

Diss. ETH No. 13345

DROP SIZE DISTRIBUTION  
IN TURBULENT DISPERSIONS:  
AUTOMATED MEASUREMENT  
AND SIMULATION

A dissertation submitted to the  
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY

for the degree of  
Doctor of Technical Sciences

presented by  
MARCO ZAMBONI  
dipl. chemical engineer ETH  
born on 11.11.1968  
from Morbio Inferiore (TI)

accepted on the recommendation of  
Prof. Dr. S. Hartland, examiner  
Prof. Dr. M. Morbidelli, co-examiner

Zurich 1999

# Abstract

While old models for the description of the behaviour of liquid-liquid dispersions in agitated extraction equipment are based on simple plug-flow assumptions newer simulation techniques require a much more accurate prediction of drop populations.

*Laso, 1986, Steiner, 1996 and Balmelli, 1998* of this research group developed a simplified model based on drop population balances with geometric drop size class division in order to reduce the extensive computations needed in simulating turbulent dispersions. A complete extraction column can be accurately simulated using the coalescence and breakage rates calculated with this geometric model. These rates can be measured in a batch-mixing vessel designed to correspond to a single stage of an extraction column. This may be a very important tool in the design of extractors. Experimental data on drop size distributions in turbulent agitated dispersions are necessary for reliable design of an extraction column but are, unfortunately, not available due to the problems associated with the required measurements.

In the present work a reliable, efficient and accurate optical technique is developed to measure the drop size distributions at different times during their dynamic evolution. More than 700 drop size distributions using 18 different liquid-liquid systems covering a wide range of physical properties are experimentally measured both in a batch Kühni cell and a standard mixing reactor with a turbine impeller. In addition, the population balance model involving the breakage and coalescence rates is improved by allowing for geometric drop size class division. The breakage and coalescence rate parameters are determined by fitting the set of differential

equations. Dimensionless equations are presented for the breakage and coalescence rate constants and the Sauter mean drop diameter in both the Kühni and the standard mixing cells obtained using the present experimental data. These are discussed below in detail.

A batch vessel with a standard geometry and a 6-flat-bladed turbine impeller and a batch Kühni cell are designed and a new sampling method for the acquisition of dispersion images in both tanks is developed. This uses a periscope immersed in the dispersion: a fiber glass source and a stroboscope pulse generator convert light into a 45° mirror in the periscope and provide the illumination for the acquisition of back illuminated images of the dispersion. The measurement of the drop size distribution is automatically performed by analysis of video images taken with very short exposure times by a video camera placed at the wall of the tank. The images are directly transferred to an advanced desktop computer which has been modified to remove drops which are out of focus or not fully in view and to split drop agglomerates. The number and size of remaining particles are then evaluated by a special software routine and stored in data files for further treatment. A specifically written program provides the fully automatic control of routine experiments by supervising the operating conditions, the image processing and the on-line monitoring of the dynamic interfacial area of the drops.

Drop size measurements for routine experiments are dramatically improved and data for numerous systems are obtained: drop size distributions and instationary data at various agitation intensities and phase fractions are measured in reproducible conditions for 11 liquid-liquid systems in the Kühni cell and 7 liquid-liquid systems in the standard agitated vessel. Most of the drop size distributions are measured at the height of the impeller between the baffles. For one liquid-liquid system the drop sizes are measured along the height of the vessel close to the baffles. The Sauter mean drop diameter at the top of the vessel is found to be significantly larger than that at the impeller level.

Using the present simplified model with geometric drop size class division both breakage and coalescence rate constants are obtained by optimizing the parameters in the population balance equations. Assuming that the rate constants may be approximated by power law functions of the drop volume, the intensity of the ag-

itation and the dispersed phase volume fraction expressions for droplet break-up and coalescence rates are obtained by linear regression for each of the 18 liquid-liquid systems. Finally, generalized dimensionless expressions for breakage and coalescence rate constants are presented which are applicable for any liquid-liquid system.

An experimental device for the measurement of the real-time dynamic evolution of the drop size distribution is developed and tested. Some experiments are performed with this technique and the measured distributions agree well with those predicted using the above generalised expressions for the rate constants.

The derived expressions may be useful in improving the models predicting the operating conditions in extraction equipment, namely for Kühni columns and mixing tanks. The accuracy of the proposed expressions, together with the advantages of the geometric model, allow reliable prediction of coalescence and breakage behaviour of dispersed droplets. The present expressions on coalescence and breakage rates developed using large amounts of data collected on a number of liquid-liquid systems will be useful in the confirmation, or rejection, of any future theoretical models. Moreover, the measuring equipment and the procedures of evaluation developed in the present work should allow future workers to collect data on other systems and operating variables more efficiently, thus allowing the collection of reliable data on breakage and coalescence rates in turbulent dispersions which has until the present date been largely lacking.

