

Mathematische Beschreibung des Simulationsmodells HAM (Hydrodynamic Adsorption Model)

H. Schachner, M. Rassinger, W. Loiskandl, E. Schäfer und A. Weingartner

Mathematical description of the simulation model HAM (Hydrodynamic Adsorption Model)

1. Einleitung

Die Entwicklung einer neuen Betriebsweise einer Aktivkohlefilterkolonne zur Entfernung von organischen Spurenverunreinigungen aus einer wässrigen Lösung erzeugte den Bedarf nach einem Simulationsmodell zur Ergänzung der Technikumsversuche und als eigenständige Planungshilfe. Zweck des patentierten KSWA-Verfahren (Kontinuierlich, Sektorweise und mit variabler Geschwindigkeit aufwärtsdurchströmter Adsorber) ist die Unterstützung der selektiven Adsorption von organischen Mikroverunreinigungen, (Pestizide, CKW. etc.) mit relativ guten Diffusions- und Adsorptionseigenschaften aus einer wässrigen Lösung an Kornaktivkohle. Dabei können die besseren Diffusions- und Adsorptionseigenschaften der Mikroverunreinigungen gegenüber den natürlich vorhandenen organischen Substanzen (BOM, Background Organic Matter = Hintergrundmatrix), welche im Gegensatz zu ersteren aus größeren Molekülen bestehen, ausgenutzt werden. Durch

die vorgeschlagene Bau- und Betriebsweise von Aktivkohleadsorbern soll eine verbesserte selektive Verwendung der Adsorptionskapazität der Aktivkohle für Mikroverunreinigungen dadurch erzielt werden, daß die BOM zum größtmöglichen Teil durch den Filter hindurchgeht und möglichst wenig Adsorberplätze belegt. Die adsorbierte BOM ist häufig nur teilweise wieder desorbierbar (Fouling-Effekt), was teilweise als Versperrung der Kohleporen durch die großen organischen Moleküle interpretiert wird.

2. Das Simulationsmodell HAM

Das Modell HAM (Hydrodynamic Adsorption Modell) stellt ein Werkzeug zur Simulation der Adsorptionsvorgänge in einem Filter mit porösem Adsorbens dar. Es dient zur Simulation zweier Arten von Filtern mit sektorweiser Zuschaltung. Ersterer wird als linearer Filter bezeichnet, dabei handelt es sich einfach um einen zylindrischen Filter

Summary

With the introduction of a new operation procedure for an activated carbon filter the demand of a simulation tool to support the laboratory tests has risen. The use of the simulation tool should be extended for design purposes in future. The purpose of the KSWA-procedure (continuous, selective removal, variable flow velocity, activated carbon adsorption) is to support the selective removal of micro pollutants, hence reducing the adsorption of the harmless natural organic matter. A satisfying optimisation of the method is achieved with the help of a mathematical model (HAM, hydrodynamic adsorption model). The mathematical model describes the time and space dependent concentration changes of dissolved chemicals in a filter column, the concentration at the adsorber surface leading to the loading of the adsorber and the breakthrough curves. The mechanisms considered are convection in the liquid phase, the transition of the dissolved chemicals from the liquid phase to the adsorbed phase through the film covering the carbon particle, the actual adsorption utilising the ideal adsorbed solution theory (IAST) and the transport of the adsorbent into the particle by surface diffusion. HAM is a physically based model, chemical reactions of substances due to small concentrations are neglected.

Key words: Activated carbon adsorption, water treatment, adsorption simulation, micro pollutants, selective adsorption.

Zusammenfassung

Im Simulationsmodell HAM werden erstmals die lokal unterschiedlichen Strömungsverhältnisse, wie sie im KSVA-Filter auftreten, bei der Simulation in einem Aktivkohlefilter berücksichtigt. Die Stoffumsetzung wird durch ein mehrparametrisches Konzept beschrieben, das die verschiedenen Transportmechanismen berücksichtigt. Besonderes Gewicht wurde auf die mathematische Beschreibung der physikalischen Vorgänge gelegt. Für die numerische Umsetzung konnten Wege gefunden werden, die einen effektiven Rechengang ermöglichen. Das Modellkonzept erlaubt den Vergleich unterschiedlicher Beschreibungen des Adsorptionsvorganges durch die Verwendung verschiedener Isothermen. Die damit erzielbaren Ergebnisse sind übertragbar auf ähnliche Problemstellungen, wie z. B. bei Stofftransportvorgängen im Boden. Außerdem wird mit HAM ein Werkzeug zur Verfügung gestellt, das als Planungshilfe die Dimensionierung von Filtern durch die genauere Berechnung der Durchbruchskurve, die die gebräuchlichen dazu verwendeten Näherungen ersetzt, wesentlich unterstützt.

Da, zumindest kurzfristig, nicht anzunehmen ist, daß keine Verunreinigungen aus Wasser zu entfernen sind, gewinnt eine Optimierung des Ausnutzungsgrades der Aktivkohle und damit eine Kostenreduktion eine steigende Bedeutung.

Schlagerworte: Aktivkohleadsorption, Wasseraufbereitung, Adsorptionssimulation, Mikroverunreinigungen, selektive Adsorption.

mit Zufluß an der Unter- und Abfluß an der Oberseite, wobei die einzelnen Lagen von Aktivkohle aufeinanderfolgend durchströmt werden. Verfahrenstechnisch ist dazu eine Betriebsunterbrechung notwendig, denn nach dem Erreichen der zulässigen Ausflußkonzentration muß eine neue Schicht eingebracht werden. Der zweite Filtertyp ist der sogenannte KSVA-Filter (WEINGARTNER, 1993; 1994). Hierbei handelt es sich ebenfalls um einen zylindrischen Filter, jedoch wird hier über Bohrungen am Umfang, die in Sammelringe münden, das gereinigte Wasser abgezogen. Dadurch ist keine Betriebsunterbrechung mehr nötig. Im Modell werden, um die Berechnungen zu erleichtern, diese Ausflußbohrungen durch eine einzelne, rundherum gehende Öffnung angenähert.

Eine vollständige Beschreibung der Vorgänge in einem Filter erfolgt durch die Angabe

- der zeitlichen und örtlichen Veränderung der Zuflußkonzentrationen aller im durchströmenden Lösungsmittel (i. a. Wasser) enthaltenen Stoffe,
- der daraus zu berechnenden orts- und zeitabhängigen Konzentrationen im Filter,
- der sich einstellenden ortsabhängigen Konzentration in der adsorbierten Phase und der sich daraus ergebenden Beladung des Adsorbens mit den einzelnen Substanzen und
- der Konzentrationen am Filterausfluß (Durchbruchskurven).

HAM beschreibt die Änderung der lokalen Konzentrationen durch die folgenden Mechanismen:

1. Konvektion: bezeichnet den Stofftransport durch die Strömung des Wassers.
2. Stoffübergang an der Adsorbensoberfläche: stellt den Transport aus der gelösten Phase an die Oberfläche des Adsorbens dar und wird mittels eines kinetischen Parameters beschrieben.
3. Adsorption an der Oberfläche des Adsorbens: beruht auf dem thermodynamischen Gleichgewicht der gelösten mit der adsorbierten Stoffmenge.
4. Der Weitertransport der adsorbierten Stoffe von der Adsorbensoberfläche ins Innere des Adsorbens wird durch Oberflächendiffusion beschrieben, die durch einen Diffusionskoeffizienten charakterisiert wird.

