur der Fall einer reibungsbehafteten Strömung betrachtet, da die Untersuchungen, entsprechend den Anforderungen in der Praxis, nur bei sehr geringen Gasgeschwindigkeiten und den damit verbundenen niedrigen Reynoldszahlen, vgl. Abbildung 6.29, durchgeführt worden sind. Eine hohe Strömungsgeschwindigkeit würde zudem eine sofortige Entwässerung bedeuten, womit keine Mehrphasenströmung mehr vorläge. Ein weiterer Vorteil dieser Versuchsführung besteht darin, dass bei jedem Messpunkt derselbe Strömungszustand vorliegt. Damit kann die Bilanz reduziert werden zu

$$-\frac{\partial p}{\partial x} = \frac{\mu_{v,0}}{K \cdot k_{rel,v}} \cdot u_{v,0} = \frac{\mu_{v,0}}{K \cdot (1-s)} \cdot u_{v,0} \quad (6.6)$$

Es folgt hieraus, dass für die Regression der Werte unter der Annahme einer konstanten mittleren Sättigung die für eine kompressible Gasströmung gelöste Impulsbilanz für den laminaren Fall verwendet werden kann.

$$\frac{1}{2} \cdot \frac{p_0^2 - p_1^2}{p_0 \cdot \mu_v \cdot u_{v,0} \cdot H} = \frac{1}{K_{exp} \cdot k_{rel,v}} = \frac{1}{K_{exp} \cdot (1-s)} \quad (6.7)$$

Die Permeabilität K_{exp} ist aus den Messwerten für $s = 0$ zu bestimmen, womit als Anpassungsparameter nur noch der Exponent bleibt. Ausgehend von der Gleichung (6.7) lässt sich die relative Permeabilität der Gasphase $k_{rel,v}$ folglich direkt aus den Messwerten berechnen.

$$k_{rel,v}(s) = \left(\frac{1}{2} \cdot \frac{p_0^2 - p_1^2}{p_0 \cdot \mu_v \cdot u_0 \cdot H} \cdot K \right)^{-1} \quad (6.8)$$

Das Ergebnis der Anpassung ist zusammen mit den Messdaten in der Abbildung 6.31 links dargestellt. Der sich somit ergebende Zusammenhang zwischen der relativen Permeabilität und der Sättigung ist in dieser Abbildung aufgetragen.

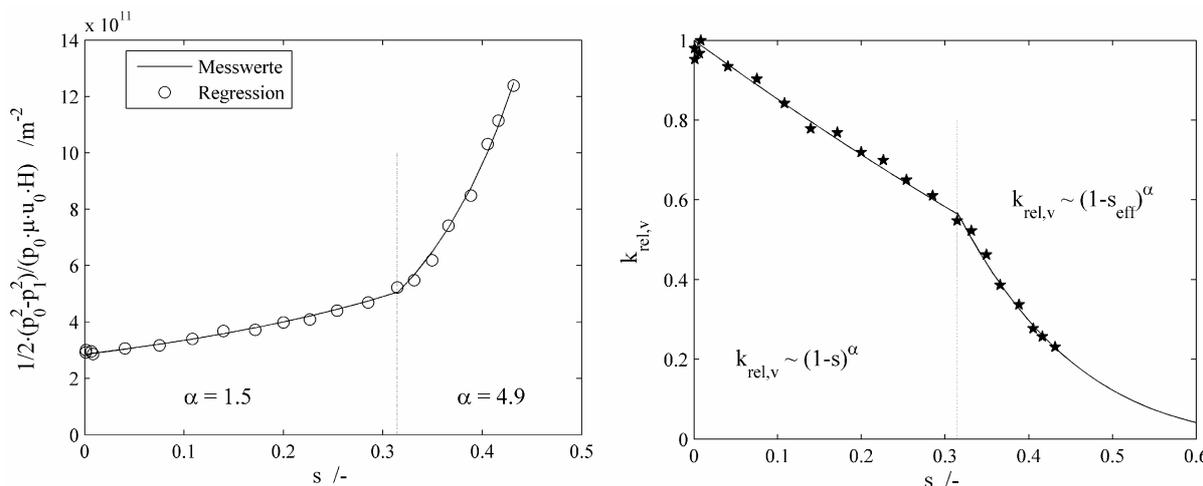


Abbildung 6.31:

links: Vergleich der Messwerte mit den Daten der Regression;

rechts: Verlauf der experimentell bestimmten $k_{rel,v}$ für versch. Mehrphasenpermeabilitäten;

Anhand der Verläufe der Messpunkte wird deutlich, dass eine einheitliche Regression wie bei den Glaskugelschüttungen nicht mehr für alle Sättigungen möglich ist. Die für Schüttgüter zugrunde gelegten Modellvorstellungen basieren auf der Annahme gleicher Permeabilitäten für alle Phasen. Das bedeutet, dass es auch bei der mehrphasigen Durchströmung keine bevorzugten Poren gibt und der zusätzliche Druckverlust in Form eines Exzesswiderstandes auftritt. Für die untersuchten Membranen treffen diese Vorstellungen stattdessen nicht mehr uneingeschränkt zu und es ist eine Aufteilung in zwei Bereiche vorzunehmen.

