Nichtlineare Analyse und technische Nutzung zirkulierender Reaktionszonen

Von der Fakultät Verfahrenstechnik und Technische Kybernetik der Universität Stuttgart
zur Erlangung der Würde eines Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.) genehmigte Abhandlung

Vorgelegt von

Dipl.-Ing. Michael Mangold

aus Ravensburg

Hauptberichter:	Prof. Dr.-Ing. Dr.h.c.mult. E.D. Gilles
Mitberichter:	Prof. Dr.-Ing. habil. K. Sundmacher
Tag der mündlichen Prüfung:	3. November 2000

Institut für Systemdynamik und Regelungstechnik
der Universität Stuttgart
2000

Forschungsberichte aus dem Max-Planck-Institut
für Dynamik komplexer technischer Systeme

Band 4

Michael Mangold

Nichtlineare Analyse und technische Nutzung zirkulierender Reaktionszonen

D 93 (Diss. Universität Stuttgart)

Shaker Verlag
Aachen 2000

Die Deutsche Bibliothek - CIP-Einheitsaufnahme

Mangold, Michael:
Nichtlineare Analyse und technische Nutzung zirkulierender Reaktionszonen / Michael Mangold. Aachen : Shaker, 2000
(Forschungsberichte aus dem Max-Planck-Institut für Dynamik komplexer technischer Systeme ; Bd. 4)
Zugl.: Stuttgart, Univ., Diss., 2000
ISBN 3-8265-8249-7

Copyright Shaker Verlag 2000
Alle Rechte, auch das des auszugsweisen Nachdruckes, der auszugsweisen oder vollständigen Wiedergabe, der Speicherung in Datenverarbeitungsanlagen und der Übersetzung, vorbehalten.

Printed in Germany.

ISBN 3-8265-8249-7
ISSN 1439-4804

Shaker Verlag GmbH • Postfach 1290 • 52013 Aachen
Telefon: 02407 / 95 96 - 0 • Telefax: 02407 / 95 96 - 9
Internet: www.shaker.de • eMail: info@shaker.de

Meinen Eltern

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Systemdynamik und Regelungstechnik der Universität Stuttgart sowie am Max-Planck-Institut für Dynamik komplexer technischer Systeme in Magdeburg.

Herrn Dr.-Ing. Dr.h.c.mult. E.D. Gilles danke ich herzlich für die Betreuung und engagierte Förderung dieser Arbeit sowie für die vielen wertvollen Hinweise und Ideen. Ebenso möchte ich Herrn Prof. Dr.-Ing. habil. K. Sundmacher für die Übernahme und die rasche Anfertigung des Mitberichts danken. Herrn Prof. Dr.-Ing. Dr.h.c. Zeitz danke ich für die Unterstützung und Förderung bereits in studentischer Zeit.

Allen Kolleginnen und Kollegen am Stuttgarter und am Magdeburger Institut danke ich für das sehr gute Arbeitsklima und die stete Diskussions- und Hilfsbereitschaft. Insbesondere bedanke ich mich bei Herrn Dr.-Ing. A. Kienle für seine zahlreichen Anregungen.

Magdeburg, November 2000 Michael Mangold

Inhaltsverzeichnis

1 Einführung **1**

2 Wellenansätze zur Beschreibung wandernder Reaktionszonen **6**

2.1 Eingeschwungene Wellenlösungen in unendlich ausgedehnten Festbetten 7

2.1.1 Existenz und Eindeutigkeit asymptotischer formstabiler Wellenlösungen 7

2.1.2 Übertragbarkeit des unendlich ausgedehnten Systems auf Systeme endlicher Länge 11

