

Untersuchungen zur Verbesserung der Mikro-/Ultrafiltration durch Ultraschall

Vom Fachbereich Maschinenbau und Verfahrenstechnik
der Technischen Universität Kaiserslautern
zur Verleihung des akademischen Grades

Doktor-Ingenieur (Dr.-Ing.)

genehmigte

Dissertation

von
Herrn
Dipl.-Ing. Joachim Went
aus Bayreuth

Dekan: Prof. Dr.-Ing. Bernd Sauer

Promotionskommission:

Vorsitzender: Prof. Dipl.-Ing. Dr. techn. Hans-Jörg Bart
1. Berichterstatter: Prof. Dr.-Ing. Siegfried Ripperger
2. Berichterstatter: Prof. Dr.-Ing. Rolf Gimbel
3. Berichterstatter: Prof. Dr.-Ing. Christian Schindler

Tag der mündlichen Prüfung: 12. Juli 2011

D 386

Es irrt der Mensch, solange er strebt.

(Johann Wolfgang von Goethe)

Vorwort und Dank

»Erzählen Sie uns die Story vom Ultraschall«. Ohne diese Worte von Herrn Ripperger im Hinterkopf wäre der lange Weg, bis diese Arbeit endlich niedergeschrieben war, wohl nicht beschritten worden. Nachdem schon bald klar war, dass in der eigenen Arbeitsgruppe erfolgversprechendere Ansätze verfolgt werden und die experimentellen Ergebnisse nicht Ruhm und Ehre versprechen, wären die viele Erfahrung zusammen mit einem Projektbericht schon fast in den Schubladen der Forschungsgeschichte verschwunden gewesen. Nun ist sie aufgeschrieben die »Story vom Ultraschall« und sie soll als Orientierung all denen dienen, die meinen, Ultraschall könne alles und müsste doch auch sinnstiftend in der Membranfiltration einsetzbar sein.

Bei allen, denen ich in den letzten sechs Jahren Absagen erteilt habe und meine Promotionsarbeit als Grund angeführt habe, möchte ich mich bedanken, dass sie weiterhin zu mir gehalten haben und die Geduld mit mir nicht verloren haben - trotz mehrfacher nicht eingehaltener Ankündigungen, wann ich die Sache abgeschlossen habe.

Insbesondere Herrn Ripperger möchte ich für seine Engelsgeduld, die anregenden Diskussionen und die Übernahme der Betreuung dieser Arbeit danken.

Rubin Putzar vom benachbarten Fraunhofer EMI möchte ich für seine Unterstützung bei den Messungen mit dem Laser Scanning Vibrometer danken. Dem Team der mechanischen Werkstatt am Fraunhofer ISE für die konstruktive Zusammenarbeit und die schönen Testzellen, sowie Peter Gesikiewicz und Jan Hesselmann für ihre Hilfe bei der Automatisierung und LabView-Programmierung. Nichts wäre vorangegangen ohne meinem Team an Studenten: Christian Tötze, Monika Gidt, Heiko Pawelzyk, Marco Modi, Simone Herold, Torben Gerlach, Sebastian Rauscher, André Louro Alves. Ein herzliches »Danke schön« Euch allen für Euren wertvollen Einsatz.

Die meisten Ergebnisse dieser Arbeit entstanden im Rahmen des öffentlich geförderten Projektes ISUS (InnoNet-Programm 16INO227; Bundesministerium für Wirtschaft BMWi). Ich danke allen Geldgebern und dem engagierten Projektteam: Firma Grünbeck, Firma ITN-Nanovation, Firma Hielscher und dem Team der Universität Stuttgart und des Biofilm Centers an der Universität Duisburg.

Meiner Frau Katrin möchte ich für ihr Verständnis und ihre liebevolle Unterstützung danken und meinen Eltern für ihre immerwährende Unterstützung, die meine Ausbildung ermöglicht hat und ihr Interesse an meiner Arbeit.

Inhalt

Vorwort und Dank	II
Inhalt	III
Nomenklatur	VI
Kurzzusammenfassung	XV
Abstract	XVI
1 Einleitung	1
1.1 Zielsetzung	1
1.2 Terminologie	2
2 Stand des Wissens	3
2.1 Deckschichtkontrolle bei der Membranfiltration	3
2.1.1 Vermeidungsstrategien - Deckschichtkontrolle durch angepasste Betriebsweisen	4
2.1.2 Reinigungsmaßnahmen - Möglichkeiten zur Ablösung von Deckschichten	6
2.2 Ultraschalltechnologie in Reinigungsanwendungen	8
2.2.1 Geräte zur Leistungsultraschalleinkopplung	9
2.2.2 Hydrodynamische Reinigungsmechanismen des Ultraschalleintrags	13
2.3 Akustische Kavitation	14
2.3.1 Kavitationsblasendynamik der radialsymmetrisch oszillierenden Einzelblase	15
2.3.2 Asymmetrischer Blasenkolllaps	24
2.3.3 Mehrblasensysteme - Blasenwolken	31
2.3.4 Kritik an den Modellen - Grenzen und Möglichkeiten	33
2.3.5 Kontrolle der erosiven Aggressivität der Kavitation	33
2.3.6 Neue Trends in der Kavitationsforschung	34
2.4 Akustische Strömung	36
2.5 Besonderheiten bei der Membranreinigung mit Ultraschall	37
2.6 Einsatz von Leistungsultraschall bei der Mikro-/Ultrafiltration in der Literatur	38
2.6.1 Membranreinigung mit Ultraschall	38
2.6.2 Rückspülung in Kombination mit Ultraschall	46
2.6.3 Ultraschallunterstützte Crossflow-Filtration	46
2.7 Fazit zum Stand der Wissenschaft	48
3 Übersicht über das Versuchsprogramm	49
3.1 Ultraschallunterstützte Crossflow-Filtration	49
3.2 Ultraschallunterstützte Dead-End-Filtration	52
3.3 Ultraschallunterstütztes Rückspülen an einem Kapillarmembranmodul	52
4 Methodik und Material der experimentellen Untersuchungen	54
4.1 Verwendete Membranen	54

4.2	Beschreibung der Versuchsanlagen	55
4.2.1	Testanlage zur druckgetriebenen Filtration mit verschiedenen Testmodulen	55
4.2.2	Testzelle I: Flachmembranmodul mit integrierten Ultraschallwandlern	56
4.2.3	Testzelle II: Flachmembranmodul mit schwingender Bodenplatte und Membran	59
4.2.4	Testanlage zur Filtration in zwei parallel betriebenen Kapillarmembranmodulen	61
4.2.5	Testaufbau für Ultraschallreinigungsversuche bei der Vakuumfiltration	63
4.2.6	Testaufbau zur ultraschallunterstützten Rückspülung im Labormaßstab	65
4.2.7	Testsystem zur Beschallung eines Kapillarmoduls	67
4.2.8	Messgrößen und abgeleitete Größen	69
4.3	Verwendete Ultraschallsysteme	71
4.3.1	Schwingplatten mit Ultraschallwandlern	72
4.3.2	Ultraschallindustrieprozessor 40 kHz	73
4.3.3	Ultraschallindustrieprozessor 20 kHz	79
4.3.4	Ultraschallreinigungsgerät	80
4.3.5	Megaschalltauchschwinger	81
4.4	Schallfeldcharakterisierung	81
4.4.1	Laser-Scanning Vibrometer und Schwingungsmuster	83
4.4.2	Schallfeldvermessung mit einem faseroptischen Sondenhydrophon	86
4.4.3	Visualisierung des Kavitationsfeldes	98
4.5	Bewertungsparameter für die ultraschallunterstützte Filtration	101
4.5.1	Vergleichsparameter für ein bestimmtes Zeitintervall	101
4.5.2	Vergleichsparameter für einzelne Reinigungsvorgänge	102
4.6	Charakterisierung der untersuchten Stoffsysteme	104
4.6.1	Laponite	104
4.6.2	Titandioxid	105
4.6.3	Natürliches Oberflächenwasser	106
4.6.4	Trockenmilch	107
4.6.5	Quarzmehl	108
4.6.6	Abschätzung der Zeit bis zur Ausbildung einer ersten Deckschicht	109
4.6.7	Gassättigung des Rückspülwassers	111
4.7	Methoden zur Bestimmung der Membranintegrität	112
5	Ergebnisse und Diskussion der Experimente	114
5.1	Ultraschallunterstützte Crossflow-Filtration	114
5.1.1	Versuchsreihe: Leistungsultraschalleintrag bei niedrigen und hohen Frequenzen	114
5.1.2	Versuchsreihe: Periodische Ultraschallreinigung bei der Crossflow-Filtration	120
5.1.3	Versuchsreihe: Direkte Körperschallanregung der Membran	126
5.1.4	Versuchsreihe: Periodische Ultraschallreinigung durch direkte Körperschallanregung	137
5.2	Ultraschallunterstützte Dead-End-Filtration	140
5.2.1	Versuchsreihe: Ultraschall bei der Vakuumfiltration	140
5.2.2	Versuchsreihe: Ultraschallunterstütztes Rückspülen im Labormaßstab	147
5.3	Resümee der bisherigen Ergebnisse und Übertragung des Ansatzes des ultraschallunterstützten Rückspülens auf handelsübliche Membranmodule	152
5.4	Ultraschallunterstütztes Rückspülen an einem Kapillarmembranmodul	155
5.4.1	Versuchsreihe: Langzeittests an natürlichem Oberflächenwasser - »Tauglichkeitsprüfung«	155
5.4.2	Membranschädigung bei den Langzeittests	163
5.4.3	Versuchsreihe: Ultraschallunterstützte Rückspülung bei der Trockenmilchfiltration	169
5.4.4	Versuchsreihe: Ultraschallunterstützte Rückspülung bei der Filtration von Titandioxidsuspension	178
5.5	Diskussion der Reproduzierbarkeit der Ergebnisse	181
5.6	Verbesserte Kavitationskontrolle	182

6 Theoretische Überlegungen zur Wirkung von Ultraschall bei der Membranfiltration	184
6.1 Literaturstudie zu makroskopischen Modellen der Filtration und die Möglichkeiten zur Einbindung von Ultraschalleffekten	185
6.2 Mikroskopische Modelle für verschiedene Ultraschallmechanismen in Kombination mit einem Modellansatz für die Querstromfiltration	187
6.2.1 Akustisches Strömen	189
6.2.2 Partikelablösung durch die Vibration der Membranoberfläche	190
6.2.3 Blasenoszillation und resultierende Mikroströmungen	193
6.2.4 Spezialfall asymmetrischer Blaskollaps	203
6.2.5 Visko-inertialer Effekt	204
6.2.6 Vergleich der ultraschallinduzierten Ablösemechanismen	205
7 Vorschläge für technische Anwendungen	207
7.1 Überlegungen zu den Kosten der Technologie	207
7.2 Designvorschläge für selbstreinigende Membranmodule	207
7.2.1 Designvorschlag schwingungstechnisch angeregte Membran	207
7.2.2 Designvorschlag für die ultraschallunterstützte Rückspülung an einem outside-in-betriebenen Kapillarmembranmodul	208
8 Zusammenfassung und Ausblick	211
Anhang 1 - Datenblatt Kapillarmodul	214
Anhang 2 - Adhäsionsmodell DLVO-Theorie	215
Anhang 3 - Einflussgrößen auf die radialsymmetrische Blasendynamik	218
Anhang 4 - Analyse der Schwellenwerte für Kavitation	228
Anhang 5 - Rohwasseranalyse »Dreisam«	229
Literaturverzeichnis	231
Liste der Studien- und Diplomarbeiten	242
Lebenslauf	243

Nomenklatur

Lateinische Buchstaben

Parameter	Bezeichnung	Standardwert	Einheit
a	Beschleunigung der Membran		[m/s ²]
A, A _{US}	Ultraschallschwingungsamplitude		[μm]
A _{max}	Maximale Ultraschallschwingungsamplitude		[μm]
A _M	aktive Membranfläche		[m ²]
A _p	Querschnittsfläche einer sphärischen Partikel		[m ²]
A _{SK}	Querschnittsfläche des freien Strömungskanals über der Membran		[m ²]
c	Konzentration		[g/l]
c _∞	Konzentration des Feedwassers in der Kernströmung		[Gew.-%]
c _{DS}	Konzentration der Deckschicht an der Membranoberfläche		[Gew.-%]
c _{liq}	Schallgeschwindigkeit in Wasser	1482	[m/s]
c _p	Massenkonzentration der Partikel		[g/l]
c _p	Wärmekapazität von Wasser		[J/(K kg)]
c _s	Feststoffkonzentration		[g/l]
c _{US}	Schallgeschwindigkeit in einem Medium		[m/s]
c _w	Schallgeschwindigkeit der Wand/Membran		[m/s]
D	Durchmesser		[mm]
d	Abstand		[mm]
D	Diffusionskoeffizient		[m ² /s]
d _b	Blasenabstand in der Millerschicht		[μm]
d _{Bn}	Blasendurchmesser in der Ruhelage		[μm]
d _p	Partikeldurchmesser		[μm]
e	Momentanwert des spezifischen Energiebedarfs zur Filtration eines bestimmten Volumens		[kWh/m ³]
\bar{e}	Mittelwert des spezifischer Energiebedarfs zur Filtration eines bestimmten Volumens		[kWh/m ³]
F _{ab}	Kräfte, die zu einem Ablösen der Partikel führen		[N]
F _{Ad}	Adhäsions-/Haftkraft		[N]
F _H	Haftkraft		[N]

F_L	Liftkraft		[N]
F_N	Normalkraft auf die Membranoberfläche		[N]
F_R	Reibungskraft		[N]
f_{Res}	Resonanzfrequenz; Resonanzfrequenz einer Blase		[kHz]
F_{res}	resultierende Kraft		[N]
f_{kr}	Grenzfrequenz bezüglich der Schallweiterleitung		[kHz]
F_S	Schleppkraft		[N]
F_T	Trägheitskraft		[N]
f_{US}	Ultraschallfrequenz		[kHz]
F_W	Widerstandskraft eines Partikels		[N]
h	Höhe des Strömungskanals		[m]
I_{US}	Ultraschallintensität		[W/cm ²]
k	Wellenzahl		[1/m]
k	Stoffaustauschkoeffizient		[m/s]
L, l	Länge, Abstand des Blasenentrums von der Wand.		[mm]
L_R	Länge des Hüllrohres für das Kapillarmodul	713	[mm]
m	Masse		[kg]
$m_{DS.nachRV}$	Masse der Deckschicht nach einem Reinigungsvorgang		[g]
$m_{DS.vorRV}$	Masse der Deckschicht vor einem Reinigungsvorgang		[g]
$m_{M.nachRV}$	Masse der Membran nach einem Reinigungsvorgang		[g]
$m_{M.sauber}$	Masse der sauberen Membran		[g]
$m_{M.vorRV}$	Masse der Membran vor einem Reinigungsvorgang		[g]
m_p	Masse einer Partikel		[g]
M_R	Abrollmoment		[Nm]
n	Anzahl		[-]
p_A	Schalldruckamplitude		[kPa]
p_a	Außendruck in der Flüssigkeit, die die Blase umgibt.		[Pa]
p_{amb}	Umgebungsdruck	1×10^5	[Pa]
p_F	Druck am Feedeingang des Membranmoduls		[Pa]
p_G	Gasdruck		[Pa]
P_{hyd}	hydraulische Leistung		[W]
p_i	Druck im Blaseninnenraum		[Pa]
p_{i0}	Innendruck der Blase im Ruhezustand		[bar]
p_K	Druck am Konzentratausgang des Membranmoduls		[Pa]

p_{kr}	Kritischer Unterdruck (Kavitationsschwellenwert)		[bar]
p_p	Druck auf der Permeatseite des Membranmoduls		[Pa]
p_{St}	Staudruck		[Pa]
p_{stat}	statischer Druck, relativer Überdruck im System		[Pa]
P_{US}	Ultraschalleistung (meist elektrische Leistung)		[W]
p_{US}	Schallwechseldruck		[bar]
p_v	Dampfdruck	$2,34 \times 10^3$	[Pa]
p_{Wh}	Wasserhammerdruck		[Pa]
q	Flux bezogen auf die transmembrane Druckdifferenz		[l/(m ² hbar)]
r, R	Radius, Blasenradius, Radius Sonotroden spitze		[m]
R_{ab}	Abstrahlende Fläche des Schallwandlers		[m]
Re	Reynoldszahl		[-]
R_F	Widerstand des irreversiblen Foulings		[m ⁻¹]
R_{DS}	Deckschichtwiderstand, Widerstand des reversiblen Foulings		[m ⁻¹]
R_M	Membranwiderstand		[m ⁻¹]
R_{max}	Maximaler Blasenradius		[m]
R_{Miller}	Blasenradius in der Miller-Schicht		[μm]
R_{Mo}	Radius des Kapillarmembranmoduls	55	[mm]
R_n	Ruheradius der Blase		[m]
r_R	charakteristischer Radius der Rührzelle		[cm]
R_{tot}	Gesamter Filtrationswiderstand		[m ⁻¹]
s	zurückgelegte Strecke der Oberflächenschwingung		[s]
Sc	Schmidtzahl		[-]
Sh	Sherwoodzahl		[-]
T	Temperatur		[°C]
t	Zeit		[s]
T_{US}	Schwingungsdauer des Ultraschalls		[s]
v	Geschwindigkeit der Membranschwingung, lokale Strömungsgeschwindigkeit im Strömungskanal		[m/s]
\bar{v}	mittlere Geschwindigkeit der Mikroströmung im Strömungskanal		[m/s]
v_{cf}	Überströmungsgeschwindigkeit		[m/s]
$v_{FF,max}$	Maximale Überströmungsgeschwindigkeit als Konzentrationsvolumenstrom bezogen auf die freie Querschnittsfläche des Strömungskanals oder der Kapillaren		[m/s]

V_{ges}	Gesamtes Volumen		[l]
v_{jet}	Geschwindigkeit des Flüssigkeitsstrahls		[m/s]
\dot{V}_k	Konzentratvolumenstrom		[l/h]
v_{max}	Maximale Geschwindigkeit der Mikroströmung		[m/s]
v_p	Flux (spezifischer Permeat- bzw. Filtratstrom; Flächenbelastung)		[l/(m ² h)]
$v_{p,kr}$	Grenzflux		[l/(m ² h)]
V_p	Volumen eines Einzelpartikels / Permeatvolumen		[l]
\dot{V}_p	Permeatvolumenstrom		[l/h]
$v_{p,RS,max}$	maximaler Volumenstrom durch die Membran bei der Rückspülung; Rückspülgeschwindigkeit		[l/(m ² h)]; [μm/s]
$V_{RS,tot}$	Gesamtes Rückspülvolumen aus mehreren Rückspülphasen eines Reinigungsvorgangs		[l]
V_w	Wasservolumen		[l]
w_r	Relative Anströmgeschwindigkeit		[m/s]
W_{US}	Elektrischer Energieeintrag für die Erzeugung von Ultraschall		[J]
x	Länge		[m]
$x_{50,3}$	Medianwert des Äquivalentdurchmessers bezüglich der Volumenverteilung		[-]
$x_{50,2}$	Medianwert des Äquivalentdurchmessers bezüglich der Flächenverteilung		[-]
y	Orthogonale Achse zu einer Wand; Wandabstand		[m]
z	Maximale Ausdehnung der Blase bezogen auf den Ruheradiuses R_n		[-]
Z_{liq}	Impedanz des Wassers		[kg/(m ² s)]
Z_M	Impedanz der Membran		[kg/(m ² s)]
Δp_B	treibender Druckunterschied für die Blasenschwingung		[Pa]
ΔP_{hyd}	zusätzliche hydraulische Leistungsbedarf		[W]
Δp_{tm}	transmembrane Druckdifferenz		[bar]
$\Delta p_{tm,RS}$	Transmembrane Druckdifferenz bei der Rückspülung		[bar]
ΔT	Temperaturdifferenz		[°C]
Δt_f	Filtrationszeit		[min]
Δt_{FF}	Dauer der Überströmreinigung		[s]
Δt_{RS}	Dauer der Rückspülung		[s]
Δt_{US}	Dauer der Beschallung		[s]

Griechische Buchstaben

Parameter	Bezeichnung	Standardwert	Einheit
$\Delta\Pi$	Osmotischer Druck		[Pa]
α	Koeffizient für die Pseudorührerleistung		[rad/J]
α	Kräfteverhältnis zwischen ablösenden und ablagern- den Kräften		[-]
δ	Dämpfungskonstante		[1/cm]
δ	Hebelarm		[m]
ε	Veränderungsfaktor des spezifischen Energiebedarfs		[-]
ϕ	Fluxverbesserung für ein Zeitintervall bei der Filtrati- on mit Ultraschall gegenüber der Filtration ohne Ultra- schall		[-]
γ	Dimensionsloser Wandabstand der Kavitationsblase		[-]
η	dynamische Viskosität des Fluids	1×10^{-3}	[Pa s]
κ	Reinigungseffizienz; relative Fluxverbesserung eines einzelnen Reinigungsvorgangs (vorher; nachher)		[-]
κ	Isentropenkoeffizient	5/3	[-]
λ	Wellenlänge		[μm]
ν	kinematische Viskosität der Flüssigkeit	$1,002 \times 10^{-6}$	[m^2/s]
ρ_{liq}	Fluiddichte	998	[m^3/kg]
ρ_{p}	Dichte einer Partikel		[kg/m^3]
σ	Oberflächenspannung der Blase	$72,75 \times 10^{-3}$	[N/m]
σ_{in}	Standardabweichung bei einer Partikelgrößenvertei- lung		[-]
τ_{w}	Wandschubspannung		[Pa]
ν	Sauberkeitsgrad bzw. Wiedererreichen des ursprüng- lichen Reinwasserflusses für einzelne Reinigungsvor- gänge		[-]
ν_{m}	Massenbezogener Sauberkeitsgrad; Wiedererreichen der Masse der sauberen Membran ohne Deckschicht für einzelne Reinigungsvorgänge		[-]
ω_{US}	Pseudorührerdrehzahl, Kreisfrequenz der Ultra- schallwelle		[1/s]

Indizes

Index	Bezeichnung
Ad	Adhäsion
Abrollen	Partikelablösung durch Abrollen
Anheben	Partikelablösung durch Anheben
cf	Crossflow
DS	Deckschicht
F	Feed
F	Filtration
FF	Forward Flush – Überströmung
GS	Grenzschicht
hyd	Hydraulisch
i	Zählindex
K	Konzentrat
kr	kritisch - Grenzwert
L	Lift
liq	flüssig - Fluid
M	Membran
max	Maximalwert
Mo	Modul
MS	Megaschall
mUS	mit Ultraschall
n	Normal - Ruhezustand
nachRV	nach dem Reinigungsvorgang
oUS	ohne Ultraschall
P	Partikel
P	Permeat
R	Reibung
R	Rollen
RS	Rückspülung
RWF	Reinwasserfluss
S	Solid – Feststoff
Sauber	saubere Membran (ursprünglicher Zustand einer neuen Membran)
SK	Strömungskanal
stat	statisch
tm	transmembran

tot	total – gesamt
US	Ultraschall
V	vapour - Dampf
vorRV	vor dem Reinigungsvorgang
W	Wand
W	Widerstand
B	Blase
Wh	Wasserhammer
St	Stau
Res	Resonanz
Vibration	Partikelablösung durch Vibration

Abkürzungen

Abkürzung	Bezeichnung
CTA	constant temperature anemometry
DI-Wasser	deionisiert, partikelfreies Laborwasser
DOC	Gelöster organischer Kohlenstoff - dissolved organic carbon
DS	Deckschicht
FF	Überströmreinigung- forward flush
FOSH	Faseroptisches Sondenhydrophon
KBE	Koloniebildende Einheiten
LC-OCD	differenzierte Analytik des gesamten organischen Kohlenstoffs mit Flüssigkeitschromatographie - Liquid Chromatography - Organic Carbon Detection
M	Membran
Mo	Modul
MP	Messpunkt
MPN	wahrscheinlichsten Keimzahl - most probable number
MS	Megaschall
MWCO	molecular weight cut off
NOM	Natürliches organische Partikelfracht; Natural organic matter
oUS	ohne Ultraschall
P	Partikel
PAA	Polyacrylamid
PESM	Modifiziertes (dauerhaft hydrophilisiertes) Polyethersulfon
PMMA	Polymethyl-2-methylpropenoat
PTV	particle tracer velocimetry
PVC	Polyvinylchlorid
PVC-U	Polyvinylchlorid - hart; polyvinyl chloride - unplasticized
PVDF	Polyvinylidenfluorid
PZT	Bleizirkonattitanat
RV	Reinigungsvorgang
RWF	Reinwasserfluss
SK	Strömungskanal
TOC	Anteil des gesamten organischen Kohlenstoffs - total organic carbon
UF	Ultrafiltration
US	Ultraschall
Sh	Sherwood-Zahl

Re	Reynoldzahl
Sc	Schmidt-Zahl

Kurzzusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden die Verbesserungsmöglichkeiten der Mikro- und Ultrafiltration durch Ultraschall untersucht.

Für die Analyse möglicher Mechanismen der Ultraschalleinkopplung, die zu einer Verbesserung der Membranfiltration führen könnten, wurden im »Stand des Wissens« (Kap. 2) wichtige Erkenntnisse aus den beiden Technologiefeldern (Ultraschalltechnik und Membranfiltration) zusammengetragen. Dabei hat sich gezeigt, dass insbesondere in den Bereichen Medizin und Physik bereits ein tiefes Verständnis der Ultraschallvorgänge vorhanden ist. In die technische Anwendung des Ultraschalls zur Verbesserung der Membranfiltration hat dieses Know-how bislang nur wenig Einzug gehalten (Kap. 2.6).

Für die Vielzahl der Ansätze zur Nutzung des Ultraschalls in der Membranfiltration wurde eine Systematik entwickelt. Zahlreiche Ansätze wurden in orientierenden Experimenten untersucht und bewertet (Kap. 5). Ein wichtiger Aspekt bei der Bewertung der Methoden bestand in der Skalierbarkeit der Technologiekombinationen.

Die Einkopplung von Ultraschall in den Strömungskanal bei der Crossflow-Filtration war in den verwendeten Membrantestzellen nahezu wirkungslos (Kap. 5.1). In Filtrationspausen konnte hingegen ein guter Reinigungseffekt festgestellt werden. Als Hauptakteure der Reinigungswirkung wurden gut sichtbare Bläschen in der Größenordnung von 10-500 μm identifiziert, die über längere Zeit beobachtbar waren, und bei ihren Translationsbewegungen über die Membran gereinigte Spuren hinterlassen haben (Kap. 5.1.2; Bild 5-8). Mit der Identifikation dieses wichtigsten Reinigungsmechanismus konnte geklärt werden, warum der Ultraschalleintrag bei der Crossflow-Filtration keine Fluxverbesserung erzielt. Die hohen Querstromgeschwindigkeiten und der feedseitige Druck verhindern die Entstehung und Aktivität solcher reinigenden Blasen auf der Membran.

Als ein weiterer wirkungsvoller Reinigungseffekt konnte die direkte Körperschallanregung von keramischen Membranen identifiziert werden. Hierbei verhindern jedoch bislang die technischen Probleme der Schallankopplung eine Maßstabsübertragung auf industrielle Anwendungen (Kap. 5.1.4).

Die erfolgreichste Methode stellt die durch Ultraschallreinigung unterstützte Rückspülung dar. Auf Basis dieser Erkenntnisse wurde eine Übertragung der Ultraschallreinigung auf ein handelsübliches Kapillarmembranmodul durchgeführt (Kap. 5.3). Bei ersten Filtrationsversuchen mit natürlichem Oberflächenwasser konnten Schäden an der Membran festgestellt werden, die auf eine lokale Kavitationsstruktur an der Ankopplungsstelle des Ultraschallwandlers zurückzuführen waren (Kap. 5.4.2). Bei geringeren Ultraschalleistungen und bei der Nutzung höherer Frequenzen traten keine Schäden an der Membran auf. Im Vergleich zu einem Referenzmodul konnten deutliche Verbesserungen durch die Einkopplung des Ultraschalls an verschiedenen Stoffsystemen nachgewiesen werden.

Zur genaueren Analyse des Schallfeldes wurden Schallfeldmessungen mit einem faseroptischen Sondenhydrophon, Messungen der Schwingungsamplituden mit einem Vibrometer und Visualisierungen für die Kavitationszonen durchgeführt.

Die wichtige Bedeutung der oszillierenden Blasen für die Reinigung bestätigt sich in einfachen Modellrechnungen in Kapitel 5, bei denen die verschiedenen ultraschallinduzierten Strömungseffekte

fekte auf ihr Reinigungspotenzial hin verglichen werden. Die durch die Oszillationsbewegungen der Blasenwand verursachten Mikroströmungen bieten das Potenzial, selbst die kleinsten Partikelfractionen abzulösen. Das Problem bei dieser Reinigungsmethode besteht in der Schwierigkeit, die Art der Blasendynamik, die Häufigkeit und den Ort des Auftretens von reinigungswirksamen Blasen möglichst positiv zu beeinflussen.

Die durchlässige Membran ermöglicht neue Ansätze zur Kontrolle der erosiven Kavitationsaggressivität. Es wurden Experimente durchgeführt, bei denen durch die Einstellung unterschiedlicher Druckverhältnisse von Feedseite zu Permeatseite, die Blasendynamik beeinflusst wurde und Effekte wie ein Absaugen oder Wegspülen der oszillierenden Bläschen untersucht wurden. Die Durchlässigkeit der zu reinigenden Oberfläche wurde genutzt, um mit der Sättigung an physikalisch gelösten Gasen die Stärke und Häufigkeit des Blasenkollapses zu beeinflussen.

Die Arbeit schließt mit Vorschlägen für Membranmodule mit integriertem Leistungsumschall, die aus technischer Sicht empfehlenswert erscheinen.

Abstract

In this thesis the possibilities for improvement of micro- and ultrafiltration via ultrasound were examined. Key findings were collected from the two fields of technology (membrane filtration and ultrasound) in the »state of knowledge« (Chapter 2) for the analysis of possible mechanisms of ultrasound that could lead to an improvement of membrane filtration. It showed that there is already profound understanding of the ultrasonic operations particular in the fields of medicine and physics. In the industrial use of ultrasound to improve the membrane filtration, this expertise is not wide spread (Chapter 2.6).

For the most important approaches of the use of ultrasound in membrane filtration, a system was developed. Numerous approaches have been investigated experimentally in exploratory experiments and evaluated (Chapter 5). An important aspect for the evaluation of the methods was the scalability of the technology combinations.

The ultrasonic irradiation into the flow channel of a membrane test unit during cross-flow filtration had virtually no effect (Chapter 3.1). In contrast a good cleaning effect could be found during filtration breaks. Clearly visible bubbles in the order of 10-500 microns were identified to have the most important role for the cleaning effect. They could be observed for a long time and left purified traces while moving across the membrane (Chapter 5.1.2 and Figure 5-8). With the identification of this main cleaning mechanism it could also be clarified why the ultrasound irradiation during cross-flow filtration has no effect. The reason is that the bubble activity is suppressed by high cross-flow velocities and the feed pressure.

As another effective cleaning mechanism the stimulation of ceramic membranes with solid-borne sound could be identified. Here, however, technical problems with the coupling of the ultrasonic transducer so far prevent the scale-up to industrial use (Chapter 5.1.4).

The most successful method is the ultrasonically enhanced backwash. Based on these findings, a scale-up of ultrasonic cleaning was carried out with a commercial capillary membrane (Chapter

5.3). In initial filtration experiments with natural surface water membrane damages could be detected, which were due to a local cavitation streamer at the coupling point of the ultrasound transducer (Chapter 5.4.2). No membrane damages occurred when using lower ultrasonic power and higher ultrasonic frequencies. In comparison to a reference module without ultrasound significant improvements by the ultrasound irradiation could be detected in various fluid systems.

For a more detailed analysis of the sound field measurements of the acoustic pressure with a Fiber Optic Probe, measurements of the oscillation amplitudes with a vibrometer and visualizations of the cavitation were realized.

The importance of the oscillating bubbles for cleaning is confirmed by simple model calculations in Chapter 5. The various ultrasound-induced flow effects are compared regarding their potential towards cleaning. Microstreams caused by the oscillating movements of the bubble wall have the potential to detach even the smallest particle fractions. The problem of this cleaning method is that it is hard to influence the nature of the bubble dynamics, the occurrence and the location of the appearance of effective cleaning bubbles.

The permeable membrane allows new approaches to control the erosive aggressiveness of the cavitation. Experiences were carried out to influence the bubble dynamic and investigate effects like sucking in or washing away oscillating bubbles by varying the pressure relation between feed and permeate side. The permeability of the cleaned surface was used to affect the intensity and frequency of the bubble collapse via the saturation of physically dissolved gases.

The thesis concludes with suggestions for membrane modules with integrated power ultrasound, which appear advisable from a technical point of view after the experimental and theoretical work.

1 Einleitung

Die Arbeitsgruppe »Dezentrale Wasseraufbereitung« am Fraunhofer Institut für Solare Energiesysteme hat die Entwicklung autarker, solar betriebener Wasseraufbereitungssysteme zum Ziel. Die Mikro- und Ultrafiltration wurde aufgrund ihrer kompakten Bauweise und hohen Verlässlichkeit als eine interessante Aufbereitungstechnik für solche Systeme identifiziert. Für den Einsatz an entlegenen Standorten soll das Filtrationssystem ohne weitere Betriebsmittel auskommen. Die Reinigung der Membran wird in der Regel jedoch mit entsprechenden Chemikalien unterstützt und ein gutmütiges Filtrationsverhalten häufig durch eine vorgeschaltete Flockung erreicht. Hieraus entwickelte sich die zentrale Fragestellung dieser Arbeit:

Lassen sich bei der Mikro- und Ultrafiltration von Oberflächenwasser höhere Filtratflüsse und ein dauerhafter Betrieb mit der rein mechanischen Methode des Ultraschalleinsatzes zur Deckschichtkontrolle auf der Membran erzielen?

1.1 Zielsetzung

Ziel dieser Arbeit ist es, die Möglichkeiten zur Verbesserung der Membranfiltration durch Leistungsumschall experimentell zu untersuchen, die vorherrschenden Mechanismen von Ultraschall zur Membranreinigung zu beschreiben und daraus Empfehlungen für die Skalierung der Methoden auf die Größenordnung handelsüblicher Membrananlagen zu erstellen. Dazu werden in der Arbeit die Kombinationsmöglichkeiten von Leistungsumschalltechnik und Membranverfahren systematisiert. Für die Abschätzung der Reinigungswirksamkeit von verschiedenen Ultraschallmechanismen werden einfache Modelle entwickelt. Die Ergebnisse sollen für zukünftige wissenschaftliche Arbeiten in diesem Bereich und mögliche technische Realisierung eine Orientierung bieten.

- Schwerpunktmäßig wurden Untersuchungen an Keramik- und Polymermembranen mit einer Porengröße von etwa $0,1 \mu\text{m}$ durchgeführt, womit man sich im Grenzbereich zwischen feiner Mikrofiltration und grober Ultrafiltration befindet. Es wurden keine Metallmembranen untersucht.
- Die Verwendung leistungsstarker Ultraschallindustrieprozessoren mit Schallschnelletransformatoren (Sonotroden) wurde als Ultraschalltechnologie bevorzugt betrachtet. Aufgrund der Materialeigenschaften der Sonotroden liegen hier die Frequenzen im Bereich von 20 – 40 kHz. Experimente bei höheren Frequenzen mit Megashall- und Reinigungsumschallgeräten konnten zusätzlich durchgeführt werden.
- Bei der Wahl des Stoffsystems lag der Fokus auf Anwendungen im Bereich der Trinkwasseraufbereitung. Daher wurde meist mit geringen Feststoffkonzentrationen gearbeitet.
- Die Modulgeometrie war anfangs offen und wurde anhand der experimentellen Ergebnisse weiter eingeschränkt.
- Aufgrund der weniger erfolgreichen Ansätze der kontinuierlichen Deckschichtvermeidung (Kap. 3.1) liegt der Schwerpunkt der Arbeit bei der Untersuchung spezieller Reinigungsmaßnahmen mit Ultraschall.

1.2 Terminologie

Insbesondere in der technischen Anwendung der Kavitation werden teilweise wenig eindeutige und uneinheitliche Begriffe verwendet, wie die so genannte »weiche«, »harte« oder »echte« Kavitation. Die Differenzierung in »Gasblasenoszillation« und »Dampfblasenkavitation« suggeriert, dass es eine scharfe Unterscheidung dieser Typen gibt. Diese begriffliche Differenzierung kommt aus dem Bereich der physikalischen Beschreibung und Modellierung. In technischen Systemen sind jedoch meist Mischformen oder verschiedene Formen nebeneinander zu erwarten. Das gilt auch für die Begriffe »stabile« und »transiente« Kavitation. Bewusst werden diese Begriffe daher weitestgehend vermieden. Die Auswirkungen der Kavitation in Bezug auf die Erosionswirkung, Druckwellen, Strahlströmungen (Jets) und Mikroströmungen sind von der Heftigkeit des Blasenkollapses abhängig. Die Betrachtung der Blasendynamik in Kapitel 2.3.1 zeigt die Einflussparameter auf die Art der Blaseschwingung. Der Übergang zwischen sinusähnlichen Schwingungen und einem Kollapsverhalten ist fließend. In dieser Arbeit wird daher von Blasenoszillation bzw. heftigem oder vehementem Blasenkollaps gesprochen.

Ähnliches gilt für die englische Übertragung der Begriffe »microstreaming«, »microstreamer«, »jet streams« und »acoustic streaming«. In dieser Arbeit werden die Begriffe wie folgt verwendet (in Anlehnung an VanBavel 2007):

- »Mikroströmung« wird als Sammelbegriff für alle durch die Radiusveränderung der Blasen verursachten Flüssigkeitsströmungen verwendet.
- »Jet-Strom« ist der Flüssigkeitsstrahl beim asymmetrischen Kollaps einer Kavitationsblase
- »Akustisches Strömen« oder »akustische Strömungen« sind makroskopische Strömungsvorgänge mit besonderen Eigenschaften, die durch die Absorption von Schallenergie in der Flüssigkeit verursacht werden.
- Bezieht sich die Bewegung auf die Ortsveränderung der Blase selbst, wird von »Blasenwanderung« gesprochen.
- Von dem Schallwechseldruck hervorgerufene »Molekülbewegungen« werden als solche benannt (häufig im Zusammenhang mit der Schallschnelle).
- Auftretende Wirbelströmungen aufgrund von oszillierenden Oberflächen (in Schwingung versetzte Membranoberfläche) werden wie bei den oszillierenden Blasen als »Mikroströmungen« bezeichnet.
- Die verschiedenen Kavitationsfiguren werden in Anlehnung an Mettin (2005) beschrieben. Die Figur des »microstreamers« gehört hierzu.

2 Stand des Wissens

Für die Technologiekombination »Membranreinigung mit Ultraschall« werden die beiden wissenschaftlichen Themenfelder Membranfiltration und Ultraschallreinigungstechnologie betrachtet. Im Folgenden sollen die wichtigsten Erkenntnisse aus beiden Bereichen vorgestellt werden, die für die vorliegende Arbeit von Interesse sind. Die physikalischen Grundlagen der Partikeladhäsion spielen in beiden Disziplinen für das Verständnis der Ablöse- und Reinigungsvorgänge eine wichtige Rolle. Ein wichtiges Modell der Partikeladhäsion wird in Kapitel 5 für die Abschätzung der Reinigungswirksamkeit verschiedener Ultraschallmechanismen genutzt. Zunächst werden die bekannten Maßnahmen zur Deckschichtkontrolle daraufhin beleuchtet, an welchen Stellen und inwiefern Ultraschall hier unterstützend eingesetzt werden kann. Anschließend wird auf die Ultraschalltechnologie und die wichtigsten Gerätetypen zur Erzeugung Leistungsultraschall eingegangen. In dem Kapitel 2.3 wird der aktuelle Stand der Kavitationsforschung aufgezeigt und wichtige Aspekte der Blasendynamik für den Bereich der ultraschallunterstützten Membranfiltration zusammengestellt. Auf den Stand der Wissenschaft innerhalb des konkreten Themenfelds »Ultraschalleinsatz bei der Membranfiltration« wird in dem Kapitel 2.6 eingegangen.

Bei dem Eintrag von Ultraschall in eine Flüssigkeit oder die Übertragung von hochfrequenten Schwingungen auf eine Membran treten eine Reihe von Phänomenen auf, die für die Verbesserung der Filtration von Bedeutung sein können: Vibration der Oberfläche, visko-inertiale Effekte, akustisches Strömen, Kavitation und Mikroströmungen an kollabierenden und oszillierenden Blasen, sowie Temperaturerhöhung und dispergierende Wirkung auf das Partikelregime. Mit der folgenden Analyse anhand der Literatur sollen die wichtigsten Ansatzpunkte für eine Verbesserung der Membranfiltration durch Ultraschall herausgearbeitet werden und ein Einblick in die relevanten Themengebiete gegeben werden.

2.1 Deckschichtkontrolle bei der Membranfiltration

Feinste Partikel werden entsprechend der Trenngrenze einer Membran abgeschieden und bilden eine Deckschicht. Die Kontrolle der Deckschicht ist für alle Membranfiltrationsvorgänge der entscheidende Aspekt bezüglich der Funktionsfähigkeit, Dauerhaftigkeit und Effizienz des Trennprozesses. Hilal, Ogunbiyi et al. (2005) haben die Möglichkeiten zur Foulingkontrolle bei Mikro- und Ultrafiltrationsprozessen zusammengetragen. Die Deckschichtbildung hängt von den Stoffeigenschaften des Ausgangsprodukts (Partikelgröße, -konzentration, pH-Wert, Ionenstärke), den Membraneigenschaften (Hydrophobizität, Ladung, Porengröße) und der Hydrodynamik (Querstromgeschwindigkeit, transmembrane Druckdifferenz) ab. Um die Filtrationswirkung langfristig aufrecht zu halten, die Trennschärfe zu beeinflussen und zur Begrenzung des Einsatzes von Betriebsmitteln und Energie, werden in der Membranfiltration unterschiedlichste Maßnahmen zur Deckschichtkontrolle ergriffen. In der Regel wird aufgrund von Filtrationsversuchen im Labor- und Technikumsmaßstab über die notwendigen Maßnahmen entschieden. Dazu gehören physikalische oder chemische Anpassungen des Ausgangsprodukts, die Wahl der Membran und der Modulgeometrie, die Wahl und Anpassung der Betriebsführung und die Verwendung spezieller Reinigungsmaßnahmen.

Mittels chemischer und physikalischer Veränderung des Ausgangsproduktes beispielsweise durch Zugabe von Flockungshilfsmitteln und durch pH-Wert-Anpassungen wird die Partikelgröße zu größeren Agglomeraten verschoben. Aus der Zielstellung (Kap. 1.1) ergibt sich, dass die Zugabe von Chemikalien vermieden werden soll. Daher wird dieser Aspekt in dieser Arbeit nicht weiter betrachtet.

Die Membraneigenschaften spielen für die Ultraschallreinigung eine wichtige Rolle. Neben den Eigenschaften, die den Filtrationsprozess beeinflussen, bekommen zusätzlich die Aspekte der Oberflächenhärte und Widerstandsfähigkeit gegen die Erosionswirkung der Kavitation, sowie Schalldämpfungs- und Schallreflexionseigenschaften eine wichtige Bedeutung.

Bei der Entwicklung der Membranmodulgeometrie ist ein Optimierungsziel neben den Anforderungen an geringe Kosten und geringen Platzbedarf die Kontrolle der Deckschicht. Hierbei werden im Wesentlichen zwei Philosophien vertreten. Bei der Inside-out-Betriebsweise wird das Rohwasser ins Innere beispielsweise einer Rohrmembran gedrückt. Die Partikel scheiden sich an der Innenseite ab. Bei dieser Verfahrensweise werden die gut definierten Strömungsverhältnisse im Rohr zur Deckschichtkontrolle genutzt. Es sind zumeist Ausführungen als Kapillar- oder Rohrmembran anzufinden. Das günstige Flächenverhältnis von größerer Außenfläche zu der kleineren Fläche der Innenseite verstärkt die Wirksamkeit der Rückspülung, da die Strömungsgeschwindigkeit mit abnehmender Mantel- bzw. Querschnittsflächen zunimmt. Dafür muss das Risiko einer Verstopfung (Plugging) von Kapillaren in Kauf genommen werden (Panglisch 2001). Die umgekehrte Philosophie bei den Modulen für den Outside-in-Betrieb setzt auf weniger gut definierte Strömungsverhältnisse bei der Überströmung, dafür kann eine Verstopfung ausgeschlossen werden. Die gute Zugänglichkeit der Deckschicht von außen erlaubt bei getauchten Membranmodulen eine Reihe mechanischer Reinigungsstrategien, z.B. lässt sich eine mehrphasige Überströmung zur Reinigung realisieren, um lokal hohe Überströmungsgeschwindigkeiten zu erzeugen. Die Zugänglichkeit der Membranoberfläche erlaubt auch den Einsatz von üblichen Ultraschallreinigungsbädern zur Reinigung. Bei Modulen, in denen Flachmembranen verbaut sind, wie bei Kissen-, Wickel-, Flachmembranmodulen ist die Rückspülbarkeit nur in wenigen Fällen möglich. In Kapitel 4.1 wurden Versuche mit einer rückspülbaren, keramischen Flachmembran durchgeführt. Ein anderes rückspülbares Membranmodul aus Polyethersulfon kommt in Versuchen zur ultraschallunterstützten Rückspülung von Lauterborn (2008) zum Einsatz.

Entscheidend für die Betriebsführung ist die Wahl und Optimierung der Parameter Druck, Temperatur, Überströmungsgeschwindigkeit, Flux und Festlegung von Filtrations- und Reinigungsintervallen. Dabei stellt die Dead-End-Filtration einen Sonderfall der Querstromfiltration dar. Bei der Dead-End-Filtration kommt am äußersten Ende des Membranmoduls die Überströmungsgeschwindigkeit zum Erliegen. Bei der Wahl der Betriebsführung wird üblicherweise entschieden, ob der Prozess bei konstantem Druck oder konstantem Flux betrieben wird.

2.1.1 Vermeidungsstrategien - Deckschichtkontrolle durch angepasste Betriebsweisen

Eine Strategie zur Deckschichtkontrolle besteht darin, die Ausbildung von Deckschichten durch angepasste Betriebsweisen zu vermeiden oder so weit wie möglich zu reduzieren. Für alle üblichen Membrantypen lassen sich sowohl die Querstrom- als auch die Dead-End-Filtration durchführen. Eine Dead-End-Filtration ist nur sinnvoll, wenn die Membran und der Modulaufbau auch Reinigungsmethoden zulassen. Üblicherweise gehören zu diesen periodisch durchgeführten Reinigungsmethoden das Rückspülen und das mehrphasige Überströmen (Kap. 2.1.2). Bei der Crossflow-Filtration wird durch die Membranüberströmung das Anlagern von Partikeln teilweise verhindert. In speziellen Filterapparaten werden diese Bedingungen auch durch oszillierende Filtergehäuse, Rührern oder rotierende Filterscheiben erzeugt. Kapitel 5 geht auf die Kräfte, die eine Ablagerung von Partikeln durch die Relativbewegung zwischen Fluid und Membran verhindern, näher ein. Hohe Überströmungsgeschwindigkeiten begrenzen den Deckschichtaufbau, bis sich ein Gleichgewicht aus Abtrag der Deckschicht und Anlagerung einstellt. Häufig stellt die Querstromfiltration mit hohen Überströmungsgeschwindigkeiten die einzige Möglichkeit dar, schwerfiltrierbare Stoffe bei nennenswerten Durchflüssen zu filtrieren (Ripperger 1992). Nachteilig an die-

sem Filtrationsbetrieb ist der hohe spezifische Energiebedarf (vgl. Glg. 4-5) zur Erzeugung hoher Querstromgeschwindigkeiten, da eine Steigerung der Querstromgeschwindigkeit mit einer Erhöhung des Druckverlustes verbunden ist. Beim Einsatz von Ultraschall zur Intensivierung der Strömungsvorgänge an der Membranoberfläche ist dieser unerwünschte Druckverlust nicht zu erwarten (vgl. Kap. 3.1).

Zur besseren Deckschichtkontrolle wird oft ein Betrieb mit konstanter Flux gewählt. Bei einer Betriebsführung mit konstanter transmembraner Druckdifferenz sind die Anströmungsverhältnisse nicht konstant und damit der Deckschichtaufbau schlechter kontrollierbar.

Der Betrieb des Filtrationsprozesses bei sehr geringen Flux beeinflusst die Deckschicht in mehrfacher Hinsicht positiv. Es ergibt sich eine geringere Feststofffracht pro Flächeneinheit. Aufgrund geringerer Schleppkräfte (Altmann 2000, Panglisch 2001) bewirkt eine niedrigere Flächenbelastung einen langsameren und durchlässigeren Deckschichtaufbau. Bei gleichzeitiger Überströmung können größere Partikel in der Kernströmung verbleiben ohne sich abzulagern. Der geringere aufzuwendende Druck bei geringem Flux ermöglicht einen energieeffizienten Betrieb. Der geringere Druck führt dazu, dass die Deckschicht wenig verdichtet wird und durchlässiger bleibt als bei hohem Flux. Die Auslegung von Anlagen mit geringer Flux bedeutet, dass große Membranflächen verbaut werden, um den erforderlichen Filtratvolumenstrom zu erreichen. Lange Zeit waren die Membranen so teuer, dass aus wirtschaftlichen Gründen möglichst wenig Membranfläche verbaut werden sollte. Die Umsetzung von Betriebsweisen mit geringem Flux ist erst durch Fortschritte in den Produktionsmethoden und einer deutlichen Kostensenkung von Membranen möglich geworden.

Eine spezielle Crossflow-Betriebsführung stellt die UTP-Filtration (uniform transmembrane process pressure) dar. Es handelt sich um eine Querstromfiltration, bei der auf der Filtratseite eine gleichgesinnte Strömung über die Modullänge realisiert wird. Die Strömungsverhältnisse sollen dabei so eingestellt werden, dass der Druckverlust der Überströmung entlang der Membran auf Feed- und Filtratseite gleich groß ist. Somit stellt sich über die ganze Membranlänge der gleiche transmembrane Druck ein. Der Flux kann mit dieser Methode tatsächlich als lokal konstante Flächenbelastung verstanden werden und nicht als Mittelwert über das Modul. Durch die Vereinheitlichung des Fluxes bildet sich auch die Deckschicht gleichmäßiger aus. Die UTP-Betriebsweise ist energieintensiv und mit hohem apparativem Aufwand verbunden. Es wird daher versucht, den gleichen Effekt einer über die ganze Membranlänge konstanten Flächenbelastung durch die Einstellung eines konstanten treibenden Druckgefälles in Gradientenmembranen zu erreichen. Ansätze bestehen darin, den Membranwiderstand über die Länge von der Eingangs- zur Ausgangsseite graduell zu erniedrigen. Dazu wird entweder die Dicke der aktiven Membranschicht oder die Dicke der Unterstützungsschicht verringert. Die Umsetzung solcher Gradientenmembranen ist bisher nur für keramische Mehrkanalmembranen bekannt. Wenn es dem Hersteller solcher Membranen gelingt, den Widerstandsgradienten des Membranmaterials dem Strömungswiderstand der Membrankanäle anzupassen, so gibt es für die Paarung aus zu filtrierendem Fluid und Gradientenmembran nur einen Arbeitspunkt, bei dem sich der gewünschte Effekt einstellt. Dieser Arbeitspunkt entspricht einer bestimmten Strömungsgeschwindigkeit und einem bestimmten Druck am Eingang der Membran in Abhängigkeit von dem Stoffsystem. Ein über die ganze Membranfläche gleichmäßiger Deckschichtaufbau verbessert auch die Wirksamkeit einer Rückspülung. Es ist vorstellbar, die Ultraschalleinkopplung so zu gestalten, dass sich das Schallfeld über die Lauflänge der Membran graduell verstärkt und so die Effekte der Volumenstrom- und Druckabnahme über die Lauflänge der Membran ähnlich der UTP-Filtration ausgeglichen werden.

Weitere spezielle Betriebsarten, deren Kombination mit Ultraschall hier nicht untersucht wurde, sind die Filtration mit Überlagerung eines elektrischen oder magnetischen Feldes und die Querstromfiltration mit rotierenden Einbauten wie Rührzellen oder Rotationsscheibenfiltern.

Bei der Dead-End-Filtration wird der Deckschichtaufbau nicht vermieden. Der Deckschichtaufbau muss periodisch rückgängig gemacht werden. Die periodische Reinigung stellt eine weitere Betriebsweise zur Deckschichtkontrolle dar. Auch bei allen anderen Betriebsweisen kann es wichtig sein, die Deckschicht zu entfernen. Hierzu kommt eine Vielzahl von Reinigungsmaßnahmen in Frage. In dieser Arbeit werden ausschließlich mechanische Reinigungsmaßnahmen betrachtet. Hierzu gehören das einphasige und mehrphasige Überströmen, das Rückspülen und die Ultraschallreinigung, die hier im Fokus der Untersuchung steht.

2.1.2 Reinigungsmaßnahmen - Möglichkeiten zur Ablösung von Deckschichten

Ebrahim (1994) hat chemische und physikalische Reinigungs- und Regenerationsmethoden für Membranen im Bereich der Abwasseraufbereitung und Entsalzung zusammengetragen.

Der in Kapitel 2.1.1 erläuterte Effekt, dass eine geringere Flächenbelastung in Folge einer vergrößerten Membranfläche einen gutmütigeren Filtrationsverlauf ermöglicht, stellt gleichzeitig höhere Anforderungen an die Reinigungsmethode. Die Deckschicht ist aufgrund der geringen Flächenbelastung, des geringeren Drucks und der geringeren Feststofffracht pro Fläche zwar nicht stark ausgeprägt, dafür stellt es eine sehr schwierige Aufgabe dar, für die größere Fläche eine gleichmäßige Reinigung zu erzielen. Insbesondere Rückspülungen erweisen sich als effektiver, wenn sich eine gleichmäßige Deckschicht ausgebildet hat, die durch die Rückspülung in größeren Bruchstücken abgetragen werden kann (Altmann 2000). Im Bereich der Trinkwasserfiltration, bei der häufig Dead-End-Fahrweisen anzutreffen sind, stellt die Verwendung großer Membranflächen und kleiner Flächenbelastungen eine Maßnahme dar, den spezifischen Energiebedarf (vgl. Glg. 4-5 und Glg. 4-6) zu senken.

Im Bezug auf die Ultraschalltechnik erschwert der Trend zu größeren Membranflächen einen wirtschaftlichen Einsatz dieser kostenintensiven Technologie. Die bisher ungelöste technische Herausforderung besteht darin, über große Oberflächen ein möglichst gleichmäßiges, intensives Schallfeld zu realisieren.

Die Besonderheiten und Funktionsweisen der drei Grundtypen der mechanischen Membranreinigung (Rückspülen, Überströmen, mehrphasiges Überströmen) sind im Folgenden kurz dargestellt.

Membranreinigung durch Rückspülen: Rückspülungen können nur an dafür geeigneten Membranen durchgeführt werden. Grundproblem ist, dass in der Regel die Feedseite der Membran nicht durch Abstandshalter oder eine Unterstützungsschicht mechanisch stabilisiert ist. Bei einigen Composite-Membranen sind Trägersubstrat und aktive Membran nicht gut genug verbunden, so dass eine Durchströmung gegen die Filtrationsrichtung zur Ablösung der beiden Membranbestandteile führt und die Membran zerstört. Bei keramischen Membranen können Rückspülungen je nach Sinterungsart zum Abplatzen der eigentlichen Membranschicht führen. Bei der aktiven Trennschicht - vor allem bei UF- und NF- Keramikmembranen - handelt es sich meist um eine dünne, poröse Schicht aus feindispersen Partikeln. Wenn die Sinterung und die Verbindung zur grobdispersen Trägerschicht nicht ausreichend stabil sind, kann es bei der Rückspülung zum Abplatzen der eigentlichen Membranschicht kommen und dadurch die Membran zerstört werden.

Aufgrund ihrer Geometrie waren Flachmembranmodule und Kissenmodule als Polymermembranen bisher für die Rückspülung wenig geeignet. Da die Membran auf der Feedseite nicht mechanisch unterstützt ist, blähen sich die Polymerflachmembranen bei einer Rückspülung auf.

Eine neue, spezielle Verbindungstechnik von der Membran mit dem permeatseitigen Unterstützungsmaterial ermöglicht nun auch das Rückspülen von Kissenmodulen aus Polymerflachmembranen. Gut geeignet sind Kapillar-, Hohlfaser- und Rohrmembranen für die Rückspülung. Bei diesen Membrantypen ist die Membranfläche in viele kleine Flächen - den Mantelflächen der zylindrischen Geometrien - unterteilt. Dadurch treten bei gleichen Rückspüldruck kleinere Kräfte als an nicht unterteilten Flachmembranen auf. Die röhrenförmigen Membranen sind daher meist ausreichend stabil, um in beide Richtungen durchströmt werden zu können.

Als Rückspülfluid wird in der Regel das Filtrat verwendet. Üblicherweise wird in regelmäßigen Abständen die Reinigung chemisch unterstützt und dem Rückspülfluid werden Detergenzien zugemischt. Der benötigte Druck zur Rückspülung kann durch eine Rückspülpumpe oder durch ein Pressluftpolster aufgebracht werden. Kurze Rückspülungen bei hohem Rückspüldruck sind wesentlich wirkungsvoller als längere Rückspülungen bei geringem Rückspüldruck (Ripperger 1992). Aus dem Rückspüldruck, der Rückspüldauer und der Flächenbelastung ergibt sich das Rückspülvolumen als charakteristische Größe des Rückspülvorgangs. Typische Flächenbelastungen bei der Rückspülung liegen bei 200-250 l/(m²*h). Der Rückspüldruck liegt beispielsweise für Polymermembranen im Bereich von 0,5-2,5 bar (vgl. Anhang 1) und wird auch für keramische Ultrafiltrationsmembranen in diesem Bereich gewählt. Die optimale Periode für die Rückspülung hat Altmann (2000) zu wenigen Sekunden berechnet.

Die Rückspülung ist grundsätzlich dann erfolgreich, wenn die Membran vollständig mit einer Deckschicht belegt ist. Sind die Poren der gesamten Membranfläche nicht gleichmäßig von der Deckschicht abgedichtet oder ein Teil bereits gereinigt, sucht sich der Rückspülvolumenstrom bevorzugt die freien Poren, wodurch die Reinigung der noch bedeckten Fläche stark eingeschränkt ist. Der Teil, der sich zu Beginn leicht lösen lässt, bestimmt die Reinigungsgüte des ganzen Membranmoduls. Daher ist ein gleichmäßiger Deckschichtaufbau, wie ihn die Verwendung der UTP-Betriebsweise oder Gradientenmembranen versprechen, für die Rückspülung sehr interessant. Zur Verbesserung der Rückspülwirkung werden auch Überströmungen bei relativ hohem Druck gegen die Fließrichtung des vorher stattfindenden Filtrationsbetriebs durchgeführt (vgl. Kap. 3.3). Diese kurze Spülung soll die Deckschicht nachträglich über der Lauflänge gleichmäßiger verteilen und verdichten, damit die Rückspülung großflächig erfolgreich ist.

Ist die Reinigungswirkung der Rückspülung nur für wenige Sekunden bei Wiederaufnahme der Filtration messbar, wird der Klappeneffekt als Erklärungsmodell herangezogen. Einzelne Kanäle werden durch die Rückspülung zwar frei gespült und die Deckschicht angehoben. Die angehobenen Bruchstücke können jedoch nicht abtransportiert werden und legen sich bei erneutem Filtrationsbetrieb sofort wieder auf die Membran. In Verbindung mit der Ultraschalltechnik bestehen Verbesserungspotenziale darin, eine vollständige Ablösung der Deckschicht bei der Rückspülung zu erzielen. Durch eine vollständigere Ablösung sollen Klappeneffekte vermieden werden und größere Plaques eventuell durch die dispergierende Wirkung des Ultraschalls so zerkleinert werden, dass ein Abtransport auch in engen Kapillaren ermöglicht wird. Die Rückspülung ist eine erfolgreiche und wirkungsvolle hydrodynamische Reinigungsmethode, sie weist aber noch ein hohes Verbesserungspotenzial auf. Die Unterstützung durch Leistungultraschall bietet Chancen, dieses Potenzial zu nutzen und eine vollständigere Reinigung zu erreichen.

Membranreinigung durch Überströmen: Ebenso wie die Rückspülung werden in den Filtrationsexperimenten in Kapitel 5 Überströmreinigungen in Kombination mit Ultraschall genutzt. Die Überströmreinigung unterscheidet sich von der gewöhnlichen Querstromfiltration nur dadurch, dass kein Filtrat abgezogen wird. Aufgrund des Druckverlustes über die Lauflänge des Moduls findet in der Regel dennoch eine Filtration auf der Eingangsseite des Feedwassers und eine Rückspülung an der Austrittsseite statt. Diese Tatsache führt dazu, dass die Richtung der Überströmung eine entscheidende Rolle spielt. Dieser Effekt kann mit der UTP-Methode bzw. eine Gradientenmembran verhindert werden.

Membranreinigung durch mehrphasiges Überströmen: In der Mikro- und Ultrafiltration werden diese Reinigungsmethoden vor allem für die Ablösung von Deckschichten auf offen zugänglichen getauchten Membranmodulen angewandt. Prinzipiell sind die Methoden aber auch für andere Modultypen denkbar. Bei Modulen und Membranen, die für den Outside-in-Betriebsweisen konzipiert sind, gestaltet sich die Realisierung von einer mehrphasigen Überströmung einfacher als bei Membranen, die für den Inside-out-Betrieb geeignet sind.

Ein häufiger Einsatz für getauchte Module im Outside-in-Betrieb besteht im Bereich der Abwasserklärtechnik. Dort kann eine Luft-Wasser-Überströmung neben dem verbesserten Reinigungseffekt gleichzeitig die Belüftung des Membranbioreaktors für den aeroben Schadstoffabbau realisieren. Die Verbesserung des Reinigungseffektes durch eine zweiphasige Luft-Wasser-Überströmung ist im Wesentlichen auf die Verdrängung der Flüssigkeit durch die Blasen und der damit verbundenen lokalen Geschwindigkeitserhöhung der Überströmung zurückzuführen. Die Kavitationszone in einem Schallfeld stellt auch eine Art zweiphasiges Strömungsregime dar mit erhöhter Turbulenz und beschleunigten Mikroströmungen. Der Ultraschalleintrag beeinflusst die mechanische Aktivität, Größe und Lage der Bläschen (Kap. 2.3.1).

Eine weitere interessante Lösung zur Membranreinigung mit mehrphasiger Überströmung stellt die Feststoff- Wasser-Überströmung dar. Hier übernehmen abrasive Partikel die Reinigung der Membranoberfläche. Diese Art der Membranreinigung kommt nur für abriebfeste Membranoberflächen in Frage. Eine Realisierung erscheint daher für getauchte keramische Membranmodulplatten sinnvoll. Die Firma ITN-Nanovation bietet ein System mit abrasiven Polymerpartikeln zur automatischen Reinigung von keramischen Plattenmembranen als Produkt an (ITN 2009). Der Pincheffekt wirkt diesem Effekt entgegen und verringert durch die Liftkraft die Berührung der Partikel mit der Wand. Ein Abschaben der Deckschicht durch die Partikel kann dadurch nur eingeschränkt auftreten und schmierige Deckschichten können in der Regel nicht dadurch entfernt werden.

Bei den Filtrationsexperimenten in Kapitel 5 wird gezeigt, inwieweit sich die in Kapitel 2.1 vorgestellten mechanischen Maßnahmen zur Deckschichtkontrolle durch die Anwendung von Ultraschall verbessern lassen und welche Maßnahmen in direktem Wettbewerb zu einer Filtrationsmethode mit Ultraschallunterstützung stehen.

2.2 Ultraschalltechnologie in Reinigungsanwendungen

Ultraschall zur Teilereinigung wurde bereits in den frühen 1950-er Jahren in Industrieprozessen eingeführt (Suslick 1988). Die ersten 25 Jahre war die Teilereinigung die größte Anwendung von Leistungsultraschall. Heute sind die Ultraschallreinigungswannen teilweise bereits in Privathaushalten vor allem für die Reinigung von Brillen etabliert. Aus Arztpraxen und Optikgeschäften sind sie nicht mehr wegzudenken. In vielen Industriezweigen gehören Ultraschallreinigungsanlagen zur Standardausrüstung. Trotz dieser weiten Verbreitung in den vielfältigen Anwendungsbereichen ist über den Reinigungsvorgang selbst wenig bekannt. Die Wichtigkeit des Themas Oberflächengüte und -reinheit gewinnt aufgrund der Miniaturisierung in einer Reihe von Technologiefeldern, wie der Nanotechnologie, dem Maschinenbau und der Elektroindustrie immer mehr an Bedeutung. Mit den gestiegenen Anforderungen und dem Druck, eine energieeffiziente Chemikalien und Wasser sparende Produktion zu realisieren, verstärken sich die Aktivitäten im Forschungsbereich zu diesem Thema.

Aufgrund der langjährigen Erfahrung lassen sich aus dem Anwendungsbereich der Teilereinigung die wertvollsten Erkenntnisse zum Reinigen mit Ultraschall ableiten, die sich auch für die

Membrantechnik nutzen lassen. Viele dieser Erfahrungen liegen nicht in Form von wissenschaftlichen Veröffentlichungen vor, sondern als firmeninternes Erfahrungswissen.

2.2.1 Geräte zur Leistungultraschalleinkopplung

In der Praxis der Leistungultraschallanwendungen sind häufig piezoelektrische und seltener magnetostruktive Ultraschallwandler zu finden. Die piezoelektrischen Wandler weisen sehr hohe Wirkungsgrade auf. Die Wirkungsgrade der magnetostruktiven Wandler sind schlechter, dafür weisen sie eine höhere mechanische Stabilität auf.

Geräte zur Erzeugung von Leistungultraschall bestehen aus einem Generator und einem Ultraschallwandler. Zur Erzeugung hoher Schallschnellen werden zusätzlich Schnelletransformatoren (Verstärker und Sonotroden, vgl. Kap. 4.3.2) eingesetzt. Sonotroden erfüllen neben ihrer Funktion der Weiterleitung, Verstärkung und Abstrahlung häufig noch konstruktive Funktionen, wie beispielsweise den druckdichten Einbau einer Schallquelle in einen Reaktor (vgl. Bild 4-17) oder eine Durchflusszelle oder eine funktionelle Spitze zum Schweißen oder Schneiden.

Der elektrische Generator erzeugt eine oszillierende Spannung mit dem erforderlichen Schwingungsverlauf und der erforderlichen Frequenz. Die Spannungsmaxima liegen im Bereich von einigen Kilovolt. Die Ansteuerungsfrequenz entspricht der Resonanzfrequenz des Ultraschallwandlersystems (Transducer). Zur Erzeugung definierter Anregungsimpulse sind die elektrischen Generatoren meist aus einem Netzfilter, dem eigentlichen hochfrequenten Schwingungsgenerator und einer Steuerungseinheit aufgebaut. Der Generator ermöglicht in vielen Fällen verschiedene Signalmodulationen. So gibt es zur Beschleunigung der Entgasung einen gepulsten Betrieb, bei dem der Ultraschall etwa eine Sekunde betrieben wird und für eine Sekunde nicht. In der Zeit ohne Ultraschall können gebildete Gasblasen nach oben steigen und verlassen so zügig das Fluid. Moderne Hochfrequenzgeneratoren für Ultraschallwandler bieten die Möglichkeit die Schwingungsamplitude einzustellen, die Pulsart zu modifizieren, die Schwingungsphase zu kontrollieren und auf die exakte Resonanzfrequenz des Schwingersystems zu regeln. Häufig werden Zusatzfunktionen, wie ein Trockenlaufschutz realisiert. Einige Generatoren erlauben das Umschalten zwischen mehrere Anregungsfrequenzen. Mit dieser Funktion wird häufig auch die so genannte Sweep-Funktion realisiert (Kap. 4.3.1). Hierbei soll die Ausbildung eines starr stehenden Wellenfeldes gestört werden, um lokale Materialschädigungen durch ein leichtes Verschmieren der Anregungsfrequenz zu vermeiden bzw. eine gleichmäßigere Reinigungswirkung zu erreichen. Jedes Abweichen von der Resonanzfrequenz hat Leistungseinbußen zu Folge. Deshalb werden zur Realisierung eines Frequenzsweeps meist abwechselnd Grundfrequenz und höhere Harmonische angeregt.

Der Ultraschallwandler zur Erzeugung von Schall hoher Intensitäten besteht in der Regel aus piezokeramischen Plättchen, an denen mit Hilfe von Elektroden Scheiben eine elektrische Spannung angelegt wird. Die Amplitude der mechanischen Verformung der Piezoelemente kann erhöht werden, indem ein Stapel aus mehreren Piezoscheiben genutzt wird. Um die Leistung des Systems zu erhöhen, weisen alle Leistungultraschallwandler eine Endmasse auf, deren Material und Geometrie so an das System angepasst sein muss, dass es in Resonanz schwingen kann. Die Ultraschallwandler auf Basis der Piezokeramik sind aus Kostengründen und aufgrund ihres hohen Wirkungsgrades am häufigsten zur Erzeugung von Leistungultraschall anzutreffen.

Eine Frequenzanpassung der Piezokeramik erfolgt bei so genannten Dickenschwingern über die Dicke der Piezokeramikscheiben. Eine 1 cm Quarzscheibe hat beispielsweise eine Grundresonanz von 285 kHz (Kuttruff 1988). Um mit dem Konzept eines Dickenschwingers Frequenzen im Be-

reich 20 bis 50 kHz zu erreichen, wie sie für viele Anwendungen für Ultraschall hoher Intensitäten typisch sind, müsste man dicke Keramikplatten verwenden, was relativ teuer ist. Daher erfolgt die Frequenzanpassung in der Praxis durch die Verwendung so genannter Verbundschwinger. Hier werden mit einer Vorspannschraube zwischen zwei Endmassen die Piezokeramikscheiben eingepresst. Über die zusätzlichen Massen lässt sich die Eigenfrequenz des gesamten Schwingungssystems anpassen. Die erreichbaren Amplituden sind durch die zulässige Zugspannung im Keramikmaterial begrenzt. Eine Fokussierung der Amplitude auf einen bestimmten Bereich kann mit Hilfe der Behälterwandung erreicht werden. Bei medizintechnischen Geräten z.B. für die Lithotripsie oder Krebsbehandlung wird Ultraschall mit Hilfe einer speziellen Anordnung zahlreicher Schallwandler (Transducer-Array) fokussiert (Horst 1997).

Typische Frequenzen für Leistungultraschall liegen im Bereich ~20-50 kHz. Wobei die Systeme mit Stabsonotroden aufgrund der Schwingungseigenschaften des Sonotrodenmaterials meist auf den unteren Frequenzbereich um die 20 kHz begrenzt sind. Frequenzen von 20 kHz stellen einen Kompromiss aus einfacher Erzeugung von Schallfeldern mit heftiger Kavitationswirkung und einer nicht optimalen Bläschenverteilung dar. Da in der Kavitationszone in Nahfeld einer Sonotrode häufig Erosionsschäden auftreten, ist diese Methode nicht für die Reinigung empfindlicher Oberflächen geeignet. Ultraschallwandler für die Reinigung empfindlicher Teile werden auch für höhere Frequenzen gefertigt (50 - 130 kHz). Um Leistungultraschall bei Frequenzen über 100 kHz zu erzeugen, wird meist ein Ultraschallwandlersystem mit niedriger Grundfrequenz bei einer höheren harmonischen Frequenz angeregt. Aufgrund der großen Bedeutung der genau in Resonanz mitschwingenden Massen für eine hohe Leistungserzeugung, kann für solche Systeme die Frequenz nicht beliebig durchgestimmt werden. Jeder so aufgebaute Ultraschallwandler kann nur bei seiner Resonanzfrequenz und ganzzahligen Vielfachen dieser (höhere Harmonische; Oberschwingung) ohne große Leistungseinbußen betrieben werden (Kuttruff 1988).

Für höhere Frequenzen im Megahertzbereich ist eine exakte Planparallelität der abstrahlenden Fläche zu der Endmasse und den Wandlern wichtig, um hohe Amplituden erreichen zu können. Damit begründet sich auch der deutlich höhere Preis von Schallwandlern für Megasonic-Anwendungen.

In Ultraschallreinigungsbädern und Sonoreaktoren wurde in einigen Anwendungen eine Harmonisierung des Kavitationsfeldes realisiert, indem Transducer mit unterschiedlichen Frequenzen gleichzeitig verwendet werden (Avvaru 2008).

Die Reflexion der Begrenzungswände in Ultraschallreinigungswannen ermöglichen hohe Energiedichten. In der Regel bildet sich ein räumlich stehendes Schallfeld aus. Ein gleichmäßiges Schallfeld mit ortsunabhängiger Energiedichte ist somit nicht gewährleistet. Die ortsabhängige Intensität des Schallfeldes stellt sich aufgrund der Eigenschwingung des Gesamtsystems ein. Auch der Füllstand und Beladungszustand mit Reinigungsgut beeinflussen diese charakteristischen Schwingungsmoden. Die Ungleichförmigkeit des Schallfeldes macht die Quantifizierung und damit den Vergleich der Reinigungswirkung von unterschiedlichen Reinigungswannen sehr schwierig. Für große Volumina und hohe Arbeitsfrequenzen können die Schallfelder in der Regel durch die Gesetze der geometrischen Akustik beschrieben werden. Bei kleinen Anlagen und tiefen Frequenzen unterscheiden sich die Größenordnung der Wellenlänge und Abmessungen des Schallraums häufig nicht stark und es bilden sich komplizierte Interferenzfelder aus.

Resonanztransformatoren werden auch Schallrüssel, Ultraschallhörner oder Sonotroden genannt. Für unterschiedliche Aufgaben gibt es spezielle Schnelletransformatoren beispielsweise zur Amplitudenverstärkung (konische Hörner) oder Verminderung (Gegenbooster, vgl. Kap. 4.3.2). Weitere Beispiele für solche Schnelletransformatoren die mit Stufen, konisch oder mit einem exponentieller Verjüngung ausgeführt sein können, finden sich in (Kuttruff 1988) und (Horst 1997). Für leistungsstarke Geräte werden Sonotroden in der Regel in Titan ausgeführt. Im

Laborbereich sind auch keramische Sonotroden zu finden. Die Länge einer Sonotrode ergibt sich immer aus dem ganzzahligen Vielfachen der halben Wellenlänge ($\lambda/2$ -Schwinger) des jeweiligen Sonotrodenmaterials. Werden Sonotroden mit hohen Amplituden zum Schalleintrag in Flüssigkeiten verwendet, so entsteht eine sehr heftige kegelförmige Kavitationszone unter der abstrahlenden Fläche einer Stabsonotrode (vgl. Kap. 2.3.3; Sonotrodenkavitation). Die heftige Erosionswirkung führt zu einem Materialabtrag an der Sonotrodenspitze. Daher ist in solchen Systemen immer mit einer Verunreinigung durch das Sonotrodenmaterial zu rechnen.

Typische Anwendungen für Leistungultraschallwandler mit Sonotroden sind die Sonochemie, das Dispergieren, das Desintegrieren, das Ultraschallschweißen, -schneiden, -bohren, und -honen. Auch Reinigungsanwendungen können mit Sonotrodensystemen realisiert werden, wenn das Reinigungsgut sich dafür eignet.

Die Art der Schalleinkopplung in die Flüssigkeit lässt sich in direkte und indirekte Einkopplung unterscheiden. Bei der direkten Kopplung schwingt die Schallquelle selbst in der zu beschallenden Flüssigkeit. Bei indirekten Kopplungsarten übertragen die Schallwandler die Schwingung zunächst an Vermittlerschichten, z.B. einer Behälterwandung. Die Verwendung von Kopplungsflüssigkeiten oder anderer Kopplungsmedien verhindert die Verunreinigung des beschallten Mediums durch Kavitationserosion an der abstrahlenden Fläche des Schwingers. Dieser Ansatz wird in Kapitel 5.3 bei der Einkopplung von Ultraschall in ein Kapillarmembranmodul (Inside-out-Betriebweise) verfolgt.

Die häufigste Art der Schalleinkopplung in die Flüssigkeit ist die indirekte Beschallung über eine schallabstrahlende Ebene (Wannenböden von Ultraschallbädern). Bei Verneblern, Reinigungsanwendungen und Sonarsystemen sind die Schallwandler analog zu einem Lautsprecher mit einer Membran verbunden, die die Schallwelle in die Flüssigkeit überträgt. Die Membran wird in der Regel durch ein Edelstahlblech gebildet, mit dem die Wandler durch spezielle Epoxidharze verklebt oder durch Hartlötungen verbunden sind. Eine sehr gute Verbindung des Ultraschallschwingers an die Wandung ist besonders wichtig, um Übertragungsverluste durch Luftspalte aufgrund von kleinen Unebenheiten zu verhindern, werden häufig neben dem Epoxidharz auch weitere flüssige, pastenartige oder polymere Kopplungsmittel verwendet. Neben aufgeklebten Wandlern findet man auch fest verschraubte oder dicht verschweißte Verbindungen.

Die Schalleinkopplung in das Fluid stellt insbesondere für Ultraschallwandler mit Schnelleistungsformatoren für hohe Amplituden eine schwierige technische Aufgabe dar. Ein großer Teil der Energie ist in dem in Resonanz befindlichen Schwingungssystem aus Endmasse, Piezokeramikstapel, Verstärker und Sonotrode gespeichert. Nur ein Teil kann an die umgebende Flüssigkeit abgegeben werden. Charakteristisch bei der Verwendung von Sonotroden ist ein kleiner kR-Faktor (Horst 1997). Er stellt das Produkt aus Wellenzahl $k = \omega_{US}/c_{liq}$ und abstrahlendem Radius R_{ab} dar.

$$kR - \text{Faktor} = k \cdot R_{ab}$$

$$\text{mit } k = \frac{\omega_{US}}{c_{liq}}$$

Glg. 2-1

Für sehr kleine kR-Faktoren ($kR < 0,5$) ist man beim Fall des Kugelstrahlers, bei dem nur sehr wenig Schall ans Medium abgegeben werden kann. Da die Schwingungsamplitude direkt an der Sonotrode am größten ist, entsteht dort ein starkes Kavitationsfeld. Die große Bläschenwolke entzieht der Ultraschallschwingung Energie und wandelt sie in kurzzeitige lokale Strömungsenergie und Wärme um. Zusätzlich tritt an den zahlreichen Kavitationsbläschen Totalreflexion der Ultraschallwelle aufgrund des hohen Impedanzsprunges zwischen Blase und Flüssigkeit auf. Beide Effekte führen gemeinsam dazu, dass sich an solchen Sonotroden kein ausgedehntes Schallfeld ausbildet. Es lassen sich Parallelen zwischen diesem Effekt der Aufzehrung des Ultraschalls an der unmittelbaren Sonotrodenoberfläche und dem Leidenfrost'schen Phänomen erkennen. Auf

einer glühenden Herdplatte verdampfen Wassertropfen erstaunlich langsam. Im Fall der Ultraschallsonotroden ist das erzeugte Ultraschallfeld trotz der hohen Abstrahlungsleistung unerwartet gering. Ähnlich wie bei der Abschottung des Tropfens durch eine Wasserdampfisolierschicht, wird im Falle des Ultraschalls durch die heftige Kavitationszone eine Abschirmung erreicht (Cushioning; vgl. Kap. 2.3.3).

Bei industriellen Problemstellungen, die durch den Eintrag von Leistungultraschall gelöst werden sollen, werden häufig solche Systeme bevorzugt, bei denen mit möglichst wenigen Wandlereinheiten gearbeitet werden kann. Gründe dafür bestehen in einer einfachen Fehlerdiagnose und Wartbarkeit im Gegensatz zu Ultraschallwandlersystemen, die mit einer großen Anzahl leistungsschwächerer Wandler arbeiten. In Ultraschallwannen ist eine gleichmäßige Beschallung größerer Volumina bzw. Flächen gefordert. Aufgrund der Eigenschaft der erschwerten Ultraschalleinkopplung über Sonotroden in die Flüssigkeit (kleine k_R -Werte), sind diese Leistungultraschallwandler mit Sonotroden selten im Bereich der Reinigungsanwendungen anzutreffen. Tabelle 2-1 fasst die Eigenschaften von Ultraschallwandlern mit und ohne Schnelletransformator zusammen (vgl. hierzu auch Eingrenzung der Zielstellung Kap. 1.1 und Kap. 7.2).

Skalierbarkeit: Vor allem im Bereich der Sonochemie wird die Skalierbarkeit von intensiven Schallfeldern diskutiert (Gogate 2004). In sonochemischen Reaktoren kommen häufig Sonotroden als Ultraschallwandler zum Einsatz (Dahlem 1999). Für Durchflussreaktoren gibt es bereits Industrieprozessoren mit 16 kW Nennleistung. Auch für die Miniaturisierung von Leistungultraschallwandlern gibt es Ansätze, um eine Kavitationszone zu erzeugen (Nowak 2007). In der Veröffentlichung von Lamminen, Walker et al. (2006a) wird für die Integration des Schallwandlers direkt in das Flachmembranmodul ein einzelnes piezokeramisches Plättchen angeregt. Da hier ohne Endmassen gearbeitet wird und ein schmales PZT-Plättchen eingesetzt werden soll, stellt sich eine hohe Resonanzfrequenz von 476 kHz ein.

Reinigungsgut: Suslick (1988) weist darauf hin, dass die Ultraschallreinigung vor allem an schallharten, reflektierenden Körpern (Metall, Glas, Plastik) gut funktioniert. An Schall absorbierende Materialien wie Gewebe und Gummi ist die Reinigungswirkung schlechter. Schnelle Konvektionsströmungen und ungeeignete Kunststoffhalterungen für das Reinigungsgut in Ultraschallbädern verschlechtern ebenfalls die Reinigungswirkung.

Reinigungsfluid Wasser: Wegen der Leitfähigkeit des Wassers treten in wässrigen Reinigungsfluiden keine zusätzlichen Adsorptionskräfte infolge einer elektrostatischen Aufladung der Partikel auf, wie sie zum Beispiel in Luft oder organischen Lösungsmitteln auftreten können. Bei der Verwendung von Wasser in Reinigungswannen wird von den Herstellern grundsätzlich die Zugabe von Tensiden empfohlen. Die Temperatur und die Tensidkonzentration zur Erniedrigung der Oberflächenspannung stellen weitere wichtige Parameter für die Wirksamkeit der Reinigung dar. Im Bereich der Reinigung von Membranen soll hier nur Wasser als Lösungs- und Reinigungsmittel betrachtet werden (Kap. 2.3). Wegen der geringeren Gaslöslichkeit werden Ultraschallbäder mit Wasser als Reinigungsfluid häufig bei Temperaturen zwischen 50 und 80°C betrieben. Die höheren Temperaturen bewirken eine geringere Konzentration an gelösten Gasen im Wasser. Gleichzeitig wird auch der Wasserdampfpartialdruck erhöht (vgl. Anhang 3 und Anhang 4). Da die vorwiegend mit Dampf gefüllten Kavitationsblasen ein deutlich heftigeres Kollapsverhalten zeigen als solche die vorwiegend mit Gas gefüllt sind, ergibt sich bei diesen Temperaturen eine intensivere Reinigungswirkung.

Tabelle 2-1: Gegenüberstellung von Ultraschallwandlern mit und ohne Schnelletransformator

	Verbundschwinger	Verbundschwinger mit Schnelletransformator	Bemerkung
Amplitude, Schnelle	-	++	Hohe Amplituden.
Frequenz	++	-	Bei Schnelletransformator nur niedrige Grundfrequenz wegen Materialbeanspruchung nutzbar.
Schallfeld	++	-	Schallfelddämpfung in intensiver Kavitationszone an Sonotrodenoberfläche.
Systemdruck	-	++	Systemdruck lässt sich stark erhöhen.
Verschleiß	o	--	Sonotrodenverschleiß und Kavitationserosion.
Praktischer Einsatz	-	+	Nur ein leistungsstarkes Bauteil; Vorteile bei Wartung und Fehlerdiagnose.
Größe und Kontrollierbarkeit der Kavitationszone	++	-	Bei Schnelletransformator starke kleine Kavitationszone, kaum Kontrollmöglichkeiten.
kR-Faktor	3-30	0,4 - 2,5	Werte für typische kommerzielle Ultraschallwandler

2.2.2 Hydrodynamische Reinigungsmechanismen des Ultraschalleintrags

Die sekundären Ultraschalleffekte, wie beispielsweise die Ausbildung von Radikalen, hohen Temperaturen und Sonolumineszenzeffekten sind für diese Arbeit weniger bedeutsam. Für die unterstützende Wirkung des Leistungultraschalls auf die Membranfiltration werden hier lediglich die hydrodynamischen Ultraschallmechanismen betrachtet:

- Vibration der Oberfläche,
- visko-inertiale Effekte,
- akustisches Strömen.
- Kavitation und Mikroströmungen an kollabierenden und oszillierenden Blasen.

Die dispergierende Wirkung des Ultraschalleintrags kann hingegen das Stoffsystem dahingehend verändern, dass es schwerfiltrierbarer wird und hartnäckigere Deckschichten ausbildet (vgl. Kap. 2.6.1 »Stoffsystem«).

2.3 Akustische Kavitation

Für die Ultraschallreinigung stellt die Kavitation mit ihren primären und sekundären Effekten den entscheidenden Mechanismus dar.

Als Kavitation bezeichnet man die Hohlraumbildung in Flüssigkeiten. Diese Hohlraumbildung kann durch erhöhte Zugspannung (Unterdruck) oder durch fokussierten Energieeintrag induziert werden. Im Fall der akustischen Kavitation reißt die Flüssigkeitsstruktur unter Zugspannung an Störstellen auf, es bilden sich Kavitationsblasen. Bei der Expansion dieser Hohlräume können sowohl Flüssigkeitsdampf als auch gelöste Gase in die Blase gelangen. Wie sich der Inhalt einer Kavitationsblase zusammensetzt, hängt davon ab, wie viel Zeit die Blase zur Hohlraumbildung hat, wie schnell demgegenüber Verdampfungs- und Diffusionsprozesse ablaufen und welche Gleichgewichtszustände möglich sind.

Für alle Bläschen, die aufgrund einer äußeren Triebkraft (Zugspannung im Schalldruckfeld, fokussierten Energieeintrag, aber auch Sieden oder Belüftung) entstehen und sich bewegen, gelten die gleichen physikalischen Gesetzmäßigkeiten. In dieser Arbeit sind die mechanischen Phänomene, die im Zusammenhang mit der Reinigungswirkung der Kavitation stehen besonders interessant: Die Blasenoszillation, der radiale und asymmetrische Blasenknall und die damit verbundenen Mikroströmungen. Weitere mit dem Blasenknall verbundene Phänomene sind die Ausbreitung von Stoßwellen in die Flüssigkeit und die Kavitationslumineszenz (Sonolumineszenz). Ein asymmetrischer Blasenknall entsteht meist in der Nähe einer Grenzfläche. Die Blase führt einen unsymmetrischen Knall durch, der zu einem Flüssigkeitsjet in Richtung der Grenzfläche führen kann. Je nach Heftigkeit des Kavitationsblasenknalles und der Eigenschaften der betroffenen Oberfläche kann Kavitation zu erheblicher Materialschädigung führen, der so genannten Kavitationserosion.

Störstellen oder Kavitationsnuclei sind meist im Fluid vorhandene kleinste Bläschen. Die Bläschen können sich auch in Rissen oder Spalten von Feststoffpartikeln festsetzen, wo sie sich aufgrund von Kapillarkräften stabilisieren. Die Bläschen können sich bei entsprechenden Verunreinigungen mit einer Hülle umgeben, die die Diffusion in die Flüssigkeit verhindert und so die Blase stabilisiert. Hohe Konzentrationen an physikalisch gelösten Gasen, Feststoffpartikeln und Salzionen erhöhen die Wahrscheinlichkeit von Störstellen in der Flüssigkeit. Zur Stabilisierung von Bläschen wurden häufig hydrophobe Keime diskutiert. Calcite als nanoskopische Schwebeteilchen konnten als hydrophile Kavitationskeime im Trinkwasser identifiziert werden (Eisenmenger 2010).