Mit der Annahme, dass während der Durchströmung jede Phase nur ihre eigenen Poren benutzt, ergibt sich für den Bereich niedriger Sättigungen ein linearer Zusammenhang zwischen relativer Permeabilität und Sättigung, der in Abbildung 6.31 bis zur Grenzsättigung $s_{grenz} = 0,31$ beobachtet werden kann. Dieser erste Bereich kann mit der tatsächlichen Sättigung s gemäß der bekannten Potenzfunktion approximiert werden.

$$\text{für } s < s_{grenz}: \quad k_{rel,v} = (1 - s) \quad (6.9)$$

Oberhalb dieser Sättigung blockiert Flüssigkeit aufgrund der Kapillarkräfte einige der Durchströmungskanäle für Luft bzw. es werden feinste Wassertropfen durch die hydrophoben Poren mitgerissen. Folglich haben hier wieder die Modellvorstellungen für Mehrphasenströmungen Gültigkeit und zur Anpassung ist die mit s_{grenz} normierte effektive Sättigung zu verwenden.

$$\text{für } s > s_{grenz}: \quad k_{rel,v} = (1 - s_{eff}) \quad , \quad \text{mit } s_{eff} = \frac{s - s_i}{1 - s_i} \quad (6.10)$$

Die entsprechenden Regressionen für beide Bereiche sind in der Abbildung 6.31 als durchgezogene Linien eingezeichnet.

Die vorgestellten Ergebnisse zeigen wie bei den Modellschüttgütern einen signifikanten Einfluss sowohl der Benetzbarkeit als auch der Sättigung. Mit Hilfe dieser Aufspaltung in zwei Bereiche und der Definition einer effektiven Sättigung wird eine physikalisch sinnvolle Beschreibung mehrphasiger Transportvorgänge in heterogenen porösen Membranen basierend auf kapillaren Modellen möglich.

7 Zusammenfassung

Mehrphasenströmungen durch poröse Medien bilden die Grundlage einer Vielzahl technischer Anwendungen in der Verfahrenstechnik. In der vorliegenden Arbeit wurden daher die Einflüsse der Stoffeigenschaften poröser Medien auf das Verhalten isothermer ein- und zweiphasiger Durchströmungsprozesse insbesondere bei hohen Strömungsgeschwindigkeiten untersucht.

Als Strömungsmedien kamen Luft und Wasser zum Einsatz. Dabei wurden einerseits Modellschüttgüter verwendet, um gezielt einzelne Eigenschaften der porösen Matrix variieren zu können. Als Parameter dienten der mittlere Partikeldurchmesser und die Benetzbarkeit deren Oberflächen sowie als Schüttungsmerkmal die Porosität. Andererseits wurden reale poröse Medien durchströmt, um die Übertragbarkeit der Erkenntnisse darzulegen. Als Beispiel für reale Schüttgüter wurden die beiden Materialien Erdboden und Braunkohle verwendet. Stellvertretend für heterogene poröse Medien wurden Membrane der Direkt-Methanol-Brennstoffzellen untersucht.

Zur Beschreibung des Druckabfalls bei einphasigen Strömungsprozessen in porösen Medien wird aufgrund der geometrischen Komplexität häufig auf empirische Ansätze zur Modellierung des Impulstransportes zurückgegriffen. Die Grundlage hierzu bildet das Darcy-Gesetz, das den Zusammenhang des Strömungsdruckverlustes in einem porösen Medium infolge viskoser Einflüsse beschreibt. Höhere Strömungsgeschwindigkeiten, bei denen die Trägheitseinflüsse gegenüber den Reibungskräften nicht mehr vernachlässigbar sind, lassen sich mit der Ergun-Forchheimer-Gleichung, einer Erweiterung der Darcy-Gleichung, erfassen. Hierin bestimmen die Konstanten Permeabilität und Passabilität, die ausschließlich von den Haufwerkseigenschaften Porosität, Poren- oder Partikelgrößenverteilung sowie Oberfläche und Form der Partikel abhängen, den Zusammenhang zwischen dem Druckgradienten und der Anströmgeschwindigkeit. Mit Hilfe des Kapillarmodells lassen sich für kapillarporöse Materialien und monodisperse Haufwerke die Haufwerkseigenschaften annähernd theoretisch ableiten. Anwendbar sind diese Korrelationen jedoch ausschließlich zur Beschreibung des Strömungsdruckverlustes in geordneten porösen Medien. Zur Modellierung realer Schüttungen mit einer breiten Partikelgrößenverteilung oder mit Partikeln, deren Form von der Kugelgestalt abweicht, sind experimentelle Untersuchungen noch unerlässlich.

Im Fall der einphasigen Durchströmung konnte experimentell gezeigt werden, dass die Haufwerkskenngrößen Permeabilität und Passabilität sowohl bei kompressiblen als auch bei nicht deformierbaren Haufwerken Funktionen des mittleren Partikeldurchmessers, der Porosität sowie der Tortuosität und des Formwiderstandsbeiwertes sind. Eine detaillierte Betrachtung der Haufwerkszustände zeigte, dass die Tortuosität eine Konstante des Schüttgutmaterials ist, wohingegen der Widerstandsbeiwert partikelgrößen- und porositätsabhängig ist, d.h. dass mit kleiner werdenden Poren die Energieverluste durch Strömungsablösungen hinter den Partikeln zunehmen.