HAM ist ein rein physikalisches Modell. Chemische Reaktionen aller beteiligten Stoffe untereinander und mit der Adsorbensoberfläche werden aufgrund der geringen Konzentrationen nicht berücksichtigt.

2.1 Die Konvektion

Die lokale Massenerhaltung aller gelösten Stoffe (*i*) im Filter führt auf folgende partielle hyperbolische Differentialgleichung

$$\varepsilon \frac{\partial c_{(i)}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} + \nabla \cdot [\mathbf{v}(\mathbf{r})c_{(i)}(\mathbf{r}, t)] + \rho_p \frac{\partial \bar{q}_{(i)}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = 0 \quad (1)$$

für die Konzentration c der Lösungskomponente (i) im Wasser und der mittleren Beladung \bar{q} am Ort \mathbf{r} zur Zeit t , die die Form einer Kontinuitätsgleichung hat und als Konvektionsgleichung bezeichnet wird. Der erste Term der Konvektionsgleichung bezeichnet die Konzentrationsänderung im Wasser zwischen den Adsorbenskörnern. Diese muß mit der Konzentrationsänderung durch Zu- und Abfluß, ausgedrückt durch den zweiten und dritten Term, und der Adsorption, die mit einer zeitlichen Änderung der mittleren Beladung einhergeht, im Gleichgewicht stehen. Die obige Gleichung beschreibt den Filter als ein Kontinuum und trägt der porösen Struktur eines Adsorbens nur durch die Größen ε und ρ_p Rechnung.

Zur Lösung der Gleichung (1) benötigt man Anfangs- und Randbedingungen für Konzentration und Beladung und das Vektorfeld der Filtergeschwindigkeit $\mathbf{v}(\mathbf{r})$, das die Strömung des Wassers beschreibt. Für den linearen Filter ist dieses gleichförmig und gleich der vorgegebenen Filtergeschwindigkeit. Im KSWA-Filter muß das Strömungsfeld erst berechnet werden. Da die Strömung durch ein poröses Medium meist laminar erfolgt und die hier betrachteten Strömungsgeschwindigkeiten so klein sind (ca. 10 m/h), daß Turbulenzen vernachlässigbar sind, kann das Problem mit Hilfe von Potentialströmungen beschrieben werden. Dafür ist nur die Lösung der Laplacegleichung

$$\Delta\varphi(\mathbf{r}) = 0 \quad (2)$$

erforderlich. Die Randbedingungen für φ sind durch den Druck (Potentiallinien) am Zu- und Abfluß oder durch Randstromlinien am Filtermantel gegeben. Die Grenze zwischen Wasser und Luft entspricht einer freien Oberfläche und ist als solche in die Lösung von (2) miteinzubeziehen, wobei für den stationären Zustand die Bedingungen zu erfüllen sind, daß erstens keine Strömung quer zur freien Oberfläche erfolgt und zweitens kein Widerspruch zur Lageenergie besteht. Die Geschwindigkeit ergibt sich dann aus der Lösung für φ durch Gradientenbildung

$$\mathbf{v}(\mathbf{r}) = k_F \nabla \varphi(\mathbf{r}) \quad (3)$$

Da sowohl der KSWA- als auch der lineare Filter rotations-symmetrisch sind, ist man nur auf die Lösung eines zweidimensionalen Problems angewiesen. Aufgrund dieser Geometrie empfiehlt sich die Verwendung von Zylinderkoordinaten $\mathbf{r} \rightarrow (r, z)$. Die Konvektionsgleichung lautet umgeschrieben:

$$\varepsilon \frac{\partial c_{(i)}(r, z, t)}{\partial t} + v_r(r, z) \frac{\partial c_{(i)}(r, z, t)}{\partial r} + v_z(r, z) \frac{\partial c_{(i)}(r, z, t)}{\partial z} + \rho_p \frac{\partial \bar{q}_{(i)}(r, z, t)}{\partial t} = 0 \quad (4)$$

wobei die Tatsache berücksichtigt wurde, daß die Kontinuitätsbedingung

$$\nabla \cdot \mathbf{v}(\mathbf{r}) = 0 \quad (5)$$

welche in der Laplace-Gleichung (2) beinhaltet ist, erfüllt sein muß. Als Anfangsbedingung ist die Konzentration im Filter zur Zeit $t = 0$ vorgegeben.

$$c_{(i)}(r, z, t = 0) = c_{a(i)}(r, z) \quad (6)$$

Die Randbedingung im Filterzufluß (bei $z = 0$)

$$c_{(i)}(r, z = 0, t) = c_{0(i)}(t) \quad (7)$$

ist gleichbedeutend mit der Vorgabe einer Konzentration am Filtereingang. Integriert man die Konvektionsgleichung über ein Volumen V , ergibt dies mit Hilfe des Gauß'schen Integralsatzes

$$\varepsilon \frac{\partial}{\partial t} \int dV c_{(i)}(\mathbf{r}, t) + \oint d\mathbf{f} \cdot [\mathbf{v}(\mathbf{r}) c_{(i)}(\mathbf{r}, t)] + \rho_p \frac{\partial}{\partial t} \int dV \bar{q}_{(i)}(\mathbf{r}, t) = 0 \quad (8)$$

Wird diese Gleichung noch über die Zeit integriert, so wird die Bedeutung der einzelnen Terme offensichtlich:

$$\varepsilon \int dV c_{(i)}(\mathbf{r}, t) + \int_{t_0}^t dt' \oint d\mathbf{f} \cdot [\mathbf{v}(\mathbf{r}) c_{(i)}(\mathbf{r}, t')] + \rho_p \int dV \bar{q}_{(i)}(\mathbf{r}, t) = 0 \quad (9)$$

Der erste Term beschreibt die im Wasservolumen εV gelöste Stoffmenge, während der letzte Ausdruck die mittlere adsorbierte Stoffmenge der Kohle in diesem Bereich angibt. Das Oberflächenintegral in der Mitte ist gleich der im Zeitraum t_0 bis t aus dem Volumen abgeführten Substanzmenge. Die Summe aller drei muß aufgrund der Massenerhaltung gleich Null sein. Diese Gleichung stellt eine Möglich-

keit dar, die Konsistenz der numerischen Ergebnisse zu überprüfen. Durch Gleichsetzen von V mit dem Filtervolumen wird das Oberflächenintegral gleich der Differenz zwischen Zu- und Abfluß zum und vom Filter, d. h., gleich der adsorbierten plus der im Wasser gelösten Stoffmenge. Aus der Abweichung der linken Gleichungsseite von 0 folgt ein Hinweis auf die Qualität der Berechnungen.