Kavitationsfelder weisen eine besonders hohe Konzentration an mechanischer Energie auf (Kuttruff 1988). Es treten lokal sehr hohe Drücke, Temperaturen und Strömungsgeschwindigkeiten auf. Durch Ultraschall lassen sich solche Kavitationsfelder verhältnismäßig einfach und mehr oder weniger definiert erzeugen. Für die theoretische Betrachtung der Membranreinigung mit Ultraschall hat die Blasendynamik eine große Bedeutung (vgl. Kap. 6.2.6). Die Stärke des Blasenknalles im Wasser hängt unter anderem von der Größe der Kavitationsblase, der Frequenz, dem Schalldruck, der Temperatur und dem Anteil der gelösten Gase in der Kavitationsblase ab. Die Anwesenheit von gelösten Gasen schwächt den Knall ab, das Gasvolumen wirkt beim Knall wie ein Stoßdämpfer. Auf die Kavitationsblasendynamik von radialsymmetrisch oszillierenden Einzelblasen wird daher in Kapitel 2.3.1 genauer eingegangen.

2.3.1 Kavitationsblasendynamik der radialsymmetrisch oszillierenden Einzelblase

Rayleigh (1917) leitet aus der Energiebetrachtung des Fluids bei einem sphärischen Kollaps einer leeren Blase eine frühe Beschreibung der Blasendynamik ab. Seither konnte die Blasendynamik bei Kavitationsvorgängen noch weitaus detaillierter betrachtet werden. Die Entwicklung ging dabei von theoretischen Betrachtungen der sphärischen Einzelblase über die experimentelle Verifikation dieser Modelle mit Hochgeschwindigkeitskameras bis hin zur Betrachtung von Kavitationsblasenwolken. Eine kurze Übersicht im Bereich der Kavitationsforschung bieten zum Beispiel Mettin (2005) und die Festschrift des dritten physikalischen Instituts der Georg-August-Universität zu Göttingen (Kurz 2007). Weitere wichtige Arbeiten, die einen guten Überblick zum Stand des Wissens der Blasendynamik geben, sind die von Young (1989), Neppiras (1980), Brennen (1995), Leighton (1994), Lauterborn (1980) und Knapp et al. (1970). Wichtige Erweiterungen des oben genannten Modells von Rayleigh (1917) stellen die Berücksichtigung der Oberflächenspannung, der Viskosität der Flüssigkeit, der Füllung der Blase mit einem Gas, der Kompressibilität der umgebenden Flüssigkeit, der Dichteabhängigkeit der Schallgeschwindigkeit, der Überschallgeschwindigkeiten, der Blasenwand und der Ausbildung von Stoßwellen dar (Krefting 2003).

Keller-Miksis Modell der radialen Blasendynamik

Für die Betrachtungen der Blasendynamik wird das Modell von Keller-Miksis (Keller 1980, Keller 1956) herangezogen, das für die gewünschten Aussagen in dieser Arbeit ausreichend genau ist und den Vorteil hat, mit begrenztem Rechenaufwand lösbar zu sein (nach Beschreibung von Koch 2006).

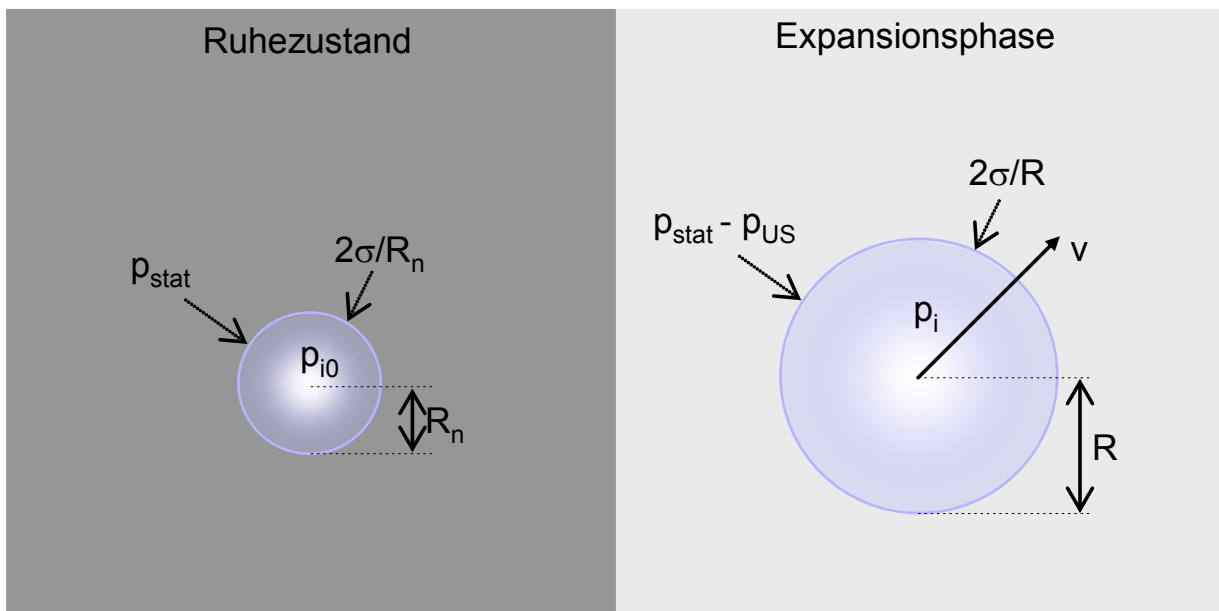


Bild 2-1: Betrachtung der sphärischen Blasenausdehnung. Links bei Normaldruck im Gleichgewicht und rechts in der Unterdruckphase. Bei Unterdruck ist der Umgebungsdruck um den Schalldruck p_{US} reduziert. Die Blase dehnt sich aus, wobei sich der Innendruck verringert $p_i < p_{i0}$ und sich der Oberflächenspannungsterm abschwächt. Nach Koch (2006).

Die Gleichung geht von der vereinfachten Annahme einer rein sphärischen Oszillation (vgl. Bild 2-1) aus. Es finden keine Diffusionsprozesse in die Blase hinein statt, das heißt die Anzahl an Gasmolekülen in der Blase wird konstant angenommen.

Keller-Miksis-Modell:

$$\left(1 - \frac{\dot{R}}{c_{\text{liq}}}\right) R \ddot{R} + \frac{3}{2} \left(1 - \frac{\dot{R}}{3c_{\text{liq}}}\right) \dot{R}^2 = \left(1 + \frac{\dot{R}}{c_{\text{liq}}}\right) \frac{\Delta p_B}{\rho_{\text{liq}}} + \frac{R}{\rho_{\text{liq}} c_{\text{liq}}} \frac{d\Delta p_B}{dt} \quad \text{Glg. 2-2}$$

Wobei unter $\dot{R} = v(t)$ die Geschwindigkeit der Blasenwand zu verstehen ist. Die treibende Druckschwankung für die Blasenbewegung ist der Unterschied zwischen Druck im Blaseninnenraum und der umgebenden Flüssigkeit $\Delta p_B = p_i - p_a$. Die äußeren Triebkräfte p_a , die auf die Blase einwirken und diese »Erdrücken« sind der Umgebungsdruck, die Wirkung der Oberflächenspannung, sowie die Trägheit der umgebenden Flüssigkeit aufgrund der Viskosität. Im Schallfeld wirkt als äußere Triebkraft für die Blasendynamik zusätzlich der Schallwechseldruck. Unter Berücksichtigung des Dampfdruckes über dem Fluid p_v und einer sinusförmigen Schallanregung ergibt sich nach Lauterborn *et. al.* (1999):

$$\Delta p_B = \underbrace{\left(p_{\text{stat}} - p_v + \frac{2\sigma}{R_n}\right) \left(\frac{R_n}{R}\right)^{3\kappa}}_{p_i} - \underbrace{\left(p_{\text{stat}} - p_v + \frac{2\sigma}{R} + \frac{4\eta}{R} \dot{R} + p_{\text{US}}\right)}_{p_a} \quad \text{Glg. 2-3}$$

mit $p_{\text{US}} = p_A \sin(2\pi \cdot f_{\text{US}} \cdot t)$

Bild 2-2 zeigt die Auswertung des Keller-Miksis-Modells (Glg. 2-2) für typische Parameter bei einer Reinigungsanwendung (Tabelle 2-2). Dabei wurde der Anfangsradius der Blasen R_n mit $5 \mu\text{m}$ angenommen, was nach Mettin *et al.* (1999) ein typischer Wert für ein kavitierendes Schallfeld mit einer treibenden Frequenz von 20 kHz ist.

Tabelle 2-2: Parameter für die Darstellung der Blasendynamik nach dem Keller-Miksis-Modell

Ruheradien	R_n	$5 \mu\text{m}$
Umgebungsdruck	p_{stat}	10^5 Pa
Sättigungsdampfdruck bei 20°C	p_v	$2,34 \times 10^3 \text{ Pa}$
Oberflächenspannung	σ	$72,75 \times 10^{-3} \text{ N/m}$
Fluidichte	ρ_{liq}	998 kg/m^3
Schallgeschwindigkeit im Fluid	c_{liq}	1480 m/s
Isentropenkoeffizient	κ	$5/3$
dyn. Viskosität der Flüssigkeit	η	10^{-3} Pa s
Schalldruckamplitude	p_A	$0,5; 1,05; 1,5 \times 10^5 \text{ Pa}$
Anregungsfrequenz	f_{US}	20 kHz

Der Schwellwert des Schalldrucks, ab dem ein nichtlinearer Blasenkollaps auftritt, ergibt sich für die Parameter in Tabelle 2-2 zu 105,3 kPa. Daher wurden in Bild 2-2 als Anregungsamplituden ein Schalldruck deutlich unterhalb, drei direkt an dem Schwellwert und ein Schalldruck deutlich oberhalb des Schwellenwerts gewählt. Die Skalierung der y-Achse ist in Bild 2-2 unterschiedlich. Bei schwachen Schalldruckamplituden ($p_A = 50 \text{ kPa}$) folgt die Blase im Wesentlichen dem Druckverlauf, wobei die Blase ihren maximalen Radius in der Unterdruckphase der Schallwelle erreicht. Bei $p_A = 99 \text{ kPa}$ sind die nichtlinearen Anteile des Oszillationsverlaufs bereits deutlich zu erkennen. Oberhalb des Schwellenwerts (vgl. Blake-Schwelle Glg. 2-6) zeigt die Blase ein deutlich nichtlineares Verhalten. Die Blase wird bei $p_A = 150 \text{ kPa}$ bis auf das 15-fache ihres Ruheradius aufgezogen und kollabiert anschließend heftig. Das Maximum des Blasenradius ist dabei deutlich phasenverschoben gegenüber dem Druckminimum und reicht bei hohen Schalldruckamplituden bis in die Überdruckphase des anregenden Schallfeldes hinein. Während der Kompressionsphase des Schallfeldes kommt es zu einer Reihe von Nachschwingungen der Blase, um ihren Ruheradius.

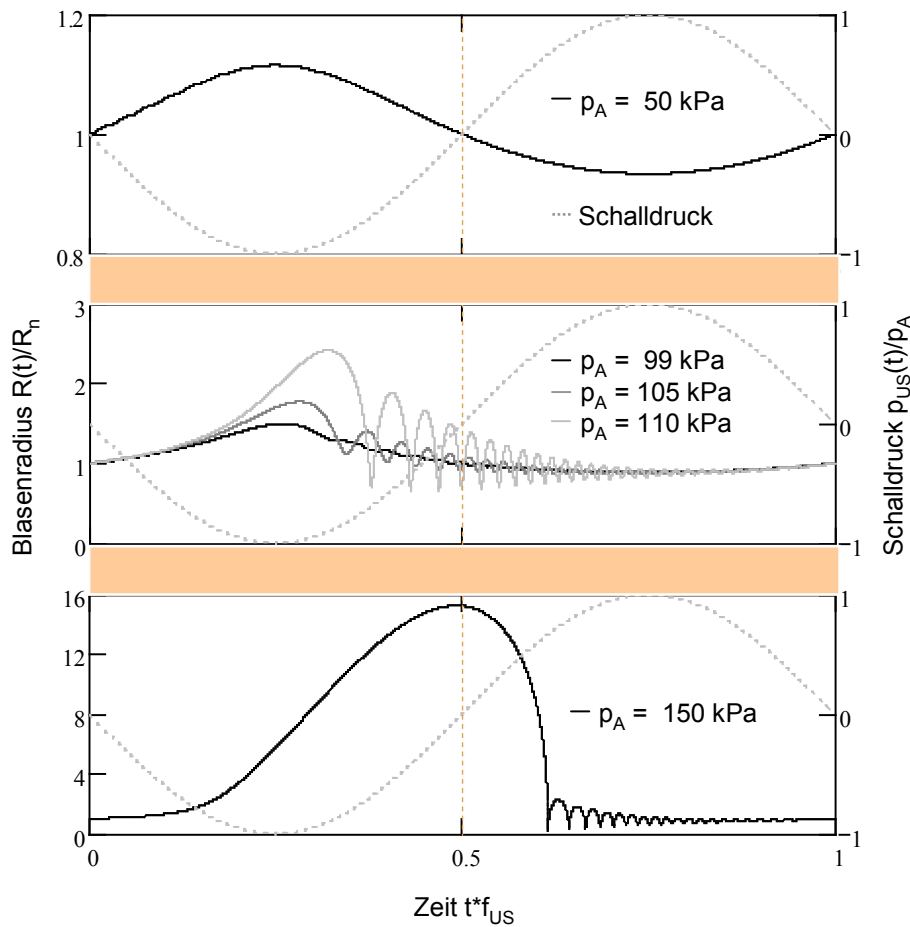


Bild 2-2: Stationäre, radiale Oszillation einer Blase in Wasser als Funktion des treibenden Schalldrucks (gestrichelte Linie). Aufgetragen ist der Blasenradius bezogen auf den Ruheradius über der Zeit bezogen auf die Schwingungsdauer der Anregungsschallwelle. Berechnungsparameter siehe Tabelle 2-2.

Bei niedrigen Ultraschallanregungsfrequenzen, wie den 20 kHz in Bild 2-2 ist die Unterdruckphase so lang, dass die Blasen bei entsprechender Schalldruckamplitude zu großen Radien aufgezo-gen werden können und anschließend heftig kollabieren. Bei höheren Frequenzen ist die Zeit zum Expandieren der Blase kürzer (vgl. Bild 2-3). Für das Ausschwingen der Blase zurück in ihren Ruhezustand bleibt in der anschließenden Kompressionsphase nicht ausreichend Zeit. Stattdes-sen werden höherperiodische Schwingungsformen verstärkt. Vor allem bei hohen Schalldruck-amplituden und großen Ruheradien wird das Schwingungsverhalten sehr unregelmäßig (vgl. Bild 2-3). Mit zunehmender Frequenz verkleinert sich der maximale Blasenradius. Die Blasenoszillati-on bei 140 kHz zeigt ein deutlich, periodisches Verhalten mit einer unregelmäßigen Gestalt. Bei 1400 kHz zeigt die Blase bei jeder zweiten Anregungsschwingung (subharmonische der Anre-gungsfrequenz) eine deutliche Kompression, die stark phasenverschoben gegenüber dem Druckminimum der Anregungsschwingung ist.

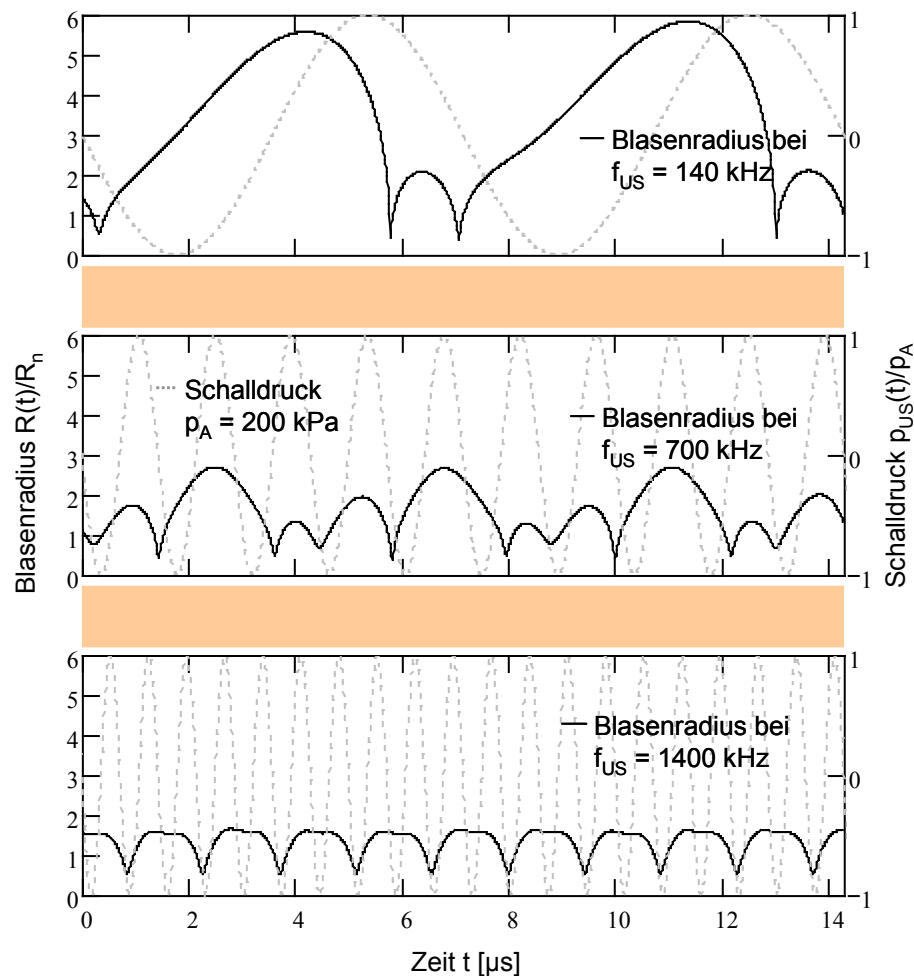


Bild 2-3: Sphärische Blasenoszillation berechnet nach Glg. 2-2 für Anregungsfrequenzen von 140, 700 und 1400 kHz bei einer Schalldruckamplitude von 200 kPa aufgetragen über 14 μ s im bereits eingeschwungenen Zustand. Alle weiteren Parametern wie in Tabelle 2-3.

Die theoretisch hergeleitete Dynamik in den weiterentwickelten Rayleigh-Modellen konnte im Experiment mittels Ultrahochgeschwindigkeitskinematographie (z.B. Lauterborn 1999, Kurz 2007) nachgewiesen werden. Andere Simulationen basieren auf der Betrachtung jedes einzelnen Moleküls (molecular dynamics; MD) wie bei Koch (2006) durchgeführt oder die Randelementmethode (boundary element methode; BEM) (Blake 1986, Borkent 2008). Mit diesen verbesserten Simulationen können zusätzlich Aussagen zu Temperatur, Druck, Gas- und Dampfungszusammensetzung und zu chemischen Reaktionen bei dem Kavitationsphänomen gemacht werden. Zudem sind sie geeignet, um die Wechselwirkung der Blasen untereinander und zwischen Blasen und anderen Partikeln oder Grenzflächen zu beschreiben. Bisher wurden sie besonders zur Untersuchung von Mehrblasensystemen verwendet (Koch 2006, Mettin 2005). Im Anhang 3 ist die Blasendynamik der radialsymmetrisch schwingenden Blasen bei unterschiedlichen Frequenzen, verändertem statischen Druck, unterschiedlichen Blasengrößen und verschiedenen Temperaturen gezeigt. In Anhang 3 wird auch die Auswirkung der Blasendynamik auf die Blasenänderungsgeschwindigkeit und die Beschleunigungen exemplarisch aufgezeigt.

Schwellenwerte bei der Kavitationsblasendynamik

In der Literatur werden verschiedene Schwellenwerte beschrieben. Dabei wird differenziert zwischen dem Einsetzen von stabiler und transientser Kavitation für Blasen größer und kleiner als ihr

Resonanzradius, sowie dem Einsetzen der gerichteten Diffusion (Young 1989), die weiter unten genauer eingeführt wird. Von stabiler Kavitation spricht man, wenn die Blasen unter Einwirkung des Schallfeldes um ihren Ruheradius oszillieren und nicht verschwinden. Unter transienter Kavitation wird das heftige Kollabieren von Blasen verstanden, bei dem die Blase kurzzeitig ganz verschwindet in mehrere Mikrobäschen zerplatzt und in Form dieser Mikrobäschen noch nachschwingt, die sich teilweise wieder zusammenschließen. Die zerteilten Bläschen können so klein sein, dass sie sich auflösen oder als stabil schwingende Blasen wieder anwachsen, bis sie einen Schwellwert überschreiten und erneut heftig kollabieren. Für die Reinigung der Membranoberfläche als besonders relevant haben sich relativ große Blasen erwiesen, die sich über lange Zeit auf der Oberfläche beobachten lassen und dort hin- und herwandern und eine gereinigte Spur hinterlassen (vgl. Kap. 4.4.3; Bild 4-38 und Kap. 5.1.2; Bild 5-7 bis Bild 5-10).

In Bild 2-1 kann man erkennen, dass auf die ruhende Blase (linker Teil) der Umgebungsdruck des Fluids und die Oberflächenspannung wirken. Beide sind äußere Triebkräfte, die eine Diffusion des Blasen volumens in das umgebende Fluid bewirken, so dass eine Gas- oder Dampfblase im ruhenden Wasser nicht stabil ist und sich nach einer bestimmten Zeit auflöst. Sie wird regelrecht »abgedrückt«. Bei der Schwingung einer Blase in einem Schallfeld können sich diese Verhältnisse ab einem bestimmten Schalldruck umkehren. Bei der Annahme, dass die Blase in Phase mit dem äußeren Schallfeld des umgebenden Fluids schwingt, wirkt der positive Teil des sinusförmigen Verlaufs des Schalldrucks (Überdruckphase) genau so lang wie der negative Schalldruck (Unterdruckphase). In der Überdruckphase wird die Blase komprimiert. Der Diffusionsstrom des Gases in der Blase ist in die Flüssigkeit gerichtet, wo sich das Gas physikalisch löst. Ein Teil des Wasserdampfes in der Blase kondensiert. Beide Effekte verstärken den obigen Effekt des »Abdrückens« und führen zu einer Verringerung der Teilchenzahl in der Blase. In der Unterdruckphase des Schalldrucks expandiert die Blase, die Triebkraft aufgrund des Umgebungsdrucks wechselt ihr Vorzeichen. Die Teilchenzahl in der Blase wächst aufgrund von Diffusion und Verdampfung an. Da die Grenzfläche für den Stoffübergang bei der expandierten Blase (sphärische Mantelfläche) deutlich größer ist als bei der komprimierten, überwiegt ab einer bestimmten Schalldruckamplitude der Nettostofftransport in die Blase. Man spricht von dem Schwellenwert der gerichteten Diffusion (rectified diffusion). Die Schalldruckamplitude für das Einsetzen der gerichteten Diffusion ist der kleinste »Kavitationswellenwert« für eine bestimmte Anregungsfrequenz, weil eine Blase ab dieser Schalldruckamplitude immer weiter aufschwingt und anwächst, bis sie die kritische Größe für einen heftigen Blasen kollaps erreicht.

Schwelle für den Blasen kollaps

Die Blake-Schwelle (Glg. 2-6) stellt ein einfaches Konzept zur Ermittlung der unteren Grenze für das Auftreten eines Blasen kollapses dar (Blake 1949). Genauere Betrachtungen berücksichtigen, ob bei größeren Blasen die Trägheitsterme überwiegen (Apfel 1981b, Apfel 1981a). Da die Parameter, die den Blasen kollaps beeinflussen, für eine gezielte und sanfte Reinigung von Membranen von entscheidender Bedeutung sind, wird der Schwellenwert für das Einsetzen eines Blasen kollapses im Folgenden näher betrachtet.

Sutilov (1984) beschreibt die Zusammenhänge zwischen theoretischer Zerrei ßfestigkeit der Flüssigkeit und dem Einsetzen von Kavitation aufgrund der Instabilität eingeschlossener Mikrobäschen. Bei dem Umgebungsdruck p_{stat} befindet sich eine Dampf-/Gasblase im Ruhezustand und hat den Anfangsradius R_n . Unter Annahme sehr geringer Gasdiffusion aus der Flüssigkeit aufgrund der kurzen Expansionszeit wird diese für eine vereinfachte Abschätzung vernachlässigt.

$$p_a = p_i + p_v - \frac{2\sigma}{R_n}$$

mit dem Gasdruck im Inneren der Blase:

$$p_i = \left(p_{\text{stat}} - p_v + \frac{2\sigma}{R_n} \right) \frac{R_n^3}{R^3}$$

Glg. 2-4

$$\rightarrow p_a = \left(p_{\text{stat}} - p_v + \frac{2\sigma}{R_n} \right) \frac{R_n^3}{R^3} + p_v - \frac{2\sigma}{R}$$

Die zu erwartende Änderung des Sättigungsdampfdruckes p_v aufgrund der Änderung des Krümmungsradius wird vernachlässigt. Aufgrund der kleinen Gasmasse in der Blase gegenüber einer sehr großen Wärmekapazität der umgebenden Flüssigkeit wird die Druckänderung des Gases in der Blase vereinfachend als isotherm angenommen.

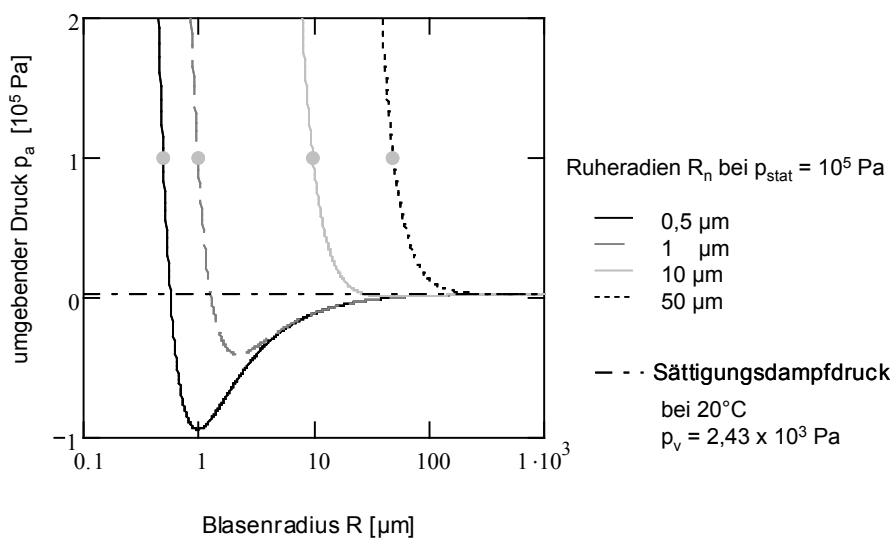


Bild 2-4: Gleichgewichtsradien der Blasen bei Änderung des umgebenden Drucks p_a nach Sutilof (1984). Für Anfangsradien (graue Punkte) von 0,5; 1; 10 und 50 μm bei einem Anfangsdruck von 10^5 Pa.

Tabelle 2-3: Parameter für die exemplarische Berechnung der Kavitationsschwelle

Ruheradien	R_n	0,5; 1; 10; 50 μm
Anfangsdruck	p_{stat}	10^5 Pa
Sättigungsdampfdruck bei 20°C	p_v	$2,34 \times 10^3$ Pa
Oberflächenspannung	σ	$72,75 \times 10^{-3}$ N/m
Fluidichte	ρ_{liq}	998 kg/m ³
Schallgeschwindigkeit im Fluid	c_{liq}	1480 m/s
Isentropenkoeffizient	κ	1,4

Bild 2-4 zeigt den Blasenradius im Gleichgewicht mit dem umgebenden Druck für vier Anfangsradien. Die Anfangsradien sind die Blasenradien bei Normaldruck p_{stat} (graue Kreise). Bei Drücken

deutlich über dem Sättigungsdampfdruck (Punkt-Strich-Linie) ändern sich die Radien der stabilisierten Blasen mit dem von außen aufgeprägten Druck p_a nur wenig. In diesem Bereich dominiert die isotherme Zustandsänderung der Blase. Kleine Veränderungen des Radiuses führen zu hohen Druckdifferenzen, die sich umgekehrt proportional zur dritten Potenz des Radiuses verhalten. Für Drücke nahe dem Sättigungsdampfdruck überwiegt hingegen der Druck, der durch die Oberflächenspannung hervorgerufen wird. Für Drücke kleiner als der Dampfdruck ergeben sich zwei mögliche Gleichgewichtsradien. Für große Radien werden die Kräfte durch die Oberflächenspannung kleiner und die Blase dehnt sich aus und wird instabil. Für kleine Radiuswerte hingegen kann sich aufgrund der stärkeren Oberflächenkräfte ein stabiler Gleichgewichtswert einstellen, bei dem die Blase noch nicht expandiert. Die Gleichgewichtskurven bei kleinen Ruherradien weisen ein Minimum der Ausdehnungsspannung auf. In dem Minimum gibt es nur einen stabilen Zustand des Blasenradiuses. Wird dieser Druck unterschritten, dehnt sich die Blase unbegrenzt aus. Folgt dem Unterdruck eine Kompression wird die Blase aufgrund der äußeren Kräfte und der Oberflächenkräfte kollabieren.

Bild 2-5 zeigt das Ergebnis einer Extremwertbetrachtung der Glg. 2-4. Einem Anfangsblasenradius ist jeweils ein kritischer Unterdruck p_{kr} zugeordnet, bei dem es noch einen stabilen Gleichgewichtsradius gibt.

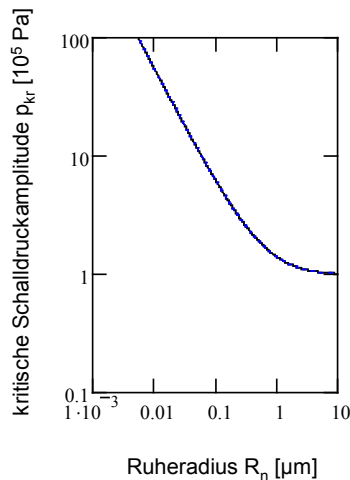


Bild 2-5: Kritischer Unterdruck über den Anfangsradius bei dem Blasen noch stabil sind.
Parameter siehe Tabelle 2-3

Die Beschreibung von Sutilov (1984) für Schwellenwert des Schalldrucks, ab dem ein heftiger Blasen kollaps auftritt, entspricht der sehr häufig beschriebenen Blake-Schwelle (Blake 1949). Bei der Blake-Schwelle wird der Sättigungsdampfdruck nicht berücksichtigt, was bei Umgebungstemperaturen zum gleichen Ergebnis führt.

Schwelle nach Sutilov:

$$p_{kr} = p_{stat} - p_v - \frac{2}{3\sqrt{3}} \sqrt{\frac{\left(\frac{2\sigma}{R_n}\right)^3}{p_{stat} - p_v + \frac{2\sigma}{R_n}}} \quad \text{Glg. 2-5}$$

Blake-Schwelle:

$$p_{kr} = p_{stat} + \frac{4\sigma}{3} \sqrt{\frac{2\sigma}{3R_n^3 \left(p_{stat} + \frac{2\sigma}{R_n}\right)}} \quad \text{Glg. 2-6}$$

Parametervariation der Schwelle für das Auftreten eines Blasenkolapses

Zur Analyse der Einflussgrößen Ruheradius (Gasgehalt), Umgebungsdruck, Oberflächenspannung, Dampfdruck und Temperatur wurde die Blake-Schwelle (Glg. 2-6) ausgewertet.

Bild 2-6 zeigt den starken Anstieg des Kavitationsschwellenwertes mit kleineren Ruheradien und die nahezu direkt proportionale Abhängigkeit von dem Umgebungsdruck.

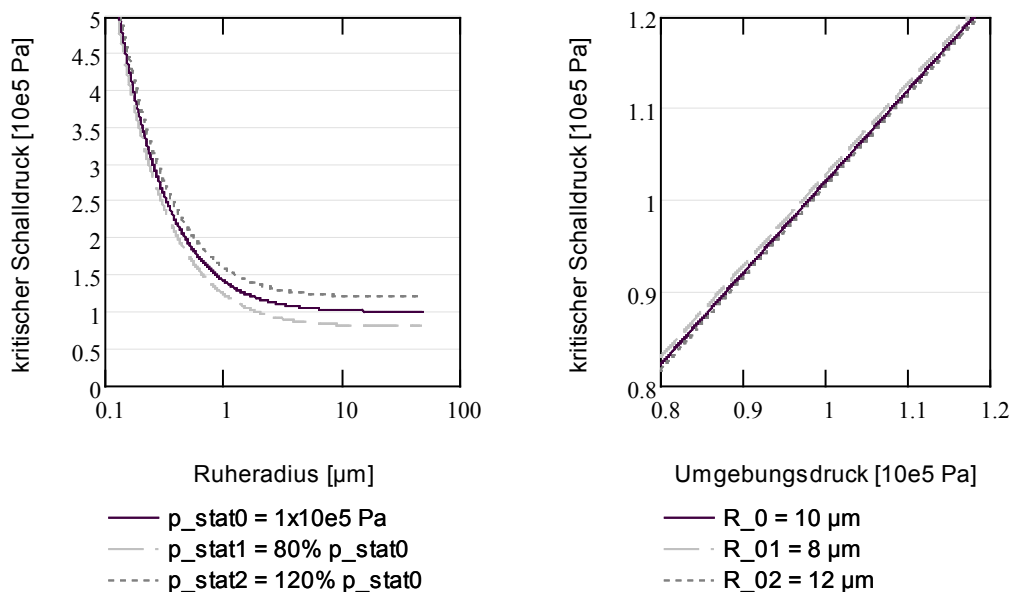


Bild 2-6: Parameterabhängigkeit der Kavitationsschwelle: Umgebungsdruck und Ruheradius; Parameter für die Auswertung siehe Tabelle 2-3

Weitere Parametervariationen für die Kavitationsschwelle sind in Anhang 4 aufgeführt.

Resonanzerscheinungen spielen dann eine Rolle für die Blasendynamik, wenn die anregende Ultraschallfrequenz mit der Eigenfrequenz der Blasenoszillation zusammenfällt. Bei den beobachteten, charakteristischen Blasenradien (Mettin 1999) liegt die anregende Ultraschallfrequenz deutlich unter der Resonanzfrequenz der Blasen. In diesem Fall schwingt die Blase in Phase mit dem anregenden Schalldruckfeld um ihren Ruheradius. Übersteigt die Anregungsfrequenz die Eigenfrequenz der Blasen, kommt es nicht zu der starken Expansion während der Unterdruckphase. Der Blasendurchmesser ändert sich aufgrund der schnellen Schalldruckänderung nur wenig (Bild 2-3), der Blasenkolaps ist weniger heftig. Bild 2-7 zeigt die Resonanzfrequenz f_{Res} der Blasen nach dem linearisierten Rayleigh-Minaert-Modell (Minnaert 1933). Bei einer typischen

Ultraschallfrequenz von 20 kHz liegt der Blasenresonanzradius bei 163 μm . Je kleiner die Anregungsfrequenz, umso größere Blasen, lassen sich zu heftiger Blasenoszillation anregen.

Resonanzfrequenz aus dem linearisierten Rayleigh-Minnaert-Modell (Minnaert 1933)

nach Koch (2006):

$$f_{\text{Res}} = \frac{1}{2 \cdot \pi \cdot R_n} \sqrt{\frac{3 \cdot \kappa \cdot p_{\text{stat}}}{\rho_{\text{liq}}}}$$

Glg. 2-7

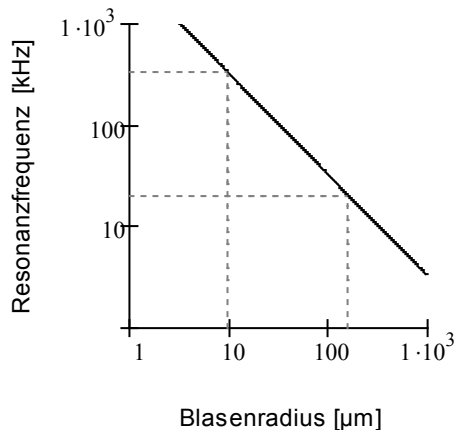


Bild 2-7: Resonanzfrequenz von Blasen in Wasser unterschiedlicher Radien; Parameter für die Auswertung siehe Tabelle 2-3

Charakteristische Vorgänge an Blasen verschiedener Größe im Schallfeld

Für das Einsetzen von Kavitation ist die Verteilung von Blasenradien in der Flüssigkeit entscheidend. Die Anzahl von größeren stabilisierten Bläschen mit Radien größer 10 μm erhöht sich bei höherem Gehalt an physikalisch gelöstem Gas und geringerem Umgebungsdruck (Unterdruck). Die Anfangsverteilung lässt sich gegenüber einer Referenzprobe, die vollständig entgast ist, mit üblichen Partikelgrößenanalysegeräten bestimmen.

Aufgrund der verschiedenen in einer Flüssigkeit vorhandenen Anfangsblasenradien und dem in der Praxis ungleich verteilten Schallwechseldruck innerhalb eines Ultraschallfeldes sind alle oben beschriebenen Vorgänge und Arten der Blasenoszillation und des Blasenkollapses für eine treibende Frequenz gleichzeitig zu erwarten. Für kleine Blasen und Schalldrücke lösen sich die Blasen auf, bei größeren Blasen und Schalldrücken wachsen die Blasenradien an. Dabei Schwingen sie bei gleich bleibenden Schalldruck immer höher auf (gerichtete Diffusion), bis sie heftig kollabieren. Bei diesem Kollaps können sie in zahlreiche kleinere Blasen zerteilt werden, die je nach Größe wieder anwachsen oder sich auflösen. Im Kapitel 2.3.3 bei der Betrachtung von Mehrblasensystemen wird als zusätzlicher Effekt noch die Vereinigung mehrerer Blasen beschrieben. Anziehungskräfte zwischen zwei Blasen (sekundäre Bjerkneskraft, Koch 2006) oder Zusammenstöße durch Strömungsturbulenzen führen zur Koaleszenz von Blasen. Sehr große Blasen steigen in der Flüssigkeit auf oder teilen sich aufgrund von Grenzflächeninstabilitäten wieder in mehrere Blasen auf.

Zusammenfassung der Einflussparameter

Ein verringerter Systemdruck, das Vorhandensein von Blasen mit Ruheradien größer $1\ \mu\text{m}$, eine niedrige Oberflächenspannung, ein niedriger Dampfdruck und eine hohe Temperatur verringern den benötigten kritischen Schalldruck, ab dem ein Blasenkollaps stattfindet. Diese Parameter beeinflussen nicht in der gleichen Weise die Heftigkeit des Blasenkollapses. Der Blasenkollaps fällt besonders heftig aus, wenn bei Parametern, die eine hohe Kavitationsschwelle verursachen (hoher Systemdruck, niedrige Temperatur, kleine Anfangsblasenradien, hohe Oberflächenspannung) durch eine entsprechend hohe Schalldruckamplitude der Kollaps erzwungen wird. Die Häufigkeit solcher heftigen Implusionen ist dann jedoch gering.

Tabelle 2-4: Allgemeine Zusammenfassung der Einflussparameter auf die Art der Blasendynamik in Anlehnung an (Horst 1997).

Parameter	Einfluss durch	Effekt auf
Frequenz	Blasengröße Kollapsfrequenz	Anzahl, Intensität und Häufigkeit von Kavitationsereignissen
Intensität	Lokale Energiedichte Kollapsintensität Größe der Kavitationzone, Schallquelle, Material, Geometrie, Aufbau des Moduls	Intensität und Ausdehnung der Kavitationszone
Temperatur	Flüssigkeitsparameter	Heftigkeit des Blasenkollapses
Statischer Druck	Kollapsintensität Gaslöslichkeit	Intensität auf Anzahl von Kavitationsereignissen
Gelöste Gase	Stoffeigenschaften Chemische Reaktivität	Blasengröße und Blasendynamik Kinetik
Flüssigkeit	Stoffeigenschaft Konzentration von Tensiden; Oberflächenspannung	Schwellwert für Blasenkollaps; Heftigkeit des Blasenkollapses

2.3.2 Asymmetrischer Blasenkollaps

Insbesondere im Hinblick auf die Reinigungswirkung der Kavitation ist die Betrachtung des Blasenkollapses in der Nähe einer festen Grenzfläche von Bedeutung. Im Gegensatz zu den radial-symmetrischen Bewegungen einer Blasenwand, die frei in der Flüssigkeit schwebt, lässt sich bei einer kollabierenden Blase in der Nähe einer Wand eine charakteristische Verformung beobachten. Da auf der Seite der Begrenzung die Flüssigkeit nicht hindernisfrei nachströmen kann, flacht sich die Blase von der Seite her ab, von der die Anströmung den kleinsten Widerstand hat. Die gegenüberliegende, zur Wand gerichtete Seite der Blase erweitert sich aufgrund des Unterdrucks tropfenförmig.

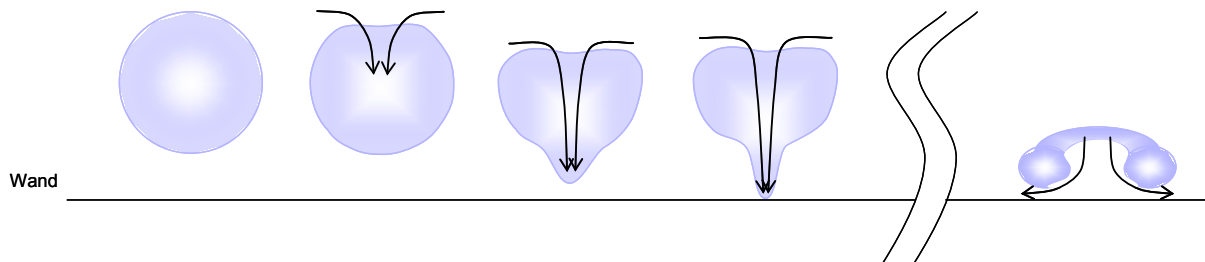


Bild 2-8: Schematische Darstellung des asymmetrischen Blasenkolllaps in der Nähe einer Wand. Das letzte Bild dieser Reihe deutet die Ausbildung eines torusförmigen Blasengebildes an.

Bei heftigem Blasenkolllaps und einem entsprechenden Wandabstand der Blase entwickelt sich aus der Einstülpung eine Jetströmung die durch die Blase hindurch auf die Wand gerichtet ist. Wichtige Modelle, die für den asymmetrischen Blasenkolllaps aufgestellt und berechnet wurden, stammen von Benjamin and Ellis (1966), Plesset and Chapman (1971), Blake et al. (Blake 1986, Best 1994, Blake 1988, Blake 2001, Brujan 2005) und Ishida et al. (2001).

Eine gute Übersicht zu dem Bereich des asymmetrischen Blasenkolllaps gibt Lohrberg (2002). Eine Vielzahl von experimentellen Arbeiten zu dem Verhalten des Blasenkolllapses in der Nähe einer festen Grenzfläche bauen auf den ersten Arbeiten mit laserinduzierten Blasen von Lauterborn und Bolle (1975) auf.

Um die Wirksamkeit des asymmetrischen Blasenkolllapses bezüglich der Reinigung zu bewerten, sind die Richtung der Jetströmung und dessen Geschwindigkeit von Interesse. Zur Klassifizierung des asymmetrischen Blasenkolllapses wird der auf den maximalen Blasenradius bezogene Abstand L des Blasen-zentrums von der Wand angegeben.

$$\gamma = \frac{L}{R_{\max}}$$

Glg. 2-8

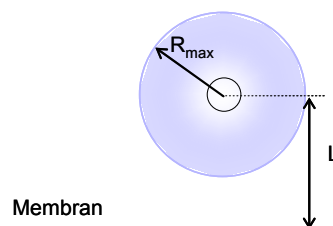


Bild 2-9: Geometrische Verhältnisse für die Definition des dimensionslosen Wandabstands der Kavitationsblase γ .

Für $\gamma < 3$ wird von einer wandnahen Implosion gesprochen, für die die oben beschriebene asymmetrische Verformung während des Blasenkolllapses zutrifft und ein Flüssigkeitsstrahl durch die Blase entsteht.

Der Ansatz des Kelvin-Impulses wurde erstmals von Benjamin and Ellis (1966) für die Blasendynamik vorgeschlagen. Die Grundidee des Konzeptes des Kelvin-Impulses ist die Impulserhaltungsgleichung. Der Impuls, der sich aus der Integration der Kraft über die Zeit eines gesamten radialsymmetrischen Blasenzykluses (Wachstum und Kollaps) ergibt, wird dem Impuls einer Strahlströmung gleichgesetzt. Dabei wird der Blase eine virtuelle Masse zugeordnet, die der Flüssigkeit entspricht, die sich um die Blase bewegt. Die allgemeine Definition des Kelvin-Impulses findet sich in der Veröffentlichung von Blake (1988). Da mit dem axialen Flüssigkeitsstrahl eine Bewegung der Flüssigkeit in Richtung des Strahls verbunden ist, wurde vorgeschlagen, das Auf-

treten und die Richtung dieses Strahls vorherzusagen, indem man den Kelvin-Impuls am Ende des Blasenkollapses analysiert (Best 1994, Blake 1988, Blake 1986, Blake 2001, Brujan 2005). Es gibt andere Erklärungsansätze, die den physikalischen Hintergrund der Ausbildung des Jets eher in einer tropfenförmigen Verlängerung der Blase in Richtung der Wand sehen. Aufgrund des kleineren Blasenradius erfolgt hier die Implosion früher und saugt den Flüssigkeitsstrahl durch die Blase auf die Wand zu (Lauterborn 1975). Trotz der Ungewissheit bezüglich des physikalischen Modells ist der Ansatz des Kelvin-Impulses für eine Abschätzung des asymmetrischen Blasen-kollapses sehr hilfreich.

Der Strahlimpuls ist die charakteristische Größe für die Betrachtung eines Freistrahls (Schlichting 2006), da dieser unabhängig von der Lauflänge des Strahls ist. Lohrberg (2002) gibt ein Näherungsergebnis für den Kelvin-Impuls als Integral über einen Blasenzyklus von Wachstum und Kollaps an. Mit Hilfe des Kelvin-Impulses und der potentiellen Energie der Blase lässt sich die Geschwindigkeit des Flüssigkeitsstrahls abschätzen. Für die Abschätzung hat Lohrberg (2002) folgende Annahmen getroffen:

- Festkörperbewegung des Fluids innerhalb des Strahls (keine Betrachtung des Strömungsprofils und der Grenzschichteffekte)
- Vollständige Umwandlung der potentiellen Energie der Blase in kinetische Energie
- Vollständige Umwandlung des Kelvin-Impulses in den Impuls des Strahls.

Damit ergibt sich eine mittlere Strahlgeschwindigkeit von:

$$v_{\text{Jet}} = \frac{\sqrt{24}}{B\left(\frac{7}{6}, \frac{3}{2}\right)} \cdot \gamma^2 \sqrt{\frac{p_{\text{stat}} - p_v}{\rho_{\text{liq}}}} \approx 8,97 \cdot \gamma^2 \sqrt{\frac{p_{\text{stat}} - p_v}{\rho_{\text{liq}}}} \quad \text{Glg. 2-9}$$

mit:	
Eulersche Betafunktion:	$B(z_1, z_2) = \int_0^1 t^{z_1-1} (1-t)^{z_2-1} dt$
	Wobei z_1 und z_2 zwei komplexe Zahlen mit positivem Realteil sind.

Aus der Geschwindigkeit lässt sich der Druck berechnen, den der Fluidstrahl beim Auftreffen auf die Oberfläche erzeugt. Dabei kann man das Auftreffen des Strahls als Wasserhammer oder als Staupunkt betrachten (Köhler 1999). Die Staupunkt Betrachtung führt zu wesentlich kleineren Werten.

Wasserhammer:

$$p_{\text{Wh}} = v_{\text{Jet}} \frac{\rho_{\text{liq}} c_{\text{liq}} \cdot \rho_w c_w}{\rho_{\text{liq}} c_{\text{liq}} + \rho_w c_w}$$

Staudruck:

$$p_{\text{St}} = v_{\text{Jet}}^2 \cdot \frac{\rho_{\text{liq}}}{2} = \frac{12}{B^2\left(\frac{7}{6}, \frac{3}{2}\right)} (p_{\text{stat}} - p_v) \cdot \gamma^4 \approx 40,19 \cdot (p_{\text{stat}} - p_v) \cdot \gamma^4 \quad \text{Glg. 2-10}$$

Plesset und Chapman (1971) haben in ihren numerischen Berechnungen die Kompressibilität des Fluids, die Reibung, den Druckgradienten innerhalb der Blase, die zeitliche Änderung des Umgebungsdruckes, den Restgasgehalt und die Oberflächenspannung vernachlässigt. Unter diesen Annahmen hängt der asymmetrische Blasen kollaps lediglich von dem dimensionslosen Wandabstand γ ab. Unberücksichtigt in den Berechnungsmodellen bleiben die Ausbildung von Counterjets, wie sie von Lauterborn und Bolle (1975) beobachtet wurden und die Ausprägung des verbleibenden Torus und dessen Implosion (vgl. schematische Darstellung Bild 2-8 rechts).

Lohrberg (2002) hat die theoretischen Arbeiten und experimentellen Ergebnisse verschiedener Autoren zusammengetragen und gegenübergestellt. Bei dem Wert des dimensionslosen Wandabstands von $\gamma = 1$ (Blase berührt die Oberfläche) ergeben sich Jetgeschwindigkeiten von etwa 100 m/s. Für die verschiedenen Bereiche des Wandabstandes können die Beobachtungen nach ihrer schädigenden Wirkung auf eine metallische Probe klassifiziert werden. Für den Bereich $\gamma > 2,2$ sind keine Erosionsschäden an der Oberfläche zu finden. Im Bereich $1,9 \leq \gamma < 2,2$ wird die Schädigung der Druckwelle einer kugelsymmetrischen Implosion der Blase zugeordnet. Der Jet wird bis zum Auftreffen an der Wand stark abgebremst. Die Blase wandert bei einem anschließenden zweiten Aufschwingen in Richtung der Wand. Für Werte $1 \leq \gamma < 1,9$ wurden Erosionsspuren in Form eines Rings um die Symmetrieachse beobachtet, die auf die Implosion der Mikrobläschen des Torus zurückgehen. Der Jet hingegen wird beim Durchtritt der unteren Blasenwand verwirbelt und je nach Abstand auf dem Weg zur Wand abgebremst. Für Werte $0,7 \leq \gamma < 1$ wurde auch die ringförmige Schädigung beobachtet, die bei einem Wert von 0,9 ein Minimum hat. In diesem Bereich trifft der Mikrojet ungedämpft die Wand. Der Zeitpunkt des Auftreffens liegt dabei vor dem Kollaps der Blase. Mit geringer werdendem Abstand der Blase wird der Jet dicker. Der Abdruck der Schädigung wird deutlicher. Er fällt aber gegenüber dem implodierenden Ring an Mikroblasen, der als Torus stabilisiert ist, kaum ins Gewicht. Die materialschädigende Wirkung der Kavitation wird damit eher den Druckwellen zugeordnet als den Microjets. Heftige schädigende Druckwellen können sowohl bei einem nahezu kugelförmigen Kollaps in größerer Entfernung von der Wand ($1,9 \leq \gamma < 2,2$) als auch aufgrund der heftigen Implosion des ausgebildeten Torus auftreten.

Der oben beschriebene Fall einer einzelnen kollabierenden Blase in der Nähe einer festen Wand ist ein einfacher Spezialfall. Die geometrische Konstellation, die sich aus der Blasengröße und dem Abstand zu einer oder mehreren Grenzflächen ergibt und die Eigenschaften der Grenzfläche sind entscheidend, wie stark und in welche Richtung sich ein Flüssigkeitsjet bei einem Blasen kollaps ausbildet. Der Ansatz des Kelvin-Impulses verspricht für eine erste Abschätzung eine zuverlässige und wenig aufwändige Methode zu sein. Blake (1988) wendet den Ansatz auf Membranen an. Die Membran ist dabei gekennzeichnet durch Widerstands- und Trägheitskräfte. Sie ist allerdings nicht durchlässig und porös. Best and Blake (1994) schlagen eine numerische Berechnungsmethode vor, die den Ansatz des Kelvin-Impulses auch für komplexe Geometrien einfach anwendbar macht.

Für die Membranreinigung relevante Geometrien

Die meisten Arbeiten haben sich mit dem asymmetrischen Blasen kollaps in der Nähe einer festen, ebenen Wand beschäftigt. Für den technischen Einsatz von Membranmodulen ist es immer ein wichtiges Ziel, möglichst viel Membranfläche in ein möglichst kleines Modul zu packen. Auf der zu reinigenden Feedseite bleiben für das Feedwasser noch enge Spalte oder Kanäle. Daher spielen in der Praxis solche Geometrien für den Blasen kollaps eine wichtige Rolle. In Hohlfasern und Kapillarmembranen, die von innen nach außen durchströmt werden (Inside-out-Betrieb), stellt die zu reinigende Fläche die Innenfläche einer engen Kapillare dar. Bei Kissen- und Flach-

modulen entstehen enge Spalte. Bei Wickelmodulen sind die freien Räume zwischen den aktiven Membranoberflächen durch ein Spacergewebe bestimmt.

Einige Arbeiten haben gezeigt, dass die Ausbildung von Jets an konkaven Oberflächen deutlich stärker als an konvexen Oberflächen sein kann (Tomita 1990).

Ishida, Nuntadusit et al. (2001) haben sich mit dem Blasenknall in einem engen Spalt zwischen festen, ebenen Grenzflächen beschäftigt. Die Effekte lassen sich durch das Verhältnis von Abstand zwischen den Platten und dem maximalen Blasenradius klassifizieren (vgl. Glg. 2-8). Ist das Verhältnis größer als 5, ist der Blasenknall nahezu unbeeinflusst sphärisch. Für Verhältnisse kleiner 3 wird der Einfluss deutlich und es bilden sich hantelförmige bzw. keilförmige Blasenformen aus. Bei kleinen Spalten teilt sich die Blase aufgrund des starken seitlichen Drucks. Beim Aufprall der beiden Blasen kommt es auf beiden Platten zu starken Drücken und entsprechender Schädigung. Besonders extrem wird die schädigende Wirkung, wenn die Anfangsposition der Blase nicht genau mittig ist.

Sassaroli and Hynynen (2006) haben den Kavitationsschwellenwert in Abhängigkeit vom Kapillardurchmesser und der Konzentration von Kontrastmitteln (hüllenstabilisierte Mikrobäschen) untersucht. Diese Geometrie kommt den in der Ultrafiltration typischen Hohlfaser- und Kapillarmembranen sehr nahe. Es wurden Mikroröhrchen aus Polyesther mit 51- 762 μm untersucht. Um den Einfluss der Streuung der Schallwelle an der Rohrwand zu minimieren, wurde auch mit Mikrotunneln gearbeitet. Dazu wurden in Agargelröhren (Agarkonzentration von 2%; Durchmesser 10 mm) kleine Kanäle mit Mikroröhrchen freigehalten, die beim Einfüllen der Lösung mit Kontrastmittel entfernt wurden. Der Kavitationsschwellenwert wurde anhand des breitbandigen Kavitationsgeräuschs detektiert. Je kleiner die Durchmesser der Kapillaren desto höher ist der Schwellenwert des Schalldrucks zum Einsetzen von Kavitation. Je höher die Konzentration dieses Kontrastmittels (ideale Kavitationskeime; Nuclei) gewählt wurde, umso geringer war der Schwellenwert der Schalldruckamplitude zum Einsetzen der Kavitation.

In der Arbeit von Ory, Yuan et al (2000) wird das Phänomen des Blasenwachstums und -kollapses in einem engen Kanal von einer ganz anderen Perspektive betrachtet. In der Modellentwicklung werden keine akustischen Kavitationsblasen betrachtet, sondern thermisch oder mechanisch erzeugte Dampfblasen. Dabei wird davon ausgegangen, dass das Blasenvolumen deutlich größer wird, als der einer sphärischen Blase, mit einem maximalen Durchmesser kleiner als der der Kapillare. Hierbei gibt die Begrenzungsfläche der Kapillare die Form des Blasenwachstums und des Kollapses vor. Die so erzeugten Strömungen werden bereits als Mikropumpe ohne mechanisch bewegte Teile bei Tintenstrahldruckern seit Jahren erfolgreich genutzt. Dabei werden die Blasen durch schnelles Aufheizen der Mikrokanäle erzeugt. Dieses Szenario ist auch für die Ultraschallreinigung von engen Membrankapillaren denkbar. Für die in Kapitel 3.3 verwendeten Membrankapillaren mit 900 μm Durchmesser müsste die Blase auch einen Durchmesser in dieser Größenordnung haben. Bild 6-8 und Bild 6-9 zeigen Blasenschwingungen von Blasen, die in der Größenordnung von 200 μm Durchmesser liegen. Die Schwingungsdynamik ist bei so großen Blasen bereits sehr schwach.

Mehrere geometrische Formen von asymmetrisch kollabierenden Blasen haben Zwaan, Bac et al. (2007) und Brujan et al. (2005) untersucht.

Für die Membranreinigung relevante Oberflächen

Die meisten Arbeiten zum asymmetrischen Blasenknall gehen von einer festen Grenzfläche aus. Bei der Membranfiltration handelt es sich bei der zu reinigenden Oberfläche lediglich im Fall von keramischen oder metallischen Membranen um feste Grenzflächen, die zusätzlich porös

sind. Die Bedeutung der Porosität bezüglich der Ausbildung eines asymmetrischen Blasenkollapses und der Jetbildung ist ungeklärt. Zunächst ist zu erwarten, dass sich die Asymmetrie des Blasenkollapses und die Jetbildung abschwächen, je leichter Flüssigkeit durch die poröse Struktur der Grenzfläche nachströmen kann. In der Situation des Rückspülens ist es vorstellbar, dass sich die Asymmetrie des Nachströmens von Flüssigkeit trotz unmittelbarer Nähe zu einer festen Grenzfläche aufhebt. Bei Polymermembranen und Polymer-Composite-Membranen kann man nur eingeschränkt von einer festen Grenzfläche sprechen. Für Polymermembranen müssen zusätzlich die Aspekte der elastischen Verformbarkeit und der Beweglichkeit der Grenzflächen berücksichtigt werden. Bei Composite-Membranen sind diese Grenzflächen aus mehreren Schichten und Materialien zusammengesetzt, wobei die Stützstruktur häufig schaumstoffartigen Charakter hat. Für die Ausbreitung der Schallwelle in einem Membranmodul ist es ein gravierender Unterschied, ob es sich bei dem Membranmaterial um eine schallharte (Reflexion) oder schallweiche Grenzfläche handelt, die absorbierende Eigenschaften aufweist (vgl. Reuter, Mettin et al. (2008), Kap. 5.1.2). Die aktive, poröse Membranfläche ist bei der Mikro- und Ultrafiltration in der Regel nach wenigen Sekunden von einer ersten Partikellage vollständig bedeckt (vgl. Kap. 4.6.4). Für eine praktische Anwendung im Bereich der Membranreinigung muss daher der Betrachtung einer homogenen, wenig durchlässigen Partikelschicht die größte Bedeutung beigemessen werden. In der Situation der Reinigung besteht die eigentliche Grenzfläche aus der Deckschicht. Die Eigenschaften dieser Deckschicht unterscheiden sich zwischen unterschiedlichen Stoffsystemen und bei unterschiedlichen Filtrationsparametern erheblich. Besonders im Bereich der medizinischen Forschung finden sich Untersuchungen unter dem Stichwort Sonophorese und Sonoperation, wie der Blasenkollaps an solchen Oberflächen beschrieben werden kann und welche Auswirkungen er hat.

Shima, Tomita et al. (1989) und Tomita und Kodama (2003) haben ausgehend von der Erfahrung, dass feste Wände Blasen anziehen, aber freie Oberflächen diese abstoßen, untersucht, ob sich durch die Beschichtung eines Körpers mit einer visko-elastischen Haut die Schädigung durch Kavitation reduzieren lässt. Dazu wurde mit einer zusammengesetzten Oberfläche aus einer Gummi- bzw. Silikonoberfläche und einer luftgefüllten porösen Schaumstoffstützstruktur gearbeitet. Die Experimente wurden für unterschiedliche dimensionslose Wandabstände der Blase durchgeführt (Tomita 2003). Je nach Nachgiebigkeit der Schicht und Wandabstand gab es einen neutralen Kollaps mit Aufspaltung der Blase, einen auf die Wand gerichteten Jet oder einen Jet, der von der Wand weg gerichtet ist. Für sehr nachgiebige Oberflächen konnte bei kleinen Wandabständen ein Abstoßen der Blase beobachtet werden, für eine höhere Steifigkeit der Oberfläche und einem bestimmten Wandabstand wurde die Blase im Kollaps angezogen und ein Jet, der auf die Blase gerichtet ist, wurde ausgebildet. Für Parameterkombinationen dazwischen kommt es zu Mischformen der beiden Extreme und für eine bestimmte Parameterpaarung zum neutralen Kollaps. Bei genauerer Untersuchung der neutralen Situation ohne eine Nettoblasenbewegung konnte gezeigt werden, dass sich die Blase flaschenhalsartig in der Mitte einschnürt und sich in zwei Teile aufspaltet. Die Beobachtung an dieser speziellen Situation ähnelt stark der oben beschriebenen Situation, die bei einem symmetrischen Aufbau zwischen zwei starren Platten gemacht wurden (Shima 1980, Ishida 2001). Für die Art des Blasenkollapses spielt sowohl die Oberflächenträgheit als auch deren Elastizitätsmodul eine große Rolle. In der Arbeit wurden auch Versuche mit reinen Schaumstoffschichten (Shima 1989) oder Schaumstoffschichten mit dünner Silikonschicht (Tomita 2003) durchgeführt, was der Situation an einer Filtrationsmembran vermutlich am nächsten kommt. Auch hier ist die Tendenz der Blasenbewegung von der Oberfläche weg zu beobachten, die Oberfläche wird jedoch stark von der Blase angezogen und biegt sich ihr entgegen bzw. wird Luft aus ihren Schaumstoffporen gesaugt.

Brujan, Nahen et al (2001) haben wichtige grundlegende Untersuchungen zu der Abhängigkeit der Jetbildung von dem Elastizitätsmodul der Oberfläche durchgeführt. Hierzu wurde ein Polyacrylamid-Gel (PAA) verwendet, dessen E-Modul zwischen 0,017 MPa und 2,03 MPa eingestellt werden kann. Bei der Parametervariation des E-Moduls und des dimensionslosen Wandabstands γ konnte das ganze Spektrum an möglichen Flüssigkeitsjets erzeugt werden. Jets, die von der

Oberfläche weg gerichtet sind, Jets, die auf die Oberfläche gerichtet sind, und ringförmige Jets in gegensätzlicher Richtung, die bei sich teilenden Blasen entstehen. Für mittlere E-Module zwischen 0,12 und 0,4 MPa findet ein Eindringen des Jets in die Gelschicht statt. Für kleine γ -Werte wird dabei PAA-Material in das umgebende Fluid ausgestoßen. Für steifere Gelschichten ist das Verhalten so wie bei einer festen Wand. Noch weichere Oberflächen werden zwar nicht penetriert, da der Blasen kollaps eher radialsymmetrisch abläuft, wie in einem unendlich ausgedehnten Volumen. Es kann bei einem Blasen kollaps in der Nähe der Gelschicht aber auch Material abgetragen werden. Für Flüssigkeitsjets, die auf die Grenzfläche zu gerichtet sind, wurden 400 bis 800 m/s gemessen. Die Geschwindigkeit der Jets, die von der Gelschicht weggerichtet sind, liegt zwischen 300 und 600 m/s. Aus den Arbeiten schließen die Autoren, dass das Eindringen des Flüssigkeitsjets, das jetähnliche Ausstoßen von Grenzschichtmaterial und die Verformung aufgrund der hohen Zugspannung während des Blasen kollapses die Hauptmechanismen für Kavitationserosion sind. Diese Mechanismen sind für die verstärkte Abtragung von elastischem Material wie zum Beispiel biologisches Gewebe verantwortlich. Statt als Schutz gegen die erosive Wirkung der Kavitation zu wirken, verstärkt in vielen Situationen eine elastische Schicht die Heftigkeit der Jets. Bei den Jets, die auf die Oberfläche gerichtet sind, wird bei einer festen Wand nur 150 m/s erreicht, die maximalen Geschwindigkeiten im Bereich der Einschnürung von sich auftrennenden Blasen liegen bei 800 m/s. Auch die Ergebnisse von Kodama and Tomita (2000), bei denen die Versuche mit Gelatine durchgeführt wurden, konnten diese heftigen Jetströme nachweisen.

Bedeutung des Erkenntnisstandes zum asymmetrischen Blasen kollaps für die Membranreinigung

Es ist völlig ungeklärt, wie und ob sich in engen Spalten und Kapillaren innerhalb von Membranmodulen eine Jetströmung ausbildet. Weder die Richtung noch die Form einer solchen Jetströmung können ohne Experiment klar vorhergesagt werden. Das Auftreten eines asymmetrischen Blasen kollapses hängt neben den Randbedingungen, die durch die Eigenschaften der Begrenzungsfläche und der Membran- und Modulgeometrie festgelegt sind, von weiteren stochastischen Ereignissen ab. So sind bislang keine Modelle bekannt, mit denen die Häufigkeit des Auftretens einer Blase mit einem geeigneten Ruheradius in einem bestimmten Wandabstand für einen definierten Flächenabschnitt der Membran vorhergesagt werden kann.

Es bestehen gute Chancen, dass gelartige, wässrige Schichten, wie sie häufig auf Membranen bei der Filtration von natürlichem Oberflächenwasser auftreten, gut gereinigt werden können (Brujan 2001). Die Eigenschaften der Deckschicht (E-Modul) können die Heftigkeit der Jetströmungen beeinflussen. So ist es theoretisch denkbar, dass durch die Filtrationsparameter und Vorgänge, wie einem »Anpressen« oder »Vergleichmäßigen« oder »Lockern« der Deckschicht durch Überströmen und Rückspülen, die Deckschicht für die anschließende Ultraschallreinigung optimiert werden kann. Der zweite entscheidende Faktor neben dem E-Modul, der beeinflusst, ob der Flüssigkeitsjet auftritt und ob er reinigendes oder zerstörendes Potenzial hat, ist der dimensionslose Wandabstand der Blasen. Es erweist sich als schwierig, diesen Wert für eine technische Nutzung und Kontrolle der Reinigungsvorgänge zu beeinflussen. Die Schleppkräfte bei der Filtration könnten hierfür eine Methode bieten.

2.3.3 Mehrblasensysteme - Blasenwolken

Abhängig von dem Schallfeld können sich in Vielblasensystemen unterschiedliche, charakteristische Figuren ausbilden. Mettin (2005) spricht vom »Zoo« der Blasenstrukturen, womit er sich auf die geläufigen Bezeichnungen Qualle (jellyfish) und Seestern (starfish) bezieht. Die quallenartigen Strukturen treten in entgasteten Ultraschallreinigungsbädern meist in einer sich gegenüberliegenden Doppelstruktur auf. Ihnen wird für die Reinigung in Ultraschallbädern eine große Bedeutung zugeordnet (Krefting 2003). Die Seestern-Figur tritt unmittelbar unter der Wasseroberfläche in einem Ultraschallbad auf. Neben diesen Figuren sind Filamentstrukturen oder akustische Lichtenbergfiguren, so genannte »Streamer«, Kavitationsblasenbögen und Ringe typische Kavitationsmuster. Eine typische Streamerfigur wurde als schädigende Kavitationszone in dem verwendeten Edelstahlhüllrohr zur Beschallung eines Kapillarmembranmoduls in Kapitel 5.4.2 (Bild 5-36 und Bild 5-37) identifiziert. Bei der Visualisierung der Kavitationsfelder (Kapitel 4.4.3) konnten auch bei den verwendeten Ultraschallwandlern die typischen akustischen Lichtenbergfiguren, Streamer und Jellyfish-Strukturen gezeigt werden (vgl. Bild 2-10).

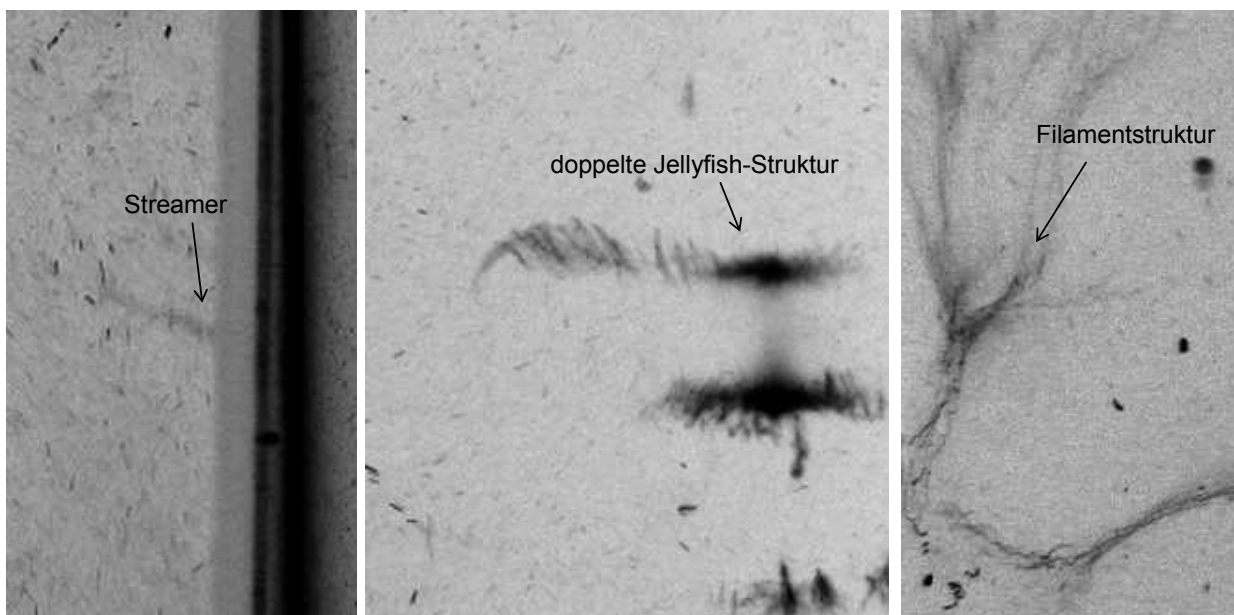


Bild 2-10: Typische Blasenfiguren in kavitierenden Schallfeldern.

Es hat sich gezeigt, dass für die Reinigung auf Membranoberflächen nicht die typischen Kavitationsblasenstrukturen, sondern relativ große Einzelblasen verantwortlich gemacht werden können (Kap. 5.1.2; Bild 4-38 und Bild 5-7). Daher werden die Mehrblasensysteme und Blasenwolken hier nicht näher betrachtet. Für die Ausbildung der charakteristischen Kavitationsblasenstrukturen werden Kräfte verantwortlich gemacht, die eine translatorische Bewegung der Blasen bewirken. Die primäre Bjerkneskraft zieht Blasen kleiner als ihr Resonanzblasenradius in die Bäuche eines stehenden Schallfeldes, wohingegen Blasen, die größer als der Resonanzblasenradius sind, von dieser Kraft in die Knoten des stehenden Schallfeldes gezogen werden. Die sekundäre Bjerkneskraft beschreibt die resultierenden anziehenden oder abstoßenden Kräfte, die zwei oszillierende Kräfte aufeinander ausüben (Bjerknes 1906). Mit Hilfe der beiden Bjerkneskräfte und den Kräften für den Widerstand und den Auftrieb konnten im Modell die typischen Filamentstrukturen nachgerechnet werden (z.B. Koch 2006, Mettin 2005, Krefting 2004). Bezüglich der Widerstandskraft der Translationsbewegung der Blasen im Schallfeld ist es interessant, dass der Ansatz von Stokes für ein laminares Strömungsregime die Situation weniger gut wiedergibt, als der Ansatz für die Reibungskraft nach Magnaudet, der von hohen Reynoldszahlen ausgeht. Die Blasenwandgeschwindigkeit bei der Oszillation einer Blase im Schallfeld spielt offensichtlich eine große Rolle für die Beweglichkeit und den Widerstand der Blase im Medium (Krefting 2002). Die

Oszillation der Blase scheint eine Situation zu induzieren, die mit einem turbulenten Strömungsregime vergleichbar ist.

Bei der Entgasung einer mit Gas gesättigten Flüssigkeit im Ultraschallfeld bildet sich in stehenden Schallfeldern einer Miller-Schicht (Otto 2009) in den Knoten aus. Diese Millerschicht besteht aus Bläschen, die größer als ihr Resonanzblasenradius für diese Frequenz ist. Die sich ausbildenden Bande von Miller-Schichten sind in Bild 4-37 (Kap. 4.4.3) deutlich zu erkennen. Es konnte gezeigt werden, dass bei der Skalierung solcher Systeme mit der Frequenz sich ein festes Verhältnis von 1,25 für den mittleren Radius von Blasen in der Miller-Schicht zu dem Minnaert-schen-Resonanzblasenradius (Glg. 2-7) einstellt.

$$\frac{R_{\text{Miller}}}{R_n(f_{\text{Res}})} = \text{konst.} = 1,25 \quad \text{Glg. 2-11}$$

Auch für die Abstände der einzelnen Blasen innerhalb der Blasenschicht lässt sich auf die Wellenlänge bezogen eine Konstante ermitteln.

$$\frac{d_B}{\lambda} \approx \text{konst.} \approx 0,057 \quad \text{Glg. 2-12}$$

Mit diesen Zusammenhängen lassen sich die Blasen zonen in den Banden des stehenden Schallfeldes mit der Frequenz skalieren und typische Blasengrößen bestimmen. Unklar ist, warum die Blasen innerhalb dieser Schicht nicht koaleszieren und wodurch die Blasengröße limitiert wird, die durch die gerichtete Diffusion immer weiter anwachsen sollte. Ein Erklärungsansatz hierfür liegt in der Wirkung der sekundären Bjekneskraft zwischen oszillierenden Blasen, die durch höhere Harmonische der Grundfrequenz angetrieben werden. Ein Hinweis hierfür ist auch das beobachtete »Flackern« der Blasen (Otto 2009).

Sonotrodenkavitation

Die Dynamik innerhalb der kegelförmigen intensiven Kavitationsfelder an einer Sonotroden spitze ist in Mettin (2005) beschrieben. Nowak, Mettin et al. (2009) untersuchen die komplexen Bewegungsvorgänge der Blasen in dieser Zone und können mit Hochgeschwindigkeitskameras das Springen, die Bildung eines Freistrahls, das Auftrennen in mehrere kleinere Blasen und das Abstoßen von Blasen beobachten. Die Positionssprünge konnten mit einem Modell für die Translationsbewegung der Blasen nachgerechnet werden. Bei diesen typischen Kegeln an den Sonotroden von beispielsweise Laborultraschallgeräten zur Homogenisierung und Dispergierung, entstehen Fluidströmungen von der Sonotrode weggerichtet und durch die Sogwirkung ein starker Wirbel. Diese intensive Kavitationszone lässt sich als eine turbulente Zweiphasenströmung beschreiben. In einigen Arbeiten zur verbesserten Filtration durch Leistungultraschall wird diese intensive Kavitationszone als Basis der Verbesserungseffekte betrachtet (Chen 2006a, Chen 2006b, Chen 2006c, Simon 2000a, Simon 2000b). Dieses spezielle Strömungsregime hat ähnliche Auswirkungen auf die Filtration wie die Verbesserung der Bedingungen für die Crossflow-Filtration durch höhere Querstromgeschwindigkeiten oder die Verwendung rotierender Einbauten. Die Skalierung dieser intensiven hydrodynamischen Zone unter einer Sonotroden spitze auf größere Membranflächen gestaltet sich als äußerst schwierig. Die kegelförmige Kavitationszone unterhalb einer Sonotroden spitze weist eine weitere Besonderheit auf. In der Regel kommt es zu einem erosiven Abtrag des Sonotrodenmaterials und dadurch zu einer Verunreinigung des Fluids mit Metallpartikeln. Die hohen Schwingungsamplituden unmittelbar an der Sonotrodenoberfläche

che bewirken diese intensive kegelförmige Kavitationszone. Die hohe Blasendichte führt zu einer starken Energiedissipation und Reflexion der Schallwelle, so dass die Schalldruckwelle, die in das restliche Volumen weitergeleitet wird, stark abgeschwächt ist. Man spricht bei so einer intensiven Kavitationszone von einem »Cushioning-Effekt« (Gogate 2004), der trotz des hohen Energieeintrags das restliche Volumen durch ein Blasenkissen von dem intensiven Schallfeld abschirmt.

2.3.4 Kritik an den Modellen - Grenzen und Möglichkeiten

Mit den entwickelten Werkzeugen, in Form von physikalisch begründeten und experimentell verifizierten Modellen, stehen Wege offen, diese für technisch relevante Anwendungen zu nutzen. Jedoch zeigt sich bisher, dass mit der Anpassung eines simulierten Szenarios an reale Bedingungen der Rechenaufwand enorm anwächst (Koch 2006). Für die Auslegung von speziellen Ultraschallreinigungsanwendungen, wie der Membranreinigung besteht der entscheidende Hinderungsgrund, solche Werkzeuge zu nutzen, in der Unkenntnis des Auftretens und der Häufigkeit des lokalen Szenarios. Mit lokalen Szenarios sind typische lokale und zeitliche Momentaufnahmen gemeint, bei denen geometrische Randbedingungen (Spalt, Rohr, freies Flüssigkeitsvolumen), Material- und Fluideigenschaften, sowie die Anwesenheit und Anordnung von Partikeln und Keimblasen bekannt sind. Ließe sich mit statistischen Methoden eine Aussage zu typischen Situationen von Interaktion zwischen Deckschicht und Blase treffen, könnte über einfache Modelle (z.B. Kap. 6.2) berechnet werden, wie viel von der Deckschicht abgetragen werden kann. In Kapitel 8 wird vorgeschlagen ein Auslegungstool zu entwickeln, bei dem die Lücke zwischen der Dynamik einer einzelnen Blase und einer größeren zu reinigenden Oberfläche durch statistische Ansätze geschlossen werden soll, indem Ereignishäufigkeiten von ausgewählten Szenarien bestimmt werden.

Ein weiterer Hinderungsgrund, die Modelle sinnvoll für ingenieurmäßige Auslegungen von Reinigungsanwendungen zu nutzen, liegt in der Unzugänglichkeit von Eingangsparametern für die Modelle der Blasendynamik (Schalldruck, Blasengröße). Die Parameter lassen sich weder messtechnisch einfach bestimmen (v.a. der Schalldruck), noch aus einfach messbaren Summenparametern wie Konzentration, Temperatur und Druck ableiten.

2.3.5 Kontrolle der erosiven Aggressivität der Kavitation

Lohrberg (2002) hat die Möglichkeiten zur Kontrolle der erosiven Aggressivität der Kavitation an einer Turbomaschine zusammengefasst. Neben der Vermeidung der starken Unterdruckspitzen werden hydrodynamische Störungen und die Erhöhung des Gasgehalts des Fluids vorgeschlagen. Die Analyse der Kavitationsblasendynamik in Kapitel 2.3.1 hat gezeigt, dass höhere Frequenzen, größere Anfangsblasenradien und geringere Systemdrücke bei entsprechenden Schalldruckamplituden das Kollapsverhalten abschwächen können. Bei entsprechend eingestellter Schalldruckamplitude können trotz verminderter Kollapsheftigkeit hohe Maximalradien der Blasen erreicht werden. Köhler (1999) weist nach, dass auf Aluminiumfolien nicht die Jets den Materialschaden verursachen, sondern ein Kollaps direkt auf der Oberfläche. Dabei wird eine halbkugelförmige Kavitationsstoßwelle abgestrahlt. Demnach würde die Vermeidung eines Kollapses direkt auf der Membranoberfläche eine Vermeidungsstrategie von Kavitationsschäden bedeuten. Bei der Beschallung während der Rückspülung wirken aufgrund des Rückspülvolumenstroms

Schleppkräfte auf die Bläschen, die von der Membranoberfläche weg gerichtet sind. Damit verringert eine gleichzeitige Rückspülung während der Beschallung die Wahrscheinlichkeit eines schädigenden Kollapsereignisses direkt auf der Membranoberfläche.

Für die Membranreinigung ist besonders interessant, inwieweit sich die Erkenntnisse der Kavitationsforschung nutzen lassen, um die Reinigungswirkung der Kavitation auf Membranen positiv zu beeinflussen. Das Ziel einer positiven Beeinflussung wäre eine Kontrolle und Steuerung bezüglich der erosiven Aggressivität der Kavitationswirkung, dem Ort des Auftretens und der Häufigkeit beziehungsweise Dichte an Kavitationsereignissen. Ein Negativbeispiel, bei dem es durch das lokale, häufige Auftreten von Kavitationsereignissen zu Schädigungen kam, zeigt Kapitel 5.4.2.

2.3.6 Neue Trends in der Kavitationsforschung

Megasonic Cleaning

Die Miniaturisierung in verschiedenen Technologiezweigen wie der Nanotechnologie und Elektrotechnik haben hohe Anforderungen an die Reinheit ihrer Teile und Oberflächen. Neben einer Reihe aufwändiger Reinigungsmethoden (Laser, CO₂, nasschemisch,...) wird die Megaschallreinigung (Megasonic-Cleaning) für diese Anwendungen häufig eingesetzt (Awad 2002). Aus dem Bereich der Halbleitertechnologie kommen Forschungsergebnisse zu Megaschall-Reinigungsanwendungen (Awad 2002, Busnaina 2002, Kim 2009, Vereecke 2004). Wissenschaftlich gibt es bislang wenig belastbare Untersuchungen zu den Wirkungsmechanismen bei der Reinigung in Reinigungswannen mit einer intensiven Beschallung im Megahertzbereich. Sowohl die sehr sanfte Kavitationswirkung aufgrund der kleinen Blasen, als auch die extrem steilen Gradienten des Strömungsprofils der akustischen Strömung (vgl. Kap. 2.4) an den Oberflächen werden für den guten Reinigungseffekt verantwortlich gemacht (Busnaina 2002).

Otto, Nowak et al. (2008) haben bei Reinigungsversuchen bei Frequenzen von 230 kHz zwei unterschiedliche Megaschallreinigungsmechanismen identifiziert: Relativ große Blasen, die auf der Oberfläche anliegen und Oberflächenschwingungen durchführen, und eine kleinere Blasenpopulation, die sich wesentlich schneller über die Oberfläche bewegen.

Muthukumar, Kentish et al (2007) haben eine deutliche Verschlechterung beim Einsatz von Megasonic bei der Reinigung von Querstrommembranen gegenüber einer Filtration ohne Ultraschall und gegenüber der ultraschallunterstützten Crossflow-Filtration bei niedrigen Ultraschallfrequenzen festgestellt. Dabei waren die Membranmodule in einen Tank mit Megasonic-Transducern eingetaucht. Es wurde gezeigt, dass dieser negative Effekt, auf einen Anstieg des irreversiblen Foulingwiderstandes R_f zurückzuführen ist. Es wird davon ausgegangen, dass die hochfrequente Beschallung zu einer Denaturierung der Molkemoleküle führt, wodurch sich eine dickere und kompaktere Deckschicht ausgebildet hat.

Scherspannungen für die Sonoporation und Ablösung von Gewebezellen

Mit dem Ziel, das Eindringen von größeren Molekülen (z.B. von DNA) in Gewebezellen gezielt zu steuern, wird im medizinischen und genetischen Forschungsbereich der Sonoporation der Einfluss der Scherspannung auf eine haftende Zellschicht untersucht. In diesen Studien finden sich auch aufschlussreiche Erkenntnisse zur Ablösung von Gewebezellen von einer festen Wand

(Dijkink 2008a, Junge 2003, Ohl 2006b, Ohl 2003, Ohl 2006a). In allen Fällen, bei denen keine Blasen aufgetreten sind, wurde auch keine Ablösung beobachtet. Die Ablösung von Zellen ist direkt mit dem Auftreten von expandierenden und kollabierenden Kavitationsblasen und den dadurch entstehenden Strömungen und Flüssigkeitsstrahlen verknüpft. Die häufig diskutierten Effekte des Ultraschalls bezüglich der ablösenden Wirkung wie die Vibration, visko-inertiale Effekten von Stoßwellen und der akustischen Strömungseffekte scheinen eine untergeordnete Rolle zu spielen. In Analogie zur Reinigungsaufgabe auf Membranen lässt sich hieraus schließen, dass auch im Fall der Membranreinigung die Kavitation der entscheidende Mechanismus ist. In Junge, Ohl et al. (2003) und Ohl und Wolfrum (2003) werden Zellen, die auf einem Träger haften, mit einer Stoßwelle über einen Lithotripter beschossen. Im Nachlauf der Stoßwelle entsteht eine Unterdruckphase mit Kavitationsbildung. Die Position des Auftretens der Kavitationsblasen lässt sich dabei durch künstliche Kavitationskeime kontrollieren. Das können hüllenstabilisierte Blasen eines Kontrastmittels sein, hydrophobe Partikel oder Mikroblasen. Die durch den Aufprall des Flüssigkeitsstrahls bei dem asymmetrischen Blasenkollaps auftretenden Scherspannungen werden mit Hilfe der analytischen Lösung für den laminaren Strahl auf eine Wand von Glauert (1956) berechnet. Dijkink and Ohl (2008c) konnten die Wandschubspannungen mit einem Dünnfilmsensor für eine Anemometermessung bei konstanter Temperatur (CTA) bestimmen. Bei den erzeugten Jetströmen von asymmetrischen Blasen mit einem Ruheradius von 1 mm konnten Wandschubspannungen von 3,5 kPa und maximale Geschwindigkeiten parallel zur Oberfläche von 15 m/s gemessen werden. Die Geschwindigkeiten der radialen Ausbreitung des Strahls nach dem Aufprall auf der Wandoberfläche wird bei Ohl, Arora et al. (2006a) mit der Partikeltracergeschwindigkeitsmessung (PTV) ermittelt, wobei die abgelösten Zellen als Tracerpartikel genutzt werden und deren Trajektorien analysiert werden. Für die radiale Strömung parallel zur Oberfläche ergeben sich Reynoldszahlen im Bereich von $Re = 1000$ und damit eine laminare Strömung. Die Scherspannung, die im Bereich des Aufpralls des Strahls zur Ablösung der Zellen führt, wird zu einem Wert größer als 30 kPa abgeschätzt. Bei dem dimensionslosen Wandabstand der Kavitationsblase $\gamma = 0,65$ ergibt sich sowohl die größte Aufprallgeschwindigkeit als auch die größte Fläche, die durch den Flüssigkeitsstrahl gereinigt werden kann (Dijkink 2008a).

Auf ein stark vereinfachtes Modell zur Ablösung von Partikeln durch den Fluidstrahl (Kavitationsjet) auf Basis der Messwerte von Ohl, Arora et al.(2006a) wird in Kapitel 6.2.4 näher eingegangen.

Ultraschallkontrastmittel - stabilisierte Blasen im Kavitationsfeld für die Sonoperation

Im Bereich der Medizintechnik wird intensiv an der Stabilisierung von Gasblasen geforscht. Damit sich Mikrobläschen unterhalb der Schwelle für gerichtete Diffusion (Kap. 2.3.1) nicht auflösen, müssen sie z.B. durch eine Hülle stabilisiert werden. Zunächst werden solche Mikrobläschen, die durch spezielle Hüllen stabilisiert sind, genutzt, um beim diagnostischen Ultraschall aufgrund der Totalreflexion an der Gasblase ein deutliches Signal mit hohem Kontrast an den Körperstellen zu haben, zu denen diese Blasen über die Blutbahn transportiert werden (Entzündungsherde, Tumore). Der Zusammenhang mit der Kavitationsforschung besteht darin, in solchen hüllenstabilisierten Vehikeln Medikamente konzentriert an den Ort zu transportieren, an dem sie gebraucht werden, um dort durch Kavitation eine gezielte Freisetzung durch den erzwungenen Kollaps der stabilisierten Blasen zu erreichen und das Eindringen in das betroffene Gewebe zu verbessern. Durch die Jetbildung ist es gelungen, die Freisetzung des Wirkstoffs und Injektion durch Jets in das betroffene Gewebe zu erreichen (Dijkink 2008a, Dijkink 2008b). Diese Forschungsrichtung weist Parallelen zur Problemstellung bei der Membranreinigung auf, nur gezielt Oberflächen zu bearbeiten und umliegende Bereiche möglichst wenig zu schädigen. Die Verwendung hüllenstabilisierter Bläschen kann auch in den schwierig zugänglichen Geometrien von Membranmodulen zur Visualisierung der Verteilung dieser Bläschen und des Kavitationsfeldes genutzt werden.