Die Beschreibung mehrphasiger Strömungsvorgänge ist ebenfalls mit Hilfe der Ergun-Forchheimer-Gleichung möglich. Dem Vorhandensein mehrerer fluider Phasen, die sich das für die Durchströmung zur Verfügung stehende freie Hohlraumvolumen nun teilen müssen, wird durch Einführung der relativen Permeabilitäten und relativen Passabilitäten Rechnung getragen. Diese Kenngrößen sind dabei im Wesentlichen abhängig von der Verteilung der fluider Phasen im Haufwerk, werden aber auch von den Oberflächenspannungen und den Verhältnissen der fluider Dichten beeinflusst. Ein weiterer zusätzlicher Druckverlust wird durch die z.T. sehr großen Unterschiede der Strömungsgeschwindigkeiten der fluider Phasen und die daraus resultierenden Schubkräfte an den Phasengrenzflächen hervorgerufen. Diesem wird durch Einführung einer Phasenwechselwirkungskraft Rechnung getragen.

Zur Beschreibung der Phasenverteilung und zur Bestimmung des Anteils der immobilen Flüssigkeitsgehalte sind Untersuchungen der kapillaren Eigenschaften durchgeführt worden. Bei

der Auswertung der mehrphasigen Durchströmungsversuche zeigte sich, dass diese nicht mehr getrennt für jede Phase, analog zu den reinen Gas- bzw. Flüssigströmungen, erfolgen konnte. Die analytische Lösung für die inkompressiblen Flüssigkeitsströmung gibt einen linearen Druckverlauf über die Schüttungshöhe vor, diejenige für die kompressible Gasströmung ein Wurzelprofil. Der Druckverlauf der mehrphasigen Durchströmung ist eine Kombination aus beiden und zudem an die Sättigung gekoppelt. Die Änderung des Druckes bewirkt neben einer Variation der Strömungsgeschwindigkeiten der Gasphase ebenfalls eine Ortsabhängigkeit der Sättigung. Zur Auswertung der Messdaten wurde deshalb ein numerischer Algorithmus entwickelt, der die zwei Impulsbilanzen unter Berücksichtigung gleicher Drücke, Druckgradienten und Sättigungen in beiden fluiden Phasen gemeinsam löst. Die so erhaltenen Ergebnisse legen dar, dass die relativen Permeabilitäten und relativen Passabilitäten einer Phase bei konstanter Sättigung gleich sind.

Um den Einfluss der Eigenschaften des porösen Mediums auf die relativen Kenngrößen der mehrphasigen Haufwerksdurchströmung zu untersuchen, wurden der Partikeldurchmesser und ferner der Anteil an benetzbarer zu nichtbenetzbarer Schüttgutoberfläche verändert. Es zeigte sich, dass die relativen Kenngrößen ebenso wie Permeabilität und Passabilität bei den Einphasenströmungen durch die Partikelgröße, also durch die hydraulischen Eigenschaften des porösen Mediums beeinflusst werden. Für kleine Korngrößen, d.h. niedrige Permeabilitäten, steigt der Widerstand der flüssigen Phase bedingt durch die zunehmenden Kapillarkräfte. Dies hat zum einen eine geringere Beweglichkeit des Wassers zur Folge. Zum anderen bedeutet das, dass Flüssigkeitspfropfen, die die kleineren Poren blockieren, erst durch einen zusätzlichen Energieeintrag wieder freigegeben werden, der makroskopisch in einem erhöhten Druckabfall gemessen wird. Das Strömungsverhalten in unterschiedlich benetzbaren Haufwerken wurde durch Schüttungen mit verschiedenen Mengenverhältnissen von Glaskugeln und gleichgroßen Polystyrolpartikeln untersucht. Festzustellen ist, dass der Widerstand der flüssigen Phase mit zunehmendem Styrolanteil steigt und somit ein erhöhter Druckverlust des nichtbenetzenden Mediums vorliegt. Im Gegenzug verringert sich mit einer größer werdenden Benetzbarkeit der Widerstand für diese Phase. Analog zu den Auswirkungen kleiner Strömungsporen bei den Untersuchungen an reinen Glaskugelschüttungen ist auch hier eine erhöhte Oberflächenbildungsarbeit in der flüssigen Phase erforderlich.

Der Vergleich mit den realen porösen Medien zeigt, dass die Modellvorstellungen grundsätzlich auch für diese Gültigkeit besitzen. Bei dem sandigen Erdboden ist die Anwendbarkeit der Einphasenmodelle eindeutig gegeben. Demgegenüber sind zur Beschreibung kolloidaler Stoffe, wie der untersuchten Braunkohle, empirische Ansätze, deren Parameter für jeden Anwendungsfall experimentell bestimmt werden müssen, unerlässlich.

Bei den Brennstoffzellenmembranen konnte gezeigt werden, dass sich das komplexe Verhalten durch eine Reduzierung des gesamten Prozesses auf einzelne Teilbereiche, in diesem Fall der abschnittsweisen Definition der Sättigung, mit den Modellansätzen recht gut beschreiben lässt. So bedingt zum einen eine Hydrophobisierung unterschiedliche Strömungswiderstände der flüssigen und gasförmigen Phase. Zum anderen lassen sich dadurch, wie das Modellsystem Glaskugeln/Styrol bestätigte, die Mobilitäten der fluiden Medien gezielt beeinflussen.