2.2 Stoffübergang und Oberflächendiffusion

Um die zeitliche Veränderung der mittleren Beladung an jedem Punkt r im Filter zu beschreiben, wird das Modell der Oberflächen- und Filmdiffusion eingesetzt, wobei ein repräsentatives Adsorbens Korn verwendet wird.

Da die tatsächliche Geometrie der Adsorbenskörner nicht näher bekannt ist, nimmt man diese Körner als kugelförmig an. Um der tatsächlichen Gestalt der Kornoberfläche Rechnung zu tragen, wählt man den Durchmesser d_p derart, daß die spezifische Oberfläche der Kugel A_S , d. h. das Verhältnis von äußerer Oberfläche zu Volumen, gleich der spezifischen Stoffaustauschfläche des realen Adsorbens ist. Damit ist diejenige Fläche des Adsorbens, die pro Volumeneinheit zum Stoffübergang zur Verfügung steht, festgelegt. Dazu sind neben der äußeren Oberfläche des Kornes auch die Makroporen zu zählen, in welche die zu adsorbierenden Stoffe noch in gelöster Phase eindringen können.

Für eine Kugel mit der Porosität ϵ_p und dem Durchmesser d_p ist diese Fläche durch

$$A_S = \frac{6(1 - \epsilon_p)}{d_p} \quad (10)$$

gegeben. Damit kann der repräsentative Kugeldurchmesser d_p bestimmt werden. Die über dieses Modellkorn gemittelte zeitliche Veränderung der Beladung liefert dann den dritten Term in der Konvektionsgleichung (1).

Die zeitliche Änderung der Beladung in diesem Korn wird im wesentlichen durch zwei Parameter beschrieben. Der erste, β_L , beschreibt den Stofftransport aus der Lösung zum Adsorbens hin aufgrund eines linearen Konzentrationsgefälles in einer dünnen Schicht der Lösung an der Kornoberfläche [sog. Filmdiffusion (SONTHEIMER et al., 1985, 254ff)].

Bezeichnet man die Konzentration in der freien Lösung mit c und die in der Lösung an der Oberfläche des Kornes mit c_S , so ist der Betrag des Stoffstromes im Film pro Flächeneinheit durch

$$j_L(\mathbf{r}, t) = \beta_L(c(\mathbf{r}, t) - c_S(\mathbf{r}, t)) \quad (11)$$

gegeben (siehe auch [CRANK, 1979, 35f] 'surface evaporation condition').

Der Stofftransport im kugelförmigen Adsorbens wird durch das Modell der Oberflächendiffusion mit der Oberflächendiffusionskonstante D_S beschrieben. Darin werden die Transportvorgänge ins Korninnere zusammengefaßt, bei denen der Transportwiderstand wesentlich größer ist als in der freien Lösung. Dazu gehört das Weiterwandern der adsorbierten Stoffe ins Innere entlang der Oberfläche sowie das Eindringen in die ins Innere des Kornes führenden Mikroporen, deren Größe mit den Verunreinigungsmolekülen vergleichbar sind. Da die Moleküle des zu transportierenden Stoffes weder vernichtet noch erzeugt werden können, erfüllen sie eine Kontinuitätsgleichung der Form.

$$\rho_p \frac{\partial q(\mathbf{x}, t)}{\partial t} = -\nabla_x \cdot \mathbf{j}(\mathbf{x}, t) \quad (12)$$

wobei der Index x bedeutet, daß der Gradient bezüglich der Ortskoordinate in der Kugel zu bilden ist. Diese Gleichung stellt einen Zusammenhang zwischen dem Stoffstrom und der zeitlichen Änderung der Stoffmenge an einem Ort her. Laut dem 1. Fick'schen Gesetz wird dieser Strom aber als proportional dem Konzentrationsgradienten angenommen.

$$\mathbf{j}(\mathbf{x}, t) = -D_S \rho_p \nabla_x q(\mathbf{x}, t) \quad (13)$$

Um die Änderung der mittleren Beladung des Kornes zu berechnen, wird (12) über das Kugelvolumen integriert.

$$\rho_p \frac{\partial \bar{q}(t)}{\partial t} = \frac{\rho_p}{V_{Korn}} \frac{\partial}{\partial t} \int dV q(\mathbf{x}, t) = -\frac{1}{V_{Korn}} \int dV \nabla \cdot \mathbf{j}(\mathbf{x}, t) = -\frac{1}{V_{Korn}} \oint d\mathbf{f} \cdot \mathbf{j}(\mathbf{x}, t) \quad (14)$$

Der letzte Schritt erfolgt wieder unter Verwendung des Gauß'schen Integralsatzes. Da es sich bei dem Korn um eine homogene Kugel handelt, gilt für das Oberflächenintegral auf der rechten Seite,

$$-\frac{1}{V_{Korn}} \oint d\mathbf{f} \cdot \mathbf{j}(\mathbf{x}, t) = -\frac{O_{Korn}}{V_{Korn}} j_S = -A_S j_S \quad (15)$$

wobei j_S der Betrag des Stoffstroms an der Kornoberfläche ist. Dieser muß aufgrund der Massenerhaltung gleich dem Strom j_L sein. Kombiniert man also (11) mit (15) so folgt aus (14) für die Änderung der Beladung

$$\rho_p \frac{\partial \bar{q}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = A_S \beta_L (c - c_S) \quad (16)$$

Setzt man dies in die Konvektionsgleichung ein, so erhält man

$$\varepsilon \frac{\partial c_{(i)}(\mathbf{r}, z, t)}{\partial t} + v_r(\mathbf{r}, z) \frac{\partial c_{(i)}(\mathbf{r}, z, t)}{\partial r} + v_z(\mathbf{r}, z) \frac{\partial c_{(i)}(\mathbf{r}, z, t)}{\partial z} + A_S \beta_{L(i)}(\mathbf{r}, z, t) [c_{(i)}(\mathbf{r}, z, t) - c_{S(i)}(\mathbf{r}, z, t)] = 0 \quad (17)$$

Da der Stoffübergangskoeffizient $\beta_{L(i)}$ von der lokalen Fließgeschwindigkeit abhängt und diese im nichtlinearen Filter ortsabhängig ist, wird $\beta_{L(i)}$ auch ortsabhängig.