Visualisierung der Vorgänge in Kapillaren - Auflösen von Pfropfen

Neben der gezielten Freisetzung von Medikamenten wird in der Medizintechnik der HIF-Ultraschall (high intensive focused Ultraschall) auch untersucht, um Pfropfen in Gefäßen (Embolien) aufzulösen. Diese Vorgänge können gleichzeitig im bildgebenden Ultraschall beobachtet werden (Flachskampf 2007, Sassaroli 2006). Diese Experimente sind direkt übertragbar auf eine verblockte Kapillarmembran in der Mikrofiltration, die von innen nach außen (inside-out) betrieben wird (vgl. Kap. 5.4.1). Allerdings hat der medizinische Bereich immer den Vorteil, dass der Körper verletztes oder zerstörtes Gewebe reparieren kann, während eine einmal geschädigte Membran zu verwerfen ist.

Der diagnostische Ultraschall bietet eine Reihe von Möglichkeiten, das Kavitationsfeld im Inneren eines nicht transparenten Membranmoduls oder im inneren von Kapillarmembranen zu visualisieren. Mit den Methoden der Kontrastmittel können die Strömungsverhältnisse, die Partikelbahnen (Panglisch 2001) und Ablagerungs- bzw. Reinigungsvorgänge im Innern von Membranmodulen untersucht werden. Sie lassen sich auch dazu nutzen, Defekte der Membran zu lokalisieren.

Speziell zur Verbesserung des Kavitationsfelds bezüglich seiner Aktivität an der Membranoberfläche, ließe sich durch den gezielten Einsatz von Ultraschallkontrastmitteln als Kavitationskeime bei der Rückspülung deren Auswirkung untersuchen (vgl. Kap. 8).

2.4 Akustische Strömung

Bei dem Effekt des akustischen Strömens (Quarzwind) tritt neben der longitudinalen Schwingung der Fluidmoleküle um ihre Ruhelage auch eine makroskopische Strömung auf. Die Ursache für die Strömung liegt in dem Impuls, der durch Absorption der Schallenergie in das Medium eingetragen wird (Zarembo 1971, Mitome 1998, Landau 1991, Maas 2008).

Mitome (1998) beschreibt drei Typen der akustischen Strömung:

- Eckart-Typ: Eine resultierende Strömungsgeschwindigkeit, deren Reichweite deutlich größer als die longitudinale Wellenlänge ist. Bildet sich im freien Schallfeld aus (Eckart 1948).
- Rayleigh-Typ: Wirbelströme in der Größenordnung der Wellenlänge des Schalls in der Flüssigkeit. Liegt außerhalb der Grenzschicht. Bildet sich in stehenden Wellenfeldern aus (Mitome 1998, Zarembo 1971).
- Schlichting-Typ: Wirbelströme mit einer Größenordnung deutlich unterhalb der Wellenlänge. Bildet sich innerhalb der Strömungsgrenzschicht an einer Oberfläche im Schallfeld aus (Schlichting 2006).

Da die intrinsische Dämpfung der Schallwelle bei höheren Frequenzen zunimmt, verstärkt sich die akustische Strömung bei höheren Frequenzen. Daher wird der akustischen Strömung und den veränderten Geschwindigkeitsprofilen an der Grenzfläche im Bereich der Megaschallreinigung eine wichtige Rolle zugeordnet (Busnaina 2002).

In Muthukumaran, Kentish et al. (2007) werden Versuche zur Membranreinigung bei Megashalleinkopplung durchgeführt. Der Haupteffekt wird den akustischen Strömungen zugeordnet. Gegenüber niedrigeren Frequenzen verringert sich die Verbesserung der Filtration bei Frequenzen im Megaschallbereich. Lamminen, Walker et al. (2004) sehen einen förderlichen Einfluss der akustischen Strömung bei der Membranreinigung im verbesserten Abtransport der Partikel. Zum Ablösen der Partikel wird der akustischen Strömung kein wichtiger Beitrag zugeschrieben.

2.5 Besonderheiten bei der Membranreinigung mit Ultraschall

Bei dem Eintrag des Ultraschalls in die Flüssigkeit treten die für die Reinigungswirkung zentralen Effekte der akustischen Strömung, der Mikroströmungen aufgrund von Blasenoszillation und Blasenknall, sowie der Jetströmung - ausgelöst durch asymmetrisch kollabierende Blasen - auf. Insbesondere das Strömungsregime bei der Sonotrodenkavitation, bei der eine Art turbulenter Mehrphasenströmung aus Wirbeln der akustischen Strömung, Mikroströmungen und hoher Blasenaktivität (Metin 2005) auftritt (Pseudoturbulenz), ist für die Verbesserung der Crossflow-Filtration interessant. Allerdings ist eine Übertragung dieser hochintensiven Kavitationszone auf große Membranflächen schwer zu realisieren.

Der wesentliche Unterschied zu den üblichen Reinigungsanwendungen wie der industriellen Teilereinigung, der Reinigung von medizinischem Besteck und optischen Oberflächen besteht darin, dass die zu reinigenden Oberflächen bei der Membranfiltration mehrere Quadratmeter groß, aufgrund der kompakten Modulbauweise schwer zugänglich und relativ empfindlich sind. Ein weiterer Unterschied besteht in der Porosität und Permeabilität der zu reinigenden Oberfläche. Der Vorgang ist möglichst energieeffizient zu realisieren.

Bei der Umsetzung eines geeigneten Schallfeldes muss also eine für die Reinigung ausreichende Ultraschallwirkung möglichst gleichmäßig für die ganze Membranfläche realisiert werden, ohne die Membran zu schädigen. Die Forderung nach einer hohen Flächeneffizienz (Integration von möglichst viel aktiver Membranfläche in einem Modulvolumen zur Reduzierung des Platzbedarfs) bei den üblichen Membranmodulgeometrien und die schalldämpfende Wirkung der verwendeten Materialien erschwert die Umsetzung so eines Schallfeldes.

Die Permeabilität der Membran bietet für die Steuerungsmöglichkeit der Ultraschallwirkung neue Potenziale. Bei Modulen für die druckgetriebene Filtration lässt sich der Systemdruck für eine gute Reinigungswirksamkeit während der Beschallung einstellen. Die Durchlässigkeit der Membran ermöglicht es theoretisch, die Konzentration an Kavitationskeimen auf der zu reinigenden Oberfläche zu beeinflussen. Eine weitere theoretische Möglichkeit besteht darin, die Art des Blasenknalles durch das Ansaugen (Filtration) oder Abstoßen (Rückspülung) von Kavitationskeimen auf die Membranoberfläche über den dimensionslosen Wandabstand γ zu beeinflussen (Pantokratoras 2009, Magyari).

Das zu erwartende Kollapsverhalten innerhalb von Membrankapillaren oder in den Zwischenräumen zwischen einzelnen Kissen von Flachmembranmodulen ist ungeklärt. Die Geometrie der benachbarten Begrenzungsfläche und deren elastischen Eigenschaften entscheiden über die Ausbildung eines asymmetrischen Blasenknalles und die Form, Richtung und Geschwindigkeit einer auftretenden Jetströmung.

2.6 Einsatz von Leistungultraschall bei der Mikro-/Ultrafiltration in der Literatur

Die in diesem Kapitel aufgeführten Arbeiten haben letztlich die Idee für das Forschungsvorhaben geliefert, in dessen Rahmen diese Arbeit entstanden ist. Insbesondere die Arbeitsgruppe von Walker und Weavers an der Ohio State University und die Veröffentlichung in Nature von Chen (2002), haben die Chancen auf eine Umsetzbarkeit der Ultraschallreinigung auf Membranfiltrationsanlagen in Aussicht gestellt.

Ultraschallanwendungen in verbesserten Membranfiltrationsprozessen sind vielfach unter den Stichwörtern »acoustic filtration« und »field assisted filtration« untersucht worden. Den besten Überblick über die gewonnenen Erkenntnisse geben die Veröffentlichungen von Pirkonen (2001), Wakeman and Tarleton (1998) und Kyllönen, Pirkonen et al. (2005b). Alle Autoren können von einem positiven Effekt auf den Permeatfluss berichten. Sabri, Pirkonen et al. (1997) konnten eine Flussteigerung von 300 % bei nur 74 % des Gesamtenergieeinsatzes je m³ Filtrat unter den gleichen Betriebsbedingungen mit zusätzlichem Ultraschalleintrag messen. Bisher wurde die Technik allerdings fast ausschließlich im Labormaßstab realisiert.

2.6.1 Membranreinigung mit Ultraschall

Prinzipiell unterstützt die Ultraschalleinkopplung durch die Verminderung der Konzentrationspolarisation und die teilweise Aufhebung des Filterkuchens die Filtration (Kyllönen 2005b). Zu differenzierteren Aussagen müssen die vielen Einflussparameter, die bei dieser Technologiekombination eine Rolle spielen, im Einzelnen betrachtet werden. Die in der Literatur diskutierten Erkenntnisse zu Frequenz, Temperatur, Systemdruck, Fluidsystem, Membran, Ultraschallleistung und Skalierbarkeit des Ansatzes, Anordnung von Membran und Schallwandler, Schallfeldvermessung und Charakterisierung der Kavitationszone, Membranschädigung und Integritätsmessung, sowie die Mechanismen der Membranreinigung durch Ultraschall werden im Folgenden vorgestellt.

Frequenz: Als wichtigster Effekt, der für die Membranreinigung ausschlaggebend ist, wird die Kavitation genannt. Für gute Reinigungsergebnisse werden niedrige Ultraschallfrequenzen zwischen 20 und 40 kHz (Kyllönen 2005a) und niedrige Systemdrücke empfohlen.

Kobayashi, Kobayashi et al. (2003) berichten, dass die erzielte Reinigungsleistung beim Überströmen unter Beschallung frequenzabhängig war. Sie stieg mit abnehmender Ultraschallfrequenz an (28 > 45 > 100 kHz bei einem Leistungseintrag von 23 W/cm² und 25°C). Die Abhängigkeit der Reinigungsleistung von der Ultraschallfrequenz beim Spülen der Membranen mit Wasser wurde auf die verstärkte Kavitationswirkung bei der niedrigen Frequenz von 28 kHz zurückgeführt.

Lamminen, Walker et al. (2004) untersuchen mit dem Laborreaktor von der Firma L3-Communications Elac Nautik die Frequenzen 70, 205, 354, 620 und 1062 kHz, wobei bei allen Frequenzen eine Reinigungswirkung beobachtet werden konnte. Bei hohen Frequenzen lassen sich mit dem Rasterelektronenmikroskop zahlreichere, dafür aber kleinere, gereinigte Flecken erkennen. Dies wird als Hinweis auf eine größere Zahl an Kavitationsblasen bei hohen Frequenzen interpretiert, deren Reinigungspotenzial aber bei kleineren Frequenzen höher ist.

Kyllönen, Pirkonen et al. (2006) beobachten bei höheren Frequenzen (27, 40, 200 kHz) schlechtere Reinigungserfolge. Begründet wird diese Beobachtung mit der geringeren Blasenaktivität.

In Lamminen, Walker et al. (2006a) wird zur Integration des Schallwandlers direkt im Filtrationsmodul ein einzelnes piezokeramisches Plättchen angeregt. Da hier ohne Endmassen gearbeitet wird, stellt sich eine hohe Resonanzfrequenz von 476 kHz ein.

Lauterborn und Urban (2008) untersuchen ein 10 m²-Kissenmodul bei einer Frequenz von 130 kHz. Reuter, Mettin et al. (2008) begründen in ihrer Analyse, dass es eine Grenzfrequenz gibt, unter der ein Eindringen des Schallfeldes in die Zwischenräume der Kissenmembranplatten nicht möglich ist (Kap. 5.1.2).

Maskooki, Kobayashi et al. (2008) untersuchen den Einfluss der Frequenzen 28, 45 und 100 kHz auf die Reinigungswirkung von PVDF-Membranen (Polyvinylidene-fluorid). Es zeigt sich, dass die kleinste Frequenz den höchsten Beitrag zur Reinigung leistet. Eine Reinigung, bei der alle Frequenzen zum Einsatz kommen, ist noch etwas besser.

Temperatur: Bei Anstieg der Betriebstemperatur im untersuchten Bereich von 20°C bis 40°C ließ sich die Wiederherstellung des Permeatflusses durch Ultraschalleintrag beschleunigen (Chai 1999). Im Gegenteil dazu berichten Li, Sanderson et al. (2002) von einer negativen Auswirkung von höheren Temperaturen auf die Ultraschallreinigung von Polyamid-Mikrofiltrationsmembranen in Kombination mit einer Klarwasserspülung.

Diese sich widersprechenden Aussagen bestätigen die gegenläufigen Auswirkungen der Temperaturerhöhung auf das Kollapsverhalten. Einerseits fördert die Verringerung des Dampfdrucks und die geringere Viskosität die Blasenaktivität, andererseits schwächt die geringere Oberflächenspannung den Kollaps ab und die schlechtere Gaslöslichkeit erschwert das Auftreten von Kavitation (vgl. Kap. 2.3.1; Bild A3-0-9). Auf die Filtration wirkt sich eine Temperaturerhöhung aufgrund der verbesserten Diffusion und Löslichkeit positiv aus. Lauterborn und Urban (2008) geben daher korrigierte Fluxwerte an, bei denen eine Temperaturkorrektur durchgeführt wurde. In dieser Arbeit wird die Temperatur durch eine Regelung auf 20°C konstant gehalten.

Systemdruck: Chen, Weavers et al. (2006b) untersuchen den Einfluss des feedseitigen Drucks auf die Reinigungswirkung. Die Reinigungswirkung nimmt mit höherem Feeddruck ab. Diese Beobachtung lässt sich damit erklären, dass bei höherem Feeddruck ein höherer Kavitations-schwellenwert und damit eine geringere Kavitationsaktivität und weniger Bläschen vorhanden sind.

Kyllönen, P. et al. (2005a) stellen eine Vergleichmäßigung der Reinigungswirkung bei geringerem Systemdruck fest.

Stoffsystem und Veränderung des Stoffsystems durch Ultraschalldispersion: Kobayashi, Chai et al. (1999) zeigen an Dextranlösungen verschiedener Konzentration die deutliche Abhängigkeit der Fluxverbesserung von der Konzentration. Die Fluxverbesserung durch Ultraschalleintrag ist bei kleinen Konzentrationen deutlich stärker ausgeprägt.

Lamminen, Walker et al. (2006b) untersuchen pH-Wert, Ionenstärke und Partikelgröße. Es kann gezeigt werden, dass sich höhere Ionenstärke negativ auf die Reinigungswirkung des Ultraschalls

auswirkt. Neben stärkeren Partikel-Partikel-Wechselwirkungen besteht ein weiterer Grund für diesen Effekt im Anstieg der Oberflächenspannung mit zunehmender Ionenstärke und damit des Kavitationsschwellenwerts. Es kommt zu weniger Kavitationsblasen, die jedoch heftiger implodieren. Analoges gilt für die Viskosität. Ein weiterer hemmender Effekt in Fluiden mit höherer Ionenstärke besteht darin, dass die Koaleszenz von Blasen erschwert ist. Das Zusammenschließen von Kavitationsblasen in Bäumen des Schalldruckfeldes ist für die Ausprägung der Mikroströmungsbahnen wichtig. Das Auftreten weniger dieser relativ großen Blasen, die über die Membranoberfläche wandern, verringert die Wirkungsweise der Ultraschallreinigung. Lamminen, Walker et al. (2004) weisen diesen Blasen den wichtigsten Reinigungsmechanismus zu.

Chen (2002) arbeitet in der Studie mit Quarzpartikeln in wässriger Lösung mit KCl (1 mM) für den Ionenhintergrund. Es wurden Partikel mit einem mittleren Durchmesser von 2 μm und 0,2 μm untersucht. Beide Größenordnungen ließen sich gut von der Membran mit 0,02 μm mittleren Porendurchmesser durch die Beschallung ablösen.

In Chen, Weavers et al. (2006a) wird auf den Einfluss der Partikel auf die Reinigungswirkung des Ultraschalls näher eingegangen. Betrachtet werden die Parameter Partikelkonzentration, Hydrophobizität der Partikel und Partikelgröße. Der Ionenhintergrund von 1 mM KCl und der pH-Wert wurden nicht variiert. Die physikalisch gelösten Gase als Kavitationskeime wurden mit 3,8 mg/l O_2 angegeben. Durch eine orts aufgelöste kalorimetrische Messung kann gezeigt werden, dass die Dämpfung des Schallfeldes im Abstand außerhalb der Kavitationszone nur wenig durch die Partikelkonzentration, der Hydrophobizität und der Partikelgröße abhängt. Um den starken Abfall der Reinigungswirkung bei höheren Konzentrationen zu erklären, wurde die Dämpfung mit den Ansätzen von Babick (2005) analysiert. Die Dämpfung durch die Partikel, die mit den Modellen errechnet wurde, liegt bei 5 g/l noch unter 0,5%. Diese geringe Auswirkung wurde auch mit der kalorimetrischen Methode nachgewiesen. Auch die Viskositätszunahme scheidet als Grund für die Abnahme der relativen Fluxverbesserung aus. Mit der Chemolumineszenz von Luminol kann gezeigt werden, dass die Nucleation von Kavitation sowohl für höhere Konzentrationen als auch für hydrophobe Partikel verstärkt wird. Es wird direkt unterhalb der Sonotroden spitze eine intensivere Kavitationszone erzeugt und dadurch das dahinterliegende Volumen von der Ultraschallwirkung abgeschirmt (cushioning). Die Effekte des akustischen Strömens und durch die Kavitation erzeugte Turbulenzen schwächen sich daher ab.

Lauterborn und Urban (2008) verwenden in ihren Versuchen natürliches Oberflächenwasser mit unterschiedlichen Vorbehandlungen und Trübungswerten (0,25 – 0,3 FNU und 100 und 300 FNU). Der Gasgehalt in den Versuchen von Reuter, Mettin et al. (2008) wird mit 8,9 mg/l Sauerstoffgehalt angegeben.

Ein anderer Ansatz zur Verbesserung der Filtration durch Ultraschall besteht in der Veränderung des Partikelregimes (Tran 2007) und der emulgierenden Wirkung des Ultraschalls (Shu 2007).

Mit der feineren Dispergierung des Stoffsystems haben Tarleton und Wakeman (Tarleton 1992a, Tarleton 1992b, Tarleton 1997, Wakeman 1998, Wakeman 2002) ihre Beobachtungen erklärt, bei denen der Ultraschall zu einer Verschlechterung des Fluxes bei der Crossflow-Filtration geführt hat. Hingegen konnten synergetische Effekte gezeigt werden, wenn ein elektrisches Feld und Ultraschall gleichzeitig zur Verbesserung der Crossflow-Filtration eingesetzt wurden. Offensichtlich verändern die Beschallung und die visko-inertialen Effekte die Partikel in der Art, dass zum eine eine feinere Dispergierung vorliegt und zum anderen ein Teil der Hydrathülle aufgrund der Molekülbewegung abgestreift wird und daraufhin eine bessere Beweglichkeit im elektrischen Feld möglich ist. Der Effekt der Ultraschall dispergierung kann unter bestimmten Umständen und Stoffsystemen (NOM) auch einen positiven Effekt auf die Filtrierbarkeit haben (Tran 2007).

Membran: Matsumoto, Miwa et al. (1996) gehen in ihrer Arbeit auf den Einfluss der Porengröße bei einer Verfahrenskombination von Ultraschall bei der Querstromfiltration ein. Sie zeigen, dass sich die stärkste Fluxverbesserung bei der Filtration von Hefezellen mit einer keramischen Rohrmembran (Inside-out-Betrieb) in einem Ultraschallbad (28 kHz) bei einem mittleren Porendurchmesser von 0,2 µm ergibt. Die These dazu besteht darin, dass für kleinere Porendurchmesser die Ultraschallwelle nicht bis zur Deckschicht auf der Innenseite der Rohrmembran vordringt. Für größere Poren wird angenommen, dass der vorherrschende Durchflusswiderstand von der Verstopfung der Poren herrührt und hierfür der Ultraschall keine gute Reinigungswirkung aufweist. Bei der intensiven Ultraschallreinigung von Polyamid-Mikrofiltrationsmembranen von Papierfabrikabwasser ergeben sich gute Fluxverbesserung und es wird von keinen Schäden an der Membran berichtet (Li 2002).

Die Eignung von Ultraschall zur Reinigung von Flachmembranen wurde in Arbeiten von Chai, Kobayashi et al. (1998, 1999) und Kobayashi et al. (1999, 2000, 2003) untersucht. In den Studien wurden Ultrafiltrationsmembranen aus Polysulfon und Polyacrylnitril und Mikrofiltrationsmembranen aus Polyvinylidenfluorid und Cellulose verwendet. Bei der Filtration von Pepton lassen sich die Membranen aus Polyacrylnitril (PAN) bei Beschallung im Klarwasser am schnellsten vollständig regenerieren.

Kyllönen, Pirkonen et al (2005b) berichten, dass schallreflektierende Membranen für die Verbesserung der Filtration durch Ultraschalleintrag besser geeignet seien. Die Wahl von Keramikmembranen für die Untersuchungen mit Ultraschall wird mit der guten Beständigkeit gegenüber hohen Temperaturen und Drücken im Vergleich zu Polymermembranen begründet (Chen 2006c, Lamminen 2006a, Lamminen 2004, Chen 2006b, Chen 2002, Chen 2006a). Die Erfahrungen aus vorliegender Arbeit sind, dass die keramischen Werkstoffe durchaus empfindlicher gegenüber der erosiven Aggressivität von Kavitation sind als viele Polymermembranen. Latt and Kobayashi (2006) untersuchen Hohlfasermembranen aus Polyethylen im Outside-In-Betrieb. In der Arbeit wird ein Bündel von 240 Fasern von jeweils 0,8 mm Durchmesser und 8 cm Länge in einem Ultraschallbad behandelt. Die beste Reinigungswirkung wird unmittelbar in der Kavitationszone festgestellt, die durch Schalldruckmessungen und Sonolumineszenz lokalisiert wird. Durch halbzyklrische Reflektoren wird die Kavitationszone noch fokussiert.

Anordnung von Membran zu Schallwandler: Die Mehrzahl der veröffentlichten Untersuchungen arbeitet mit Flachmembranen in einer direkten Vis-à-vis-Anordnung, bei der die Feedseite der Membran dem Schallgeber gegenübersteht. Kyllönen, P. et al. (2005a) gehen auf die Richtung der Beschallung ein. Bei der Mikrofiltration konnten bei einer Beschallung von der Permeatseite gute Ergebnisse erzielt werden. Wenn die Porengrößenverteilung der Membran so gewählt ist, dass keine Verstopfung im Innern der Poren sondern nur eine Kuchenbildung stattfindet, eignet sich die Beschallung von der Feedseite aus besser.

Für die in der Praxis häufig eingesetzten Rohr-, Kapillar-, oder Hohlfasermembranen kommt bei einer Inside-out-Betriebsweise nur ein Schalleintrag von der Permeatseite in Frage. Bei höheren Feedkonzentrationen ist eine Beschallung über die Feedseite wegen der Dämpfung und Kavitation an den Partikeln in der Dispersion ungünstig. Matsumoto, Miwa et al. (1996) realisieren den Schalleintrag sowohl bei einer keramischen Rohrmembran als auch bei einer Polymerflachmembran von der Permeatseite.

Chen, Weavers et al. (2006b) untersuchen bei einer Vis-à-vis-Anordnung unterschiedliche Abstände der Sonotrodenspitze von der Membran. Es wird empfohlen, um Schädigungen zu vermeiden, den Abstand so zu wählen, dass die Membran außerhalb der Kavitationszone liegt.

Kobayashi, Chai et al. (1999) beschallen von der Feedseite, parallel zur Membranfläche und von der Permeatseite. Die Beschallungsrichtung von der Feedseite ist dabei am wirkungsvollsten.

Lauterborn and Urban (2008) und Reuter, Mettin et al. (2008) haben die Anordnung von Tauchwandler senkrecht zu Membrankissenstapeln näher untersucht (siehe Kapitel 5.1.2)

Ultraschalleistung und Skalierbarkeit der Ansätze: In vielen Veröffentlichungen wurde mit Anordnungen gearbeitet, die eine Skalierung des Systems auf den Produktionsmaßstab nicht zulassen. So wurden meist Vis-à-vis-Anordnungen genutzt, bei denen Flachmembran und abstrahlende Fläche des Schallwandlers sich direkt gegenüberstehen (z.B. Lamminen 2004). In anderen Arbeiten sind die Testzellen einfach in Ultraschallbäder eingetaucht, auch bei dieser Methode ist ein Up-scale weder energieeffizient noch kostengünstig zu bewerkstelligen (Kobayashi 2003, Muthukumaran 2005a, Muthukumaran 2005b, Muthukumaran 2007). Bei den Filtergehäusen, die in Ultraschallbäder eingetaucht sind, kommen nur etwa 1/10 des Leistungseintrags an der Membranoberfläche an (Kyllönen 2005b). Die häufig verfolgten Vis-à-vis Ansätze bei Laborexperimenten arbeiten mit immensen Ultraschalleistungen pro zu reinigender Membranfläche. Auch wenn der Ultraschall nur periodisch für kurze Reinigungsintervalle eingesetzt wird, macht die enorme installierte Ultraschalleistung den Ansatz für eine Umsetzung im Produktionsbetrieb unwirtschaftlich. Sofern man hierzu Angaben in den Veröffentlichungen findet, werden 100 kW/m² (Muthukumaran 2004) oder zum Beispiel 48, 72 und 144 kW/m² (Cai 2009) eingesetzt. Aus den veröffentlichten Laborexperimenten (Chen 2002, Chen 2006c, Chen 2006b, Chen 2006a, Kobayashi 1999, Kobayashi 2003, Lamminen 2004, Kyllönen 2006, Latt 2006) lassen sich Werte von 6 bis 110 kW bezogen auf die zu reinigende Membranfläche entnehmen. Der Schalleintrag wurde dabei meist kalorimetrisch bestimmt. Eine Skalierung dieses Ansatzes auf Membranflächen im Bereich einiger Hundert Quadratmeter scheint nicht realisierbar.

Lamminen, Walker et al. (2006a) gehen auf die Skalierbarkeit des Ansatzes für handelsübliche Membranmodule ein. Dazu wird ein spezieller dünner Schallwandler in Form eines 4 mm dicken Bleizirkonattitanat-Plättchens (PZT) in ein Flachmembranmodul integriert. Bei der Beschallungsweise, bei der eine sehr gute Reinigung aber keine Schäden an der Membran auftreten, werden etwa 6 kW pro Quadratmeter Membranfläche eingesetzt. Die Konstruktion eines sehr kleinen US-Wandlers wurde auch von Zhang and Yeo (2005) durchgeführt. Dieses Gerät soll seinen Einsatz in der Sonophorese finden, wo gezielt die Aufnahme von Medikamenten in Gewebe verbessert werden soll.

Der bezogene Leistungsbedarf für die Reinigung beträgt in der Arbeit von Latt and Kobayashi (2006) 6 kW/m².

In den wissenschaftlichen Arbeiten des Clausthaler Umwelttechnik-Instituts (Cutec) wurde ein Pilotversuch mit einem 4"×40" Wickelmodul durchgeführt, bei dem das Membranmodul mit mehreren Ultraschallwandlern bestückt wurde. Dabei wurden Verbesserungen sowohl beim Durchfluss (über 20%) als auch bei der Trennleistung der Ultrafiltrationsmembranen gemessen (Sievers 2001). Bei Untersuchungen an einer Laborfiltrationsanlage war eine Verbesserung der Membranfiltration von pectinhaltigen Lösungen durch Eintrag von Ultraschall einer Frequenz von 25 kHz und einer Leistung von 5 W bei niedrigen Überströmungsgeschwindigkeiten zu beobachten (Sievers 2001). In einer Pilotanlage mit Wickelmodulen bewirkte der Ultraschalleintrag bei der Membranfiltration von Wein eine Erhöhung des Permeatstroms. Beim Abschalten der Ultraschallanlage war dieser Permeatstrom nicht aufrecht zu erhalten. Eine Abnahme um ca. 25% war zu verzeichnen. Das Wiedereinschalten der Ultraschallanlage führte nach 3 h zu einer Zunahme des Permeatstroms um etwa 20%. Bei der ultraschallunterstützten Membranfiltration waren die Retention von Hefezellen sowie die Abnahme der Trübung größer als bei Filtration ohne Ultraschalleintrag. Eine veränderte Ausbildung der Deckschicht wurde als möglicher Grund für den gesteigerten Flux vermutet (Sievers 2001).

Lauterborn und Urban (2008) haben eine Ultraschallreinigungsmethode auf 10 m² getauchte Flachmembranmodule angewendet. Dabei wurden gegenüberliegende Tauchwandler senkrecht zu dem Membrankissenstapel angeordnet. Für die 10 m² Membranfläche wurden 4000 W Ultra-

schallwandler installiert. Mit 0,4 kW/m² installierter Ultraschalleistung pro Membranfläche zeichnet sich hier ein auch für den großtechnischen Einsatz realistischer Aufwand ab. Auf die Analyse der Reinigungswirkung und die Betrachtung des Schallfeldes geht Kapitel 5.1.2 näher ein (Reuter 2009, Reuter 2008). Reuter, Mettin et al. (2008) stellten fest, dass aufgrund von Abschattungseffekten (Cushioning) bei größeren Intensitäten, das Schallfeld in den Membranzwischenräumen deutlich geringer ist, als bei kleinen Ultraschallintensitäten. In einem Testaufbau mit 0,6 m² Membranfläche konnte dort mit nur 75 mW/cm² am sehr effizient und erfolgreich gereinigt werden.

Tran, Gray et al (2007) verfolgten einen abweichenden Ansatz zur Verbesserung der Filtration durch Leistungsschall. Hier wird in einem der Filtration vorgelagerten Ultraschallreaktor das Feedwasser vorbehandelt (Ultraschalldispersion). Bei Versuchen mit NOM zusammen mit Aluminiumflockungsmittel oder mit Sand zeigt sich, dass die Beschallung des Fluids ohne Sand oder Flockungsmittel für eine bestimmte Zeit eine Verbesserung des Durchflusses bewirkt. Dieser Reaktor ist einfach skalierbar.

Luonsi, Laitinen et al. (2002) berichten von guten Reinigungserfolgen einer ultraschallunterstützten Reinigung von keramischen Membranen im Produktionsmaßstab in dem System Certus der Firma Filtermat Oy.

Zur Reduzierung des Energieeinsatzes untersuchen Chen, Weavers et al. (2006b) den gepulsten Ultraschalleintrag. Neben dem geringeren Energieeintrag hat der gepulste Schalleintrag den potentiellen Vorteil, dass zu große Blasen aufsteigen und zu kleine inaktive Blasen sich zurücklösen können. Die Untersuchungen von Chen, Weavers et al. (2006b) bestätigen diese Effekte nicht. Je kürzer das Aussetzen der Beschallung ist, desto besser ist die relative Fluxverbesserung (1 s Beschallung, 0,1 s Pause).

Membranschädigung und Integritätsmessung: Bei der Verwendung einer Vis-à-vis-Anordnung und einer keramischen Membran können Kavitationsschäden durch entsprechend kleine Ultraschalleistungen und einem entsprechenden Abstand von der Sonotroden spitze (Chen 2006c) vermieden werden. Es wird berichtet, dass die Membran außerhalb der Kavitationszone liegt.

Chen (2006b) untersucht die Schädigungswirkung auf die Membran mit rasterelektronenmikroskopischen Aufnahmen und der Elementanalyse im Konzentrat. Liegt die Membran innerhalb der Kavitationszone, treten sichtbare Membranschäden auf. Die Elementanalyse zeigt, dass es sich um einen rein mechanischen Materialabtrag in partikulärer Form handelt und nicht um eine chemische Reaktion, bei der Bestandteile der Membran in Lösung gehen.

Kyllönen (2006) hat Schäden bei allen verwendeten Membrantypen festgestellt.

Mit dem speziell entwickelten flachen Schallwandlerplättchen werden bei höheren Leistungen sowohl Schäden an der PVDF als auch an der keramischen Aluminiumoxidmembran festgestellt (Lamminen 2006a). Es kann eine Leistung gefunden werden, bei der keine Membranschäden auftreten und die Reinigungswirkung zufriedenstellend ist. Es wird auch gezeigt, dass gepulster Ultraschallbetrieb (1 s an - 10 s aus) die Schädigung verhindern kann.

In Lauterborn und Urban (2008) wurden mit Online-Partikelzählern und Online-Trübungsmessern die Integrität eines ganzen Moduls überwacht.

Masselin (2001) untersucht Membranen aus Polyethersulfon (PES), Polyvinylidenfluorid (PVDF) und Polyacrylnitril (PAN). Sie werden bei 47 kHz in einem Laborultraschallbad beschallt. Mittels Reinwasserfluxmessungen und mikroskopischen Aufnahmen wird gezeigt, dass vor allem Polyethersulfon starke Schäden nach der Beschallung aufweist, während Polyacrylnitrilmembranen weniger empfindlich sind.

Untersuchte Einzelmechanismen der Fluxverbesserung durch Ultraschall: Nach Chen, Weavers et al. (2006c) beruht die Reinigungswirkung des Ultraschalls für deren Versuchsaufbau auf dem akustischen Strömen und durch Kavitation erzeugten Turbulenzen, aber nicht auf dem direkten Blaskollaps an der Membran, da die Membran außerhalb der aktiven Kavitationszone liegt.

Lamminen (2004) ordnet die Ablösung bzw. Lockerung von Partikeln den kavitationsinduzierten Mechanismen Mikroströmungen von kollabierenden Blasen und Jetströmungen zu. Der Abtransport abgelöster Partikel wird durch das akustische Strömen unterstützt. Die beobachteten, typischen gewundenen Bahnen an den Rändern von kreisförmigen abgereinigten Flecken (Lamminen 2004) werden auf Mikroströmungen von relativ großen oszillierenden Bläschen zurückgeführt. Aufgrund der Beobachtung dieser charakteristischen Bahnen wird auch in vorliegender Arbeit die Aktivität der relativ großen Bläschen als wichtiger Reinigungsmechanismus identifiziert (Kap. 5.1.2).

Bei Lauterborn (2008) kann eine gute Reinigungswirkung des Ultraschalls bei 130 kHz in der Verfahrenskombination mit der Rückspülung mit Ultraschall 130 kHz und anschließender zweiphasiger Spülung mit Luftbläschen festgestellt werden. Dabei dient das Durchperlen von Luft zum Abtransport zu großer inaktiver Blasen, die sich auf der Membran angesammelt haben. Die Methode ist nicht wirksam bei Membranen, die bereits vorher über eine lange Zeit verschmutzt wurden. Hier ist nur eine Stabilisierung des Zustands möglich. Neuverunreinigte Membranen lassen sich mit der Verfahrenskombination regenerieren.

Reuter (2008) identifiziert als vorherrschende Reinigungseffekte kollabierende Kavitationsblasen und durch Mikroströmungen über die Grenzfläche bewegte Blasen. Die Bedeutung der Kavitationswirkung konnte analytisch, optisch und durch Schalldruckmessungen nachgewiesen werden. Bei 35 kHz konnte in einem Membrankissenstapel keine Reinigungswirkung beobachtet werden. Bei 130 kHz wurde eine gute Reinigungswirkung nachgewiesen (Reuter 2008). Reuter hat ein vereinfachtes Modell entwickelt, bei dem eine Polymermembran als schallweiche Begrenzung des Wellenleiters betrachtet wurde, an der der Schalldruck verschwindet (vgl. Kap. 5.1.2).

Reuter (2009) klärt einige Mechanismen der Ultraschallreinigung an Membranen mit Hydrophonomessungen und Hochgeschwindigkeitsvideometrie. Zunächst kann festgestellt werden, dass die Reinigung mit der Blasenbewegung korreliert. In dem Versuchsaufbau werden die Blasen vorwiegend in der Nähe des Schallwandlers und im Raum zwischen dem Membranmodul und dem Schallwandler erzeugt. Von dort bewegen sich die Blasen in die Zwischenräume zwischen den Membrankissen. Es bildet sich dort eine Blasenschicht mittig aus. Die Blasendichte ist dabei abhängig von der Schalleistung. Wenn Blasen in der Schicht den Minnaert-Resonanzradius (Glg. 2-7) erreichen, werden sie durch die primäre Bjerkneskraft (Kap. 2.3.1) in Richtung der Membran beschleunigt. Beim Auftreffen auf die Membran wurden Geschwindigkeiten von $v = 0,4 \text{ m/s}$ ermittelt. Solche mit Resonanzradius oszillierenden Blasen bewirken beim Auftreffen auf die Oberfläche eine kreisförmige Ablösung der Deckschicht. Neben solchen kreisförmig gereinigten Stellen können auch abgereinigte Bahnen auf der Membran beobachtet werden. Videometrisch konnte beobachtet werden, wie Blasen, während sie eine Oberflächen- und Volumensoszillation durchführen, über die Membranoberfläche kriechen. Der Verlauf dieser Kriechbahnen ist zunächst an den Rändern der bereits bestehenden runden Löcher in der Deckschicht. Teilweise schieben sich die Blasen auch unter die Deckschicht. Die so auf der Oberfläche wandernden Blasen erfahren teilweise abrupte Beschleunigungen und erreichen Endgeschwindigkeiten von mehreren m/s. Die Blasen vereinen sich nicht an den Schallknoten, zu denen sie transportiert werden, zu größeren Blasen. Vermutlich können dafür die abstoßenden Kräfte der sekundären Bjerkneskraft bei geringen Abständen verantwortlich gemacht werden (vgl. Miller-Schicht, Kap. 2.3.2, Otto 2009). Mehr als 90% der gereinigten Fläche geht auf solche - auf gewundenen Bahnen kriechenden - Blasen zurück; weniger als 10% wird von Blasen gereinigt, die direkt auf die Deckschicht auftreffen und eine kreisförmig, gereinigte Stelle hinterlassen. Ob eine Blase bewegt wird, hängt von den benachbarten Blasen (sekundäre Bjerkneskraft Kap. 2.3.1)

und ihrem Blasenradius im Verhältnis zur Ultraschallfrequenz ab. Dadurch scheint festgelegt, wie viel Energie die Blase absorbieren kann und welchen maximalen und minimalen Abstand sie zur Oberfläche einnimmt. Da die Membranoberflächen möglichst hydrophil sind, hat die Blase in Ruhe einen Kontaktwinkel von 180° . Hierdurch werden der Aufprall und der Abstand der Blasen von der Oberfläche stark beeinflusst. Blasen mit einem Radius deutlich über dem Minnaert-Resonanzradius spielen für die Reinigung eine untergeordnete Rolle. Aus der Vermessung des Schalldrucks ergibt sich, dass im Bereich der Membranoberfläche die Schalldruckamplitude lediglich 50 kPa beträgt. Die schallweiche Oberfläche wird somit von oszillierenden Blasen ohne heftiges Kollapsverhalten gereinigt.

Bei längerer Beschallung bewirkt die hohe Blasenbelegung der Membran und die schallweiche Eigenschaft der Blasen selbst eine praktische Verengung des Kanals zwischen den Membranscheiben und damit eine Unterschreitung der Grenzfrequenz, die zu einer geringeren Kavitationsaktivität und damit einer geringeren Reinigungswirkung führt. Die verstärkte Schallabsorption von größeren Blasen weisen Reuter, Mettin et al. (2008) mit der spektralen Analyse des Schallsignals nach. Die Subharmonischen haben in diesem Fall ein stärkeres Signal, die anregende Frequenz des Schallwandlers schwächt sich ab. Diese Degradation der Reinigungswirkung lässt sich durch das Abspülen dieser Blasenschicht auf der Membranoberflächen verhindern (Reuter 2008, Lauterborn 2008).

Eine weitere Beobachtung ist, dass sich die Belegung der Membranoberfläche mit Bläschen sehr schnell vollzieht ($\sim 20\%/s$). Alle Blasen mit einem Blasenradius größer $23 \mu m$ werden der primären Bjerkneskraft folgend, zur Membran transportiert (Minnaertgrenzfrequenz Glg. 2-7).

Bei der Untersuchung des Einflusses der Beschallungsintensität an einem solchen Membrankissenstapels konnten weitere wichtige Erkenntnisse für die Beschallung größerer Membranflächen gewonnen werden. Größere Intensitäten führen im Bereich des Eintritts in das Kissenmodul zu höherer Rückstreuung. Es bildet sich ein starkes Kavitationsfeld vor dem Modul aus, das zu einer Abschattung dieser Zwischenräume zwischen den Kissenmembranplatten führt und damit die Reinigungswirkung verhindert.

Bei der Dead-End-Ultrafiltration von Dextranen zeigen Simon, Gondrexon et al. (2000a) und Simon, Penpenic et al. (2000b) Analogien zwischen der bekannten Rührzelle und der ultraschallunterstützten Filtration auf. Bei diesem Versuchsaufbau kann die Durchflussverbesserung durch die Beschallung mit den hydrodynamischen Vorgängen erklärt werden. Die Reduktion der Konzentrationspolarisation und die Deckschichtvermeidung werden durch die dispergierende Wirkung des Ultraschalls erreicht, wodurch sich der Prozess in Analogie zum Rühren erklären lässt (vgl. Kap. 6.1). Das akustische Strömen (Eckart-Typ), die Mikroströmungen durch die Kavitationsblasen, Jetströmungen und die Vibration der Membran werden in (Simon 2000a) als hydrodynamische Antriebe für eine bessere Durchmischung (Mikromischen) angeführt. Simon, Penpenic et al. (2000b) führen eine Pseudo-Rührerdrehzahl bei der ultraschallunterstützten Filtration ein. Es werden Rührerdrehzahlen mit Ultraschalleistungen verglichen. Leider lassen sich daraus keine direkten Vergleiche des Leistungseintrags ableiten. Bei einer Sättigung des Fluids mit Kohlendioxid wird die Verbesserung bei Ultraschalleintrag geringer. Aus dieser Beobachtung wird der Schluss gezogen, dass neben den akustischen Strömungseffekten auch die Kavitation eine wichtige Rolle bei der Membranreinigung hat.

Muthukumar et al. (2004, 2005a, 2005b, 2007) machen erhöhte Turbulenzen an der Grenzfläche aufgrund von akustischer Strömung und Mikroströmungen für die verbesserte Reinigung der Membran mit Ultraschall verantwortlich. Ein Aluminiumfolientest zeigt, dass die Kavitationsaktivität im Inneren der Testzellen zwar schwach, aber deutlich nachweisbar ist. Bei höheren Frequenzen, bei denen die akustischen Strömungseffekte aufgrund der höheren Dämpfung deutlicher ins Gewicht fallen, ist die Reinigungswirkung schlechter als bei niedrigen Frequenzen. In Kapitel 5 werden die einzelnen Mechanismen des Ultraschalls eingehend betrachtet.

Neben den zahlreichen beschriebenen Einflussparametern des Ultraschalls auf die Reinigung der Membran finden sich in der Literatur weitere Ansätze, bei denen die Wirksamkeit des Ultraschalls in Kombination mit den Betriebsweisen Rückspülen und Crossflow-Filtration untersucht wurde.

2.6.2 Rückspülung in Kombination mit Ultraschall

In den von Kobayashi et al. (2000, 2003) sowie in der von Chai, Kobayashi et al. (1999) publizierten Studien wurde das Fouling der Membranen durch Cross-Flow Filtration von Lösungen aus Pepton oder Milchproteinen herbeigeführt. Nach einer Filtrationsdauer von 60 bis 70 min nahm der Permeatfluss stark ab. Eine gute Wiederherstellung des Permeatflusses war durch Behandlung mit Ultraschall bis zu 45 min unter Rückspülung mit Wasser zu erreichen, während die Rückspülung mit Wasser alleine einen geringen Reinigungseffekt aufwies (Chai 1999, Kobayashi 2003).

Von einer Form des ultraschallunterstützten Rückspülens berichtet Matsumoto (1996). Bei einem Laboraufbau mit einer Membran aus Zellosetriacetat ($0,8 \mu\text{m}$; FM80; Fuji Photo Film; 104 cm^2) ergibt sich beim Anhalten der Feedpumpe eine automatische Rückspülung. Eine Betriebsweise 5 min Filtration und 15 s Rückspülung mit gleichzeitigem Ultraschall verbessert die Reinigungswirkung der Rückspülung für eine Suspension aus Bäckerhefe und Rinderserum Albumin (BSA) in physiologischer Kochsalzlösung. Auf Schädigungen der Membran wird nicht eingegangen. Für die 104 cm^2 Membranfläche wird mit 120 W Ultraschall bei 28 kHz gearbeitet, was $11,5 \text{ kW}$ bezogen auf einen Quadratmeter Membranfläche entspricht.

2.6.3 Ultraschallunterstützte Crossflow-Filtration

Chen et al. (2002) weisen die Verminderung einer Deckschichtbildung aus Silikapartikeln auf Keramikmembranen (Porendurchmesser von $0,02 \mu\text{m}$) während der Crossflow-Filtration unter kontinuierlicher Behandlung mit Ultraschall ($f_{\text{US}} = 20 \text{ kHz}$; $P_{\text{US}} = 19 \text{ W}$) nach. Anhand rasterelektronenmikroskopischer Aufnahmen von den Membranoberflächen wurde gezeigt, dass die Deckschicht aus Silikapartikeln bei Ultraschallbehandlung nach 150 min Filtration dünner war als im System ohne Ultraschalleintrag. Bei der Crossflow-Filtration von Suspensionen aus Silikapartikeln (Durchmesser $2 \mu\text{m}$; Konzentrationen $0,1 - 0,5 \text{ g/l}$) unter Beschallung war ein erhöhter Permeatfluss im Vergleich zur Membranfiltration ohne Ultraschalleintrag zu verzeichnen. Bei Unterbrechung der Beschallung während der Filtration sank der Flux. Der gesteigerte Permeatfluss lässt sich nicht allein durch die geringfügige Temperaturerhöhung von $1,5^\circ\text{C}$ bei Eintrag von Ultraschall in die Testzelle begründen, sondern ist vermutlich auf die Verringerung der Ablagerung von Partikeln auf der Membran während der Beschallung zurückzuführen (Chen 2002).

Zur Reinigung von Mikrofiltrationsmembranen aus Polyamid bei Crossflow-Filtration von Abwasser aus einer Papierfabrik wurde der Einsatz von Ultraschall als erfolgreich bewertet (Li 2002). Die Experimente erfolgten in einer Testzelle mit dem Kläranlagenablauf. Die Behandlung mit Ultraschall einer Frequenz von 20 kHz und einer Intensität von $82,9 \text{ W/cm}^2$ wurde während der Filtration und nach einer Betriebsdauer von 80 min an einer ausgebildeten Deckschicht durchge-

führt. Die Beschallung während der Filtration bewirkte zu Beginn einen gesteigerten Permeatfluss im Vergleich zur Betriebsweise ohne Ultraschalleintrag, der sich aber bei längerer Filtrationsdauer nicht aufrechterhalten ließ. Dieser Effekt lässt sich auf die dispergierende Wirkung des Ultraschalls zurückführen, der zunächst einen Teil der Deckschicht resuspendiert, anschließend aber ungünstigere Filtrationsbedingungen durch ein verändertes Partikelregime bewirkt. Bei Ultraschalleintrag unter gleichzeitiger Vorwärtsspülung mit Wasser zur Entfernung bereits gebildeter Deckschichten war die höchste Zunahme des Permeatstroms im Vergleich zum separaten Einsatz der beiden Reinigungsverfahren zu erzielen. Die Analyse mit dem Rasterelektronenmikroskop zeigte eine vollständige Entfernung der Deckschicht mit der kombinierten Methode unter Wiederherstellung der ursprünglichen Morphologie der Membranoberfläche. Die Effektivität der Reinigung mit Ultraschall stieg mit abnehmender Wassertemperatur (von 40°C auf 23°C) und zunehmender Strömungsgeschwindigkeit der Vorwärtsspülung (Li 2002). Beim Vergleich mehrerer mechanischer Membranreinigungsverfahren ergibt die Kombination aus Leistungsultraschall (Eintauchen in einen Reinigungstank) abwechselnd mit Überströmung die besten Ergebnisse bei der Mikrofiltration von Papiermühlenabwasser (Li 2003).

Die Kombination aus Reinwasserspülung und Beschallung zeigt auch bei Chai, Kobayashi et al. (1999) die besten Reinigungserfolge.

Von Muthukumar (2005a) und Matsumoto (1996) wird gezeigt, dass Ultraschall ähnlich wie höhere Querstromgeschwindigkeit vor allem zu einer Verringerung des reversiblen Kuchenwiderstands führt. Bei geringen Überströmgeschwindigkeiten 0,46 m/s stellte sich eine deutlich höhere Fluxverbesserung aufgrund des Schalleintrags ein als bei 2 m/s. In der Arbeit von Li (2002) wird die Überströmgeschwindigkeit im Bereich von 0,21 bis 0,56 m/s variiert. In diesem Bereich hat ein zusätzlicher Ultraschalleintrag den Flux verbessert.

Auch bei Kobayashi (1999) und Li (2002) wird gezeigt, dass die Fluxverbesserung durch den Ultraschalleintrag bei der Querstromfiltration mit zunehmender Querstromgeschwindigkeit zunimmt.

Kyllönen (2006) stellt fest, dass durch die Querstromgeschwindigkeit Schäden an der Membran vermieden werden können.

Mehrphasiges Überströmen - Verfahrenskombinationen

Wie in Kapitel 2.1.2 beschrieben, wird das mehrphasige Überströmen bereits erfolgreich vor allem bei getauchten Membranmodulen im Abwasserbereich eingesetzt. Das mehrphasige Überströmen mit Eindüsung von Luft stellt einen Spezialfall der Crossflow-Filtration dar, bei dem lokal die Strömungsgeschwindigkeit der Flüssigkeit erhöht wird, weil Blasen die Flüssigkeit verdrängen und den Strömungsquerschnitt verkleinern. Kavitierende Schallfelder können als eine spezielle Form des mehrphasigen Überströmens angesehen werden. In Kap. 2.3.5 wurde bereits darauf eingegangen, wie die erosive Aggressivität der Kavitation kontrolliert werden kann. Eine Methode besteht in der Realisierung einer hohen Konzentration an gelösten Gasen, da ein hoher Gasanteil den Blasenkollaps dämpft. Eine Eindüsung von Luft in Kombination mit Ultraschall ist als Verfahrenskombination vorstellbar. Bei relativ hoher Luftzufuhr und einem vorhandenen Blasenregime kann der Ultraschall dazu angewendet werden, eine feindisperse Verteilung der Bläschen zu erreichen. Bei deutlich niedrigerer Luftkonzentration tritt ein Ausgasen der Flüssigkeit erst durch den Ultraschalleinsatz auf und kann gezielt an der Membranoberfläche ausgelöst werden. Zur Wirksamkeit dieser Methode bezüglich der Membranreinigung sind keine Veröffentlichungen bekannt. Kapitel 4.4.3 und 5.2.2 gehen näher auf die Ausgasung bei Ultraschalleinkopplung ein.

2.7 Fazit zum Stand der Wissenschaft

Dem Stand der Wissenschaft aus der Literatur lassen sich positive Effekte des Leistungsschalleinsatzes entnehmen, die zur Verbesserung der Mikro- und Ultrafiltration führen. Die überwiegende Mehrzahl der Veröffentlichungen hat sich dem Thema in Laborexperimenten angenähert. Es fehlt nach wie vor ein besseres Verständnis der Mechanismen, die zu einer Verbesserung des Filtrationsprozesses führen. Pirkonen et al. (2001) sehen die Hauptgründe dafür, dass es für die Technologie noch keinen Durchbruch gegeben hat, in der fehlenden Technologieentwicklung von geeigneten Schallgebern und in der Tatsache, dass es bisher nicht gelungen ist, die zerstörende Erosionswirkung an der Membran zu kontrollieren, die durch Kavitation bei hohen Ultraschallintensitäten entstehen.

Die Erkenntnisse aus dem Bereich der Kavitationsforschung wurden bisher nur wenig in die experimentellen Untersuchungen und theoretischen Überlegungen einbezogen. Ebenso fehlt häufig eine gute Methode oder die Angabe von geeigneten Parametern wie dem spezifischen Energiebedarf (vgl. Glg. 4-5 bzw. Glg. 4-6), um einen Vergleich des Leistungsschalleinsatzes mit anderen Ansätzen zur Verbesserung des Filtrationsprozesses zu ermöglichen. Die Beschreibung der Leistungsfähigkeit des Ultraschalleinsatzes ist nicht auf andere Anwendungen transferierbar. Bisher bestehen Erfahrungen mit Modellsuspensionen oder beispielsweise der Filtration von Molke. Eine Aussage, für welche Prozesse unter welchen Randbedingungen der Ultraschalleinsatz interessant erscheint, steht aus. Lediglich Wakeman and Tarleton (1998) haben für die Verfahrenskombination durch Ultraschall- und elektrische Felder so eine Aussage formuliert. Die Autoren sehen für diese Verfahrenskombination eine Chance für eine Nischenanwendung bei der verbesserten Filtration von besonders schwer filtrierbaren oder sehr wertvollen Suspensionen.

Viele Veröffentlichungen gehen ausführlich auf die Leistungsfähigkeit des ultraschallunterstützten Trennverfahrens für spezielle Anwendungen ein. Die Schädigung von Membranoberflächen wird dabei jedoch nur als Gefahr erwähnt.

Diese Arbeit soll einige der Lücken im bisherigen Wissenstand füllen. Um die Chancen des ultraschallunterstützten Membranprozesses besser abschätzen zu können, werden Überlegungen und Experimente zu einer Hochskalierung der Laboruntersuchungen auf den Technikumsmaßstab durchgeführt. Die Schädigung der Membran durch die Kavitationswirkung ist dabei ein ganz wesentliches Kriterium.

3 Übersicht über das Versuchsprogramm

Mit diesem Versuchsprogramm werden die Kombinationsmöglichkeiten von Ultraschall und der Membranfiltration systematisiert und eine Auswahl an relevanten Ansätzen getroffen. Ziel ist es, eine Orientierung in der Vielzahl von möglichen Ansätzen zu finden, wie Ultraschall in den Membrantrennprozess eingebunden werden kann. Zunächst soll jeweils die Funktionsfähigkeit nachgewiesen werden (proof of concept). Bewertungskriterien dabei sind die Verbesserung des Fluxes und der Verringerung des spezifischen Energiebedarfs. Gleichzeitig soll die Skalierbarkeit unter Berücksichtigung des apparativen und finanziellen Aufwands geprüft und bewertet werden.

Grundsätzlich wird in die Einbindung von Ultraschall bei der Crossflow- (Kapitel 3.1) und bei der Dead-End-Filtration (Kapitel 3.2) unterschieden. Im ersten Fall geht es um die permanente Deckschichtkontrolle und Verhinderung der Ablagerung im zweiten Fall um verbesserte Reinigungsmethoden. Der aussichtsreichste Ansatz soll auf die Membranfläche eines üblichen Kapillarmembranmoduls übertragen werden. Kapitel 3.3 geht schließlich auf einen Versuch ein, der die Skalierbarkeit des Ansatzes der ultraschallunterstützten Rückspülung auf den Produktionsmaßstab zeigt.

3.1 Ultraschallunterstützte Crossflow-Filtration

Die Beschallung bei der dynamischen Filtration stellt einen zusätzlichen Energieeintrag in ein Crossflow-Filtrationssystem dar. Der Ultraschalleintrag soll die Deckschichtbildung verringern oder eine höhere Durchlässigkeit der Deckschicht ermöglichen. Damit sollen höhere Durchflüsse ermöglicht bzw. der spezifische Energieaufwand verringert werden. Damit sich im Sinne der Querstromfiltration ein dynamisches Gleichgewicht aus Konzentrationspolarisation bzw. Anlagerung von Partikeln und Abtransport des Konzentrats ausbilden kann, muss der Anlagenaufbau die Funktionalität Druckerhöhung und Überströmung gewährleisten. Somit ergibt sich keine Vereinfachung des Gesamtsystems bezüglich der benötigten Rohrleitungen, Absperrarmaturen und Pumpen. Der Ultraschalleintrag kann somit als eine Alternative zur Erhöhung der Querstromgeschwindigkeit betrachtet werden. Hohe Querstromgeschwindigkeiten sind mit hohen Druckverlusten verbunden. Die Energieverluste aufgrund von Reibung, die in herkömmlichen Crossflow-Filtrationssystemen bei der Erhöhung Strömungsgeschwindigkeiten entstehen, treten bei der Einbringung zusätzlicher Kraftwirkungen durch den Einsatz von Ultraschall nicht auf. Die Chance der Einkopplung von Ultraschall bei der Crossflow-Filtration besteht darin, dass der Ansatz hinsichtlich Durchfluss und spezifischem Energiebedarf insbesondere für sehr feindisperse und schwerfiltrierbare Stoffsysteme überlegen sein könnte (Muthukumaran 2005a, Matsumoto 1996, Simon 2000b).

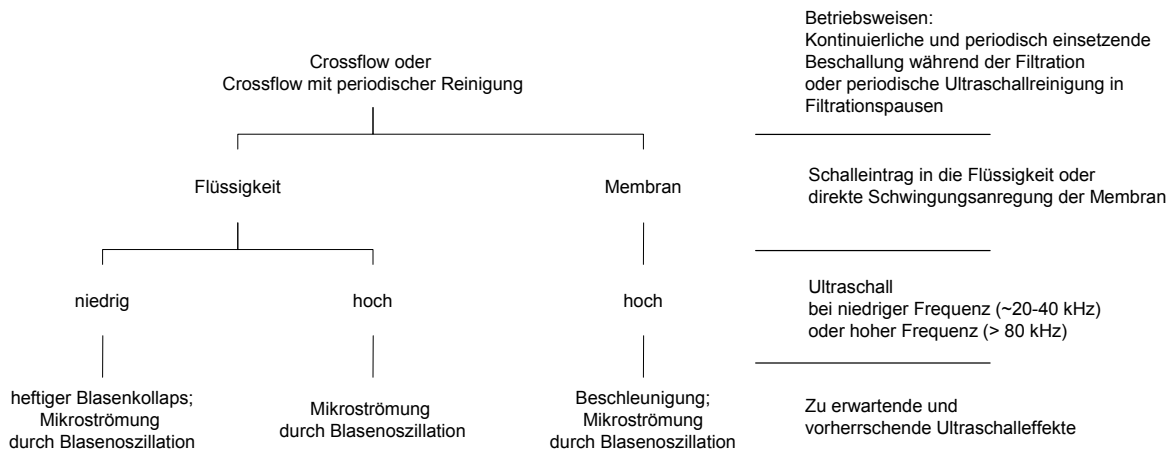


Bild 3-1: Vereinfachte, schematische Darstellung der Beschallungsvarianten bei der dynamischen Filtration.

Die schematische Darstellung in Bild 3-1 zeigt einige mögliche Alternativen des Schalleintrags bei der Querstromfiltration. Die oberste Ebene stellt die Betriebsweise dar, bei der beschallt wird. Bei reiner Crossflow-Filtration sollen durch dauerhaften Ultraschalleintrag höhere Flüsse ermöglicht werden. Die Beschallung erfolgt unter feedseitiger Druckbeaufschlagung. Eine Mischform stellt die Crossflow-Filtration mit periodischer Reinigung dar. Diese periodische Reinigung kann beim Ultraschalleinsatz mit und ohne Abstellen der Feedwasserpumpe erfolgen (siehe Kap. 5.1.2).

Prinzipiell ist eine Beschallung der Flüssigkeit oder eine schwingungstechnische Anregung der Membran vorstellbar (vgl. zweite Ebene in Bild 3-1). Von der Vielzahl an schalltechnischen Parametern (Intensität, Frequenz, Betriebsmodi der Beschallung, Amplitudenform) wurden in dem Schema nur die Ultraschallfrequenzen aufgenommen (vgl. Ebene 3 in Bild 3-1). Für niedrige Ultraschallfrequenzen im Bereich von 20-40 kHz sind heftige Blasenimplosionen zu erwarten. Für höhere Frequenzen (hier mit größer 80 kHz angesetzt) sind in technischen Systemen weniger heftige Blasenimplosionen zu erwarten (vgl. Kap. 2.3.1; Bild 2-3). Bei hohen Frequenzen wird erwartet, dass die Mikroströmungen aufgrund der schnellen Blasenoszillation hohe Scherkräfte auf die Deckschicht bewirken (vgl. Kap. 6.2.3). Bei der direkten Schwingungsanregung der Membran treten die Effekte der mechanischen Beschleunigung der Oberfläche in den Vordergrund (vgl. Kap. 6.2.2).

Auf eine vollständige Darstellung der Beschallungsvarianten wird hier verzichtet. Alleine die verschiedenen Ultraschallparameter würden entsprechend der Kombinatorik die Darstellung sehr unübersichtlich machen. Das dargestellte vereinfachte Schema der Beschallungsvarianten hat sich insbesondere unter Berücksichtigung der in Kapitel 1.1 aufgeführten Einschränkungen herausgebildet.

Drei weitere Ebenen, auf die in dem Schema (Bild 3-1) zur besseren Übersicht nicht eingegangen wurde, sollen kurz andiskutiert werden:

- Art der Membran und Modulgeometrie
- Beschallungsrichtung
- Stoffsystem

Nur wenige technisch eingesetzte Membranen leiten selbst Schallwellen weiter. Sofern die porösen Strukturen die mechanische Wechselbeanspruchung von Zug- und Druckspannung aushal-

ten, ist mit metallischen und keramischen Membranen eine direkte Schwingungsanregung der Membran mit Ultraschall realisierbar. Übliche Polymermembranen dämpfen die Schalldruckamplitude ab (Schallfeldvermessung; Kap.4.4.2). Häufig werden bei Polymermembranen zusätzlich auch Gewebegitter oder ähnliches als Abstandshalter und Unterstützungsschicht genutzt, die in den üblichen Ausführungen auch eine schallabsorbierende Wirkung haben. Bei direkt angeregten Polymermembranen wird der Schall in der Struktur gedämpft, wodurch eine Schwingungsweiterleitung über eine größere Membranfläche nicht möglich ist (vgl. Kap. 5.1.2). Um auch mit Polymermembranen zu arbeiten, wurde die darunter liegende Bodenplatte der Testzelle in Schwingung versetzt (vgl. Kap. 4.2.3).

Die Art der Membran und deren Porengröße ist nach Matsumoto, Miwa et al. (1996) (vgl. Kap. 2.6.1; Membran) auch entscheidend dafür, wie Ultraschall die Filtration beeinflusst. Bei asymmetrischen Membranen mit einer Tiefenfilterwirkung unterstützt der Ultraschall die Reinigung von Poren nur schlecht. Bei der Beschallung von der Permeatseite, gibt es eine optimale Porengröße (Kyllönen 2005a) (vgl. Kap. 2.6.1; Anordnung von Membran und Schallwandler). Für alle schlauchförmigen Membranen (Kapillar-, Hohlfasern-, Rohr- und Mehrkanalmembran) unterscheiden sich die Anforderungen an das Ultraschallsystem wesentlich von Flachmembranen. Dabei ist innerhalb der Gruppe der schlauchförmigen Membranen die Unterscheidung von Membranen, die für den Inside-out-Betrieb und für den Outside-in-Betrieb geeignet sind, für die Beschallung von wesentlicher Bedeutung. Die Modulgeometrien bei Flachmembranen lassen sich in Platten-, Kissen- und Spiralwickelmodule unterscheiden. Von diesen Typen weisen die getauchten Kissenstapel für die Ultraschalluntersuchungen die einfachste Geometrie auf.

In unmittelbarem Zusammenhang mit Membrantyp und Modulgeometrie steht die Beschallungsrichtung. Bei inside-out-betriebenen Kapillar- oder Hohlfasermembranen ist eine Beschallung von der Feedseite nur für sehr kurze Membranen denkbar. Während eine Beschallung von der Permeatseite für übliche lange Modulbauweisen die nahe liegende Beschallungsrichtung darstellt.

In Kapitel **2.3.1** (Bild A3-0-8) wurde der Einfluss der Gaskonzentration auf den Blasenkollaps gezeigt. Die Anwesenheit von gelöstem Gas und ungelösten Gasbläschen als Kavitationskeime im Stoffsystem ist von zentraler Bedeutung für die Wirkungsweise der Beschallung. Hydrophobe Oberflächen verhindern die Verdrängung von in Kerben und Hohlräumen eingeschlossenem Gas und können so dauerhafte Kavitationskeime bilden. Partikelformen mit unebener Oberfläche und Hohlräumen verstärken diesen Effekt durch die Kapillarwirkung. Entsprechend sind Hydrophobizität der Partikel, Partikelform, Partikelkonzentration und –größenverteilung wichtige Parameter für die Konzentration an Kavitationskeimen und die Heftigkeit des Blasenkollapses.

3.2 Ultraschallunterstützte Dead-End-Filtration

Bild 3-2 zeigt eine vereinfachte Systematik für die mögliche Einbindung von Ultraschall als Reinigungsmethode bei der Dead-End-Filtration. Wie in Kapitel 3.1 wird auch hier zu Gunsten der Übersichtlichkeit die Vielzahl an Kombinationsmöglichkeiten stark reduziert. Die zweite Ebene »Verfahrenskombinationen« deutet die Verbindung des Ultraschalleintrags mit der Rückspülung und dem Überströmen an.

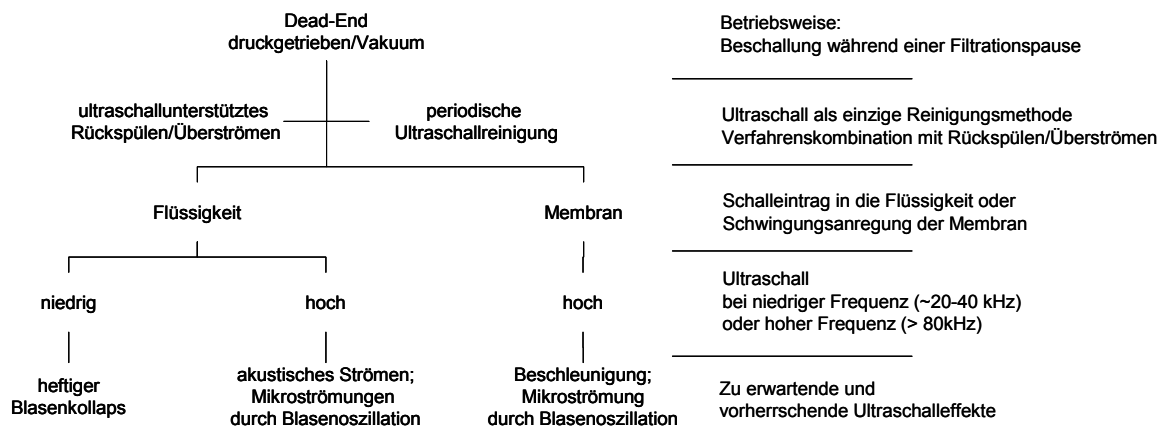


Bild 3-2: vereinfachte schematische Darstellung der Beschallungsvarianten bei statischer Filtration

Für die Untersuchung der Verfahrenskombination Ultraschall mit Rückspülung wurden die keramischen Membranen ITN-Nanopore 200 µm in einfachen Vakuumfiltrationsversuchen genutzt. Die beiden Flachmembranmodule sind nicht rückspülbar. Als weitere rückspülbare Membran wurde die Kapillarmembran Multibore der Firma Inge AG, Greifenberg im Inside-out-Betrieb genutzt.

3.3 Ultraschallunterstütztes Rückspülen an einem Kapillarmembranmodul

Ein zentrales Anliegen dieser Arbeit ist es, eine Methode des Ultraschalleinsatzes zur Verbesserung der Mikro- und Ultrafiltration zu finden, die sich auch auf relevante Größenordnungen für technische Anwendungen übertragen lässt. Das ultraschallunterstützte Rückspülen an einem Kapillarmembranmodul lässt sich bei einer energieeffizienten Dead-End-Betriebsweise dem Schema Bild 3-2 »Beschallungsvarianten bei statischer Filtration« zuordnen. Es wird in der Übersicht zu dem Versuchsprogramm extra aufgeführt, da es den Skalenübergang von Laborsystemen und speziellen Filtrationssystemen mit wenigen Quadratzentimetern Membranfläche zu einem handelsüblichen Kapillarmembranmodul mit mehreren Quadratmetern Membranfläche darstellt.

Die Versuche wurden an den drei Stoffsystemen natürliches Oberflächenwasser, Trockenmilch und Titandioxidsuspension durchgeführt. Bei den Versuchsreihen mit dem natürlichen Oberflä-

chenwasser stehen die Langzeitwirkung und die Schädigung der Membran im Vordergrund. Bei den Versuchsreihen mit den gut untersuchten Stoffsystemen Titandioxid und Trockenmilch werden Parametervariationen durchgeführt und der Einfluss von Parametern des Stoffsystems, der Beschallung, sowie der Filtration und Reinigung untersucht. Die zentralen Fragestellungen an die Versuchsreihen sind:

- Welche Auswirkung hat die ultraschallunterstützte Rückspülung im Dauerbetrieb hinsichtlich des Fluxes, dem spezifischen Energiebedarf und der Membranlebensdauer?
- Welche Parameter und Reinigungsmaßnahmen sind entscheidend für die Bewertung und die Funktionsweise der ultraschallunterstützten Rückspülung?
- Wann treten Membranschädigungen auf, wie lassen sich diese vermeiden?

Eine Verbesserung des Filtrationsprozesses kann sich dabei auf verschiedene Weisen bemerkbar machen:

- durch die Ermöglichung eines höheren Gesamtfluxes bei stabilem Transmembrandruck,
- durch ein geringeres Rückspülungsvolumen aufgrund verkürzter Rückspülzeit bzw. verringertem Rückspülungsdruck,
- durch eine Verlängerung der Filtrationsintervalle, bei der geringe Durchflüsse in der Gewissheit toleriert werden, dass jeder Zeit eine nahezu vollständige Membranreinigung möglich ist,
- durch die Verringerung des spezifischen Energieeintrags.

4 Methodik und Material der experimentellen Untersuchungen

Entsprechend der Systematiken in Bild 3-1 und Bild 3-2 wurden zu allen Kategorien geeignete experimentelle Aufbauten und Versuchsmethoden entwickelt. Je nach Versuch geht es darum Ultraschalleffekte zu klären oder einen Nachweis für die Machbarkeit eines besonders vielversprechenden Ansatzes zu erbringen. Bevor in Kapitel 5 die Versuchsergebnisse präsentiert und diskutiert werden, werden die verwendeten Materialien, Versuchsaufbauten, Versuchs- und Messmethoden im Folgenden vorgestellt.

4.1 Verwendete Membranen

Labormembranscheiben

Für die Versuche in Kap 5.2.2 werden die Labormembranscheiben »ME 24« der Firma Whatman, Springfield Mill, UK verwendet. Die Membranscheiben bestehen aus Zellulosemischester. Sie haben einen Durchmesser von 47 mm und eine mittlere Porengröße von 0,2 μm .

Flachmembran zur Ultrafiltration

In den verschiedenen Flachmembranmodulen wurde die Ultrafiltrationsmembran »Nadir UP150« der Firma Microdyn-Nadir GmbH, Wiesbaden verwendet. Es handelt sich um eine Flachmembran aus Polyethersulfon (PES). Der Hersteller gibt für diese Membran eine nominale Trenngrenze (Molecular Weight Cut Off) von 150 kDa an. Der Reinwasserfluss wird mit $>200 \text{ l}/(\text{m}^2\text{h})$ bei den Testbedingungen 0,7 bar, 20 °C, Rührzelle 700 U/min angegeben.

Die Membran ist asymmetrisch aufgebaut. Die trennaktive Schicht ist einige 10 μm dick, während die Membran insgesamt nach eigenen Messungen eine Dicke von etwa 200 μm aufweist.

Keramische Flachmembran

In den verschiedenen Testzellen (Kap. 4.2.2 und 4.2.3) und bei den Vakuumfiltrationsexperimenten (Kap. 5.2.1) kamen keramische Membranen zum Einsatz. Es wurde mit der von außen nach innen durchströmten Keramikflachmembran »ITN-Nanopore 200 nm« der Firma ITN-Nanovation AG, Saarbrücken gearbeitet. Für die verwendeten Membranen wurde eine mittlere Porengröße von 0,2 μm angegeben.

Nanopore Membranen werden als asymmetrische Composite-Membranen hergestellt. Auf eine poröse, keramische Stützschiicht wird eine 5 bis 15 μm dicke, feinporige Schicht aufgebracht. Als Material für den Träger wird Aluminiumoxid verwendet. Die dünne aktive Membranschicht besteht aus Zirkonium- und Titanoxid.

Ultrafiltration Multibore® Membran

Als handelsübliches Ultrafiltrationsmodul wurde das Modul »dizzer® 450« mit der Membran »Multibore® Membran 0.9« der Firma Inge AG, Greifenberg eingesetzt (Datenblatt in Anhang 1). Bei den Membranen handelt es sich um eine von innen nach außen (inside-out) durchströmte Multi-Channel-Membran-Konfiguration bei der sieben Membrankanäle in einem schaumstoffartigen Stützmaterial zusammengefasst sind. Dadurch sollen die Membrankanäle vor mechanischen Belastungen geschützt und Membranbrüche vermieden werden. Die einzelnen Strömungskanäle haben einen freien Innendurchmesser von 0,9 mm. Sie werden im Folgenden als Kapillaren bezeichnet (entsprechend der Terminologie der Firma Inge AG Datenblatt in Anhang 1). Üblicherweise werden unter Kapillaren (lat. *capillus* - Haar) einzelne Röhrchen mit sehr kleinen Innendurchmessern verstanden. Im Fall der Multi-Channel-Membran-Konfiguration bezieht sich der Begriff Kapillare auf die feinen langgestreckten Hohlräume der Membrankanäle. Die ganze Multi-Channel-Modulkonfiguration wird im Folgenden auch als Kapillarmodul bezeichnet. Der mittlere Porendurchmesser der Membran beträgt etwa 0,02 µm. Das Membranmaterial ist dauerhaft hydrophiles Polyethersulfon (PES).

Das Modul »dizzer® 450« wurde für die Filtrationsexperimente mit Ultraschalleinsatz gemäß Kapitel 4.2.7 modifiziert. In dem Membranmodul bilden die Innenflächen der Kapillaren insgesamt 4,5 m² aktive Membranfläche.

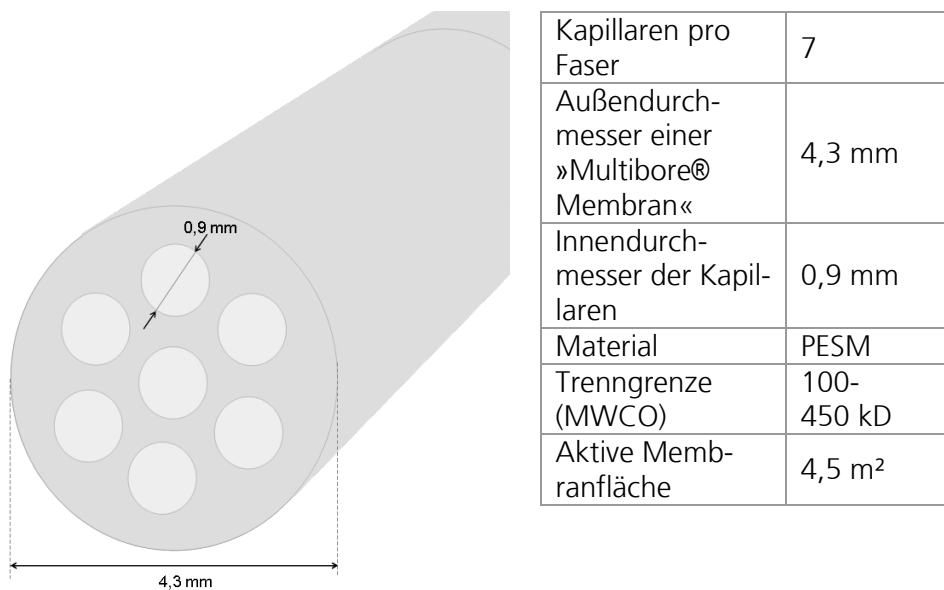


Bild 4-1: Abmessungen der »Multibore® Membran 0.9« der Firma Inge AG.

4.2 Beschreibung der Versuchsanlagen

4.2.1 Testanlage zur druckgetriebenen Filtration mit verschiedenen Testmodulen

Die Versuchsanlage zur druckgetriebenen Crossflow-Filtration ist so konzipiert, dass verschiedene Membranmodule eingebaut und möglichst flexibel die Filtrationsparameter variiert werden können. Bild 4-2 zeigt das vereinfachte Fließbild des Versuchsaufbaus.

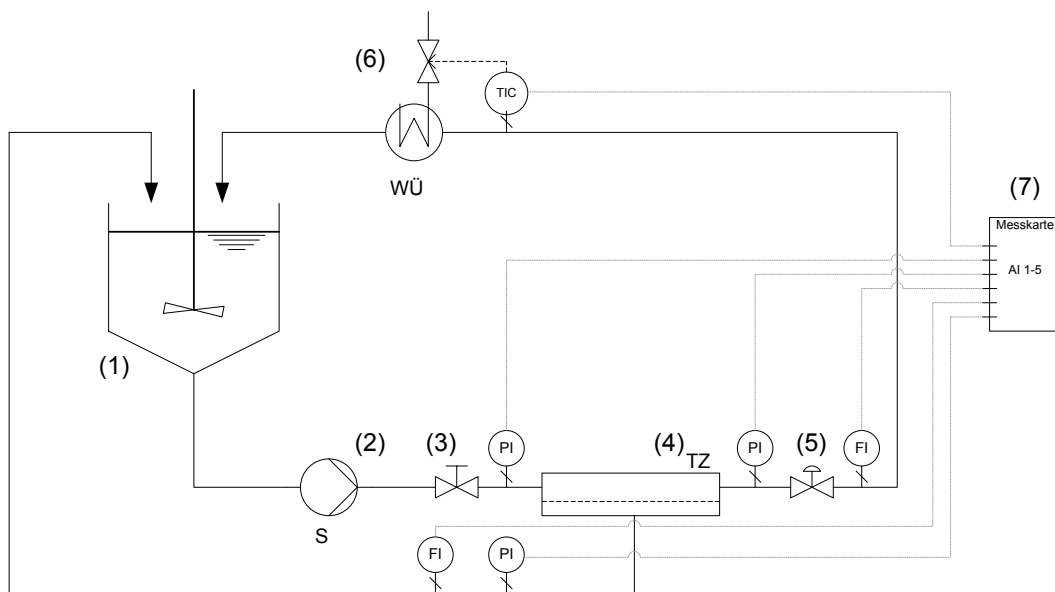


Bild 4-2: vereinfachtes Verfahrensfliessbild der Versuchsanlage zum Einbau verschiedener Membranmodule; (1) Vorlagebehälter, (2) Feedwasserpumpe, (3) Drosselventil, (4) Membranmodul (Testzelle; TZ), (5) Druckhalteventil, (6) Wärmeübertrager WÜ, (7) Messwerterfassung

Die zu filtrierende Suspension wird in dem Vorlagebehälter (1) mit 120 Litern Füllvolumen mit einem Propellerrührer dispergiert. Eine mehrstufige Kreiselpumpe (2) fördert die Suspension in das Flachmembranmodul (4). Über Drosseln (Ventile 3 und 5) werden die Überströmgeschwindigkeit und der Druck in dem Flachmembranmodul manuell eingestellt. Ein Wärmetauscher (6) führt die eingetragene mechanische Energie ab und hält so die Temperatur konstant. Die Messwerterfassung erfolgt über einen PC. Es werden Temperatur, Konzentrat- und Permeatvolumenstrom, Druck vor und nach dem Flachmembranmodul, sowie im Permeat in einem einstellbaren Zeitintervall aufgezeichnet.

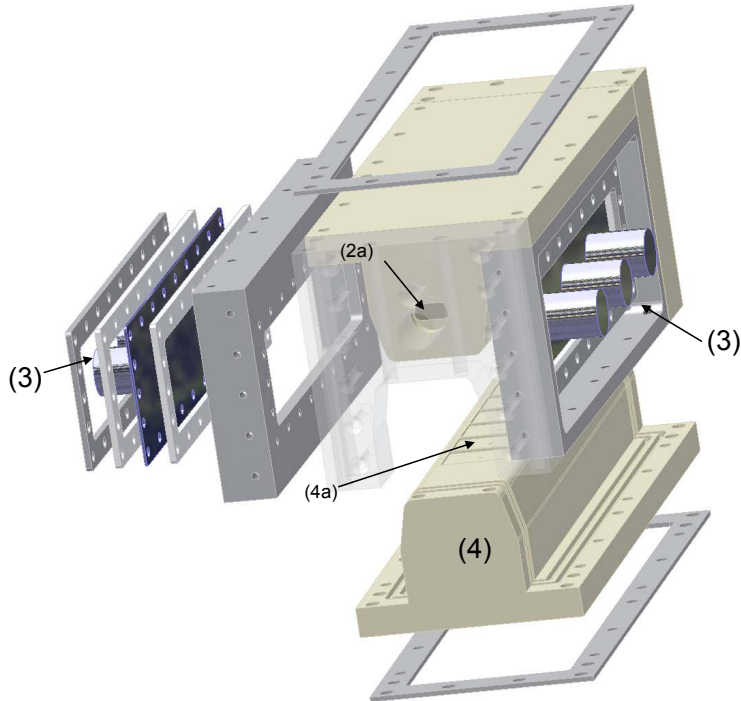
Mit der Testanlage für verschiedene Membranmodule mit integriertem Ultraschallsystem ist es möglich Drücke zwischen 0-10 bar und Volumenströme bis 8 m³/h einzustellen.

4.2.2 Testzelle I: Flachmembranmodul mit integrierten Ultraschallwandlern

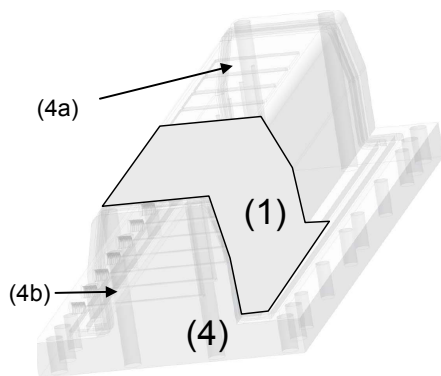
Die Testzelle I ermöglicht die Untersuchung der Ultraschalleinwirkung bei der Querstromfiltration mit Flachmembranen. Dabei kommen Ultraschallschwinger für den Schalleintrag in die Flüssigkeit zum Einsatz, wie sie für Reinigungsaufgaben eingesetzt werden. Diese ermöglichen die Variation von den Ultraschallparametern Frequenz und Intensität und erlauben den Betrieb in verschiedenen Modi, wie kontinuierliche und gepulste Beschallung (Kap. 4.3.1). Eine einfache Zugänglichkeit erlaubt den Wechsel der Flachmembranen. Im Gegensatz zu den meisten in der Literatur aufgeführten Versuchsaufbauten (Kap. 2.6.1) soll hierbei eine Skalierbarkeit des Ansatzes eines Ultraschalleintrags auf größere Membranflächen mitberücksichtigt werden. Daher ist statt der Vis-à-Vis-Anordnung, für die eine Skalierung auf Größenordnungen für den Produktionsmaßstab schwer vorstellbar ist, eine Beschallung senkrecht zur Membranebene und senk-

recht zur Überströmungsrichtung realisiert worden. Der Schalleintrag erfolgt direkt in den Strömungskanal des Feedwassers. Bild 4-3 zeigt eine Explosionszeichnung der Testzelle I.

Aufbau Testzelle I und Anordnung Ultraschallwandler



Bodenplatte mit Permeatabzügen und Lage der Flachmembran



Eigentlicher Strömungskanal

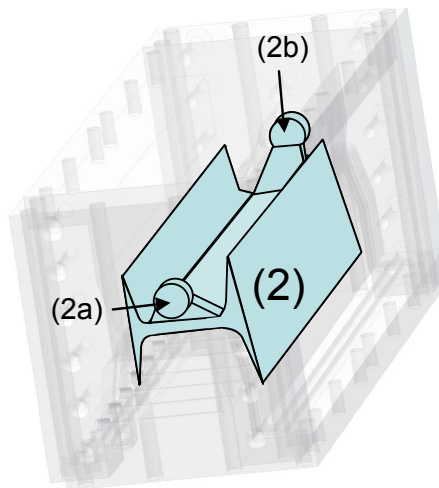


Bild 4-3: Explosionszeichnung der Testzelle I;

- (1) Flachmembran (hier mit Polymerflachmembran dargestellt und nur über die halbe Bodenplatte)
- (2) Strömungskanal im Testzellendeckel mit (2a) Feedeingang und (2b) Konzentratausgang;
- (3) Ultraschallwandler;
- (4) Bodenplatte mit
- (4a) Permeatspacern,
- (4b) Permeatableitung.

Das Feedwasser strömt am Feedeingang (2a) in den Strömungskanal der Testzelle ein. Ein Teilstrom durchströmt die Membran (1) und verlässt als Filtrat die Bodenplatte (4) über sieben Permeatableitungen (4b). Die Membran ist an sieben Bereichen mit Gewebefliesen unterlegt, an denen das Filtrat abfließen kann. Der aufkonzentrierte Konzentratvolumenstrom verlässt die Testzelle über den Konzentratausgang (2b). Im Folgenden sind die Anforderungen an die Testzellen I zusammengefasst:

- Beschallung während der Crossflow-Filtration.
- Seitlicher Schalleintrag in einen Spalt bzw. Strömungskanal über der Membran.
- Transparenter Werkstoff Acrylglas zur visuellen Beobachtung der Deckschichtbildung/-ablösung.
- Anbau von Ultraschallwandlern auf beiden Seiten des Strömungskanals.
- Definierte Fläche der aktiven Membran.
- Einbaumöglichkeit von keramischer Flachmembran und Polymermembran.
- Dichtigkeit und Druckfestigkeit bis 10 bar (Ultrafiltration).
- Gleichmäßige Überströmung der Membran; gute Strömungsführung im Einlaufbereich.
- Leichter Einbau und Wechsel von Membran und Spacer.
- Geringer interner Druckverlust.
- Mehrere Permeatabzüge (7 Stück), um die Mechanismen über die Lauflänge untersuchen zu können.

Einschränkungen bezüglich dieser Anforderungen müssen bei der realisierten Testzelle bezüglich der genauen Definition der aktiven Membranfläche und der gleichmäßigen Überströmung der Membran gemacht werden. Für die aktive Membranfläche wurde bei Verwendung der Polymermembran die Fläche der unter der Membran liegenden Permeatspacer verwendet. Messungen zur Charakterisierung der Membraneigenschaften zeigen, dass auch im Bereich ohne den Permeatspacern eine Filtration stattfindet. Dazu wurden die Durchflüsse an den sieben Permeatabzügen einzeln vermessen. Es zeigt sich, dass die mittleren Permeatabzüge deutlich mehr Durchfluss aufweisen, wenn alle umgebenden Abzüge geschlossen sind, als die Abzüge am Rand in dieser Situation. Der Flux bei der Vermessung einzelner Permeatabzugsfelder ist höher als der gemessene Flux bei Freigabe aller Abzugskanäle. Das weist darauf hin, dass die relativ dicke Stützstruktur der Membran Nadir UP 150 einen Quertransport des Filtrats in Richtung der offenen Permeatabzüge ermöglicht und so die aktive Membranfläche tatsächlich größer ist als die hier verwendeten 168 cm².

