

**Manuel Alejandro Taborda Ceballos**

**Hydrodynamics, Mass Transfer and  
Chemical Reactions in Bubble Column  
Reactors using Euler/Lagrange  
Approach**

# **Hydrodynamics, Mass Transfer and Chemical Reactions in Bubble Column Reactors using Euler/Lagrange Approach**

## **Dissertation**

zur Erlangung des akademischen Grades

## **Doktoringenieur (Dr.-Ing.)**

von M.Sc. Manuel Alejandro Taborda Ceballos  
geb. am 03.01.1988, in Cali – (Kolumbien)

genehmigt durch die Fakultät für Verfahrens- und Systemtechnik  
der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg

Promotionskommission:

- Prof. Dr.-Ing. habil. Ulrich Krause (Vorsitz)
- Prof. Dr.-Ing. habil. Martin Sommerfeld (Gutachter)
- Prof. Dr.-Ing. habil. Dominique Thévenin (Gutachter)
- Prof. Dr.-Ing. habil. Michael Schlüter (Gutachter)
- Dr.-Ing. Katharina Zähringer (Mitglied)

eingereicht am: 07.09.2021

Promotionskolloquium am: 09.12.2021



Berichte aus der Strömungstechnik

**Manuel Alejandro Taborda Ceballos**

**Hydrodynamics, Mass Transfer and Chemical  
Reactions in Bubble Column Reactors using  
Euler/Lagrange Approach**

Shaker Verlag  
Düren 2022

**Bibliographic information published by the Deutsche Nationalbibliothek**

The Deutsche Nationalbibliothek lists this publication in the Deutsche Nationalbibliografie; detailed bibliographic data are available in the Internet at <http://dnb.d-nb.de>.

Zugl.: Magdeburg, Univ., Diss., 2021

Copyright Shaker Verlag 2022

All rights reserved. No part of this publication may be reproduced, stored in a retrieval system, or transmitted, in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying, recording or otherwise, without the prior permission of the publishers.

Printed in Germany.

ISBN 978-3-8440-8564-8

ISSN 0945-2230

Shaker Verlag GmbH • Am Langen Graben 15a • 52353 Düren

Phone: 0049/2421/99011-0 • Telefax: 0049/2421/99011-9

Internet: [www.shaker.de](http://www.shaker.de) • e-mail: [info@shaker.de](mailto:info@shaker.de)

*To my wife, family, and friends  
Especially to you father...*



# Preface

This document represents the research work that I have performed from November 2017 to July 2021 at the Multiphase Flow working group (MPS) of the Faculty of Systems Engineering (IVT) of the Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg. This work concerns studies of modeling bubble column reactors during the different phases that can be found when simulating it, such as hydrodynamics, mass transfer and species transport, and finally including chemical reactions. Highlighting the importance of considering local bubble dynamics and its effect on liquid-phase hydrodynamics and turbulence.

A Computational Fluid Dynamic (CFD) model was designed, developed, verified, and used for predicting flow hydrodynamics, mass transfer, species concentration when considering also reactive systems within the frame of Euler/Lagrange approach using Large Eddy Simulations (LES) for solving the instantaneous flow fields. The models were implemented in the open-source platform OpenFOAM<sup>®</sup>, which can be made accessible for the international research community.

I would like to express my sincere gratitude to Professor Martin Sommerfeld for all the support, guidance, dedication, and very interesting discussions we had during the development of this doctoral work. Naturally, special thanks to the colleagues of the MPS research group, we had very nice discussions, shared ideas and developed important parts of code, Lars, Oscar, Marcelo, Christian, Guilherme, and Sui. I would also like to thank all the members of the German priority program SPP1740 “Reactive Bubbly Flows” for the nice ideas and insights that we have shared.

The financial supports from the DFG (Deutsche Forschungsgemeinschaft) within the Priority Research Program SPP-1740 “Reactive Bubbly Flows” under the contract number SO 204/47-1 is of course gratefully acknowledged.