Kombiniert ergeben die Gleichungen (12) und (13) eine Differentialgleichung für die zu transportierende Stoffmenge, die sogenannte Grundgleichung der Oberflächen-diffusion.

$$\frac{\partial}{\partial t} q(\mathbf{x}, t) = D_S \nabla_x \cdot (\nabla_x q(\mathbf{x}, t)) = D_S \Delta_x q(\mathbf{x}, t) \quad (18)$$

Im Fall eines kugelförmigen, homogenen Teilchens vereinfacht sich diese Gleichung zu

$$\frac{\partial}{\partial t} q(\mathbf{x}, t) = D_S \left(\frac{\partial^2 q(\mathbf{x}, t)}{\partial x^2} + \frac{2}{x} \frac{\partial q(\mathbf{x}, t)}{\partial x} \right) \quad (19)$$

mit $x = |\mathbf{x}|$. Die Gleichung (19) benötigt zu ihrer Lösung die Vorgabe von Randbedingungen. Diese Randbedingungen werden bei $x = 0$ im Kornmittelpunkt und bei $x = d_p/2$ am Kornrand vorgegeben. Die erste Randbedingung fordert

$$1.RB \quad \left. \frac{\partial q(\mathbf{x}, t)}{\partial x} \right|_{x=0} = 0 \quad (20)$$

Daß die Ableitung der Beladung $q(\mathbf{x}, t)$ nach x gleich Null ist, folgt zwingend aus der Massenerhaltung (12). Ein Wert ungleich Null würde ja laut (13) einen Stofftransport bewirken, der von allen Seiten her durch den Kugelmittelpunkt auftritt, was nur möglich wäre, wenn die transportierte Masse im Ursprung verschwände. Als zweite Randbedingung ist die Beladung q_S an der Kugeloberfläche durch das Adsorptionsgleichgewicht vorgegeben, mit

$$2.RB \quad q(\mathbf{x}, t) \Big|_{x=d_p/2} = q_S(t) \quad (21)$$

2.3 Die Adsorption an der Adsorbensoberfläche

Bei der Adsorption an der Oberfläche des Adsorbens wird angenommen, daß sich unmittelbar, d. h. in Zeiträumen, die klein sind im Vergleich zu der für den Stofftransport charakteristischen Zeit, ein Gleichgewicht zwischen der Konzentration der adsorbierten (q_S) und der gelösten (c_S) Phase einstellt. Dieses ist von allen vorhandenen, adsorbierbaren Substanzen abhängig.

$$q_{S(i)} = q_{S(i)}(c_{S(i)}, c_{S(1)}, c_{S(2)}, \dots, c_{S(i-1)}, c_{S(i+1)}, \dots, c_{S(N)}) \quad (22)$$

Das Gleichgewicht im Einzelstoffsystem ist experimentell einfach zu bestimmen und wird durch eine sogenannte Adsorptionsisotherme

$$q_{S(i)} = q_{S(i)}(c_{S(i)}) \quad (23)$$

beschrieben. Für tiefergehende Beschreibungen der physikalischen Vorgänge bei der Adsorption siehe z. B. HILL (1949). Um von den Isothermen der Einzelstoffadsorptionen zu einer geeigneten Beschreibung des Vielstoffgemisches zu gelangen, muß eine geeignete Theorie der konkurrierenden Adsorption herangezogen werden.

Das Adsorptionsgleichgewicht einer Komponente des Gemisches kann sich nicht unabhängig von der Konzentration der anderen Komponenten einstellen. Eine Theorie, die die konkurrierende Adsorption der verschiedenen Komponenten beschreiben kann, jedoch nur die Daten der Isothermen der Einzelstoffadsorption benötigt. Eine vielfach verwendete Methode ist die sogenannte *Ideal Adsorbed Solution Theory*, kurz IAST (RADKE und PRAUSNITZ, 1972). Die zentrale Größe der IAST ist der sogenannte Spreitungsdruk π , der durch

$$\pi_i = \frac{RT}{A} \Pi_i = \frac{RT}{A} \int_0^{\hat{c}_i} dc_i \frac{q_i(c_i)}{c_i} \quad (24)$$

gegeben ist. Da die Einzelstoffisothermen im allgemeinen 2-parametrische Ausdrücke von einfacher funktionaler Form sind, läßt sich der Ausdruck für π vielfach analytisch berechnen. Verwendet man z. B. eine Freundlich-Isotherme

$$q_i(c_i) = K_i c_i^{n_i} \quad (25)$$

so erhält man

$$\Pi_i = \int_0^{\hat{c}_i} dc_i \frac{q_i(c_i)}{c_i} = \int_0^{\hat{q}_i} dq \frac{d \ln c_i(q_i)}{d \ln q_i} = \frac{\hat{q}_i}{n_i} \quad (26)$$

wobei $\hat{q}_i = q_i(\hat{c}_i)$ verwendet wurde.

Der IAST-Algorithmus zur Berechnung eines Adsorptionsgleichgewichtes für mehrere gelöste Stoffe (i) besteht nun in der Forderung, daß der Spreitungsdruck für jeden dieser Stoffe gleich groß ist, d. h.

$$\pi = \pi_1 = \pi_2 = \dots = \pi_N \rightarrow \Pi = \Pi_1 = \Pi_2 = \dots = \Pi_N \quad (27)$$

und dem folgenden Formelsatz

$$\frac{c_{S(i)}}{\hat{c}_i} = \frac{q_{S(i)}}{q_T} \quad q_T = \sum_{i=1}^N q_{S(i)} \quad \sum_{i=1}^N \frac{q_{S(i)}}{\hat{q}_i} = 1 \quad (28)$$

Mit den IAST-Gleichungen (26), (27) und (28) ist man nun imstande, bei bekannter Form der Adsorptionsisothermen (25) für den Einzelstoff aus den gegebenen Beladungen die Lösungskonzentrationen bzw. bei gegebenen Lösungskonzentrationen die Beladungen zu berechnen.

3. Numerische Lösung

Die Beschreibung eines Filterprozesses erfolgt durch die simultane Lösung mehrerer Gleichungen, wobei alle diese Gleichungen auf verschiedene Arten zusammenhängen:

- Zur Lösung der Konvektionsgleichung ist die zeitliche Ableitung der mittleren Beladung \bar{q} , da diese als Senke bzw. Quellterm eingeht, notwendig.
- Daraus folgen die Konzentrationen der gelösten Stoffe im Filter.
- Weiters ergibt sich durch den äußeren Stoffübergang die Konzentration in der Lösung an der Oberfläche des Korns.
- Die IAST stellt den Zusammenhang der mit diesen Konzentrationen im Gleichgewicht stehenden Beladungen, welche sich am Korn einstellen, her.
- Die Oberflächenbeladungen wieder gehen als Randbedingungen in die Oberflächendiffusionsgleichung ein.

- Aus der Lösung der Oberflächendiffusionsgleichung ergibt sich eine Beladungsverteilung im Korn.
- Durch Integration über das Kugelvolumen kann dann die mittlere Beladung \bar{q} und deren zeitliche Änderung berechnet werden.