Bei der Verwendung der Keramikflachmembran ITN-Nanovation 200 nm tritt dieses Problem nicht auf. Für den Einbau dieser Membran werden die Permeatabzugskanäle in der Keramikmembranplatte an der Rückseite in der Mitte der Platte geöffnet. So konnte ein gleichmäßiger Abzug des Permeats über die ganze Fläche der Platte gewährleistet werden. Alle Seiten der Keramikmembran wurden mit Silikon an dem Testzellenboden abgedichtet. Tabelle 4-1 fasst die charakteristischen Abmessungen der Testzelle zusammen.

Tabelle 4-1: Charakteristische Abmessungen der Testzelle I

Testzelle	Länge [mm]	Breite [mm]	Höhe [mm]	Querschnittsfläche [mm ²]	Fläche [mm ²]
Testzelle gesamt	500	190	240		
Abmessung des Strömungskanals					
Strömungskanal (A_{SK}) ideal	380	~60	15	~900	~900
Volumen vor den Schallgebern					
Strömungskanal mit Volumen vor den Schallgebern				2.715	2.715
Membran					
Polymermembran	Einbaumaße Membran	445	285		126.825
	einzelne Abzugsflächen	40	60		2.400
	Aktive Membranfläche (A_M)	7x~40	~60		~16.800
Keramikmembran	Einbaumaße Membran	290	70		20.300
	aktive Membranfläche (A_M)	~285	~65		~18.525

Wie in Bild 4-3 an dem als Strömungskanal (2) gekennzeichneten Volumen zu erkennen, weitet sich der Strömungskanal zu den Schallwandlerplatten hin auf. Diese konstruktive Maßnahme stellt einen Kompromiss aus möglichst geringem beschallten Volumen und damit einer definierten Überströmung im Strömungskanal und der Anforderungen für den Schallwandler dar. Dieser muss, um vor Überhitzung geschützt zu sein, auf der ganzen schwingenden Fläche Kontakt mit dem zu beschallenden Fluid haben. Tabelle 4-1 gibt den Strömungsquerschnitt des eigentlichen Strömungskanals und der gesamten freien Querschnittsfläche an. Bei der Querschnittsfläche des Strömungskanals mit den Volumina vor den Schallgebern ist der sich zum Schallwandler hin aufweitende Rand berücksichtigt. Zur Berechnung einer mittleren Überströmungsgeschwindigkeit wurde eine freie Querschnittsfläche von 9 cm² verwendet. Es kann davon ausgegangen werden, dass die tatsächliche mittlere Strömungsgeschwindigkeit im Strömungskanal über der Membran wegen des vernachlässigten Randes deutlich geringer ist, als die in den Messungen angegebenen Werte für die Überströmung in Kapitel 5.1.

4.2.3 Testzelle II: Flachmembranmodul mit schwingender Bodenplatte und Membran

Die Membrantestzelle II soll eine direkte, schwingungstechnische Anregung der Membran erlauben. Die Schwierigkeit bei der Konstruktion so einer Testzelle liegt darin, ein Dichtungssystem zu entwickeln, das die Feedseite gegenüber dem Außenraum und der Permeatseite abdichtet. Schallwandler und schwingende Bodenplatte sollen eine Einheit bilden. Die Bodenplatte und der Schallwandler müssen frei schwingen können. UF-Membran und schwingende Platte sollen zur Schwingungsübertragung direkt aneinander gekoppelt sein. Das Permeat muss mit geeigneter Durchführung aus dem schwingenden System der Bodenplatte abgeleitet werden.

Die Explosionszeichnung der Testzelle II (Bild 4-4) veranschaulicht, wie diese Anforderungen konstruktiv umgesetzt wurden. Die Dichtigkeit der Feedseite gegenüber dem Außenraum konnte zufrieden stellend gelöst werden. Die wichtige Nebenbedingung, dass die schwingende Platte (3a) nicht fixiert werden darf, konnte dabei eingehalten werden. Im Bereich des Spalts zwischen

schwingender Bodenplatte (3a) und Bodenplatte (4) wurde unter die Membran eine wasserundurchlässige Folie gelegt. Da die Membran über dem Spalt zwischen schwingender Bodenplatte (3a) und Testzellenboden (4) liegt, wird die Membran auf die Folie gepresst und so der Spalt ausreichend abgedichtet. Bei Verwendung der keramischen Membran ITN-Nanopore 200 nm unterscheidet sich die Situation dadurch, dass die Membran nicht über dem Spalt liegt, sondern in die schwingende Bodenplatte (3a) eingedichtet ist (vgl. Bild 4-5). Auch in diesem Fall wird zur Abdichtung des Spalts die Folie benutzt. Allerdings muss diese bei Verwendung der Keramikmembran zusätzlich mit Silikon angeklebt werden. Um die Schwingungsfähigkeit der Bodenplatte (3a) nicht zu beeinträchtigen, werden für die Verbindung der Permeatabzugskanäle von schwingender Platte (3a) zu Testzellenboden (4) bewegliche Röhrchen verwendet, die mit einfachen O-Ringen gedichtet und nur in die vorgesehenen Bohrungen eingesteckt sind.

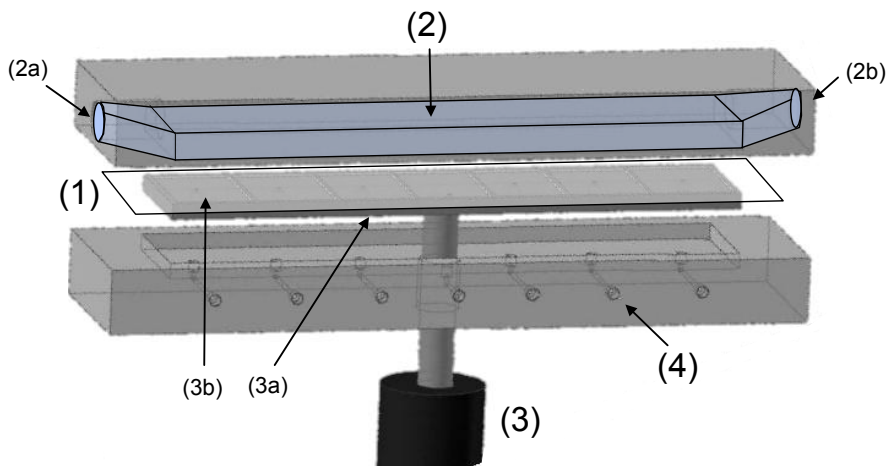


Bild 4-4: Explosionszeichnung der Testzelle II;

- (1) Flachmembran
- (2) Strömungskanal im Testzellendeckel mit (2a) Feedeingang und (2b) Konzentratausgang; (3) Ultraschallwandler
- (3a) schwingende Bodenplatte,
- (3b) Permeatspacer
- (4) Testzellenboden mit Permeatableitung

Auf die Schwingungseigenschaften dieser Testzelle wird in Kapitel 4.3.2 näher eingegangen. Tabelle 4-2 fasst die charakteristischen Abmessungen der Testzelle II zusammen.

Für die Verwendung von Keramikmembranplatten in der Testzelle II wurde eine spezielle Bodenplatte gefertigt. Zwei Keramikmembranplatten mit den Abmessungen 100 mm × 70 mm (L × B) können darin mit einer Schraubverbindung eingepresst werden (Bild 4-5). Die einzelnen Filtratkanäle der Keramikmembran sind auf der Rückseite der Membran geöffnet, so dass die Permeatabzugskanäle der Testzelle II genutzt werden können.

Tabelle 4-2: Charakteristische Abmessungen der Testzelle II

Testzelle		Länge [mm]	Breite [mm]	Höhe [mm]	Quer- schnitts- fläche [mm ²]	Fläche [mm ²]
Testzelle gesamt		464	172	110		
Abmessung des Strömungskanal (A_{SK})		360	80	11,5	920	
Membran						
Polymer- membran	Einbaumaße Membran	412	112			46.144
	einzelne Abzugsflächen	40	60			24.000
	Aktive Membranfläche (A_M)	7x ~40	~60			~16.800
Keramik- membran	Einbaumaße einzelne Membran	100	70			7.000
	aktive Membranfläche (A_M)	2x ~96	~61			~11.712

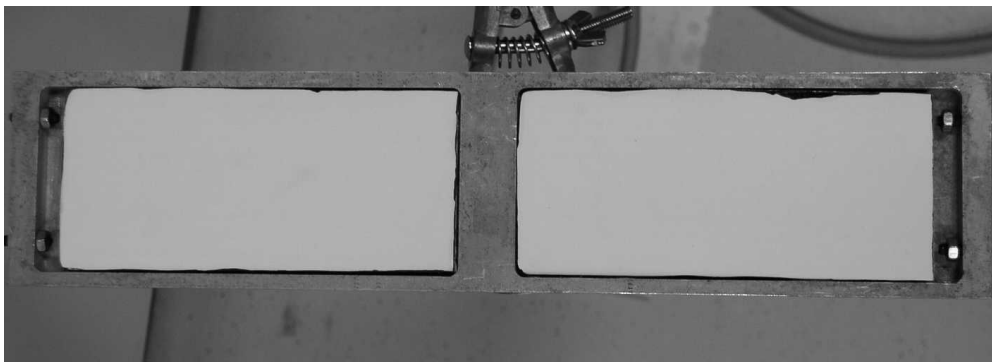


Bild 4-5: Einbau der Keramikflachmembranplatten (ITN-Nanopore 200 nm) in die entsprechende schwingungsfähige Bodenplatte.

4.2.4 Testanlage zur Filtration in zwei parallel betriebenen Kapillarmembranmodulen

Diese Testanlage stellt eine wesentliche Erweiterung des Aufbaus im Kapitel 4.2.1 dar. Zusätzlich zu den Anforderungen bei den Tests in den speziellen Testzellen bietet der erweiterte Teststand folgende Möglichkeiten:

- Parallelbetrieb von zwei Ultrafiltrationsmodulen bei gleichen Filtrationsbedingungen.
- Betrieb bei konstantem Flux.
- Rückspülung.
- Überströmung von beiden Seiten des Moduls.
- Automatisierter Dauerbetrieb mit Reinigungsvorgängen.
- Durchführung eines Integritätstests in Form eines Druckhaltetests.

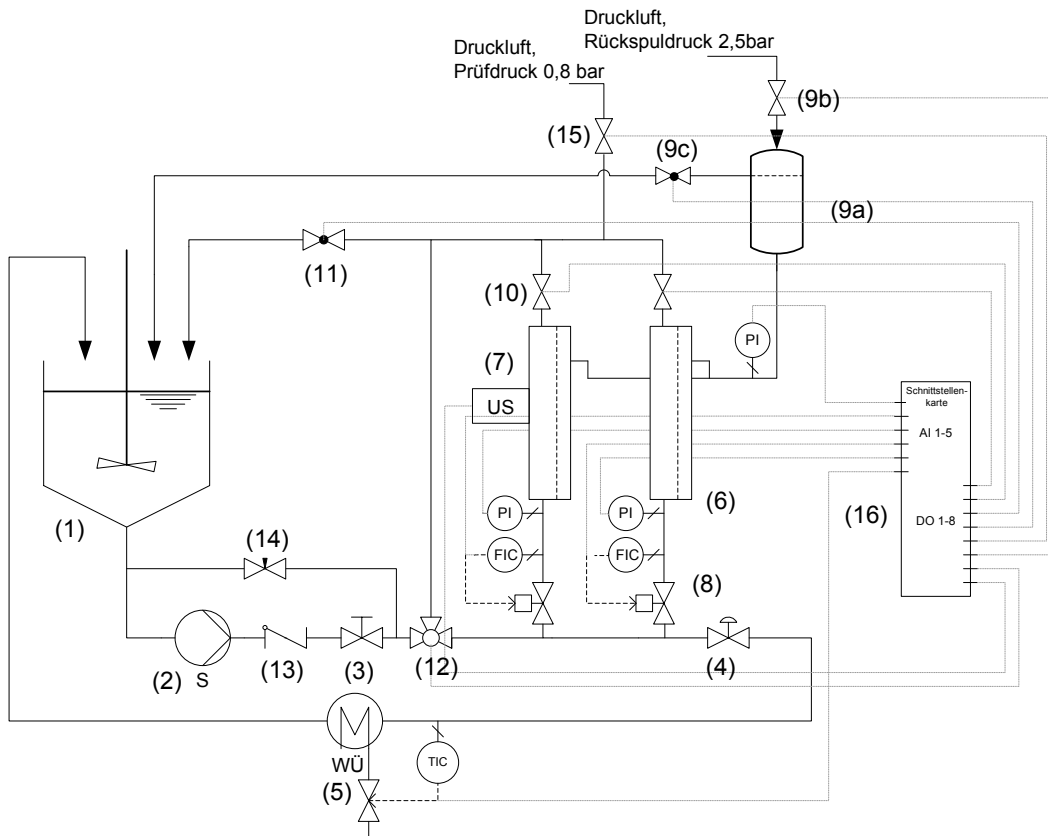


Bild 4-6: vereinfachtes Verfahrensfließbild der Versuchsanlage zum Parallelbetrieb zweier Ultrafiltrationsmodule; (1) Vorlagebehälter, (2) Feedwasserpumpe S, (3) Drosselventil, (4) Druckhalteventil; (5) Wärmeübertrager WÜ, (6) Ultrafiltrationsmodul, (7) Ultraschallwandler US, (8) Regelventile, (9) Rückspüleinrichtung mit (9a) Rückspülbehälter mit Luftkissen, (9b) Magnetventil in der Druckluftleitung, (9c) Kugelhahn in der Permeatleitung, (10) Magnetventile in der Konzentratleitung, (11) Kugelhahn in der Konzentratleitung, (12) Drei-Wege-Kugelhahn, (13) Rückschlagventil, (14) Bypass-Nadelventil, (15) Magnetventil zum Belüften und Aufprägen des Prüfdrucks, (16) Messwerterfassung und Steuerung

Der parallele Betrieb zweier Ultrafiltrationsmodule wurde in diesem Fall über eine Volumenstromregelung mit zwei Regelventilen (8) und einer separaten PID-Regelung realisiert.

Die Feedwasserpumpe S (2) baut innerhalb des Primärkreises einen geeigneten Vordruck auf, der eine Drosselregelung für die beiden Ultrafiltrationsmodule (6) auf eine konstante Flächenbelastung zulässt. Der Vordruck für die Regelventile (8) wird manuell über das Drosselventil (3) und das Druckhalteventil (4) eingestellt. Eines der beiden Ultrafiltrationsmodule ist mit einem Ultraschallwandler (7) ausgestattet (Kap. 4.2.7). Die Rückspülung wird mit einem Luftdruckpolster realisiert. In der Permeatleitung ist dazu ein Druckbehälter (9a) integriert. Bei der Rückspülung wird die Permeatleitung hinter dem Druckbehälter abgesperrt (9c) und durch Öffnen des Magnetventil (9b) von dem Druckluftanschluss der Rückspüldruck erzeugt.

Mit den Ventilen (8), (10) und dem Hahn (11) kann entschieden werden, über welche Anschlüsse der Volumenstrom während der Rückspülung das Modul verlässt. Eine Überströmrreinigung in der Richtung der Filtration (bottom-up) wird durch Öffnen der Regelventile (8), Schließen der Permeatleitung (9c), Öffnen der Magnetventile (10) und des Kugelhahns (11) realisiert. Die Überströmrreinigung in der Gegenrichtung (top-down) erfolgt durch Umstellen des Drei-Wege-Hahns (12), Öffnen der Magnetventile (10) und Schließen der Permeatleitung (9c) bei voll geöffneten Regelventilen (8).

Der Bypass mit Bypassventil (14) wurde eingeführt, da für die Überströmreinigung der Volumenstrom des Primärkreises reduziert werden musste, um Druckspitzen während der Überströmreinigung zu vermeiden. Ein reduzierter Gesamtvolumenstrom im Primärkreis führt zu einer stärker geschlossenen Ventilstellung an dem Druckhalteventil (4), um den geforderten Vordruck für die Regelung der Ultrafiltrationsmodule erreichen zu können. Das hat zur Folge, dass der Rückspülstrom bei geschlossenen Ventilen (10) vorzugsweise über den Weg der Bypassleitung erfolgt.

Der Aufbau bedingt einen unerwünschten Gegendruck auf der Feedwasserseite beim Rückspülen gegen die Filtrationsrichtung. Bei geschlossenem Magnetventil (10) und Kugelhahn (11) stellen die Regelventile (8) auch bei geöffneter Stellung eine Querschnittsverengung dar. Noch stärker tritt dieser Effekt beim Überströmen gegen die Filtrationsrichtung (top-down) auf. In diesem Betriebsmodus muss der gesamte Überstromvolumenstrom durch die Querschnittsverengungen der Regelventile (8) und des Druckhalteventils (4) gepumpt werden, wodurch unerwünscht hohe Drücke auf der Feedwasserseite auftreten. Überströmungen und Rückspülungen in der Richtung bottom-up bei geschlossenen Regelventilen (8) und geöffnetem Hahn (11) werden von den Volumenstromzählern nicht erfasst.

Zur Kontrolle der Membranintegrität wird durch Belüftung über das Ventil (15) das Wasser auf der Feedwasserseite der Module hinausgedrückt. Nach vollständiger Belüftung schließen die Regelventile (8) und nach Einstellung des Prüfdrucks schließen die Ventile (10) und (15). Treten keine geschädigten oder vergrößerten Poren auf, halten die Kapillarkräfte das Wasser in den Poren der hydrophilen Membran und verhindern so einen Druckausgleich mit der Permeatseite (vgl. Kap. 4.7).

Alle für die Prozessführung notwendigen Komponenten sind steuerbar ausgeführt. Die Ansteuerung erfolgt über einen PC. Messwerterfassung, sowie Programmierung der Steuerung sind in der Programmieroberfläche LabView von National Instruments umgesetzt. Komponente (16) deutet die Schnittstellenkarte an.

Das modifizierte Kapillarmembranmodul mit einer integrierten Ultraschalleinkopplung ist in Kapitel 4.2.7 beschrieben. Die Ultraschallsysteme und die Schallfeldcharakterisierung sind in Kapitel 4.3.2, Kapitel 4.3.3 und Kapitel 4.4 beschrieben.

4.2.5 Testaufbau für Ultraschallreinigungsversuche bei der Vakuumfiltration

Dieser Testaufbau ermöglicht orientierende Versuche, bei denen handelsübliche Ultraschallbäder und Tauchschwinger verschiedener Frequenzen ohne weitere Anpassungen genutzt werden können. Dazu werden getauchte Membranen in der Vakuumbetriebsweise verwendet. In der Kombination mit der Vakuumfiltration lassen sich Ultraschallreinigungsversuche besonders einfach realisieren. Mit den orientierenden Versuchen sollen der Einfluss der Ultraschallparameter, Beschallungsdauer, Frequenz und Gasgehalt des Rückspülfluids aufgezeigt werden, sowie die Wirksamkeit der Verfahrenskombination »ultraschallunterstütztes Rückspülen«.

Bild 4-7 zeigt den Versuchsaufbau und die Durchführung der Vakuumfiltrationsversuche schematisch. In einem mit DI-Wasser gefüllten Behälter (1a) wird der Reinwasserfluss eines sauberen Keramikmembranplättchens (2) vor den Versuchen gemessen. Hierzu wird eine keramische Flachmembranplatte ITN-Nanopore 200 nm in einen dafür vorgesehenen Aluminiumschuh eingedichtet. Der Schuh hat einen Anschluss für den Permeatabzug und einen für die Rückspülung. Der Abzug des Permeats wird über eine Vakuumsaugflasche (3) und eine Laborvakuumpumpe

(4) realisiert. Die Rückspülung erfolgt mittels eines Druckbehälters (5), der über die Hausdruckluftleitung auf den Rückspüldruck vorgespannt ist. Der Durchfluss wird durch Wägung der Saugflasche bestimmt.

Ein Ultraschallreinigungsexperiment bei der Vakuumfiltration erfolgt in vier Schritten. Im ersten Schritt (I) wird der Reinwasserdurchfluss der sauberen Membran in einem Behälter mit sauberem Wasser (1a) gemessen. Im zweiten Schritt (II) wird eine Deckschicht auf die Membran filtriert. Hierzu wird die Membran in einen zweiten Behälter (1b) mit der zu filtrierenden Suspension getaucht und je nach Stoffsystem für eine vorgegebene Zeit oder bis zum Erreichen eines vorgegebenen Filtratvolumens betrieben. Im dritten Schritt (III) erfolgt in einem dritten Behälter (1c) die Ultraschallreinigung. Für visuelle Beobachtungen des Reinigungsvorgangs kann für diesen dritten Behälter (1c) bei Beschallung mit Megaschalltauchschwingern (6) ein quadratischer Glasbehälter genutzt werden. Für Ultraschallreinigungsexperimente wird als Behälter (1c) das verwendete Ultraschallbad verwendet. Die Reinigungsphase (III) kann durch Verwendung der Rückspülvorrichtung (5) unterstützt werden.

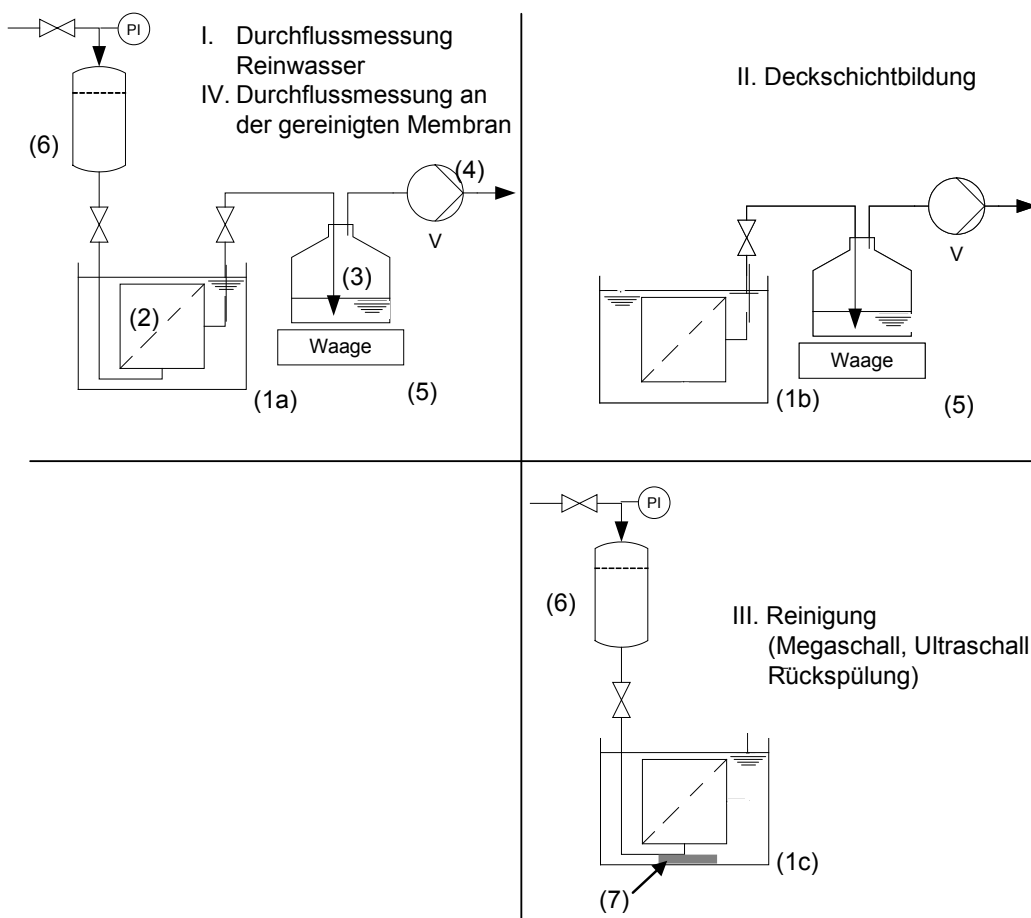


Bild 4-7: Teststand Reinigungsversuche bei Vakuumfiltration; (1a) Behälter mit Reinwasser, (1b) Behälter mit Suspension, (1c) Behälter mit Ultraschallwandler, (2) Testmembran, (3) Vakuumsaugflasche, (4) Vakuumpumpe V, (5) Waage, (6) Rückspülbehälter, (7) Ultraschallwandler

Im Schritt IV wird die gereinigte Membran zurück in den Behälter (1a) getaucht. Dort findet erneut eine Durchflussmessung mit Reinwasser an der gereinigten Membran statt.

Die Reproduktionsgenauigkeit dieser Versuchsmethodik ist durch die häufigen Wechsel der Behälter, in die die Membran getaucht wird, nicht sehr gut. Als orientierende Versuche, zur Beobachtung und Identifizierung der wirksamsten Ultraschallmechanismen ist diese Versuchsanordnung jedoch ausreichend.

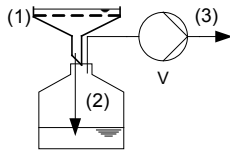
4.2.6 Testaufbau zur ultraschallunterstützten Rückspülung im Labormaßstab

Mit diesem Testaufbau wurde das Ziel verfolgt, den Ansatz des ultraschallunterstützten Rückspülens genauer zu untersuchen. Die Beschallung erfolgt dabei auf der Filtratseite, wodurch die Situation bei der Beschallung eines Kapillarmembranmoduls für den Inside-out-Betrieb nachgebildet wird. Der Teststand soll quantitative Aussagen zum Reinigungserfolg bei der ultraschallunterstützten Rückspülung ermöglichen. Es soll aufgezeigt werden, inwieweit die Parameter Rückspülendruck, Druck auf der Filtratseite, Gasgehalt, Ultraschallintensität und Einwirkdauer die Wirksamkeit der Reinigung beeinflussen. Der Reinigungsvorgang soll visuell beobachtbar sein, um die wichtige Rolle oszillierender Gasblasen für die Reinigung von Deckschichten auf Membranen klären zu können.

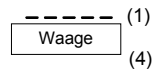
Bild 4-8 stellt Versuchsaufbau und -durchführung dar. Als Filtermedium kommen handelsübliche Labormembranscheiben (1) aus Cellulosemischester mit einem mittleren Porendurchmesser von $0,2\ \mu\text{m}$ zum Einsatz (Whatman ME24; 47 mm Durchmesser). Für die Reinwasserfiltration zum Einfahren der Membran (Schritt I), für das Auffiltrieren einer Deckschicht (Schritt III) und für das Abziehen von überständigem Wasser (Schritt VI) wird eine Laborfilternutsche (2) verwendet. Mit einer Laborwaage (4) wird die Membran im sauberen Zustand (Schritt II), mit auffiltrierter Deckschicht (Schritt IV) und nach der Reinigung (Schritt VII) mit der in Kapitel 5.2.2 beschriebenen Restfeuchte vermessen. Der Filterhalter ist aus zwei transparenten PVC-Rohren und einer Rohrverschraubung aufgebaut. Die Membranscheibe ist von beiden Seiten mit Edelstahlstreckgittern unterstützt und liegt zwischen den Teilen an der Verschraubung. Auf der Filtratseite ist mit Hilfe eines schwingungslosen Flansches eine Sonotrode in das Rohrstück eingedichtet. An dem Rohrstück der Filtratseite sind ein Drucksensor und ein Anschluss für die Rückspülvorrichtung (5) integriert. Auf der Feedseite wird ebenfalls der Druck gemessen, über eine Saugflasche und Vakuumpumpe ist es möglich, auf der Feedseite einen Unterdruck zur Unterstützung der Rückspülung zu erzeugen. Das Rückspülvolumen wird über eine Waage bestimmt. In Bild 4-9 lässt sich der Aufbau des Filterhalters aus transparenten PVC-Rohren (DN32) mit einem Innendurchmesser von 27,2 mm erkennen und das Edelstahlgitter zur Unterstützung der Membran während der Rückspülung. In Kapitel 4.3.2 wird das hier verwendete Ultraschallwandlersystem genauer vorgestellt.

Bei den Abmessungen der Rohre wurde darauf geachtet, dass der Abstand zwischen Sonotroden spitze und Membran einem Vielfachen der halben Wellenlänge entspricht. Bei dem verwendeten Schallwandler Hielscher UIW 800 spec mit 40 kHz entspricht die halbe Wellenlänge in Wasser 18,53 mm. Die Membran liegt im Abstand von 70 mm knapp unterhalb des vierten Amplitudenmaximums (74,1 mm). Das Rohrstück über der Membran hat eine Länge von 136 mm, so dass das obere Ende bei $11\ \lambda/2$ im elften Amplitudenmaximum endet.

- I. Einfahren, Reinwasserfluss und Abfiltrieren des Wasserüberstands für die Wägung
- III. Auffiltrieren der Deckschicht
- VI. Abfiltrieren des Wasserüberstands



- II. Wägung der feuchten, sauberen Membran
- IV. Wägung der Membran mit Deckschicht
- VII. Wägung der Membran nach der Reinigung



V. ultraschallunterstützte Rückspülung

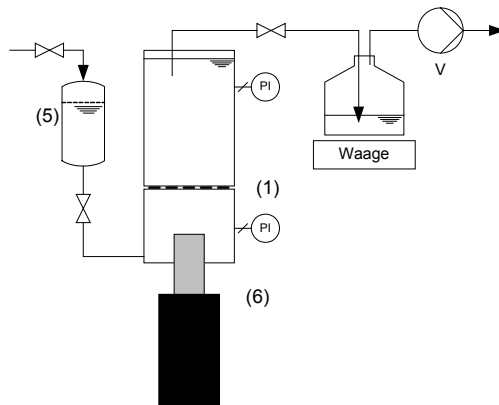


Bild 4-8: Testaufbau und -durchführung bei der ultraschallunterstützten Rückspülung im Labor; (1) Labormembranplättchen, (2) Vakuumsaugflasche, (3) Vakuumpumpe V, (4) Waage, (5) Rückspülbehälter, (6) Ultraschallwandler

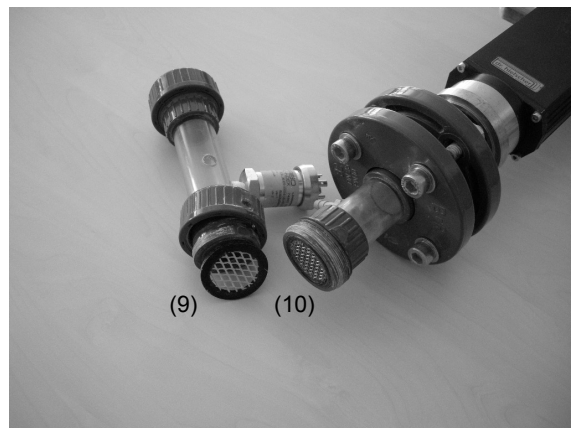
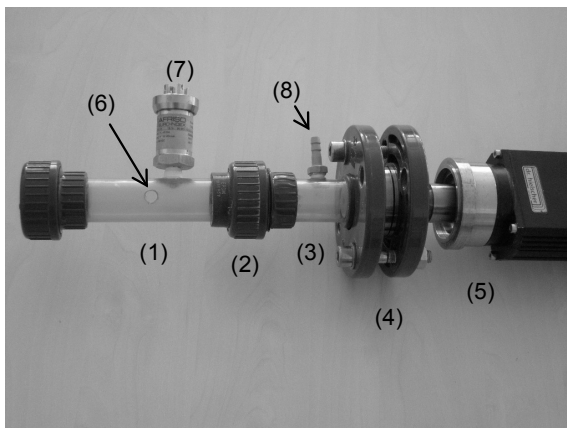


Bild 4-9: Testsystem zur Untersuchung der ultraschallunterstützten Rückspülung; (1) feedseitiges Rohrstück, (2) Schraubverbindung zum Einbau der Membran, (3) permeatseitiges Rohrstück, (4) schwingungsfreie, druckdichte Flanschverbindung, (5) Ultraschallwandler, (6) Feedseitiger Abgang und Anschluss für Vakuumsystem, (7) Drucksensor, (8) permeatseitiger Anschluss für druckbeaufschlagtes Rückspülfluid, (9) feedseitiges Streckgitter mit Dichtungsring zur Unterstützung der Membran während der Rückspülung, (10) permeatseitiges Streckgitter zum Einbau der Membran.

4.2.7 Testsystem zur Beschallung eines Kapillarmoduls

Mit diesem Versuchsaufbau sollten Untersuchungen zur ultraschallunterstützten Filtration an einem Membranmodul mit einer für technische Anwendungen relevanten Größe ermöglicht werden. Dazu wurde ein Kapillarmembranmodul mit einem Ultraschallsystem ausgestattet. Besondere Anforderungen an das Membransystem waren dabei eine gute Rückspülbarkeit, ein robustes Design und möglichst gut geschützte Membrankapillaren. Bei der Umsetzung eines Testsystems wurde der Ansatz verfolgt, eine möglichst gleichmäßige Beschallung der gesamten Membranfläche mit nur einem Leistungsultraschallwandler (vgl. Eingrenzung der Zielstellung Kap. 1.1) zu erreichen. Der Weg zu diesem Ansatz ist in Kapitel 5.3 näher beschrieben.

Basis für das Ultraschallmembranmodul bildet ein handelsübliches Kapillarmodul für den Inside-out-Betrieb der Firma Inge AG (dizzer 450) mit 4,5 m² aktiver Membranfläche (Anhang 1). Für die Schalleinkopplung wurde das Membranmodul modifiziert (Bild 4-10). Das Grundkonzept dieser Modifikation (vgl. Kapitel 5.3) besteht darin, das gesamte UF-Kapillarmodul in ein schwingungsfähiges Hüllrohr aus Edelstahl (5) zu stecken. Dieses Grundprinzip lässt sich in Bild 4-10 bzw. Bild 4-12 erkennen, wo »Ultraschallmodul« und Referenzmodul nebeneinander im Teststand zu sehen sind. Für eine gute Schwingungsfähigkeit muss das hierzu verwendete Edelstahlrohr (5) nahtlos sein und eine möglichst große Wandstärke aufweisen. Das verwendete Edelstahlrohr (5) hat eine Wandstärke von 4 mm, einen Innendurchmesser von 125 mm, eine Länge von $L_R = 713$ mm. Das beschallte Volumen beträgt somit 8,75 l. An beiden Enden ist ein Festflansch angeschweißt. Festflansch und Rohr sind aus dem Edelstahl mit der Werkstoffnummer 1.4541. In der Mitte ist ein Anschweißstück (6) mit einem Gewinde zur Ankopplung des Ultraschallwandlers (7) angebracht. Zum Abdichten des Edelstahlrohres wurden auf das PVC-U Gehäuserohr des Kapillarmembranmoduls eine Reduzierung mit Bundbuchse (3) und ein Losflansch (4) aufgesteckt und unterhalb des Permeatabzugs (2) verklebt. Das Gegenstück im unteren Bereich des Moduls wurde für eine Demontierbarkeit nur aufgesteckt und die Reduzierung mit einer Teflonpaste abgedichtet. Bei den ersten Versuchen wurde das Gehäusematerial des ursprünglichen Kapillarmembranmoduls im Bereich des Edelstahlmantelrohres gemäß Bild 4-10 entfernt, um eine unnötige Dämpfung des Schallfeldes zu vermeiden.

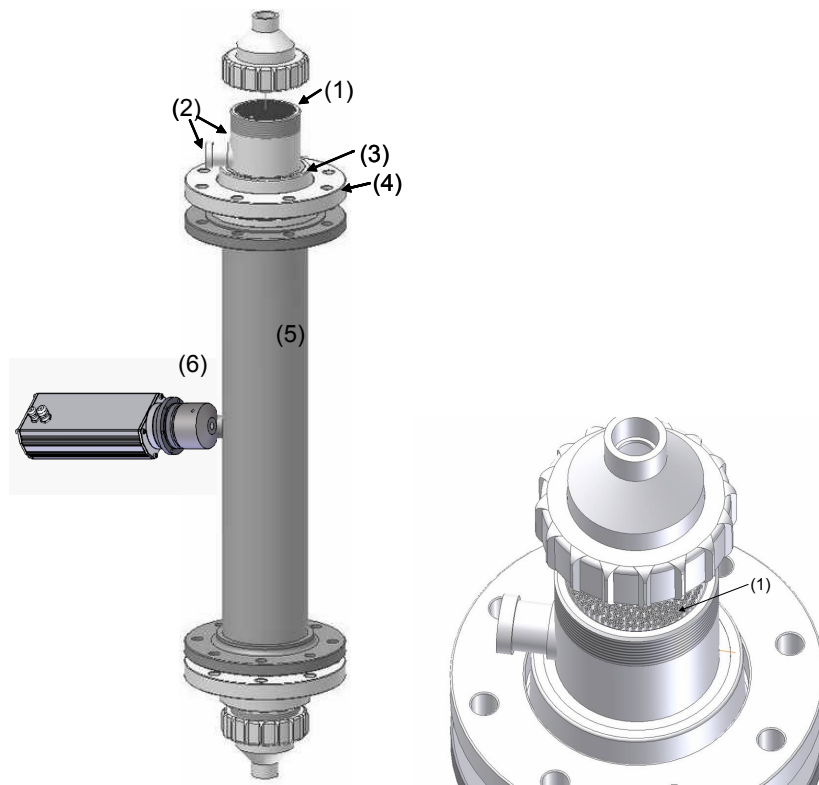


Bild 4-10: Aufbau des modifizierten Kapillarmoduls dizzer 450 der Firma Inge AG zur Einkopplung von Leistungsschall;
 (1) multibore® Kapillarmembranen,
 (2) PVC-U Rohr mit Permeatabzug oberhalb des beschallten Bereichs,
 (3) Bundbuchse und Reduzierung aufgeklebt,
 (4) Losflansch,
 (5) nahtloses Edelstahlrohr mit Festflansch,
 (6) Ankopplung des Ultraschallwandlers über aufgeschweißte Schraubverbindung,
 (7) Leistungsschallwandler.

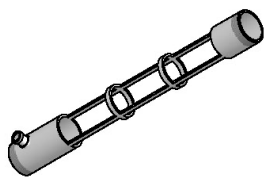
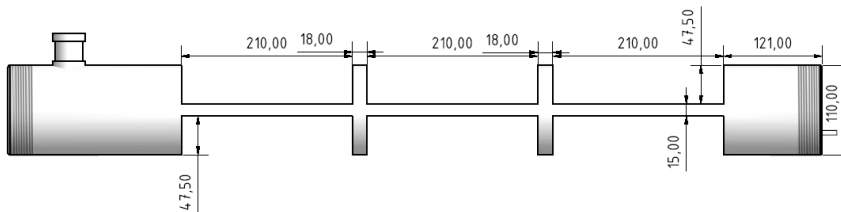


Bild 4-11: Zur Reduzierung unnötiger Dämpfung des Ultraschalleintrags durch das Gehäusematerial aufgeschnittenes Innenrohr des Kapillarmoduls dizzer 450.

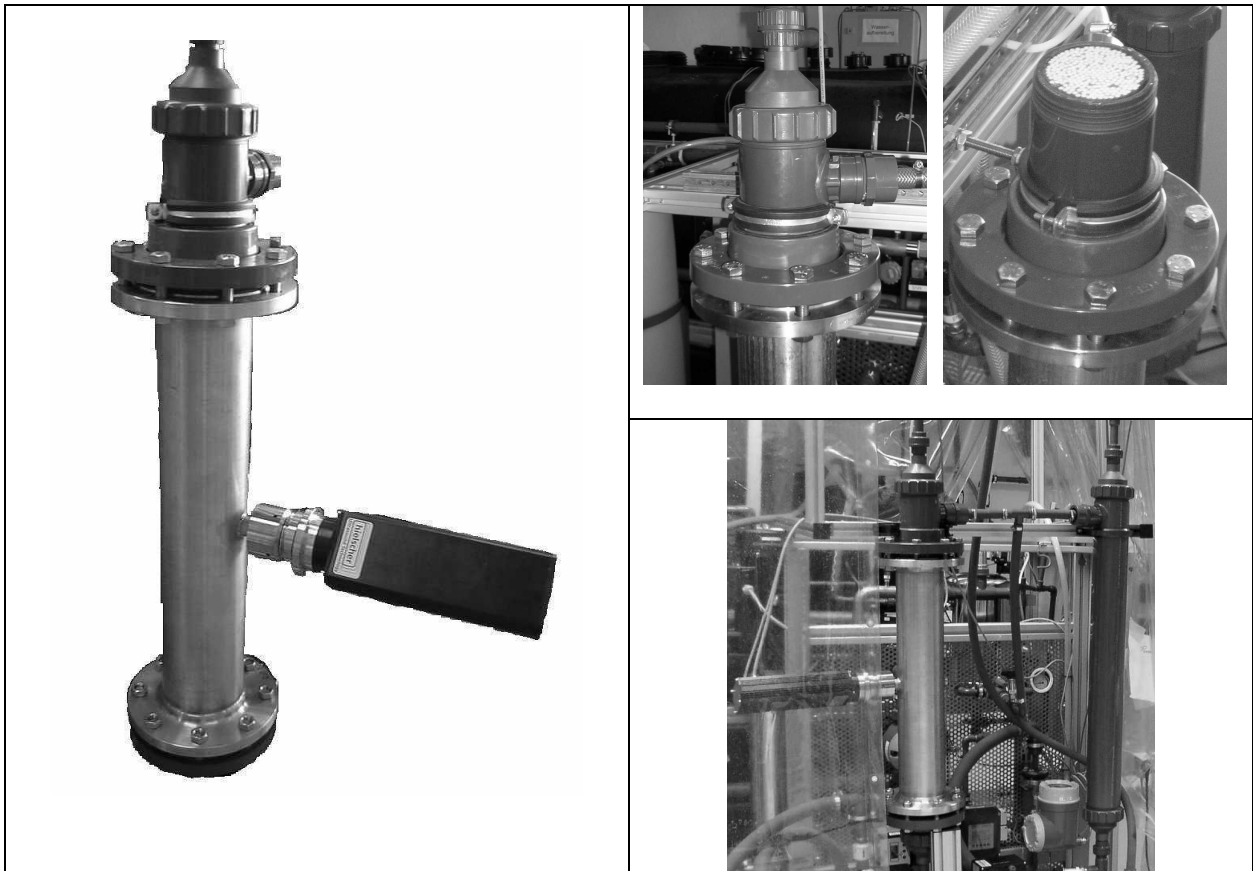


Bild 4-12: Ansicht des Ultraschallmembranmoduls mit Edelstahlhüllrohr und Ultraschallwandler UIP 1000; rechts der obere Teil des Kapillarmembranmoduls mit geschlossener und offener Endkappe; unten: »Ultraschallmodul« und Referenzmodul im Teststand parallel verbaut.

Die tatsächlichen schwingungstechnischen Eigenschaften dieses Systems werden in Kapitel 4.4 diskutiert. Die aktive Membranfläche gibt der Hersteller zu $A_M = 4,5 \text{ m}^2$ an. Die freie Querschnittsfläche zur Bestimmung der Überströmgeschwindigkeit wurde zu $A_{SK} = 11,13 \text{ cm}^2$ berechnet. Beide Werte mussten nach der Entnahme oder Verkapselung einzelner Multibore® Membranen entsprechend angepasst werden.

4.2.8 Messgrößen und abgeleitete Größen

Messgrößen

Die Anlagenfließbilder zeigen, welche Werte direkt messtechnisch erfasst werden konnten. Direkt messtechnisch zugänglich sind die Temperatur, Druck und Volumenstromwerte. Im Testsystem für die Kapillarmembranmodule (Kap. 4.2.4) ist an den parallelen Membranmodulen jeweils nur auf einer Seite ein magnetisch induktiver Durchflussmesser installiert. Dadurch kann bei einer Rückspülung in Richtung des Konzentratabgangs (bottom-up), der Rückspülvolumenstrom nicht korrekt erfasst werden.

Abgeleitete Größen

Nicht direkt messbare Größen werden von der Software zur Messdatenerfassung berechnet und aufgezeichnet.

Die Querstromgeschwindigkeit v_{cf} entspricht der mittleren Querstromgeschwindigkeit im freien Strömungskanal über der Membran am Ausgang der Testzelle. Sie wird aus dem Messwert für den Konzentratvolumenstrom und der Querschnittsfläche des freien Strömungskanals A_{SK} über der Membran gebildet.

$$v_{cf} = \frac{\dot{V}_K}{A_{SK}} \quad \text{Glg. 4-1}$$

Der Flux v_P (spezifischen Permeatfluss) wird aus der Messung des Permeatvolumenstroms und der aktiven Membranfläche A_M gebildet.

$$v_P = \frac{\dot{V}_P}{A_M} \quad \text{Glg. 4-2}$$

Aufgrund der relativ genauen Temperaturregelung wurde keine Temperaturkorrektur bei der Angabe der Durchflusswerte durchgeführt. Sofern nicht anders angegeben finden die Filtrationsexperimente bei einer Wassertemperatur von 20°C statt.

In allen Situationen, in denen der Rückspülvolumenstrom v_{RS} messtechnisch korrekt erfasst werden konnte, wurde er auch nach Glg. 4-2 gebildet. Bei einigen Versuchen in Kapitel 3.3 ist eine Rückspülung in Richtung des Konzentratausgangs im Reinigungsvorgang eingebunden. Dennoch sind sowohl das gesamte Rückspülvolumen $V_{RS,tot}$, als auch der maximale Rückspülvolumenstrom $v_{RS,max}$ angegeben. In diesen Fällen sind die Werte rechnerisch mit Hilfe der gemessenen Druckdifferenz bestimmt. Für die Bestimmung der Rückspülvolumenströme wurde eine lineare Beziehung von transmembraner Druckdifferenz und Rückspülvolumenstrom angenommen. Die Steigung dieser Geradengleichung wurde aus den jeweiligen Messreihen ermittelt. Für die Bestimmung des gesamten Rückspülvolumens $V_{RS,tot}$ wurden gemäß den Druckverhältnissen alle Rückspülvorgänge eines Reinigungsvorgangs erfasst und aufintegriert.

Die jeweiligen Bezugsflächen A_{SK} und A_M sind bei den entsprechenden Testzellen bzw. Membranmodulgeometrien angegeben.

Die transmembrane Druckdifferenz p_{tm} wird aus dem Mittelwert der Messwerte für den Druck vor p_F und hinter der Membran p_K abzüglich des Drucks im Permeat p_P gebildet.

$$\Delta p_{tm} = \frac{(p_F + p_K)}{2} - p_P \quad \text{Glg. 4-3}$$

Die hydraulische Leistung wird aus den Messwerten für die Volumenströme und den Druck vor der Membran berechnet.

$$P_{hydr} = (\dot{V}_P + \dot{V}_K) \cdot p_F \quad \text{Glg. 4-4}$$

Eine weitere abgeleitete Größe bei der Auswertung der Messungen ist der spezifische Energiebedarf e . Er berechnet sich aus der Messung der Volumenströme (\dot{V}_K, \dot{V}_P), der Messung des Drucks vor der Membran p_F und der elektrischen Leistungsaufnahme des Ultraschallgeräts P_{US} .

$$e = \frac{(\dot{V}_p + \dot{V}_k) \cdot p_F + P_{US}}{\dot{V}_p} \quad \text{Glg. 4-5}$$

Bei der Berechnung des spezifischen Energiebedarfs ist zu beachten, dass es sich hier um einen Momentanwert handelt. Es werden verschiedene Leistungsformen miteinander verrechnet. Während beim Ultraschall die elektrische Leistung einfließt, wird für die hydraulischen Bedingungen Pumpenwirkungsgrad und Motorenwirkungsgrad nicht berücksichtigt, sondern die tatsächliche hydraulische Leistung für die Berechnung genutzt. Die gesamte Ultraschallleistung, die in das beschallte Medium eingetragen wurde, ließe sich kalorimetrisch bestimmen. Der für die Reinigung relevante Anteil der tatsächlichen Nutzleistung ist nicht bekannt. Für den Vergleich und die Bewertung der Effizienz der Beschallungsmethode ist es daher angemessen, mit der elektrischen Leistung zu rechnen.

Bei der Betrachtung von Filtrationsvorgängen mit periodischen Reinigungsvorgängen ist die Bestimmung des Wertes e als Momentanwert wenig hilfreich. Zur Bewertung dieser Betriebsweise ist ein mittlerer spezifischer Energieeintrag \bar{e} notwendig. Er wird gebildet aus der aufgewendeten Energie und dem Filtratvolumen, indem die Leistungswerte und die Volumenströme aufintegriert werden. So kann auch das tatsächliche Filtratvolumen abzüglich des Volumens für Rückspülvorgänge eingesetzt werden.

$$\bar{e} = \frac{\int (\dot{V}_p + \dot{V}_k) \cdot p_F dt + W_{US}}{V_p} \quad \text{Glg. 4-6}$$

Zur allgemeinen Definition der Bewertungsparameter (Kap. 4.5) wird der auf die transmembrane Druckdifferenz bezogene Flux als abgeleitete Größe eingeführt.

$$q = \frac{v_p}{\Delta p_{tm}} \quad \text{Glg. 4-7}$$

Weitere Größen, die aus den Messergebnissen abgeleitet wurden, sind die Bewertungsparameter, die den Einsatz des Ultraschalls oder die Güte einzelner Reinigungsvorgänge bewerten sollen. In Kapitel 4.5 werden die verwendeten Bewertungsparameter eingeführt.

4.3 Verwendete Ultraschallsysteme

Im Folgenden werden die verwendeten Ultraschallwandlersysteme kurz vorgestellt, mit denen Versuche durchgeführt wurden. Bei den Schwingplatten und dem Ultraschallbad handelt es sich um übliche Verbundschwinger. Sie sind auf ein Edelstahlblech geklebt, das die Ultraschallschwingung in die Flüssigkeit überträgt. Es kamen zwei leistungsstarke Ultraschallprozessoren zum Einsatz: Ein Stabschwinger mit einer Nennfrequenz von 40 kHz und einer mit 20 kHz. Ein weiteres System wurde bei den orientierenden Versuchen bei der Vakuumfiltration eingesetzt. Es handelt sich um einen Tauchschwinger mit einer Frequenz von 1 MHz. Der Stabschwinger mit 40 kHz kam besonders häufig zum Einsatz. Dieses Ultraschallsystem wurde sowohl bei der direkten Körperschallanregung der Bodenplatte in Testzelle II verwendet, als auch zur Schalleinkopplung bei den Laborversuchen zur ultraschallunterstützten Rückspülung und zur Anregung des Edelstahlhüllrohres für die Filtrationsexperimente mit den Kapillarmembranmodulen.

4.3.1 Schwingplatten mit Ultraschallwandlern

Die Schwingplatten mit Ultraschallwandlern werden zur Beschallung des Strömungskanals in der Testzelle I (siehe Bild 4-3 Komponente 3) verwendet. Eine einzelne dieser Ultraschallwandlerplatten kommt bei Visualisierungsversuchen von Kavitationsfeldern (Kap. 4.4.3) zum Einsatz.

Es wurden Schwingplatten von der Firma Elma Hans Schmidbauer GmbH & Co. KG in Singen speziell für diese Aufgabe gefertigt (SP135; W35-130/3, Bild 4-13). Es handelt sich um zwei Edelstahlplatten mit 3 mm Stärke und den Abmessungen 120x360 mm². Auf jede dieser Platten sind drei Verbundschwinger aufgeklebt. Eine einzelne Platte mit Leistungselektronik hat eine elektrische Leistungsaufnahme von maximal 150 W. Die Wandler lassen sich mit 35 kHz und 130 kHz ansteuern.

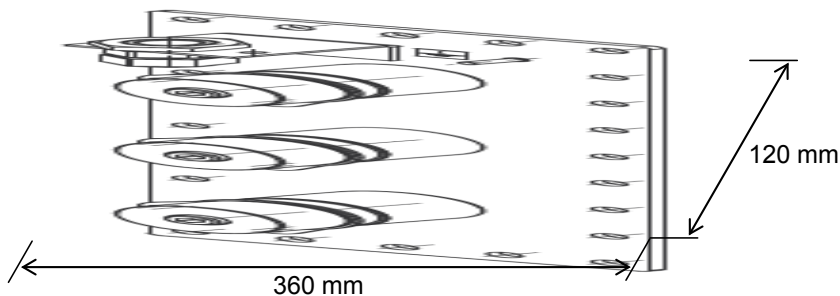


Bild 4-13: Einzelne Schwingerplatte mit drei Verbundschwingern für jeweils 50 W; ansteuerbar bei 35 und 130 kHz.

An der Steuerung des Hochfrequenzwandlers lässt sich die Intensität der Schallabstrahlung einstellen. Es lassen sich die beiden Frequenzen und drei verschiedene Beschallungsmodi wählen. Bei dem Beschallungsmodus »normal« erfolgt der Schalleintrag kontinuierlich bei der eingestellten Frequenz und Intensität. Im Modus »sweep« findet eine Modulation der abgestrahlten Frequenz statt, was ein leichtes Verschieben der Maxima und Minima in einem stehenden Schallfeld bewirkt. Die Kavitationsstrukturen und Bläschen bewegen sich im Schallfeld. Ein statisches stehendes Kavitationsfeld wird durch diese Einstellung verschmiert. Die Reinigungswirkung soll durch diese Funktion vergleichmäßigt werden, ohne das Reinigungsgut bewegen zu müssen. Im Beschallungsmodus »degas« erfolgt die Schallabstrahlung gepulst, etwa im Sekundenrhythmus wechseln sich Stillstand und Beschallung ab. Üblicherweise wird diese Funktion zur Entgasung des Reinigungsfluids verwendet. In den Pausen können Gasblasen, die im stehenden Schallfeld gemäß der primären Bjerkneskraft (vgl. Kap. 2.3.3) festgehalten werden, aufsteigen.

Bei maximaler Amplitude beträgt der auf die aktive Membranfläche bezogene Schalleintrag 18 kW/m². Dieser Wert ist für die Übertragung des Ansatzes auf größere Membranflächen viel zu hoch. Die Grundidee, die mit der Konstruktion von Testzelle I verfolgt wurde, war die seitliche Beschallung eines Strömungskanals. Dieser Strömungskanal soll den durchströmten Zwischenraum beispielsweise zwischen zwei Kissen eines Membrankissenmoduls nachbilden. Durch die seitliche Beschallung lässt sich im Gegensatz zur häufig beschriebenen vis-a-vis-Anordnung die auf die Membranfläche bezogene Schalleistung reduzieren. Würde man für das gleiche Ultraschallsystem die gesamte schallabstrahlende Fläche nutzen, indem fünf Flachmembranen angeordnet werden, ergäben sich vier durchströmter Zwischenräume (von etwa 15 mm Höhe), die beschallt werden. Bei sonst gleichen Abmessungen der Membran würde sich damit gegenüber der Testzelle I die achtfache Membranfläche ergeben und sich damit der Wert für den flächenbezogenen Schalleistung auf etwa 2 kW/m² verringern.

Eine Visualisierung des Kavitationsfeldes, das mit diesen Wandlerplatten erzeugt werden kann, findet sich in Kapitel 4.4.3.

4.3.2 Ultraschallindustrieprozessor 40 kHz

Für die direkte Körperschallanregung der schwingenden Bodenplatte in der Testzelle II (Kap. 4.2.3 und 5.1.3) kommt ein Leistungsultraschallprozessor der Firma Hielscher Ultrasonics GmbH in Teltow mit der Typenbezeichnung UIW 800 spec zum Einsatz. Es handelt sich um einen Leistungsultraschallwandler mit Schnelletransformator (Sonotrode) mit einer Frequenz von 40 kHz, der ursprünglich für das Ultraschallschweißen konzipiert ist. Die maximale elektrische Leistungsaufnahme beträgt 800 W.

Die verwendete Sonotrodenspitze hat einen Durchmesser von 30 mm. Die Bodenplatte der Testzelle II ist mit einer Gewindeschraube fest mit der Sonotrodenspitze verbunden. Zwischen dem Titanhorn direkt am Schallwandler und der Bodenplatte kann ein sogenannter Gegenbooster eingesetzt werden (Bild 4-14). Es handelt sich um einen Schnelltransformator, der die Amplitude und damit die abgestrahlte Leistungsdichte verringert. Der Gegenbooster ermöglicht insgesamt eine größere Leistungsabgabe auf die größere schwingende Fläche der Bodenplatte (Komponente (3a) in Bild 4-4).

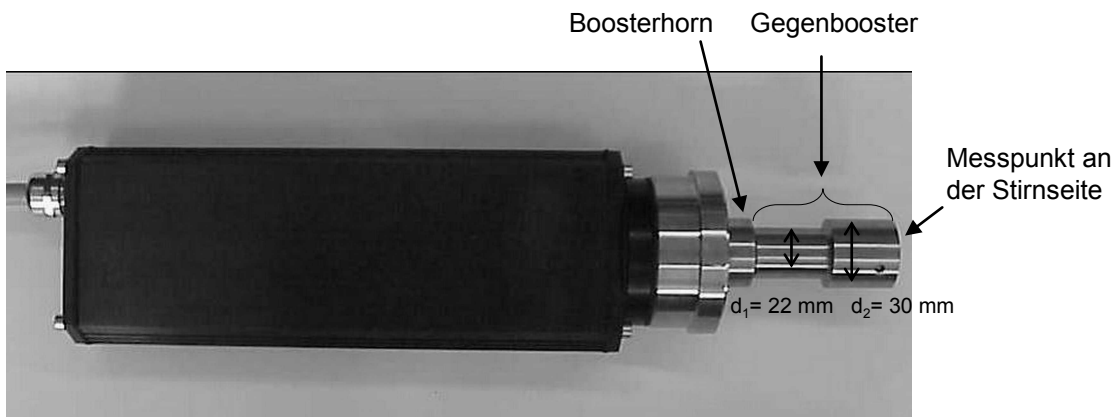


Bild 4-14: Leistungsultraschallwandler UIW 800 spec mit Gegenbooster

Die charakteristischen Schwingungseigenschaften des Ultraschallsystems aus Leistungsultraschallwandler und schwingender Bodenplatte kann im trockenen Zustand durch die claudischen Schwingungsfiguren visualisiert werden (Bild 4-15). Die Partikel sammeln sich in den Knoten der sich ausbildenden Schwingungsstruktur. Für Ausbildung dieser Schwingungsmuster ist eine starke Verbindung zwischen den Sintermetallplättchen für den Abzug des Permeats und der Bodenplatte notwendig. Bei einer schlechten schwingungstechnischen Ankopplung (Bild 4-16, links, mittlere Sinterplatte) bilden sich die charakteristischen Muster nicht aus.

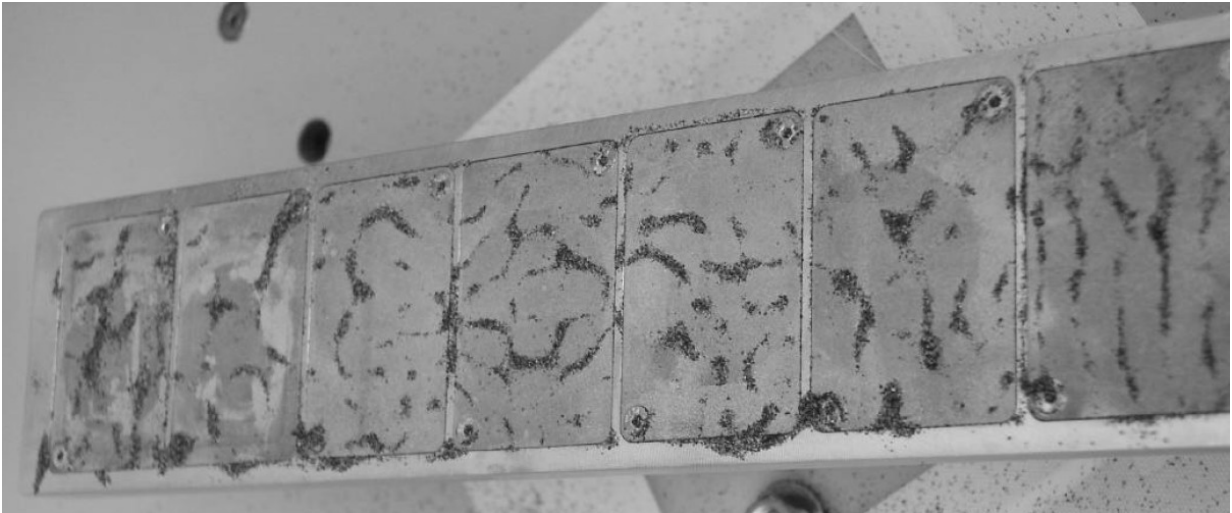
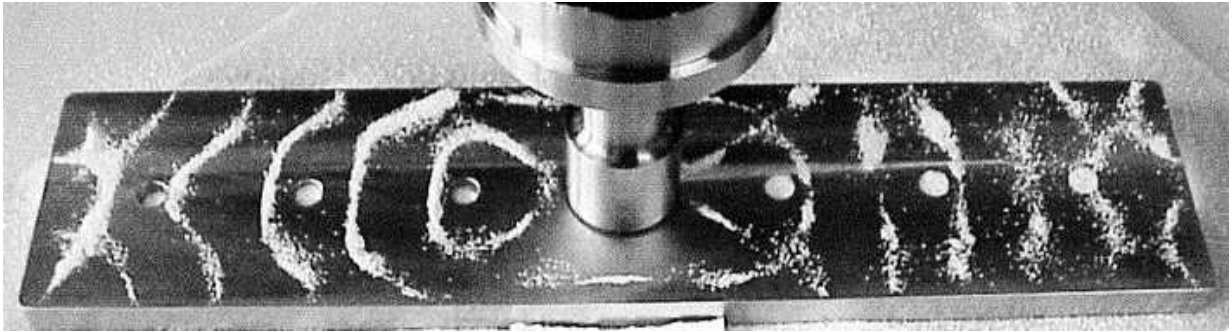


Bild 4-15: Visualisierung der Schwingungsmuster (Cladnische Figuren) a) auf der Rückseite der Bodenplatte mit weißen Sandpartikeln (durchgeführt von der Firma Hielscher Ultrasonics GmbH) b) auf der Vorderseite mit angeschraubten Sintermetallplatten als Permeatabzug mit schwarzen Sandpartikeln; Messung bei $f_{US} = 40,6$ kHz.

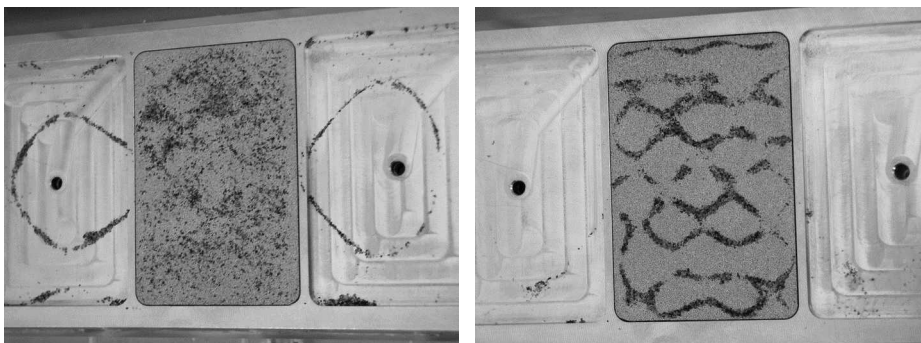


Bild 4-16: Schlechte (links) und gute (rechts) schwingungstechnische Ankopplung der Sintermetallplatte in den Permeatabzugsfeldern.

Tabelle 4-3 zeigt die elektrische Leistungsaufnahme der schwingenden Bodenplatte im eingebauten Zustand in die mit Wasser gefüllte Testzelle I bei 1 bar Überdruck. Die Vermessung der schwingenden Bodenplatte mit einem Laserscanning-Vibrometer durch die Firma Hielscher Ultrasonics GmbH an der Sonotrodenspitze (markierter Messpunkt in Bild 4-14) des UIW 800 spec hat eine Schwingungsamplitude von $1,9 \mu\text{m}$ bei maximaler Amplitudeneinstellung am Gerät

ergeben. Es ist zu erwarten, dass die resultierende Amplitude auf der Oberfläche der Permeatabzüge und der schwingenden Bodenplatte deutlich geringer ist.

Tabelle 4-3: Elektrische Leistungsaufnahme des Ultraschallwandlers mit schwingender Bodenplatte in der mit Wasser gefüllten Testzelle II bei 1 bar Überdruck.

Geräteeinstellung	Elektrische Leistung in Testzelle II [W]
20%	68
40%	89
60%	114
80%	139
100%	181

Sonotrodensystem mit schwingungsfreier Flanschverbindung

In den Versuchsreihen in Kapitel 5.2.2 zur ultraschallunterstützten Rückspülung an dem Laboraufbau (Kap. 4.2.6) konnte der gleiche Leistungsultraschallprozessor genutzt werden. Das Ultraschallsystem unterscheidet sich lediglich durch die Verwendung einer speziellen Sonotrode (Bild 4-17). Die Sonotrode hat in einem Schwingungsknoten einen Absatz, der es erlaubt, das System druckdicht mit einem Flansch in den Versuchsaufbau einzukoppeln (Bild 4-9; (4)).

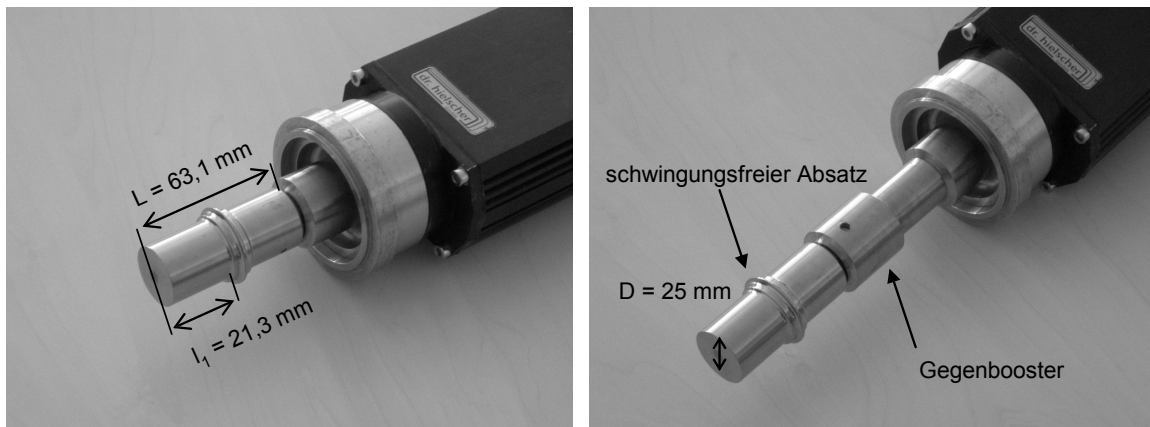


Bild 4-17: Leistungsultraschallwandler UIW 800 spec mit schwingungsfreiem Absatz für eine druckdichte Flanschverbindung mit und ohne Gegenbooster

Die Schwingungsamplitude der Sonotrode für die druckdichte Einkopplung in den Versuchsraum über eine Flanschverbindung (Bild 4-17) wurde mit und ohne Gegenbooster durch Vibrometrie vermessen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4-4 zusammengefasst. Die Leerlaufleistung bei Betrieb des Ultraschallwandlers in Luft unterscheidet sich mit und ohne Gegenbooster nicht. Die Amplitude wird durch den Gegenbooster etwa halbiert, was sich bei einem direkten Schalleintrag in die Flüssigkeit auch etwa durch eine Halbierung der aufgenommenen Leistung bemerkbar macht.

Tabelle 4-4: Vibrometriemessung an der Sonotrodenspitze des UIW 800 spec durch die Firma Hielscher Ultrasonics GmbH bei Verwendung des schwingungsfreien Flansches mit und ohne Gegenbooster.

Messpunkt an Sonotrodenspitze ohne Gegenbooster				
Geräteeinstellung	P in Luft [W]	P in Wasser [W]	Amplitude [μm]	Resonanzfrequenz [kHz]
20%	36	74	2,07	40,9
40%	38,5	84	2,32	
60%	43	106	2,84	
80%	47	138	3,41	
100%	54	174	3,98	40,4
Messpunkt an Sonotrodenspitze mit Gegenbooster				
Geräteeinstellung	P in Luft [W]	P in Wasser [W]	Amplitude [μm]	Resonanzfrequenz [kHz]
20%	36,4	46	1,1	40,6
40%	38	55	1,29	
60%	43	63	1,55	
80%	47,3	74	1,86	
100%	53,2	88,7	2,13	40,3

Untersuchung weiterer Ankopplungsmethoden zur direkten schwingungstechnischen Anregung von Keramikmembranen

Die direkte Körperschallanregung der Membran verspricht aus der Sicht der Filtration und Reinigung ein sehr interessanter Ansatz zu sein. Die Ankopplungsmethoden der Keramikmembran wie sie in Kapitel 4.2.3 (Bild 4-5) gezeigt wird, sind sehr aufwändig und können durch die Vorspannung zur Zerstörung des spröden Membranmaterials führen (vgl. Kap 5.1.4). Daher wurden weitere Ankopplungsmethoden zur direkten Körperschallanregung der Keramikmembran getestet. Bei der Firma Hielscher wurden Klebeverbindungen zwischen Membran und Sonotrode an einer ITN-Nanopore Flachmembranplatte und einer ITN-Nanopore Mehrkanalmembran getestet. Die Sonotrode eines speziellen Leistungsultraschallwandlers wurde mittig mit einer keramischen Flachmembran mittels eines Spezialklebers verbunden. Bei einer Amplitude von $29 \mu\text{m}$ auf der Membranoberfläche an der Klebestelle reißt die Klebeverbindung (Bild 4-18).

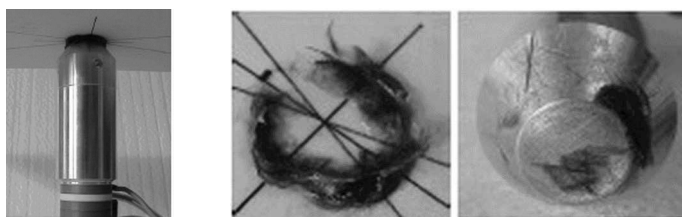


Bild 4-18: Gerissene Klebeverbindung nach Belastung mit $29 \mu\text{m}$ Schwingungsamplitude.

Mit der Methode des Aufklebens eines Schallwandlers an die Keramikmembran konnten sehr hohe Amplituden auf die Keramikplatte übertragen werden, ohne dass die Keramikmembran Schaden nimmt. Bild 4-19 zeigt die claudnischen Schwingungsmuster mit Sand und die Lage der Messpunkte für die Vibrometriemessungen. Der Schallwandler befindet sich unter Messpunkt 1.

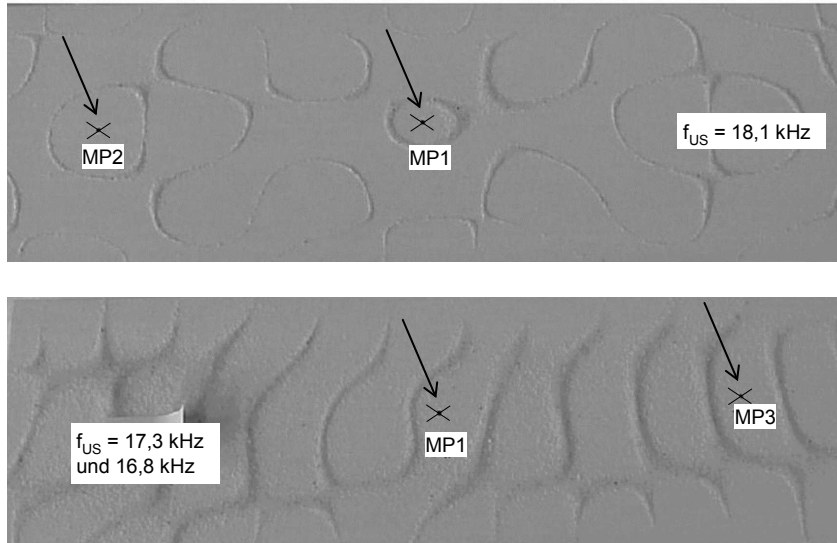


Bild 4-19: Cladnische Schwingungsfiguren und Ort der Messpunkte auf der zur Schwingung angeregten Keramikmembranplatte; Keramikplatte 35,5 cm x 111 cm x 0,64 cm.

Am Messpunkt 1 direkt oberhalb der Verbindungsstelle mit dem Schallwandler konnten Amplituden bis 43 μm bei 18,1 kHz übertragen werden. Die Amplitude wurde bei den Resonanzfrequenzen der Keramikplatte bei 18,1 kHz, 17,3 kHz und 16,8 kHz jeweils bei unterschiedlichen Geräteeinstellung bezüglich der abgegebenen Leistung vermessen (vgl. Tabelle 4-5). Die größte Leistungsaufnahme in dieser Messung wurde mit 98 W erreicht, als ein Teil der Keramikmembranplatte in einem Wasserbad eingetaucht wurde. Die benetzte Membran ändert ihre Schwingungseigenschaften. Bei einer Amplitude von 6,5 μm in Luft, löst sich die Klebeverbindung erneut.

Tabelle 4-5: Vibrometriemessung mit einer aufgeklebten Keramikplatte mit einem speziellen Leistungsschallwandler durch die Firma Hielscher Ultrasonics GmbH aus Bild 4-19.

Amplitudenmessung bei 18,1 kHz			
	Amplitude am Messpunkt 1 [μm]	Amplitude am Messpunkt 2 [μm]	Leistung in Luft [W]
	2,9	13	38
		22	45
	43	29	62
Danach Klebestelle angebrochen.			
Amplitudenmessung bei 17,3 kHz			
	Amplitude am Messpunkt 1 [μm]	Amplitude am Messpunkt 3 [μm]	Leistung in Luft [W]
	3,6	4,2	35
	6	6,6	39
	7,9	9,2	44
Teilweise eingetaucht in Wasser	7,7	4,7	98
Amplitudenmessung bei 16,8 kHz			
Nach Belastung in Wasser	6,5	11	2,13
Danach Klebestelle gebrochen.			

Analog zu diesen Versuchen wurde bei der Firma Hielscher Ultrasonics GmbH eine keramische Mehrkanalrohrmembran an eine spezielle Sonotrode angeklebt und bezüglich der Leistungsauf-

nahme des Ultraschallschwingers und der Schwingungsamplitude an verschiedenen Messpunkten vermessen (Bild 4-20).

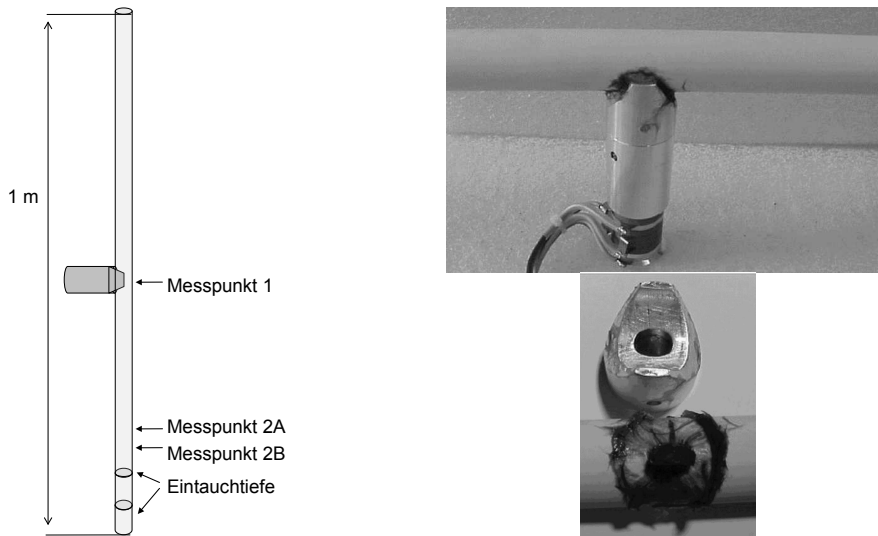


Bild 4-20: Mehrkanalrohrmembran $16\ \mu\text{m}$ und $200\ \text{W}$ gebrochen.

Es wurde die elektrische Leistungsaufnahme der Ultraschallwandler bei unterschiedlichen Eintauchtiefen des Keramikmembranrohres und die Amplitude an den in Bild 4-20 gezeigten Messpunkten gemessen. Tabelle 4-6 zeigt die Ergebnisse. Bei der Amplitudenmessung 1 wurde die Keramikmembran zunächst an Luft vermessen und dann $110\ \text{mm}$ in Wasser eingetaucht. Beim Eintauchen verschiebt sich das Maximum der Amplitude von Messpunkt 2A zu Messpunkt 2B. Es wurde eine Leistungsaufnahme des Ultraschallwandlers von $72\ \text{W}$ bei einer Amplitude am Messpunkt 2B von $4,4\ \mu\text{m}$ gemessen. Bei einer Körperschallanregung der Keramikmembran in Luft konnten $25\ \mu\text{m}$ Schwingungsamplitude gemessen werden (Amplitudenmessung 2). In einem weiteren Schritt sollte eine hohe Leistungsabgabe an das Keramikrohr untersucht werden (Leistungsmessung). Dazu wurden $2\ \text{cm}$ am Ende der Keramikmembran in Wasser eingetaucht. Bei einer Leistungsaufnahme von $200\ \text{W}$ des Ultraschallwandlers, was im Messpunkt 1 einer Schwingungsamplitude von $16\ \mu\text{m}$ entspricht, hat sich nach $5\ \text{s}$ die Klebestelle gelöst.

Tabelle 4-6: Vibrometriemessung mit einer aufgeklebten keramischen Mehrkanalmembran mit einem speziellen Leistungsultraschallwandler durch die Fa. Hielscher Ultrasonics GmbH aus Bild 4-20; Länge der Mehrkanalmembran 1 m; Durchmesser 24,88 mm; 7 Kanäle mit je 7 mm Durchmesser; $f_{US} = 16,6$ kHz; auf die Lauflänge von 1 m 18 Knoten des stehenden Wellenfeldes.

Amplitudenmessung 1		
Amplitude am Messpunkt 1 [μm]	Amplitude am Messpunkt 2A [μm]	Leistung in Luft [W]
4	4	36
Bei einer Eintauchtiefe von ca. 110 mm in Wasser wandert das Amplitudenmaximum von dem Messpunkt 2A zu 2B		
Amplitude am Messpunkt 1 [μm]	Amplitude am Messpunkt 2B [μm]	Leistung [W]
8,8	4,4	72

Amplitudenmessung 2		Leistungsmessung	
Amplitude am Messpunkt 1 [μm]	Leistung in Luft [W]	Amplitude am Messpunkt 1 [μm]	Leistung (2 cm in Wasser eingetaucht) [W]
4,3	37,5	11,5	113
6,8	38	15	170
8,8	41	16	200
11,5	44	Nach 5 s bei 200 W Klebestelle gerissen.	
15	50		
18,6	59		
21,8	72		
25	90		

Es konnten hohe Schwingungsamplituden auf die Keramikmembranen übertragen werden, ohne dass die Keramikmembran dabei beschädigt wurde. Trotz der guten Schwingungsfähigkeit und der interessanten Effekte auf die Filtration konnte für direkte Körperschallanregung von Keramikmembranen die Schalleinkopplung mit den Ansätzen des Klebens und des Verspannens nicht befriedigend gelöst werden.

4.3.3 Ultraschallindustrieprozessor 20 kHz

Zur Anregung des Edelstahlhüllrohres des Kapillarmembranmoduls (Kap. 4.2.7) kamen für alle Versuche mit natürlichem Oberflächenwasser (Kap. 5.4.1) der Ultraschallindustrieprozessor der Firma Hielscher Ultrasonics GmbH UIP 1000 zum Einsatz. Das Gerät hat eine Nennfrequenz von 20 kHz \pm 1 kHz und eine Nennleistung von 1000 W. Der Wirkungsgrad wird vom Hersteller mit >85% angegeben. Die maximale Amplitude beträgt ca. 125 μm (die Hersteller geben gerne die doppelte Amplitude peak zu peak von 250 μm an). Der Ultraschallwandler UIP 1000 wurde mit einem Horn mit 80 mm Durchmesser direkt mit dem Edelstahlhüllrohr des Kapillarmembranmoduls verschraubt.

Zur Charakterisierung der Schwingungseigenschaften des »Ultraschallmoduls« wurde von der Firma Hielscher Ultrasonics GmbH die Leistungsaufnahme des Ultraschallwandlers bei Beschallung des Edelstahlhüllrohres im leeren und wassergefüllten Zustand bei unterschiedlichem Überdruck vermessen. Das wassergefüllte Hüllrohr wurde über eine Hausdruckleitung jeweils mit

verschiedenem Überdruck beaufschlagt. Für jede Druckstufe wurde das System bei unterschiedlichen Anregungsamplituden vermessen (Bild 4-21). Bei einer Geräteeinstellung für die Anregungsamplitude größer 60%, steigt die Leistungsaufnahme des Ultraschallwandlers mit steigendem Druck zunächst an. Wird der Druck weiter erhöht, bricht die Leistungsaufnahme ein. Gleichzeitig lässt sich akustisch eine Abnahme des typischen Kavitationsgeräuschs wahrnehmen. Bei höherem Überdruck im System wird die Schwelle für eine Blasenoszillation mit gerichteter Diffusion und einem Anschwellen der Blasengröße bis zu Kollapsgröße nicht mehr erreicht (vgl. Kap. 2.3.1). Die Kavitationsaktivität in der beschallten Flüssigkeit nimmt ab, damit dissipiert weniger Energie in der Flüssigkeit. Die Leistungsaufnahme des beschallten Volumens wird geringer. Für die Praxis der ultraschallunterstützten Filtration ist dieses Verhalten wichtig, da auf der Filtratseite, auf der der Schalleintrag erfolgt, für eine gleichmäßige Beschallung und eine Schallweiterleitung zur Feedseite in den Membranen Kavitationsaktivität vermieden werden soll. Eine Kavitationsaktivität in diesem Bereich würde die Schalldruckamplitude verringern (Energiedissipation) und die Bläschen durch Reflexion und Streuung eine Weiterleitung der Schallwelle verschlechtern. Der grau hinterlegte Bereich in Bild 4-21 ist somit günstig für den Betrieb der ultraschallunterstützten Rückspülung.

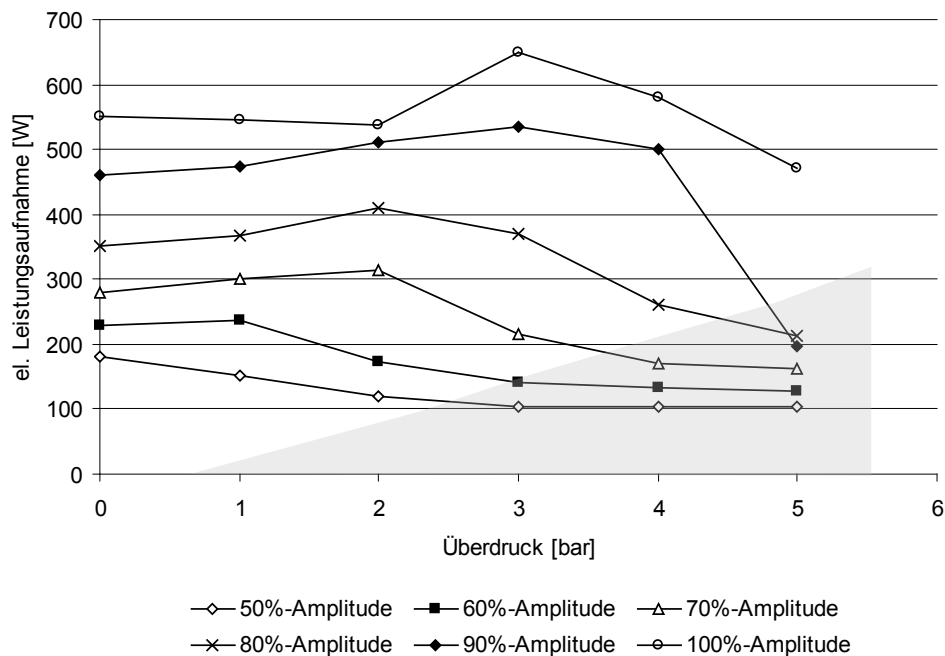


Bild 4-21: Elektrische Leistungsaufnahme bei Beschallung des Edelstahlhüllrohres mit UIP 1000 aufgetragen über den Überdruck im Rohr bei verschiedenen Amplitudeneinstellungen am Gerät. Grau hinterlegt ist der Bereich, bei der die Kavitation stark unterdrückt wird. Messung von Firma Hielscher Ultrasonics GmbH.

4.3.4 Ultraschallreinigungsgerät

Bei den orientierenden Versuchen mit dem Testaufbau 4.2.5 kommt ein Ultraschallreinigungsgerät der Firma Bandelin electronic GmbH & Co. KG, Berlin zum Einsatz. Aus der Baureihe Sonorex Super wurde das Laborultraschallbad RK 510 H für die Reinigungsversuche verwendet. Die Wanne des Ultraschallgeräts hat die Abmessungen 300 mm × 240 mm × 150 mm (L × B × T). Die Arbeitsfüllmenge ist 6,6 l. Das Gerät hat eine Betriebsfrequenz von 35 kHz. Die Beschallung

erfolgt über vier Blei-Zirkonat-Titanat Breitstrahl-Verbundschwinger. Die maximale Ultraschalleistung beträgt 640 W.

4.3.5 Megaschalltauschwinger

Für Reinigungsanwendungen im Bereich der Halbleiterindustrie bei der Waferproduktion, sowie zur Reinigung von Mikroteilen und Mikrosystemen kommen häufig Megaschallreinigungsgeräte zum Einsatz. Ihre Vorteile sollen in einer besonders sanften Reinigung, durch weniger heftig kollabierende Kavitationsblasen (vgl. Kap. 2.3.6) bestehen. Aufgrund der hohen Frequenz sollen besonders kleine Partikel von Substraten gelöst werden. Die Eigenschaften einer sanften Reinigung von nanostrukturierten Oberflächen und die Reinigung von sehr kleinen Partikeln sind für den Einsatz bei der Membranfiltration besonders interessant. Daher wurde diese Technologie bei den orientierenden Versuchen (Aufbau Kap. 4.2.5; Versuchsergebnisse Kap.5.2.1) getestet.

Als Megaschallreinigungsgerät kam ein System der Firma Sonosys Ultraschallsysteme GmbH, Neuenbürg zum Einsatz. Es handelt sich um einen Tauschwinger mit einer schallabstrahlenden Fläche von ca. 100x100 mm², die Schallleistung beträgt 500 W bei 1 MHz.

Bei dem verwendeten Gerät war die gesamte schallabstrahlende Fläche des Tauschwingers nicht gleichzeitig aktiv. Auf der Fläche des Wandlers war jeweils eine Reihe - bestehend aus vier Wandlern - gleichzeitig aktiv, die zeitlich getaktet nacheinander aktiviert wurden. Die bei den hohen Frequenzen erzeugten hohen akustischen Strömungseffekte konnten mit Sandpartikeln im Schallfeld sichtbar gemacht werden. An der Oberfläche des Tanks konnte man in einer Höhe von mehr als 40 cm über dem Tauschwinger deutlich die Aufwölbung der Wasseroberfläche durch den Schallstrahlungsdruck bzw. die akustische Strömungsgeschwindigkeit beobachten. Teilweise ist auch ein Vernebelungseffekt an der Wasseroberfläche zu beobachten.

4.4 Schallfeldcharakterisierung

Für die Bewertung und Reproduzierbarkeit der Experimente ist die Charakterisierung des Schallfeldes von zentraler Bedeutung. Im Fokus dieses Kapitels steht die Vermessung und Charakterisierung des Schallfeldes in dem Kapillarmembranmodul mit Ultraschalleinkopplung. Die Schwingung einer Oberfläche kann mit Hilfe der Laservibrometrie messtechnisch gut erfasst werden (Kyllönen 2006). Ein Gesamtbild der Schwingungsfähigkeit einer Oberfläche kann qualitativ gut durch die Erzeugung von claudnischen Schwingungsmustern mit feinen Partikeln erzeugt werden.

Für die quantitative Charakterisierung eines Schallfeldes in der Flüssigkeit bietet sich die Vermessung des Schalldrucks mit filigranen Hydrophonen an, die selbst das Schallfeld möglichst wenig beeinflussen. Neben Nadelhydrophonen bietet die Verwendung von faseroptischen Sondenhydrophonen die Möglichkeit, sehr kleine Flüssigkeitsvolumina und enge Kanäle zu vermessen ohne durch den Sensor eine große Störung in das Schallfeld einzubringen. Analog zu den Schwingungsfiguren an schwingenden Oberflächen können Partikel mit einer geeigneten Größe und Dichte (Schwebestand) eingesetzt werden, um einen qualitativen Überblick über die Ausbreitung eines stehenden Schallfeldes zu verschaffen. Knoten und Bäuche eines stehenden Schallfeldes können so einfach visualisiert werden.