# Zusammenfassung

Blasensäulen sind komplexe Mehrphasenreaktoren, die in verschiedenen industriellen Prozessen für Misch- und Reaktionsvorgänge eingesetzt werden. Diese Art von Reaktoren sind gekennzeichnet durch eine große Kontaktfläche für Stoffaustausch und eine intensive Wechselwirkung zwischen Blasen und der Flüssigkeit oder Suspension, um die Interaktion zwischen Gasen und Flüssigkeiten oder Suspension zu intensivieren, wodurch große Kontaktflächen für den Stofftransport und nachfolgende chemische Reaktionen verbessert werden. Aufgrund ihrer großen Bedeutung für die chemische, biochemische, pharmazeutische und petrochemische Industrie sind Ingenieure seit jeher bestrebt, ihre Leistung zu steigern. Um einen tieferen Einblick in diese Komplexität zu ermöglichen und Strategien zur Prozessoptimierung bereitzustellen, hat sich CFD (Computational Fluid Dynamics) zu einem numerischen Standardwerkzeug entwickelt. Allerdings werden genaue Modelle benötigt, um solche dynamischen Systeme korrekt zu reproduzieren. Letzteres kann durch die Komplexität der Wechselbeziehungen der betreffenden Phänomene erklärt werden, die während des Betriebs von Blasensäulen auftreten, zusätzlich zu den verschiedenen Größen sowohl in der Länge als auch in der Zeitskala der physikalischen Transportprozesse.

Der Euler/Lagrange-Ansatz ist eine attraktive und anschauliche Methode zur numerischen Berechnung großräumiger komplexer disperser Stoffsysteme, wie z. B. reaktiver Blasenströmungen, wobei die dispergierenden Phasenelemente als Punktmassen behandelt werden. Dieser Ansatz wurde in der vorliegenden Arbeit erweitert, um endliche Größeneffekte, insbesondere Form- und Bahnoszillationen sowie den resultierenden dynamischen Stofftransport, der bei reaktiven Blasenströmungen essenziell ist, zu berücksichtigen. Das Strömungsfeld wurde durch das Large Eddy Simulation (LES)-Konzept mit vollständiger Zwei-Wege-Kopplung für Impuls und die modellierten Sub-Grid-Scale (SGS)-Turbulenz berechnet. Darüber hinaus wurde auch die Turbulenzverstärkung und Dissipation durch die Blasen berücksichtigt, die als Blaseninduzierte Turbulenz (BIT) bekannt ist. Die Blasenbewegung wurde einschließlich aller relevanten Kräfte (d. h. Widerstandskraft, Auftriebskraft, Wandkraft, Added Mass, Schwerkraft/Auftrieb, Flüssigkeitsträgheit und Basset-Kraft) berechnet, die unter Berücksichtigung der modellierten instantanen Blasenexzentrizität und auch des Blasenverkehrs durch die SGS-Turbulenz erweitert wurden. Der Stofftransport wurde unter Berücksichtigung des dynamischen Blasenverhaltens (d. h. Formoszillationen) modelliert, und der Einfluss chemischer Reaktionen auf den Speziesverbrauch in der flüssigen Phase wurde durch den Verstärkungsfaktor beschrieben.

Zur Validierung der Modellerweiterungen wurden umfangreiche numerische Berechnungen für mehrere experimentelle Testfälle mit Luft- und  $N_2$ -Blasen sowie der  $CO_2$ -Absorption gefolgt von chemischen Reaktionen unter Betrachtung von Einzelblasenaufstieg und Blasenclustern in Laborblasensäulen durchgeführt. Darüber hinaus werden hier Simulationen von Stickstoffmonoxidblasen in wässrigen Eisenlösungen basierend auf einem nur für Einzelblasen untersuchten System numerisch für eine Blasensäule präsentiert.