2.1.3 Berechnung eingeschwungener Wellenlösungen 17

2.2 Wellenlösungen in Festbetten endlicher Länge 23

2.2.1 Berechnung nicht eingeschwungener Wellenlösungen 23

2.2.2 Wellenmodell mit quasistationärer Reaktionszone 26

2.2.3 Wellenmodell mit dynamischer Berechnung der Maximaltemperatur 29

2.3 Zusammenfassung 33

3 Nichtlineare Analyse einer modularen Modellfamilie für den Zirkulationsreaktor **34**

3.1 Modell mit Wandenergiebilanz und dynamischer Materialbilanz (MODELL I) 35

3.2 Modell mit Wandenergiebilanz und quasistationärer Materialbilanz (MODELL II) 44

3.3 Modell mit gemeinsamer Energiebilanz für Schüttung und Wand (MODELL III) 47

3.4 Quasistationäre Modellierung des Wärmeübergangs im Wärmetauscher (MODELL IV) 50

3.5 Modell mit Vernachlässigung der Wärmeleitung (MODELL V) 55

3.6 Modellierung des Zirkulationsreaktors unter Verwendung von Wellenfrontansätzen (MODELL VI) 59

3.7 Zusammenfassung 65

4 Gekoppelte Reaktionszonen im Zirkulationsreaktor 66

4.1 Ergebnisse experimenteller Untersuchungen zur Totaloxidation von Ethen/Chlormethan-Gemischen 67

4.2 Analyse thermisch gekoppelter Reaktionen 70

4.3 Analyse thermisch und stofflich gekoppelter Reaktionen 79

4.4 Zusammenfassung 81

5 Wandernde Reaktionszonen im Doppelrohrzirkulationsreaktor 83

5.1 Quasistationäre Modellierung der Wärmetauscherabschnitte (Doppelrohrzirkulationsreaktor-Modell I) 87

5.1.1 Verhalten bei symmetrischen Betriebsbedingungen 89

5.1.2 Einfluß nichtsymmetrischer Betriebsbedingungen 95

5.2 Dynamische Modellierung des Wärmeübergangs in den Wärmetauscherabschnitten (Doppelrohrzirkulationsreaktor-Modell II) 96

5.3 Zusammenfassung 103

6 Zusammenfassung 105

A Numerische Methoden zur Bifurkations- und Stabilitätsanalyse periodischer Lösungen 107

A.1 Berechnung von Hopfbifurkationspunkten 111

A.1.1 Einige Eigenschaften von Hopfbifurkationspunkten 111

A.1.2 Numerische Berechnung von Hopfbifurkationen bei einem freien Modellparameter 111

A.1.3 Numerische Berechnung von Hopfbifurkationen bei zwei freien Modellparametern 112

A.2 Berechnung stabiler und instabiler periodischer Lösungen 114

A.2.1 Stabilität periodischer Lösungen 114

A.2.2 Numerische Berechnung und Fortsetzung periodischer Lösungen 116

B Modellbausteine der verwendeten Modelle 123

B.1 Modellbausteine örtlich verteilter Phasen 123

B.1.1 Pseudohomogene Phase mit dynamischer Materialbilanz 123

B.1.2 Pseudohomogene Phase mit quasistationärer Materialbilanz . . . 124

B.1.3 Feste Phase 125

B.2 Verknüpfungselemente auf der Speicherebene 126

B.2.1 Konvektive Verknüpfungselemente 126

B.2.2 Dispersive Verknüpfungselemente 127

B.2.3 Reaktives Verknüpfungselement ohne Materialbilanz 128

B.2.4 Reaktives Verknüpfungselement mit quasistationärer Materialbilanz 128

B.3 Verknüpfungselemente auf der Phasenebene 129

B.3.1 Verknüpfungselement für Gleichstromwärmetausch in radialer Richtung 129

B.3.2 Verknüpfungselement für abschnittsweisen Gleich- oder Gegenstromwärmetausch in radialer Richtung (Doppelrohrzirkulationsreaktor-Modell II) 130

B.3.3 Verknüpfungselement für quasistationären Wärmetausch (Zirkulationsreaktor-Modell IV) 131

B.3.4 Verknüpfungselement für die quasistationäre Wärmerückführung im Doppelrohrzirkulationsreaktor-Modell I 132

B.3.5 Verknüpfungselement für den Reaktorzulauf (Zirkulations-reaktor-Modell I, II) 133

B.3.6 Verknüpfungselement für den Reaktorzulauf (Zirkulations-reaktor-Modell III) 134

B.3.7 Verknüpfungselement für den Reaktorablauf (Zirkulations-reaktor-Modell I, II) 135

B.3.8 Verknüpfungselement für den Reaktorablauf (Zirkulations-reaktor-Modell III) 136

B.3.9 Verknüpfungselement zur Verkopplung der pseudohomogenen Phasen in axialer Richtung 136