Die Charakterisierung von kavitierenden Schallfeldern ist Gegenstand der Forschung. Es gibt eine Reihe von qualitativen Methoden, um die geometrische Verteilung und die Wirksamkeit der Kavitationsaktivität zu visualisieren. Am bekanntesten ist zweifellos der Aluminiumfolientest (vgl. Kap. 2.6.1, z.B. Muthukumaran 2007, Koch 2010). Eine Aluminiumfolie wird in das kavitierende Schallfeld getaucht. Bei heftigen Kavitationsvorgängen weist die Folie nach der Beschallung Dellen und Löcher auf, die auf unterschiedlich heftig kollabierende Blasen zurückzuführen sind. Ein weiterer qualitativer Nachweis stellt die Visualisierung der Kavitationsaktivität durch Chemolumineszenz dar (Chen 2006b). Anders als bei der Sonolumineszenz findet hier ein indirekter Nachweis der Kavitationsaktivität statt. Durch eine ultraschallinduzierte chemische Reaktion wird eine alkalische Luminollösung zur Fluoreszenz im sichtbaren Wellenlängenbereich angeregt.

Aktuelle Forschungsansätze bemühen sich um Methoden, die eine Quantifizierbarkeit und damit eine Vergleichbarkeit von Kavitationsfeldern ermöglicht (Koch 2008). Ein wichtiges Ziel dabei ist zum Beispiel, die Wirksamkeit von Ultraschallreinigungsgeschäften zu quantifizieren zu können und so Vergleichsmaßstäbe ansetzen zu können. Neben der spektralen Auswertung der Schallfeldvermessung wird vorgeschlagen, den Abtrag von definierten Schichten systematisch auszuwerten. In einem aktuellen Vorschlag wird mit Hilfe einer Auswertesoftware der Aluminiumfolientest quantifizierbar gemacht (Koch 2010).

Eine etablierte und häufig angewendete Methode zur Charakterisierung eines kavitierenden Schallfeldes ist die kalorimetrische Messmethode (Muthukumaran 2005a). Der mechanische Energieeintrag der Schallwelle wird letztlich in Wärme umgewandelt. Der Wärmeeintrag stellt ein Summensignal für die in ein Volumen eingetragene mechanische Arbeit dar und gibt keine Auskunft über die lokale Verteilung und die Art der Kavitationsaktivität.

$$P_{\text{US}} = \frac{\Delta T}{t} \cdot c_p \cdot m$$

Glg. 4-8

Dieses Summensignal hilft letztlich, die Methode der Schalleinkopplung in ein Volumen zu bewerten. Für die gestellte Fragestellung, den Prozess der Verbesserung der Membranfiltration durch Ultraschall zu untersuchen, ist dieser Wert wenig hilfreich, da keine Aussage gemacht werden kann, welcher Anteil des Schalleintrags in ein Volumen für die Reinigung wirksam ist.

Zur Vermessung von Kavitationsvorgängen werden auch aufwändige Versuchsaapparaturen entwickelt. Zentrale Elemente dabei sind die definierte Erzeugung von Kavitationsblasen und das Abfilmen von Kavitationsvorgängen mit Hochgeschwindigkeitskameras (vgl. Kap. 2.3). Ein Beispiel für die Charakterisierung der Blasenaktivität mit der optischen Methode der Hochgeschwindigkeitsvideometrie bei der Ultraschallmembranreinigung gibt Reuter, Mettin et al. (2009).

Bei dem Aufbau von Kapillarmembranmodulen sind die inneren zu reinigenden Oberflächen mit optischen Methoden nicht zugänglich. Es konnten jedoch Schalldruckmessungen im Inneren der Kapillaren mit einem faseroptischen Sondenhydrophon durchgeführt werden.

Folgende Methoden wurden zur Charakterisierung der Schallfelder der verschiedenen Ultraschallsysteme und Testaufbauten verwendet:

- Amplitudenmessung mit einem Laser-Scanning-Vibrometer für schwingende Membranoberflächen (Kap. 4.2.3, 4.3.2) und zur Charakterisierung von Ultraschallwandlersystemen (Kap. 4.3.1, 4.3.2, 4.3.3).
- Schalldruckmessung mit einem faseroptischen Sondenhydrophon und
- Visualisierung von Kavitationsfeldern bei spezieller Belichtung mit einer Digitalkamera für das Kapillarmembranmodul (Kap. 4.2.7) und Kavitationsfelder in einem Behälter erzeugt von den Schwingplatten (Kap. 4.3.1).

4.4.1 Laser-Scanning Vibrometer und Schwingungsmuster

Für die Messungen am Fraunhofer Ernst-Mach-Institut wurde der Laser-Scanning-Vibrometer OFV-5000 Controller mit dem Signalprozessor DD-200 der Firma Polytec GmbH, Waldbronn verwendet. Einige der verwendeten Ultraschallsysteme wurden von der Firma Hielscher Ultrasonics GmbH vermessen.

Das Edelstahlhüllrohr (Kap. 4.2.7) mit einer Wandstärke von 4 mm sollte ein Schwingungssystem mit einer möglichst hohen Steifigkeit bilden, so dass die punktuell angekoppelte Schwingungsamplitude das gesamte Rohr möglichst gleichmäßig in Schwingung versetzt. Bild 4-22 zeigt schematisch vereinfacht das zu erwartende Schwingungsverhalten eines punktuell durch eine angeschweißte Sonotrode angeregten Rohres. Das Rohr reagiert auf die Anregung mit elliptischer Stauchung und Streckung.

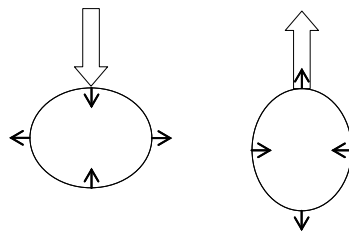


Bild 4-22: Vereinfacht dargestelltes erwartetes Schwingungsverhalten eines angeregten Rohres.

Das Edelstahlhüllrohr wurde mit dem Ultraschallindustrieprozessor (UIW 800 spec vgl. Kap. 4.3.2) bei 40 kHz angeregt und über die Rohrlänge in der axialen Verlängerung des Anschweißpunktes ($\varphi = 0^\circ$), 90 Grad versetzt ($\varphi = 90^\circ$) und auf der gegenüberliegenden Seite ($\varphi = 180^\circ$) mit dem Scanning Vibrometer über die Länge des Rohres vermessen (Bild 4-23).

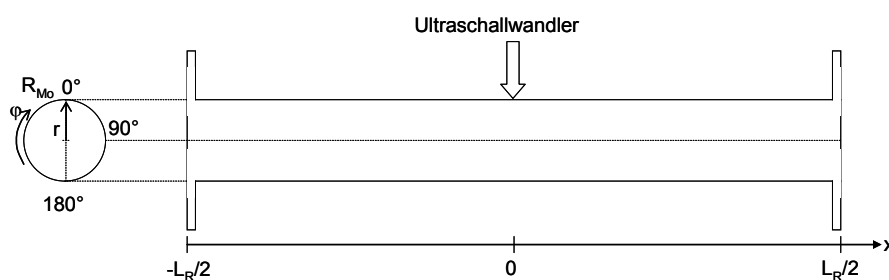


Bild 4-23: Zylindrisches Koordinatensystem für die Vermessung des Edelstahlrohres mit $R_{Mo} = 55 \text{ mm}$, $L_R = 71,3 \text{ cm}$.

Aus der gemessenen Anregungsfrequenz ($f_{US} = 42 \text{ kHz}$), der maximalen Schwingungsamplitude ($A_{max} = 0,54 \mu\text{m}$) und der longitudinalen Schallgeschwindigkeit von Edelstahl ($c_{US, long} = 5720 \text{ m/s}$) ergibt sich eine Wellenlänge λ von 13,6 cm.

Damit ergeben sich vom Ultraschallwandler bis zum Flansch ($L_R/2 = 35,65 \text{ cm}$) fünf weitere Amplitudenmaxima, wenn die Ausbildung einer idealisierten stehenden Welle angenommen wird. In Bild 4-24 ist der Amplitudenverlauf einer sich ausbildenden stehenden Welle über die Rohrlänge exemplarisch dargestellt. Dabei wurde eine exponentielle Dämpfung in Abhängigkeit von dem Abstand der Schallanregung angenommen (Glg. 4-9). Für die Dämpfungskonstante

wurde ein Wert von $\delta = 1,6 \text{ 1/cm}$ angenommen. Die maximale Anregungsamplitude wird dadurch an den Rohrenden um 80% verringert.

$$A_{US}(x, t) = 2 \cdot A_{\max}(x) \cdot \cos\left(\frac{2\pi \cdot x}{\lambda}\right) \cdot \sin(\omega_{US} \cdot t)$$

mit $\lambda = \frac{c_{US}}{f_{US}}$ und $A_{\max}(x) = A_{\max} \cdot e^{-\delta \cdot \left|\frac{2x}{L_R}\right|}$

Glg. 4-9

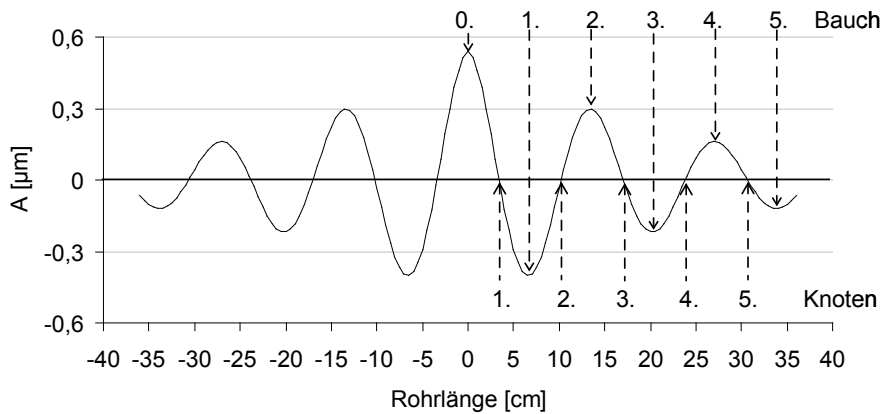
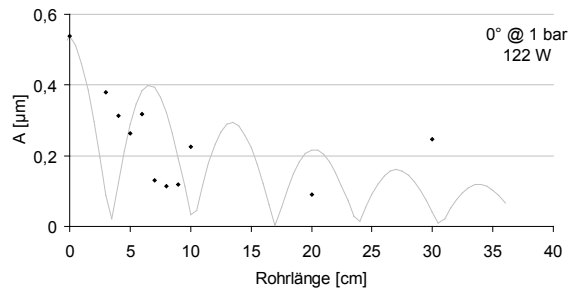


Bild 4-24: Rechnerisch ermitteltes Schwingungsverhalten mit Dämpfung.

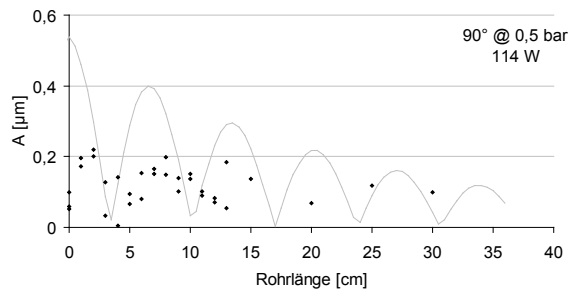
$$f_{US} = 42 \text{ kHz}, A_{\max} = 0,27 \text{ µm}, \lambda = 13,6 \text{ cm}, \delta = 1,6 \text{ cm}^{-1}, L_R = 71,3 \text{ cm}.$$

In den folgenden Bild 4-25 a-e ist grau der Betrag des idealisierten Schwingungsverhaltens aus Bild 4-24 als Orientierung über die Rohrlänge aufgetragen. Da bei der Bestimmung des Mittelwertes für die maximale Amplitude an einer Position über ein längeres Messintervall nicht das Vorzeichen berücksichtigt werden kann, ist als Ergebnis der Messung der Betrag der eigentlich sinusförmigen stehenden Welle zu erwarten. Neben der grauen gerechneten Linie sind jeweils einzelne mit dem Laser-Scanning-Vibrometer ermittelte Messpunkte aufgetragen. Es wurden Messungen an dem mit Wasser gefüllten Rohr bei unterschiedlich hohem Überdruck durchgeführt. Das Abtasten des Rohres erfolgte jeweils auf einer der in Bild 4-23 beschriebenen Achsen. Es war mit den Messungen nicht möglich, den erwarteten Verlauf der rechnerisch ermittelten, sinusförmigen Schwingung nachzuweisen. Insgesamt lässt sich der Trend einer leichten Schwingungsdämpfung zu den Flanschen des Rohres hin feststellen. Aus dem Vergleich der Messungen c, d und e lässt sich der Trend ablesen, dass eine Erhöhung des Systemdrucks zu einem steiferen Verhalten des Rohrmantels führt und dadurch auf der dem Schallwandler gegenüberliegenden Seite über die ganze Länge eine höhere Schwingungsamplitude gemessen werden konnte. Die Amplitude auf der orthogonal zur Anregungsrichtung vermessenen Achse ($\varphi = 90^\circ$) (Bild 4-25 b) scheint insgesamt geringer zu sein als auf den Achsen in Anregungsrichtung ($\varphi = 0; 180^\circ$).

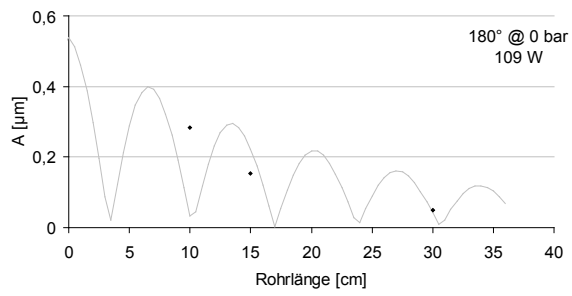
a)



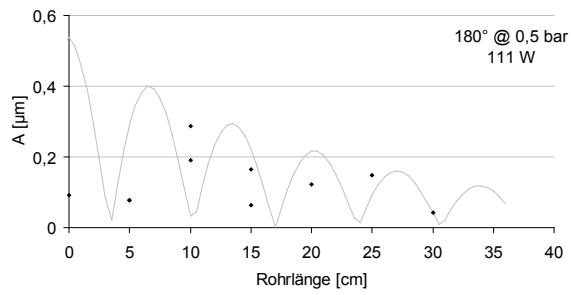
b)



c)



d)



e)

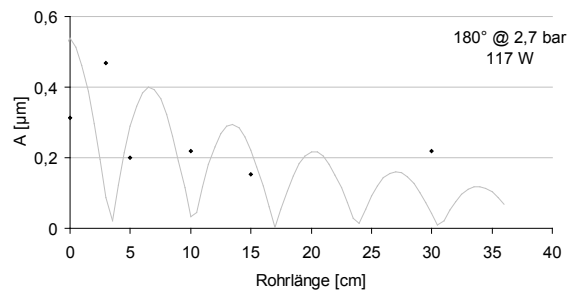


Bild 4-25: Vibrometriemessung an unterschiedlichen Positionen und unterschiedlichen Systemdrücken des wassergefüllten Edelstahlhüllrohres.

- a) Messpunkte der Vibrometermessung auf der Seite des Ultraschallschwingers bei 1 bar Überdruck.*
- b) Messpunkte der Vibrometermessung seitlich zur Position des Ultraschallwandlers bei 0,5 bar Überdruck.*
- c) Messpunkte der Vibrometermessung auf der dem Ultraschallwandler gegenüberliegenden Seite ohne Überdruck.*
- d) Messpunkte der Vibrometermessung auf der dem Ultraschallwandler gegenüberliegenden Seite bei 0,5 bar Überdruck.*
- e) Messpunkte der Vibrometermessung auf der dem Ultraschallwandler gegenüberliegenden Seite bei 2,7 bar Überdruck.*

4.4.2 Schallfeldvermessung mit einem faseroptischen Sondenhydrophon

Mit dem faseroptischen Sondenhydrophon wurde eine Messmethode gefunden, die eine Schalldruckmessung im Inneren einzelner Kapillarmembranen mit einem Durchmesser von 0,9 mm zulässt. Mit der Vermessung des Schallfeldes im Innern des Filtergehäuses wurde beabsichtigt zu klären, wie groß der Schalldruck an den Innenwänden der Kapillaren ist und welche Schallintensität und Amplituden auftreten. Die Größenordnung dieser Parameter kann Aufschluss über die zu erwartenden Ultraschallmechanismen geben. Damit soll aufgezeigt werden, wie groß die Schwächung des Schallfeldes aufgrund der unerwünschten Kavitation im Permeatraum und des schalldämpfenden, porösen Materials der Kapillarmembran ist. Eine weitere Fragestellung besteht darin, inwieweit das Schallfeld gleichmäßig über das Modulvolumen verteilt ist. In diesem Zusammenhang gilt es zu klären, ob sich starre Knoten eines stehenden Schallfeldes ausbilden, an denen keine Reinigungswirkung zu erwarten ist. Andererseits soll die Messung zeigen, ob lokale Interferenzüberhöhungen auftreten, an denen mit sehr hoher Kavitationsaktivität und damit mit frühzeitigen Schäden an der Membran gerechnet werden muss.

Messprinzip faseroptisches Sondenhydrophon

Die Messungen wurden mit einem faseroptischen Sondenhydrophon FOPH 2000 der Firma RP-acoustics e.K durchgeführt (Pecha 2010, Eisenmenger 1991, Staudenraus 1993, Zijlstra 2008). Im Gegensatz zu üblichen Nadelhydrophonen (z.B. Model TC4013, Reson Offshore Ltd. Zhu, Liu et al. (1999), ist die Sonde sehr viel kleiner. So können kleinste Strukturen vermessen und gleichzeitig nur geringe Störungen in das System eingebracht werden. Ein weiterer Vorteil gegenüber den üblichen Hydrophonen besteht darin, dass die Glasfaserspitze bei Schädigung z.B. durch Kavitation einfach erneuert werden kann. Das faseroptische Sondenhydrophon detektiert die Änderung der Lichtreflexion an der Grenzfläche Glasfaserspitze zu Wasser. Die Reflexion ist abhängig vom Brechungsindex des Wassers, der eine Funktion der Dichte des Wassers und damit des momentan herrschenden Drucks ist. Somit kann mit dieser optischen Methode zeitlich hoch aufgelöst der Schalldruck in der Flüssigkeit gemessen werden. Ein Teil des reflektierten Lichts wird über eine optische Weiche zu einem Photodetektor geleitet und dort in ein elektrisches Signal umgewandelt. Das Signal wurde mit einem digitalen Oszilloskop (TPS2000, Tektronix, Inc.) sichtbar gemacht und die Messwerte gespeichert.

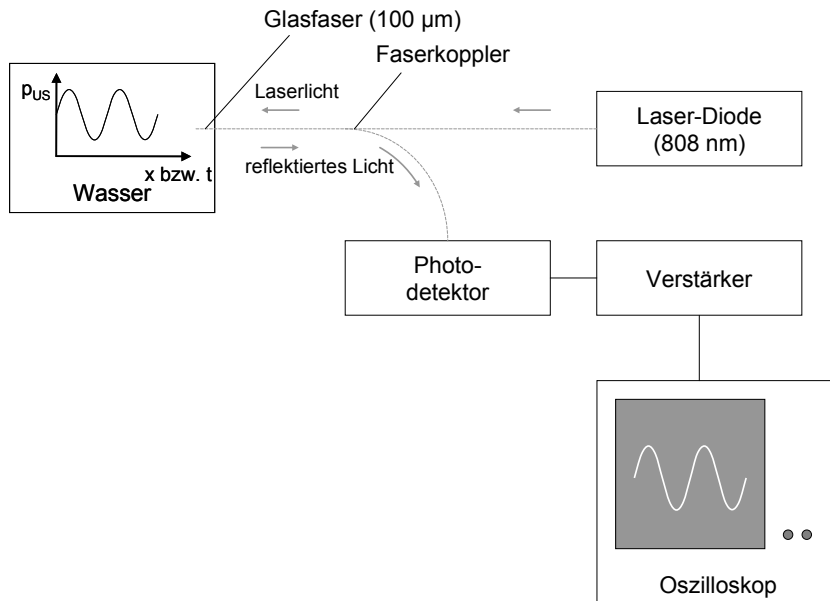


Bild 4-26: vereinfachtes Funktionsprinzip des faseroptischen Sondenhydrophons nach Pecha (2010).

Messaufbau und Versuchsdurchführung

Für die Schallfeldvermessung wurde das Kapillarmembranmodul mit dem Edelstahlhüllrohr (Kap. 4.2.7) vorsichtig mit abgekochtem (entgastem) DI-Wasser befüllt und an allen Abgängen verschlossen. Zur Vermeidung von Kavitation durch Calcitpartikel wurde zudem ein wenig Essigsäure zugegeben. Bei der Vermessung ohne Überdruck konnte der obere Schraubverschluss geöffnet werden, so dass die einzelnen Kapillaren zum Einführen des Glasfaserkabels als Schalldrucksonde frei zugänglich waren. Für eine mittige Positionierung der Glasfaser innerhalb der Kapillare und zur Beschwerung wurde etwa ein Zenitmeter oberhalb der Faserspitze ein Kügelchen aus Modelliermasse um die Faser befestigt. Nach dem Einfädeln der Messspitze in die Kapillare wurde diese zunächst anhand einer Markierung bis zum unteren Ende der Kapillare durchgeschoben. Die Messungen an unterschiedlichen Positionen erfolgten durch das Anheben der Faserspitze an einer Positioniereinrichtung außerhalb des Moduls. Für Messungen im Flüssigkeitsvolumen der Permeatseite und für Messungen in den Kapillaren bei Überdruck wurde das Modul vollständig geschlossen und am Permeatausgang bzw. am oberen Feedzugang das Glasfaserkabel über eine Zugentlastung (Elektroinstallation) abgedichtet. Der Messaufbau ist in Bild 4-27 zu erkennen. Neben den Maßnahmen mit einer vollständig entgasten Flüssigkeit bei vermindertem pH-Wert zu arbeiten, wurden zur Vermeidung von Kavitation Messungen bei erhöhtem Systemdruck durchgeführt.

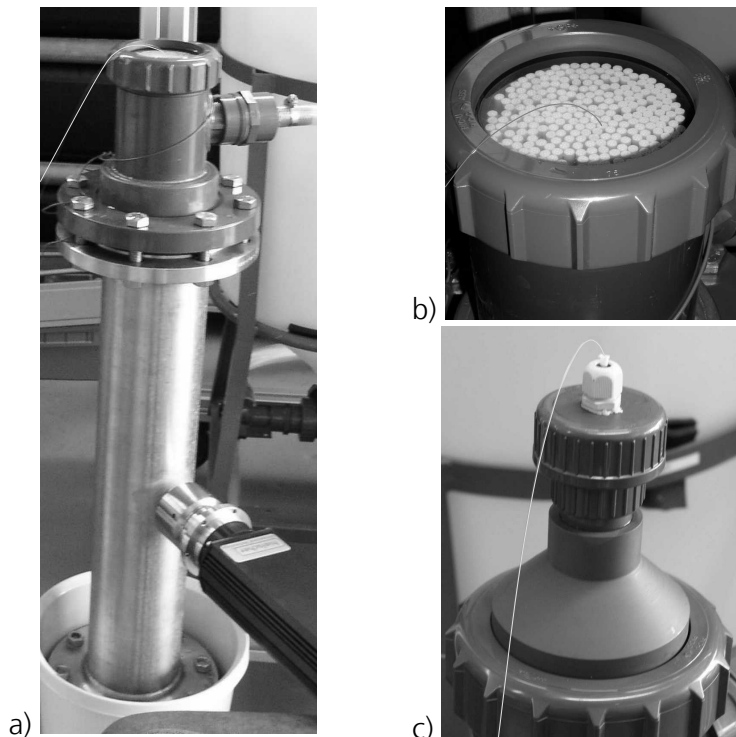
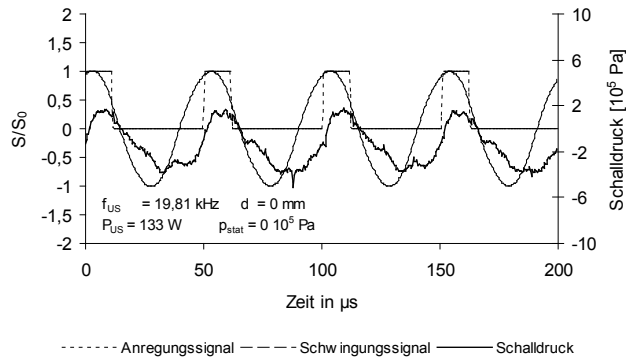


Bild 4-27: Schallfeldvermessung mit der faseroptischen Sonde a) an einem offenen Modul auf der Feedseite der Kapillaren, b) auf der Feedseite einer mittleren Kapillare, c) an einem geschlossenen Modul auf der Feedseite mit Zugentlastung zur Abdichtung.

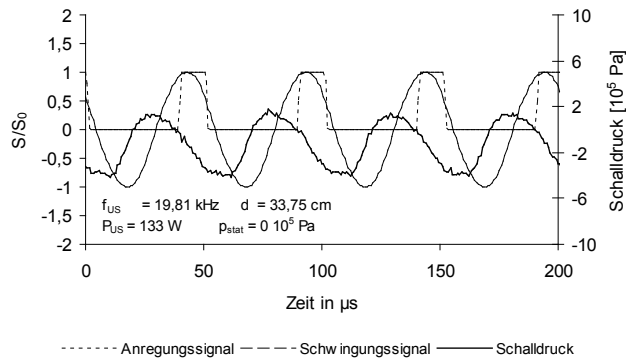
Ergebnisse der Messungen

Ein Beispiel einer typischen FOSH-Messung ist in Bild 4-28 dargestellt. Es ist das normierte Ansteuerungssignal und Amplitudensignal, sowie der Schalldruck über die Zeit aufgetragen. Ansteuerungssignal und Amplitudensignal werden bei dem Ultraschallgerät UIP 1000 (Kap. 4.3.3) direkt vom Hochfrequenzgenerator ausgegeben. Das Signal für die Ansteuerung der Piezokeramikscheiben ist synchronisiert mit der Schwingung des Ultraschallwandlerhorns. Bei erfolgreicher Synchronisierung erfolgt die Ansteuerung der Piezokeramiken immer kurz vor Erreichen der maximalen Amplitude des Ultraschallhorns. Die Amplitude des Ultraschallhorns hat dann einen sinusförmigen Verlauf. Das Schalldrucksignal (durchgezogene schwarze Linie in Bild 4-28) ist durch viele Einflussfaktoren gestört. Es kommt zu Interferenzen innerhalb des schwingenden Rohres, die Kapillaren selber geraten in Schwingung, am stärksten beeinflusst das Schallfeld die Anwesenheit von Bläschen. Die Schallwelle wird an der Phasengrenze zu Blasen reflektiert. Das Bild der Schalldruckmessung in der Flüssigkeit ist im Gegensatz zu dem Amplitudensignal der Sonotrode nicht konstant. Es verändert sich ständig aufgrund der Bewegung der Faserspitze in den Kapillaren, der Bewegung der ganzen Kapillarmembrane und vor allem der Bewegung von Bläschen im System. Das Messsignal für den Schalldruck konnte trotz der oben beschriebenen Maßnahmen zur Vermeidung von Kavitation und Gasblasen nicht stabilisiert werden, so dass für jeden einzelnen Messpunkt eine möglichst lange Mittelwertbildung für die maximalen und minimalen Amplitudenwerte gewählt wurde. Mettin (2005) weist darauf hin, dass aufgrund der vielen verschiedenen Blasengrößen und deren unterschiedlichen Kollapsverhalten bei der Schalldruckvermessung eines kavitierenden Schallfeldes die ursprüngliche Anregungsfrequenz kaum wiederzuerkennen ist.

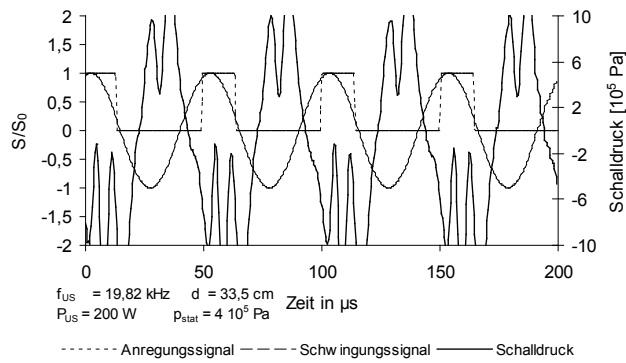
a)



b)



c)



d)

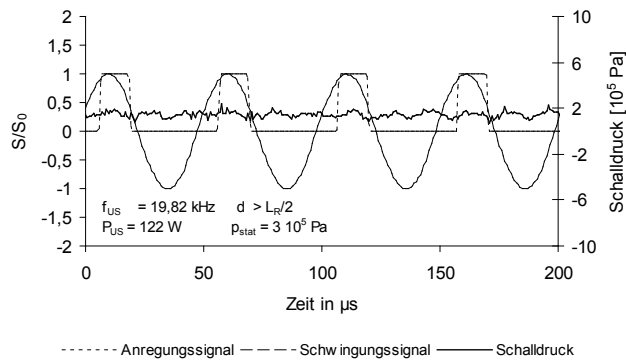


Bild 4-28: Beispiel einzelner Schalldruckmessungen:

a) In einer mittleren Kapillare in der Mitte des Moduls.

$$\varphi = 0^\circ, r = 0 \text{ mm}, d = 0 \text{ cm}, f_{US} = 19,81 \text{ kHz}, P_{US} = 133 \text{ W}, p_{stat} = 0 \text{ bar}$$

b) In einer Kapillare seitlich am Ende des Hüllrohres

$$\varphi = 90^\circ, r = R_{Mor}, d = 33,75 \text{ cm}, f_{US} = 19,81 \text{ kHz}, P_{US} = 133 \text{ W}, p_{stat} = 0 \text{ bar}.$$

c) In einer Kapillare auf der Seite des Schallwandlers am Ende des Hüllrohres.

$$\varphi = 0^\circ, r = R_{Mor}, d = 33,5 \text{ cm}, f_{US} = 19,82 \text{ kHz}, P_{US} = 200 \text{ W}, p_{stat} = 4 \text{ bar}.$$

d) Im Modul jedoch außerhalb des Hüllrohres.

$$\varphi = 90^\circ, r = R_{Mor}, d > 35,7 \text{ cm} = L_R/2, f_{US} = 19,82 \text{ kHz}, P_{US} = 200 \text{ W}, \\ p_{stat} = 4 \text{ bar}.$$

Die Beispiele für Momentanaufnahmen der Schalldruckmessung in den Membranmodulprototypen (Bild 4-28 a-d) zeigen, wie stark der Schalldruck von Störungen beeinflusst wird. Der Schalldruck in einer mittleren Kapillare a hat die gleiche Größenordnung wie der Schalldruck am Ende des Hüllrohres an einer seitlich zum Schallwandler positionierten Kapillare am äußeren Rand des Moduls. Bei erhöhtem Systemdruck können insgesamt höhere Schalldruckamplituden vermessen werden (Bild 4-28 c). Diese Beobachtung deckt sich auch mit der besseren Übertragung der Schwingungsamplitude bei höherem Druck bei der vibrometrischen Vermessung des Edelstahlrohres (Bild 4-25 e). Außerhalb des angeregten Bereichs des Edelstahlhüllrohres verschwindet die Schallwelle (Bild 4-28 d).

Es kann nachgewiesen werden, dass die Schallweiterleitung durch die poröse Membran stattfindet. Schalldruckmessungen in dem Edelstahlrohr ohne Kapillarmembranmodul und Messungen im Inneren der Kapillaren bei eingebautem Kapillarmembranmodul zeigen, dass die Schwächung des Schallfeldes in dieser Anordnung durch die Stützstruktur der Membranen nicht zu einer Auslöschung des Schallfeldes im Inneren des Moduls führt. Messungen des Schalldrucks in verschiedenen Kapillaren jeweils um die Mitte des Rohres herum, zeigen, dass eine Schwächung der Amplitude durch das Stützmaterial stattfindet, das die Membranen umgibt (Bild 4-29). Die Schalldruckamplitude in der Kapillare, die am nächsten an der Ankopplungsstelle des Schallwandlers liegt, ist am größten. Die zweitstärkste Amplitude lässt sich in der Kapillare an der gegenüberliegenden Seite des schwingenden Rohres messen. Dort tritt auch eine hohe Schwingungsamplitude des Edelstahlrohres auf. Die Amplitude in einer Kapillare seitlich am Hüllrohr ist etwas kleiner ($\varphi = 90^\circ, r = R_{Mo}$). Die kleinste Amplitude wurde in der mittleren Kapillaren ($\varphi = 0^\circ, r = 0$) gemessen. Dort muss die Schallwelle alle Membranen durchdringen.

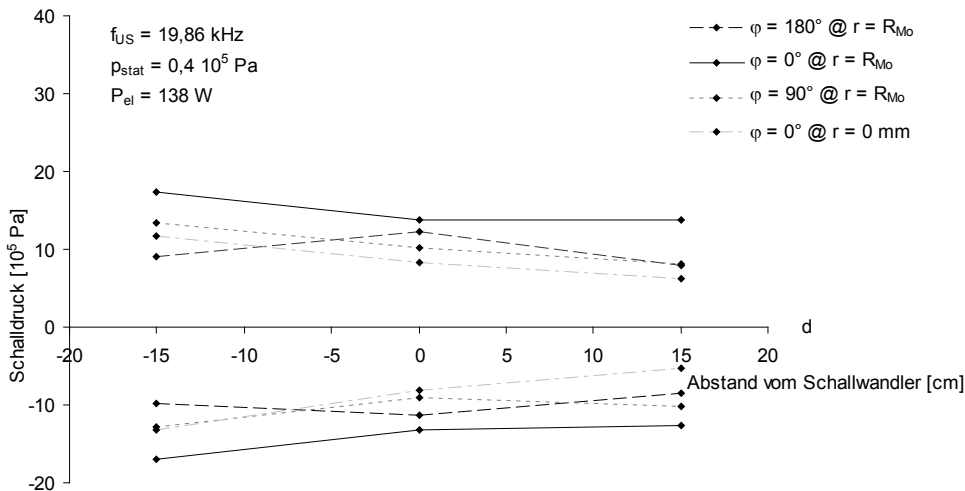


Bild 4-29: Schalldruckamplitude im Bereich des Ultraschallwandlers an verschiedenen Positionen im Membranmodul bei 400 mbar Überdruck.

Eine Schalldruckmessung in dem Edelstahlrohr mit und ohne eingebautem Kapillarmembranmodul zeigt den Schalldruckunterschied, der zwischen Permeatseite und Feedseite auftreten kann. Exemplarisch ist so ein Vergleich für die Position seitlich zum Schalleintrag in Bild 4-30 dargestellt. Der mittlere Schalldruckunterschied beträgt bei dieser Messung im Mittel 8 bar.

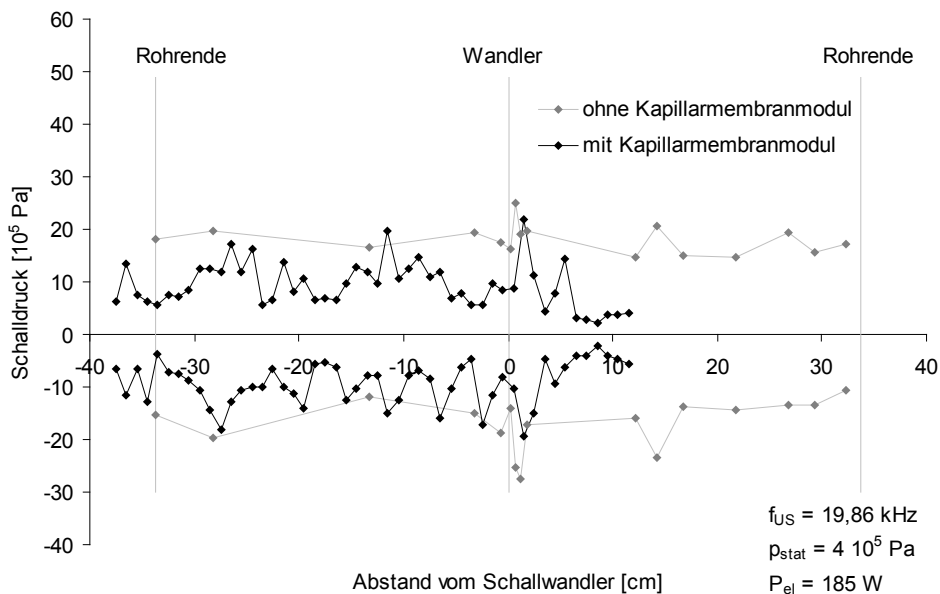


Bild 4-30: Vergleich von Schalldruckmessungen im leeren Edelstahlrohr und mit eingebautem Kapillarmembranmodul.

$\varphi = 90^\circ, r = R_{Mo}, f_{US} = 19,86 \text{ kHz}, P_{US} = 185 \text{ W}, p_{stat} = 4 \text{ bar}.$

Der in Bild 4-21 dargestellte Zusammenhang von Leistungseintrag und Kavitation bei unterschiedlichem Systemdruck lässt sich auch mit der Schalldruckmessung bestätigen. Bei höherem Überdruck lassen sich höhere Schalldruckamplituden messen, wobei der elektrische Energieeintrag sinkt (Bild 4-31).

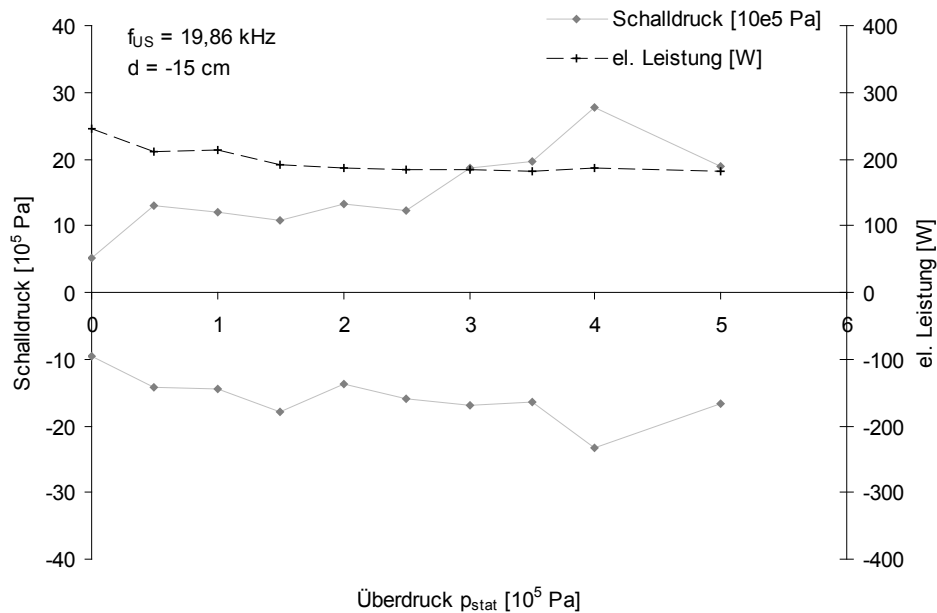


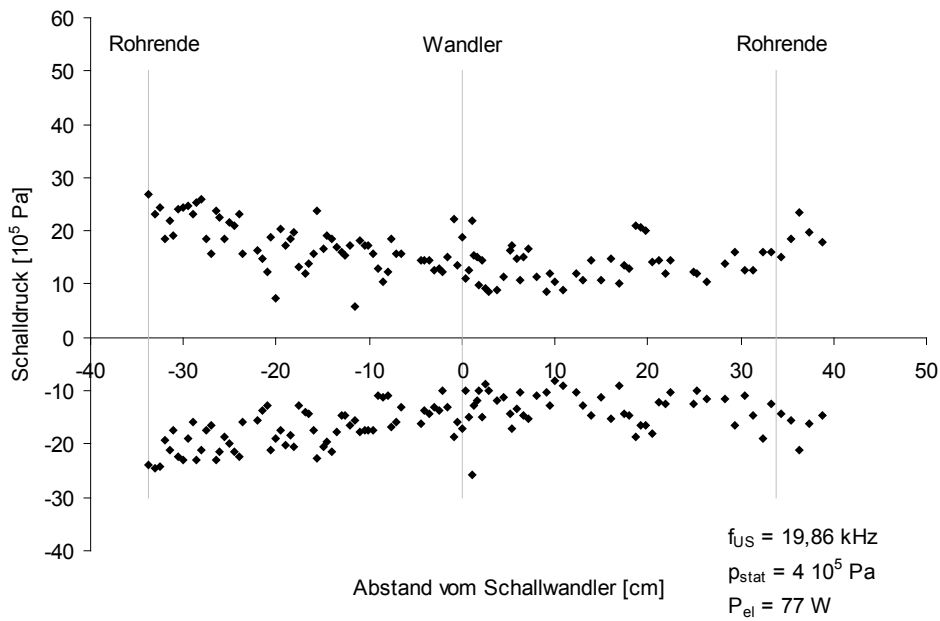
Bild 4-31: Schalldruck in Abhängigkeit des Systemdrucks.
 $\varphi = 90^\circ$, $r = R_{Mo}$, $f_{US} = 19,86$ kHz, $d = -15$ cm

Detaillierte Messungen des Schallfeldes in unterschiedlichen Positionen zeigen keine typische Charakteristik eines stehenden Schallfeldes mit ausgeprägten Knoten und Bäuchen. Bemühungen, eine Regelmäßigkeit in den ermittelten Messdaten mit diversen Anpassungsfunktionen zu finden, führten zu keinem Erfolg. Die zu erwartende Periodizität entspricht der halben Wellenlänge der Schallwelle in Wasser ($\lambda/2 = 3,74$ cm). Bei keiner der Messungen konnte ein gleichmäßiges An- und Abschwellen der maximalen Amplitude beobachtet werden (Bild 4-32).

Geht man davon aus, dass sich im Inneren des Kapillarmoduls ein stehendes Wellenfeld ausbilden muss, lassen sich die Ergebnisse so interpretieren, dass entweder die Messmethode für eine quantitative Aussage nicht geeignet ist oder tatsächlich das Schallfeld durch die Blasenaktivität stark gestört ist. Von Modul eingeschlossene bewegliche Bläschen, auftretende Kavitation oder die nicht fixierte Sonde können Gründe für eine ungenaue Messung sein. Andererseits sind die gemessenen Werte in sich stimmig, so dass die Messungen auch eine Interpretation zulassen, bei der davon ausgegangen wird, dass die gemessenen Werte der Realität entsprechen.

Die beweglich mitschwingenden Membranen, der Einschluss von Bläschen in der porösen Stützstruktur der Membran und in den Kapillaren, sowie das Auftreten von Kavitation können so als Ursachen für ein Verschmieren des stehenden Schallfeldes interpretiert werden. Die leichte Bewegung des gesamten Schallfeldes - verursacht durch bewegliche Bläschen - kann nach dieser These das Entstehen von Orten permanent geringer (Knoten) oder sehr hoher Schalldruckamplituden in Interferenzüberhöhungen oder Bäuchen vermeiden. Für die Anwendung wäre diese Situation sehr günstig, da so eine gleichmäßige Wirksamkeit des Ultraschalls auf die gesamte Membranfläche ermöglicht wird und die Wahrscheinlichkeit für lokale Schädigungen der Membran gering ist. Bild 4-32 zeigt die über die ganze Länge des Zylinders relativ gleichmäßige Schalldruckamplitude für zwei gegenüberliegende Positionen.

a)



b)

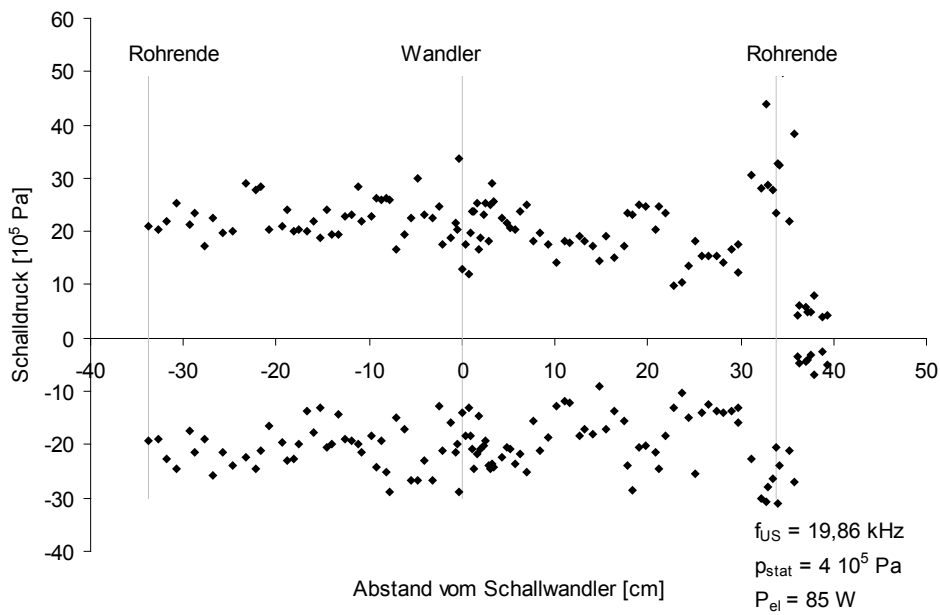


Bild 4-32:

a) Vermessung des Schalldrucks auf der Seite des Schallwandlers.

$$\varphi = 0^\circ, r = R_{Mo}, f_{US} = 19,86 \text{ kHz}, P_{US} = 77 \text{ W}, p_{stat} = 4 \text{ bar.}$$

b) Vermessung des Schalldrucks auf der dem Schallwandler gegenüberliegenden Seite des Moduls.

$$\varphi = 180^\circ, r = R_{Mo}, f_{US} = 19,86 \text{ kHz}, P_{US} = 85 \text{ W}, p_{stat} = 4 \text{ bar.}$$

Der Schalldruck lässt sich mit den Parametern für Dichte, Schallgeschwindigkeit und Frequenz in Intensität und Schwingungsamplitude umrechnen. Für den Schalldruck, die Intensität und die Schwingungsamplitude kann folgender Bereich angegeben werden:

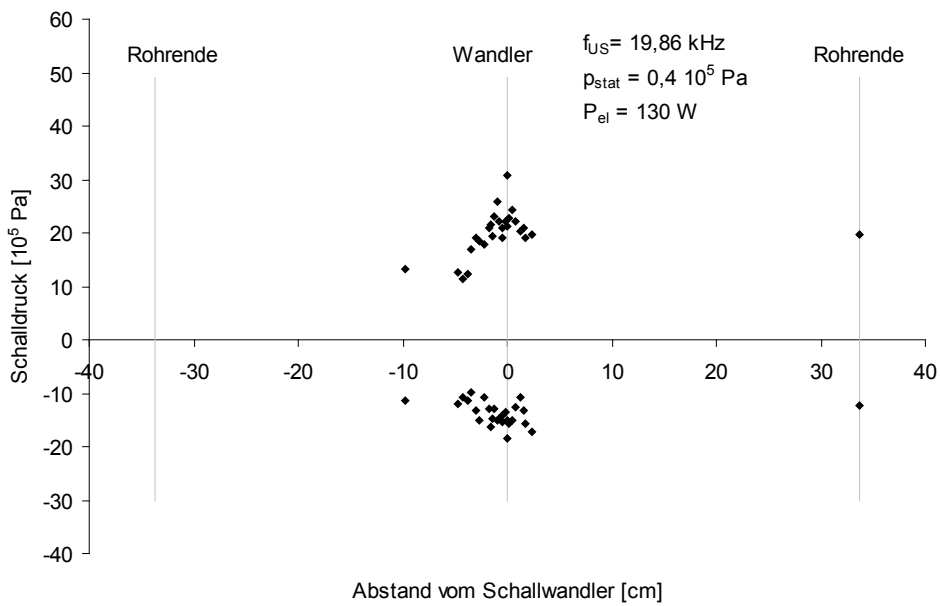
- $-20 \text{ bar} > p_{\text{US}} > +20 \text{ bar}$
- $\sim 5 \text{ W/cm}^2 > I_{\text{US}} > 160 \text{ W/cm}^2$
- $\sim 0,2 \text{ }\mu\text{m} > A > \sim 13 \text{ }\mu\text{m}$

Bei dem Abgleich mit den Vibrometermessungen im vorangehenden Kapitel 4.4.1 fällt auf, dass die Schwingungsamplituden, die auf die Rohrwandung übertragen werden, bei diesem System (UIP 1000) deutlich größer sein müssen als die mit dem Laser-Scanning-Vibrometer vermessenen Schwingungsamplituden, bei denen mit dem Ultraschallwandler UIW 800 spec gearbeitet wurde. Die in Kapitel 4.4.1 gemessenen Amplituden der Rohrwandung von etwa $0,3 \text{ }\mu\text{m}$ entsprechen im Wasser bei den 40 kHz nur etwa $0,6 \text{ bar}$. Für die hier vermessenen Schalldruckamplituden von etwa 10 bar wären bei 20 kHz und einer eindimensionalen Betrachtung der Rohrwand wie eine abstrahlende Platte etwa $10 \text{ }\mu\text{m}$ (Peak zu Peak) notwendig.

Schalldruckspitzen an der Anschweißstelle des Ultraschallwandlers

Schäden an den Kapillarmembranen weisen daraufhin, dass an der Schweißstelle, die die Sonotrode des Ultraschallindustrieprozessors mit dem Rohr verbindet, lokal Kavitation und besonders hohe Schalldruckamplituden auftreten (vgl. Kap. 5.4.2; Bild 5-36). Um diese potentielle Schwachstelle des Gesamtsystems genauer zu analysieren, wurde mit dem faseroptischen Sondenhydrophon dieser Bereich detailliert vermessen (Bild 4-33). Im Inneren der angrenzenden Kapillare ($\varphi = 0^\circ$; $r = R_{\text{Mor}}$; $d = 0$) konnte ein Anstieg der Schalldruckamplitude im Bereich der Schweißverbindung gemessen werden (Bild 4-33 a). Dieser Anstieg stellt keine extreme Erhöhung der Schallintensität dar und lässt eine stark erhöhte Wahrscheinlichkeit für eine lokal auftretende Kavitationsstruktur nicht vermuten. Bei der Vermessung des Edelstahlhüllrohres ohne Kapillarmembranen (Bild 4-33 b) zeigt sich hingegen lokal ein sehr deutlicher Peak der Schalldruckamplitude. Bei eingebautem Kapillarmodul tritt dieser Anstieg auch im Bereich des Permeatvolumens nicht in dieser Höhe auf.

a)



b)

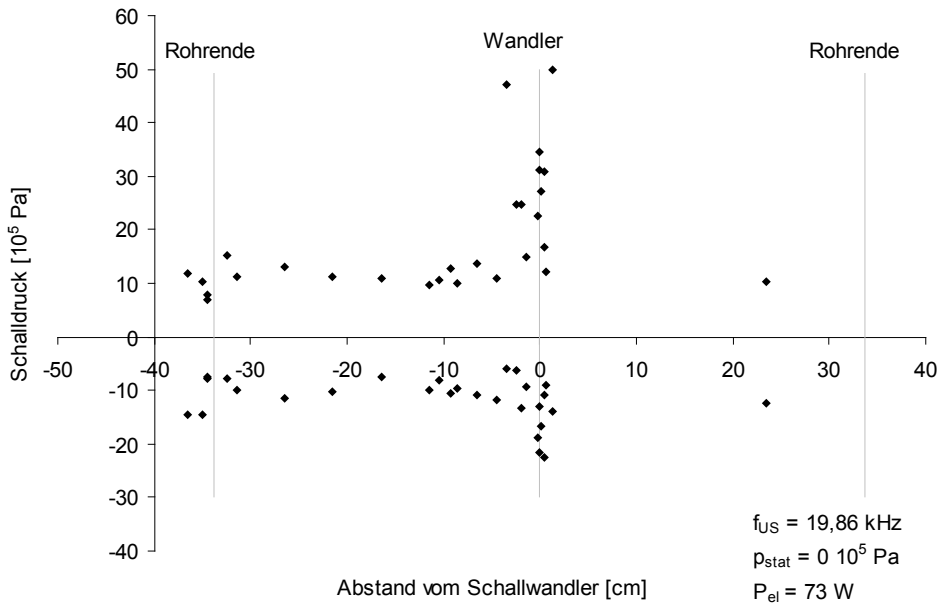


Bild 4-33: Genaue Vermessung des Schalldrucks in der Mitte des Moduls.

a) In der mittleren Kapillare bei 400 mbar Überdruck

$$\varphi = 0^\circ, r = R_{Mor}, f_{US} = 19,86 \text{ kHz}, P_{US} = 130 \text{ W}, p_{stat} = 0,4 \text{ bar}$$

b) Im offenen, leeren Hüllrohr.

$$\varphi = 0^\circ, r = R_{Mor}, f_{US} = 19,86 \text{ kHz}, P_{US} = 73 \text{ W}, p_{stat} = 0 \text{ bar}.$$

Weiterleitung des Schallfeldes und alternative Positionen für die Schalleinkopplung

Konstruktiv bedeutet der Vorschlag für die Beschallung des Kapillarmembranmoduls aus Kapitel 4.2.7 einen erheblichen Materialaufwand für das Edelstahlhüllrohr und den Ultraschallwandler. Jede Methode, den Schalleintrag in das System zu vereinfachen, ist daher willkommen. Aus Sicht der Filtrationstechnik wäre ein Eintrag des hochfrequenten Wechseldrucks über die Permeatleitung am attraktivsten, da diese Methode mit wenig apparativen Aufwand verbunden ist. Der Ultraschalleintrag könnte so als Analogie zur Methode des hochfrequenten Rückspülens betrachtet werden.

Schalldruckmessungen über das Ende des Edelstahlhüllrohres hinaus und in der Permeatleitung konnten zeigen, dass sich das hochfrequente Schallfeld auch bei erhöhtem Systemdruck nicht in den Bereich der Anschlussrohrleitung weiterleiten lässt (Bild 4-34). Bei einem Überdruck von 5 bar lässt sich eine deutliche Schalldruckamplitude noch wenige Zentimeter über das Rohrende hinaus messen. Ohne Überdruck verschwindet die Schwingung bereits am Rohrende. Die Methode des hochfrequenten Rückspülens lässt sich daher nur mit wesentlich niedrigeren Frequenzen im Bereich von 100 Hz und hohen Amplituden realisieren.

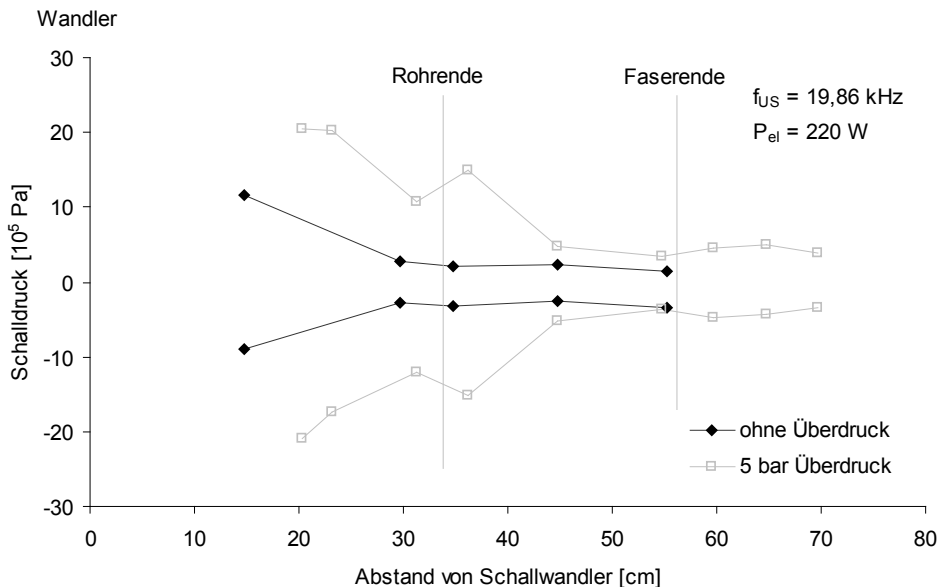


Bild 4-34: Schalldruckamplitude außerhalb des Edelstahlhüllrohres ohne Überdruck und bei 5 bar Überdruck.

$\varphi = 0^\circ$, $r = 0$ mm, $f_{US} = 19,81$ kHz, $P_{US} = 220$ W.

Fazit

In allen Kapillaren konnten Schalldruckamplituden ähnlicher Größenordnung gemessen werden. Zwischen Permeatseite und Feedseite, sowie zwischen äußeren und inneren Kapillaren konnte die zu erwartende Schwächung des Schallfeldes messtechnisch gezeigt werden. Eine Schallweiterleitung durch das poröse, schallabsorbierende Stützmaterial der Membranen ins Innere der einzelnen Kapillaren und ins Innere des Moduls findet statt.

Extreme Interferenzerscheinungen, die zu lokalen Maxima führen könnten, wurden messtechnisch nicht belegt. Ein lokales, starkes Maximum konnte lediglich direkt an der Anschweißstelle des Schallwandlers bei Vermessung der Permeatseite ohne Kapillarmembranen ermittelt werden.

Mit der Messmethode konnte kein starres stehendes Wellenfeld nachgewiesen werden. Die Schalldruckmessungen zeigen ein instationäres Verhalten und verändern sich ständig. Diese Beobachtung kann auf eine wenig brauchbare Messmethodik hinweisen. Da alle zu erwartenden Effekte qualitativ richtig mit der Messmethode nachgewiesen werden konnten, können die Messergebnisse weiterinterpretiert werden. Demnach ist das Schallfeld verschmiert und weist an jeder Stelle mal ein Maximum und mal ein Minimum auf. Als Hauptverursacher für diesen Effekt werden Bläschen verantwortlich gemacht, die sich im Schallfeld bewegen (Mettin 2005). Durch die Totalreflexion an den Blasen verschiebt sich mit der Bewegung der Bläschen das Schallfeld und verschmiert so über das gesamte Modul.

Trotz der Erprobung verschiedener Entgasungsstrategien ist es nicht gelungen, über die Erhöhung des Druckes oder eine noch vollständigere Entgasung das Schallfeld »erstarren« zu lassen.

Schalldruckmessung an einem offenen Behälter mit einer Schwingplatte

Ein weiteres System, das mit dem faseroptischen Sondenhydrophon vermessen wurde ist ein offener Glasbehälter, an dessen Wasseroberfläche die Schwinplatten (Kap. 4.3.1) für den Schalleintrag sorgt. In dem Behälter stellt sich ein stehendes Schallfeld ein, wie es aus Ultraschallbädern bekannt ist (Strobel 2007b, Strobel 2007a, Lauterborn 2004b). Mit der Schalldruckmessung konnten charakteristische Eigenschaften dieses Schallfelds und des Ultraschallwandlersystems vermessen werden. Von besonderem Interesse für die Interpretation der Filtrationsergebnisse ist der Unterschied zwischen den realisierbaren Frequenzen 35 kHz und 130 kHz in Bezug auf die Schalldruckamplitude und den Leistungseintrag (Bild 4-35). Bei geringer Leistung findet bei 130 kHz noch kaum Kavitation statt, so dass hohe Schalldrücke gemessen werden können. Ab etwa 60 W setzt in dem beschallten Behälter auch bei der hohen Frequenz die Kavitation ein. Der gemessene Schalldruck verringert sich. Bei weiterer Steigerung der eingetragenen Leistung steigt die Schalldruckamplitude für die hohe Frequenz stetig an. Bei 35 kHz kann ab etwa 120 W die Schalldruckamplitude nicht weiter erhöht werden. Die Kavitationsaktivität und Bläschendichte führt zu einer starken Dämpfung des Schallfeldes und lässt keine Weiterleitung hoher Schalldruckamplituden zu (cushioning; Kap. 2.3.3).

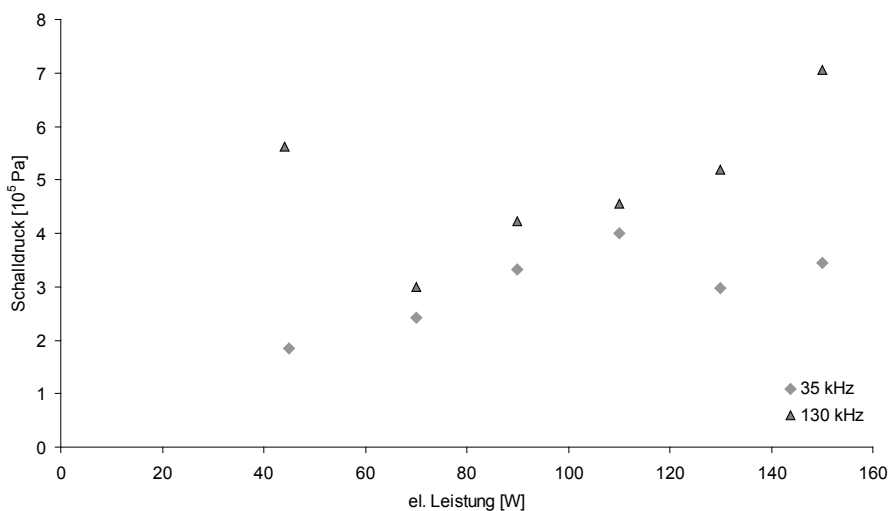


Bild 4-35: Schalldruckmessung in einem Behälter bei Beschallung durch eine Schwingplatte (Kap. 4.3.1) über die elektrische Anregungsleistung bei 35 und 130 kHz.

In Kapitel 4.4.3 werden einige Visualisierungen von Kavitationsfeldern vorgestellt. Diese wurden in dem hier vermessenen offenen Glasbehälter mit der Schwingplatte (Kap. 4.3.1) durchgeführt.

4.4.3 Visualisierung des Kavitationsfeldes

Eine exakte Vermessung eines kavitierenden Schallfeldes erweist sich als schwierig. Eine weitere Schwierigkeit besteht in der Interpretation der Messdaten für Schwingungsamplitude und Schalldruck hinsichtlich der Wirksamkeit für die Reinigung einer Oberfläche. Eine zusätzliche qualitative Überprüfung der Bläschenaktivität in einem Schallfeld ist daher notwendig. Da die Blasenoberfläche Licht stark reflektiert, können bei entsprechender Beleuchtung Bläschen in einem beschallten Wasserbad einfach sichtbar gemacht werden. Diese visuelle Methode ist nur für transparente Versuchsaufbauten möglich. Für die Visualisierung der Bläschenaktivität im Inneren komplexer Membranmodulgeometrien wird daher für Anschlussarbeiten das bildgebende Verfahren des diagnostischen Ultraschalls empfohlen (Kap. 2.3.6 und 8).

Mit der Schwingplatte aus Kapitel 4.3.1 wird ein Wassertank beschallt. Es bilden sich charakteristische Kavitationsstrukturen aus (Bild 4-36). Der Schallwandler befindet sich jeweils am oberen Bildrand. Bild b wurde einige Minuten nach a bei einer Beschallung von 35 kHz aufgenommen. Die Filamentstrukturen in a weichen nach längerer Beschallungszeit und fortschreitender Entgasung des Wassers den quallenartigen Strukturen b (Jellyfish, vgl. Kap. 2.3.3). Bei der Beschallung von 130 kHz (Bild 4-36 c) sind neben feinen Blasenschlieren deutlich die Bande eines stehenden Schallfeldes zu erkennen, in denen größere Blasen von den Bjerkneskräften festgehalten werden (Miller-Schicht; Kap. 2.3.3).

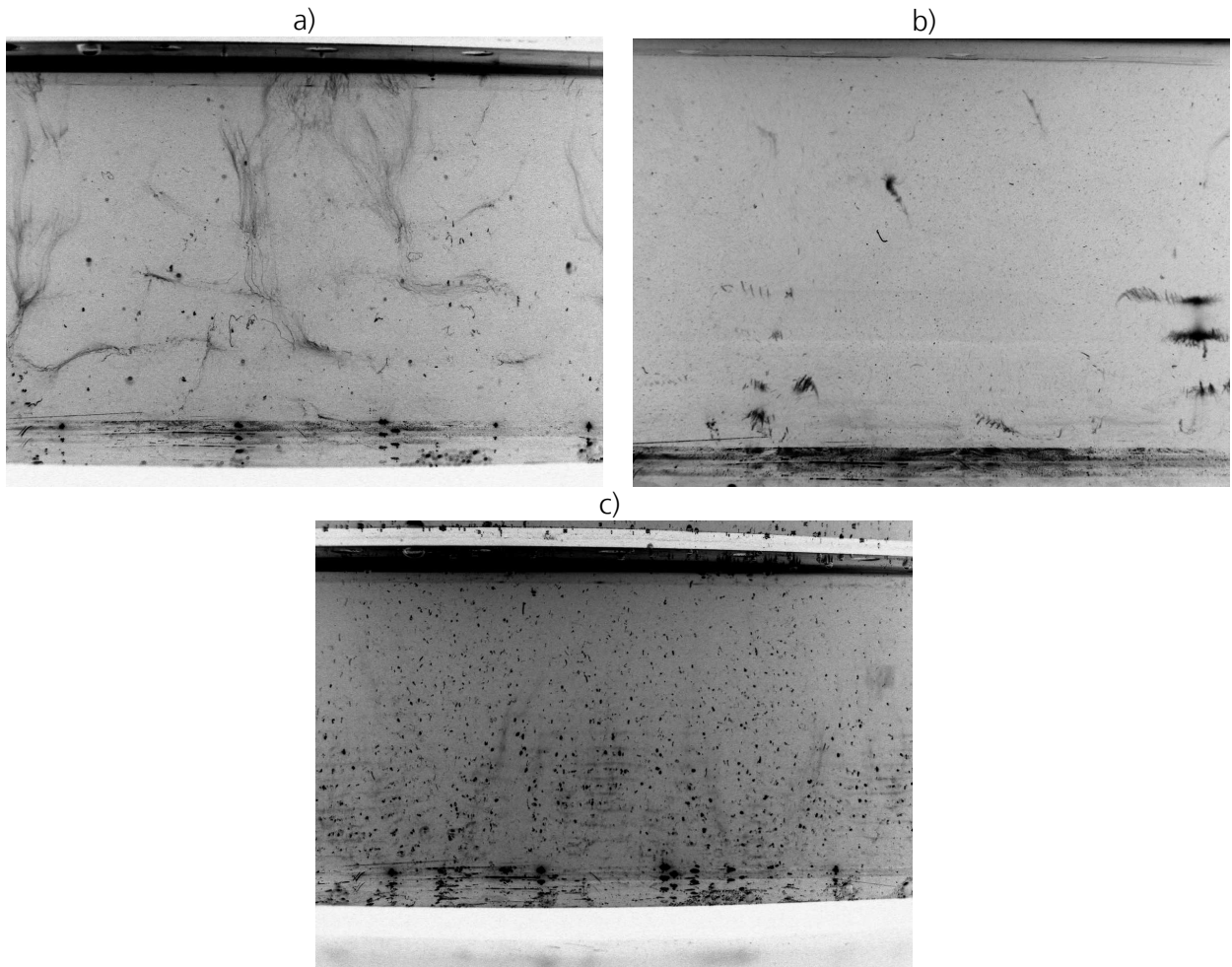


Bild 4-36: Charakteristische Kavitationsstrukturen eines beschallten Wassertanks. a) wurde einige Minuten vor b) bei 35 kHz aufgenommen, c) bei 130 kHz.

Das Kavitationsfeld bei einer Frequenz von 130 kHz Bläschen weist die charakteristischen Bande von Millerschichten auf. Es handelt sich um Bläschen, die größer als ihr Resonanzradius sind, (vgl. Kap. 5.1.2; Bild 5-9) und in den Knoten des Schallwellenfeldes festgehalten werden. Die Beschallung bei 130 kHz bewirkt eine Ansammlung von relativ großen Blasen in diesen Banden. Nach dem Ausschalten des Ultraschallschwingers können Bläschen, die eine kritische Größe erreicht haben, aufsteigen (Bild 4-37).

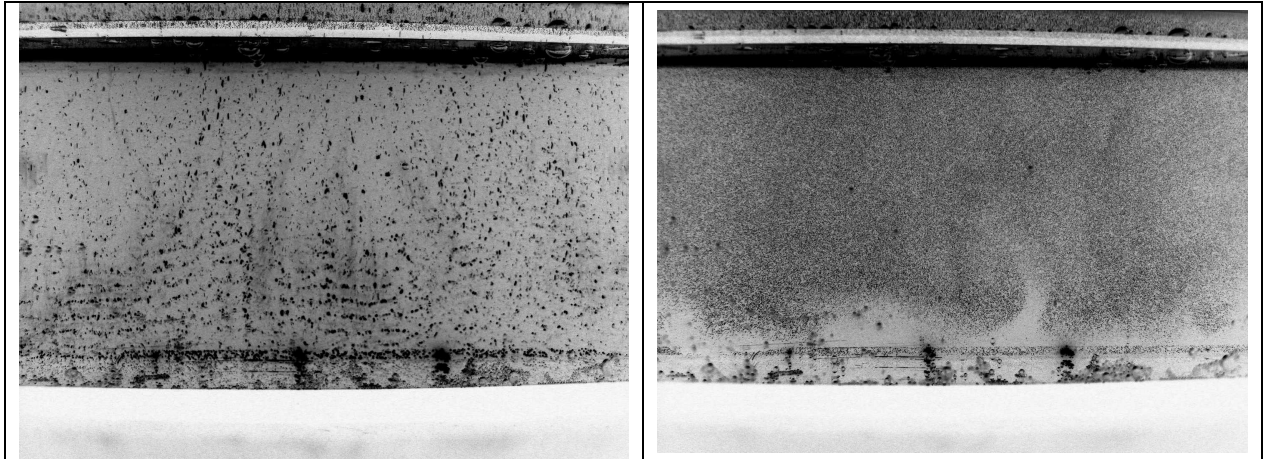


Bild 4-37: Blasenwachstum und Anordnung bei einer Beschallung von 130 kHz und Aufsteigen der feindispersen Bläschen nach Abschalten des Schallfeldes.

Visualisierung der Bläschenaktivität an der Oberfläche einer Keramikmembranplatte

Die Beschallungssituation bei der Vakuumfiltration (Kap. 4.2.5) wurde qualitativ mit den Aufnahmen in Bild 4-38 visualisiert. In dem abgebildeten Beispiel wird die Beschallung bei der Rückspülung gezeigt, wobei das Rückspülfluid mit Kohlendioxid angereichert ist. Die Beschallung bei einer Ultraschallfrequenz von 130 kHz zeigt mehr kleinere Bläschen als bei 35 kHz. Die Beweglichkeit der Bläschen bei 35 kHz ist stärker ausgeprägt.

Bei der Rückspülung mit gasgesättigtem Wasser ist ständig eine hohe Bläschenaktivität zu beobachten. Sie setzt bereits bei der kleinsten Amplitude bei 35 kHz ein. Ohne die zusätzliche Beschallung ist lediglich ein leichtes Ausperlen zu beobachten. Mit Ultraschall kommt es zu heftigem Ausgasen und einer hoher Beweglichkeit der Bläschen.

Bei der Rückspülung mit normalem DI-Wasser konnte die höchste Aktivität bei 130 kHz und hoher Beschallungsleistung beobachtet werden. Bei 35 kHz und hohen Amplituden bildet sich eine starke Ordnung bezüglich der Blasen aus, so dass sich über die Membranfläche insgesamt nur wenige, vereinzelt Bläschen bewegen. Bei der Einstellung einer hohen Amplitude ist zu beobachten, dass vereinzelt Bläschen regelrecht weggewischt werden und nur noch an wenigen Orten größere Bläschen fest ortsgebunden auf der Oberfläche verharren.

Bei der Vakuumfiltration konnte eine höhere Blasenaktivität beobachtet werden als bei der Rückspülung, wenn normales DI-Wasser als Rückspülfluid verwendet wurde. Große Bläschen weisen bei den Beschallungsmodi »degas« und »sweep« eine deutlich höhere Beweglichkeit auf als bei einer gleichmäßigen Anregungsamplitude. Bei kleinen Bläschen lässt sich ein »Springen« von einer Position zur anderen beobachten. Bei der Ultraschallfrequenz von 130 kHz lässt sich insgesamt eine geringere Beweglichkeit der Gasblasen beobachten.

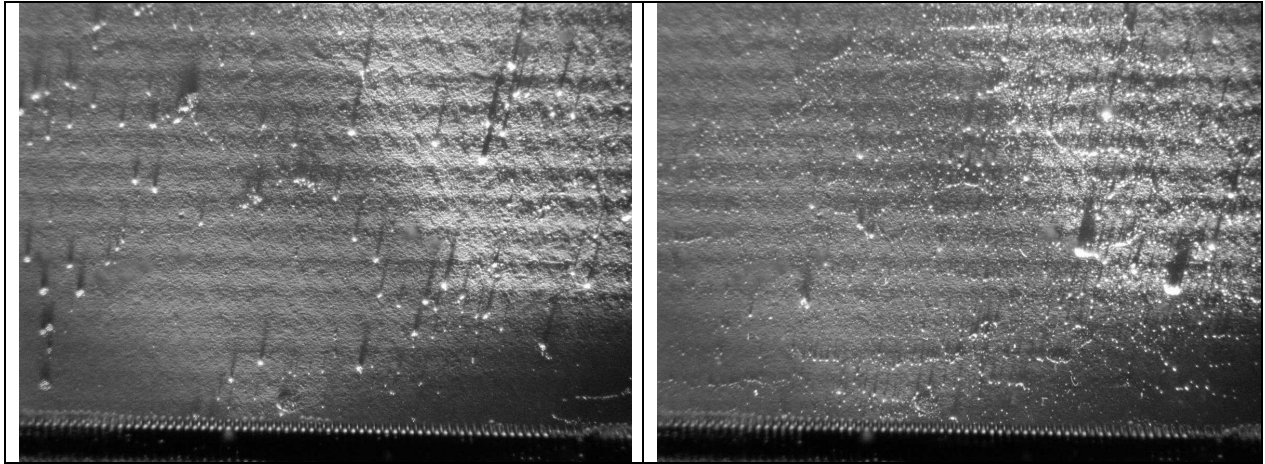


Bild 4-38: Bläschenaktivität auf der Oberfläche einer Keramikmembran bei der Rückspülung mit gasgesättigtem Wasser; links bei 35 kHz und rechts bei 130 kHz.

4.5 Bewertungsparameter für die ultraschallunterstützte Filtration

Im Folgenden werden Parameter eingeführt, die zur Bewertung der Filtration unter Einkopplung von Leistungsumschall dienen sollen. Für die Bewertung von Filtrationsversuchen mit permanenter Beschallung oder von Filtrationsversuchen mit periodischen Reinigungsvorgängen werden Parameter benötigt, die Unterschiede und Veränderungen in einem bestimmten Zeitintervall angeben (vgl. Kap. 4.5.1). Bei der Untersuchung von einzelnen Ultraschallreinigungsmechanismen und verschiedenen Einflussgrößen der Ultraschallreinigung wurden weitere Bewertungsparameter notwendig, die die Wirksamkeit eines einzelnen Reinigungsvorgangs aufzeigen sollen (vgl. Kap. 4.5.2).

4.5.1 Vergleichsparameter für ein bestimmtes Zeitintervall

Die Glg. 4-10 gibt die Definitionsgleichungen des Parameters ϕ »Fluxverbesserung« für ein vorgegebenes Zeitintervall an. Für die Definitionsgleichung wurde der auf den transmembranen Druck bezogene Flux q gewählt, damit beide Betriebsarten bei konstantem Druck und bei konstanter Flux beschrieben werden können. Die »Fluxverbesserung« stellt die Verbesserung der Filtration mit Ultraschalleinkopplung gegenüber der Filtration ohne Ultraschalleinkopplung dar.

In der Betriebsart »konstanter Flux« beschreibt ϕ genau genommen nicht die Fluxverbesserung, sondern die Verringerung des transmembranen Drucks (Glg. 4-10 b).

$$q_{\text{tmUS}} = q_{\text{oUS}} \cdot (1 + \phi)$$

$$\text{mit } q = \frac{v_p}{\Delta p_{\text{tm}}} \quad \text{Glg. 4-10}$$

$$\Rightarrow v_{p,\text{mUS}} = v_{p,\text{oUS}} (1 + \phi) \quad \text{für } \Delta p_{\text{tm}} = \text{konst} \quad \text{Glg. 4-10 a}$$

$$\Rightarrow \Delta p_{\text{tm,oUS}} = \Delta p_{\text{tm,mUS}} (1 + \phi) \quad \text{für } v_p = \text{konst} \quad \text{Glg. 4-10 b}$$

Die Glg. 4-11 gibt die Definitionsgleichung des Bewertungsparameters ε »Veränderungsfaktor des spezifischen Energiebedarfs« an. In Glg. 4-11 entspricht e dem spezifischen Energiebedarf aus Glg. 4-6. Der »Veränderungsfaktor des spezifischen Energiebedarfs« ε gibt an um welchen Faktor sich der spezifische Energiebedarf für die Filtration durch den Eintrag von Ultraschall erhöht oder erniedrigt.

$$e_{\text{mUS}} = \varepsilon \cdot e_{\text{oUS}} \quad \text{Glg. 4-11}$$

Zur Bestimmung des spezifischen Energiebedarfs e bei Versuchen mit periodischen Reinigungsvorgängen wurden die momentane hydraulische Leistung und die Leistung für den Reinigungsvorgang aufintegriert, so dass der spezifische Energiebedarf einen Mittelwert für den betrachteten Bereich darstellt. Im Fall des Kapillarmembranmoduls (Dead-End-Filtration) setzten sich die Reinigungsvorgänge aus Überströmreinigungen und Rückspülungen mit und ohne Ultraschall zusammen. Der hydraulische Energiebedarf für die Überströmreinigungen und die Rückspülungen konnte zur Bestimmung von ε vernachlässigt werden, da er für beide Module dem mit Ultraschalleinkopplung und dem Referenzmodul den gleichen Wert annimmt.

4.5.2 Vergleichsparameter für einzelne Reinigungsvorgänge

Zur Bewertung einzelner Reinigungsvorgänge werden die Filtrationsparameter transmembrane Druckdifferenz und Flux vor und nach dem Reinigungsvorgang betrachtet. Die Glg. 4-12 gibt die Definition der »Reinigungseffizienz« κ an. Formuliert mit dem auf den Transmembrandruck bezogenen Flux q in Glg. 4-12 ist die »Reinigungseffizienz« κ sowohl für die Betriebsart »konstante Druckdifferenz« als auch für die Betriebsart »konstanter Flux« für einen einzelnen Reinigungsvorgang gültig. Die »Reinigungseffizienz« κ beschreibt die Fluxverbesserung, die sich aufgrund einer einzelnen Reinigungsmaßnahme ergibt. Die Glg. 4-12 a) und b) zeigen wie sich die Bestimmungsgleichung für die »Reinigungseffizienz« κ in den Betriebsarten »konstante Druckdifferenz« und »konstanter Flux« vereinfachen.

$$q_{\text{nachRV}} = q_{\text{vorRV}} \cdot (1 + \kappa)$$

$$\text{mit } q = \frac{v_p}{\Delta p_{\text{tm}}} \quad \text{Glg. 4-12}$$

$$\Rightarrow v_{p,\text{nachRV}} = v_{p,\text{vorRV}} (1 + \kappa) \quad \text{für } \Delta p_{\text{tm}} = \text{konst} \quad \text{Glg. 4-12 a}$$

$$\Rightarrow \Delta p_{\text{tm,vorRV}} = \Delta p_{\text{tm,nachRV}} (1 + \kappa) \quad \text{für } v_p = \text{konst} \quad \text{Glg. 4-12 b}$$

Glg. 4-13 gibt die Definitionsgleichung für den »Sauberkeitsgrad« υ an. Der »Sauberkeitsgrad« υ beschreibt den Grad der Wiederherstellung des ursprünglichen Reinwasserdurchflusses (RWF). Im Gegensatz zu der »Reinigungseffizienz« κ bezieht sich dieser Wert auf einen fixen Referenz-

wert. Man kann den »Sauberkeitsgrad« υ daher auch als absolute Reinigungswirkung gegenüber der relativen Reinigungswirkung κ verstehen. Die Gleichungen Glg. 4-13 a) und b) geben die Vereinfachungen an, die sich bei den Betriebsarten »konstanter Flux« und »konstanter Transmembrandruck« ergeben.

$$q_{\text{nachRV}} = \upsilon \cdot q_{\text{RWF}} \quad \text{Glg. 4-13}$$

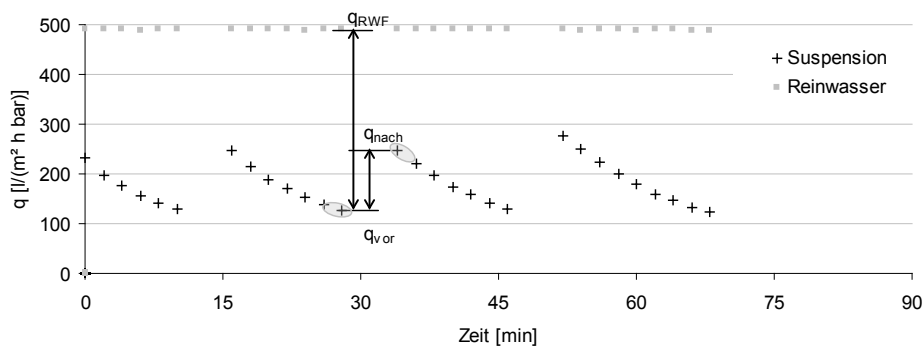
$$\Rightarrow v_{\text{P,nachRV}} = \upsilon \cdot v_{\text{P,RWF}} \quad \text{für } \Delta p_{\text{tm}} = \text{konst} \quad \text{Glg. 4-13 a}$$

$$\Rightarrow \Delta p_{\text{tm,RWF}} = \upsilon \cdot \Delta p_{\text{tm,nachRV}} \quad \text{für } v_p = \text{konst} \quad \text{Glg. 4-13 b}$$

In Bild 4-39 a) soll die Bedeutung der Bewertungsparameter »Reinigungseffizienz« κ und »Sauberkeitsgrad« υ an einem Reinigungsvorgang veranschaulicht werden. Um unabhängig von der Betriebsart zu sein, ist in Bild 4-39 a) die Veränderung des druckbezogenen Flux q bei der Filtration mit periodischer Reinigung aufgetragen.

Bild 4-39 b) zeigt wie sich die Bewertungsparameter bei der Betriebsweise »konstanter Flux« als Änderung der transmembranen Druckdifferenz darstellen.

a)



b)

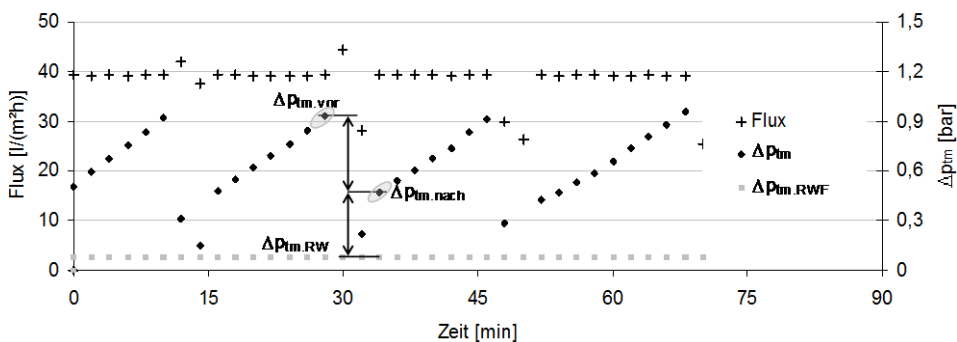


Bild 4-39:

a) Veranschaulichung der Reinigungseffizienz κ und des Sauberkeitsgrads υ an dem auf den Transmembrandruck bezogenen Flux.

b) Reinigungseffizienz κ und Sauberkeitsgrads υ bei der Betriebsweise »konstanter Flux«.

Bei den Versuchsauswertungen in Kapitel 5 hat sich gezeigt, dass die multiplikative Verknüpfung der beiden Bewertungsparameter κ und υ eine weitere hilfreiche Bewertungsgröße darstellt. Diese Art der Bewertung von Reinigungsvorgängen wird bei den Versuchen in Kapitel 5.4.3 bis 5.4.4 mit den Ultrafiltrationsmodulen interessant, bei denen nach längeren Filtrationsintervallen nicht mehr von einer gleichen Grundverschmutzung der Membranen ausgegangen werden kann. Die Verknüpfung der beiden Parameter lässt sich so verstehen, dass die »Reinigungseffizienz« κ (relative Reinigungswirkung) durch den »Sauberkeitsgrad« υ (absolute Reinigungswirkung) gewichtet wird. Es ist unmittelbar einsichtig, dass eine hohe relative Reinigungswirkung an einer stark verschmutzten Membran wesentlich leichter zu erreichen ist, als bei einer fast sauberen Oberfläche. Zum Vergleich verschiedener Reinigungsvorgänge erscheint es daher sinnvoll, dass Reinigungsvorgänge durch einen kleinen Wert für den »Sauberkeitsgrad« υ abgewertet werden, wenn sie beispielsweise eine große relative Fluxverbesserung κ hervorrufen, aber der gereinigte Zustand noch weit entfernt vom ursprünglich, sauberen Zustand der Membran ist. Reinigungsvorgänge mit geringer relativer Verbesserung (»Reinigungseffizienz« κ), die jedoch eine fast saubere Membran noch weiter reinigen, werden durch einen hohen Wert des »Sauberkeitsgrad« υ aufgewertet. Das Produkt $\kappa \cdot \upsilon$ wird im Folgenden gewichtete »Reinigungsgüte« bezeichnet.

4.6 Charakterisierung der untersuchten Stoffsysteme

In der Arbeit wurden unterschiedliche Stoffsysteme verwendet. Die Filtrationsversuche sollten mit dem Stoffsystem »natürliches Oberflächenwasser« unter möglichst realistischen Verhältnissen in Bezug auf die Partikelkonzentration im Feedwasser und die sich ausbildende Deckschicht stattfinden. Argumente für die Verwendung des Stoffsystems Laponite sind die einfache Handhabbarkeit und die gute Möglichkeit, die Partikel anzufärben. Mit der Verwendung des verdünnten Magermilchpulvers sollte die Methode an einem weiteren schwerfiltrierbaren Stoffsystem mit hoher praktischer Relevanz getestet werden. Die Stoffsysteme Titandioxid und Quarzmehl sind im Forschungsbereich der Membranfiltration vielfach untersucht und ihre Dispersionseigenschaften lassen sich definiert einstellen, so dass bei diesen Stoffsystemen eine gute Vergleichbarkeit mit anderen Arbeiten gewährleistet ist.

4.6.1 Laponite

Mit dem synthetischen Schichtsilikat Laponite RD von der Firma Rockwood Clay Additives werden kolloidale Deckschichten auf der Membran erzeugt. Laponite gehört zur Familie der Schichtsilikate und ähnelt in Zusammensetzung und Struktur dem natürlichen Tonmineral Hektorit, ist aber wesentlich kleiner.

Die empirische Formeleinheit lautet $\text{Na}^{+0,7}[(\text{Si}_8\text{Mg}_{5,5}\text{Li}_{0,3})\text{O}_{20}(\text{OH})_4]^{-0,7}$. Das Ladungsdefizit pro Zelleinheit beträgt 0,7. In deionisiertem Wasser suspendiertes Laponite liegt als scheibenförmiger Kristall (Bild 4-40; links) mit einem Durchmesser von 25 nm und einer Höhe von 0,92 nm vor. Laponite bildet in wässrigen Lösungen abhängig von der Ionenstärke und der Scherbeanspruchung gelartige Agglomerate. Im deionisierten Wasser kann sich durch die elektrostatische Anziehung der Partikeloberfläche und den osmotischen Druck der Flüssigkeit eine elektrische Doppelschicht mit Natriumionen so ausbilden, dass die negative Restladung der Flächen umgekehrt wird (Bild 4-40; Mitte). Einzelne Primärteilchen sind positiv geladen, stoßen sich ab und bleiben

dispergiert. Bei höherer Ionenstärke zum Beispiel durch härteres Wasser (Ca^{2+} -, Mg^{2+} -Ionen) verringert sich der osmotische Druck. Die positiv geladenen Ionen können stärker an das Partikel angezogen werden, so dass eine negative Restladung vorhanden bleibt. Die schwachen elektrostatischen Kräfte zwischen Partikelkante und Oberfläche führen bei geringer Scherbeanspruchung zur Ausbildung eines Gels mit einer »Kartenhaus-Struktur« (Bild 4-40; rechts).