Da in einer Vielzahl verfahrenstechnischer Anwendungen die eingesetzten porösen Medien stark inhomogenen sind, ist die Kenntnis der Charakteristika isothermer mehrphasiger Durchströmung von besonderer Bedeutung. So lassen sich mit den abgeleiteten Zusammenhängen einerseits vorhandene Simulationsmodelle erweitern. Andererseits können sie auch direkt als Vergleichsgrundlage bei Problemen der technischen Umsetzung, die noch nicht in allen Fällen computergestützt beschreibbar sind, herangezogen werden.

8 Anhang

8.1 Symbolverzeichnis

8.1.1 Lateinische Buchstaben

Symbol	Bedeutung	Definition	Einheit
a_1, a_2	Regressionskonstanten		-
a_{spez}	spezifische Oberfläche	$a_{\text{spez}} = V_P/A_P$	m
A_1, B_1	Regressionskonstanten		-
A	Elektrodenfläche		m ²
A, B	Haufwerkskonstanten		-
A_P	Partikeloberfläche		m ²
c_1, c_2, c_3	Modellparameter (Forchheimer)		-
d	charakteristischer Durchmesser		m
d_{32}	Sauterdurchmesser	$d_{32} = 6 \cdot V_P/A_P$	m
d_H	hydraulischer Durchmesser	$d_H = 2/3 \cdot d_P/(1 - \epsilon)$	m
d_n	Teilchendurchmesser der n-ten Fraktion		m
d_p	repräsentativer Partikeldurchmesser		m
F	Widerstands-Bildungs-Faktor	$F = R_0/R_u = \tau/\epsilon^m$	-
f_K	Strömungsdruckverlustfaktor		-
g	Gravitationskraft		m/s ²
G	elektrischer Leitwert		S
G_0	elektrischer Leitwert der vollständig gesättigten Probe		S
H	Schüttungshöhe		m
$k_{\text{rel},i}$	relative Permeabilität der Phase i	$k_{\text{rel},i} = K_{\text{eff},i}/K$	-
K	Permeabilität		m ²
$K_{\text{eff},i}$	effektive Permeabilität der Phase i		m ²
l	Kapillarlänge		m
l	Elektrodenabstand		m
m	Modellparameter der Phasenverteilungsfunktion		-
m, n	Konstanten		-
m_S	Schüttungsmasse		Kg
p	Druck		Pa
p_d	kapillarer Eintrittsdruck		Pa
p_K	Kapillardruck		Pa
Q	Volumenstrom		m ³ /s
r_1, r_2	Krümmungsradien		m
R	mittlerer Rotationsradius		Ω
R	elektrischer Widerstand		m
R_0	elektrischer Widerstand der vollständig gesättigten Probe		Ω
Re	Reynoldszahl	$Re = u_0 \cdot d \cdot \rho / \mu$	-
R_u	elektrischer Widerstand der trockenen Probe		Ω
s_{eff}	effektive Sättigung		-
s_{grenz}	Grenzsättigung		-
s_i	Sättigung der Phase i	$s_i = V_i/V_H$	-
s_{im}	immobile Restsättigung		-
T	Temperatur		K
u	Strömungsgeschwindigkeit		m/s

u_0	Anströmgeschwindigkeit		m/s
V_H	Hohlraumvolumen	$V_H = V_S - V_P$	m^2
V_i	Volumen der Phase i		m^3
V_n	Volumenanteil der n-ten Fraktion		m^2
V_P	Partikelvolumen	$V_P = \rho_P \cdot m_S$	m^3
V_S	gesamtes Schüttungsvolumen		m^2
W	empirische Funktion der Phasenverteilung	$W(s) = W_0 \cdot s_{\text{eff}}^m \cdot (1-s)$	-
W_0	Modellparameter der Phasenverteilungsfunktion		-
x	Ortskoordinate		m
$x_{\text{heterogen}}$	Oberflächenverhältnis der Benetzungsfähigkeit	$x_{\text{heterogen}} = a_{v,nb}/a_{v,b}$	-

8.1.2 Griechische Buchstaben

Symbol	Bedeutung	Definition	Einheit
α	Konstante für Kapillardruckkurve (van Genuchten)		-
α, β	Modellparameter für rel. Durchströmungskenngrößen		-
β	non-Darcy flow coefficient		m^{-1}
	Defekt der numerischen Lösung		-
	Differenz		-
ε	Lückengrad, Porosität	$\varepsilon = V_H/V_S$	-
φ	Porositätsfunktion		-
η	Passabilität		m
$\eta_{\text{eff},i}$	effektive Permeabilität der Phase i		m
$\eta_{\text{rel},i}$	relative Passabilität der Phase i	$\eta_{\text{rel},i} = \eta_{\text{eff},i}/\eta$	-
	elektrische Leitfähigkeit	$= G \cdot l/A$	S/m
	Konstante für Kapillardruckkurve (Brooks/Corey)		-
λ	Widerstandsbeiwert der Durchströmung von Kapillaren	$= 64/Re$	-
μ	dynamische Viskosität		Pa s
ρ	Stoffdichte		Kg/m^3
	Kontaktwinkel, Benetzungswinkel		°
σ	Oberflächenspannung		N/m
τ	Umwegfaktor, Tortuosität	$= l/H$	-
ω	Winkelgeschwindigkeit		s^{-1}
	Oberflächenformfaktor		-
	Verlustziffer, Formwiderstandsbeiwert durch Ablösungen		-