# Compendio

Il disegno degli impianti di estrazione liquido-liquido basato su modelli che assumono la presenza dei soli fenomeni di dispersione longitudinale ha ormai completamente ceduto il posto a tecniche di simulazione che necessitano di stime accurate riguardo la popolazione delle gocce della fase liquida dispersa. Nell'ambito dell'affinamento di queste tecniche, *Laso, 1986, Steiner, 1996 e Balmelli, 1998* hanno sviluppato un sistema di suddivisione geometrica delle classi di grandezza, che permette, grazie alla drastica riduzione dei carichi di calcolo, una valutazione accurata delle velocità di rottura e coalescenza delle gocce. Le necessarie misurazioni sulle gocce sono state effettuate da questi ricercatori in un reattore di forma simile a quella del singolo stadio di una colonna di estrazione. Utilizzando i dati ottenuti essi hanno potuto riprodurre con estrema precisione il comportamento della fase dispersa in una colonna completa.

Se da una parte la sua versatilità e la sua accuratezza fanno di questo modello uno strumento di estrema efficacia per il disegno degli estrattori, dall'altra il suo sviluppo continua a soffrire della scarsissima disponibilità di dati sperimentali, legata alle grosse difficoltà insite nel monitoraggio delle gocce in condizioni difficili come all'interno delle dispersioni turbolente.

Al fine di rendere efficace ed utilizzabile il modello geometrico, nel presente lavoro si sono costruiti un reattore di geometria standardizzata e uno riprodotto un singolo stadio di una colonna di tipo Kühni. Su questi è stato applicato un nuovo metodo di acquisizione delle immagini delle gocce disperse. Sfruttando le grandi capacità di calcolo dei moderni elaboratori e le più recenti tecnologie *vision*, è stato sviluppato un software che automatizza completamente la gestione delle im-

magini, la misurazione della grandezza delle gocce e dell'area interfacciale specifica nonché il sistema di controllo dei parametri operativi di ogni esperimento.

Incrementando in maniera sostanziale la velocità di misurazione della grandezza delle gocce, è stato possibile raccogliere dati sperimentali relativi a un gran numero di sistemi turbolenti: la grandezza di quasi 3 milioni di gocce e i dati sul comportamento di varie centinaia di stati instazionari sono stati misurati nei due reattori, per un totale di 18 sistemi dispersi. Attraverso il modello di suddivisione geometrica delle classi si sono ottenute per approssimazione le costanti di coalescenza e rottura in ogni esperimento. Approssimandole per mezzo di funzioni esponenziali del volume della goccia, dell'intensità dell'agitazione e della frazione della fase dispersa, si sono ottenute espressioni specifiche per ogni sistema. Gli effetti della tensione interfacciale, della densità, della viscosità, della frazione della fase dispersa e dell'intensità di agitazione sono stati stimati e si è ottenuto per ogni tipo di reattore un modello generalizzato per le velocità di rottura e coalescenza.

In un secondo tempo è stato sviluppato uno strumento per l'analisi in tempo reale delle immagini delle gocce, che ha permesso la misurazione della distribuzione della loro grandezza nelle fasi dinamiche. Il confronto tra i dati misurati con questa nuova tecnica e quelli simulati utilizzando le equazioni empiriche derivate in precedenza, propone risultati estremamente incoraggianti.

Le espressioni ottenute migliorano in modo decisivo i modelli di predizione delle variabili operative nelle colonne di estrazione, più specificamente in quelle di tipo Kühni e negli estrattori a miscelazione. La precisione dimostrata dalle equazioni proposte, insieme ai vantaggi ottenuti con la modellazione geometrica, permettono valutazioni quantitative accurate sulla rottura e la coalescenza delle gocce disperse. La quantità di dati raccolti è di estremo interesse per poter confermare o eventualmente accantonare i modelli precedentemente sviluppati su speculazioni di tipo teorico. Inoltre, le apparecchiature e le procedure sviluppate in questo lavoro permettono di condurre esperimenti anche su altri sistemi, con altre variabili operative e in reattori di geometria differente. Questo permetterà la creazione di raccolte di dati sul comportamento delle dispersioni turbolente, che dovrebbero finalmente migliorare l'efficacia degli impianti di estrazione.

# Zusammenfassung

Während ältere Modelle zur Beschreibung des Verhaltens von Dispersionen in gerührten Extraktionsanlagen auf einfachen Propfenströmungsbilanzen beruhen, benötigen die neueren Simulationstechniken eine wesentlich genauere Vorhersage der Tropfenpopulation in der Kolonne. Deswegen beschäftigen sich die Forscher mit der Bereitstellung realistischer Beschreibungen von Tröpfchenverhalten in turbulenten Dispersionen.