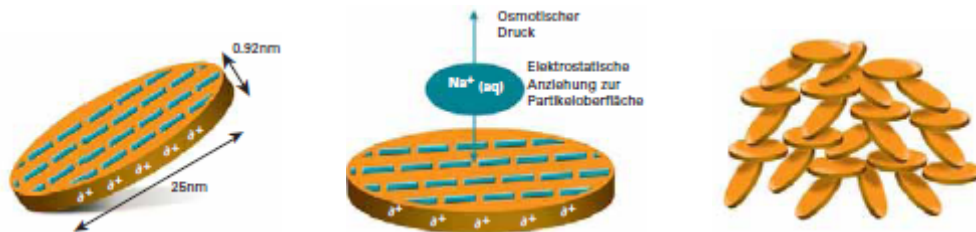


Bild 4-40: Einzelner Laponitkristall, dispergiertes Primärteilchen und Kartenhausstruktur (Rockwood 2006).

Das stark thixotrope Gel, das sich bei geringer Scherbeanspruchung und Anwesenheit von Salzen ausbildet, ist als Deckschicht auf Membranen eher untypisch. Die Entscheidung, mit diesem Stoffsystem zu arbeiten, ist in der guten Färbbarkeit begründet, die in Zusammenarbeit mit einer anderen Forschungseinrichtung gefordert war. Laponite ist durch den Fluoreszenzfarbstoff Rhodamin 6G anfärbbar. In wässriger Lösung findet eine Adsorption von Rhodamin 6G an dem synthetischen Schichtsilikat statt. Das so angefärbte Laponite konnte von dem Projektpartner Biofilm Centre Duisburg auf der Membran als partikuläres Fouling mittels konfokaler Laser-Scanning-Mikroskopie neben anderen fluoreszierenden Partikeln und Mikroorganismen visualisiert werden. Die gute Färbbarkeit ist für die Visualisierung der Reinigungsvorgänge in Kapitel 5.1.2 sehr nützlich.

Laponite besitzt gegenüber natürlichen Tonmineralien den Vorteil, frei von Verunreinigungen (beispielsweise kristallinem Quarz und Cristobalit) vorzuliegen. Das synthetische Schichtsilikat lässt sich leicht ohne Einwirkung von Hitze und starker Scherkräfte suspendieren. Die Suspension ist in wässrigen Lösemitteln farblos.

4.6.2 Titandioxid

Ein typisches feindisperses System mit einer engverteilten Partikelgröße im Nanometerbereich wurde mit einer Suspension aus Titan(IV)oxid der Firma Merck Chemicals untersucht. Bei diesem Partikelsystem besteht eine deutliche Abhängigkeit des Zeta-Potenzials vom pH-Wert. Tabelle 4-7 stellt die wichtigsten Eigenschaften des Stoffsystems zusammen. Eine detaillierte Analyse des Stoffsystems mit rasterelektronenmikroskopischen Aufnahmen der Partikelform, der Partikelgrößenverteilung und dem Verlauf des Zeta-Potenzials findet sich z.B. in Töpel (2000).

Tabelle 4-7: Wichtige Eigenschaften des Stoffsystems Titandioxid.

Material	TiO ₂
Dichte	4200 kg/m ³
X _{50,3}	250 nm
X _{50,2}	247 nm
σ _{in}	0,11
Isoelektrischer Punkt	pH 3,5

4.6.3 Natürliches Oberflächenwasser

Für die orientierenden Versuche bei der Vakuumfiltration wurde natürliches Oberflächenwasser aus einem stehenden Gewässer (Opfinger See) in der Nähe von Freiburg entnommen. Tabelle 4-8 zeigt die Ergebnisse der Partikelzählung und Trübungsmessung zur Charakterisierung des Rohwassers. Hierzu kam ein Wasserpartikelzähler der Firma Art Instruments (ARTI; WPC 2000) und ein Trübungsmessgerät der Firma Dr. Lange (Trübungs-Prozessphotometer, Contrub) zum Einsatz. Beide Geräte können im Durchfluss betrieben werden.

Tabelle 4-8: Ergebnis der Partikelzählung und Trübungsmessung

Partikel 2-8 µm [P/ml]	Partikel 8- 15 µm [P/ml]	Partikel 15- 50 µm [P/ml]	Partikel > 50 µm [P/ml]	Trübung Feed [FNU]
20.205	1.268	184	2	50

Mit dem Küvettentest der Firma Hach-Lange (TOC-Küvettentest; LCK-380; Messbereich 2-65 mg/l) wurde der gesamte organische Kohlenstoff (TOC) bestimmt (TOC = 6,13 mg/l).

Für die Langzeittests an natürlichem Oberflächenwasser (Kap. 5.4.1) wurde etwa einmal pro Woche zwei Kubikmeter Wasser aus dem Fließgewässer »Dreisam« entnommen und in der Versuchsanlage zirkuliert. Der Anteil der Foulingbildner ist natürlichen Schwankungen unterlegen.

Um die Auswirkung der Rohwasserqualität auf das Membranfouling und ggf. die Effizienz von Reinigungsverfahren untersuchen zu können, wurden am Biofilm Centre an der Universität Duisburg ausgewählte Parameter der Rohwässer untersucht, mit welchen die Langzeitversuche durchgeführt wurden. Die Wasserproben stammen von dem Fließgewässer Dreisam in Freiburg. Zur Charakterisierung des Rohwassers wurden folgende Untersuchungen durchgeführt:

- Bestimmung der Partikelgrößenverteilung (Beckman Coulter; LS 13 320; Laser Diffraction Particle Size Analyzer; siehe Bild 4-41),
- Bestimmung mikrobiologischer Parameter (Gesamtzellzahl, Koloniezahl bei 20 °C und 36 °C, *Escherichia coli* und coliforme Bakterien) am Biofilm Centre (vgl. Anhang 5, Tabelle A5-0-1),
- Bestimmung physikalischer und chemischer Parameter in Anlehnung an die Rohwasserrichtlinie Nordrhein-Westfalen, Parametergruppe I, am Rheinisch-Westfälischen Institut für Wasserforschung (IWW; Mülheim an der Ruhr; vgl. Anhang 5, Tabelle A5-0-1) und

- eine differenzierte Analytik des gesamten organischen Kohlenstoffs (TOC) mit dem LC-OCD Verfahren im DOC-Labor Dr. Huber (Karlsruhe).

Die Partikelgrößenbestimmung ergibt einen Medianwert $d_{50,3} = 34,6 \mu\text{m}$ ($d_{50,2} = 3,5 \mu\text{m}$), die mittlere Partikelgröße $81,4 \mu\text{m}$. Bei Vergleich mit den Anforderungen gemäß der Trinkwasserverordnung (vom 21.05.2001) lagen die physikalischen und chemischen Parameter meist deutlich unter den entsprechenden Grenzwerten, mit Ausnahme der erhöhten Werte der Trübung für die Dreisam.

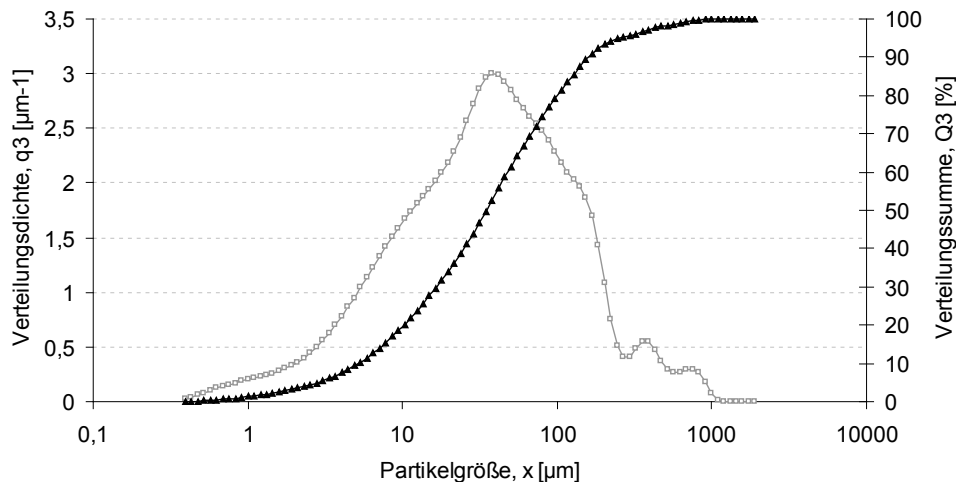


Bild 4-41: Partikelgrößenverteilung des natürlichen Oberflächenwassers aus dem Fluss Dreisam nach Einengung von 6 l durch Nutschenfiltration mit $0,2 \mu\text{m}$ Membran.

Die LC-OCD Analyse der Rohwässer zeigte einen relativ niedrigen TOC-Gehalt der Dreisam mit $1,3 \text{ mg/L}$, was ein typischer Bereich für anthropogen kaum belastete Rhein-Zuflüsse ist.

4.6.4 Trockenmilch

Neben dem Funktionsnachweis der Methode an realem Oberflächenwasser und Titandioxidsuspension wurde mit Trockenmilch (Sprühdarmmilchpulver; BäKo Südbaden eG) als Stoffsystem gearbeitet. Das Stoffsystem bildet sehr dünne schlecht durchlässige Deckschichten aus, so dass die Ultraschallreinigungsmethode mit kurzen Filtrationsintervallen und geringen Feedvorlagevolumen untersucht werden kann.

Der Wasseranteil von Milch liegt bei $87,5\%$. Milchpulver kann bis zu einem Restgehalt von etwa 5% entwässert werden. Bei den Experimenten wurde mit einem Pulveranteil von $2,5 \text{ g/l}$ gearbeitet. Das entspricht einer 85-fach verdünnten Trockenmilch (Pulverkonzentration 212 g/l). Die Sprühdarmmilch setzt sich aus Fett, Protein, Lactose, Asche und Wasser zusammen. Die Anteile sind in Tabelle 4-9 ersichtlich. Für die Dichte des Milchpulvers wird mit dem Literaturwert für Sprühdarmmilchpulver 1450 kg/m^3 gerechnet (Töpel 2004).

Tabelle 4-9: Zusammensetzung des verwendeten Magermilchpulvers (BMI 2010)

Fett	Protein	Lactose	Asche	Wasser
1,0	34,5 - 37,0	49,0 - 54,0	7,2 - 8,2	5,0
Angaben in %				

Partikelgrößenverteilung

Mit dem Analysegerät Beckman Coulter (LS 13 320; Laser Diffraction Particle Size Analyzer) wurde die Partikelgrößenverteilung gemessen. Dafür wurde eine 200 ml Probe mit einem Ultra-Turrax der Firma IKA (T 10 basic; Drehzahl 8 -30.000 1/min) für 2 min bei einer Drehzahl von etwa 30.000 1/min dispergiert. Die Maxima der Verteilungshäufigkeiten lassen sich etwa den Milchbestandteilen zuordnen, da von den Einzelfractionen die Partikelgrößenverteilung bekannt ist. So ist das Maximum der Volumenverteilung (q_3 -Verteilung) bei etwa 100 nm in Bild 4-42 dem Proteinbestandteil der Caseinmicellen zuzuordnen. Das Maximum bei 200 μm gehört zu den Fetttropfchen, dazwischen sind die Milchzucker und Aschen einzuordnen. Der Medianwert der Volumenverteilung liegt in dieser Messung bei $d_{50,3} = 2,54 \mu\text{m}$ ($d_{50,2} = 0,16 \mu\text{m}$). Neben der Volumenverteilung wird in Bild 4-42 auch die Anzahl und Flächenverteilung dargestellt. Die Flächenverteilung (in Bild 4-42 schwarz) ist für die Abschätzung der Zeit bis zur vollständigen Belegung der Membran von Interesse.

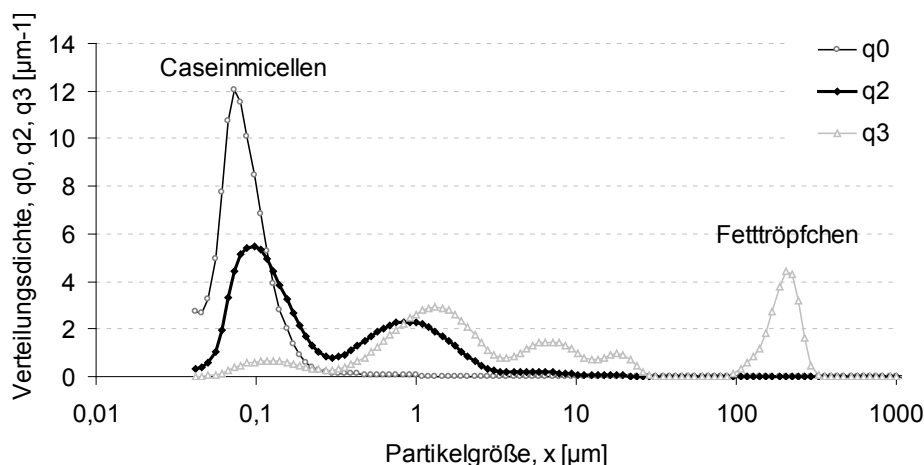


Bild 4-42: Partikelgrößenverteilung von Sprühmagermilchpulver der Fa. BäKo Südbaden eG nach Ultraschalldispersion.

4.6.5 Quarzmehl

Für die Laborversuche zur ultraschallunterstützten Rückspülung (Kap. 5.2.2) wurde das Quarzmehl Sikron SF600 der Firma Quarzwerke in Frechen verwendet. Es handelt sich um deutlich größere Partikel als das Titandioxid-Pulver mit einer mittleren Korngröße von 3 μm . Quarzmehl besteht zu 97,5% aus Siliziumoxid (SiO_2).

Tabelle 4-10: Wichtige Eigenschaften des Stoffsystems Sikron SF600 (Quarzwerke 2004).

Material	SiO ₂
Dichte	2650 kg/m ³
Schüttdichte	540 g/m ³
mittlere Korngröße x _{50,3}	3 μm
obere Korngröße x _{95,3}	10 μm
pH-Wert	7

Tabelle 4-11 gibt den Rückstand der Siebung mit verschiedenen Maschenweiten in Volumenprozent an.

Tabelle 4-11: Korngrößenangaben für Sikron SF600 (Quarzwerke 2004).

Korndurchmesser [μm]	Cilas-Granulometer [Rückstand in Vol.-%]
12	2
8	13
6	24
4	42
2	65

4.6.6 Abschätzung der Zeit bis zur Ausbildung einer ersten Deckschicht

Zur Abschätzung der Ausbildung einer Deckschicht soll zunächst ein monodisperses Stoffsystem betrachtet werden (Bild 4-43). Bei der Flächenbelegung wird die genau geometrische Anordnung der sphärischen Partikel vernachlässigt. Für Abschätzung soll die vereinfachte Annahme gelten, dass die Membranfläche gerade vollständig mit Partikeln bedeckt ist, wenn gilt:

$$A_M = n \cdot A_p = n \cdot \frac{d_p^2}{4} \cdot \pi \quad \text{Glg. 4-14}$$

Eine Porosität der Deckschicht wird vernachlässigt.

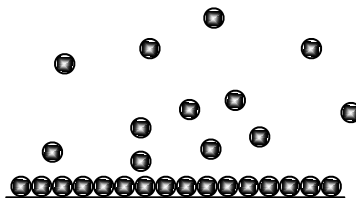


Bild 4-43: Deckschicht eines monodispersen Systems.

Mit der Massenkonzentration und der Dichte der Partikel lässt sich die Partikelzahl pro Volumen ermitteln:

$$c_p = \frac{m_p}{V_{ges}} = \frac{n \cdot \rho_p \cdot V_p}{V_w + n \cdot V_p} \rightarrow n = \frac{c_p \cdot V_w}{V_p \cdot (\rho_p - c_p)} \quad \text{Glg. 4-15}$$

Aus Glg. 4-14 und Glg. 4-15 lässt sich die Filtrationszeit bis zur Ausbildung einer ersten geschlossenen Deckschicht abschätzen. Als Maß für den Fluss durch die Membran wurde der Flux v_p verwendet.

$$\text{mit } V_w = v_p \cdot A_M \cdot t, \quad V_p = \frac{d_p^3 \pi}{6}, \quad A_p = \frac{d_p^2}{4} \pi \quad \text{Glg. 4-16}$$

$$t_{DS} = \frac{2}{3} \cdot \frac{d_p \cdot (\rho_p - c_p)}{c_p \cdot v_p}$$

Die obige Abschätzung wird nun für polydisperse Stoffsysteme erweitert, indem die Partikelgrößenverteilung berücksichtigt wird. Unter einer vollständigen Bedeckung sei vereinfacht die Projektion der Partikel auf die Membranfläche zu verstehen, somit ist die Flächenverteilung q_2 aus Bild 4-42 zu verwenden. Die sphärisch angenommenen Partikel werden nicht im Sinne einer dichten Kugelpackung aneinander geschoben, sondern werden entsprechend ihrer Querschnittsfläche aneinandergelegt. Eine vollständige Bedeckung kann bei dieser stark vereinfachten Annahme nur in mehreren Partikellagen realisiert werden.

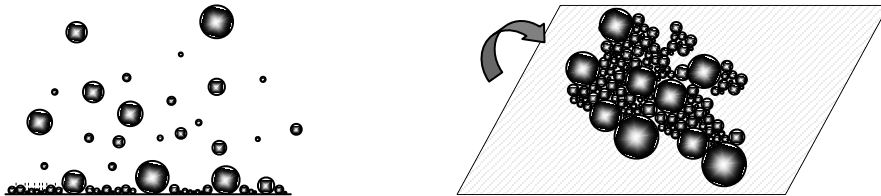


Bild 4-44: Vereinfachte Vorstellung zur Ausbildung einer Deckschicht eines polydispersen Systems.

Analog zu Glg. 4-16 gilt nun mit dem Medianwert des Partikeldurchmessers $x_{50,2}$ bezogen auf die Flächenverteilung für die Zeit bis zur vollständigen Belegung der Membranfläche:

$$t_{DS} = \frac{2}{3} \cdot \frac{x_{50,2} \cdot (\rho_p - c_p)}{c_p \cdot v_p} \quad \text{Glg. 4-17}$$

Bild 4-45 zeigt eine Auswertung von Glg. 4-17. Bei einem mittleren Partikeldurchmesser von $x_{50,2} = 0,16 \mu\text{m}$, einer Partikeldichte $\rho_p = 1450 \text{ kg/m}^3$, einer Partikelkonzentration von $c_p = 2,5 \text{ g/l}$ und einer Flächenbelastung von $100 \text{ l/(m}^2\text{h)}$ errechnet sich damit beispielsweise eine Zeit bis zur vollständigen Flächenbelegung von $t = 2,2 \text{ s}$. Bei der Konzentration von 212 g/l für unverdünnte Magermilch ist die einlagige Belegung nach etwa 22 ms vollzogen.

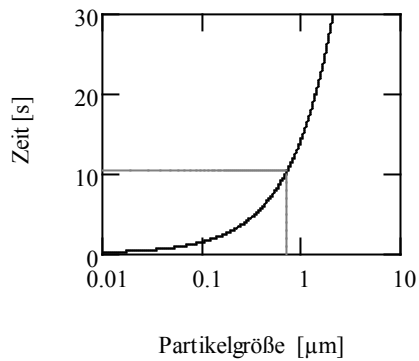


Bild 4-45: Abgeschätzte Zeit bis zur Ausbildung einer Deckschicht für das Stoffsystem Trockenmilch in Abhängigkeit von der Partikelgröße für $\rho_p = 1450 \text{ kg/m}^3$; $c_p = 2,5 \text{ g/l}$; $v_p = 100 \text{ l/(m}^2\text{h)}$.

Tabelle 4-12 zeigt die mit Glg. 4-17 abgeschätzten Zeiten bis zur Ausbildung einer Deckschicht für die verschiedenen Stoffsysteme bei typischen verwendeten Werten für Konzentration und Flux.

Tabelle 4-12: Vergleich der Zeiten zur Ausbildung einer ersten geschlossenen Deckschicht für die verschiedenen Stoffsysteme

Stoffsystem	Dichte ρ_p [kg/m ³]	Mittlerer Partikeldurchmesser $x_{50,2}$ [µm]	Konzentration c_p [g/l]	Flux v_p [l/(m ² h)]	Zeit bis zur Ausbildung einer Deckschicht t_{DS} [s]
Laponite	1000	0,025	0,1	130	4,6
			0,1	300	2
			0,1	900	0,7
			1	300	0,2
			5,4	60	0,2
Titandioxid	4200	0,247	1	600	4,2
			2	400	3,1
			2	1000	1,2
			12,87	140	1,4
Natürliches Oberflächenwasser	~800	3,3	$6,13 \cdot 10^{-3}$	60	17.000 (~4,8h)
			$6,13 \cdot 10^{-3}$	120	8.600 (~2,4 h)
Trockenmilch	~1450	0,16	2,5	40	5,6

4.6.7 Gassättigung des Rückspülwassers

Bei einigen Versuchen wurde zur Beeinflussung der Gasblasenkonzentration und Kavitationsaktivität der Anteil an physikalisch gelöstem Gas verändert. Die einfachste Methode hierzu ist, mit dem gutlöslichen Kohlendioxid zu arbeiten. Vollentsalztes, partikelfreies Laborwasser (DI-Wasser) wurde dazu mit einer Tafelwasserpatrone mit Kohlendioxid nahezu gesättigt und in verschiedenen Mischungsverhältnissen mit ungesättigtem DI-Wasser verwendet. Zur Bestimmung des Anteils an gelösten Gasen wurde ein Küvettentest zur Bestimmung der Kohlendioxid- und Carbonatkonzentration der Firma Hach-Lange (Carbonat, Kohlendioxid; LCK 388; Messbereich Kohlendioxidkonzentrationen 55-550 mg/l) verwendet. Bei dieser Methode ist die Veränderung des

pH-Wertes durch die Kohlensäure zu berücksichtigen. Die Dispersionseigenschaften des Stoffsystems und die Bindungskräfte der Deckschicht können dadurch beeinflusst werden.

4.7 Methoden zur Bestimmung der Membranintegrität

Zur Kontrolle der Membranschädigung wird die Integrität der Membran ermittelt. Zunächst wurde eine Online-Trübungsmessung oder Partikelzählung in den Permeatkanal integriert (Lauterborn 2008). Speziell bei der periodischen Rückspülung ist diese Messung jedoch schwierig zu interpretieren. Nach erfolgter Reinigung gibt es zunächst Trübungsstöße und hohe Zahlen auch größerer Partikel, häufig aufgrund von auftretenden Bläschen. Diese könnten bereits als Hinweis auf Risse und vergrößerte Poren interpretiert werden. Typischerweise verschwinden im Verlauf des Filtrationszyklus die größeren Partikel und höhere Trübung wieder, da sich größere Poren zusetzen und die Filtration deckschichtkontrolliert verläuft.

Integritätsmessung – Druckhaltetest

Um eine möglichst eindeutige Aussage bezüglich der Membranintegrität zu bekommen, wurde daher der von der Herstellerfirma der Membranmodule empfohlene Druckhaltetest durchgeführt. Die Kapillarkräfte verhindern in Verbindung mit den feinen Poren, dass Luft das Wasser aus den Poren der Membran verdrängen kann und die hydrophile Membran passieren kann. Bei einem Prüfdruck mit Luft von 0,8 bar muss bei einer intakten Porenstruktur der Membran, das Durchbrechen von Luft vollständig verhindert werden. Bei vergrößerten Poren, Membranbrüchen, Rissen oder anderen Schädigungen lässt sich ein Ausperlen der Luft beobachten, der Prüfdruck kann nicht gehalten werden.

Integritätstests wurden jeweils vor und nach einer Versuchsphase durchgeführt. Bei den Langzeitversuchsreihen (Kap. 5.4.1) wurde die Filtration für Integritätstests auch zwischendurch unterbrochen.

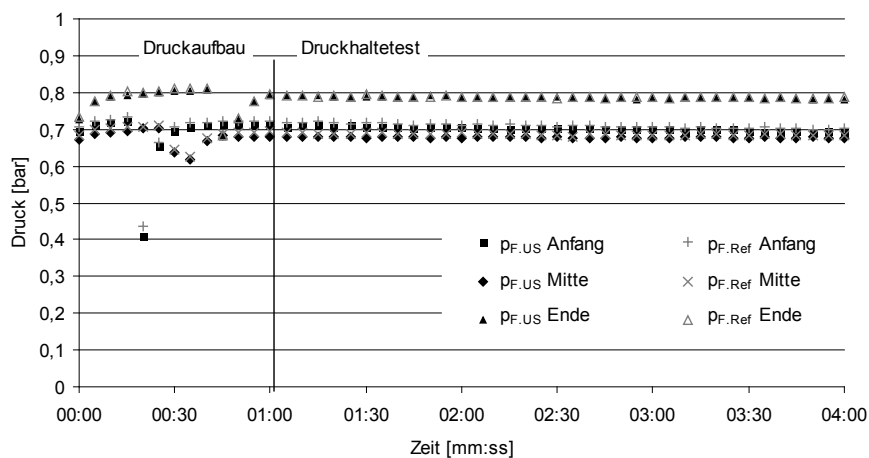


Bild 4-46: Integritätstest mit dem Luftdruckhaltetest für die Versuchsreihe Bild 5-29.

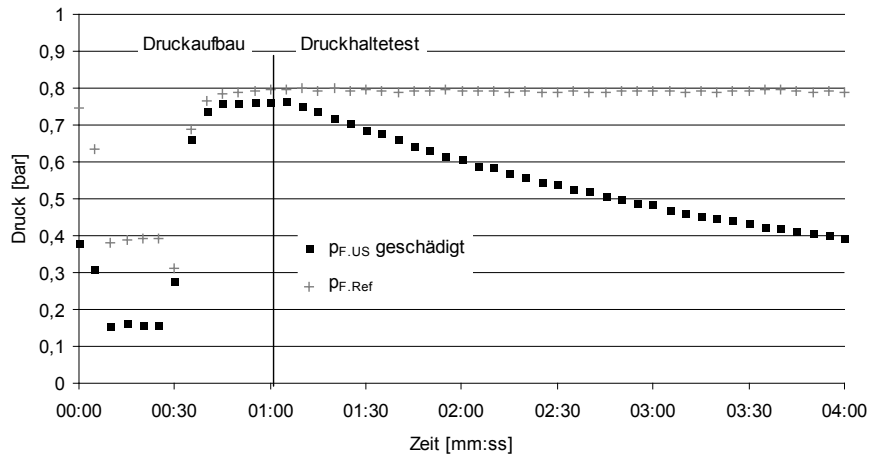


Bild 4-47: Beispiel für eine Integritätsmessung mit Membranschäden an dem US-Modul; Versuchsreihe Bild 5-33.

Bild 4-46 zeigt exemplarisch die Messreihen für den Druck bei einem Integritätstest (Messung zur Versuchsreihe in Bild 5-29). Zunächst wird die Feedseite des Moduls belüftet und das Wasser verdrängt. Nach dem Schließen der Ventile kann der Prüfdruck von etwa 0,8 bar eingestellt werden. Nach einer Minute werden alle Ventile geschlossen, so dass der Luftdruck nur durch die Membran bei einem Luftdurchtritt durch die Poren über die Permeatseite abgebaut werden könnte. In Bild 4-46 wird vor dem Filtrationsversuch, bei einer Überprüfung zwischendurch und am Ende der Versuchsreihe der Integritätstest jeweils für das Ultraschall und Referenzmodul aufgenommen. Die Membranen weisen keine Schäden auf. Eine geringfügige Druckabnahme lässt sich auf Diffusionsvorgänge zurückführen. Im Gegensatz dazu zeigt Bild 4-47 das Ergebnis eines Druckhaltetests, bei dem das Modul mit Ultraschallreinigung deutliche Schäden an der Membran aufweist. Unmittelbar nach Schließen der Ventile für den Prüfdruck fällt der Druck im »Ultraschallmodul« deutlich ab.

5 Ergebnisse und Diskussion der Experimente

Die Vorstellung der experimentellen Ergebnisse erfolgt gemäß der Systematik aus Kapitel 3. Zunächst werden die Ergebnisse bei der ultraschallunterstützten Crossflow-Filtration diskutiert, dann die ultraschallunterstützten Reinigungsvorgänge bei der Dead-End-Filtration und abschließend die Versuche zur ultraschallunterstützten Rückspülung an einem Kapillarmembranmodul.

5.1 Ultraschallunterstützte Crossflow-Filtration

5.1.1 Versuchsreihe: Leistungsultraschalleintrag bei niedrigen und hohen Frequenzen

Intention

Mit dieser Versuchsreihe soll die Wirksamkeit des Schalleintrags bei niedrigen und hohen Frequenzen während der Crossflow-Ultrafiltration gezeigt werden und Rückschlüsse auf die wichtigsten Reinigungsmechanismen und die Skalierbarkeit des Ansatzes gezogen werden. Die Versuche sollen die positiven Ergebnisse aus der Literatur (vgl. Kap. 2.6.3) überprüfen. Um gleichzeitig einen Ansatz zu verfolgen, bei dem eine Übertragung auf übliche Flachmembranmodulkonstruktionen vorstellbar ist, wurde der Schalleintrag so gewählt, dass abstrahlende Fläche und Membranfläche senkrecht zueinander stehen. Der Schalleintrag erfolgt von der Seite in den Strömungskanal der Testzelle I (vgl. Kap. 4.2.2), mit diesem Strömungskanal soll ein durchströmter Zwischenraum beispielweise eines Membrankissenstapels nachgebildet werden.

Versuchsmethode

In dem in Kapitel 4.2.1 vorgestellten Teststand wird die Testzelle I (Kap. 4.2.2) eingebaut. Als Flachmembranen werden die Polymermembran Nadir Membran UP 150 und die Keramikmembran ITN-Nanopore 200 nm (Kap. 4.6.4) verwendet. Für jeden Filtrationslauf mit der Polymermembran wird eine neue Membran eingebaut. Für die Keramikmembranplatten konnte nicht für jeden Filtrationsversuch eine neue Membran eingesetzt werden. Die Membranen wurden durch manuelle Reinigungen vollständig regeneriert. Als Stoffsysteme kommen entweder angefärbtes Laponite RD in einer Konzentration von 100 mg/l (Kap. 4.6.1) oder Titandioxid in einer Konzentration von 1 g/l zum Einsatz (Kap. 4.6.2). Bei den Versuchen kann von einer Gassättigung der Suspension ausgegangen werden, da bei der Kreislaufführung der Konzentrationsstrom in den offenen Vorlagebehälter zurückfällt und für einen Lufteintrag in die Vorlagesuspension sorgt. Dies gilt für alle Versuche mit der in Kapitel 4.2.1 vorgestellten Testanlage zur druckgetriebenen Filtration mit verschiedenen Testzellen.

Die Versuchsreihe wird in der Betriebsart »konstanter Feeddruck« durchgeführt und der Fluxverlauf gemessen. Es werden Testläufe mit und ohne Ultraschall verglichen.

Versuchsdurchführung

Nach Einbau eines neuen Membranblattes wird die Membran zunächst für ca. 30 min mit Reinwasser bei dem späteren Filtrationsdruck eingefahren. Dabei sollen Hilfsmittel, die zur Konservie-

rung der Membran benutzt werden, ausgeschwemmt werden und eine erste Kompaktierung der Polymermembran stattfinden. In dieser Phase wird kontrolliert, ob unzulässig hohe Restverunreinigungen in der Anlage eine erneute Spülung notwendig machen.

Nach der Einfahrzeit wird das angesetzte Stoffsystem in den Vorlagebehälter dosiert. Bei konstantem Feeddruck werden die Druckdaten vor und hinter der Testzelle und auf der Permeatseite sowie der Permeat- und Konzentratvolumenstrom mitgezeichnet. Nach Einstellung eines stationären Fluxwertes wird die Messung abgebrochen oder eine Membranreinigung durchgeführt (siehe hierzu auch Kap. 4.2.1).

Die maximale elektrische Leistungsaufnahme des Ultraschallsystems beträgt 335 W. Es werden beide möglichen Frequenzen (35 kHz und 130 kHz) verwendet. Für die Crossflow-Versuchsreihe werden die Ultraschallbetriebsmodi »sweep« und »normal« verwendet (vgl. Kap. 4.3.1).

Versuchsergebnis

Bild 5-1 zeigt die Entwicklung des Flux und des spezifischen Energiebedarfs für das Stoffsystem Titandioxid und die Polymermembran Nadir UP 150. Weder der Ultraschalleintrag bei 35 kHz noch bei 130 kHz zeigt die erwartete Verbesserung. Der Endwert der Filtration ist im Gegensatz zu einer Filtration ohne Ultraschalleinsatz bei der Crossflow-Filtration mit Beschallung tendenziell schlechter. Die induzierten Ultraschalleffekte, die zu einer deutlichen Erhöhung des Fluxes beitragen sollen, sind nicht zu erkennen. Stattdessen besteht die Tendenz, dass die Ausbildung einer kompakteren weniger durchlässigen Partikelschicht durch die Beschallung gefördert wird. Da der zusätzliche Leistungseintrag der Beschallung keinen positiven Effekt auf den Flux hat, erhöht sich der spezifische Energiebedarf (in Bild 5-1; unten).

Bild 5-2 zeigt einen ähnlichen Verlauf für eine andere Kombination aus Stoffsystem und Membran. In diesem Fall wurde Laponite auf die keramische Membran ITN-Nanopore 200 nm auffiltrierte. Die Messung bei einer Beschallung von 130 kHz startet aufgrund von Restverunreinigungen im System von vorausgehenden Filtrationsversuchen bei geringeren Fluxwerten, als die beiden anderen aufgetragenen Messreihen. Entscheidend für die Crossflow-Filtration ist lediglich der dynamische Endwert. Auch hier bewirkt die Beschallung keine Fluxverbesserung. Entsprechend wirkt sich die zusätzliche eingetragene Leistung negativ auf den spezifischen Energiebedarf aus. In den beiden Beispielen (Bild 5-1 und Bild 5-2) steigt der spezifische Energiebedarf um mehr als das 20-fache im Vergleich zu einer Filtration ohne Ultraschall an.

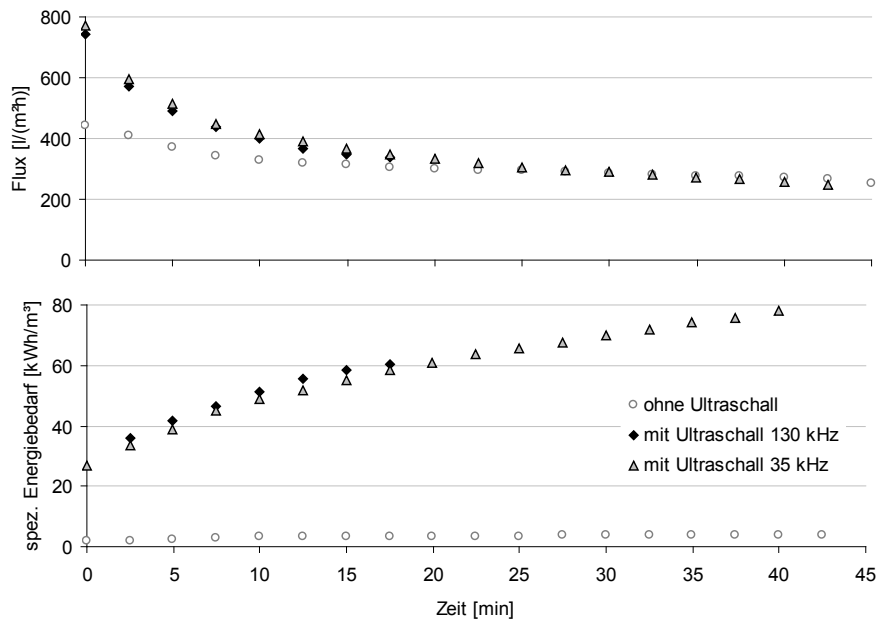


Bild 5-1: Fluxverlauf und spezifischer Energiebedarf;

$$c_s = 1 \text{ g/l TiO}_2; \text{ pH}10$$

$$\Delta p_{tm} = 1,5 \text{ bar};$$

$$v_{cf} = 0,1 \text{ m/s};$$

$$P_{US} = 325 \text{ W};$$

Polymermembran

Nadir UP 150;

Zeit bis zum Ausbilden einer Deckschicht nach Glg. 4-17:

$$t_{DS}(600 \text{ l/(m}^2\text{h)})=4,2\text{s}$$

Die Variation der Crossflow-Filtrationsparameter Überströmgeschwindigkeit und transmembrane Druckdifferenz sowie die Variation der Ultraschallparameter Leistung, Frequenz und Betriebsmodus führen zu keiner signifikanten Verbesserung des Fluxwertes.

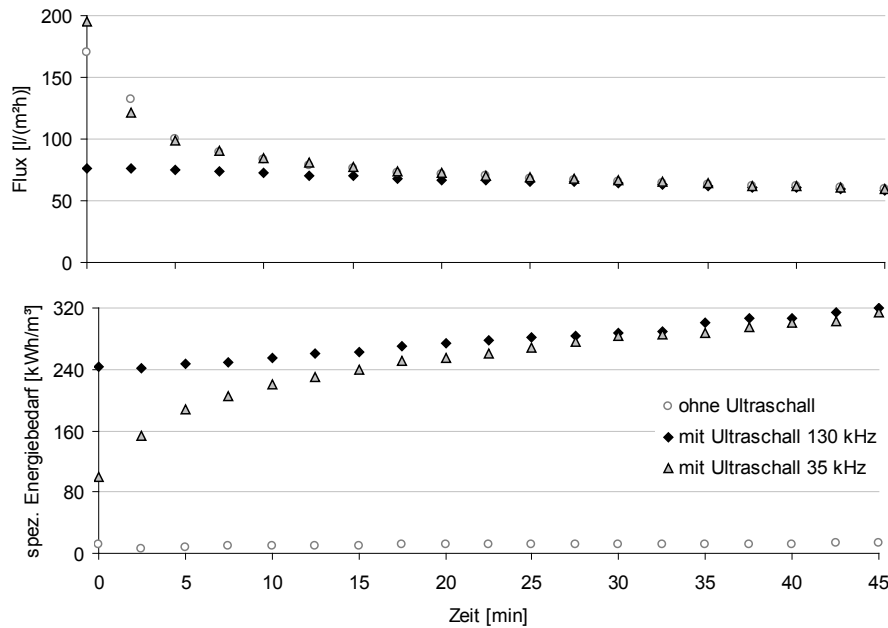


Bild 5-2: Fluxverlauf und spezifischer Energiebedarf;

$c_s = 0,1 \text{ g/l}$ Laponite;

pH6

$\Delta p_{tm} = 1,5 \text{ bar}$;

$v_{cf} = 0,1 \text{ m/s}$;

$P_{US} = 325 \text{ W}$;

keramische Membran; ITN-Nanopore 200 nm

Zeit bis zum Ausbilden einer Deckschicht nach Glg. 4-17

$t_{DS}(130l/(m^2h))=4,6s$

Erkenntnisse aus der Versuchsreihe

Materialschäden an Membran und Testzelle: Eine Schädigung der Membran durch die erosive Wirkung heftiger Blaskollapse trat bei den Crossflow-Experimenten auf der aktiven Filtrationsfläche nicht auf. Es ließen sich jedoch Schäden an der Membran in unmittelbarer Nähe der abstrahlenden Fläche beobachten.

In Bild 4-3 ist zu erkennen, dass die Polymerflächmembran über die gesamte Bodenplatte (4) gelegt wird. Die aktive Membranfläche befindet sich in dem Bereich 4a, wo die Membran an mehreren definierten Abzugsfeldern mit Permeatspacern unterlegt ist. In den Bereichen seitlich an der Bodenplatte 4 sind die geringsten Überströmgeschwindigkeiten zu erwarten und die höchste Kavitationsaktivität. Das Bild 5-3 zeigt ein Foto von den Schäden der Membran in diesem Bereich. Es sind deutlich kleine kraterartige Löcher zu erkennen, die typisch für die Materialschädigung durch Kavitation (Jetaufprall beim asymmetrischen Blaskollaps und Druckstoß; vgl. Kap. 2.3.5) sind. Das Foto ähnelt dem Ergebnis eines Aluminiumfolientests (vgl. Kap. 4.4), mit dem häufig die Kavitationsaktivität in Reinigungsbädern nachgewiesen wird (Muthukumar 2007, Koch 2010).

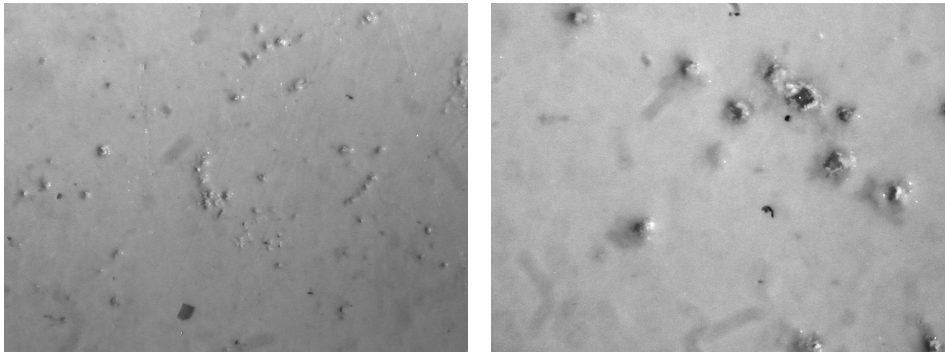


Bild 5-3: Geschädigte Polymermembran an den seitlichen Flanken der Bodenplatte.

Eine andere Art von Materialschädigung lässt sich an der Membrantestzelle beobachten. Nach längeren Beschallungsversuchen bei der höheren Frequenz (130 kHz) wurden Risse und plastisch verformte Oberflächen am Testzellendeckel oberhalb des Strömungskanals beobachtet. Die Absorption des Schallfeldes in dem PMMA sorgt lokal für starke Temperaturerhöhungen, die den Kunststoff schmelzen lassen. Dieser Effekt wurde aufgrund der permanenten Kühlung durch das vorbeiströmende Medium bei der Crossflow-Filtration nicht erwartet.

Reinigungsmechanismen: Die akustische Kavitation mit ihren Mikroströmungen, die eine reinigende Wirkung hervorrufen bzw. eine Partikelablagerung wirkungsvoll vermeiden könnte, wird durch einen möglichst geringen Feeddruck und kleine Überströmgeschwindigkeiten begünstigt (vgl. Kap. 2.3.1 und 2.6.1). Im Gegensatz dazu lassen sich bei der dynamischen Filtration durch die Erhöhung dieser Parameter höhere Fluxwerte erreichen. Dieses gegenläufige Verhalten erschwert eine erfolgreiche Einkopplung von Ultraschall zur Verbesserung der Crossflow-Filtration. Ein hoher Filtrationsdruck verhindert zunächst das Auftreten von Blasen als Kavitationskeime und Motoren der ultraschallinduzierten Mikroströmungen (Kap. 2.3.1). Damit wird die Ausbildung von gleichmäßig über die Membranfläche verteilten, oszillierenden Blasen von einem hohen Systemdruck verhindert. Zudem verhindert die Überströmung ein Anwachsen von Bläschen bis zu ihrem Kollapsradius. Der Abtransport der Bläschen mit der Strömung macht selbst bei einer geringen Überströmgeschwindigkeit von 0,1 m/s die mehrfache Oszillation und damit die gerichtete Diffusion von gelösten Gasen in ein Bläschen im Schallfeld wenig wahrscheinlich. Diese so genannte rektifizierte Diffusion ist Voraussetzung für das Anwachsen bis zu Kollapsradius (vgl. Kap. 2.3.1).

Frequenzabhängigkeit: In Bild 5-4 sind die Fluxverläufe bei unterschiedlichen Ultraschallfrequenzen aufgetragen. In dem Diagramm ist auf der Ordinatenachse nur ein kleiner Ausschnitt gezeigt, der Nullpunkt ist unterdrückt. Die Unterschiede zwischen den beiden Kurven sind gering. Da die aufgetragenen Werte jedoch Mittelwerte aus jeweils drei Messreihen sind, lässt sich hier ein eindeutiger Trend ablesen. Die höhere Frequenz von 130 kHz ist in der geometrischen Anordnung dieser Testzelle, bei diesem Stoffsystem und den Filtrationsparametern ($\Delta p_{tm} = 1,5 \text{ bar}$; $v_{cf} = 1 \text{ m/s}$) wirksamer bei der Vermeidung des Deckschichtaufbaus als die niedrigere Frequenz.

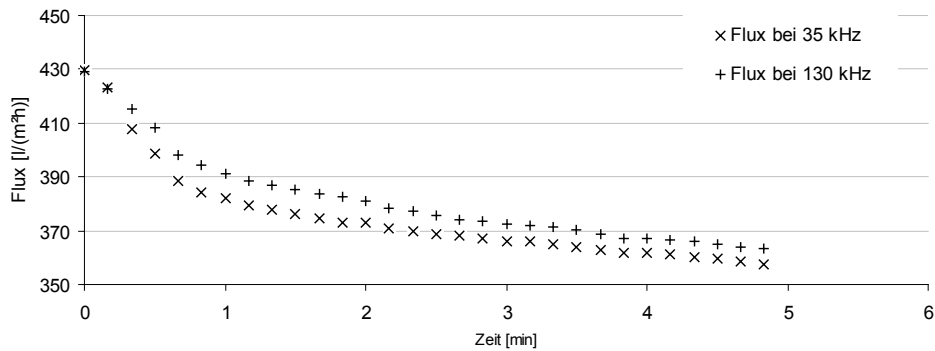


Bild 5-4: Gemittelter Fluxverlauf aus jeweils 3 Messreihen bei der ultraschallunterstützten Crossflow-Filtration für die Ultraschallfrequenzen 35 kHz und 130 kHz;
 $c_s = 1 \text{ g/l TiO}_2$;
 pH6
 $\Delta p_{tm} = 1,5 \text{ bar}$;
 $v_{cf} = 1 \text{ m/s}$;
 $P_{US} = 325 \text{ W}$;
 Polymermembran;
 Nadir UP 150.
 $t_{D5}(400 \text{ l/(m}^2\text{h)}) = 6,2 \text{ s}$.

Fazit

Der Schalleintrag in die Flüssigkeit bei druckgetriebener Crossflow-Filtration zeigt bei den durchgeführten Versuchen keine Fluxverbesserung. Eine Erhöhung der ultraschallinduzierten Effekte kann durch Absenkung des hydraulischen Leistungseintrags (geringere Querstromgeschwindigkeit und geringerer transmembraner Druck) erreicht werden (siehe zum Beispiel Anhang 3 Bild A3-0-2). Minimiert man zu Gunsten der ultraschallinduzierten Effekte Querstromgeschwindigkeit und Transmembrandruck, ist dennoch kein großer Nutzen zu erwarten. Gerade bei geringer Feststoffkonzentration (vgl. Kap. 1.1) ist zu erwarten, dass der Verbesserungseffekt einer durch Ultraschalleintrag verminderten Deckschicht wegen der deutlich reduzierten treibenden Druckdifferenz nicht ausgenutzt werden kann. Durch die gleichzeitige Verringerung des Deckschichtwiderstands und einer deutlichen Absenkung des Transmembrandruckes kann der Grenzflux $v_{p.kr}$ unterschritten werden, so dass sich der Crossflow-Filtrationsprozess im druckkontrollierten Bereich befindet. Wählt man sehr kleine hydraulische Leistungen durch kleine Drücke und Strömungsgeschwindigkeiten, verursacht der Einsatz des Ultraschalls einen besonders hohen Anstieg des spezifischen Energiebedarfs, so dass der apparative Aufwand nicht gerechtfertigt ist und eine Skalierung in den Produktionsmaßstab nicht für sinnvoll erachtet werden kann. Aus diesen Beobachtungen lässt sich schlussfolgern, dass die Beschallung in einer Filtrationspause (abgeschaltete Feedpumpe) bei geringem Druck und geringer Überströmgeschwindigkeit erfolgreich sein könnte. Auf diesen Ansatz wird im Kapitel 5.1.2 näher eingegangen.

Die Beschallungsmethode parallel zur Membranfläche, mit der eine Übertragbarkeit auf größere Membranflächen möglich erscheint, erweist sich für die druckgetriebene Crossflow-Filtration als untauglich. Die Messungen wurden mit einer hohen auf die Membranfläche bezogenen Schallleistung von 19 kW/m^2 durchgeführt.

5.1.2 Versuchsreihe: Periodische Ultraschallreinigung bei der Crossflow-Filtration

Intention

Wie im vorangegangenen Kapitel aufgezeigt, verbessert der Schalleintrag in die Flüssigkeit während der druckgetriebenen Crossflow-Filtration den Filtrationsprozess nicht wie gewünscht. Die Bedingungen für starke Ultraschalleffekte sind gegenläufig zu den geeigneten Betriebsparametern für die Crossflow-Filtration. Bei einer Unterbrechung des Pumpenbetriebs steht die Flüssigkeit bei geringem Druck im Strömungskanal. Es sind dann gute Bedingungen für eine wirkungsvolle Beschallung zu erwarten. Experimente zu dieser Form der Ultraschallreinigung während einer Unterbrechung der Crossflow-Filtration werden im Folgenden vorgestellt.

Versuchsmethode

Analog zu Kapitel 5.1.1.

Versuchsdurchführung

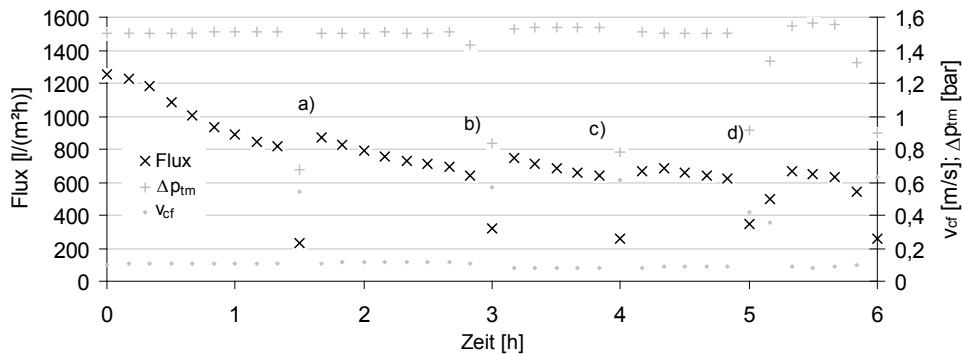
Die Versuchsdurchführung ist analog zu der in Kapitel 5.1.1 mit dem einzigen Unterschied, dass der Schalleintrag nur für kurze Dauer während eines Stillstands der Feedpumpe durchgeführt wird.

Versuchsergebnis

Bild 5-5 zeigt eine Serie an Ultraschallreinigungsvorgängen bei der Crossflow-Filtration von feindisperser Titandioxidsuspension (pH 10,3). Die Reinigungsvorgänge sind nach dem Prinzip aufgebaut: Bei abgeschalteter Feedpumpe wird zunächst durch Ultraschallreinigung die Deckschicht gelockert (grauer Bereich in Bild 5-5 b). Eine anschließende Spülung bei hoher Überströmgeschwindigkeit transportiert die abgelösten Partikel der Deckschicht ab. Die einzelnen Reinigungsvorgänge verbessern die Fluxrate zwar, die Reinigung ist aber nicht vollständig. Von Reinigungsvorgang zu Reinigungsvorgang nimmt der Erfolg der Reinigungsmaßnahme ab und der Flux sinkt.

In dem Filtrationsexperiment (Bild 5-5) wird mit den Ultraschallfrequenzen 35 und 130 kHz gearbeitet (Reinigungsvorgang a und b $f_{US} = 35$ kHz; Reinigungsvorgang c und d $f_{US} = 130$ kHz).

a)



b)

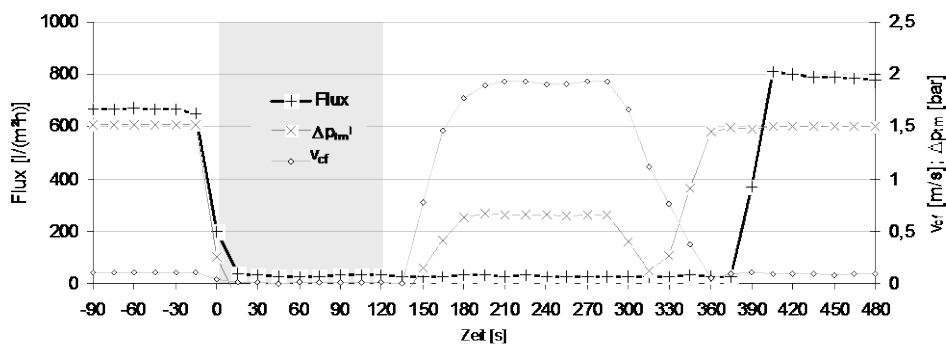


Bild 5-5:

a) Filtration von Titandioxidsuspension mit Ultraschallreinigungsvorgängen

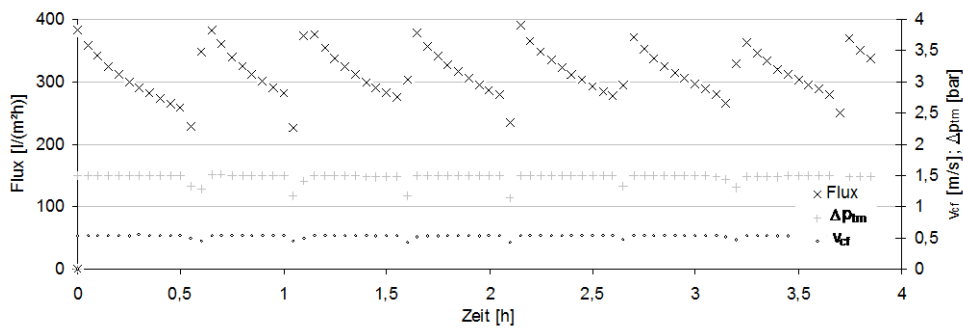
- $c_s = 2 \text{ g/l TiO}_2$;
- pH10,3
- $\Delta p_{tm} = 1,5 \text{ bar}$;
- $v_{cf} = 0,1 \text{ m/s}$;
- Polymermembran; Nadir UP 150

b) exemplarische Darstellung des Reinigungsvorgangs b) $\Delta t_{US} = 120 \text{ s US, sweep mode}$

- $f_{US} = 35 \text{ kHz}$
- $P_{US} = 325 \text{ W}$
- $\Delta t_{FF} = 150 \text{ s}$
- $v_{FF} = 1,93 \text{ m/s}$;
- Zeit bis zum Ausbilden einer Deckschicht $t_{DS}(1000 \text{ l/(m}^2\text{h)}) = 1,2 \text{ s}$

Bild 5-6 zeigt die Crossflow-Filtration von einer Laponitesuspension mit periodischer Ultraschallreinigung. Im Gegensatz zu der feindispersen Titandioxidsuspension in Bild 5-5 kann bei diesem Stoffsystem durch die Ultraschallreinigung in den Filtrationspausen auch ohne anschließender Überströmreinigung der Flux auf einem hohen Niveau gehalten werden. Dabei muss berücksichtigt werden, dass das Stoffsystem Laponite bei nicht vorhandenem Filtrationsdruck von Schichtstruktur gestapelter Plättchen in die »Kartenhausstruktur« übergeht (vgl. Kap. 4.6.1). Diese Struktur ist wesentlich durchlässiger und wird bei Wiedereinsetzen der Querströmung leicht abtransportiert.

a)



b)

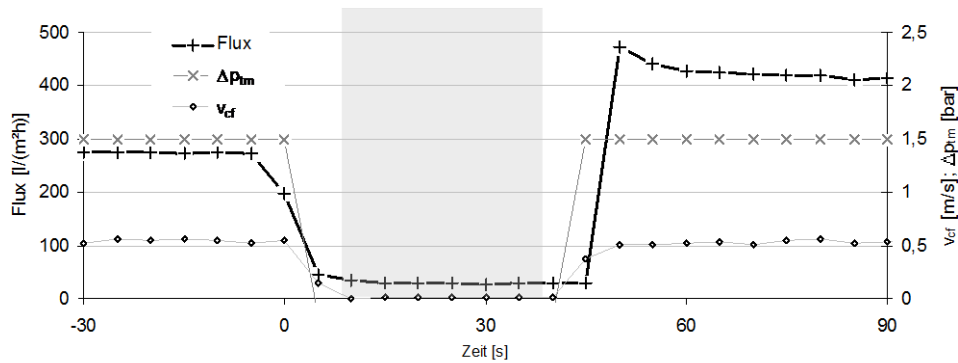


Bild 5-6:

a) Filtration von Laponitesuspension bei periodischer Ultraschallreinigung

$c_s = 0,1 \text{ g/l Laponite};$

$\text{pH}6,5$

$\Delta p_{tm} = 1,5 \text{ bar};$

$v_{cf} = 0,5 \text{ m/s};$

Polymermembran;

Nadir UP 150.

b) Reinigungsvorgang

$\Delta t_{US} = 30 \text{ s US, sweep}$

$f_{US} = 35 \text{ kHz}$

$P_{US} = 330 \text{ W}$

Zeit bis zum Ausbilden einer Deckschicht nach Glg. 4-17:

$t_{DS}(300 \text{ l/(m}^2\text{h)})=2\text{s}$

Die Messungen in Bild 5-5 lassen erkennen, dass auch bei verbesserten Bedingungen für die Ultraschallreinigung keine vollständige Reinigung der Membranfläche von feindispersen Deckschichtbildnern in einer vertretbaren Zeit möglich ist. Die gewählten 2,5 min für die Beschallung sind im Vergleich zu den üblichen Reinigungszeiten in üblichen Ultraschallreinigungsbädern relativ kurz. Mit der angefärbten Laponitesuspension konnten in Beschallungszeiten von 15 min bis 20 min und anschließender Überströmung eine nach visueller Bewertung nahezu vollständige Reinigung erzielt werden.

Erkenntnisse aus der Versuchsreihe

Crossflow-Filtration mit periodischer Ultraschallreinigung: Soll der Flux dauerhaft durch häufige, periodische Reinigungsvorgänge auf einem hohen Niveau gehalten werden, sind Reinigungsvorgänge von 6 min Dauer, wie sie beispielsweise in Bild 5-5 b verwendet wurden, wegen der langen Stillstandszeiten ungünstig. Aufgrund des langen Stillstands der Anlage würde man so eine Reinigung nicht als häufige, periodische Reinigung durchführen, sondern eher die viel seltener durchgeführten chemischen Reinigungen der Membran durch eine Ultraschallreinigung ersetzen. Im Vergleich zu chemischen Reinigungsvorgängen ist es vorstellbar, dass dadurch insgesamt sogar geringere Stillstandszeiten realisierbar sind. Vorteile der Ultraschallreinigung gegenüber einer chemischen Reinigung können entstehen, wenn dadurch der Einsatz von Betriebsmitteln und der anlagentechnische Aufwand für die Zudosierung von chemischen Reinigern sowie deren Entsorgung entfallen. Möglicherweise stellt auch die Kombination aus Ultraschallreinigung und chemischer Reinigung eine attraktive Lösung dar.

Visuelle Beobachtung: Durch visuelle Beobachtung lässt sich während Ultraschallreinigungsphasen der Vorgang der Partikelablösung beobachten. Bei einer Beschallung von 35 kHz tritt der Reinigungseffekt zunächst an den Rändern des Strömungskanals auf (Bild 5-7). Die Beobachtung, dass bei der Ultraschallfrequenz von 130 kHz die Reinigungswirkung in dem Strömungskanal tiefer eindringt (Bild 5-9), deckt sich mit den Arbeiten von Reuter (Reuter 2009) und der Messung in Bild 5-4. Die Grenzfrequenz, bei der die Ultraschallwellen in einem Zwischenraum zwischen mehreren Flachmembrankissen nicht abgeschwächt werden, liegt bei:

$$f_{kr} = \frac{c_{liq}}{2 \cdot h} \quad \text{für } Z_M \ll Z_{liq} \quad \text{Glg. 5-1}$$

Der Strömungskanal der Testzelle (Kap. 4.2.2) bildet die Bedingungen in den Zwischenräumen eines Flachmembranmoduls nach. Bei einer Höhe h des Strömungskanals von 15 mm ergibt sich eine Grenzfrequenz von 49,3 kHz. Bei der Ultraschallfrequenz von 35 kHz kann sich die Ultraschallwelle in dem Strömungskanal oder einem geometrisch ähnlichen Zwischenraum nicht ungedämpft fortpflanzen.

Bild 5-7 und Bild 5-8 zeigen den hauptverantwortlichen Reinigungseffekt bei der Ultraschallreinigung von Deckschichten auf Membranen. In dem nahezu gasgesättigtem Feedwasser bilden sich bei Beschallung zunächst sehr kleine Bläschen. Alle gereinigten Flecken in den beiden Abbildungen zeigen in ihrem Zentrum sehr kleine (einige μm), bis zu mehrere Millimeter große Blasen. In der Fotoserie Bild 5-7 ist zu erkennen, wie die markierte Blase sich über die Membranfläche bewegt. Bei ihrer Bewegung hinterlässt sie gereinigte Spuren. In Bereichen, in denen die Blase aufgrund der primären Bjerknes Kraft (vgl. Kap. 2.3.3) verharrt, entstehen größere gereinigte Bereiche. Der Positionswechsel einer Blase über die Membranfläche geht recht schnell. Die etwa 1 cm lange Strecke zwischen dem ersten und dem zweiten Bild in der Fotoserie Bild 5-7 legt die Blase in weniger als einer Sekunde zurück und verharrt dann wieder für längere Zeit an einem Fleck. Allerdings kommt die Blase nie vollständig zur Ruhe (vgl. Kap. 2.3.3 Millerschicht; (Otto 2009), so dass in den Bereichen längerer Verharrung größere Bereiche von der oszillierende Blase freigefegt werden (vgl. Aufnahmen 3 und 4 der Fotoserie in Bild 5-7).

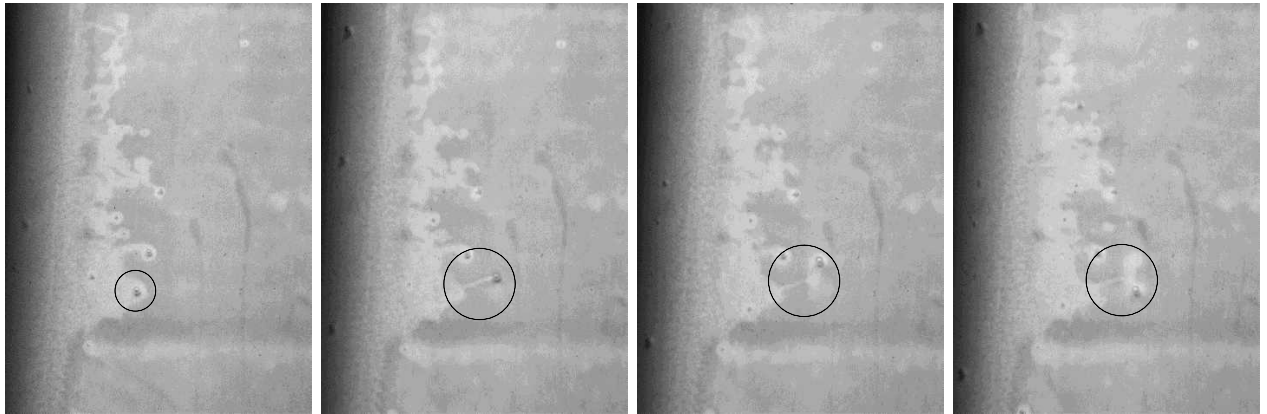


Bild 5-7: Ultraschallreinigung der angefärbten Laponitedeckschicht auf der Polymermembran Nadir UP 150; Testzelle I; $f_{US} = 35 \text{ kHz}$, $P_{US} = 330 \text{ W}$; Reinigung durch oszillierende, wandernde Blasen; Breite der Bilder jeweils $\sim 2 \text{ cm}$.

Bild 5-8 zeigt eine andere wandernde Blase stärker vergrößert. Der zurückgelegte Weg in dem zweiten Foto misst etwa 1 cm.

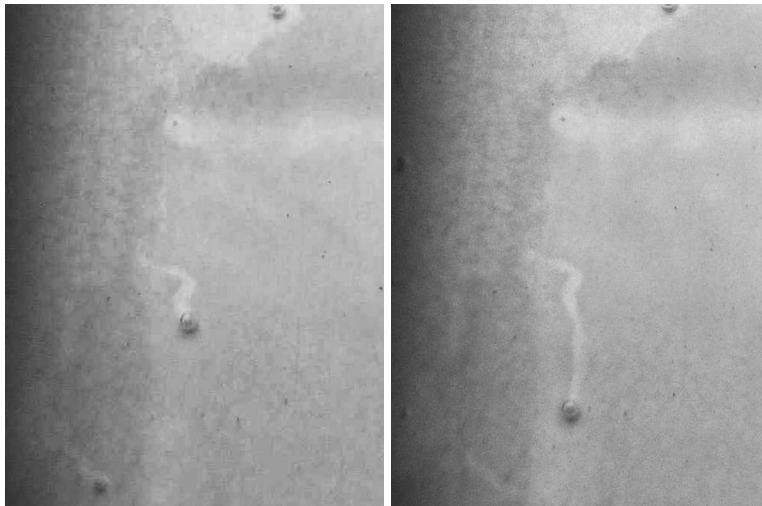
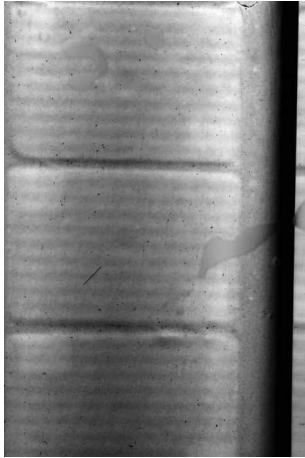


Bild 5-8: Vergrößerte Aufnahme einer wandernden Gasblase mit gereinigter Spur; Breite der Fotos $\sim 1 \text{ cm}$

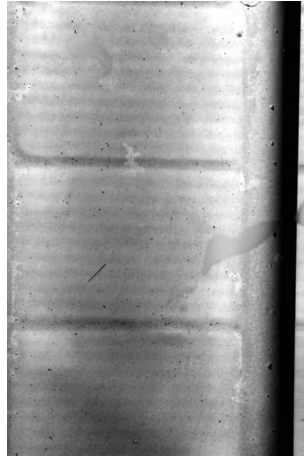
Bild 5-10 zeigt die labyrinthartigen Spuren der oszillierenden Blasen an vergrößerten Aufnahmen.

Im Gegensatz zu den Reinigungsvorgängen bei 35 kHz sind die labyrinthartigen Spuren bei der Verwendung der höheren Frequenz nicht so stark ausgeprägt. Es entstehen schneller größere gereinigte Flächen und es sind viel zahlreichere, kleine Blasen zu beobachten. Nach etwa einer Minute (vgl. Fotos 3-6 in Bild 5-9) bildet sich ein deutliches Bandenmuster (Millerschicht) heraus. Wobei sich an den nicht gereinigten Streifen gemäß der primären Bjerkneskraft (vgl. Kap. 2.3.3) größere Blasen sammeln. Die Beobachtung lässt sich auf ein deutlich ausgeprägtes stehendes Schallfeld zurückführen, in dessen Knoten keine Schalldruckamplitude auftritt. Blasen, die sich hier ansammeln, oszillieren nicht im Wechseldruckfeld und haben keine reinigende Wirkung mehr. So ist auch zu erklären, warum hier in den Banden, in denen sich die Blasen anordnen, gleichzeitig auch die Deckschicht noch zu sehen ist.

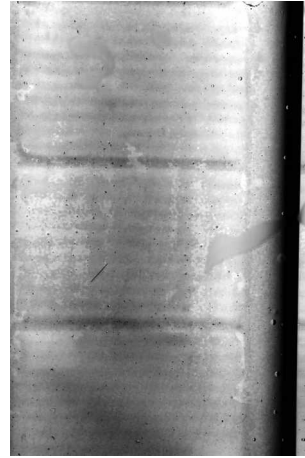
1



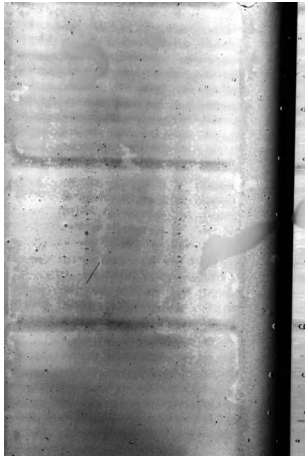
2



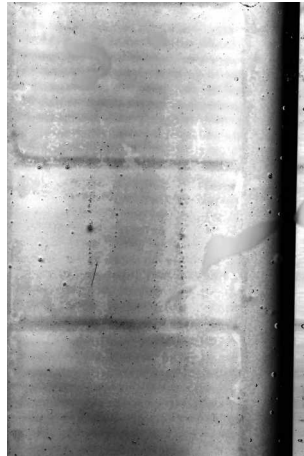
3



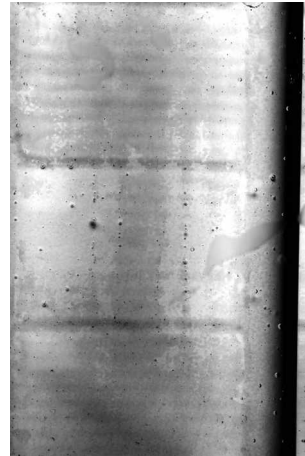
4



5



6



7



Bild 5-9: Ultraschallreinigung in Testzelle I bei 130 kHz angefärbtes Laponite auf Polymermembran Nadir UP 150; Testzelle I; $f_{US} = 130 \text{ kHz}$, $P_{US} = 330 \text{ W}$.

Im letzten Foto der Bild 5-9 ist die gesamte Membranfläche während einer Ultraschallreinigung bei 130 kHz zu sehen. Die größte Reinigungswirkung ist jeweils unmittelbar vor den Schallwandlern zu beobachten.

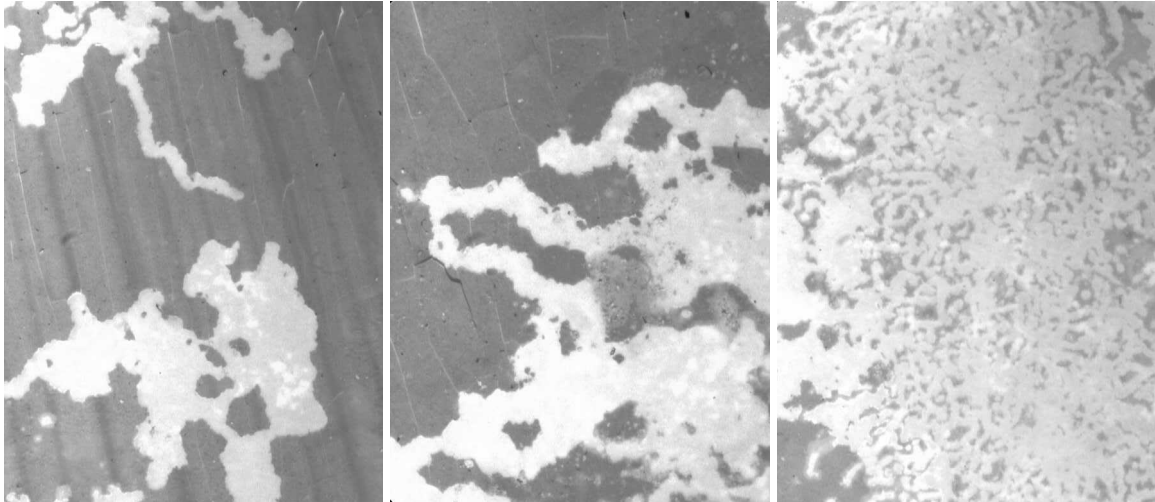


Bild 5-10: Reinigungsspuren der Blasen vergrößert

Fazit

Der Ultraschalleinsatz in Filtrationspausen bei Umgebungsdruck zeigt deutliche Reinigungswirkungen. Allerdings erfordert eine vollständige Reinigung der Deckschicht lange Beschallungszeiten. Durch das Anfärben der Laponitepartikel und die transparente Ausführung der Testzelle ist es möglich, den Filtrationsvorgang, sowie die Reinigung der Deckschicht visuell zu beobachten. Die Beobachtungen zeigen, dass nicht der heftige Blasen kollaps, sondern relativ große Blasen in dieser Anwendung hauptverantwortlich für die Reinigung der Deckschicht sind. Aufgrund ihrer Trägheit können Blasen mit den hier beobachteten Durchmesser bis zu 1 mm im Schallfeld nur noch schwach schwingen. Dennoch erzeugt ihre Schwingung in unmittelbarer Nähe Mikroströmungen der umgebenden Flüssigkeit, die die Deckschicht selbst bei nur kurzem Kontakt vollständig ablöst. Für eine gute Ultraschallreinigung sind daher möglichst viele, kleine, gleichmäßig verteilte Blasen auf der Membranoberfläche von Vorteil. Ähnliche Figuren wurden von Lamminen, Walker et al. (2004) beobachtet. In dieser Veröffentlichung wird die reinigende Wirkung jedoch den kollabierenden Blasen zugeschrieben.

5.1.3 Versuchsreihe: Direkte Körperschallanregung der Membran

Intention

Mit dem Ansatz, eine Membran direkt mit Körperschall anzuregen, soll untersucht werden, ob auf diesem Weg eine höhere Wirksamkeit des Ultraschalleintrags für die Verbesserung der Filtration erreicht werden kann. Verluste bei der Übertragung der mechanischen Schwingung vom Schallwandler in die Flüssigkeit und bei der Weiterleitung in der Flüssigkeit sollen dadurch vermieden werden (vgl. Kap. 2.2.1). Entscheidend für die Ablösung sind bei dieser Art der Beschallung nicht die Kavitationseffekte, die visko-inertialen Effekte oder die akustischen Strömungen, sondern die Wechselbeschleunigung der Oberfläche und die induzierten Strömungseffekte (vgl. Kap. 6.2.2). Im Gegensatz zu dem Schalleintrag in die Flüssigkeit ist bei der direkten Körperschallanregung zu erwarten, dass die Wirkungsweise weitestgehend unabhängig von dem Druckniveau, der Strömungsgeschwindigkeit und der Partikelkonzentration des Feedwassers ist. Es werden verschiedene Möglichkeiten der direkten Ankopplung der Membran an das schwin-

gungsfähige System getestet, die eine Übertragung des Prinzips auf größere Membranflächen ermöglichen könnten.

Versuchsmethode

In den im Kapitel 4.2.1 beschriebenen Teststand wird die Testzelle II (Kap. 4.2.3) eingebaut. Die schwingende Bodenplatte der Testzelle II wird sowohl mit der Polymermembran Nadir UP 150 als auch mit der Keramikmembran (ITN-Nanopore 200 nm) bestückt (Kap. 4.6.4). Die Beschallung erfolgt bei einem elektrischen Leistungseintrag von 80 - 185 W und einer Ultraschallfrequenz von 40 kHz.

Versuchsdurchführung

Die Durchführung der Versuche erfolgt analog zu den Crossflow-Experimenten in Kapitel 5.1.1.

Versuchsergebnis

Bild 5-11 zeigt den Fluxverlauf und den spezifischen Energiebedarfs für die Crossflow-Filtration mit und ohne Schallanregung der Grundplatte. Nach etwa 30 min ist an dem Sprung im Fluxverlauf die Zudosierung der Feststoffsuspension zu erkennen. Der stationäre Endwert des Flux bei Ultraschallanregung ist höher als der ohne Ultraschalleintrag. In dem Beispiel reicht die Verbesserung des Fluxes nicht aus, um den höheren Leistungseintrag durch Ultraschall zu kompensieren, daher steigt der spezifische Energieeintrag.

In Bild 5-12 ist ein typischer Filtrationsverlauf über die Zeit aufgetragen. Während der ersten 45 min sinkt der Flux aufgrund der Kompression des Stützgewebes und des Auffiltrierens von Restverunreinigungen in dem Teststand leicht ab. Zu dem Zeitpunkt, an dem die konzentrierte Suspension dem DI-Wasser zudosiert wird, sinkt der Flux rapide ab, bis er sich bei etwa 400 l/(m²h) stabilisiert. Bei 1 h 45 min schließt sich eine Phase mit Überströmreinigung an, in der bei sonst konstanten Parametern der Permeatabzug abgesperrt wird. Die Maßnahme führt zu keiner Verbesserung des Fluxes. Bei 2:30 h wird erneut eine Überströmreinigung durchgeführt, diesmal mit Ultraschallanregung der Bodenplatte (grau hinterlegter Bereich). Bei der anschließenden Filtration unter Ultraschallanregung zeigt sich zunächst eine teilweise Reinigung der Membran nach der Überströmreinigung, nach 30 min hat sich in etwa wieder der gleiche Fluxwert eingestellt. Da die hydraulische Leistung der Pumpe während des Versuchs unverändert bleibt, gibt der Verlauf der Kurve für den spezifischen Energiebedarf den Abfall des Fluxes an und lässt den zusätzlichen Leistungseintrag durch den Ultraschall ab 2:30 h erkennen.

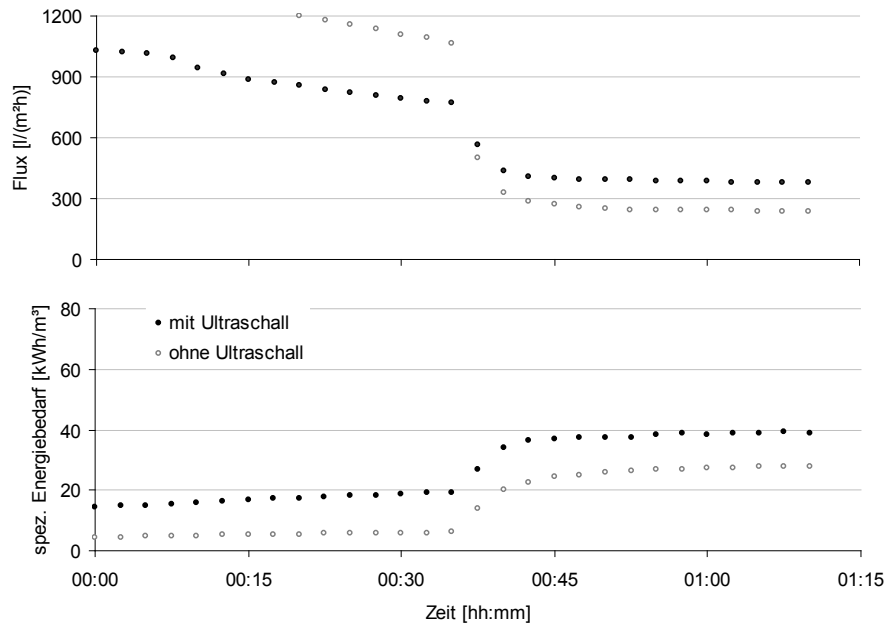


Bild 5-11: Fluxverlauf und Entwicklung des spezifischen Energiebedarfs mit und ohne Ultraschall

$c_s = 0,1 \text{ g/l Laponite};$
 $\text{pH } 6;$
 $\Delta p_{tm} = 1 \text{ bar};$
 $v_{cf} = 1 \text{ m/s};$
 $\text{US bei } f_{US} = 40 \text{ kHz};$
 $P_{US} = 140 \text{ W};$
 Nadir UP 150
 $t_{DS}(900 \text{ l/(m}^2\text{h)})=0,7\text{s}.$

In dieser Konstellation bringt der Ultraschalleintrag keine deutliche Fluxverbesserung mit sich und damit wirkt sich der Schalleintrag negativ auf den spezifischen Energiebedarf des Filtrationsprozesses aus.

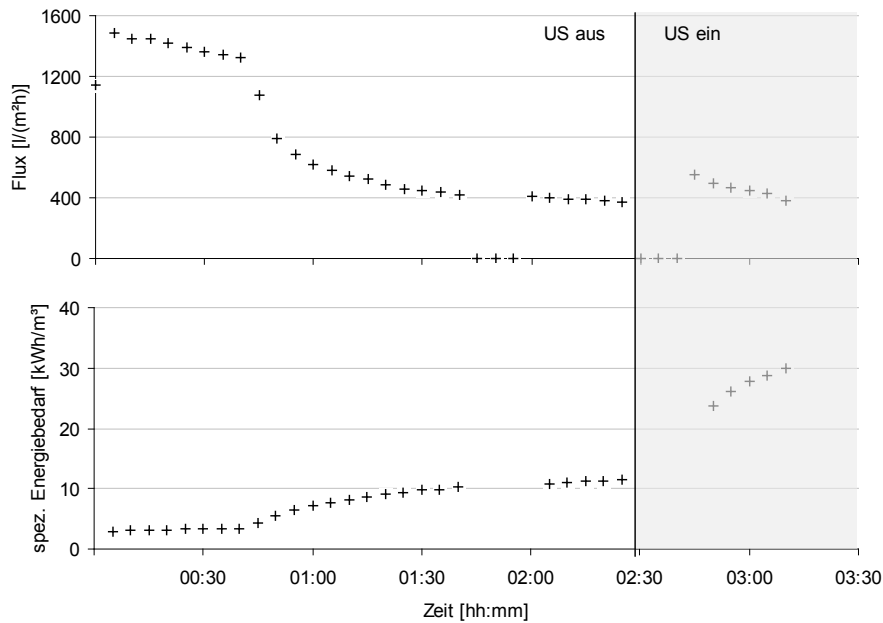


Bild 5-12: Typischer Fluxverlauf und Entwicklung des spezifischen Energiebedarfs;

$c_s = 2$ g/l Titandioxid;

pH 6;

$\Delta p_{tm} = 1,5$ bar;

$v_{cf} = 0,5$ m/s;

US bei $f_{US} = 40$ kHz;

$P_{US} = 140$ W;

Nadir UP 150.

Zeit bis zum Ausbilden einer Deckschicht nach Glg. 4-17:

$t_{DS}(1000l/(m^2h))=1,2s$

In Bild 5-13 kommt die keramische Membran ITN-Nanopore 200 nm mit der schwingenden Bodenplatte zum Einsatz. Aufgrund der hohen Schwingungsamplitude der Keramikmembran verbessert sich der Flux deutlich. Allerdings lohnt sich der zusätzliche Leistungseintrag auch hier energetisch nicht. Der spezifische Energiebedarf steigt trotz des deutlich erhöhten Fluxes an.

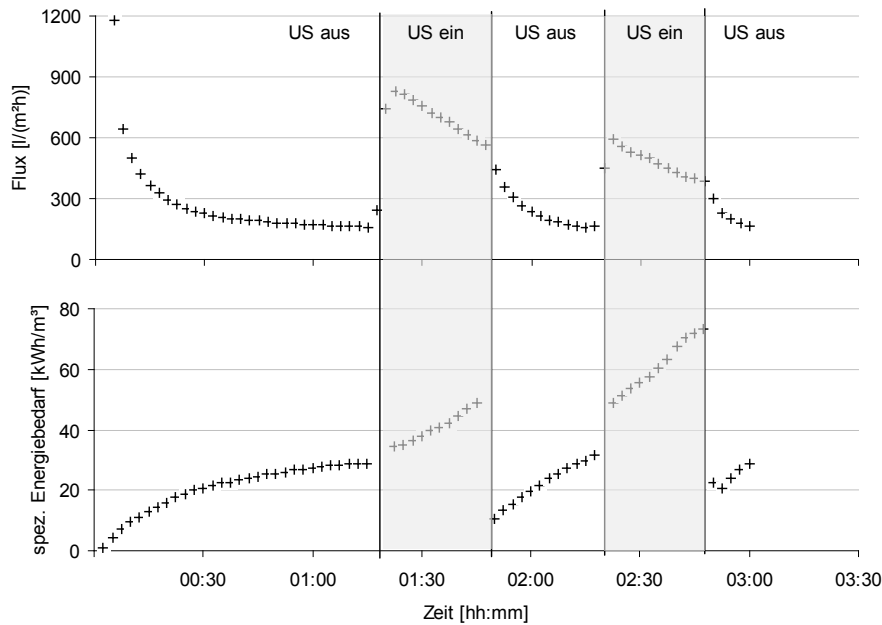


Bild 5-13: Fluxverlauf und Entwicklung des spezifischen Energiebedarfs;

$c_s = 1 \text{ g/l}$ Laponite; $\Delta p_{tm} = 2 \text{ bar}$;

$v_{cf} = 1 \text{ m/s}$;

US bei $f_{US} = 40 \text{ kHz}$;

$P_{US} = 140 \text{ W}$;

keramische Membran; ITN-Nanopore 200 nm;

Zeit bis zum Ausbilden einer Deckschicht nach Glg. 4-17:

$t_{D5}(300 \text{ l}/(\text{m}^2\text{h}))=0,2\text{s}$

Bild 5-14 veranschaulicht den Unterschied zwischen Keramik- und Polymermembran. Damit die Versuchreihen hinsichtlich ihrer Fluxwerte in einer ähnlichen Größenordnung liegen, wurden verschiedene Feststoffkonzentrationen gewählt: Für die Keramikmembran 1 g/l und für die Polymermembran 0,1 g/l des Schichtsilikats Laponite. Alle übrigen Filtrationsparameter sind gleich. Der Zeitpunkt der Zudosierung der Feststoffe ist bei der Keramikmembran früher (in Bild 5-14 nicht zu sehen) als bei der Polymermembran. Das Zuschalten des Ultraschallwandlers erfolgt für beide Systeme nach der Einstellung eines stationären Fluxwertes. Bei Verwendung der Polymermembran Nadir UP 150 bleibt der Flux bei Schwingungsanregung der Bodenplatte nahezu unbeeinflusst. Der Grund hierfür lässt sich bei der Gegenüberstellung der Größenordnung von schwingungsabsorbierender Stützschiicht der Membran und der Auslenkungsamplitude erkennen.

Die Laser-Vibrometriemessung der Bodenplatte hat eine maximale Schwingungsamplitude von $1,9 \mu\text{m}$ an der Sonotroden spitze ergeben (vgl. Kap. 4.3.2). Dieser Amplitude steht eine elastische Stützschiicht der Membran von $\sim 200 \mu\text{m}$ gegenüber, die die Schwingungsamplitude aufgrund ihrer Struktur absorbiert. In der Untersuchung des schwingungsfähigen Systems hat sich bereits gezeigt, dass eine formschlüssige Verbindung zur schwingungstechnischen Ankopplung erforderlich ist (Kap. 4.3.2). Das Anpressen der Membran durch den Transmembrandruck ist im Bereich der hier verwendeten Filtrationsdrücke als kraftschlüssige Verbindung nicht ausreichend, um ein gutes Mitschwingen der Polymerflachmembran zu gewährleisten. Die geringe Fluxverbesserung bei Verwendung der Polymermembran ist in der geringen verbleibenden Schwingungsamplitude der Membranoberfläche begründet.