Es wird gezeigt, dass für Punkt-Partikel-Ansätze die Modellierung der Blasendynamik bei Bewegung und dem Stofftransport für genaue Vorhersagen unerlässlich sind. Nur mit dieser Erweiterung ist es möglich, eine korrekte laterale Blasendispersion (d. h. schwankende Blasen Geschwindigkeiten) und einen signifikante verbesserte Stoffübergang zu erzielen, der durch eine größere Oberfläche der deformierten Blasen hervorgerufen wird. Dadurch können Blasen- und Flüssigkeit Geschwindigkeiten, Gasvolumenanteil sowie Änderung der Blasengrößenverteilung entlang der Blasensäule in einem reaktiven System mit sehr guter Übereinstimmung im Vergleich zu experimentellen Messungen vorhergesagt werden. Dadurch erfolgte die transiente Entwicklung der Spezieskonzentration in der Säule unter Berücksichtigung des Blasendynamikmodells viel schneller, was zu einer besseren Übereinstimmung mit den gemessenen Größen wie der pH-Variation führt.

Im Rahmen dieser Doktorarbeit wurde ein CFD-Algorithmus zur numerischen Modellierung von dreidimensionalen Blasensäulenreaktoren entwickelt, die im homogenen oder heterogenen Strömungsregime betrieben werden. Der Algorithmus basiert auf dem Open-Source-Softwarepaket OpenFOAM® und folgt einem LES Euler-Lagrange (EL)-Ansatz mit zwei Wege Kopplung, der der wissenschaftlichen Gemeinschaft zugänglich gemacht werden kann.

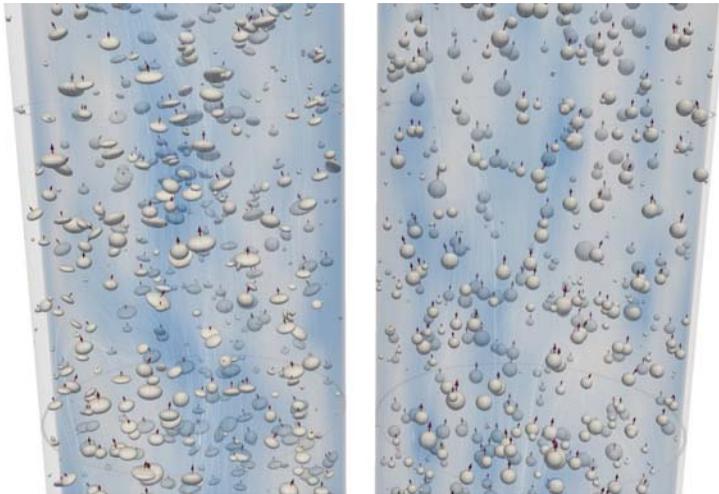


Abbildung A. Beispiel der vorgestellten dynamischen reaktiven Blasenmodellierung unter Verwendung der Punkt-Partikel-Approximation. **Links:** Simulation einschließlich des realen Effekts von Oszillationen der Blasenform und Taumelbewegung Blasenbahn und Exzentrizitätsschwingung. **Rechts:** Simulation mit der Standard-Punkt-Partikel-Approximation, die den Effekt der Oszillation vernachlässigt.

## Abstract

Bubble columns are complex multiphase reactors that are employed in various industrial processes. These types of reactors are used to bring gas and a liquid or suspension into interaction producing large contact areas for mass transfer and subsequent chemical reactions. Due to their great importance for chemical, biochemical, pharmaceutical, and petrochemical industries, engineers have always pursued to increase their performance. For allowing a deeper insight into this complexity and providing strategies for process optimization, CFD (computational fluid dynamics) has become a standard numerical tool. However, accurate models are needed to correctly reproduce such dynamic systems. Latter can be explained by the complexity of the interrelations of the concerned phenomena, which take place during the operation of bubble columns, in addition to the several magnitudes in both, length as well as time scale involved in the physical phenomena.