Diese Kette von Gleichungen stellt ein implizites Gleichungssystem für alle zu berechnenden Größen dar, das mittels iterativer Verfahren gelöst werden kann. Im Modell HAM geschieht dies so, daß zuerst alle vorkommenden Differentialgleichungen durch ihre diskreten Formen ersetzt werden, d. h., anstatt der kontinuierlichen Variablen für Ort und Zeit werden diskrete Variablen verwendet.

$$\begin{aligned} t &= n\Delta t \\ r &= i\Delta r \quad i = 0, \dots, n_R \\ z &= j\Delta z \quad j = 0, \dots, n_Z \\ x &= l\Delta x \quad l = 0, \dots, n_K \\ k &= i + j \cdot (n_R + 1) \end{aligned} \quad (29)$$

Der Index k wurde eingeführt, um die Punkte im Filter mit einem statt zweier Indizes zu bezeichnen. Um die Berechnungen überschaubarer zu gestalten, werden außerdem dimensionslose Größen eingeführt.

$$R = \frac{r}{r_0} \quad Z = \frac{z}{l_0} \quad X = \frac{c}{c_0} \quad Y = \frac{q}{q_0} \quad R_p = \frac{2x}{d_p} \quad (30)$$

Daraus folgt dann z. B. für die Ableitungen der Konzentrationen im Filter

$$\begin{aligned} \frac{\partial c(r,t)}{\partial r} &\rightarrow \frac{\partial X(R,t)}{\partial R} \rightarrow \frac{X_{k+1}^{n+1} - X_k^{n+1}}{\Delta R} \\ \frac{\partial c(r,t)}{\partial t} &\rightarrow \frac{\partial X(R,t)}{\partial t} \rightarrow \frac{X_{k+1}^{n+1} - X_{k+1}^n}{\Delta t} \end{aligned} \quad (31)$$

Ein Teil der obigen Gleichungskette läßt sich durch Einsetzen der Lösung einer in die jeweils nächste Gleichung formal „lösen“, wobei in dieser Lösung noch immer unbekannte Größen enthalten sind. Dazu wird als erstes die Konvektionsgleichung durch ihre diskrete Form ersetzt

$$\begin{aligned} X_{k(i)}^{n+1} &= \eta_{k(i)}^{n+1} \left(X_{k(i)}^n, X_{(k-1)(i)}^{n+1}, X_{(k-s_k)(i)}^{n+1} \right) + \\ &\kappa_{k(i)} X_{S,k(i)}^{n+1} \end{aligned} \quad (32)$$

Der Stoffübergang und die Korndiffusion folgen in allgemeiner Form

$$a_{k(i)}^{n+1} \left(Y_{\sqrt{l},k(i)}^n \right) + b_{k(i)} Y_{S,k(i)}^{n+1} = X_{k(i)}^{n+1} - X_{S,k(i)}^{n+1} \quad (33)$$

Kombiniert man die Gleichungen (32) und (33), so ergibt sich ein linearer Zusammenhang

$$c_{0(i)} X_{S,k(i)}^{n+1} = a_{k(i)}^{*(n+1)} \left(Y_{\sqrt{l},k(i)}^n, X_{k(i)}^n, X_{(k-1)(i)}^{n+1}, X_{(k-s_k)(i)}^{n+1} \right) + b_{k(i)}^* q_{0(i)} Y_{S,k(i)}^{n+1} \quad (34)$$

zwischen $X_{S,k(i)}^{n+1}$ und $Y_{S,k(i)}^{n+1}$. Die Koeffizienten (ohne Indizes) gehorchen den Beziehungen

$$a^* = \frac{c_0(a-\eta)}{\kappa-1} \quad b^* = \frac{c_0 b}{\kappa-1} \quad (35)$$

Als zweite „Bestimmungsgleichung“ für die Unbekannten $X_{S,k(i)}^{n+1}$ und $Y_{S,k(i)}^{n+1}$ stehen die IAST-Gleichungen zur Verfügung. Man beachte, daß sich die Koeffizienten in (35) nur aus Größen zusammensetzen, die aus vorangegangenen Berechnungsschritten bereits bekannt sind. Hat man diese Gleichungen gelöst, so erhält man durch Einsetzen in (32) und (33) alle benötigten Größen. Im folgenden wird die Bestimmung der Größen κ, η, a und b erläutert.

3.1 Die Lösung der Konvektionsgleichung

Normiert man die Konvektionsgleichung (1) mit den vereinbarten dimensionslosen Größen (30), so erhält man

$$\varepsilon_{0,(i)} \frac{\partial X_{(i)}}{\partial t} + \frac{3\beta_{L,(i)}(1-\varepsilon)c_{0,(i)}}{r_p} \left(X_{(i)} - X_{S(i)} \right) + \frac{v_r c_{0,(i)}}{r_0} \frac{\partial X_{(i)}}{\partial R} + \frac{v_z c_{0,(i)}}{l_0} \frac{\partial X_{(i)}}{\partial Z} = 0 \quad (36)$$

Die Differentialgleichung (36) wird durch die entsprechende Differenzengleichung ersetzt

$$X_{k(i)}^{n+1} - X_{k(i)}^n + G_{k(i)} \left(X_{k(i)}^{n+1} - X_{Sk(i)}^{n+1} \right) + K_{2k} \left(X_{k(i)}^{n+1} - X_{k-1(i)}^{n+1} \right) + K_{1k} \left(X_{k(i)}^{n+1} - X_{k-n_R-1(i)}^{n+1} \right) = 0 \quad (37)$$

mit den Koeffizienten ist

$$G_{k(i)} \equiv \frac{\Delta t F_S \beta_{L,k(i)}}{\varepsilon} \quad K_{1k} \equiv v_{z,k} \frac{\Delta t}{\varepsilon l_0 \Delta Z} \\ K_{2k} \equiv v_{r,k} \frac{\Delta t}{\varepsilon r_0 \Delta R} \quad (38)$$

Nun muß man den letzten Term genauer betrachten. Wenn auf einem Punkt des Gitters $v_{z,k} < 0$ ist, so erfolgt ein Konzentrationszufluß von dem darüberliegenden Gitterpunkt und der Differenzenquotient ist durch den Ausdruck

$$\frac{\Delta X}{\Delta Z} = - \frac{X_{k(i)}^{n+1} - X_{k+n_R+1(i)}^{n+1}}{\Delta Z} \quad (39)$$

zu ersetzen. Das würde aber Information von einem Punkt beinhalten, auf dem die Konzentration noch unbekannt ist. Es läßt sich zeigen, daß man dieses Problem mit Hilfe des sogenannten Operator-Splittings umgehen kann (PRESS et al., 1992). Unter Voraussetzungen, die für die Konvektionsgleichung gegeben sind, kann man bei jedem Zeitschritt die Rekursion für positive und negative Geschwindigkeiten hintereinander durchführen. Hierbei aktualisiert man die zu berechnenden Größen zuerst, beginnend bei $k=0$, an allen Punkten mit positiver z-Geschwindigkeitskomponente. Danach führt man dasselbe an allen Punkten mit negativer z-Geschwindigkeitskomponente durch, beginnt jetzt allerdings mit $k = (n_R+1) \cdot (n_Z+1) - 1$.