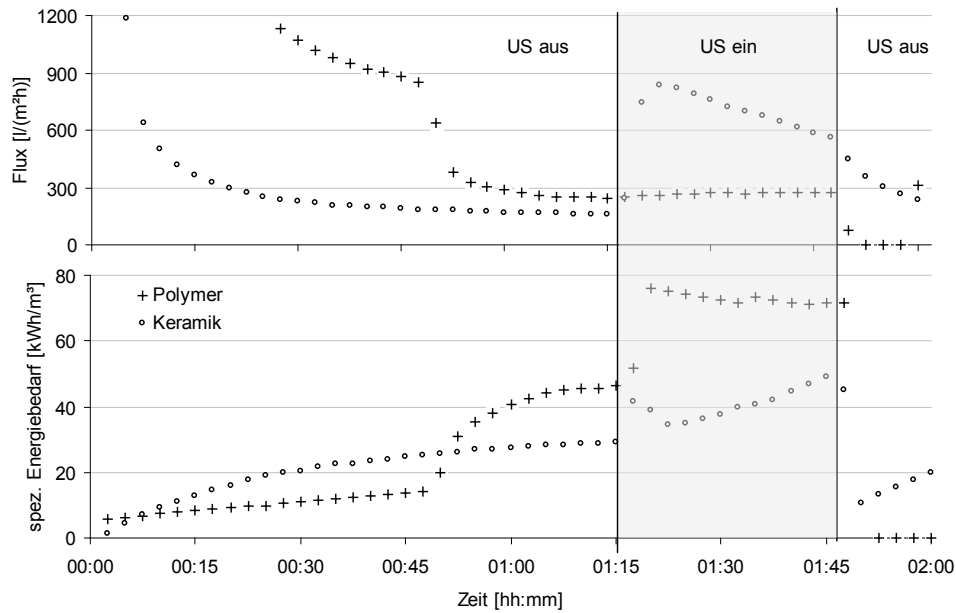


Bild 5-14: Vergleich des Fluxverlaufs und Entwicklung des spezifischen Energiebedarfs bei Verwendung von Keramik- und Polymermembran;
 Stoffsysteme Laponite:
 Keramikmembran $c_s = 1$ g/l Polymermembran $c_s = 0,1$ g/l
 $\Delta p_{tm} = 2$ bar;
 $v_{cf} = 1$ m/s;
 US bei $f_{US} = 40$ kHz;
 $P_{US} = 140$ W;
 keramische Membran ITN-Nanopore 200 nm; Polymermembran Nadir UP 150.

Erkenntnisse aus der Versuchsreihe

Schäden an der Keramikmembran: Eine weitere Beispielmessung Bild 5-15 verdeutlicht ein sehr schwerwiegendes Problem bei der direkten Körperschallanregung von Keramikmembranen. In einer Reihe von Experimenten - wie hier in Bild 5-15 nach 1 h 10 min - ist ein Riss an der Keramikmembran entstanden. Die mechanische Zerstörung der Keramikmembran, die in einigen Experimenten beobachtet werden konnte, lässt sich nur teilweise auf Ultraschallanregung zurückführen. Ein wichtiger zweiter Aspekt ist die Methode der Ankopplung auf der schwingenden Bodenplatte. In der Leistungsumschalltechnik besteht sehr viel Erfahrung mit Klebeverbindungen zwischen den angeregten Flächen und den Schallgebern (piezokeramische Scheiben). Für die Experimente ist diese Klebetechnik allerdings nicht eingesetzt worden. Die Flachmembranscheibe wurde stattdessen mit Schrauben in der schwingenden Bodenplatte eingespannt, um diese wieder rückstandsfrei entfernen zu können. Dabei wird die spröde Keramikmembran bereits unter hohe Vorspannung gebracht, womit das Auftreten von Rissen während der Beschallung erklärt werden kann. Bei der Firma Hielscher Ultrasonics GmbH wurden zur Vermeidung dieses Problems Versuche durchgeführt, bei denen die Sonotrode und eine mechanische Membran mit dafür geeignetem Spezialkleber verbunden wurden. So angeregte Mehrkanalkeramikmembranen haben gutes Schwingungsverhalten und keine Ermüdungsschäden des spröden Sintermaterials gezeigt. Allerdings sind Probleme an der Klebeverbindung aufgetreten (vgl. Kap. 4.3.2).

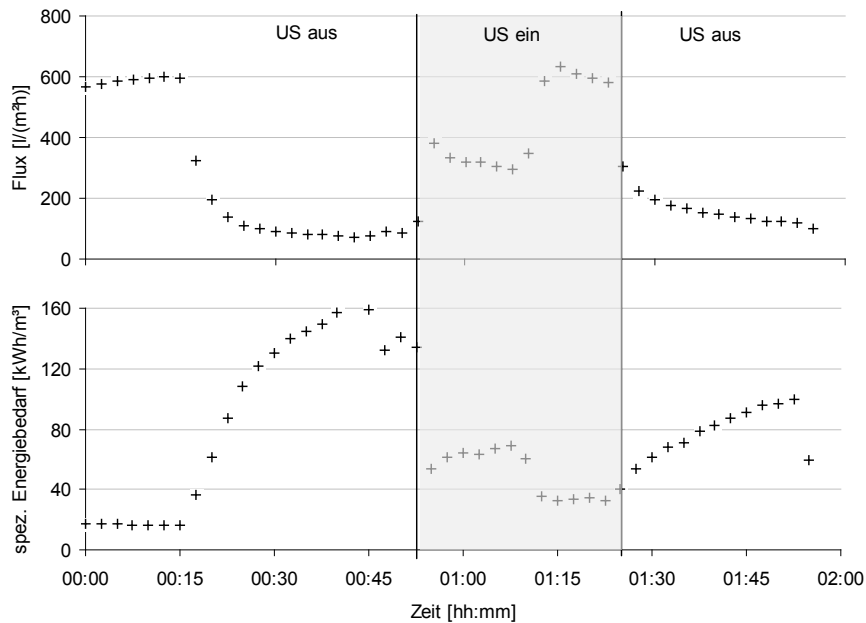


Bild 5-15: Rissbildung bei der direkten Körperschallanregung einer keramischen Membran;

Rissbildung bei 01:10 h

Fluxverlauf und Entwicklung des spezifischen Energiebedarfs;

$c_s = 1 \text{ g/l}$ Laponite; $\Delta p_{tm} = 2 \text{ bar}$;

$v_{cf} = 1 \text{ m/s}$;

US bei $f_{US} = 40 \text{ kHz}$;

$P_{US} = 140 \text{ W}$;

keramische Membran; ITN-Nanopore 200 nm

Geeignete Filtrationsparameter für die ultraschallunterstützte Crossflow-Filtration: Anhand der in Kapitel 4.5 eingeführten Parameter Fluxverbesserung ϕ und Veränderungsfaktor des spezifischen Energiebedarfs ε werden die Crossflow-Filtrationsexperimente verglichen.

In Bild 5-16 werden die Bewertungsparameter ϕ und ε von Filtrationsexperimenten mit unterschiedlichen Transmembrandrücken und Strömungsgeschwindigkeiten entsprechend ihres hydraulischen Leistungseintrags angeordnet. Stoffsystem, Membranmaterial und die Ultraschallparameter sind für alle Messwerte gleich. Diese Art der Auftragung macht deutlich, dass es bezüglich der transmembranen Druckdifferenz und der Überströmungsgeschwindigkeit für den Einsatz von Ultraschall ein Optimum gibt. In Bild 5-16 werden die höchsten Fluxverbesserungen bei einer moderaten Strömungsgeschwindigkeit ($v_{cf} = 0,5 \text{ m/s}$) und relativ hohem Transmembrandruck ($\Delta p_{tm} = 1,5 \text{ bar}$) erreicht. Während die Verbesserung bei höheren Querstromgeschwindigkeiten geringer ausfällt. Beim ersten Wert ($v_{cf} = 0,1 \text{ m/s}$, $\Delta p_{tm} = 0,5 \text{ bar}$) wird durch den zu geringen Druck der Verbesserungseffekt durch den Ultraschalleintrag nicht vollständig genutzt (druckkontrollierter Bereich). Die geringere Fluxverbesserung bei den beiden Werten mit höherem hydraulischem Energieeintrag kann seine Ursachen in der geringeren Wirksamkeit des Ultraschalls bei höheren Transmembrandrücken und damit höheren Schleppkräften der Partikel in Richtung der Membran haben.

Bei einer Ultraschallanregung der Oberfläche verhindert die Oszillationsbewegung der Membran eine Ablagerung der Partikel und ermöglicht einen höheren Grenzflux $v_{p,kr}$ bei entsprechend hö-

herem Transmembrandruck. Der zusätzliche Nutzen der Oberflächenvibration besteht in der Verschiebung des Grenzflusses zu höheren Werten.

In Bild 5-16 wurde die Polymermembran Nadir UP 150 verwendet. Aus oben beschriebenem Grund ist die relative Fluxverbesserung ϕ nicht groß genug, um bei der verwendeten Polymermembran eine Erniedrigung des spezifischen Energiebedarfs bei Ultraschalleintrag zu bewirken.

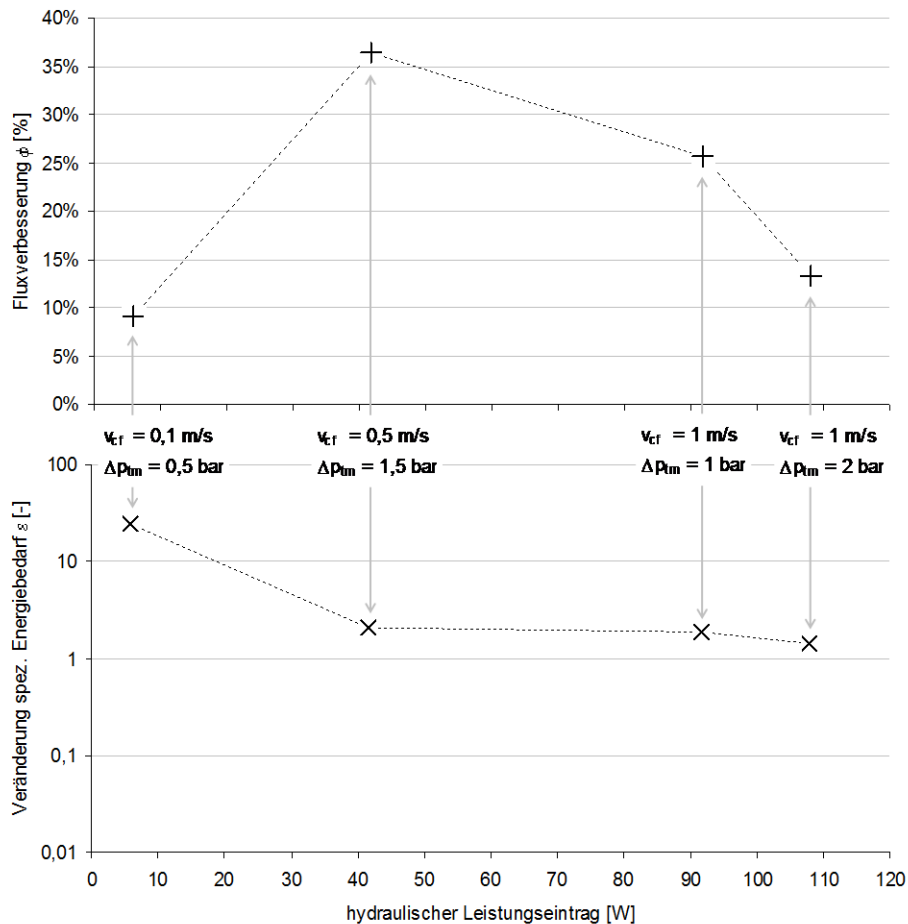


Bild 5-16: Geeignete Filtrationsparameter für die direkte Ultraschallanregung bei der Crossflow-Filtration; Verbesserung des Permeatflux ϕ und Veränderung des spezifischen Energiebedarfs ϵ in Abhängigkeit von dem hydraulischen Leistungseintrag bei

$c_s = 0,1$ g/l Laponite;

US bei $f_{US} = 40$ kHz;

$P_{US} = 140$ W;

Polymermembran

Nadir UP 150;

$P_{hyd} = 5,8$ W entspricht $v_{cf} = 0,1$ m/s @ $\Delta p_{tm} = 0,5$ bar;

$P_{hyd} = 42$ W entspricht $v_{cf} = 0,5$ m/s @ $\Delta p_{tm} = 1,5$ bar

$P_{hyd} = 92$ W entspricht $v_{cf} = 1$ m/s @ $\Delta p_{tm} = 1$ bar

$P_{hyd} = 108$ W entspricht $v_{cf} = 1$ m/s @ $\Delta p_{tm} = 2$ bar

Die Bild 5-17 zeigt den Trend, dass höhere Querstromgeschwindigkeit und höherer Ultraschalleintrag den Grenzflux $v_{p,kr}$ erhöhen. Exemplarisch wird diese Auswirkung für das Stoffsystem Laponite und die Polymermembran Nadir UP 150 gezeigt. Trotz der wenigen Messpunkte ist zu erkennen, dass bei der höheren Querstromgeschwindigkeit von 1 m/s die Verbesserung des Fluxes durch die Ultraschalleinwirkung kleiner als bei 0,5 m/s ausfällt. Der stationäre Endwert für den Flux ohne Ultraschall bei 1 m/s entspricht gerade dem bei 0,5 m/s mit Ultraschall (einzelner Datenpunkt in Bild 5-17). An dieser Stelle lässt sich vergleichen, wie viel zusätzliche hydraulische Leistung und wie viel Ultraschalleistung zum Erreichen der gleichen Fluxsteigerung notwendig sind. Der zusätzliche, elektrische Leistungseintrag für den Ultraschallwandler beträgt 140 W. Der zusätzliche hydraulische Leistungsbedarf lässt sich als Feedvolumenstromveränderung bei dem Filtrationsdruck von 1,5 bar berechnen.

$$\Delta P_{hyd} = p_F \cdot \Delta v_{cf} \cdot A_{SK}$$

Glg. 5-2

$$\text{hier: } \Delta P_{hyd} = 1,5 \text{ bar} \cdot 0,5 \frac{\text{m}}{\text{s}} \cdot 9 \text{ cm}^2 = 67,5 \text{ W}$$

Wobei sich die Erhöhung des Feedvolumenstroms aus der Geschwindigkeitszunahme bei einer Querschnittsfläche des Strömungskanal von 9 cm² (Kap 4.2.3) ergibt. Der rein hydraulische Leistungsbedarf für die gleiche Fluxverbesserung beträgt bei dem Vergleichswert von 1,5 bar 67,5 W. Unter Annahme eines Gesamtwirkungsgrades von Pumpe und Motor von 50% ergibt sich ein Vergleichswert für den elektrischen Energieeintrag von 135 W. Es ergibt sich in etwa die gleiche Größenordnung für den zusätzlichen elektrischen Leistungseintrag, wenn die gleiche Fluxverbesserung im einen Fall durch Ultraschall und im anderen Fall durch die Erhöhung der Crossflow-Geschwindigkeit erreicht wird. Da die Beispielrechnung für die ungünstige Beschallungsvariante mit der schallabsorbierenden Polymermembran durchgeführt wurde, ist bei Verwendung einer Keramikmembran ein Vorteil der Beschallungsmethode gegenüber der Steigerung der Crossflow-Geschwindigkeit zu erwarten.

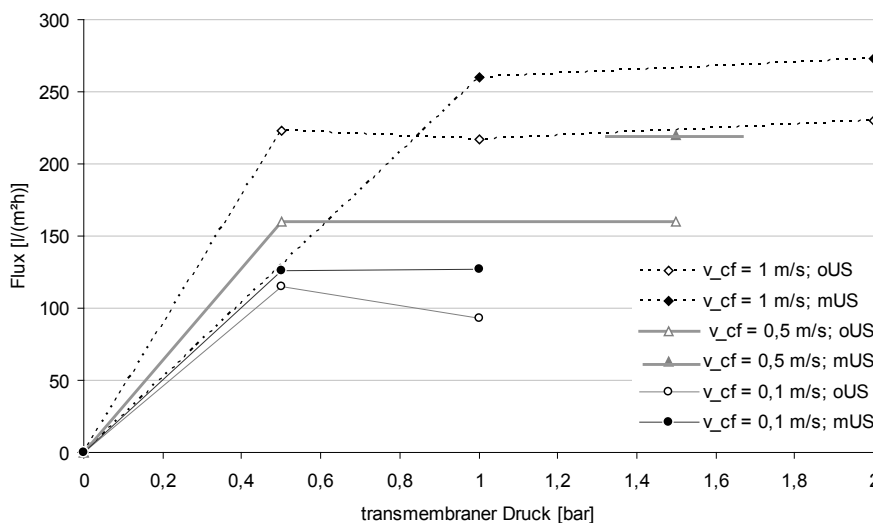


Bild 5-17: Trend der Veränderung des Grenzflux bei Variation der Querstromgeschwindigkeit und des Ultraschalleintrags

$c_s = 0,1 \text{ g/l}$ Laponite;

US bei $f_{US} = 40 \text{ kHz}$;

$P_{US} = 140 \text{ W}$;

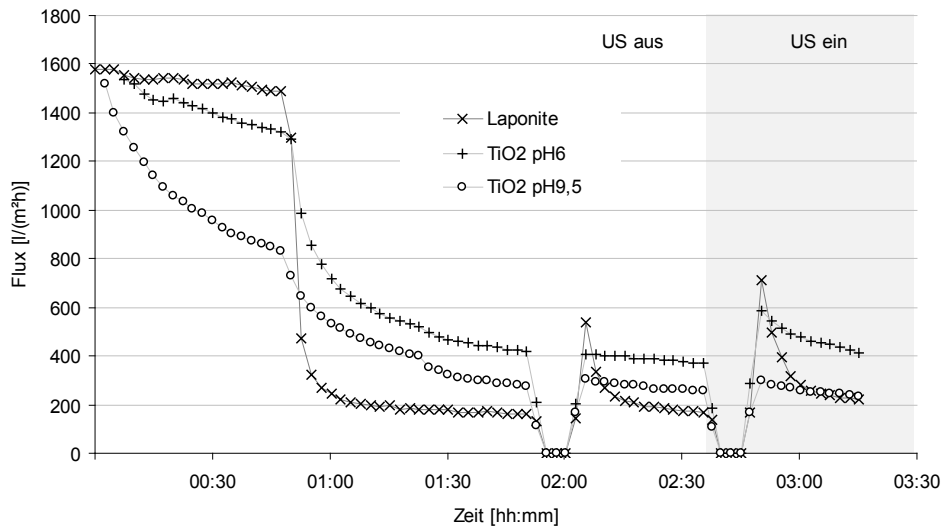
Polymermembran

Nadir UP 150;

für: $v_{cf} = 0,1 \text{ m/s}$, $v_{cf} = 0,5 \text{ m/s}$, $v_{cf} = 1 \text{ m/s}$

Vergleich der verwendeten Stoffsysteme: Bild 5-18 zeigt im direkten Vergleich das Verhalten verschiedener Stoffsysteme bei der Crossflow-Filtration, wobei die Querstromgeschwindigkeit 0,5 m/s und der transmembrane Druck 1,5 bar betragen. Die gelartige Struktur von Laponite lässt sich von der Überströmung relativ gut ablösen. Es ist zu erkennen, dass sich die Endwerte für den Flux für Laponite und der größeren Titandioxidsuspension durch die Ultraschalleinwirkung minimal erhöhen. Für die feindisperse Titandioxidsuspension bei einem angehobenen pH von 9,5 (isoelektrischer Punkt bei pH3,5) wirkt sich diese Art von Ultraschalleintrag bei Verwendung der Polymermembran tendenziell negativ aus.

a)



b)

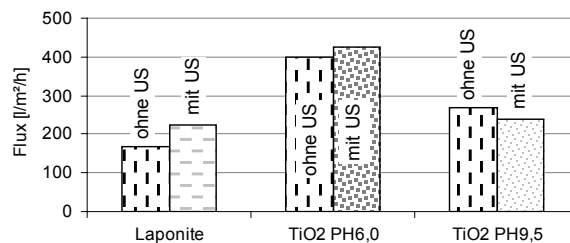


Bild 5-18:

a) Vergleich des Fluxverlaufs bei unterschiedlichen Stoffsystemen;

$c_s = 0,1 \text{ g/l}$ Laponite;

$c_s = 2 \text{ g/l}$ TiO₂;

$v_{cf} = 0,5 \text{ m/s}$

$\Delta p_{tm} = 1,5 \text{ bar}$;

Polymermembran

Nadir UP 150;

b) Gerundete Endwerte bei der Filtration mit und ohne Ultraschall für verschiedene Stoffsysteme.

Tabelle 5-1: tabellarische Übersicht mit den Bewertungsparametern Fluxverbesserung ϕ und Veränderung des spezifischen Energiebedarfs ε bei der Crossflow-Filtration mit schwingender Bodenplatte unter direkter Körperschallanregung mit Ultraschall bei den Beschallungsparametern $f_{US} = 40 \text{ kHz}$ und $P_{US} = 140 \text{ W}$ für keramische und Polymermembran und die Stoffsysteme Laponite und TiO_2

Membran	Stoffsystem			Filtrationsparameter		Ergebnis	
		c_s [g/l]	pH-Wert	v_{cf} [m/s]	p_{tm} [bar]	ϕ	ε
Keramikmembran ITN-Nanopore 200 nm	Laponite	1	pH5,5	1	2	142%	2,5
						283%	0,4
Polymermembran Nadir UP 150	Laponite	0,1	pH5,9	0,1	0,5	9%	28,8
						9%	20,7
				0,5	1,5	37%	12,5
						36%	2,1
				1	1	10%	2,1
						12%	2,1
						23%	1,9
						24%	1,9
				2	1,5	13%	1,5
						0,4	0,4
1,5	1,5	15%	2,4				
TiO ₂		1	pH6,3	0,4	0,4	58%	6,0
		2	pH5,9	0,5	1,5	15%	2,4
			pH9,5	0,5	1,5	-32%	4,1

Tabelle 5-1 zeigt die Crossflow-Filtrationsversuche mit direkter Körperschallanregung der Bodenplatte im Überblick. Der grau hinterlegte Wert markiert ein Experiment, bei dem das Verhältnis aus zusätzlichem Energieeintrag und der Fluxverbesserung dazu führen, dass sich der spezifische Energiebedarf verringert. Das ist nur der Fall bei Verwendung der Keramikmembranplatten. Bei diesem Filtrationsversuch kann durch die hohe Fluxsteigerung der spezifische Energiebedarf ($\varepsilon = 0,4$) halbiert werden. Die beiden aufgeführten Messungen mit der Keramikmembran sollten wegen der sonst gleichen Parameter unmittelbar miteinander vergleichbar sein. Bei dem ersten Wert lässt sich jedoch erkennen, dass die Werte für die Fluxverbesserung und den spezifischen Energiebedarf wesentlich schlechter sind. Der Grund für die starke Abweichung liegt in der schwingungstechnischen Kopplung zwischen Keramikmembran und Bodenplatte durch eine Verspannung, deren Qualität von vielen Einflußgrößen abhängt und schwer reproduzierbar ist.

Fazit:

Gemeinsam mit Kapitel 5.1.4.

5.1.4 Versuchsreihe: Periodische Ultraschallreinigung durch direkte Körperschallanregung

Intention

Nachdem in Kapitel 5.1.3 gezeigt wurde, dass die direkte Körperschallanregung bei der Cross-flow-Filtration das Potenzial hat, den Filtrationsprozess zu verbessern, soll nun untersucht werden, ob der spezifische Energieeinsatz durch die Betriebsweise einer periodischen Beschallung reduziert werden kann. An den claudnischen Figuren in Kapitel 4.3.2 (Bild 4-15, Bild 4-16 und Bild 4-19) kann man erkennen, dass die Schwingungsamplitude in einigen Bereichen der Oberfläche verschwindet, dort ist keine Reinigung zu erwarten. Bei einem gepulsten Betrieb ist es vorstellbar, dass die Überströmgeschwindigkeit und der Filtratstrom die Belegung der Membranfläche nach einer Ultraschallreinigung wieder ausgleichen. Wenn dadurch bei jedem Reinigungsvorgang in etwa der gleiche Deckschichtaufbau und eine ähnliche Beladung der Flächen realisiert werden, sollte auch die Schwingungsanregung ähnlich gute Reinigungserfolge erbringen.

Versuchsmethode

Analog zu Kapitel 5.1.3.

Versuchsdurchführung

Die Versuchsdurchführung erfolgt analog zu Kapitel 5.1.3. mit dem Unterschied, dass der Ultraschall als periodische Reinigungsmethode eingesetzt wird. Es werden Dauer und zeitlicher Abstand der Beschallungsvorgänge variiert.

Versuchsergebnis

Entsprechend der Erfahrungen aus Kapitel 5.1.3 werden hier Ergebnisse vorgestellt, bei denen die keramische Membran direkt mit Ultraschall angeregt wurde. Bild 5-19 zeigt ein Filtrationsexperiment, bei dem nach 40 min durch einen 5 s langen Ultraschalleintrag die Membran gereinigt wurde. Querstromgeschwindigkeit und Filtrationsdruck bleiben während dieses Vorgangs unverändert. Bereits an den ersten sechs Wiederholungen lässt sich deutlich erkennen, dass die Reinigungsmaßnahme eine irreversible Deckschichtbildung nicht vermeiden kann. Der Reinigungserfolg nimmt deutlich ab und damit auch der mittlere Flux. Der gepulste Einsatz der Beschallung führt nicht zu dem erhofften Effekt. Obwohl zu erwarten ist, dass Abtransport, Vergleichmäßigung der Deckschicht durch Querströmung und Filtration in den Crossflow-Filtrationsphasen zu einem vergleichbaren Deckschichtaufbau führt, können aufeinander folgende Beschallungsvorgänge keine vergleichbar gute Reinigungswirkung erzielen. Vielmehr verzögert die gepulste Beschallung lediglich die Fluxabnahme, die auch bei einer Dauerbeschallung zu beobachten wäre. Ein Interpretationsansatz besteht darin, dass die nicht schwingenden Bereiche der Membran (vgl. Kap. 4.3.2 claudnische Strukturen in Bild 4-15, Bild 4-16 und Bild 4-19) immer dichter belegt werden und sich flächig mit fortschreitender Filtrationszeit ausweiten.

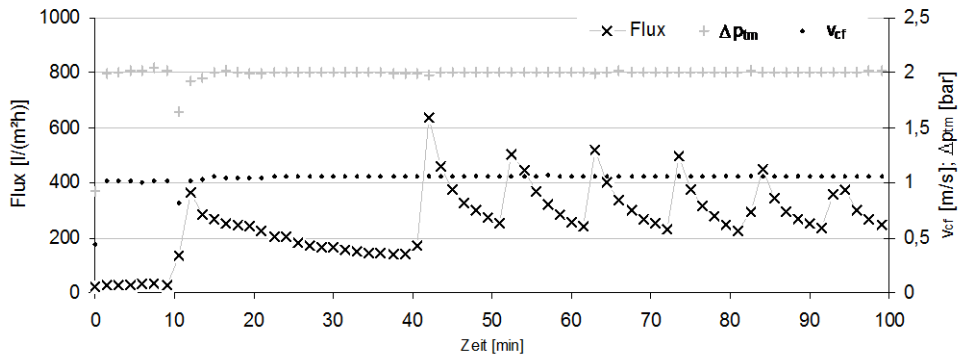


Bild 5-19: Crossflow-Filtration von Laponite auf einer Keramikmembran (ITN-Nanopore 200 nm) mit periodischen Beschallungsvorgängen

$v_{cf} = 1 \text{ m/s}$, $\Delta p_{tm} = 2 \text{ bar}$,
 $c_F = 100 \text{ mg/l Laponite}$,
 $\Delta t_F = 10 \text{ min}$,
 $P_{US} = 140 \text{ W}$,
 $\Delta t_{US} = 5 \text{ s}$.

Die Beispielmessung in Bild 5-20 unterscheidet sich von der in Bild 5-19 dadurch, dass die Beschallung in einer Filtrationspause stattfindet. Querströmung und Transmembrandruck nehmen kurzzeitig den Wert Null an. Die Lockerung der Deckschicht wird durch die Beschallung unterstützt und beim anschließenden Einschalten der Querströmung teilweise abtransportiert. Die Regenerierung der Membran liegt bei diesen Versuchen auf einem deutlich höheren Niveau als in Bild 5-19. Es ist unmittelbar einsichtig, dass beim Wegfallen der Schleppekraft die Deckschicht nicht länger angepresst wird und eine Beschallung eine wesentlich stärkere Lockerung der Partikel bewirkt. Zudem muss erwähnt werden, dass das spezielle Stoffsystem Laponite ohne die Anpresskraft von alleine aus der Struktur geschichteter Plättchen in die gelartige »Kartenhauskonfiguration« aufquillt und anschließend leichter von der Querströmung abtransportiert werden kann (vgl. Kap. 4.6.1). Trotz der besseren Voraussetzungen für eine Reinigung ist in Bild 5-20 eine deutliche Fluxabnahme zu beobachten.

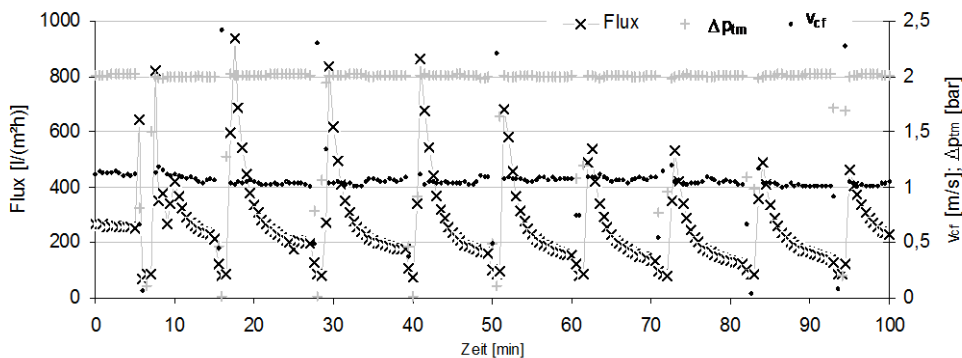


Bild 5-20: Crossflow-Filtration von Laponite auf einer Keramikmembran (ITN- Nanopore 200 nm) mit periodischen Beschallungsvorgängen, wobei die Pumpe während der Beschallung ausgeschaltet wird.

$v_{cf} = 1 \text{ m/s}$, $\Delta p_{tm} = 2 \text{ bar}$, $c_F = 100 \text{ mg/l Laponite}$,
 $\Delta t_F = 30 \text{ min}$,
 $P_{US} = 82 \text{ W}$,
 $\Delta t_{US} = 5 \text{ s}$.

Über den ganzen Abschnitt der Messung in Bild 5-20 wird eine Verbesserung des Fluxes von $\phi = 225\%$ im Vergleich zum stationären Endwert der Filtration ohne Ultraschall erreicht. Der spezifische Energiebedarf e sinkt um den Faktor $\varepsilon = 0,3$ auf 20 kWh/m^3 .

Erkenntnisse aus der Versuchsreihe

Die direkte Schwingungsanregung der keramischen Membran ITN-Nanopore 200 nm führt bei der Crossflow-Filtration zu deutlichen Fluxsteigerungen. Nur bei passend gewählten Filtrationsparametern von Querstromgeschwindigkeit und transmembranem Druck führt diese kurzzeitige Fluxerhöhung auch zu einem Absenken des spezifischen Energiebedarfs. Dabei kann die Querstromgeschwindigkeit niedrig gewählt werden, sie sorgt für den Abtransport der abgelösten Partikel und hält größere Partikel in der Kernströmung (Pinch-Effekt). Für verschiedene Anströmungs- und Ultraschallverhältnisse ergeben sich verschiedene Werte für den Grenzflux $v_{p,kr}$. Insbesondere bei der Einkopplung von Ultraschall ist darauf zu achten die treibende, transmembrane Druckdifferenz für den Grenzflux zu wählen. Wird eine transmembrane Druckdifferenz unterhalb des Grenzfluxes gewählt, wird das Potenzial des Ultraschalleintrages nicht ausgeschöpft und die eingetragene Leistung nicht vollständig genutzt. Wird ein Transmembrandruck oberhalb des Grenzfluxes gewählt, ist das energetisch ungünstig, da ein höherer Druck aufgebaut wird, als zum Erreichen des gleichen Fluxes notwendig ist. Zudem bewirkt ein unnötig hoher Druck ein stärkeres Verdichten der Deckschicht.

Fazit

Die direkte Körperschallanregung im Frequenzbereich des Ultraschalls ist dann wirksam, wenn es sich bei der Membran um einen festen Körper handelt, der sich zu hochfrequenten Schwingungen anregen lässt und diese weiterleitet. Der spezifische Energiebedarf kann mit dieser Reinigungsmethode nur durch passend gewählte Filtrationsparameter (geringe Querstromgeschwindigkeit und transmembraner Druck entsprechend des Grenzflux) gesenkt werden.

Der vorherrschende Ablösemechanismus ist der in Kapitel 6.2.2 erklärte Effekt der Oberflächenbeschleunigung. Der kritische Punkt der Kopplung zwischen Keramikmembran und Schallwandler bleibt ungelöst. Die verwendeten Methoden des kraftschlüssigen Verklemmens der Keramik auf der schwingenden Bodenplatte und das Ankleben sind beide nicht zufrieden stellend. Eine Skalierung dieses Ansatzes auf eine für den technischen Einsatz relevante Membranfläche ist daher wenig aussichtsreich. Es muss davon ausgegangen werden, dass das Membranmaterial oder die Verbindungsstelle auf Dauer Schaden nehmen. Für Feststoffmembranen, die schwingungsfähig sind und ausreichend beständig gegenüber einer hochfrequenten Wechselbeanspruchung, ist die direkte Körperschallanregung ein interessanter Ansatz. Beispiele für geeignete Membranen sind Membranen aus Sintermetall oder eventuell Mikrosiebe mit entsprechenden metallischen Stützkonstruktionen für die direkte Körperschallanregung.

Der Ansatz, Polymerflachmembranen durch den Transmembrandruck kraftschlüssig auf eine schwingende Bodenplatte anzupressen, war nicht erfolgreich. Die Anpresskräfte bei den verwendeten Filtrationsdrücken sind für eine kraftschlüssige Verbindung zur Übertragung der Ultraschallvibrationen zu gering. Zusätzlich sorgt die schwingungsabsorbierende poröse Stützschiicht der Membran dafür, dass die resultierende Amplitude auf der Membranoberfläche sehr gering ist. Eine Übertragung dieses Ansatzes auf größere Membranflächen, wie es in der Bauform von Kissen- und Plattenmodulen denkbar wäre, wird daher nicht weiterverfolgt.

5.2 Ultraschallunterstützte Dead-End-Filtration

5.2.1 Versuchsreihe: Ultraschall bei der Vakuumfiltration

Leistungsumschalleintrag bei niedrigen Frequenzen – Ultraschallbad

Intention

An getauchten Membranen in der Vakuumbetriebsweise lassen sich Ultraschallreinigungsversuche besonders einfach realisieren. Zur Reinigung kann ein übliches Ultraschallbad genutzt werden. Diese orientierenden Versuche sollen den Einfluss der Beschallungsdauer, des Gasgehaltes des Rückspülfluids und die Wirksamkeit von der Verfahrenskombination des ultraschallunterstützten Rückspülens aufklären.

Versuchsmethode

Es wird der Testaufbau aus Kapitel 4.2.5 verwendet. Als Stoffsystem zur Verschmutzung der Membran wird natürliches Oberflächenwasser (Kap. 4.6.3) und angefärbte Laponitesuspension (Kap. 4.6.1) verwendet. Es wird die Flachmembran Nanopore 200 nm der Firma ITN verwendet.

Bei der Reinigung kommt ein mit Wasser befülltes Ultraschallbad der Firma Bandelin Electronic GmbH, Berlin vom Fabrikat Sonorex Super RK 100 zum Einsatz.

Versuchsdurchführung

An der manuell gereinigten Keramikmembranplatte wird in einem Behälter mit Reinwasser der Flux bestimmt. Anschließend wird die Membran in einen Behälter mit dem zu filtrierendem Stoffsystem getaucht und das Stoffsystem für eine festgelegte Zeit auffiltrierte. Danach wird wieder im Reinwasser der Flux mit Deckschicht bestimmt. In einem Ultraschallbad erfolgt die Reinigung. Nach dem Reinigungsvorgang wird abschließend der Wasserflux der gereinigten Membran bestimmt.

Zur Reinigung werden unterschiedliche Reinigungsvorgänge realisiert:

- Ultraschall mit unterschiedlicher Einwirkdauer
- Rückspülung
- Rückspülung mit Ultraschall

Versuchsergebnis

Bild 5-21 zeigt den Flux für verschieden behandelte Keramikmembranplatten. Als Referenz wird zunächst ein Mittelwert für den Ausgangszustand der manuell gereinigten Membran aufgetragen und ein Mittelwert für den Flux der Keramikmembran mit Deckschicht. Letztere ist jeweils Ausgangsverunreinigung für die Reinigungsvorgänge. Tabelle 5-2 führt auf, nach welchen Behandlungsmaßnahmen der Flux bestimmt wurde. Neben den Fluxwerten sind in Tabelle 5-2 auch die Sauberkeitsgrade σ der Membran nach den Reinigungsmaßnahmen aufgeführt.

Zur Diskussion der Ergebnisse wurde die Reproduziergenauigkeit der Versuchsreihe bestimmt. Die Abweichung der Messwerte liegt im Mittel bei 10%. An den Reinigungsvorgängen US_5s bis US_5min ist deutlich zu sehen, dass die Einwirkzeit des Ultraschalls einen deutlichen Einfluss auf den Reinigungserfolg hat. Eine nur kurze Rückspülung von 30 s ist bei diesem Stoffsystem ähnlich erfolgreich, wie eine Ultraschallreinigung von 5 min bei einer elektrischen Leistung von 190 W.

Für eine gleichzeitige Rückspülung bei Ultraschalleinwirkung deutet sich eine Verbesserung des Reinigungserfolgs an. Dieser Trend lässt sich aus den beiden Messwerten für das Rückspülen (RS_DI) und das ultraschallunterstützte Rückspülen (RSUS-DI) mit DI-Wasser in Bild 5-21 ablesen.

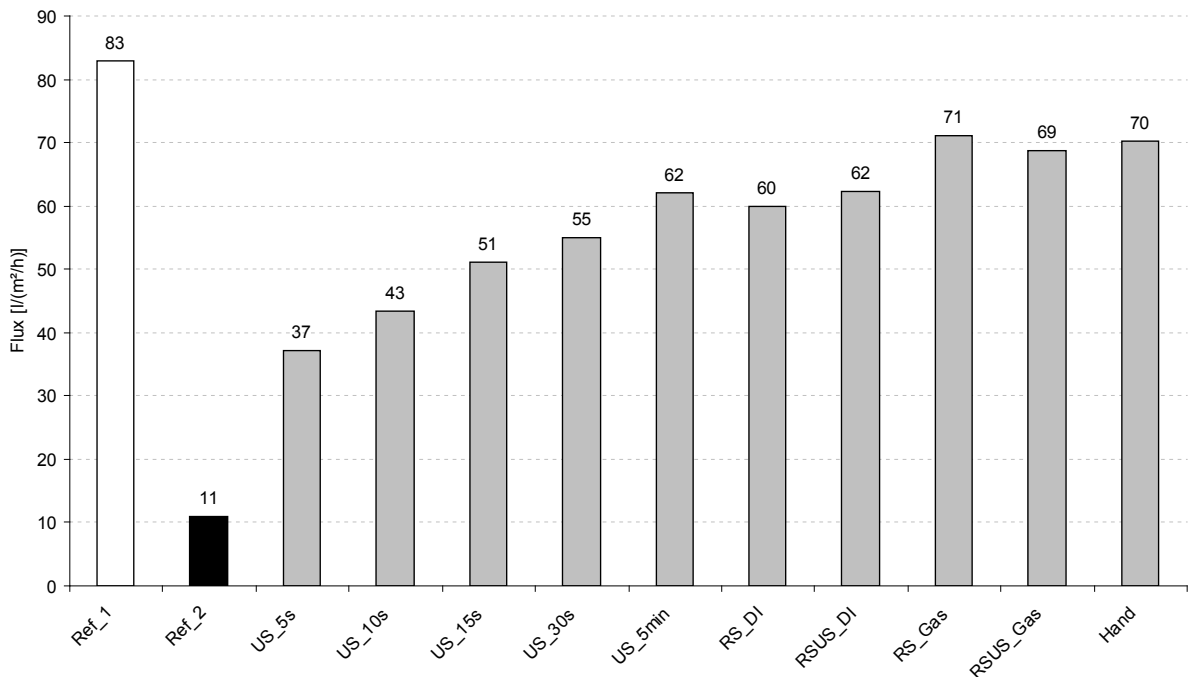


Bild 5-21: Fluxwerte nach verschiedenen Ultraschallreinigungsvorgängen an einer getauchten Keramikmembranplatte bei der Vakuumfiltration von natürlichem Oberflächenwasser (TOC = 6,13 mg/l)

Die Verwendung von kohlendioxidgesättigtem Rückspülwasser bei der Rückspülung, die ein Ausperlen an der zu reinigenden Oberfläche bewirkt, zeigt einen Vorteil für den Reinigungserfolg. Allerdings ist hierfür keine Steigerung der Reinigungswirkung bei zusätzlicher Beschallung festzustellen.

Tabelle 5-2: Beschreibung der einzelnen Reinigungsvorgänge in Bild 5-21

Reinigungsvorgang	Beschreibung	Flux [l/(m ² h)]	□
Ref_1	Mittelwert Reinwasserflux saubere Membran	83	100%
Ref_2	Mittelwert Flux mit Deckschicht	11	13%
US_5s	Ultraschall; $P_{US} = 190 \text{ W}$; $\Delta t_{US} = 5 \text{ s}$	37	45%
US_10s	Ultraschall; $P_{US} = 190 \text{ W}$; $\Delta t_{US} = 10 \text{ s}$	43	52%
US_15s	Ultraschall; $P_{US} = 190 \text{ W}$; $\Delta t_{US} = 15 \text{ s}$	51	62%
US_30s	Ultraschall; $P_{US} = 190 \text{ W}$; $\Delta t_{US} = 30 \text{ s}$	55	66%
US_5min	Ultraschall; $P_{US} = 190 \text{ W}$; $\Delta t_{US} = 5 \text{ min}$	62	75%
RS_DI	Rückspülen mit DI-Wasser; $\Delta t_{RS} = 30 \text{ s}$; $\Delta p_{tm,RS} = 1 \text{ bar}$	60	72%
RSUS_DI	ultraschallunterstütztes Rückspülen; $P_{US} = 190 \text{ W}$; $\Delta t_{US} = 30 \text{ s}$; $\Delta p_{tm,RS} = 1 \text{ bar}$	62	75%
RS_Gas	Rückspülen; $\Delta t_{RS} = 30 \text{ s}$; $\Delta p_{tm,RS} = 1 \text{ bar}$; CO ₂ -gesättigtes RS-Fluid	71	86%
RSUS_Gas	ultraschallunterstütztes Rückspülen; $P_{US} = 190 \text{ W}$; $\Delta t_{RS} = 30 \text{ s}$; $\Delta p_{tm,RS} = 1 \text{ bar}$; CO ₂ -gesättigtes RS-Fluid	69	83%
Hand	manuelles Abwischen und Abspülen	70	85%

Bild 5-22 zeigt eine periodische Reinigung mit 5 s Beschallung nach 10 min Filtration. Für diese Versuchserie wurde der Flux in der Suspension während der Filtration gemessen. Sowohl Filtration als auch Reinigung haben in dem Ultraschallbad stattgefunden. Vor der ersten Reinigung wurde für zwei Stunden filtriert. Aus diesem Grund unterscheiden sich Grundverschmutzung und die Reinigungswirkung bei dem ersten Reinigungsvorgang deutlich von den folgenden Reinigungsvorgängen. Der weitere Verlauf der Messung zeigt, dass mit dieser Reinigungsmethode der Fluss zunächst stabilisiert werden kann. Nach 120 min ist jedoch eine deutliche Flussabnahme zu beobachten. Ähnlich wie in Bild 5-5 ist auch bei der Vakuumfiltration von natürlichem Oberflächenwasser die Ultraschallreinigung unvollständig und kann ein Zusetzen der Membran auf Dauer nicht verhindern.

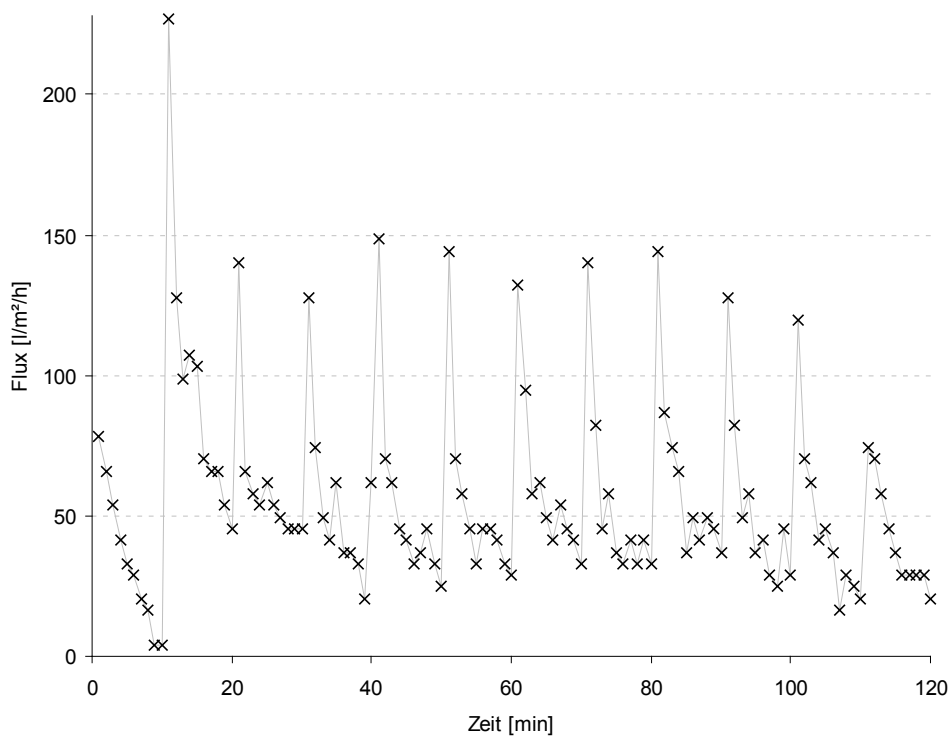


Bild 5-22: Periodische Ultraschallreinigung der Keramikmembranplatte bei der Vakuumfiltration von natürlichem Oberflächenwasser;
 TOC = 6,13 mg/l
 $P_{US} = 190 \text{ W}$;
 $\Delta t_F = 10 \text{ min}$;
 $\Delta t_{US} = 5 \text{ s}$

In Bild 5-23 sind die Fluxwerte nach verschiedenen Reinigungsvorgängen für das Stoffsystem Laponite bei Beschallung in einem Ultraschallbad aufgetragen. Bei der Interpretation dieser Ergebnisse muss wieder auf die besonderen Eigenschaften des Laponites geachtet werden. Bei der Vakuumfiltration ist die Deckschicht keiner Scherbeanspruchung ausgesetzt, so dass sie die gelartige »Kartenhausstruktur« annehmen kann. Bei einer Rückspülung wird diese zusammenhängende Gelschicht gleichmäßig angehoben und rutscht von der Membran ab. Tabelle 5-3 führt die Parameter für die einzelnen Reinigungsvorgänge auf und zeigt neben dem Fluxwert auch den erreichten Sauberkeitsgrad ν . Es deutet sich an, dass eine gleichzeitige Anwendung von Ultraschall während der Rückspülung den Reinigungserfolg erhöht. Eine Verbesserung durch einen erhöhten Gasgehalt im Rückspülfluid lässt sich nicht erkennen.

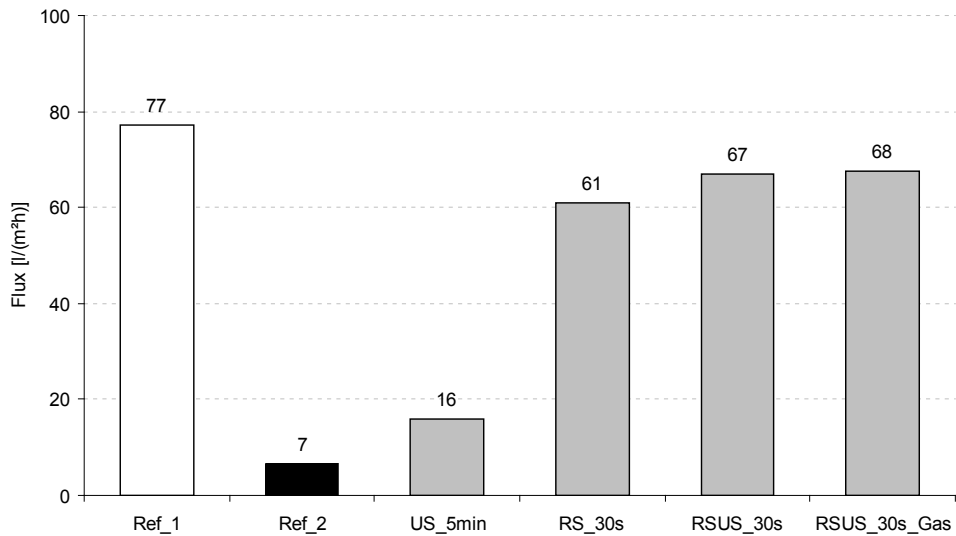


Bild 5-23: Verschiedene Reinigungsvorgänge bei Ultraschalleinwirkung. Vakuumfiltration von Laponitesuspension;
 $c_s = 5,4 \text{ g/l}$;
 Keramikmembran
 ITN-Nanopore 200 nm.

Tabelle 5-3: Beschreibung der Reinigungsvorgänge in Bild 5-23

Reinigungsvorgang	Beschreibung	Flux [l/(m²h)]	v_r
Ref_1	Mittelwert Reinwasserflux saubere Membran	77	100%
Ref_2	Mittelwert Flux mit Deckschicht	7	9%
US_5min	Ultraschall; $P_{US} = 200 \text{ W}$; $\Delta t_{US} = 5 \text{ min}$	16	21%
RS_30s	Rückspülung mit DI-Wasser; $\Delta t_{RS} = 30 \text{ s}$; $\Delta p_{tm,RS} = 1 \text{ bar}$	61	79%
RSUS_30s	ultraschallunterstütztes Rückspülen; $P_{US} = 200 \text{ W}$; $\Delta t_{US} = 30 \text{ s}$; $\Delta p_{tm,RS} = 1 \text{ bar}$	67	87%
RSUS_30s_Gas	ultraschallunterstütztes Rückspülen; $P_{US} = 200 \text{ W}$; $\Delta t_{US} = 30 \text{ s}$; $\Delta p_{tm,RS} = 1 \text{ bar}$; CO_2 -gesättigtes RS-Fluid	68	87%

Leistungultraschalleintrag bei hohen Frequenzen – Megasonic

Intention

Die hochfrequente Teilereinigung wurde bereits in Kapitel 2.3.6 beschrieben. Mit höheren Frequenzen kann eine sanfte und gründliche Reinigung durchgeführt werden. Im Frequenzbereich 1 MHz werden beispielsweise Halbleiterbauteile in entsprechenden Anlagen gereinigt. Bei den so genannten Megasonic-Schallgebern sollen akustische Strömungseffekte mit besonders steilen Strömungsgradienten für die Reinigung von sehr kleinen Partikeln im Vordergrund stehen (Busnaina 2002). Für eine verbesserte Reinigung von Membranen sind diese Eigenschaften interessant, deshalb soll hier die tatsächliche Reinigungswirkung von Megasonic in einem einfachen Experiment überprüft werden.

Versuchsmethode

Die Versuchsmethode ist analog zu dem oben beschriebenen Experiment bei der Vakuumfiltration im Ultraschallbad.

Versuchsdurchführung

Die Versuche werden auf die gleiche Weise, wie in dem oben beschriebenen Experiment bei der Vakuumfiltration im Ultraschallbad durchgeführt. Einziger Unterschied besteht in der Verwendung eines Megaschall-Tauchschwingers zur Reinigung statt eines Ultraschallbads.

Versuchsergebnis

In Bild 5-24 sind die Ergebnisse für die analogen Reinigungsversuche wie in Bild 5-23 dargestellt. Der Unterschied besteht darin, dass statt dem Ultraschallbad ein Megasonic-Tauchschwinger verwendet wurde. Tabelle 5-4 zeigt Details zu den Reinigungsvorgängen. Der zusätzliche Reinigungserfolg bei der Kombination aus Beschallung und Rückspülung fällt hier wesentlich deutlicher aus. Die Gassättigung des Rückspülwassers wirkt sich nicht positiv auf den Reinigungserfolg aus. Bei der Megaschallreinigung ohne Rückspülung stellt sich wesentlich langsamer ein Reinigungserfolg ein als bei der Beaufschlagung mit Ultraschall. Aus der Beobachtung lässt sich schließen, dass der wesentliche Reinigungseffekt auf einem sanften Überströmen der Deckschicht beruht. Effekte durch besonders steile Strömungsgradienten sind dabei nicht zu erkennen (vgl. Kap. 6.2.1).

Die besonders gründliche Reinigung von kleinen Partikeln, die bei der Waferreinigung mit Megaschall ausgenutzt wird, kann ein Grund dafür sein, dass bei Verwendung der Megaschallreinigung in Kombination mit der Rückspülung wesentlich bessere Reinigungserfolge zu erreichen sind. Nachdem die Rückspülung den groben Abtrag der Gelschicht bewirkt hat, können die kleinskaligen Effekte der Megaschallreinigung restliche Partikel von der Oberfläche ablösen. Andererseits bewirkt der Megaschalleintrag auch eine gute Dispergierung der feinen Partikel, daher ist der Abtransport durch die Rückspülung von entscheidender Bedeutung für die Wirksamkeit der Reinigungsmethode.

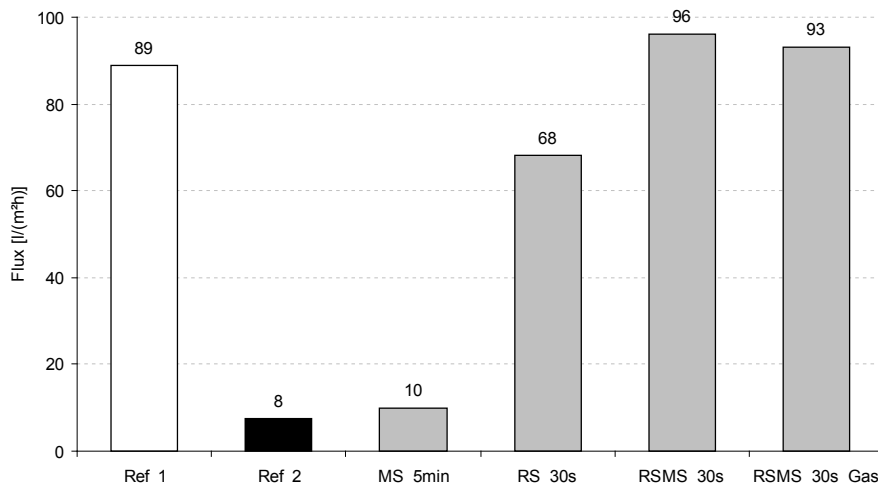


Bild 5-24:
 Verschiedene Reinigungsvorgänge bei Megaschalleinwirkung. Vakuumfiltration von Laponitesuspension;
 $c_s = 5,4 \text{ g/l}$;
 Keramikmembran
 ITN-Nanopore 200 nm.

Tabelle 5-4: Beschreibung der Reinigungsvorgänge in Bild 5-24

Reinigungsvorgang	Beschreibung	Flux [l/(m²h)]	v_r
Ref_1	Mittelwert Reinwasserflux saubere Membran	89	100%
Ref_2	Mittelwert Flux mit Deckschicht	8	9%
MS_5min	Megaschall; $P_{MS} = 200 \text{ W}$; $\Delta t_{MS} = 5 \text{ min}$	10	11%
RS_30s	Rückspülung mit DI-Wasser; $\Delta t_{RS} = 30 \text{ s}$; $\Delta p_{tm,RS} = 1 \text{ bar}$	68	77%
RSMS_30s	megaschallunterstütztes Rückspülen; $P_{MS} = 200 \text{ W}$; $\Delta t_{MS} = 30 \text{ s}$; $\Delta p_{tm,RS} = 1 \text{ bar}$	96	108%
RSMS_30s_Gas	megaschallunterstütztes Rückspülen; $P_{MS} = 200 \text{ W}$; $\Delta t_{MS} = 30 \text{ s}$; $\Delta p_{tm,RS} = 1 \text{ bar}$; CO ₂ -gesättigtes RS-Fluid	93	105%

Erkenntnisse aus der Versuchsreihe

Der Einfluss gelöster Gase: Der Einfluss von gelösten Gasen konnte in diesen Experimenten nicht eindeutig nachgewiesen werden.

Megaschallwandler: Für die Reinigung von Laponitedeckschichten konnte ein Vorteil der hochfrequenten Reinigung (~1 MHz) gegenüber einer Ultraschallreinigung (35 kHz) gemessen werden. Da die Geräte zur Megaschallabstrahlung mit nennenswerten Leistungen etwa um den Faktor vier teurer sind, als übliche Ultraschallwandler und bei der Integration dieser Wandler zusätzliche technische Schwierigkeiten mit den Materialien auftreten, wurde der Ansatz einer Reinigung mit Megaschall nicht weiter verfolgt. Bei der Integration von Megaschallwandlern in Membranmodule oder Testzellen aus Kunststoff ist mit einer sehr hohen Absorption der Schallenergie in dem Kunststoff zu rechnen, die zum Schmelzen und Verformen dieser Bauteile führt.

Diese Art von Materialschädigung konnte bereits bei der dauerhaften Beschallung bei 130 kHz im Strömungskanal der Testzelle beobachtet werden (vgl. Kap. 5.1).

Getauchte Membransysteme: Prinzipiell ist für getauchte Membransysteme die Einkopplung von Ultraschall mittels üblicher Tauchschwinger oder Ultraschallbäder technisch besonders einfach realisierbar. Neben der einfachen Geometrie im Becken eines getauchten Moduls sind auch die Betriebsbedingungen eines geringen Überdrucks und einer nicht vorhandenen Überströmung für die Ausbildung einer ausgeprägten Kavitationszone und damit einer guten Ultraschallreinigung geeignet. Dabei können sehr gleichmäßige Schall- und Kavitationsfelder erzeugt werden. Ein Nachteil dieser Methode besteht darin, dass ein relativ großes Volumen beschallt werden muss, wofür große Leistungen notwendig sind. Nur ein Bruchteil dieser eingetragenen Leistung kann für die Reinigung der Membranoberfläche verwendet werden.

Einer Skalierung dieses Ansatzes auf mehrere Quadratmeter große getauchte Membraneinheiten steht aus technischer Sicht nichts entgegen. Der Ansatz wurde auch bereits umgesetzt und untersucht, wobei Tauchschwinger bei 130 kHz eingesetzt wurden, um ein getauchtes Membranmodul mit 10 m² aktiver Membranfläche zu reinigen (Lauterborn 2008). Als Nachteile des Ansatzes können sich der hohe apparative Aufwand, die Vielzahl an Wandlern und damit möglichen Fehlerquellen und die Kosten für die Technik herausstellen. Die in dieser Arbeit favorisierte Ultraschalltechnologie besteht aus leistungsstarken Industrieprozessoren mit Schallschnellen-Transformatoren, was den Vorteil aufweist, dass bei einer Skalierung oder modularen Erweiterung des Ansatzes, deutlich weniger Schallwandler verbaut werden müssen.

Fazit

Um eine schnelle und gründliche Reinigung der Membran zu erreichen, zeichnet sich eine Kombination aus Rückspülung und Ultraschall- bzw. Megaschallreinigung als besonders erfolgreiche Methode ab. Wichtig dabei ist der möglichst vollständige Abtransport der abgelösten Partikel aus dem Membranmodul mit dem Rückspülvolumen. Getauchte Membransysteme in Kombination mit gleichmäßigen Kavitationsfeldern sind technisch gut geeignet für die Ultraschallreinigung der Membranen.

5.2.2 Versuchsreihe: Ultraschallunterstütztes Rückspülen im Labormaßstab

Intention

Die Erkenntnisse aus den vorangegangenen Kapiteln lassen die Schlussfolgerung zu, dass bezüglich des Reinigungsverhaltens und in Hinblick auf eine Skalierbarkeit des Ansatzes die ultraschallunterstützte Rückspülung der interessanteste Ansatz ist.

Die Visualisierung der Reinigungsvorgänge in Kapitel 5.1.2 verdeutlicht die wichtige Rolle oszillierender Gasblasen für die Reinigung von Deckschichten auf Membranen.

In dem Laboraufbau (Kap. 4.2.6) sollen die Blasen auf der Feedseite der Membran sichtbar gemacht werden. Mit diesen Versuchen werden Parameter identifiziert, die zu einer hohen Blasendichte auf der zu reinigenden Seite der Membran führen.

Im zweiten Schritt wird untersucht, inwieweit die identifizierten Maßnahmen tatsächlich zu einer Verbesserung der Reinigungsvorgänge beitragen.

Versuchsmethode

Der Aufbau des Experiments ist in Kapitel 4.2.6 beschrieben. Zur Auswertung des Reinigungserfolges wurde in diesen Versuchen eine Wägung in einem definierten feuchten Zustand der Labormembranscheiben durchgeführt. Für die Experimente kommen Labormembranscheiben (Whatman; ME24) aus Zellosemischester mit einem nominellen Porendurchmesser von $0,2\ \mu\text{m}$ zum Einsatz. Zur Anreicherung des Rückspülwassers mit physikalisch gelöstem Gas wird kohlendioxidgesättigtes Wasser mit DI-Wasser in verschiedenen Mischungsverhältnissen verwendet.

Als geeignete Stoffsysteme wurden Deckschichten aus Titandioxid oder etwas größere Silikatpartikel Sikron SF600 identifiziert und in den Versuchsreihen verwendet (vgl. Kap.4.6.2 und 4.6.5).

Versuchsdurchführung

Jedes Reinigungsexperiment beginnt mit der Reinwasserfiltration eines neuen Membranplättchens mit Hilfe einer Vakuumfilternutsche (Schritt I in Bild 4-8).

- Als Referenzzustand der neuen, sauberen Membran wird das feuchte Membranplättchen gewogen (Schritt II). Entscheidend für eine reproduzierbare Experimentdurchführung ist die Restfeuchte der Membran. Als beste Methode hat sich herausgestellt, eine Wägung zu dem Zeitpunkt durchzuführen, wenn die Flüssigkeit über der Oberfläche des Membranplättchens erstmals vollständig durch das Vakuum abgezogen wurde. Der Zeitpunkt lässt sich visuell sehr genau ermitteln, da die Oberfläche ihre Erscheinung von glänzend nass zu stumpf wechselt.
- Anschließend erfolgt das Auffiltrieren einer zuvor abgewogenen Feststoffmenge (jeweils $0,5\ \text{g}$) auf der Filternutsche (Schritt III). Der verunreinigte Zustand kann durch den Ein- und Ausbau auf die Filternutsche und durch die Restfeuchte der Deckschicht nicht exakt eingestellt werden. Die Membran wird im »beladenen« Zustand nochmals gewogen (Schritt IV). Zeitpunkt für die Wägung ist wieder der Moment, wo der letzte glänzende Tropfen auf der Deckschichtoberfläche verschwunden ist und die Oberfläche stumpf erscheint.
- Im V. Schritt wird die »beladene« Membran in den eigentlichen Teststand zur Durchführung der ultraschallunterstützten Rückspüleinigung eingesetzt. Die Feedseite des Beschallungsrohres wird vorsichtig mit DI-Wasser befüllt. Es erfolgt die Rückspülung mit vorgegebenem Druck, Rückspül- und Beschallungszeit. Es werden Rückspüldruck, Ultraschalleistung und Rückspülvolumen messtechnisch erfasst.
- Die über der Testzelle stehende Restsuspension wird im eingebauten Zustand bis zu dem oben beschriebenen Zustand auffiltrierte (VI). Im letzten Schritt wird das Membranplättchen aus dem Teststand ausgebaut und die durch ultraschallunterstütztes Rückspülen gereinigte Membran gewogen (Schritt VII).

Das unscharfe Kriterium der Restfeuchte und die Fehler durch das häufige Ein- und Ausbauen der Membran bei diesem Versuchsablauf werfen die Frage nach der Genauigkeit dieser Methode auf. Anhand der sauberen, neuen Membran kann die Methode der feuchten Wägung am Punkt der matt erscheinenden Oberfläche bewertet werden. Aus zwölf Versuchsdurchgängen wurde die Masse des feuchten Membranplättchens zu $252\ \text{mg}$ mit einer Standardabweichung von $17\ \text{mg}$ bestimmt. Der größte Wert für die relative Abweichung vom Mittelwert liegt bei 11% . Nach dem Auffiltrieren von $0,5\ \text{g}$ Titandioxid in Form einer hochkonzentrierten Suspension beträgt die Wägung im feuchten Zustand $1046\ \text{mg} \pm 23\ \text{mg}$. Der größte Wert für die relative Abweichung vom Mittelwert liegt hier bei $4,1\%$. Bei den nächsten Schritten der Versuchsdurchführung

rung sind größere Abweichungen zu erwarten. Im Schritt V. wird die Membran beim Rückspülen mit der Deckschicht gegen ein Edelstahlgitter gepresst. Teile der Deckschicht bleiben an dem Gitter hängen und verfälschen so das Reinigungsergebnis. Ähnliches gilt für einen Teil der Deckschicht, der beim Ausbau der Membran an dem verwendeten Dichtring hängen bleibt. Ein geringer Überstand an Suspension wird nach dem Entleeren des oberen Rohres (6) im Schritt VI. bis zum Erreichen der matten Oberfläche abfiltriert. Die Menge und Konzentration dieses Überstandes bildet eine weitere Fehlerquelle bei der Bewertung des Reinigungsvorgangs. Insgesamt ist die Reproduziergenauigkeit ausreichend, um die Reinigungseffekte bewerten zu können und um Trends bei Parametervariationen zu identifizieren.

Versuchsergebnis

Durch visuelle Beobachtung der Membranoberfläche und des feedseitigen Volumens werden Maßnahmen identifiziert, die zu einer hohen Bläschendichte auf der Feedseite während der ultraschallunterstützten Rückspülung führen. Es wurde mit unterschiedlichem Differenzdruck während der ultraschallunterstützten Rückspülung experimentiert.

Bei einer hohen Gassättigung des Rückspülfluids ist auf der Feedseite eine hohe Bläschendichte zu beobachten (Bild 5-25a). Diese Maßnahme ist nur erfolgreich, solange durch einen relativ hohen Druck auf der Seite des Schalleintrags (Permeatseite vgl. Bild 5-25b) ein Ausgasen verhindert wird. Kommt es zu einer Ausgasung auf der Seite der Ultraschallsonotrode, dämpft das Blasenpolster die Schalldruckamplitude so stark, dass auf der Feedseite kaum Bläschenaktivität zu beobachten ist.

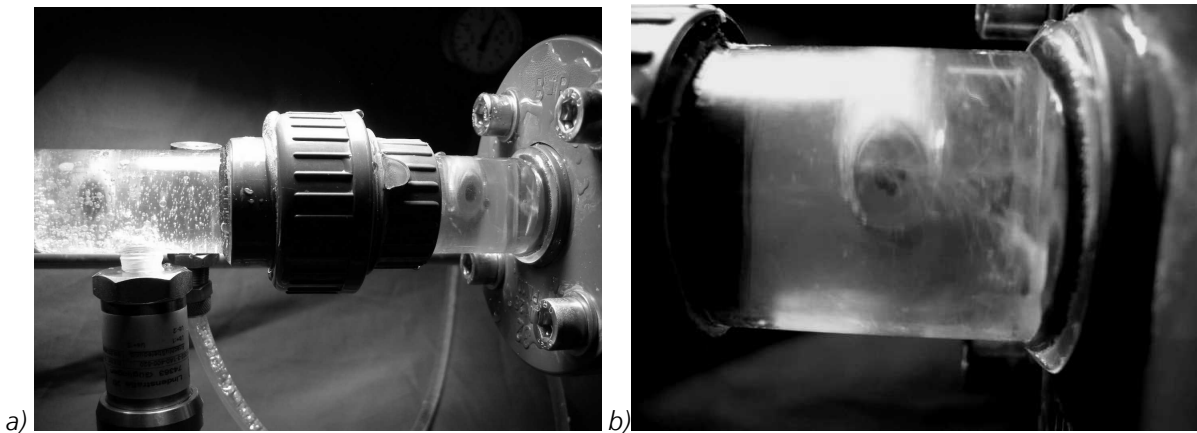


Bild 5-25: Visuelle Bewertung geeigneter Einstellungen von Rückspüldruck und Gasgehalt, um eine hohe Blasendichte an der Membranoberfläche zu erhalten; a) Ausgasung auf der Feedseite bei $\Delta p_{RS} = 2 \text{ bar}$, CO_2 -Sättigung und 200 mbar Unterdruck auf der Feedseite. b) Kavitationsblasenstrukturen bei $p_F = 1 \text{ bar}$ in Leitungswasser

Den größten Effekt erzielt man beim Anlegen von Unterdruck auf der Feedseite. Unter Ultraschalleinwirkung kommt es zu einer feinperligen Ausgasung (Bild 5-25a).

Ob die identifizierten Maßnahmen auch zu entsprechendem Reinigungserfolg führen, wurde mit der oben beschriebenen Massenbestimmung der Deckschicht nachgeprüft.

In Analogie zu dem Bewertungsparameter Sauberkeitsgrad υ wird hier für das Wiedererlangen des ursprünglichen Zustands der Membran (entspricht Reinwasserfluss einer neuen Membran) der massenbezogener Sauberkeitsgrad υ_m eingeführt. Der Wert wird gebildet als:

$$v_m = 1 - \frac{m_{DS.nachRV}}{m_{DS.vorRV}} = 1 - \frac{m_{M.nachRV} - m_{M.sauber}}{m_{M.vorRV} - m_{M.sauber}}$$

Glg. 5-3

In Bild 5-26 sind für die beiden Stoffsysteme gegenläufige Tendenzen erkennbar. Die Ablösung der Titandioxiddeckschicht verbessert sich bei steigendem Unterdruck ohne Unterstützung durch Ultraschall aufgrund des steigenden transmembranen Rückspüldrucks. Ein höherer Unterdruck ohne Ultraschall wirkt sich hingegen bei den größeren Partikeln der Quarzmehlsuspension insgesamt negativ aus. Die größeren Partikel sind besser rückspülbar.

Aufgrund der kleineren Partikel löst sich die Titandioxidschicht schlechter ab. Die Reinigung der Titandioxidschicht kann durch Ultraschalleintrag ohne Unterdruck deutlich verbessert werden. Die nur schwach oszillierenden, großen Blasen der Ausgasung bei Verwendung von Unterdruck wirken sich beim Stoffsystem Titandioxid negativ auf die Reinigungseffizienz aus. Die sanfte Blasenoszillation bei Beschallung des Systems bei Unterdruck wirkt sich positiv auf die Reinigung des schwach anhaftenden Quarzmehls aus, für die Ablösung der stärker haftenden Titandioxiddeckschicht wirkt sie sich negativ aus. Hier werden kleinere stärker oszillierende Bläschen für eine gute Reinigungswirkung benötigt.

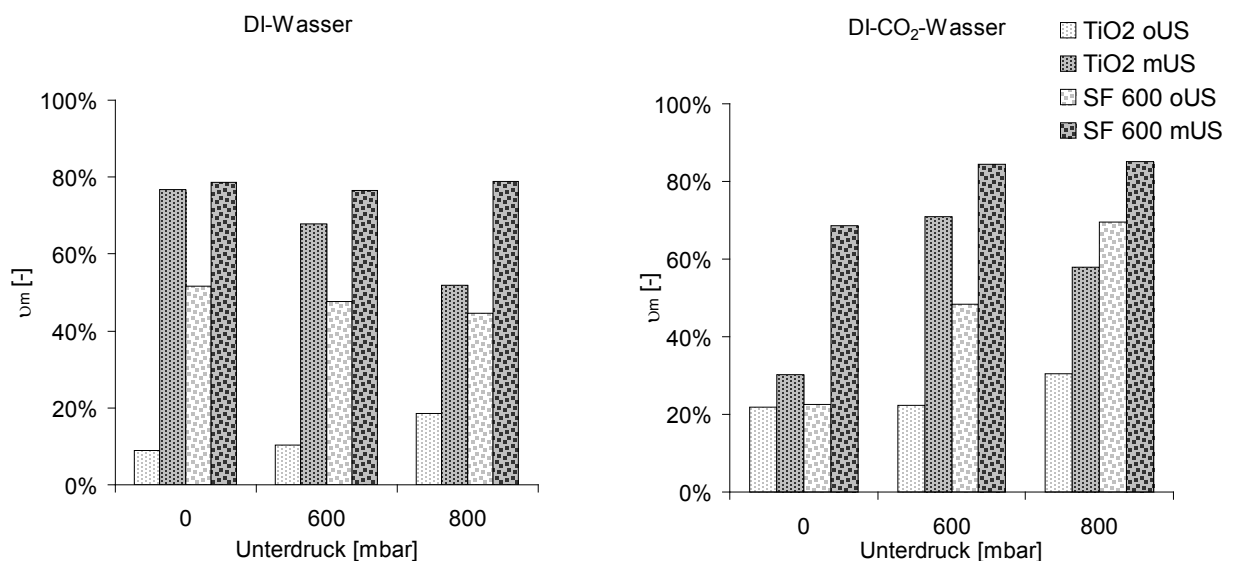


Bild 5-26: Gegenüberstellung des Sauberheitsgrades v_m mit (dunkel) und ohne (hell) Ultraschall bei unterschiedlichem Unterdruck auf der Feedseite für Titandioxid und das Quarzmehl Sikron SF 600; RS-Medium links: DI-Wasser, pH4,7, $c_{CO_2} = <50$ mg/l; rechts: DI-Wasser mit CO₂, pH3,7, $c_{CO_2} = 1273$ mg/l
 $p_F = 2,5$ bar; $\Delta t_{RS} = 120$ s; $\Delta t_{US} = 60$ s; $P_{US} = 80$ W; $f_{US} = 40$ kHz

Die insgesamt etwas besseren Reinigungswerte ohne Ultraschall bei dem mit Kohlendioxid angereicherten Rückspülwasser bei der Titandioxidsuspension in Bild 5-26 rechts kann mit dem niedrigeren pH-Wert und damit mit der stärkeren Agglomeration der Deckschichtpartikel zusammenhängen. Durch eine starke Agglomeration der Deckschichtpartikel können bei der Rückspülung größere zusammenhängende Platten entfernt werden. Für das Quarzmehl kann gezeigt werden, je zahlreicher die Bläschenaktivität durch Ausgasung ist, umso besser ist die Reinigungswirkung. Die Effekte der Blasenoszillation und Ausgasung bei 600 mbar verstärkt die Rei-

nigung der Titandioxiddeckschicht bei dem kohlendioxidangereicherten Wasser am stärksten. Eine weitere Steigerung des Unterdrucks, die zu noch größeren und zahlreicheren Blasen führt, reinigt diese Deckschicht hingegen schlechter.

Die Bild 5-27 stellt die Ergebnisse von Bild 5-26 für die jeweiligen Stoffsysteme zusammen.

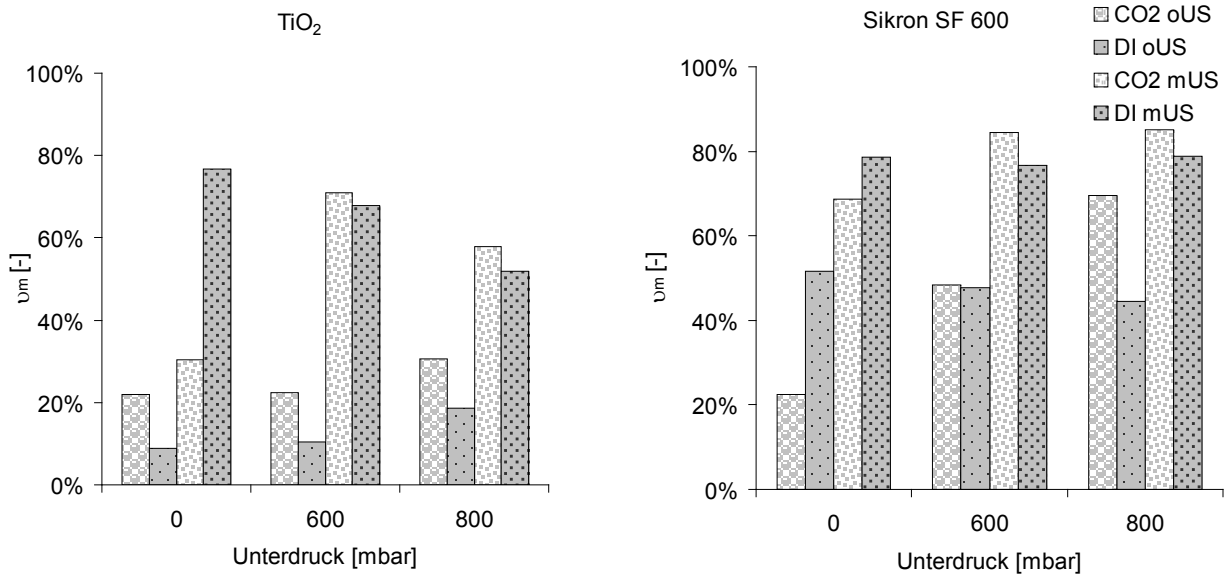


Bild 5-27: Gegenüberstellung des Sauberkeitsgrades v_m bei unterschiedlichem Rückspülfluid für Titandioxid und Sikron SF 600 (mit CO_2 -Anreicherung hellgrau; mit US; zahlreichere und kleinere Strukturen); RS-Medien: DI-Wasser: $\text{pH}4,7$ $c_{\text{CO}_2} < 50 \text{ mg/l}$; DI-Wasser mit CO_2 : $\text{pH}3,7$ $c_{\text{CO}_2} = 1273 \text{ mg/l}$, $p_F = 2,5 \text{ bar}$; $\Delta t_{\text{RS}} = 120 \text{ s}$; $\Delta t_{\text{US}} = 60 \text{ s}$; $P_{\text{US}} = 80 \text{ W}$; $f_{\text{US}} = 40 \text{ kHz}$

Erkenntnisse aus der Versuchsreihe

Durch den mehrfachen Ein- und Ausbau der Membran und die kleinen realisierbaren Massenunterschiede ist die Methode nicht sehr genau. Dennoch konnte eine hohe Reproduzierbarkeit erreicht und Trends gefunden werden. Bei der Verwendung von Rückspülwasser mit unterschiedlicher Kohlendioxidsättigung wird der pH-Wert des Wassers verändert. Die Reinigung der Deckschichten kann durch veränderte Adhäsionskräfte beeinflusst werden.

Fazit

Bei der Überprüfung, ob die Maßnahmen, die zu einer hohen Gasblasendichte führen, auch mit einer guten Reinigungswirkung korrelieren, zeigt sich, dass so eine Korrelation stark von dem Deckschichtmaterial und- aufbau abhängt. Für die Deckschicht aus den Partikeln des Quarzmehls Sikron SF 600 kann so eine Korrelation gezeigt werden. Ein höherer Anteil an gelöstem Gas und ein höherer Unterdruck auf der Feedseite in Kombination mit der Beschallung verbessern die Reinigungswirkung. Die Beschallung verstärkt bei diesen Maßnahmen jeweils die Ausgasung und sorgt für feindispersierte Bläschen. Eine Oszillation der Bläschen im Schallfeld und die damit verbundenen Mikroströmungen sind bei so einer hohen Blasendichte nicht mehr zu erwarten, da das Schallfeld zu stark geschwächt wird.

Darin liegt auch der Grund, warum eine hohe Ausgasung mit zahlreichen feindispersierten Bläschen kein Garant für eine verbesserte Reinigungswirkung ist. Für die kleineren und schwerer abzulösenden Partikel der Titandioxiddeckschicht stellt die Rückspülung mit DI-Wasser und Ultraschall, bei der nur sehr vereinzelt Bläschen auftreten, die erfolgreichste Reinigungsmaßnahme dar.

Für die Übertragung einer Ultraschallreinigung auf Module mit größeren Membranflächen zeigen die Laborexperimente, dass ein zusätzlicher apparativer Aufwand für die Erzeugung von Unterdruck zur Unterstützung der Rückspülung nur für bestimmte Stoffsysteme förderlich ist. Diese Maßnahme wird daher nicht weiterverfolgt. Eine erhöhte Gassättigung des Rückspülfluids ist nur bei der Reinigung einer wenig fest anhaftenden Deckschicht förderlich. Neben der Erhöhung der Anzahl potentieller Kavitationskeime verringert der Gasgehalt im Fluid auch die Wahrscheinlichkeit des Auftretens heftiger Blasenkollektive und damit die erosive Aggressivität des Ultraschalls. Eine moderate Sättigung des Rückspülfluids mit gelösten Gasen wird in Form einer luftdruckgetriebenen Rückspüleinheit in Kapitel 4.2.4 bei der Übertragung auf größere Membranflächen realisiert.

5.3 Resümee der bisherigen Ergebnisse und Übertragung des Ansatzes des ultraschallunterstützten Rückspülens auf handelsübliche Membranmodule

In Kapitel 4.2.7 wurde bereits das Kapillarmembranmodul mit Edelstahlhüllrohr zur Ultraschalleinkopplung vorgestellt. Hier sollen die Erkenntnisse aus den orientierenden Experimenten zusammengetragen werden, die für den Vorschlag des Moduldesigns (Kap. 4.2.7) entscheidend sind.

Obwohl die Fluxverbesserung und der energetische Aufwand eine direkte Körperschallanregung der Membranen attraktiv erscheinen lassen, konnte für die Anregung größerer Membranflächen keine überzeugende Konfiguration gefunden werden, bei der die schwingungstechnische Ankopplung der Membranen zufrieden stellend gelöst ist und bei der auf Dauer die Kopplungsstelle und das Membranmaterial der mechanischen Beanspruchung standhalten.

Die Crossflow-Filtrationsexperimente mit periodischem Ultraschallreinigungsvorgang haben deutlich gemacht, dass geringer Druck und geringe Überströmgeschwindigkeiten während des Schalleintrags in die Flüssigkeit Voraussetzung für eine wirkungsvolle Reinigung sind.

Die Filtrationsversuche mit der Vakuumfiltration haben gezeigt, dass sich die Kombination aus Rückspülung und Ultraschall besonders gut für die Reinigung eignet. Die Gefahr von Membranschäden aufgrund der erosiven Wirkung der akustischen Kavitation ist aufgrund des Aufbaus als Sintermaterial für keramische Membranen höher als für Polymermembranen. Somit ergeben sich die folgende Anforderungen an das zu verwendende Membranmodul bzw. die zu verwendende Membran: Sie muss die Möglichkeit zur Rückspülung bieten und aus einer Polymerstruktur aufgebaut sein. Eine weitere wichtige Anforderung bei der Wahl der Membraneinheit war, dass sie hinsichtlich der Baugröße (mehrere Quadratmeter Membranfläche) und des Modultyps (inside-out-betriebene Kapillarmembran) im gewerblichen Einsatz von Kleinanlagen typisch sein sollte (vgl. Kap. 1.1 »Zielsetzung« und Tabelle 2-1). Als Ultraschalltechnologie wird für eine leichtere Maßstabsübertagung die Verwendung eines einzelnen leistungsstarken Ultraschallindustrieprozessors bevorzugt.

Zusammenfassend sind die Anforderungen an das Membranmodul folgende:

- handelsübliches, rückspülbares Polymermembranmodul,
- mehrere Quadratmeter aktive Membranfläche,
- bezüglich mechanischer Beanspruchung möglichst robuste Membran,
- Beschallung durch nur einen leistungsstarken Ultraschallwandler für eine einfache und wirtschaftliche Skalierbarkeit.

Prinzipiell müssen die beiden Fälle inside-out- und outside-in-betriebene Membran getrennt betrachtet werden. Ein Beispiel eines outside-In-betriebenen Flachmembranmoduls, das den ersten drei Anforderungen entspricht, ist das getauchte Membranmodul Bio-Cel der Firma Microdyn-Nadir. Das Modul ist in der einfachen Bauweise eines Kissenstapels realisiert. Es wurde für die biologische Abwasseraufbereitung entwickelt. Die zu reinigende Fläche ist verhältnismäßig leicht von außen zugänglich und lässt sich von den Reinigungsmechanismen eines darauf abgestimmten Schallfeldes erreichen. Bei der Verwendung eines getauchten Kissenstapels ist die Einkopplung von Ultraschall mit Tauchwandlern zu favorisieren (vgl. Designvorschlag Kap 7.2 und die Lösung Lauterborn and Urban (2008) Kap. 2.6.1). Tauchschwinger stellen eine ausgereifte Ultraschallgerätetechnik dar. Tauchschwinger gibt es für alle Frequenzbereiche, die für eine schonende Reinigung sinnvoll erscheinen. Das Schallfeld lässt sich durch die Anordnung und Ansteuerung der Wandler gut vergleichmäßigen (vgl. Kap. 4. 4 und Lauterborn 2004a). Der zukunftsweisende Ansatz von Lauterborn (2004b), ein wanderndes Kavitationsfeld (akustische Bürste) zu erzeugen, ließe sich bei Verwendung dieser Ultraschallgerätetechnik umsetzen. Bei diesem System werden viele einzelne gekapselte und damit schlecht zugängliche Ultraschallwandler verbaut. Der Ausfall einzelner Wandler und der Aufwand für Reparaturen stellen einen möglichen Nachteil dieser Lösung dar. Die Beschallung erfolgt auf der Seite des Rohwassers, so dass sich die dispergierende Wirkung des Ultraschalls negativ auf die Filtration und die Dämpfung durch die Partikel im Rohwasser negativ auf die Reinigungswirkung auswirken können. Aus der offenen Bauweise eines getauchten Membranmoduls folgt, dass ein etwas größeres Flüssigkeitsvolumen beschallt werden muss, als bei den kompakteren druckgetriebenen Modulen.

Für inside-out-betriebene Kapillarmembranen gibt es theoretisch zwei Möglichkeiten die zu reinigende innenliegende Seite mit der Ultraschallwirkung zu erreichen. Eine Möglichkeit besteht in der Beschallung über den Feedzulauf bzw. Konzentratablauf. Diese Variante könnte nur bei sehr hohen Frequenzen und speziell kurzen Kapillaren realisiert werden, um eine Schallweiterleitung innerhalb der engen Kapillaren zu ermöglichen (vgl. Glg. 5-1). Die starke Dämpfung und damit verbundene Temperaturerhöhung würde bei der Beschallung mit hohen Frequenzen zu Materialschädigung führen wie bei den Versuchen mit Megaschalleinkopplung (Kap. 5.2.1). Es bleibt daher nur die Variante von der Permeatseite ausgehend die innenliegende Feedseite zu beschallen. In dem hier verfolgten Ansatz soll die Wandung eines Edelstahlrohres die Ultraschalleistung auf das Fluid übertragen. Ziel ist es, möglichst wenige Ultraschallwandler pro verbaute Filterfläche zu verwenden und damit den apparativen Aufwand für eine Maßstabsübertragung gering zu halten. Der kompakte Modulaufbau eines druckgetriebenen Kapillarmembranmoduls erlaubt es, die Beschallung mit nur einem einzigen leistungsstarken Ultraschallprozessor pro Membranmodul zu realisieren. Kapitel 4.2.7 zeigt den Aufbau eines Kapillarmembranmoduls mit einem Edelstahlhüllrohr zur Schwingungsanregung. Im Gegensatz zu Schwingplatten und Tauchwandlern, die üblicherweise in Ultraschallreinigungsanwendungen eingesetzt werden, ist bei Verwendung eines einzelnen leistungsstarken Schallwandlers kein gleichmäßiges Schallfeld zu erwarten. Zur Vergleichmäßigung und Weiterleitung soll daher das Flüssigkeitsvolumen des Permeats genutzt werden. Es steht in der Phase des Rückspülens unter Überdruck und weist nach der Passage der Membran eine geringe Konzentration an Kavitationskeimen auf. Beides sind wichtige Voraussetzungen dafür, dass die Schallwelle nicht im Permeatraum durch Kavitation geschwächt wird, sondern ins Innere der Kapillarmembran weitergeleitet werden kann. Bild 5-28 zeigt die Druckverhältnisse während der Rückspülphase an der Multibore® Membran bei der Inside-out-Filtrationsrichtung.

Aus diesen Überlegungen ergibt sich für die Verwendung eines Beschallungssystems - bestehend aus Hüllrohr und einem einzigen leistungsstarken Ultraschallwandler - die Inside-out-Filtration als bevorzugte Betriebsweise eines Kapillarmembranmoduls. Die Entscheidung fiel auf das inside-out-betriebene Kapillarmembranmodul der Firma Inge AG dizzer 450 ausgestattet mit einem Edelstahlrohrmantel, der von einem Leistungsultraschallwandler (UIP 1000, bzw. UIW 800 spec, Hielscher Ultrasonics) angeregt wird.