The Euler/Lagrange approach is an attractive and descriptive method for numerically computing large-scale dispersed multi-phase flows, such as reactive bubbly flows, where however the dispersed phase elements are treated as point-masses. This approach was extended in the present study in order to account for finite size effects, specifically shape and trajectory oscillations as well as the resulting dynamic mass transfer, which is essential in reactive bubbly flows. The flow field was computed by the Large Eddy Simulation (LES) concept with full two-way coupling in momentum and the modelled sub-grid-scale (SGS) turbulence. In addition, turbulence enhancement and dissipation by the bubbles, known as bubble-induced turbulence (BIT) was also considered. Bubble motion was calculated including all relevant forces (i.e., drag, lift, wall force, added mass, gravity/buoyancy, fluid inertia and Basset force), which were extended considering the modelled instantaneous bubble eccentricity and also incorporating bubble transport by the SGS turbulence. Mass transfer was modelled accounting for the bubble dynamic behaviour (i.e., shape oscillations), and the influence of chemical reactions on species consumption within the liquid phase was modelled through the enhancement factor.

For validating the model extensions thorough numerical computations were conducted for several experimental test cases with air and  $N_2$  bubbles as well as  $CO_2$  absorption followed by chemical reactions considering single bubble rise and bubble swarms in laboratory bubble columns. Furthermore, simulations of  $Fe^{(edta)}$ -NO system, based on a system studied only for single bubbles, is presented here numerically for a bubble column.

It is demonstrated that for point-particle approaches the modelling of bubble dynamics in motion and mass transfer is essential for accurate predictions. Only with this extension it is possible to obtain correct bubble lateral dispersion (i.e., bubble fluctuating velocities) and a remarkably higher mass transfer provoked by the larger surface area of deformed bubbles. Thereby, bubble and liquid velocities, gas volume fraction as well as bubble size distribution variations along the bubble column in a reactive system can be predicted with a very good agreement compared to experimental measurements. Therefore, the transient evolution of species concentration in the column occurred much faster when considering the bubble dynamics model, which results in a better agreement with the measured quantities, such as pH variation.

During the course of this doctoral work, a CFD algorithm was developed for the numerical modelling of three-dimensional bubble columns reactors, which are operated at the homogeneous or heterogeneous flow regime. In this way, the algorithm is based on the open-source software package OpenFOAM® and follows a two-way coupled LES Euler-Lagrange (EL) approach, which can be made accessible to the scientific community.

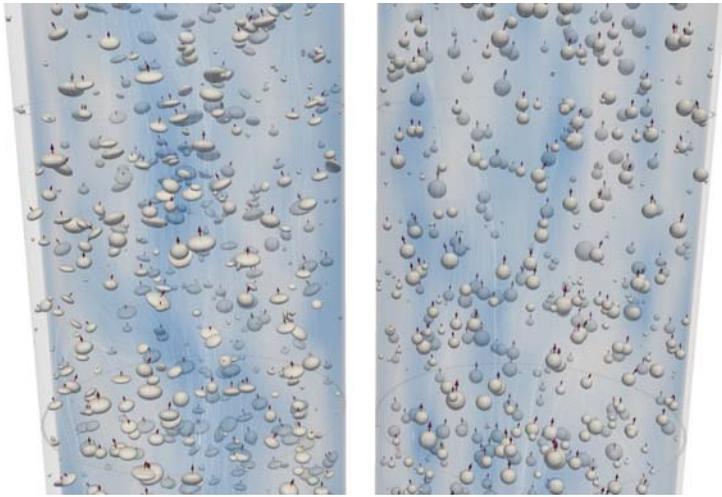


Figure A. Example of the presented bubble dynamic reactive modelling using point-particle approximation. **Left:** simulation including the real effect of bubble trajectory and eccentricity oscillation. **Right:** simulation with the standard point-particle approximation, which neglects the effect of bubble oscillatory motion.