8.1.3 Indizierungen

v	gasförmig
l	flüssig
i, j	Phasenindizierung
0	Schüttungseintritt
1	Schüttungsausstritt
exp	experimentell
max	maximal

8.1.4 Abkürzungen

PS	Polystyrol
PE	Polyethylen
GK	Glaskugeln
BK	Braunkohle
EB	Erboden
DMFC	Direktmethanolbrennstoffzelle
PTFE	Polytetrafluorethylen
CO ₂	Kohlendioxid
i.N.	im Normzustand (273,15 K; 1,013 bar)
nb	nichtbenetzend
b	benetzend
BCB	Modell Brooks/Corey-Burdine
VGB	Modell van Genuchten-Burdine

8.2 Literaturverzeichnis

- ABT88 M.B. Allen, G.A. Behie, J.A. Tangenstein, *Multiphase Flow in Porous Media*, Springer Verlag New York, 1988
- And87 W.G. Anderson, *Wettability Literature Survey – Part 4: Effects of Wettability on Capillary Pressure*, Journal of Petroleum Technology, October (1987), 1283-1300
- AP95 D.G. Avraam, A.C. Payatakes, *Generalized Relative Permeability Coefficients during Steady-State Two-Phase Flow in Porous Media, and Correlation with the Flow Mechanisms*, Transport in Porous Media **20** (1995), 135-168
- Arc42 G.E. Archie, *The Electrical Resistivity Log as an Aid in Determining Some Reservoir Characteristics*, Petroleum Technology **154** (1942), 1-8
- Ave50 S. Averjanow, *About permeability of subsurface soils in case of incomplete saturation*, Engineering Collection **7** (1950)
- BAL97 S.A. Bradford, L.M. Abriola, F.J. Leij, *Wettability on two- and three-fluid relative permeabilities*, Journal of Contaminant Hydrology **28** (1997), 171-191
- Bar51 W. Barth, *Der Druckverlust bei der Durchströmung von Füllkörpersäulen und Schüttgut mit und ohne Berieselung*, Chemie Ingenieur Technik **23** (1951) 12, 289-293
- Bar72 H. Barthels, *Druckverlust in Kugelschüttungen*, Brennst.-Wärme-Kraft **24** (1972) 6, 233-236
- BB86a Y. Bachmat, J. Bear, *Macroscopic Modelling of Transport Phenomena in Porous Media. 1: The Continuum Approach*, Transport in Porous Media **1** (1986), 213-240
- BB86b J. Bear, Y. Bachmat, *Macroscopic Modelling of Transport Phenomena in Porous Media. 2: The Continuum Approach*, Transport in Porous Media **1** (1986), 241-269
- BB91 J. Bear, J.M. Buchlin (Hrsg.), *Modelling and applications of transport phenomena in porous media*, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 1991
- BBS⁺99 S. Berger, C. Bergins, K. Strauß, F.B. Bielefeld, R.O. Elsen, M. Erken, *Mechanical/Thermal Dewatering of brown coal*, VGB PowerTech **79** (1999) 2, 44-49
- BC64 R.H. Brooks, A.T. Corey, *Hydraulic properties of porous media*, Hydrology Papers **3** (1964), Colorado State University
- BCB⁺99 C. Bergins, S. Crone, S. Berger, K. Strauß, *Mechanisch/Thermische Entwässerung von feuchten Schüttgütern und Schlämmen*, in G. Alvermann: Kontaminierte Schlämme – Behandlung und Nutzungsmöglichkeiten feinkörniger Reststoffe, GKSS Forschungszentrum, Geesthacht, 1999
- BCS90 J.C. Bacri, M. Chaouche, D. Salin, *Modèle simple de perméabilités relative croisées*, C.R. Acad. Sci. Paris, t. 311, Série II (1990), 591-597
- Bea72 J. Bear, *Dynamics of Fluids in Porous Media*, American Elsevier Publishing Company, New York, 1972
- Ber01 C. Bergins, *Mechanismen und Kinetik der Mechanisch/Thermischen Entwässerung von Braunkohle*, Shaker Verlag, Aachen, 2001
- BP28 S.P. Burke, W.B. Plummer, *Gas Flow through Packed Columns*, Industrial and Engineering Chemistry **20** (1928) 11, 1196-1200
- Bra71 H. Brauer, *Grundlagen der Einphasen- und Mehrphasenströmungen*, Sauerländer Verlag, Aarau, 1971