Faßt man die beiden Fälle positiver und negativer z-Komponente der Geschwindigkeit in einem Ausdruck zusammen, so erhält man

$$X_{k(i)}^{n+1} - X_{k(i)}^n + G_{k(i)} \left(X_{k(i)}^{n+1} - X_{Sk(i)}^{n+1} \right) + K_{2k} \left(X_{k-1(i)}^{n+1} - X_{(k-1)(i)}^{n+1} \right) + |K_{1k}| \left[X_{k(i)}^{n+1} - X_{k-\text{sgn}(v_{z,k})[n_R+1](i)}^{n+1} \right] = 0 \quad (40)$$

Nach Auflösung dieser Gleichung nach $X_{k(i)}^{n+1}$ können die Koeffizienten η und κ für die Konvektionsgleichung (32) bestimmt werden

$$\eta_{k(i)}^{n+1} = \frac{X_{k(i)}^n + K_{2k} X_{k-1(i)}^{n+1} + K_{1k} X_{k-\text{sgn}(v_{z,k})[n_R+1](i)}^{n+1}}{1 + G_{k(i)} + K_{1k} + K_{2k}}$$

$$K_{k(i)} = \frac{G_{k(i)}}{1 + G_{k(i)} + K_{1k} + K_{2k}} \quad (41)$$

3.2 Die Lösung der Korndiffusionsgleichung

Um \bar{q} als Funktion von q_S zu erhalten (und damit die unbekannt Koeffizienten a^* und b^* in (34)), wird die Korndiffusionsgleichung für q im Korn in ihrer diskreten Form gelöst und das Ergebnis über das Kornvolumen integriert.

Im folgenden Abschnitt wird zugunsten der Übersichtlichkeit die Indizes k und (i) unterdrückt und erst im Ergebnis wieder angeführt. Man transformiert zunächst auch die Ortskoordinate in der Kugel und erhält als normierte Form der Oberflächendiffusionsgleichung

$$\frac{\partial}{\partial \alpha} Y(R_p, t) = \frac{4D_S}{d_p^2} \left(\frac{\partial^2 Y(R_p, t)}{\partial R_p^2} + \frac{2}{R_p} \frac{\partial Y(R_p, t)}{\partial R_p} \right) \quad (42)$$

mit den Rand- und Anfangsbedingungen

$$\begin{aligned} AB \quad & Y(R_p, t) \Big|_{r=0} = Y_0(R_p, t), \forall R_p \\ RB1 \quad & \frac{\partial Y(R_p, t)}{\partial R_p} \Big|_{R_p=0} = 0, \forall t \\ RB2 \quad & Y(R_p, t) \Big|_{R_p=1} = Y_S \end{aligned} \quad (43)$$

Für die Diskretisierung der Differentialgleichung wurde das sogenannte Crank-Nicholson-Schema (PRESS et al., 1992, 849) verwendet. Dafür muß man zuvor noch eine Variablentransformation durchführen, um auf die benötigte Form der Gleichung zu kommen. Transformiert man die Gleichungen gemäß

$$Y(R_p, t) = \frac{U(R_p, t)}{R_p} \quad (44)$$

so erhält man die Gleichung

$$\frac{\partial U(R_p, t)}{\partial \alpha} = \frac{4D_S}{d_p^2} \frac{\partial^2 U(R_p, t)}{\partial R_p^2} \quad (45)$$

für die neue Größe $U(R_p, t)$. Als nächstes wird die Diffusionsgleichung durch ihre diskrete Form ersetzt

$$U(R_p, t) = U(j\Delta R_p, n\Delta t) \equiv U_j^n \Rightarrow U_{nK} = Y_S \quad (46)$$

Das Crank-Nicholson-Schema besteht in der diskreten Darstellung der zeitlichen und örtlichen Ableitungen und führt auf eine Iterationsvorschrift

$$\frac{U_j^{n+1} - U_j^n}{\Delta t} = \quad (47)$$

$$\frac{2D_S}{d_p^2} \frac{[U_{j+1}^{n+1} - 2U_j^{n+1} + U_{j-1}^{n+1}] + [U_{j+1}^n - 2U_j^n + U_{j-1}^n]}{(\Delta R_p)^2}$$

in n (für Zeit) und j (für Ort). Der Startwert für die Iteration ist durch die Randbedingungen und die Anfangsbedingung gegeben. Die Anfangsbedingung und die erste Randbedingung lauten in der diskreten Form

$$\begin{aligned} AB \quad & U_j^0 = 0 \quad \forall j \\ RB1 \quad & U_0^n = 0 \quad \forall n \\ RB2 \quad & U_{nK}^n = Y_S \end{aligned} \quad (48)$$

Aus Gleichung (47) erhält man unter Berücksichtigung der RB1 eine Rekursionsformel für U_j

$$P_j(\alpha)U_j^{n+1} + U_{j+1}^{n+1} = R_j^{n+1}(\alpha) \quad (49)$$

mit

$$\begin{aligned} P_1(\alpha) &= \alpha \\ P_{j+1}(\alpha) &= \alpha - \frac{1}{P_j(\alpha)} \\ \alpha &= -2 - \frac{(d_p \Delta R_p)^2}{2D_S \Delta t} \\ R_1^{n+1}(\alpha) &= r_1^n \\ R_{j+1}^{n+1}(\alpha) &= r_{j+1}^n - \frac{R_j^{n+1}(\alpha)}{P_j(\alpha)} \end{aligned} \quad (50)$$

$$r_j^n \equiv -U_{j+1}^n + U_j^n(4 + \alpha) - U_{j-1}^n$$

Aus dieser Formel sind bei gegebener Oberflächenbelastung durch Rekursion die Beladungen in allen Punkten im Inneren der repräsentativen Kugel bestimmbar. Es ist aber

zu beachten, daß sich die Größen r^n gemäß (50) mit jedem Zeitschritt ändern.

Mit Hilfe der Rekursionsformel soll ein geschlossener Ausdruck für die mittlere Beladung der repräsentativen Kugel in Abhängigkeit von der Oberflächenbeladung gefunden werden. Dazu wird an jedem Punkt r im Filter über das repräsentative Kugelvolumen integriert.

$$\bar{q}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{V} \int_0^{d_p/2} d^3 \mathbf{x} q(\mathbf{x}; \mathbf{r}, t) = \frac{6 \cdot 4\pi}{\pi d_p^3} \int_0^{d_p/2} dx x^2 q(x; \mathbf{r}, t) = 3q_0 \int_0^1 dR_p R_p^2 Y(R_p; \mathbf{r}, t) \equiv 3q_0 \bar{Y}(\mathbf{r}, t) \quad (51)$$

Das Integral kann näherungsweise durch die Trapezregel ersetzt werden.

$$\bar{Y}^n \equiv \sum_{k=1}^{n_K-1} k(\Delta R_p)^2 U_k^n + n_K(\Delta R_p)^2 \frac{Y_S^n}{2} \quad (52)$$

Gesucht wird weiters für dieses Integral ein geschlossener Ausdruck in Abhängigkeit von $Y_S (= U_{n_K})$. Dazu wird die Rekursionsformel (49) zur Lösung der Diffusionsgleichung in obigen Ausdruck eingesetzt,

$$\bar{Y}^n = (\Delta R_p)^2 \left[\Gamma^n(\alpha) + \left(\Delta(\alpha) + \frac{n_K}{2} \right) Y_S^n \right] \quad (53)$$

wobei

$$\Gamma^n(\alpha) = \sum_{k=1}^{n_K-1} \sum_{m=k}^{n_K-1} R_m^n(\alpha) k \left[\prod_{j=k}^m P_j(\alpha) \right]^{-1} \quad (54)$$

$$\Delta(\alpha) = - \sum_{k=1}^{n_K-1} k \left[\prod_{j=k}^m P_j(\alpha) \right]^{-1}$$

ist. Durch den Vergleich von (51) mit der Differenzenform von (16) unter Berücksichtigung der Trapezregel folgt

$$A_S \beta_L \rho_P c_0 (X_k^n - X_{S,k}^n) = 3q_0 \frac{(\bar{Y}_k^n - \bar{Y}_k^{n-1})}{\Delta t} = 3q_0 \frac{(\Delta R_p)^2}{\Delta t} \left[\Gamma^n(\alpha) + \left(\Delta(\alpha) + \frac{n_K}{2} \right) Y_S^n - \frac{\bar{Y}^{n-1}}{(\Delta R_p)^2} \right] \quad (55)$$