# Table of contents

<b>1</b>	<b>General Introduction .....</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Mathematical Description.....</b>	<b>7</b>
2.1	Liquid phase hydrodynamics .....	7
2.2	Chemical species .....	9
2.2.1	Chemical reaction modelling .....	10
2.2.2	Chemical time Scale.....	11
2.3	Bubble motion .....	12
2.3.1	Drag force .....	12
2.3.2	Lift force .....	13
2.3.3	Added mass force.....	15
2.3.4	Wall force .....	15
2.3.5	Basset force.....	15
2.3.6	Gravity and pressure force .....	16
2.3.7	SGS turbulent bubble transport .....	16
2.3.8	Bubble-wall interaction model .....	17
2.3.9	Bubble oscillation Model.....	17
2.3.10	Interphase mass transfer.....	19
2.3.11	Species Fluctuation seen by bubbles .....	21
2.3.12	Lagrangian dynamic time-step .....	21
2.4	Computational tracking algorithm .....	22
<b>3</b>	<b>Hydrodynamics.....</b>	<b>25</b>
3.1	Case 1 - Circular bubble column - Sommerfeld and Brüder Case .....	25
3.2	Case 2 - Circular bubble column - HZDR Bubble column .....	32
3.2.1	Numerical simulation set-up.....	33
3.2.2	Comparison of simulation results .....	34
3.2.3	Comparison of bubble induced turbulence models .....	35
	Liquid velocity.....	37
	Turbulent quantities.....	38
	Bubble motion .....	40
3.2.4	Bubble dynamics model comparison .....	42
	Liquid velocity.....	42
	Bubble velocity .....	43
	Turbulent kinetic energy.....	44
3.3	Conclusion of the chapter .....	45
<b>4</b>	<b>Mass Transfer.....</b>	<b>47</b>
4.1	Case 1 - Single bubbles .....	47
4.2	Case 2 - Bubble swarms .....	52
4.3	Case 3 - High liquid viscosity effect .....	57
4.4	Conclusions of the chapter.....	68
<b>5</b>	<b>Chemical Reactions.....</b>	<b>71</b>

5.1	Chemical reaction system 1 - Chemisorption of CO <sub>2</sub> in alkaline solutions .....	72
5.1.1	Case 1 - Circular bubble column - Magdeburg University BCR .....	74
5.1.2	Case 2 - Circular bubble column - Magdeburg University BCR - High viscous case.. .....	84
5.1.3	Case 3 - Rectangular bubble column - Darmana et al. (2007) case.....	86
5.1.4	Case 4 - Circular bubble column - HZDR bubble column .....	101
5.1.4.1	Simulation set-up .....	101
5.1.4.2	Comparison of simulation results and experimental measurements .....	103
	Radial profiles of gas volume fraction .....	103
	Bubble size distribution.....	104
	Consumption rate of OH <sup>-</sup> .....	104
	pH-value evolution.....	105
5.1.4.3	Comparison of bubble induced turbulence models .....	107
	Liquid velocity.....	107
	Bubble motion .....	108
	Turbulent viscosity .....	110
	Turbulent kinetic energy.....	111
	Bubble size.....	112
5.1.4.4	Bubble dynamics model comparison.....	113
	Mean liquid velocity .....	113
	Bubble velocity.....	114
	Turbulent kinetic energy.....	115
	Bubble size.....	116
	OH <sup>-</sup> Consumption rate .....	117
5.2	Chemical reaction system 2 – Fe(edta)-NO system .....	118
	Circular bubble column - HZDR bubble column.....	120
5.3	Conclusions of the chapter.....	123
6	<i>Final Conclusions and Outlook</i> .....	125
6.1	Summary and conclusions .....	125
6.2	Outlook .....	127
6.3	Acknowledgements .....	127
	<i>Nomenclature</i> .....	128
	<i>References</i> .....	131