- BS87 J.M. Buchlin, A. Stubos, *Phase Change Phenomena at Liquid Saturated Self Heated Particulate Beds*, in J. Bear, J.M. Buchlin: Modeling and Applications of Transport Phenomena in Porous Media, Kluwer Acad. Pub, 1987
- Bur53 N.T. Burdine, *Relative permeability calculation from size distribution*, Trans. AIME **198** (1953), 71-78
- Car37 P.C. Carman, *Fluid Flow Through Granular Beds*, Trans. Of the Institution of Chem. Eng. **15** (1937), 150-166
- CHG99 J. Chen, J.W. Hopmans, M.E. Grismer, *Parameter estimation of two-fluid capillary pressure-saturation and permeability functions*, Adv. in Water Resources **22** (1999) 5, 479-493
- Col61 R.E. Collins, *Flow of Fluids through porous materials*, Reinhold, New York, 1961
- Cou49 J.M. Coulson, *The Flow of Fluids Through Granular Beds: Effect of Particle Shape and Voids in Streamline Flow*, Transactions of Institution of Chemical Engineers **27** (1949), 237-257
- Cro03 S. Crone, *Nicht-isotherme mehrphasige Mehrkomponentenströmungen mit Phasenwechsel in porösen Medien*, Shaker Verlag, Aachen, 2003
- CW80 R.E. Cunningham, R.J.J. Williams, *Diffusion in gases and porous media*, Plenum Press, New York, 1980
- Dar56 H. Darcy, *Les fontaines publiques de la ville Dijon*, Victor Dalmont, Paris, 1856
- DE84 A. Dybb, R.V. Edwards, *A New Look at Porous Media Fluid Mechanics – Darcy to Turbulent*, 199-256, in: Selected Topics in Fundamentals Transport Phenomena in Porous Media, ed. J. Bear and M. Y. Carapcioglu, M. Nijhoff Publishers, Dordrecht Netherland, 1984
- Doh00 H. Dohle, *Entwicklung und Modellierung von Direkt-Methanol-Brennstoffzellen*, Dissertation RWTH Aachen, 2000
- Dud66 C.R. Dudgeon, *An experimental Study of the flow of water through coarse granular media*, La Houille Blanche **7** (1966), 785-800
- Dul88 F.A.L. Dullien, *Two-phase flow in porous media*, Chemical Engineering and Technology **11** (1988), 407-424
- EE88 E.V. Evans, R.D. Evans, *Influence of an Immobile or Mobile Saturation on Non-Darcy Compressible Flow of Real Gases in Propped Fractures*, Journal of Petroleum Technology (1988), 1343-1351
- Ehr93 R. Ehrlich, *Viscous Coupling in Two-Phase Flow in Porous Media and its Effect on Relative Permeabilities*, Transport in Porous Media **11** (1993), 201-218
- Erg52 S. Ergun, *Fluid flow through packed columns*, Chemical Engineering Progress **48** (1952) 2, 89-94
- FKL⁺87 R.M. Fand, B.Y.K. Kim, A.C.C. Lam, R.T. Phan, *Resistance to the Flow of Fluids Through Simple and Complex Porous Media Whose Matrices Are Composed of Randomly Packed Spheres*, Journal of Fluids Engineering **109** (1987), 268-274
- FL00 M. Fourar, R. Lenormand, *Inertial Effects in Two-Phase Flow through Fractures*, Oil & Gas Science and Technology 55 (2000) 3, 259-268
- FL01 M. Fourar, R. Lenormand, *A new model for two-phase flows at high velocities through porous media and fractures*, Journal of Petroleum Science and Engineering **30** (2001), 121-127
- FL33 G.H. Fancher, J.A. Lewis, *Flow of Simple Fluids through Porous Materials*, Industrial and Engineering Chemistry **25** (1993) 10, 1139-1147

- For01 P. Forchheimer, *Wasserbewegung durch Boden*, Zeitschrift des Vereins deutscher Ingenieure **45** (1901) 1741,1781-1788
- Gee74 J. Geertsma, *Estimating the Coefficient of Inertial Resistance in Fluid Flow Through Porous Media*, Society of Petroleum Engineers Journal **14** (1974) 5, 445-450
- Gen80 M.T. van Genuchten, *A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils*, Soil Science Society Journal **44** (1980) 892-898
- GRN⁺01 R.J. Glass, H. Rajaram, M.J. Nicholl, R.L.Detwiller, *The interaction of two fluid phases in fractured media*, Current Opinion in Colloid & Interface Science **6** (2001), 223-235
- HHA96 M.M. Honarpour, D.D. Huang, R. Al-Hussainy, *Simultaneous Measurements of Relative Permeability, Capillary Pressure, and Electrical Resistivity with Microwave System for Saturation Monitoring*, SPE Journal **1** (1996) 3, 283-293
- Irm54 S. Irmay, *About the hydraulic conductivity of unsaturated soils*, EOS, Transactions of the American Geophysical Union **35** (1954), 463-467
- Jes64 R. Jeschar, *Wärmeübergang in Mehrkornschüttungen aus Kugeln*, Arch. Eisenhüttenwes. **35** (1964) 6, 517-526
- JS90 G.R. Jerault, S.J. Salter, *The Effect of Pore Structure on Hysteresis in Relative Permeability and Capillary Pressure: Pore-level Modeling*, Transport in Porous Media **5** (1990), 103-151
- Kal90 F. Kalaydjian, *Origin and Quantification of Coupling Between Relative Permeabilities for Two-Phase Flows in Porous Media*, Transport in Porous Media **5** (1990), 215-229
- Kav95 M. Kaviany, *Principles of Heat Transfer in Porous Media*, 2. Aufl., Springer, New York, 1995
- KJ94 I. Kececioğlu, Y. Jiang, *Flow Through Porous Media of Packed Spheres Saturated with Water*, Journal of Fluids Engineering **116** (1994), 164-170
- Kli41 L.J. Klinkenberg, *The permeability of porous media to liquids and gases*, Drilling and production practice, American Petroleum Institute, New York, 1941, 200-213
- Koz27 J. Kozeny, *Über kapillare Leitung des Wassers im Boden*, Akademie der Wissenschaften in Wien, Mathematisch-naturwissenschaftliche Klasse, Sitzungsberichte IIa, **136** (1927), 271-306
- Lev38 M.C. Leverett, *Flow of Oil-water Mixtures through Unconsolidated Sands*, Petroleum Technology, November (1938), 149-171
- Lev40 M.C. Leverett, *Capillary Behavior in Porous Solids*, Transactions of the American Society of Mining Engineers **142** (1940) 152-169
- Lip84 R.J. Lipinski, *A Coolability Model for Postaccident Nuclear Reactor Debris*, Nuclear Technology **65** (1984), 53-66
- LR92 F. Löffler, J. Raasch, *Grundlagen der mechanischen Verfahrenstechnik*, Vieweg Verlag, Wiesbaden, 1992
- LSC86 J. Levec, A.E. Sáez, R.G. Carbonell, *The hydrodynamics of trickling flow in packed beds, Part 2: Experimental observations*, AIChE Journal **32** (1986) 3, 369-380
- LSD⁺88 M.G. Lewis, M.M. Sharma, H.F. Dunlap, M.H. Dorfman, *Techniques for Measuring the Electrical Properties of Sandstone Cores*, 63rd Annual Technical Conference and Exhibition of SPE, Houston (1988), 697-703