Durch die Definition der Koeffizienten a und b [vgl. Gl. (33)] kann die Beziehung zwischen Beladung und Konzentration vereinfacht dargestellt werden als

$$a + b Y_{S,k(i)}^n = X_{k(i)}^n - X_{S,k(i)}^n \quad (56)$$

Für a und b gelten dann die Beziehungen (mit kompletter Indizierung)

$$a_{k(i)}^n = \frac{3q_{0(i)} \rho_P (\Delta R)^2}{\Delta t A_S \beta_{L(i)} c_{0(i)}} \left[\Gamma_{k(i)}^n(\alpha_{(i)}) - \frac{\bar{Y}_{k(i)}^{n-1}}{(\Delta R_P)^2} \right] \quad (57)$$

$$b_{k(i)} = \frac{3q_{0(i)} \rho_P (\Delta R)^2}{\Delta t A_S \beta_{L(i)} c_{0(i)}} \left[\Delta_{(i)}(\alpha_{(i)}) + \frac{n_k}{2} \right]$$

Für die Bestimmung der Koeffizienten im Gleichungssystem (35) sind dann (57) und (41) in (35) einzusetzen.

3.3 Lösung der IAST-Gleichungen

Mittels des IAST-Formelsatzes und der Gleichung (35) ist es möglich, das Adsorptionsgleichgewicht zwischen Oberflächenkonzentration und Oberflächenbeladung für jede einzelne Komponente zu bestimmen. Diese Gleichungen müssen simultan für $2N$ Unbekannte gelöst werden, was zum Beispiel mit Hilfe des Newton-Algorithmus erfolgen kann. Durch Auflösen des Gleichungssystems nach den zwei Unbekannten q_T und Π kann der Rechenaufwand beträchtlich verringert werden.

Das gekoppelte Gleichungssystem der zwei Gleichungen für die zwei Unbekannten Π und q_T ist zu lösen

$$1 - \sum_{i=1}^N \frac{q_{S(i)}(\Pi, q_T)}{\hat{q}_i(\Pi)} = 0$$

$$1 - \sum_{i=1}^N \frac{q_{S(i)}(\Pi, q_T)}{q_T} = 0 \quad (58)$$

Um wirklich nur mehr zwei Gleichungen mit den zwei Unbekannten q_T und Π zu erhalten, müssen alle bekannten Ausdrücke eingesetzt werden. \hat{c}_i und \hat{q}_i sind durch die Formeln (24) und (25) als Funktionen von Π bekannt. $q_{S(i)}$ folgt aus der ersten IAST-Gleichung in (28), gemeinsam mit (34), woraus dann wieder $c_{S(i)}$ als Funktion der beiden Variablen Π und q_T folgt.

$$c_{S(i)}(\Pi, q_T) = \hat{c}_i(\Pi) \frac{q_{S(i)}(\Pi, q_T)}{q_T} = a_i^* + b_i^* q_{S(i)}(\Pi, q_T)$$

$$\Rightarrow q_{S(i)}(\Pi, q_T) = \frac{b_i^* q_T}{\hat{c}_i(\Pi) - q_T a_i^*} \quad (59)$$

3.4 Überprüfung des Modells HAM

Das vorliegende Modell wurde vor allem auf seine numerischen Eigenschaften hin überprüft.

Die Routine zur Berechnung des KSVA-Strömungsfeldes wurde in einer Arbeit von PLONER (1995) untersucht und zeigte gute Übereinstimmung mit den Laborversuchen.

Zur Überprüfung des Konvergenzverhaltens wurde bei einer Reihe von Simulationsläufen die räumliche und die zeitliche Schrittweite variiert. Die so erhaltenen Durchbruchzeiten und Beladungen konvergierten für kleine Werte von Δt , ΔR , ΔZ und ΔR_p und die Massenbilanz, gebildet aus Zu-, Abfluß und Beladung, erreicht eine Größenordnung von 1 %.

Die Beladungskurven eines Zweistoffgemisches aus einer Arbeit von HAIST-GULDE et al. (1991) konnten nachgebildet werden, wobei jedoch, wie so oft bei Literaturvergleichen, das Problem auftrat, daß nicht alle für HAM benötigten Parameter angegeben sind und daher die freien Parameter aus anderen Quellen genommen werden mußten. Aus diesem Grund ist auch eine Versuchsserie geplant, bei der alle Eingabedaten für einen bestimmten experimentellen Aufbau ermittelt werden sollen.

Danksagung

Das Projekt zur Untersuchung des KSVA-Filters, im Rahmen dessen das Simulationsmodell HAM entstand, wurde dankenswerterweise vom FWF (Fonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung) unterstützt (Projekt P10203-ÖCH).

Literatur

- CRANK, J. (1979): *The Mathematics of Diffusion*, 2nd edition, Oxford University Press.
- HAIST-GULDE, B., K. JOHANNSEN, S. STAUDER, G. BALDAUF und H. SONTHEIMER (1991): Optimierung der Aktivkohleanwendung bei der Entfernung von Mikroverunreinigungen mit Aktivkohle in Trinkwasseraufbereitungsanlagen. *Wasser-Abwasser*, 132, 8.
- HILL, T. L. (1949): *Statistical Mechanics of Adsorption* V. *J. Chem. Phys.*, Vol. 17, 520.
- PLONER, G. (1995): *Strömungssimulation in einem Aktivkohlefilter mit Hilfe verschiedener Computerprogramme*. Diplomarbeit. Univ. f. Bodenkultur, Wien.
- PRESS, W. H., S. A. TEUKOLSKY, W. T. VETTERLIN and B. P.

FLANNERY (1992): *Numerical Recipes in C: The Art of Scientific Computing*. 2nd edition, Cambridge University Press.

RADKE, C. J. and J. M. PRAUSNITZ (1972): *Thermodynamics of Multi-Solute Adsorption for Dilute Liquid Solutions*. *Am. Inst. Chem. Eng. J.*, 18, 761.

SONTHEIMER, H., B. R. FRICK, J. FETTIG, G. HÖRNER, C. HUBELE und G. ZIMMER (1985): *Adsorptionsverfahren zur Wasserreinigung*. DVGW-Forschungstelle am Engler-Bunte-Institut der Universität Karlsruhe.

WEINGARTNER, A., W. URBAN, W. LOISKANDL und R. MALENINSKY (1993): *Das KSVA-Verfahren*. Chemviron Award 1993 Winning Paper. Universität f. Bodenkultur, Wien.