B.4 Geometrische Hilfsgrößen für den Zirkulationsreaktor 137

B.5 Quasistationäre Berechnungsgleichungen für die Wärmeübertragung . . . 138

B.6 Zahlenwerte der Modellparameter 140

Liste der verwendeten Formelzeichen

Lateinische Buchstaben

a	längenbezogene Wärmeaustauschfläche	m
A	Querschnittsfläche	m^2
Ar	Arrheniuszahl	1
c	Konzentration	mol/m^3
c_P	spezifische Wärmekapazität	J/(kg K)
D	Abklingfaktor	1
D_{ax}	axialer Dispersionskoeffizient	m^2/s
Da	Damköhlerzahl	1
E	Aktivierungsenergie	J/mol
G_R, G_T	Übertragungsfunktionen im Laplacebereich	
g_R	Übertragungsfunktion im Zeitbereich	
h	spezifische Enthalpie	J/kg
$(-\Delta h)_R$	Reaktionsenthalpie	J/mol
I	Zahl der Komponenten	1
$j[Q]$	längenbezogener Wärmestrom	J/(m s)
$J[Q]$	Wärmestrom	J/s
$J[n]$	Stoffstrom	mol/s
$J[V]$	Volumenstrom	m^3/s
k_{ads}	Adsorptionskonstante	1
k_0	Stoßfaktor	$mol/(m^3 s)$
K, K_1, K_2	dimensionslose Temperaturänderung	1
$K(\Theta), K^*(\Theta)$	dimensionslose Geschwindigkeitskonstante	1
l	Längenmaß	m

l_S	Länge von Innenrohr und Reaktorschlaufe im Zirkulationsreaktor	m
l_{WT}	Länge des Außenrohrs im Zirkulationsreaktor	m
M	Molmasse	kg/mol
p	dimensionsloser Temperaturgradient	1
Pe	Peclet-Zahl	1
$\dot{q}$	Volumenstrom	m^3/s
r	Reaktionsgeschwindigkeit	$\mathrm{mol}/(\mathrm{m}^3\mathrm{s})$
r', r''	dimensionslose Reaktionsgeschwindigkeit	1
r_{aa}	Außenradius des Zirkulationsreaktor-Außenrohres	m
r_{ai}	Innenradius des Zirkulationsreaktor-Außenrohres	m
r_{ia}	Außenradius des Zirkulationsreaktor-Innenrohres	m
r_{ii}	Innenradius des Zirkulationsreaktor-Innenrohres	m
$I\!R$	ideale Gaskonstante	J/(mol K)
T	Temperatur	K
ΔT_{ad}	adiabate Temperaturerhöhung	K
t, t'	Zeit	s
t^*	Zeitmaß	s
v	Strömungsgeschwindigkeit	m/s
v_T	thermische Ausbreitungsgeschwindigkeit	m/s
w	Wellenwanderungsgeschwindigkeit	m/s
w'	normierte Wellenwanderungsgeschwinidgkeit	1
x	Eduktmolanteil	1
z, z'	Ortskoordinate	m
z_w	Position der Wellenfront	m

Griechische Buchstaben

α_W	Wärmeübergangskoeffizient	$\mathrm{W}/(\mathrm{m}^2\mathrm{K})$
$\overline{\alpha}_W$	Wärmedurchgangskoeffizient	$\mathrm{W}/(\mathrm{m}^2\mathrm{K})$
ϵ	Leerraumanteil	1
ζ	dimensionslose Ortskoordinate	1
Θ	dimensionslose Temperatur	1
Θ_0	dimensionslose Bezugstemperatur	1
λ	Wärmeleitfähigkeit	W/(m K)

ρ	Dichte	$\mathrm{kg/m^3}$
σ	Quellterm auf der Speicherebene	
ξ	normierter Molanteil	1
τ	dimensionslose Zeit	1

Tiefgestellte Indizes

0	linker Rand
A	Zirkulationsreaktor-Außenrohr
AWA	Austausch zwischen äußerer Schüttung und Außenwand (Zirkulationsreaktor)
AWI	Austausch zwischen äußerer Schüttung und Innenwand (Zirkulationsreaktor)
D	Dispersion/Wärmeleitung
G	Gas
I	Zirkulationsreaktor-Innenrohr
IA	Austausch zwischen innerer und äußerer Schüttung (Zirkulationsreaktor)
IWI	Austausch zwischen innerer Schüttung und Innenwand (Zirkulationsreaktor)
K	Konvektion
l	rechter Rand
R	Reaktion
R, ab	Ablauf Reaktionsrohr
R, zu	Zulauf Reaktionsrohr
S	Schüttung
W	Wand
WA	Außenrohrwand des Zirkulationsreaktors
WI	Innenrohrwand des Zirkulationsreaktors
zu	Umgebung/Zulauf

Hochgestellte Indizes

$R0/Rl$	linke / rechte Randbedingung