- MCI+98 C.T. Miller, G. Christakos, P.T. Imhoff, J.F. McBride, J.A. Pedit, J.A. Trangenstein, *Multiphase flow and transport modeling in heterogenous porous media: challenge and approaches*, *Advances in Water Resources* **21** (1998) 2, 77-120
- MEM79⁺ I.F. Macdonald, M.S. El-Sayed, K. Mow, F.A.L. Dullien, *Flow through Porous Media – the Ergun Equation Revisited*, *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals* **18** (1979) 3, 199-208
- MM36 M. Muskat, M.W. Meres, *The Flow of Heterogeneous Fluids Through Porous Media*, *Physics* **7** (1936), 346-363
- MM68 N. Mungan, E.J. Moore, *Certain Wettability Effects on Electrical Resistivity in Porous Media*, *Journal of Canadian Petroleum Technology*, (1968) 20-25
- MPR71 O. Molerus, M.H. Pahl, H.C.H. Rumpf, *Die Porositätsfunktion in empirischen Gleichungen für den Durchströmungswiderstand im Bereich $Re < 1$* , *Chemie Ingenieur Technik* **43** (1971) 6, 367-378
- MR94 H. Ma, D.W. Ruth, *A Numerical Analysis of the Interfacial Drag Force for Fluid Flow in Porous Media*, *Transport in Porous Media* **17** (1994), 87-103
- Mua76 Y. Mualem, *A New Model for Predicting the Hydraulic Conductivity of Unsaturated Porous Media*, *Water Resources Research* **12** (1976) 3, 513-522
- Mus49 M. Muskat, *Physical Principles of Oil Production*, McGraw-Hill, New York, 1. Auflage, 1949
- Mus49 M. Muskat, *Physical Principles of Oil Production*, McGraw-Hill, New York, 1. Auflage, 1949
- NA87 R. Norman, J.S. Archer, *The Effect of Pore Structure on Non-Darcy Gas Flow in some Low Permeability Reservoir Rocks*, *SPE* 16400 (1987), 103-110
- NJ56 K. Neumann, H. Jacok, *Drucksetzungsversuche mit Weichbraunkohlen*, *Zeitschrift für angewandte Geologie* (1956) 7, 307-322
- NWH62 J. Naar, G.R. Wygal, J.H. Henderson, *Imbibition relative permeability in unconsolidated porous media*, *Petroleum Engineers Journal* **2** (1962), 13-23
- OA71 W.W. Owens, D.L. Archer, *The effect of rock wettability on oil-water relative permeability relations*, *Journal of Petroleum Technology* July (1971), 873-878
- ORK⁺51 J.S. Osoba, J.G. Richardson, J.K. Kerver, J.A. Hafford, P.M. Blair, *Laboratory Measurements of Relative Permeability*, *Petroleum Trans.* **192** (1951), 47-56
- Piq94 J. Piquemal, *Saturated steam relative permeabilities of unconsolidated porous media*, *Transport in Porous Media* **17** (1994), 105-210
- Pre73 E.J. Lefebvre du Prey, *Factors affecting liquid-liquid relative permeabilities of a consolidated porous medium*, *Society of Petroleum Engineers Journal*, Feb. (1973), 39-47
- PW50 H.W. Patnode, M.R.J. Wyllie, *The Presence of Conuctive Solids in reservoir Rocks as a Factor in Electric Log Interpretation*, *Journal of Petroleum Technology* **2** (1950) 2
- RG71 H.C.H. Rumpf, A.R. Gupte, *Einflüsse der Porosität und Korngrößenverteilung im Widerstandsgesetz der Porenströmung*, *Chemie Ingenieur Technik* **43** (1971) 6, 367-375
- RM92 D. Ruth, H. Ma, *On the Derivation of the Forchheimer Equation by Means of the Averaging Theorem*, *Transport in Porous Media* **7** (1992), 255-264
- Ros63 K.J. Rosengren, *Consolidation of some Victorian brown coals*, *Proceedings of the Australasian Institute of Mining and Metallurgy* **208** (1963), 157-193