WEINGARTNER, A. (1994): *The KSVA-Procedure - A New Procedure for the Selective Removal of Organic Traces*. *Water Supply*, Vol. 14, 145-158.

Anhang

Im folgenden sollen die verwendeten Symbole und die für das Modell HAM als Eingabedaten benötigten Kennzahlen und Filterdaten kurz beschrieben werden.

1. Formelsymbole

Anmerkung: Vektorielle Größen werden fettgedruckt dargestellt.

Tabelle 1: Allgemeine Formelsymbole

Table 1: General list of symbols

c_0	[mmol/l]	Anfangskonzentration der freien Lösung
q_0	[mmol/g]	Beladung im Gleichgewicht mit c_0
$\bar{q}_{(i)}(r, t)$	[mmol/g]	mittlere lokale Beladung durch die Komponente (i)
$c_{(i)}(r, t)$	[mmol/l]	Konzentration der Komponente (i) in der gelösten Phase
c_S	[mmol/l]	Konzentration der Komponente an der Kornoberfläche
q_S	[mmol/g]	Beladung der Komponente an der Kornoberfläche
$v(r)$	[m/s]	lokale Filtergeschwindigkeit
j_L	[mol s ⁻¹ m ⁻²]	Stoffstrom
β_L	[m/s]	Stoffübergangskoeffizient
A	[m ² kg ⁻¹]	Adsorptionsfläche pro Masseneinheit des Adsorbens
R	[Jmol ⁻¹ K ⁻¹]	Universelle Gaskonstante
T	[K]	Temperatur
r, z	[m]	Radial- und Höhenkoordinate im Filter
t	[s]	Zeitkoordinate
x	[m]	Ortskoordinate im Adsorbierkorn

2. Filter- und Adsorbensdaten

Tabelle 2: Formelsymbole, Filter- und Adsorbensdaten
Table 2: List of symbols for filter and adsorbents data

A_S	[m ⁻¹]	effektive Stoffaustauschfläche
ε	[1]	Anteil des Zwischenkornvolumens
ε_p	[1]	Porosität des Korns
ρ_p	[kg/m ³]	mittlere Adsorbensdichte im Filter
r_0	[m]	Filterradius
l_0	[m]	Filterlänge
z_{ausfl}	[m]	Höhe der Unterkante des Ausflusses (KSVA)
d_{ausfl}	[m]	Durchmesser des Ausflusses (KSVA)
r_{ausfl}	[m]	radiale Lage des Punktes zur Durchbruchskontrolle (KSVA)
k_F	[m/s]	Filterdurchlässigkeitsbeiwert

3. Numerische Parameter

Tabelle 3: Formelsymbole, Numerische Parameter
Table 3: List of symbols for numerical parameter

n_r		Anzahl der Stützpunkte in radialer Richtung
n_z		Anzahl der Stützpunkte in axialer Richtung
n_K		Anzahl der Stützpunkte im Korn
p_{DB}	[%]	Durchbruchswert
t_{SIM}	[h]	Simulationszeit
n_{sek}		Maximale Anzahl der Sektoren

4. Substanzkenngößen

Tabelle 4: Formelsymbole, Substanzkenngößen
Table 4: List of symbols for chemical parameter

$\beta_{L(i)}$	[m/s]	Stoffübergangskoeffizient des Sorptivs (i)
$D_{S(i)}$	[m ² /s]	Diffusionskonstante des Sorptivs (i) im Kohlekorn
$n_{F(i)}$		Exponent der FREUDLICH-Isotherme des Sorptivs (i)
$K_{F(i)}$		Vorfaktor der FREUDLICH-Isotherme des Sorptivs (i)
$M_{(i)}$	[g/mol]	Molmasse des Sorptivs (i)

Bei dem Isothermenparameter K_F ist zu beachten, daß in der IAST mit molaren Größen gerechnet wird und daher die Konzentrationen in *mmol/l* und die Beladungen in *mmol/g* benötigt werden und nicht in *mg/l* bzw. *mg/g*, wie dies für die experimentell bestimmten Größen üblich ist. Die Umrechnung für K_F erfolgt durch

$$K_{F(i)}^{\text{molar}} = K_{F(i)} M_{(i)}^{n_{F(i)}-1}$$

Der Freundlich-Exponent n_F bleibt unverändert.

Der Stoffübergangskoeffizient $\beta_{L(i)}$ ist i. a. von der lokalen Umströmungsgeschwindigkeit des betrachteten Adsorbensorns abhängig. Hat man also keinen linearen, sondern einen Filter mit lokal unterschiedlichen Strömungsgeschwindigkeiten vorliegen, so wird es i. a. notwendig sein, $\beta_{L(i)}$ an jedem Punkt neu zu berechnen. Dazu bieten sich die Korrelationen von SCHLÜNDER und GNIELINSKI (SONT-HEIMER et al., 1985) an.

Dafür werden folgende zusätzliche Daten benötigt:

Tabelle 5: Formelsymbole, Zusatzdaten zur Berechnung des lokalen Stoffübergangskoeffizienten

Table 5: List of symbols for additional data for the determination of local mass transfer coefficient

$D_{L(i)}$	[m ² /s]	Diffusionskonstante des Sorptivs (i) im Lösungsmittel
ν	[m ² /s]	kinematische Viskosität des Lösungsmittels
u	[m/s]	effektive Umströmungsgeschwindigkeit des Partikels

Der Formelsatz für $\beta_{L(i)}$ lautet:

$$\beta_{L(i)} = \frac{D_{L(i)}}{d_p} \left[1 + 1,5(1 - \varepsilon) \right] \left(2 + \sqrt{Sh_{lam}^2 + Sh_{nrh}^2} \right)$$

$$Sh_{lam} = 0,664 Re^{1/3} Sc^{1/2} ; Sh_{nrh} = \frac{0,037 Re^{0,8} Sc}{1 + 2,443 Re^{-0,1} (Sc^{2/3} - 1)}$$

$$Re = \frac{d_p u}{\nu} \quad Sc = \frac{\nu}{D_L}$$

Als effektive Umströmungsgeschwindigkeit ist im wesentlichen die lokale Fließgeschwindigkeit zu verstehen. Es bestünde natürlich auch die Möglichkeit, u zusätzlich von der Geometrie der Adsorbekörner abhängig zu machen.

Anschrift der Verfasser

Dipl.-Ing. Hermann Schachner, Dipl.-Ing. Marcel Rassingger, Ass.-Prof. Dipl.-Ing. Dr. Willibald Loiskandl, Institut für Hydraulik und landeskulturelle Wasserwirtschaft, Muthgasse 18, A-1190 Wien.

Dipl.-Ing. Dr. Erich Schäfer, Dipl.-Ing. Andreas Weingartner, Institut für Wasservorsorge, Gewässerökologie und Abfallwirtschaft, Abteilung für Siedlungswasserbau, Industriewasserwirtschaft und Gewässerschutz, Muthgasse 18, A-1190 Wien.

Eingelangt am 15. Juli 1997

Angenommen am 10. September 1997