

Diss. ETH Nr. 9012

**INTERACTIONS
BETWEEN
MACRO- AND MICROMIXING
IN
STIRRED TANK REACTORS**

ABHANDLUNG

zur Erlangung des Titels einer
Doktorin der Technischen Wissenschaften
der
EIDGENÖSSISCHEN TECHNISCHEN HOCHSCHULE
ZÜRICH

vorgelegt von
Suzanne Alice Thoma Hubis
dipl. Chem. Ing. ETH
geboren am 1. Februar 1962
von Cham ZG

Angenommen auf Antrag von
Prof. Dr. J.R. Bourne, Referent
Prof. Dr. A. Baiker, Korreferent



Zürich 1989

vis
J. Bourne

ABSTRACT

A fast, mixing-sensitive, competitive-consecutive azocoupling reaction was used to investigate macro- and micro-mixing in a stirred tank reactor operated in a semi-batch mode.

The selectivity of the tracer reaction is determined by the degree of homogeneity achieved in the zone of mixing and reaction. If mixing is perfect, the reaction proceeds in the chemically controlled regime and almost no side-product is formed. If mixing is slow and therefore the limiting step, the local concentrations established in the zone of mixing and reaction determine the selectivity. The zone of mixing and reaction is small compared to the tank volume.

The rate of feed addition, the feed point, the stirrer speed, and the reagent concentrations were found to influence the product distribution measured.

Upon scale-up with a criterion of constant power per unit volume the selectivity either improves or remains constant at the feedpoints tested.

Concentration inhomogeneities on the macroscopic scale can be avoided by increasing the addition time to at least the critical addition time t_{crit} . At addition times longer than t_{crit} the product distribution of the tracer reaction is independent of addition time.

The critical addition time is proportional to the reagent concentrations, and inversely proportional to the stirrer speed and the number of feedpoints. It further depends on the feedpoint location and increases with tank scale.

The critical productivity (defined as the quantity of reagent fed to and converted in the reactor when the feed time is the critical addition time) slightly increases upon scale-up when the scale-up criteria are constant power per unit volume and a given feed point.

An extension of the E-model for micromixing, which applies the theory of turbulent diffusion, was developed. Satisfactory agreement between model and experiment was obtained in most cases.

ZUSAMMENFASSUNG

Mit Hilfe einer schnellen, Mischungsempfindlichen Parallel- Folge-reaktion wurde die unvollständige Vermischung auf der mikroskopischen und makroskopischen Ebene in einem gerührten Semi-Batch Reaktor untersucht.

Die Selektivität dieser Reaktion wird durch die Homogenität in der Vermischungs- und Reaktionszone bestimmt. Bei vollständiger Vermischung verläuft die Reaktion im chemisch kontrollierten Bereich, in welchem kaum Nebenprodukt entsteht. Ist die Vermischung hingegen der langsamste und damit limitierende Schritt, bestimmen die örtlichen Konzentrationen in der Vermischungs- und Reaktionszone die Selektivität der Reaktion. Diese Zone ist klein im Vergleich zum Reaktorvolumen.

Die Feedzugaberate, der Ort der Feedzugabe, die Rührergeschwindigkeit und die Konzentrationen der Edukte bestimmen die Produktverteilung. Beim Scale-up bleibt die Selektivität der Reaktion entweder gleich oder verbessert sich bei den untersuchten Feedstellen. Als Scale-up Kriterium galt konstanter Leistungseintrag pro Volumeneinheit.

Makroskopische Inhomogenitäten in der Vermischungs- und Reaktionszone können vermieden werden, indem die Feedzugabezeit mindestens auf die kritische Feedzugabezeit t_{crit} verlängert wird. Die Produktverteilung ist dann unabhängig von der Feedzugabezeit.

Die kritische Feedzugabezeit ist proportional zur Eduktkonzentration und umgekehrt proportional zur Rührergeschwindigkeit und zur Anzahl der Feedstellen. Sie hängt weiter ab vom Ort der Feedzugabe und nimmt mit der Reaktorgröße zu.

Die kritische Produktivität wurde definiert als die Menge Edukt, die zugeführt und im Reaktor umgesetzt wird, wenn die kritische Zugabezeit eingehalten wird. Beim Scale-up mit konstantem Leistungseintrag pro Volumeneinheit verbessert sich die kritische Produktivität leicht.

Eine Erweiterung des E-Modells für die Mikrovermischung wurde entwickelt. Sie basiert auf der Theorie der turbulenten Diffusion und beschreibt auch den Makrovermischungsbereich. Der Vergleich von Experiment und Modell ergab zufriedenstellende Resultate.