- Ros88 W. Rose, *Measuring Transport Coefficients Necessary for the Description of Coupled Two-Phase Flow of Immiscible Fluids in Porous Media*, *Transport in Porous Media* **3** (1988), 163-171
- SC85 A.E. Sáez, R.G. Carbonell, *Hydrodynamic Parameters for Gas-Liquid Cocurrent Flow in Packed Beds*, *AIChE Journal* **31** (1985) 1, 52-62
- Sch74 A.E. Scheidegger, *The physics of flow through porous media*, 3. Aufl., University of Toronto Press, Toronto, 1974
- Schu82 H. Schubert, *Kapillarität in porösen Feststoffsystemen*, Springer Verlag Berlin, 1982
- Sha79 Y.T. Shah, *Gas-Liquid-Solid-Reactor Design*, McGraw-Hill, New York, 1979
- SM87 T. Schulenberg, U. Müller, *An improved model for two-phase flow through beds of coarse particles*, *International Journal of Multiphase Flow* **13** (1987) 1, 87-97
- Sti92 M. Stieß, *Mechanische Verfahrenstechnik I*, Springer Verlag, Berlin, 1995
- TD88 V.X. Tung, V.K. Dhir, *A hydrodynamic model for two-phase flow through high permeability porous beds*, *International Journal of Multiphase Flow*, **14** (1988) 1, 47-65
- TF02 G.Q. Tang, A. Firoozabadi, *Relative Permeability Modification in Gas/Liquid Systems Through Wettability Alteration to Intermediate Gas Wetting*, *SPE Reservoir Evaluation & Engineering*, December (2002), 427-436
- TGC93 N.K. Tutu, T. Ginsberg, J.C. Chen, *Interfacial drag for two-phase flow through high permeability porous beds*, *Interfacial Transport Phenomena*, *ASME* **23** (1993), 37-44
- TM98 F. Thauvin, K.K. Mohanty, *Network Modeling of Non-Darcy Flow Through Porous Media*, *Transport in Porous Media* **31** (1998), 19-37
- TP61 K. Terzaghi, R.B. Peck, *Die Bodenmechanik in der Baupraxis*, Springer Verlag, Berlin, 1961
- USD98 P. Ustohl, F. Stauffer, T. Dracos, *Measurement and modeling of hydraulic characteristics of unsaturated porous media with mixed wettability*, *Journal of Contaminant Hydrology* **33** (1998), 5-37
- WA64 J.C. Ward, A.M. Asce, *Turbulent flow in porous media*, *Journal of Hydraulic Division*, *ASCE* **90** (1964), 1-12
- Wan97 C.Y. Wang, *An Alternative Description of Viscous Coupling in Two-Phase Flow through Porous Media*, *Transport in Porous Media* **28** (1997), 205-219
- WB36 R.D. Wyckoff, H.G. Botset, *The Flow of Gas-Liquid Mixtures Through Unconsolidated Sands*, *Physics* **7** (1936), 325-345
- WG55 M.R.J. Wyllie, A.R. Gregory, *Fluid Flow through Unconsolidated Aggregates*, *Industrial and Engineering Chemistry* **47** (1955) 7, 1379-1388
- WG58 M.R.J. Wyllie, G.H.F. Gardner, *The generalized Kozeny-Carman equation*, *World Oil* **146** (1958) 3, 210-228
- Whi86 S. Whitaker, *Flow in Porous Media, II. The Governing Equations for Immiscible Two-phase Flow*, *Transport in Porous Media* **1** (1986), 105-125
- Wit50 L. de Witte, *Relations Between Resistivities and Fluid Contents*, *The Oil and Gas Journal* **24** (1950), 120-132
- WL91 J.Z. Wei, O.B. Lile, *Influence of Wettability on Two- and Four-Electrode Resistivity Measurements on Berea Sandstone Plugs*, *SPE Formation Evaluation*, December 1991, 470-476

Wyl62 M.R.J Wyllie, *Relative Permeability*, Petroleum Production Handbook, McGraw-Hill, Vol. 2, Chapter 25, (25-1)-(25-14), 1962

Lebenslauf

Persönliche Daten

Name: Tim Neumann
Anschrift: Am Havelgarten 19
13599 Berlin
Geburtsdatum: 26.11.1973
Geburtsort: Dortmund
Staatsangehörigkeit: deutsch

Schulausbildung

08/1980 – 07/1984 Emschertal-Grundschule, Dortmund
08/1984 – 06/1993 Gymnasium an der Schweizer Allee, Dortmund
Abschluss: Abitur

Studium

10/1993 – 05/2000 Universität Dortmund
Studiengang: Chemietechnik
Abschluss: Diplom-Ingenieur

Berufstätigkeit

06/2000 – 03/2005 Wissenschaftlicher Angestellter
Lehrstuhl Energieprozesstechnik und Strömungsmechanik
Fachbereich Chemietechnik, Universität Dortmund
seit 10/2005 Projektingenieur
Hans Hoffmann, Trocken- und Lackierofenfabrik,
Apparatebau, Berlin

Berlin 2007