In unserer Forschungsgruppe wurde ein geometrisches Modell entwickelt, das den beachtlichen Rechenaufwand für die Simulation von Dispersionen reduziert: es ist möglich eine komplette Extraktionskolonne ausgehend von diesem Modell, mit dem man die Spaltungs- und Koaleszenzgeschwindigkeiten von Tropfen beschreiben kann, genau zu simulieren. Die dazu notwendigen Messungen können mittels einer Dispersion in einem dem Kolonnenboden ähnlichen Gefäß durchgeführt.

Geometrische Modelle könnten äusserst nützliche Werkzeuge zur Auslegung von Extraktoren sein, wenn das Problem der Tropfenüberwachung in Dispersionen nicht wäre. Das Hauptproblem, das Fehlen von grossen, verfügbaren Datenmengen bezüglich der Tropfenpopulationen in Dispersionen, muss gelöst werden, bevor dieses Gebiet weiter entwickelt werden kann.

Mit diesem Ziel, wurde in dieser Arbeit eine neuartige Methode zur Probenentnahme und zur Aufnahme von Bildern der Dispersion entwickelt und auf zwei unterschiedliche Gefässe angewendet. Das eine Gefäss besitzt eine standardisierte Geometrie während das andere geometrisch ähnlich zu dem Boden einer Kühnplatte gebaut wurde.

Es wurde eine schnelle, automatische Bildauswertung zur Bestimmung der Tropfengrößenverteilung und eine dazu gehörende Echtzeitüberwachung der spezifischen Oberfläche entwickelt. Ein Visual Basic Programm übernahm die Kontrolle der Betriebsbedingungen und der Bildauswertung.

Die Geschwindigkeit der Messungen der Tropfengrößenverteilungen wurde entscheidend verbessert. Dadurch konnte eine grosse Anzahl an experimentellen Daten für zahlreiche Systeme erfasst werden. Tropfengrößenverteilungen und instationäre Daten mit unterschiedlichen hydrodynamischen Eigenschaften wurden unter reproduzierbaren Bedingungen für verschiedene disperse Systeme and unterschiedliche Gefässgeometrien gemessen. Die Anwendung unseres vereinfachten Modells mit der geometrischen Einteilung der Tropfen in die Klassen, erlaubte es, die Spaltungs- und Koaleszenzkonstanten durch einen mathematischen Fit anzupassen. Unter der Annahme, dass die Einflüsse der Rührintensität, der Fraktion der Phasen und des Tropfenvolumens mit exponentielle Funktionen angenähert werden können, wurden Ausdrücke für die Spaltung und die Koaleszenz von Tropfen durch lineare Regression bestimmt. Der Einfluss des Hold-Ups, der relativen Dichten, der Viskosität, Grenzflächenspannung, Gefässgeometrie und Rührgeschwindigkeit auf die Tropfengrößenverteilung und Spaltungs- und Koaleszenzgeschwindigkeiten wurde quantitativ durch eine Schätzung der Parameter für die entsprechenden Abhängigkeiten bestimmt. Ein allgemein anwendbares und experimentell abgesichertes Modell zur Beschreibung der Spaltungs- und Koaleszenzgeschwindigkeiten wurde letztendlich vorgeschlagen.

Eine apparatur für die Echtzeitmessung der Tropfenverteilung wurde später auch entwickelt und geprüft. Die erhaltene Resultate zeigen hervorragende Übereinstimmung mit den simulierten daten.

Die hergeleiteten Ausdrücke können die durch Modelle getroffenen Vorhersagen bezüglich der Betriebsbedingungen für Extraktoren - insbesondere für Kühni Kolonnen und Mischer - verbessern. Die Genauigkeit der vorgeschlagenen Ausdrücke, verbunden mit den Vorteilen eines geometrischen Modells, erlauben verlässliche Aussagen über das Koaleszenz- und Spaltungsverhalten dispergierter Tropfen. Zusätzlich können die grossen Mengen an gesammelten Daten bezüglich der Spaltungs- und Koaleszenzgeschwindigkeiten zur Bestätigung oder Verwerfung theoretischer Modelle verwendet werden.

Ausserdem können die entwickelten Geräte und Auswertungsprogramme, die für die Experimente dieser Arbeit angefertigt wurden, es zukünftigen Forschern er-



leichtern, charakteristische Daten ihrer Systeme wesentlich effizienter zu erlangen. Auf diesem Weg können die bisher fehlenden Sammlungen mit verlässlichen Daten turbulenter Dispersionen aufgebaut werden.