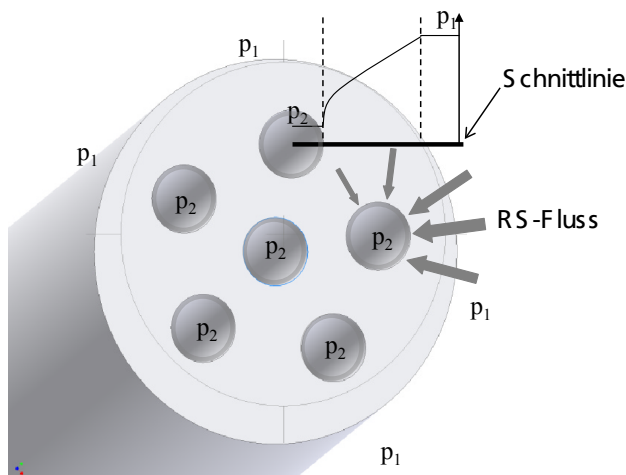


Bild 5-28: qualitative Darstellung der Druckverhältnisse während der Rückspülphase (outside-in) an einer Multibore® Membran (während der Filtration Inside-out-Betrieb) als Voraussetzung für eine Schallweiterleitung in die Kapillaren durch unterdrückte Kavitation

Die Vorgabe, mit einem leistungsstarken Ultraschallwandler zu arbeiten, bedeutet, dass die Möglichkeiten einer Optimierung des Schallfeldes für die Reinigungsaufgabe stark eingeschränkt sind. Der Wandlertyp eines leistungsstarken Ultraschallprozessors wird nur in wenigen Spezialfällen für die Oberflächenreinigung verwendet, da die Erzeugung eines gleichmäßigen Schallfeldes über eine große Fläche nur schwer zu realisieren ist. Es ist nicht möglich eine Vergleichmäßigung des Schallfeldes durch die Verwendung einer Vielzahl geschickt angeordneter Wandler oder die Verwendung von Wandlern unterschiedlicher Frequenzen zu realisieren. Ein weiterer Nachteil der Verwendung leistungsstarker Ultraschallprozessoren besteht in der Einschränkung bei der Wahl der Ultraschallfrequenz auf relativ niedrige Frequenzen im Bereich 20-40 kHz. Die Einschränkung auf niedrige Frequenzen ist mit der Materialbeanspruchung der Sonotroden zu begründen, die durch die Wechselbeanspruchung bei den geforderten Amplituden an ihre Belastungsgrenzen stoßen.

Die Vermessung der tatsächlichen Schwingungseigenschaften und die Visualisierung des Schallfeldes finden sich in Kapitel 4.4. In Kapitel 6.2.3 ist die zu erwartende Blasendynamik für die vermessene Anordnung gezeigt.

5.4 Ultraschallunterstütztes Rückspülen an einem Kapillarmembranmodul

Mit den Versuchsreihen wird die Absicht verfolgt, einen durch die Ultraschalleinkopplung verbesserten Filtratstrom an einem handelsüblichen Kapillarmembranmodul zu untersuchen. Alle Versuchsreihen erfolgen parallel an zwei Membranmodulen: Eines ohne und eines mit der Ultraschallausstattung. Beide Membranmodule werden bei gleicher Flächenbelastung betrieben und alle Spülvorgänge werden, soweit dies die verwendete Steuerungs- und Regelungstechnik zulässt (Stellzeiten von Regelventilen), identisch durchgeführt (vgl. Kap. 4.2.4). Der einzige Unterschied in der Behandlung besteht in dem Einsatz von Ultraschall während der Rückspülphase bei nur einem der Module (vgl. Kap. 4.2.7).

Untersucht werden sollen bei den Randbedingungen Gewährleistung der Membranintegrität, gleiche Flächenbelastung, gleiches Stoffsystem und gleiche Spülvorgänge, ob der Ultraschalleinsatz sich auf Dauer positiv auf den Filtrationsprozess auswirkt.

5.4.1 Versuchsreihe: Langzeittests an natürlichem Oberflächenwasser - »Tauglichkeitsprüfung«

Intention

Die Langzeitversuche mit natürlichem Oberflächenwasser und handelsüblichen Membranmodulen stellen eine »Tauglichkeitsprüfung« des Verfahrens für den industriellen Einsatz dar. Natürliche organische Verunreinigungen stellen für Membranverfahren beispielsweise in der Trinkwasseraufbereitung aus Oberflächenwasser eine große Herausforderung dar. Die Deckschicht bildet sich aus kolloidalem und biologischem Substanzen unbekannter Zusammensetzung. In der Praxis lässt sich die Deckschicht nur mit entsprechend aufwändiger Vorbehandlung (Flockung, Sedimentation) oder mit Chemikalieneinsatz bei der Reinigung kontrollieren.

Die Ergebnisse der »Tauglichkeitsprüfung« klären auch die Auswirkungen eines Dauereinsatzes des Ultraschallsystems. Im Dauereinsatz sollen Membranschädigungen vermieden werden.

Versuchsmethode

Als handelsübliches Membranmodul wurde das inside-out-betriebene Kapillarmembranmodul der Firma Inge AG dizzyer 450 ausgewählt und mit einem Edelstahlrohrmantel ausgestattet, der von einem Leistungultraschallwandler (UIP 1000, bzw. UIW 800 spec, Hielscher Ultrasonics) angeregt wird (Kap. 4.2.7). Es kommt der in Kapitel 4.2.4 beschriebene Teststand mit den speziell angepassten Ultraschallmembranmodulen zum Einsatz. Als Membranen kommt die »Multibore® Membran 0.9« der Firma Inge AG, Greifenberg mit Kapillardurchmessern von 0,9 mm zum Einsatz (vgl. Kap. 4.1). Das Vorlagevolumen von etwa zwei Kubikmetern natürlichem Oberflächenwassers (vgl. Kap. 4.6.3), das in der Anlage zirkuliert, wurde etwa einmal pro Woche erneuert. Bei dem verwendeten Oberflächenwasser wurde eine geringe TOC-Konzentration gemessen, so dass nach der Abschätzung Glg. 4-17 bei einem Flux von $120 \text{ l}/(\text{m}^2\text{h})$ 2,4 Stunden bis zur Ausbildung einer ersten geschlossenen Deckschicht vergehen (vgl. Tabelle 4-12). Die tatsächliche Partikelkonzentration variiert von Charge zu Charge die dem natürlichen Gewässer entnommen wurde.

Versuchsdurchführung

Im Gegensatz zu den vorangegangenen Versuchen erfolgt der Filtrationsbetrieb bei konstanter Flux. Der Durchflusswert wird von entsprechenden Regelventilen und einem PID-Regler eingestellt. Die Sollwertvorgaben kommen von dem Steuerungsprogramm. Die transmembrane Druckdifferenz gibt Auskunft über den Grad der Verschmutzung des jeweiligen Moduls.

V Versuchsergebnis

In Bild 5-29 a ist ein Überblick über einen Filtrationsversuch zu sehen. Die Bild 5-29 b gibt im Detail an, wie ein einzelner Reinigungsvorgang abläuft. Bild 5-29 c gibt die wichtigsten Parameter des Versuches an.

Bild 5-29 a zeigt, wie innerhalb von 45 h die Transmembrandrücke des Ultraschallmoduls und des Referenzmoduls auseinander laufen. Der Flux wird während der Filtrationsphase konstant auf 80 oder 120 l/(m²h) eingeregelt. Aufgrund der Mittelwertbildung über den Rückspülvorgang hinweg, liegen die Fluxwerte in Bild 5-29 a unter dem eingeregelt Sollwert in der Filtrationsphase. Der Transmembrandruck für das Ultraschallmodul steigt leicht an und bleibt dann konstant. Der Anstieg des Transmembrandrucks für das Referenzmodul ist deutlich steiler und steigt bis zum Abbruch des Versuchs weiter an. Da sich der Betrieb der beiden Module lediglich um den zusätzlichen Ultraschalleintrag beim Ultraschallmodul unterscheidet, lässt sich folgern, dass der Ultraschalleinsatz die Rückspülung so verbessert, dass ein stabiler, dauerhafter Betrieb ermöglicht wird. Die gewählten hydraulischen Parameter für die Rückspülung sind für einen Einsatz ohne Ultraschall hingegen bei diesem Stoffsystem und dem gewählten Flux und Zeitintervallen nicht ausreichend, um einen stabilen Betrieb zu ermöglichen.

In Bild 5-29 b ist ein einzelner Reinigungsvorgang in einer hohen zeitlichen Auflösung aufgetragen. Dargestellt sind der Flux, der Transmembrandruck, der Feeddruck und der Permeatdruck über die Zeit. Es lassen sich sieben Phasen unterscheiden:

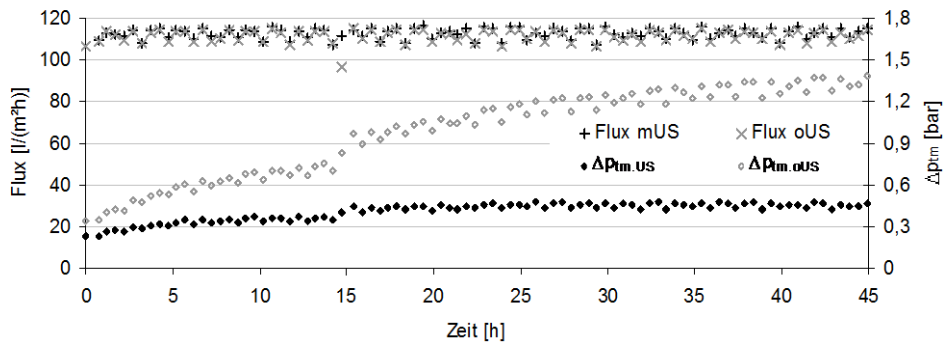
- Phase I: normale Filtrationsphase bei konstantem Flux (in der Abbildung 80 l/(m²h))
- Phase II: Abschalten der Pumpe; Öffnen der Regelventile, um eine Rückspülung mit möglichst geringem Gegendruck auf der Feed- bzw. Konzentratseite zu ermöglichen.
- Phase III: Eigentliche Rückspülung: Über den Rückspülbehälter wird mit Druckluft der permeatseitige Druck erzeugt. Um Kavitationsaktivität auf der Permeatseite möglichst zu unterdrücken, erfolgt die Beschallung für 10 s bei einem relativ hohen Druckniveau von 2,8 bar. Da aufgrund des zu langsamen Nachströmens der Druckminderer während der Rückspülphase das hohe Druckniveau auf der Permeatseite nicht gehalten werden kann, werden hierzu die Regelventile zugefahren und nach der Beschallung wieder geöffnet.
- Phase IV: Pause zum vollständigen Öffnen der Regelventile für die anschließende Überströmung
- Phase V: Die Pumpe wird bei verschlossener Permeatleitung und anstehendem Rückspüldruck angeschaltet und die Membranmodule gegen die Filtrationsrichtung von oben nach unten durchströmt (forward flush, top-down). Gleichzeitig kommt es zu einer zweiten Rückspülung.
- Phase VI: Pause zum vollständigen Schließen der Regelventile.

- Phase VII: Erneutes Einregeln des Sollwertes für den Flux durch Öffnen des Regelventils (Bild 4-6 (8)) ausgehend von der geschlossenen Ventilstellung.

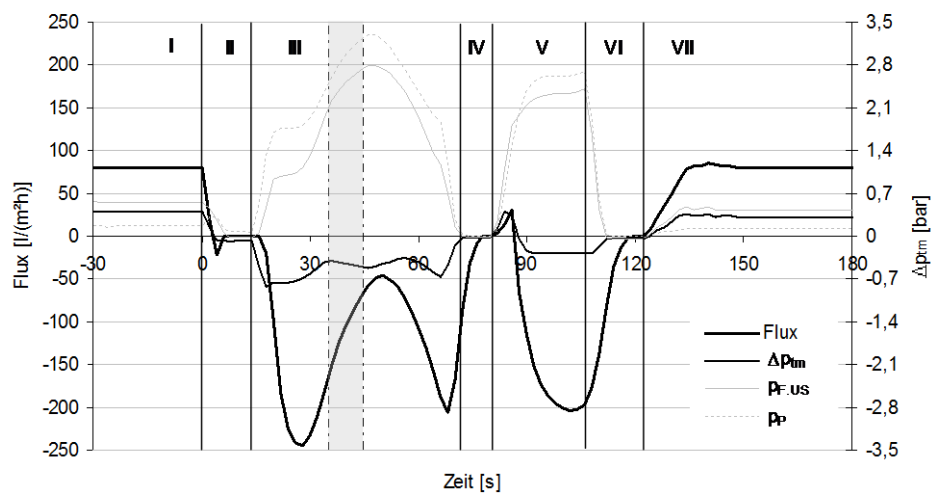
Bild 5-31 zeigt die ersten 13 Filtrationszyklen in einer höheren Auflösung. Trotz gleicher Flächenbelastung bei dem gleichen Stoffsystem steigt die transmembrane Druckdifferenz im Fall des Referenzmoduls während der Filtrationsphase steiler als beim Ultraschallmodul. Mit Druckhaltetests wurde vor und nach dem Filtrationsversuch die Integrität der Membran nachgewiesen. Eine intakte Porenstruktur der Membran beim Ultraschallmodul wird bei der Interpretation dieses Messergebnisses vorausgesetzt.

Geht man davon aus, dass die Reinigung beim Referenzmodul weniger wirkungsvoll als beim Ultraschallmodul ist, kann damit noch nicht der steilere Druckanstieg begründet werden. Auch bei der ultraschallunterstützten Rückspülung bleibt das Druckniveau nicht bei der gleichen Höhe wie zu Beginn der Messreihe, sondern steigt langsam an. Ein möglicher Erklärungsansatz für den beobachteten Druckverlauf bei Ultraschall- und Referenzmodul ist, dass die Beschallung eine vollständigere Ablösung von der Deckschicht bewirkt. Abgelöste Deckschichtpartikel werden bei der anschließenden Spülung aus den Kapillaren befördert. Im Gegensatz dazu lockert die Rückspülung im Referenzmodul zwar die Deckschicht, die größten Poren werden wie bei einem Blasrohr frei gespült, die Ablösung der Deckschicht ist aber wesentlich geringer, so dass sich während der Rückspülung aufgestellte Klappen mit der Überströmung nicht aus der Kapillare entfernen lassen (Klappeneffekt). Die Restverschmutzung verdichtet sich bei der anschließenden Filtration wieder, klappenartige Deckschichtteile verschließen sich wieder und es kommt entsprechend zu dem steileren Verlauf des Druckanstiegs, obwohl die neu antransportierte Feststofffracht für beide Module identisch ist.

a)



b)



c)

Stoffsystem		Reinigungsvorgang	
Oberflächenwasser Dreisam siehe Rohwasseranalyse Kap. 3.5.3		<u>Reinigungsablauf und Strömungsrichtung</u> RS mit US (top down); FF (top down)	
Membran		<u>RS mit US (Phase III)</u>	<u>US-Parameter (Phase III)</u>
Membran: inge multibore Modul: dizzer 450		$\Delta t_{RS,1} = 60 \text{ s}$	$\Delta t_{US} = 10 \text{ s}$
Membranfläche: $A_M = 4,14 \text{ m}^2$		$\Delta p_{RS,1} = 0,8 \text{ bar}$	$P_{US} = 140 \text{ W}$
Filtrationsparameter		$v_{F,RS,max} = 69 \mu\text{m/s}$	$f_{US} = 20 \text{ kHz}$
Betriebsweise: $v_F = \text{konst} = 120 \text{ l/(m}^2\text{h)}$		<u>FF und RS2 (Phasen V, VI)</u>	<u>Gesamt RS-Volumen</u>
Filtrationsdauer zwischen zwei RVs: $\Delta t_F = 18 \text{ min}$		$\Delta t_{RS,2} = 20 \text{ s}$	$V_{RS,tot} = 13,58 \text{ l}$
		$\Delta p_{RS,2} = 0,3 \text{ bar}$	
		$\Delta t_{FF} = 20 \text{ s}$	
		$v_{FF,max} = 0,229 \text{ m/s}$	

Bild 5-29:

- a) Überblick eines Filtrationsversuchs mit natürlichem Oberflächenwasser (30 min – Mittelwerte)
 b) Reinigungsvorgang
 c) wichtigste Versuchsparameter

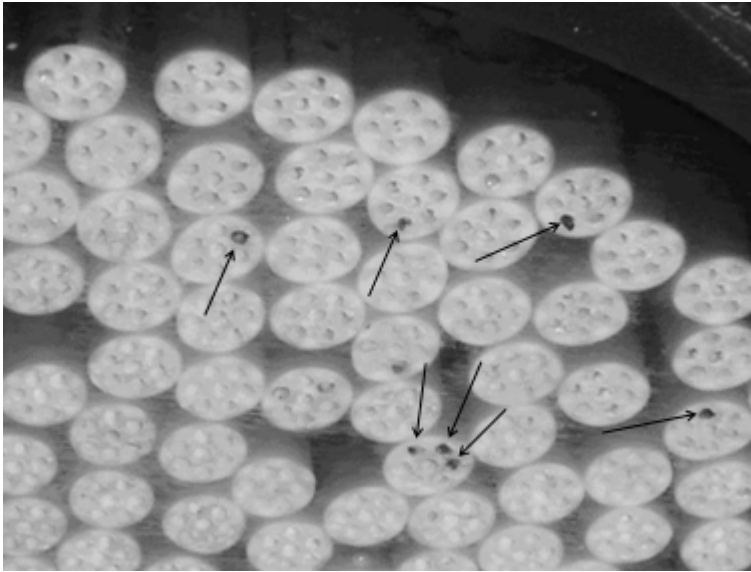


Bild 5-30: Verschluss einzelner Kapillaren durch Deckschichtpfropfen (durch Pfeile markiert)

Ein anderer Interpretationsansatz für den steileren Druckanstieg während der Filtrationsphase im Referenzmodul geht von einer Pfropfenbildung am konzentratseitigen Ende einiger Kapillaren des Referenzmoduls aus (vgl. Bild 5-30). Zur messtechnischen Erfassung der Volumenströme wurde sowohl bei der Rückspülung (Reinigungsphase III) als auch bei der Überströmung (Reinigungsphase V) die Richtung gegen die Filtrationsrichtung also von oben nach unten (top-down) gewählt. Um der Pfropfenbildung entgegen zu wirken, ist diese Abströmrichtung bei der Rückspülung ungünstig. Wie in der Filtrationsphase erfährt das obere, tote Ende auch während der Rückspülphase keine Überströmung. Abgelagerte Partikel, die eine Kapillare vollständig verstopfen, werden somit nicht ausgespült. Bei der anschließenden Überspülung wird wieder in der Top-down-Richtung durchströmt. Das Fluid bevorzugt die noch freien Kapillaren. Im ungünstigsten Fall werden die Pfropfen der verstopften Kapillaren noch zusätzlich verdichtet oder tiefer in die Kapillare geschoben. Im günstigsten Fall, werden die Pfropfen am unteren Ende aus der Kapillare ausgetragen. Theoretisch ist bei der maximalen Überströmungsgeschwindigkeit von $v_{FF} = 0,229 \text{ m/s}$ in den 10 Sekunden der Überströmung bei der Kapillarlänge von etwa 1 m ein Austragen der Pfropfen vom oberen bis zum unteren Ende möglich. Nicht entfernte Pfropfen bewirken ein schnelles Weiterwachsen des toten Endes in Richtung vom oberen Modulende zum unteren und somit den Verlust an aktiver Membranfläche. Die Verringerung der aktiven Membranfläche durch Pfropfenbildung bedeutet, dass die tatsächliche Flächenbelastung im Referenzmodul ansteigt. Von der Überströmphase nicht ausgetragene, sondern nur ins Innere des Moduls verschobene Pfropfen beschleunigen den Verlust an Membranfläche. Eine höhere, reale Flächenbelastung könnte den steileren Druckanstieg in den Filtrationsphasen in Bild 5-31 begründen.

Für den Ultraschalleinsatz bedeutet diese Interpretation, dass die Pfropfenbildung durch die Beschallung selbst bei ungünstiger Strömungsführung wirkungsvoll vermieden werden kann. Die Konstruktion des Ultraschallmembranmoduls ermöglicht nur im Bereich des Edelstahlhüllrohres (vgl. Kap. 4.4.1 und 4.4.2) hohe Schalldruckamplituden. Das obere Modulende ragt etwa 20 cm über das schwingende Edelstahlrohr hinaus. In diesem Bereich beginnt die Pfropfenbildung. In diesem Bereich findet auch keine Beschallung statt (vgl. 4.4.2). Der Ultraschalleinsatz kann aber solche Pfropfen, die in den Bereich stärkerer Ultraschallintensität hineinwachsen oder durch die

Überströmung hineingedrückt werden, auflösen. So kann der Verlust an aktiver Membranfläche wirkungsvoll begrenzt werden.

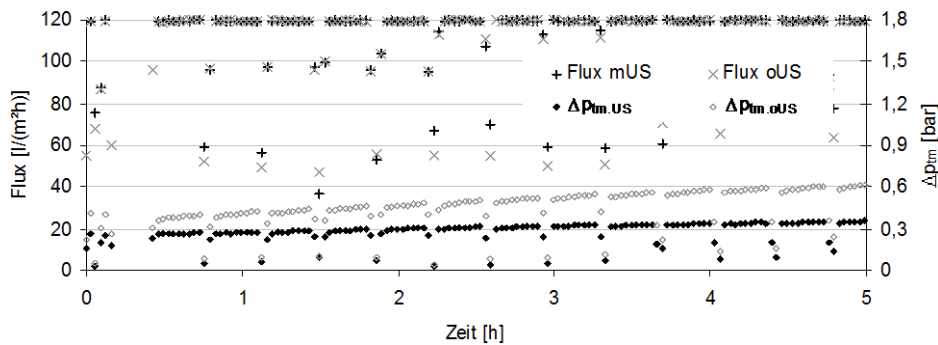


Bild 5-31: Anfang des Filtrationsversuchs von Bild 5-29 (2 min – Mittelwerte); Das Referenzmodul weist aufgrund unvollständiger Reinigung bereits vor dem ersten RV einen geringfügig höheren Transmembrandruck auf.

Für die Bewertung des Versuchs werden die im Kapitel 4.5 eingeführten Parameter Fluxverbesserung ϕ , Veränderungsfaktor des spezifischen Energiebedarfs ε für die jeweiligen Intervalle und Reinigungseffizienz κ , Sauberkeitsgrad υ sowie Reinigungsgüte $\kappa \cdot \upsilon$ als Mittelwerte der einzelnen Reinigungsvorgänge verwendet.

Tabelle 5-5: Zusammenstellung der Bewertungsparameter für die Versuchsreihe in Bild 5-29

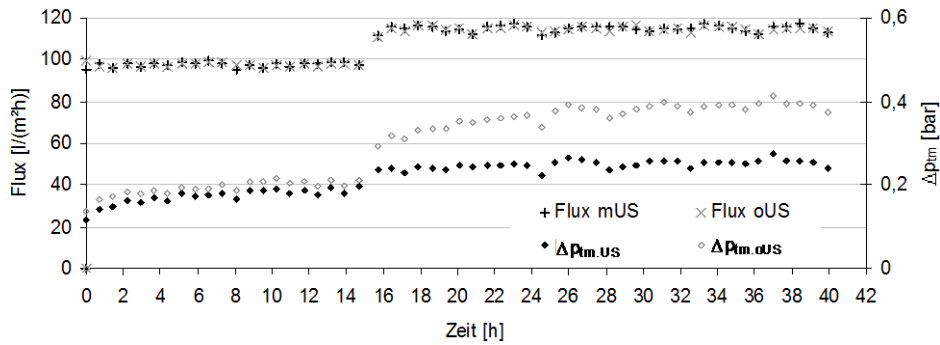
Ergebnisse	ϕ	ε	κ_{mUS}	υ_{mUS}	$(\kappa \cdot \upsilon)_{mUS}$	κ_{oUS}	υ_{oUS}	$(\kappa \cdot \upsilon)_{oUS}$
vollständige Messung	146%	0,6	3,2%	71,6%	2,3%	3,7%	41,0%	1,5%
Anfang der Messreihe (Mittelwert erste 13 RVs)	49%	1,0	3,7%	80,5%	3,0%	4,2%	50,5%	2,1%
Ende der Messreihe (Mittelwert letzte 4RVs)	195%	0,5	1,8%	48,3%	0,8%	2,4%	16,3%	0,4%

In Tabelle 5-5 fällt auf, dass die Reinigungseffizienz κ bei Beschallung nicht höher ist als ohne Beschallung. Die gewichtete Reinigungsgüte $\kappa \cdot \upsilon$ liegt zu Beginn für das Ultraschallmodul bei 3%. Am Ende der Versuchsreihe liegt der Wert bei 0,8%.

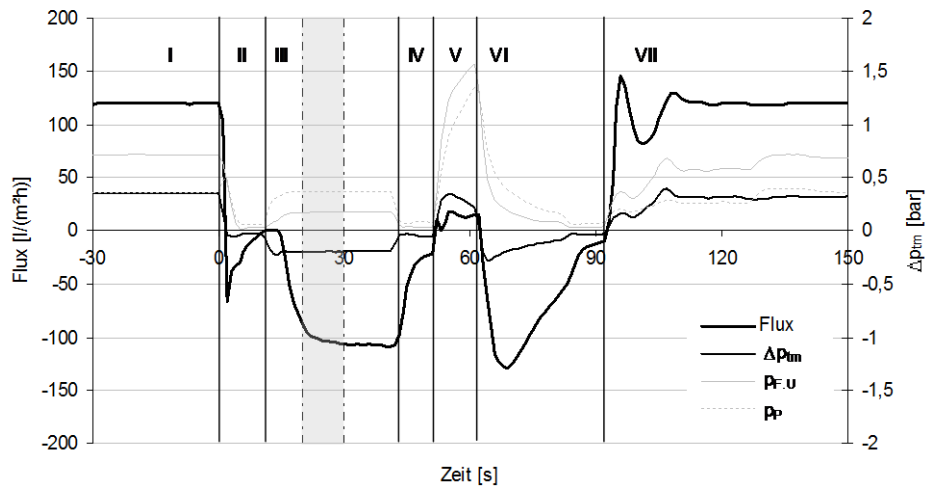
Das Referenzmodul weist aufgrund unvollständiger Reinigung in Bild 5-31 bereits vor dem ersten Reinigungsvorgang einen geringfügig höheren Transmembrandruck auf. Bild 5-32 zeigt eine Messung, bei der der Transmembrandruck in der Ausgangssituation besser übereinstimmt. Die Messung zeigt, wann die Überlegenheit der ultraschallunterstützten Rückspülmethode deutlich zum Tragen kommt. In dem Filtrationsversuch wurde natürliches Oberflächenwasser zunächst bei einer Flächenbelastung von 100 l/(m²h) filtriert. Die kleineren Fluxwerte in der Bild 5-32 resultieren aus der Mittelwertbildung über ein Zeitintervall von 44 min, das die Reinigungsvorgänge (Filtrationsintervall $\Delta t_f = 28$ min) einschließt. Nachdem sich bei beiden Modulen nach 15 h ein stabiler Wert für den Transmembranendruck eingestellt hat, wird der Flux auf 120 l/(m²h) erhöht. Alle anderen Parameter der Filtration und des Reinigungsvorgangs (siehe Bild 5-32 b, c) bleiben unverändert. Ab diesem Zeitpunkt laufen die Werte für die transmembrane Druckdiffe-

renz auseinander. Mit dem zusätzlichen Energieeintrag der Beschallung kann auch für eine höhere Flächenbelastung der benötigte Filtrationsdruck auf einem etwas höheren Niveau stabilisiert werden. Bei dem Referenzmodul sind die Parameter der Rückspülreinigung nicht mehr ausreichend, um einen dauerhaften Betrieb zu sichern, der Wert für den Filtrationsdruck steigt an.

a)



b)



c)

Stoffsystem		Reinigungsvorgang	
Oberflächenwasser Dreisam siehe Rohwasseranalyse Kap. 3.5.3		<u>Reinigungsablauf und Strömungsrichtung</u> RS mit US (top down); FF (top down)	
Membran		RS mit US (Phase III)	US-Parameter (Phase III)
Membran: inge multibore Modul: dizzer 450		$\Delta t_{RS,1} = 30 \text{ s}$	$\Delta t_{US} = 10 \text{ s}$
Membranfläche: $A_M = 3,62 \text{ m}^2$		$\Delta p_{RS,1} = 0,2 \text{ bar}$	$P_{US} = 130 \text{ W}$
Filtrationsparameter		$v_{P,RS,max} = 30 \mu\text{m/s}$	$f_{US} = 20 \text{ kHz}$
Betriebsweise I: $v_{P,I} = \text{konst} = 100 \text{ l/(m}^2\text{h)}$		FF und RS2 (Phasen V, VI)	Gesamt RS-Volumen
Filtrationszeit I: $\Delta t_{F,I} = 28 \text{ min}$		$\Delta t_{RS,2} = 20 \text{ s}$	$V_{RS,tot} = 5,38 \text{ l}$
Betriebsweise II: $v_{P,II} = \text{konst} = 120 \text{ l/(m}^2\text{h)}$		$\Delta p_{RS,2} = 0,26 \text{ bar}$	
Filtrationszeit II: $\Delta t_{F,II} = 18 \text{ min}$		$\Delta t_{FF} = 10 \text{ s}$	
		$v_{FF,max} = 0,147 \text{ m/s}$	

Bild 5-32:

- Überblick eines Filtrationsversuchs mit natürlichem Oberflächenwasser (44 min – Mittelwerte)
- Reinigungsvorgang
- wichtigste Versuchsparameter

Der Reinigungsvorgang in Bild 5-32 b unterscheidet sich von dem in Bild 5-29 b vor allem in den Phasen III und V. Die Rückspülung erfolgt bei nahezu konstantem Druck von $\Delta p_{RS} = 0,2 \text{ bar}$ und

einem wesentlich niedrigerem Druckniveau. Die Überströmphase V ist deutlich kürzer, die anschließende zweite Rückspülphase VI dafür deutlicher ausgeprägt. In der zweiten Rückspülphase VI wird der während der Überströmung im Rückspülbehälter aufgebaute Druck für eine zweite Rückspülung genutzt und nach Abschalten der Pumpe für die Überströmung über die Membran entspannt. Tabelle 5-6 zeigt die jeweiligen Mittelwerte aus vier Reinigungsvorgängen für die Bewertungsparameter Fluxverbesserung ϕ , Veränderungsfaktor des spezifischen Energiebedarfs ε für die jeweiligen Intervalle und Reinigungseffizienz κ , Sauberkeitsgrad υ und Reinigungsgüte $\kappa \cdot \upsilon$ als Mittelwerte für vier charakteristischen Abschnitten des Filtrationsversuchs in Bild 5-32. Es wurden jeweils die ersten und die letzten vier Reinigungsvorgänge bei 100 l/(m²h) und 120 l/(m²h) ausgewertet. Erst bei den letzten Reinigungsvorgängen, bei denen das Referenzmodul in einem deutlich schlechteren Betriebspunkt arbeitet, lohnt sich der Ultraschalleinsatz bezüglich des Veränderungsfaktors des spezifischen Energieeinsatzes ε . Die Fluxverbesserung mit Ultraschalleinsatz gegenüber der Referenz ϕ beträgt für diesen Bereich 52%. Die Eigenheiten der Bewertungsparameter für einzelne Reinigungsvorgänge werden im Folgenden diskutiert. Zu Beginn der Filtrationsphasen, bei der eine hohe Feststoffbeaufschlagung erfolgt, die sich jedoch reversibel ablösen lässt, ergeben sich höhere Werte für die Reinigungsparameter. In der stabilisierten Phase liegt die gewichtete Reinigungsgüte $\kappa \cdot \upsilon$ bei 1,5% für 100 l/(m²h) bzw. 1,0% für 120 l/(m²h).

Tabelle 5-6: Zusammenstellung der Bewertungsparameter für die Versuchsreihe in Bild 5-32

Ergebnisse	ϕ	ε	κ_{mUS}	υ_{mUS}	$(\kappa \cdot \upsilon)_{\text{mUS}}$	κ_{oUS}	υ_{oUS}	$(\kappa \cdot \upsilon)_{\text{oUS}}$
Anfang 100 l/(m ² h) (4 RVs)	13%	1,1	4,1%	88,9%	3,6%	3,9%	75,3%	2,9%
Ende 100 l/(m ² h) (4 RVs)	11%	1,1	2,5%	64,3%	1,6%	2,5%	58,3%	1,5%
Anfang 120 l/(m ² h) (4 RVs)	37%	1,0	4,3%	92,5%	4,0%	3,5%	70,3%	2,4%
Ende 120 l/(m ² h) (4 RVs)	52%	0,9	1,2%	84,3%	1,0%	1,6%	55,2%	0,9%

Erkenntnisse aus der Versuchsreihe

Der Parameter κ , der die Wirksamkeit eines einzelnen Reinigungsvorgangs bewertet, erweist sich für längere Versuchsreihen als wenig aussagekräftig. Der Parameter ist nur dann für eine Bewertung hilfreich, wenn zwei Reinigungsvorgänge bei exakt der gleichen Grundverschmutzung verglichen werden (vgl. Kap.4.5.2). Der einzelne Reinigungsvorgang einer stark verschmutzten Membran mag für sich betrachtet eine relativ höhere Wirksamkeit haben, viel schwieriger ist es jedoch, eine bereits recht saubere Membran vollständig zu reinigen. Der Parameter Sauberkeitsgrad υ ist für die Bewertung der Reinigungsvorgänge bei ungleicher Grundverschmutzung, die bei längeren Messreihen mit den Modulen aufgrund der unterschiedlichen Reinigung entstehen, besser geeignet. Er bezieht sich auf einen gemeinsamen Referenzwert: Den Reinwasserfluss (RWF).

Fazit

Der Ultraschalleinsatz verbessert die Rückspülung in den Langzeitversuchen mit natürlichem Oberflächenwasser so, dass ein stabiler, dauerhafter Betrieb ermöglicht wird. Die gewählten hydraulischen Parameter für die Rückspülung sind für einen Einsatz ohne Ultraschall (Referenzmodul) hingegen bei diesem Stoffsystem und dem gewählten Flux und Zeitintervallen nicht ausreichend, um einen stabilen Betrieb zu ermöglichen.

5.4.2 Membranschädigung bei den Langzeittests

Bei den ersten Messreihen im Membranmodul kam es zu deutlichen Membranschäden, die mit dem Druckhaltetest nachgewiesen wurden und an einzelnen Multibore® Membranen visuell untersucht wurden. Zunächst ist festzustellen, dass eine Schädigung nur an einzelnen Multibore® Membranen auftrat, so dass am Verlauf des Transmembrandrucks das Problem kaum erkennbar wird. Bild 5-33 zeigt eine Messung über 60 Stunden, bei der natürliches Oberflächenwasser filtriert wurde. Im Gegensatz zu den vorherigen Übersichtsdarstellungen sind bei der Mittelwertbildung die Reinigungsphasen nicht berücksichtigt. In Bild 5-33 lässt sich diese andere Art der Mittelwertbildung daran erkennen, dass Datenpunkte für den Flux exakt ihren Sollwerten entsprechen. Notwendig wurde diese veränderte Methode, da in dem grau hinterlegten Abschnitt der Bild 5-33 die Filtrationsintervalle von 20 auf 5 Minuten reduziert wurden. Eine Mittelung mit der gleichen Zeitschrittweite über diesen Abschnitt mit häufigeren Reinigungsvorgängen würde zu deutlich geringeren Flux und abweichenden Druckwerten führen, was eine Interpretation erschwert.

Es wurde ein Druckhaltetest vor der Messreihe durchgeführt, einer an der Linie nach etwa 17 Stunden und einer am Ende der Messreihe. Die beiden ersten Tests bestätigen die Integrität des Ultraschallmoduls und des Referenzmoduls, bei dem letzten Test weist das Ultraschallmodul Schäden auf.

Am Verlauf der transmembranen Druckdifferenz des Ultraschallmoduls in Bild 5-33 sind drei Phasen mit einem leichten Abfall zu beobachten. Die erste Phase ist der graue Bereich. Dort ist das Filtrationsintervall deutlich verkleinert worden. Es wurde ohne Ultraschallunterstützung rückgespült. Sowohl bei dem Ultraschallmodul als auch an dem Referenzmodul lässt sich eine Verbesserung der transmembranen Druckdifferenz erkennen. Der anschließende Integrationstest hat intakte Module nachgewiesen.

Die zweite Phase bei 33 Stunden könnte auf eine erste Schädigung der Membran hinweisen. Die Schädigung könnte auch erst ab Stunde 54 aufgetreten sein.

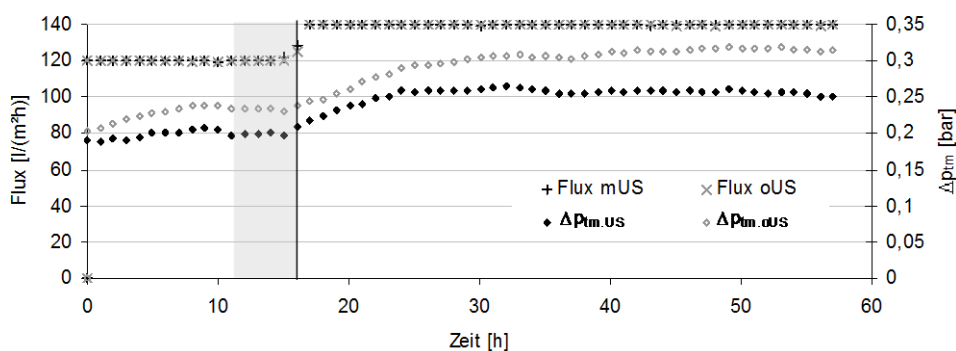


Bild 5-33: Übersicht über eine Filtrationsmessreihe von natürlichem Oberflächenwasser, bei der deutliche Schäden an der Membran nachweisbar sind (60 min – Mittelwerte)

Auch aus den originalen Messwerten (30 s-Werte) lässt sich kein Moment identifizieren, an dem punktuell die Schädigung aufgetreten ist.

Die Schädigung lässt sich somit auf einen schleichenden Prozess zurückführen. Eine vorzeitige Alterung durch die mechanische Belastung durch den Schallwechseldruck würde eher zum Bruch einer ganzen Membran oder Rissen an den starr eingeharzten Endkappen führen. Der identifizierte, schleichende Prozess hingegen scheint sich eher auf lokale Kavitationserosion zurückführen zu lassen, die in einer Art »Lochfraß« die Membrankapillaren zerstört.

Art und Ursache für die beobachtete Membranschädigung

Bei Entnahme des geschädigten Membranmoduls aus dem Edelstahlhüllrohr konnten die Multibore® Membranen zunächst optisch kontrolliert werden. Es ist unmittelbar auffällig, dass nur an einem Punkt in der Mitte des Moduls Membranschäden mit dem Auge erkennbar sind (Bild 5-34 a). Die Bild 5-34 b zeigt diesen Ausschnitt vergrößert. Die schaumstoffartige Stützstruktur der Kapillarmembranen ist von außen angegriffen. Dabei findet die Erosionswirkung in Längsrichtung statt. Die Risse in Längsrichtung entsprechen auch dem Spannungsverlauf durch den Innendruck während der Filtrationsphase. Zunächst sind einzelne Plättchen der äußeren Oberfläche der Multibore® Membran abgelöst, die sich dann in Längsrichtung der Membranen zu lang gezogenen Erosionsgräben verbinden. Wo die äußerste Schicht der Multibore® Membran abgelöst ist, frisst sich die Kavitationserosion schnell tiefer in das Material, bis Löcher und Gräben entstehen, die bis zur ersten Kapillare durchgängig sind. Der Schaden scheint sich aus der Kombination der Innendruckbeanspruchung und der Erosionswirkung der Kavitation zu ergeben.

Der Querschnitt einer Schadstelle an einer Multibore® Membran (Bild 5-35) zeigt, dass die Lage der Furchen unabhängig von der darunter liegenden nächsten Kapillare ist. Das rechte Foto in Bild 5-35 verdeutlicht, dass die äußerste Schicht der Membran in Bezug auf die Erosionswirkung andere Eigenschaften hat als der Rest der schaumstoffartigen Stützstruktur. Teilweise hält diese äußere Schicht noch zusammen und wird von der Erosionswirkung untergraben.

a)



b)

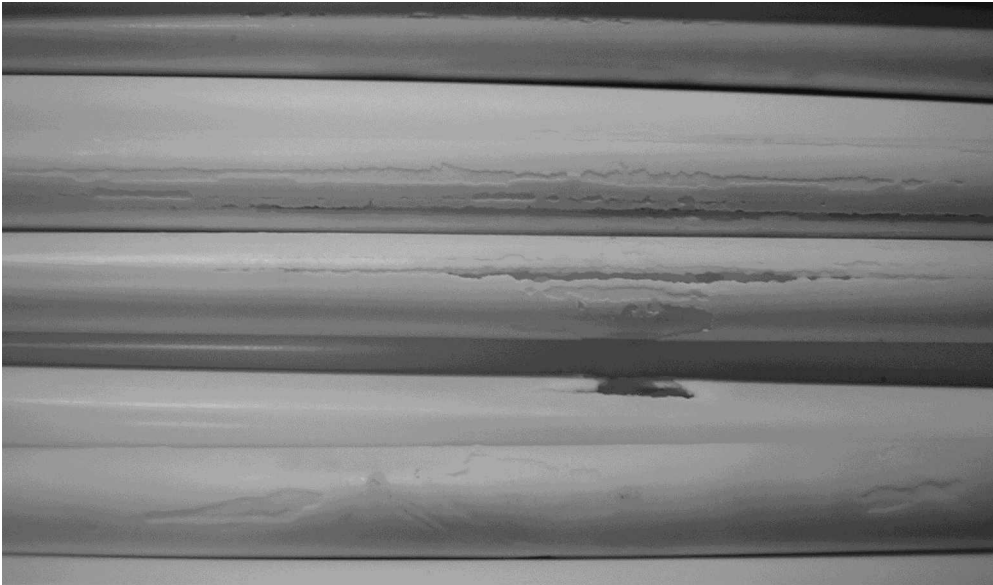


Bild 5-34:

- a) Foto der Lage der geschädigten Multibore® Membranen im Modul
- b) Vergrößerte Aufnahme Foto der Erosionsschäden an Multibore® Membranen an einer Stelle der Modulmitte.

Aufgrund dieses deutlichen Hinweises auf eine sehr lokal auftretende Erosionswirkung der Kavitation wurde das Kavitationsfeld im Inneren des Edelstahlhüllrohres genauer untersucht. Hierzu wird mit einfachen Digitalkameras das wassergefüllte Edelstahlhüllrohr fotografiert. Die Bläschen der Kavitationsfelder lassen sich mit einer entsprechend angeordneten Beleuchtung sehr gut visualisieren (vgl. Kap. 4.4.3). Die Lage der auftretenden Kavitationsstrukturen stimmt mit der Anschweißstelle für die Sonotrode überein (Bild 5-36). Im übrigen Rohr finden sich feinverästelte Kavitationsstrukturen (Filamentstrukturen), die aber an keiner Stelle zu einer vergleichbar dichten Blasenstruktur wie an der Anschweißstelle zusammenballen und nicht an der Rohrwandung anhaften, sondern in der freien Flüssigkeit auftreten.

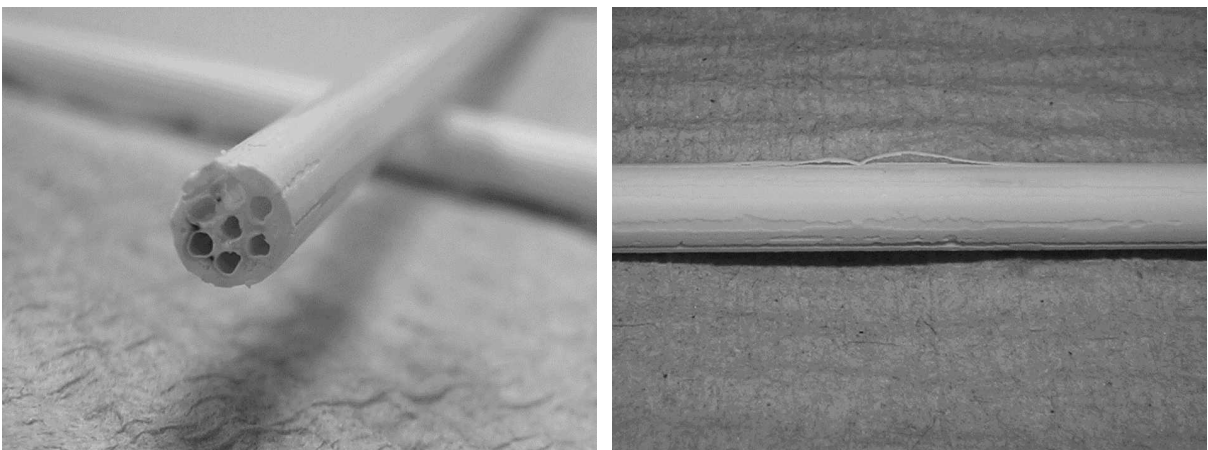


Bild 5-35: Geschädigte einzelne Multibore® Membran im Querschnitt und »Fraßspuren« der Kavitation längs einer geschädigten Membran.

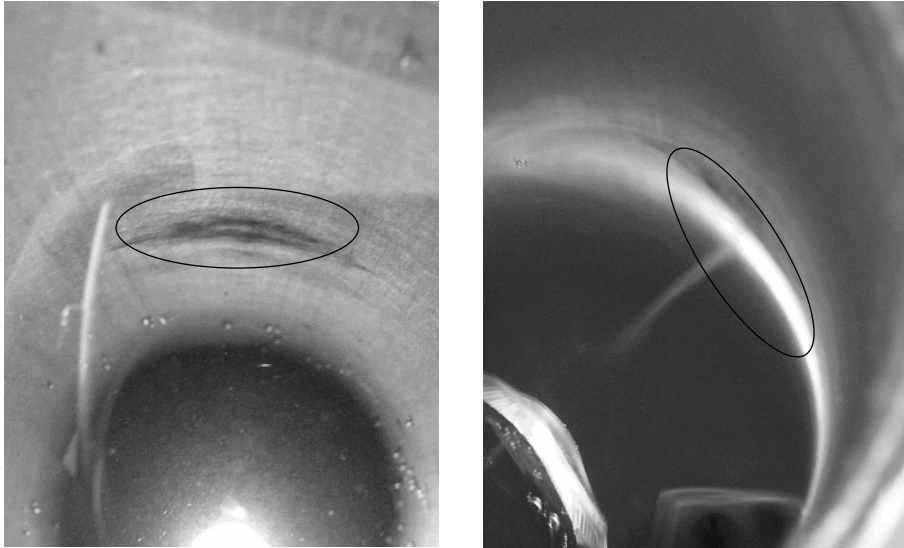


Bild 5-36:

*links: Foto des Edelstahlhüllrohres von Innen mit deutlich erkennbarer verdunkelter Anschweißstelle der Ultraschallsonotrode
rechts: Visualisierung der Kavitationsstruktur an der Anschweißstelle im Innern des Edelstahlhüllrohres; jeweils mit einem Kreis markiert.*

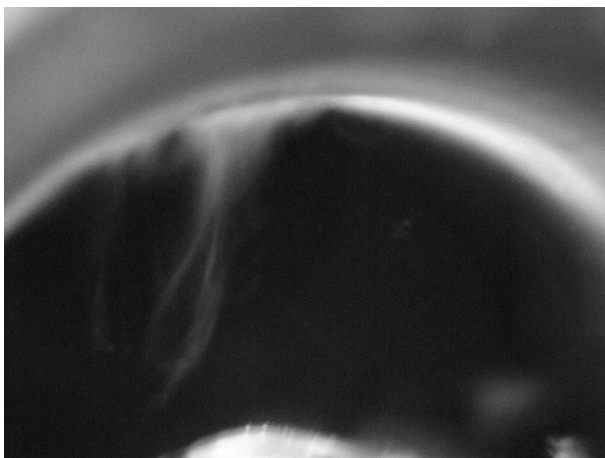
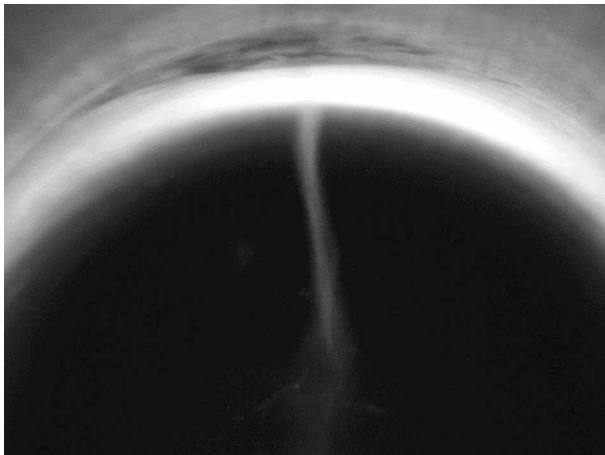


Bild 5-37: Aufnahmen nadelartiger Streamerfiguren an der Anschweißstelle der Ultraschallsonotrode im Innern des Edelstahlhüllrohres

Bild 5-37 zeigt zwei Aufnahmen der Kavitationsblasenstruktur (Streamerfigur vgl. Kap. 2.3.3). Die Kavitationsblasenstruktur ragt in Ruhe nadelartig fast bis in die Rohrmitte (~5 cm Radius). Leichte Störungen verursachen eine Ablenkung dieser Blasenstruktur.

Alle Schädigungen, die an den Membran bei den ersten Messreihen aufgetreten sind, können der erosiven Wirkung dieser speziellen Kavitationsstruktur zugeordnet werden.

Gegenmaßnahmen

Die lokal auftretende Kavitationsstruktur direkt an der Anschweißstelle ist in dieser Form zu erwarten und entspricht in etwa der keilförmigen Kavitationsstruktur an einer Sonotroden spitze (Mettin 2005) (vgl. Kap. 2.3.3). Konstruktiv sollte dieses Phänomen durch die Wahl einer dicken Rohrwandung vermieden werden, so dass sich die Schwingung möglichst gleichmäßig über das gesamte Rohr verteilt. Die gewählten 4 mm Rohrwandung erfüllen offensichtlich diese Aufgabe unzureichend (vgl. Vibrometer- und Schalldruckmessungen Kap. 4.4.1 und 4.4.2). Hinzu kommt die durch die Schweißarbeit leicht oxidierte Stelle, die aufgrund ihrer raueren Oberfläche mehr Blaseneinschlüsse und durch Kapillarkräfte vorgespannte Oberflächen (Kavitationskeime) bietet und damit die Bildung von Kavitationsblasenstrukturen begünstigt. Konstruktiv gibt es eine Reihe von Möglichkeiten diese Situation zu verbessern:

- Statt eines leistungsstarken Schallwandlers die gleichmäßige Verteilung mehrerer schwächerer Schallwandler.
- Die Ankopplung der Sonotrode mit Hilfe eines Balkens zur Versteifung und damit Vergleichmäßigung der Schwingungsanregung des Rohres.
- Optimierte Ankopplung mit Hilfe einer sich nach außen verjüngenden Edelstahlkopplung, um die abnehmende Amplitude auszugleichen.

Kapitel 7.2 geht auf einen verbesserten Designvorschlag näher ein.

Mit der gegebenen konstruktiven Lösung des Ultraschallmembranmoduls lässt sich die Erosionsaggressivität mit Hilfe der bereits im Kapitel 2.3.5 beschriebenen Maßnahmen reduzieren.

- Ein erhöhter permeatseitiger Druck unterdrückt das Auftreten von Kavitation in diesem Bereich.
- Eine verringerte Ultraschallintensität verringert das unerwünschte Auftreten von Kavitation an der Anschweißstelle.
- Die Wahl einer höheren Ultraschallfrequenz verringert die Heftigkeit des Blasenkolapses und damit die erosive Wirkung.
- Die Erhöhung des Gasgehalts der Rückspülflüssigkeit erhöht tendenziell den Anteil von Gasblasen mit größerem Radius und bewirkt damit ein sanfteres Oszillieren der Blasen, anstelle von heftig kollabierenden Blasen.

Die Langzeittests mit natürlichem Oberflächenwasser wurden mit dem Ultraschallwandler UIP 1000 (Kap. 4.3.3) mit 20 kHz durchgeführt. Zur Vermeidung von Membranschäden wurde die kleinste Ultraschallamplitude genutzt (Verringerung der Intensität). In der Messreihe Bild 5-29 wurde die Maßnahme eines möglichst hohen Permeatdrucks während der Ultraschalleinwirkung erfolgreich umgesetzt. In allen weiteren Versuchsreihen mit Trockenmilch und Titandioxid-Suspension wurde ein Ultraschallwandler mit 40 kHz eingesetzt. Hier traten keine weiteren Schäden auf.

Barotrauma

Zur schädigenden Wirkung des Ultraschalls auf die Membran soll hier eine These vorgestellt werden, die den Aspekt der Blasenoszillation in einer porösen Struktur betrachtet. Mit Methoden aus der Medizintechnik, bei denen die Schädigung von Kavitation auf Gewebeproben mit Hilfe von diagnostischem Ultraschall untersucht wird, könnte die These überprüft werden. Die These ist motiviert durch die Beobachtung, dass die äußerste Schicht der Membran von der Kavitationswirkung teilweise untergraben ist und die poröse, schaumstoffartige Stützstruktur teilweise vollständig abgetragen wurde (vgl. Bild 5-35).

In Analogie zu einem Barotrauma, bei dem durch eine plötzliche Luftdruckveränderung und mangelndem Druckausgleich Verletzungen verursacht werden können, ist es vorstellbar, dass der Schallwechseldruck, bei Auftreten von oszillierenden Blasen im Inneren der porösen Stützstruktur einer Membran Schäden verursacht. Das Auftreten von Bläschen in den Poren kann diese über ihre Elastizitätsgrenze hinaus beanspruchen und sprengen. Insbesondere bei der Verwendung von inside-out-betriebenen Kapillarmembranen und einer Beschallung während der Druckverhältnisse in der Rückspülphase ist es vorstellbar, dass die poröse Stützstruktur durch die Expansion und Kompression von Bläschen in Hohlräumen geschädigt wird.

Bild 5-38 veranschaulicht diese These qualitativ anhand des zu erwartenden, transmembranen Druckabfalls innerhalb der porösen Stützstruktur und eines Kavitationsschwellenwertes, ab dem in der Unterdruckphase des Schallwechseldrucks eine Destabilisierung von Gaseinschlüssen zu erwarten ist, die zum Aufschwingen und anschließendem Kollabieren von Kavitationsbläschen führt. In der Skizze wird vereinfacht eine ungedämpfte Schalldruckamplitude angenommen. Die kritische Situation, bei der oszillierende Gasblasen in der porösen Stützstruktur auftreten können ist grau hinterlegt. Der Verlauf des Systemdrucks bezieht sich auf die qualitative Darstellung des Druckabfalls entlang eines exemplarischen Querschnitts durch die Multibore® Membran in Bild 5-28. In Anhang 3 (Bild A3-0-2, 3 und 4) ist die Blasendynamik bei verschiedenen Annahmen für den Schalldruck und die Druckverhältnissen im System zwischen der Permeat- und der Feedseite berechnet. Bei den hohen verwendeten Schalldrücken ist bei der Blasendynamik zwischen Permeatseite (1,8 bar) und Feedseite (0,2 bar) kein großer Unterschied festzustellen. Auch auf der Permeatseite kommt es zu heftigem Kollapsverhalten. Bei geringerem Schalldruck lässt eine Erhöhung des Systemdrucks den Blasenkollaps jedoch verschwinden (vgl. Bild A3-0-4), so dass das skizzierte Szenario auftreten könnte.

Mit folgenden Maßnahmen kann der Gefahr des Barotraumas begegnet werden:

- Höhere Frequenzen zur Verringerung des maximalen Blasenradiuses,
- Verschiebung des Schwellwertes auf die Feedseite durch Verringerung von Intensität und Erhöhung des Permeatdrucks bzw. Absenkung des feedseitigen Drucks,
- wenn Membranfläche/-geometrie und Stoffsystem es zulassen: Beschallung der Feedseite,
- Verwendung von unempfindlichen Filtermedien (Metall-, Glasmembran).
- Theoretisch wäre auch eine vollständige Entgasung des Fluids als Maßnahme gegen die Gefahr des Barotraumas denkbar. Diese Maßnahme ist für den praktischen Betrieb nicht durchführbar.

Die tatsächliche praktische Bedeutung dieser Barotrauma-These bezüglich der Membranschädigung muss in geeigneten Versuchen geklärt werden (vgl. hierzu auch methodische Vorschläge in Kap. 8). Das lokal begrenzte Auftreten von Schäden um die beobachtete, nadelartige Kavitationsstruktur (vgl. Bild 5-36, Bild 5-37), weist darauf hin, dass die Gefahr einer Schädigung der

Membran bei Auftreten solcher Kavitationsstrukturen wesentlich höher einzustufen ist und es solche ortsfesten Kavitationsstrukturen (microstreamer) in jedem Fall zu vermeiden gilt. Bei einer Membranschädigung aufgrund des Unterschreitens des Kavitationsschwellenwertes innerhalb der Stützstruktur wären solche schafhaften Stellen auch an anderen Stellen über das ganze Modul verteilt zu erwarten. Zu beobachten ist diese Art der von innen ausgehöhlten Membranen nur im Bereich der charakteristischen Kavitationsstruktur.

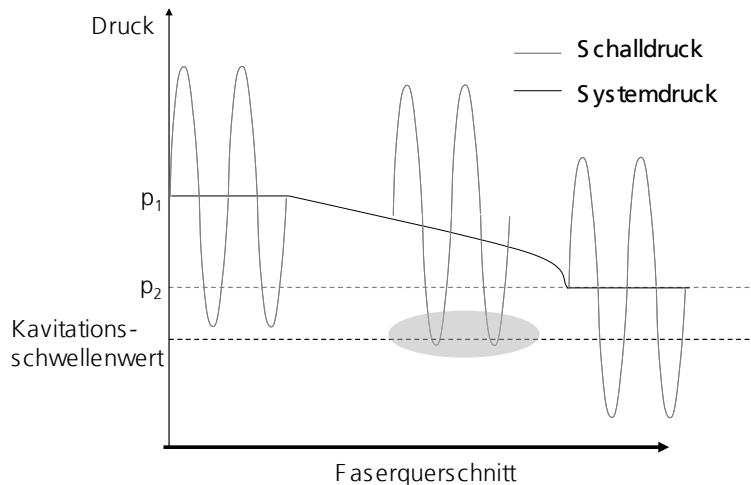


Bild 5-38: Qualitative Darstellung der Barotraumatheorie unter Annahme einer ungedämpften Schalldruckamplitude. Die kritische Phase ist grau hinterlegt. Systemdruck entlang des Membranquerschnitts gemäß Bild 5-28.

5.4.3 Versuchsreihe: Ultraschallunterstützte Rückspülung bei der Trockenmilchfiltration

Intention

Weitere Versuche zur ultraschallunterstützten Rückspülung sollen nähere Erkenntnisse zur Wirksamkeit der Methode ergeben und die Funktionsweise an einem gut untersuchten, schwerfiltrierbaren Stoffsystem aufzeigen. Der Dead-End-Betrieb ist für die Filtration des Stoffsystems Trockenmilch ungünstig. Der Vorteil der Verwendung dieses Stoffsystems besteht darin, sehr schnell an einzelnen Reinigungsvorgänge Aussagen den Einfluss bestimmter Parameter beobachten zu können. Durch die Variation verschiedener Parameter des Rückspülvorgangs soll aufgezeigt werden, mit welchen Parametern die Reinigungsvorgänge deutlich verbessert werden können. Es wird der Einfluss des Rückspüldrucks, der Rückspül- und Ultraschalldauer sowie der Ultraschalleistung untersucht.

Versuchsmethode

Die Versuchsmethode gleicht der im vorangegangenen Kapitel 5.4.1. Einziger Unterschied besteht in der Verwendung des Stoffsystems Trockenmilch (siehe Kap. 4.6.4). Als Orientierungs-

größe lässt sich die Zeit bis zur Ausbildung einer geschlossenen Deckschicht für dieses Stoffsystem mit 5,6 s angeben (vgl. Tabelle 4-12).

Versuchsdurchführung

Die Versuchsdurchführung ist analog zu der im vorangegangenen Kapitel 5.4.1. Die Reinigungsparameter Ultraschalleistung, Ultraschalleinwirkzeit, Rückspüldruck und Rückspüldauer werden im Steuerungsprogramm variiert.

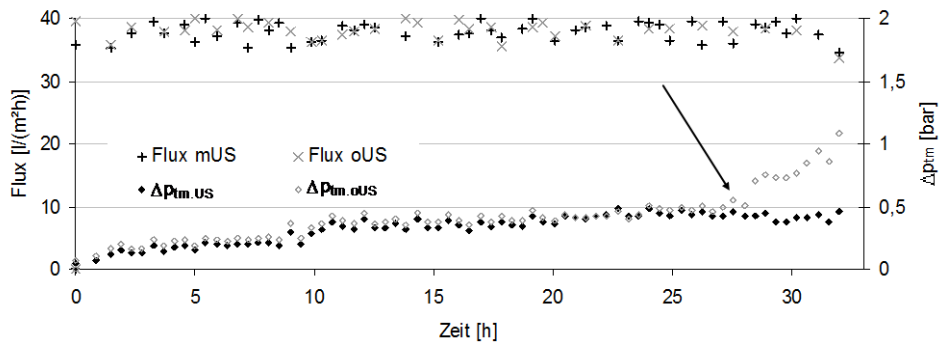
Versuchsergebnis

Bild 5-39 zeigt den Überblick über einen Filtrationsversuch mit Trockenmilch. Über die Versuchsdauer unterscheiden sich die Filtrationseigenschaften beider Module zunächst nicht. Erst nach 27 Stunden steigt der Deckschichtwiderstand am Referenzmodul an, während das Ultraschallmodul einen nahezu konstanten Transmembrandruck aufweist.

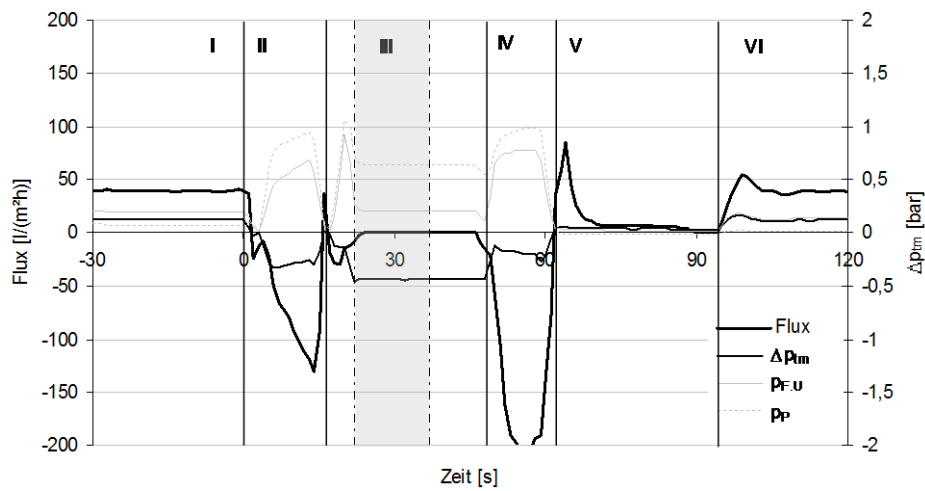
Der Reinigungsvorgang in Bild 5-39 b unterscheidet sich von den vorangegangenen dadurch, dass vor der eigentlichen Rückspülphase mit Ultraschall bereits eine Überströmreinigung in der Richtung top-down, also gegen die Filtrationsrichtung stattfindet. Bei dieser Überströmung findet in Summe gleichzeitig eine überlagerte Rückspülung statt. Die Überströmreinigungsphasen II und IV sind gleich parametrisiert (Δt_{FF} , $v_{FF,max}$).

In Bild 5-40 sind die ersten vier Stunden der Messung von Bild 5-39 a dargestellt. Nach einer längeren Einfahrphase mit Reinwasser wird nach etwa einer Stunde die Trockenmilch zudosiert. In Bild 5-40 b und c sind jeweils die zugehörigen Bewertungsparameter Sauberkeitsgrad υ und die gewichtete Reinigungsgüte $\upsilon \cdot \kappa$ zu den einzelnen Reinigungsvorgängen dargestellt. Dazu wurde jeweils der beste Messwert für den auf die transmembrane Druckdifferenz bezogenen Flux als Bezugsgröße $v_{P,RWF}$ für die Ermittlung des Sauberkeitsgrads υ gewählt. Für die gewichtete Reinigungsgüte $\upsilon \cdot \kappa$ ergibt sich kein erkennbarer Unterschied zwischen den Modulen mit und ohne Ultraschall. Der Sauberkeitsgrad υ in Bild 5-40 b des Ultraschallmoduls liegt leicht über dem des Referenzmoduls.

a)



b)



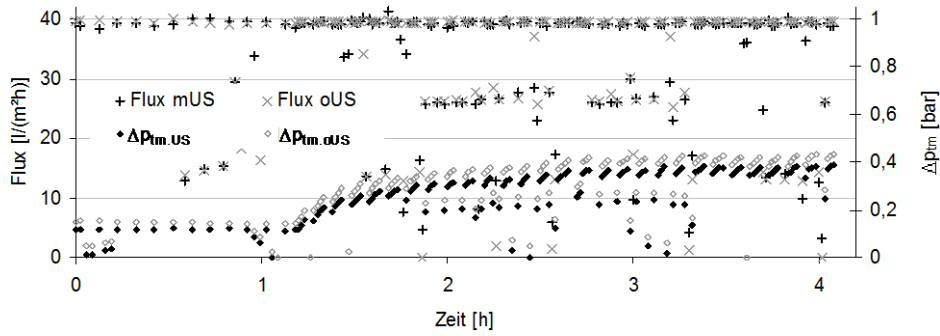
c)

Stoffsystem		Reinigungsvorgang	
Milchpulver vgl. Kap. 3.5.4		<u>Reinigungsablauf und Strömungsrichtung</u>	
Konzentration	$c_s = 2,5 \text{ g/l}$	FF (top down); RS mit US (bottom up); FF (top down)	
Membran		<u>RS mit US (Phase III)</u>	<u>US-Parameter (Phase III)</u>
Membran:	inge multibore	$\Delta t_{RS,1} = 30 \text{ s}$	$\Delta t_{US} = 15 \text{ s}$
Modul:	dizzer 450	$\Delta p_{RS,1} = 0,46 \text{ bar}$	$P_{US} = 110 \text{ W}$
Membranfläche:	$A_M = 4,25 \text{ m}^2$	$v_{P,RS,max} = 45 \mu\text{m/s}$	$f_{US} = 40 \text{ kHz}$
Filtrationsparameter		<u>FF und RS2 (Phasen II, IV, V)</u>	<u>Gesamt RS-Volumen</u>
Betriebsweise:	$v_p = \text{konst} = 40 \text{ l/(m}^2\text{h)}$	$\Delta t_{RS,2} = 30 \text{ s}$	$V_{RS,tot} = 3,62 \text{ l}$
Filtrationszeit:	$\Delta t_f = 20 \text{ min}$	$\Delta p_{RS,2} = 0,2 \text{ bar}$	
		$\Delta t_{FF} = 10 \text{ s}$	
		$v_{FF,max} = 0,235 \text{ m/s}$	

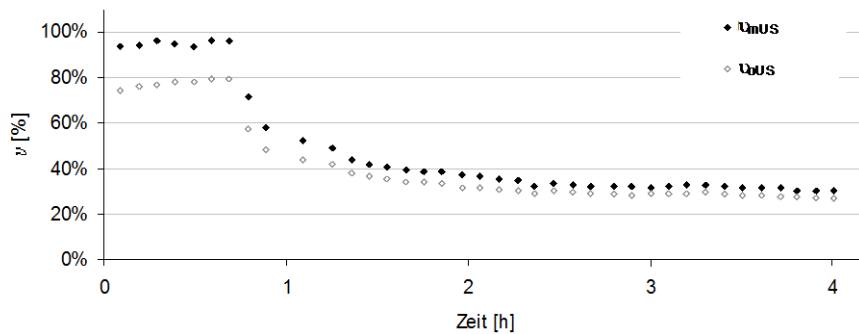
Bild 5-39:

- a) Überblick des Filtrationsversuchs mit Zudosierung der Trockenmilch (53 min – Mittelwerte)
 b) Reinigungsvorgang
 c) wichtigste Versuchsparameter

a)



b)



c)

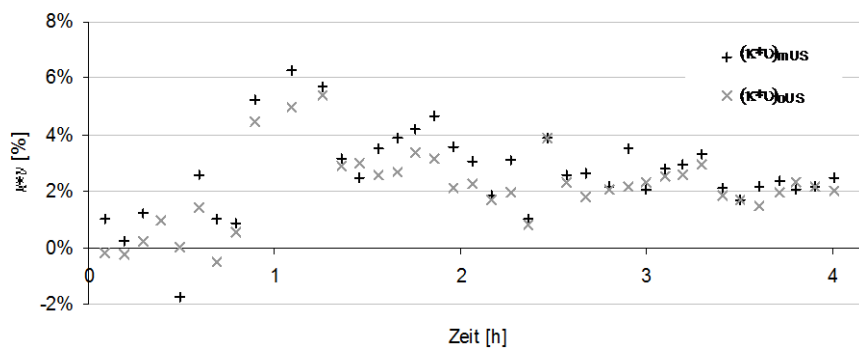


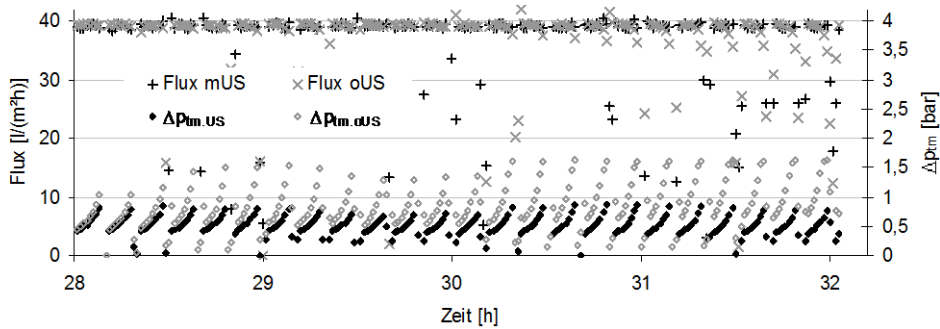
Bild 5-40:

- a) Erste vier Stunden zu Beginn des Filtrationsversuchs von Bild 5-39 mit Zudosierung der Trockenmilch nach einer Stunde (2 min – Mittelwerte).
- b) Zugehöriger Sauberkeitsgrad v für die Reinigungsvorgänge der Messreihe in a)
- c) Zugehörige gewichtete Reinigungsgüte $\kappa \cdot v$ zu den Reinigungsvorgängen.

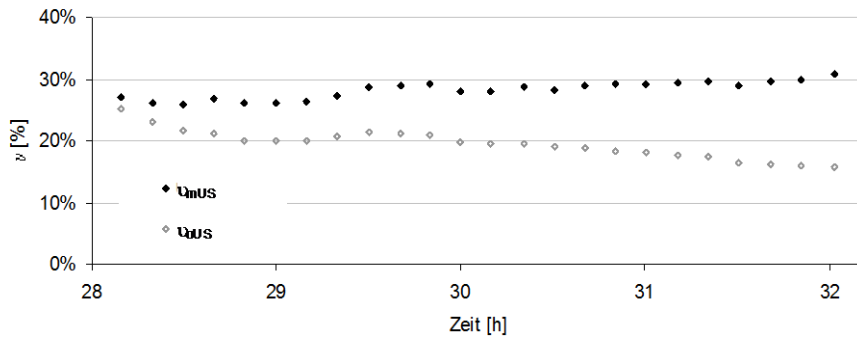
Bild 5-41 zeigt die letzten vier Stunden des Filtrationsversuchs mit Trockenmilch im Detail. Es lässt sich deutlich der starke Anstieg des Transmembrandrucks im Referenzmodul erkennen, der von Filtrationszyklus zu Filtrationszyklus immer stärker anwächst. Das plötzliche Einsetzen dieses starken Druckanstiegs weist auf Pfropfenbildung in den Kapillaren hin. Bild 5-41 b und c zeigen den Verlauf des Sauberkeitsgrads v und der gewichteten Reinigungsgüte $\kappa \cdot v$. Dabei sinkt der Sauberkeitsgrad v der Membran im Referenzmodul in den letzten vier Stunden stark ab, während im Ultraschallmodul die Membran tendenziell besser gereinigt wird. An der gewichteten Rei-

nigungsgüte κ^*v lässt sich erst in der letzten Stunde der Vorteil des Ultraschallmoduls gegenüber dem Referenzmodul erkennen.

a)



b)



c)

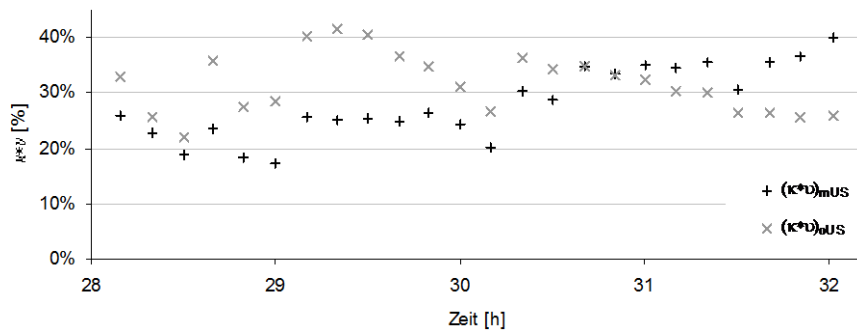


Bild 5-41:

a) Letzte vier Stunden am Ende des Filtrationsversuchs von Bild 5-39 (2 min – Mittelwerte).

b) Zugehöriger Sauberkeitsgrad v nach den Reinigungsvorgängen der Messreihe in a)

c) Zugehörige gewichtete Reinigungsgüte κ^*v zu den Reinigungsvorgängen

Bild 5-42 zeigt den Verlauf eines Filtrationsversuch mit Trockenmilch im Überblick, bei dem die Parameter Rückspüldruck, Ultraschalleinwirkdauer und Ultraschallleistung variiert wurden. Tabelle 5-7 zeigt die Voreinstellungen der Reinigungsvorgänge aus Bild 5-42 (grau hinterlegt). Die Parameter für den Rückspülvolumenstrom $v_{P,RS,max}$ und die maximale Querströmung $v_{FF,max}$ sind berechnete Werte, da die Volumenströme nicht vollständig erfasst wurden. Bild 5-42 b zeigt exemplarisch einen Reinigungsvorgang, wobei zu erkennen ist, dass mit einer Überströmphase

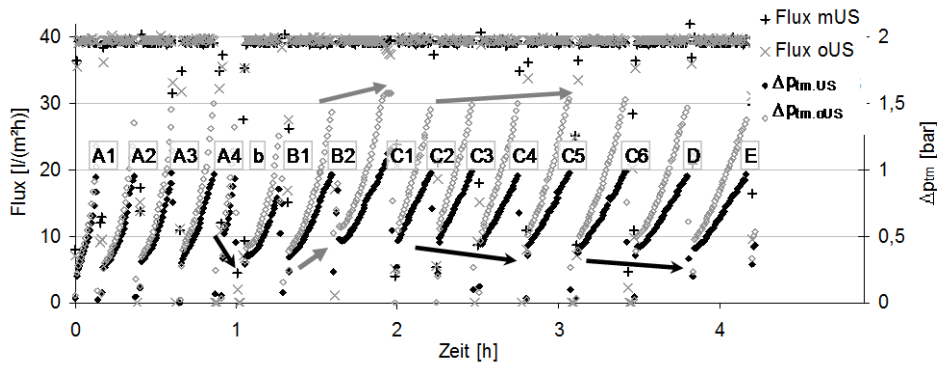
(in Filtrationsrichtung; bottom-up) vor der Rückspülung begonnen wird, dann folgt die Rückspülung und eine weitere Überströmung jeweils in der Filtrationsrichtung. Die wichtigsten Parameter zum Versuch sind in Bild 5-42 c zusammengefasst. In Bild 5-42 a lassen sich folgende Auffälligkeiten beobachten:

- Der Reinigungsvorgang A4a reinigt schlecht und hat eine deutliche Erhöhung des transmembranen Drucks für beide Module zur Folge.
- Der unmittelbar anschließende Reinigungsvorgang A4b nach nur 5 min Filtrationsdauer verbessert die Situation für beide Module wieder.
- Der Reinigungsvorgang B2 reinigt schlecht und hat eine deutliche Erhöhung des transmembranen Drucks für beide Module zur Folge.
- Die Reinigungsvorgänge C2 - C5 haben eine stetige, leichte Verbesserung für das Ultraschallmodul zur Folge, während sich für das Referenzmodul der benötigte Transmembrandruck erhöht.
- Die Reinigungsvorgänge C6, D und E verringern den transmembranen Druck für beide Module.

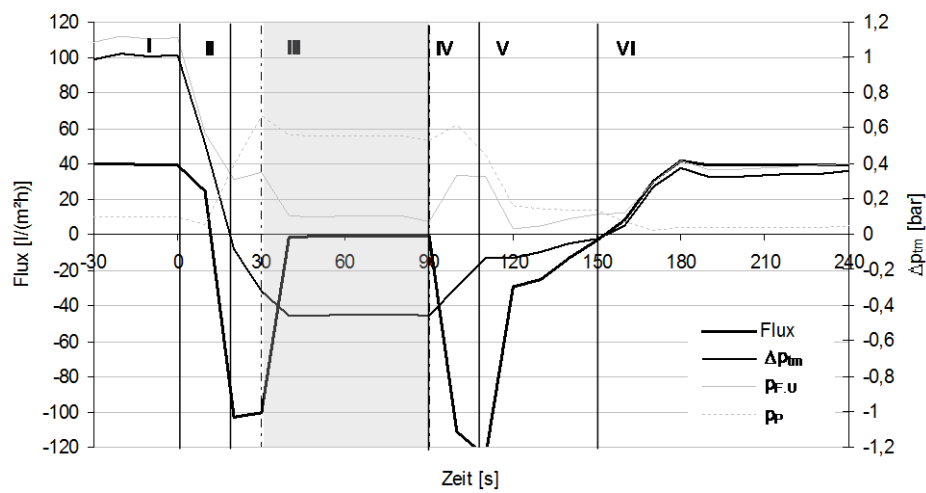
Die bei der Betrachtung des Filtrationsverlaufs in Bild 5-42 a auffälligen Reinigungsvorgänge lassen sich in Tabelle 5-7 in der Spalte für die gewichtete Reinigungsgüte des Ultraschallmoduls $(\upsilon^* \kappa)_{\text{mUS}}$ anhand von niedrigen Werten erkennen. Die Verbesserung des druckbezogenen Flux q bei den Reinigungsvorgängen C2-C5 lässt sich in der Spalte für den Sauberkeitsgrad für das Ultraschallmodul υ_{mUS} erkennen. Es wird deutlich, dass die Reinigungseffizienz κ für diese Versuchsanordnung keine sehr nützliche Aussage macht. Da der Wert κ wesentlich höher als der Sauberkeitsgrad υ liegt, ist auch die Interpretation der gewichteten Reinigungsgüte $\kappa^* \upsilon$ nicht unmittelbar einsichtig. Trotz des deutlich besseren Verlaufs des transmembranen Drucks im Ultraschallmodul weist der Parameter für den Reinigungserfolg $\upsilon^* \kappa$ beim Referenzmodul höhere Werte auf. Entscheidend ist für diese Versuchsreihen der Sauberkeitsgrad υ , der angibt, zu welchem Anteil der Reinwasserflux wiedererreicht wird.

Anhand der Ergebnisse in Tabelle 5-7 lassen sich nur schwer Aussagen treffen, inwiefern die Voreinstellungen der Parameter für die ultraschallunterstützte Rückspülung den Reinigungserfolg beeinflussen. Bei den Reinigungsvorgängen A3 und A4a sollte keine gravierende Verschlechterung auftreten, bzw. ist zu erwarten, dass A4a aufgrund der längeren Beschallungszeit einen höheren Reinigungserfolg aufweist. Gleiches gilt für die Reinigungsvorgänge B1 und B2. Auch hier ist das gegenteilige Ergebnis zu erwarten. Aus den Reinigungsvorgängen C1-6 lässt sich ablesen, dass in diesem Aufbau nicht die Ultraschalleistung sondern eher die Reinigungsdauer eine wichtige Einflussgröße ist.

a)



b)



c)

Stoffsystem	Reinigungsvorgang
Trockenmilch vgl. Kap. 3.5.3	<u>Reinigungsablauf und Strömungsrichtung</u> FF (bottom up); RS mit US (bottom up); FF (bottom up)
$c_s = 2,5 \text{ g/l}$	<u>RS mit US (Phase III)</u> <u>US-Parameter (Phase III)</u>
Membran	$\Delta t_{RS,1} = 60 \text{ s}$ $\Delta t_{US} = 20 - 100 \text{ s}$
Membran: inge multibore	$\Delta p_{RS,1} = 0,46 - 0,95 \text{ bar}$ $P_{US} = 180 - 250 \text{ W}$
Modul: dizzer 450	$v_{P,RS,max} = 45 - 93 \mu\text{m/s}$ $f_{US} = 40 \text{ kHz}$
Membranfläche: $A_M = 4,25 \text{ m}^2$	<u>FF und RS2 (Phasen V, VI)</u> <u>Gesamt RS-Volumen</u>
Filtrationsparameter	$\Delta t_{RS,2} = 60 \text{ s}$ $V_{RS,tot} = 5,0 - 8,1 \text{ l}$
Betriebsweise: $v_p = \text{konst} = 40 \text{ l/(m}^2\text{h)}$	$\Delta p_{RS,2} \sim \Delta p_{RS,1}$
Filtrationszeit: $\Delta t_f = 10 - 20 \text{ min}$	$\Delta t_{FF} = 10 \text{ s}$
	$v_{FF,max} = 0,18 - 0,37 \text{ m/s}$

Bild 5-42:

- a) Filtrationsversuch mit Trockenmilch bei Variation der Ultraschallreinigungparameter im Überblick (30 s – Mittelwerte)
 b) Exemplarische Detailansicht für den Reinigungsvorgang A3
 c) Wichtigste Versuchsparameter

Tabelle 5-7: Voreinstellungen und Bewertungsparameter für die Reinigungsvorgänge in Bild 5-42

Voreinstellungen					Ergebnisse						
	$\Delta p_{tm,RS.1}$ [bar]	Δt_{US} [s]	P_{US} [W]	$V_{P,RS,max}$ [l(m ² h)]	$V_{FF,max}$ [m/s]	κ_{mUS}	κ_{oUS}	U_{mUS}	U_{oUS}	$(\kappa \times U)_{mUS}$	$(\kappa \times U)_{oUS}$
A1	0,46	20	180	161	0,181	228,1%	265,6%	41,9%	38,1%	95,6%	101,1%
A2	0,45	40	180	158	0,177	188,1%	236,5%	34,7%	30,6%	65,2%	72,3%
A3	0,46	60	180	161	0,181	183,8%	259,1%	32,9%	27,9%	60,5%	72,4%
A4a	0,46	80	180	159	0,179	125,2%	199,2%	26,8%	23,4%	33,6%	46,5%
A4b	0,45	100	180	158	0,177	111,7%	146,5%	32,5%	27,6%	36,3%	40,4%
B1	0,72	20	180	252	0,283	136,9%	208,1%	32,4%	28,5%	44,3%	59,4%
B2	0,72	40	180	252	0,283	104,4%	148,3%	23,8%	19,9%	24,9%	29,5%
C1	0,39	20	180	137	0,153	139,6%	192,7%	23,7%	19,9%	33,1%	38,4%
C2	0,39	20	233	137	0,153	102,4%	149,3%	23,4%	19,4%	24,0%	29,0%
C3	0,39	40	243	137	0,153	123,8%	177,7%	26,0%	21,6%	32,2%	38,4%
C4	0,39	60	246	137	0,153	119,4%	183,2%	25,8%	21,5%	30,8%	39,3%
C5	0,39	80	184	137	0,153	130,0%	201,2%	26,8%	22,5%	34,9%	45,2%
C6	0,37	100	182	130	0,145	139,1%	216,3%	27,5%	23,5%	38,3%	50,9%
D	0,83	20	180	291	0,326	131,9%	198,3%	27,6%	23,3%	36,4%	46,1%
E	0,95	20	191	333	0,373	120,5%	161,7%	26,4%	21,8%	31,8%	35,3%

In Bild 5-43 ist die Reinigungsgüte κ^*v der aufgeführten Reinigungsvorgänge A und C über die eingetragene Ultraschallenergie aufgetragen. Es zeigt sich, dass die Parameter für die Reinigungsgüte κ^*v für beide Module sich nahezu parallel verhalten. Das Referenzmodul, auf das Beschallungszeit und Ultraschallleistung keinen Einfluss hat, weist für die Reinigungsgüte κ^*v den gleichen Verlauf wie das Ultraschallmodul auf. Das Rückspülvolumen und die Rückspülzeit ändern sich bei beiden Modulen in der gleichen Weise. Bei einem transmembranen Rückspül- druck von 0,45 bar sinkt die Reinigungsgüte κ^*v mit zunehmender Rückspülzeit, während die Membran noch weiter zugesetzt wird. Bei dem späteren Versuch C mit einer transmembranen Druckdifferenz von 0,39 bar steigt die Reinigungsgüte κ^*v mit zunehmender Rückspüldauer.

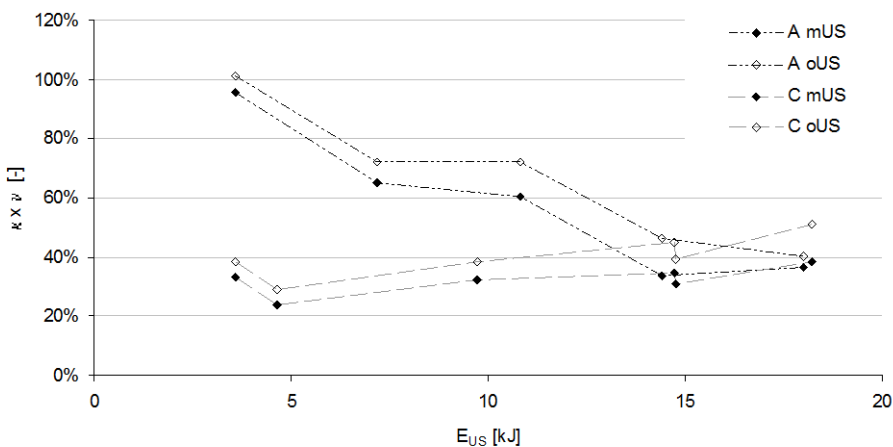


Bild 5-43: Reinigungsgüte $\kappa \cdot v$ über die Ultraschallenergie entsprechend der Reinigungsvorgänge in Tabelle 5-7

A1-4:

$$\Delta p_{RS} = 0,46 \text{ bar}$$

C1-6:

$$\Delta p_{RS} = 0,39 \text{ bar}$$

Daraus lässt sich folgern, dass in dem gewählten Bereich die Ultraschallparameter und Rückspülparameter einen geringen Einfluss auf die einzelnen Reinigungsvorgänge haben. Wesentlich ist vielmehr der Grad der Verschmutzung. Dieser ändert sich für beide Module annähernd in gleicher Weise und ist abhängig von der Flächenbelastung und Filtrationsdauer.

Erkenntnisse aus der Versuchsreihe

Rückschlüsse auf Reinigungsmechanismen: Aus diesen Messreihen lässt sich kein eindeutiger Trend bezüglich der Verbesserung der Reinigungswirksamkeit ableiten. Die experimentelle Bewertung von einzelnen Reinigungsvorgängen lässt sich bei diesem Versuchsaufbau nur sehr schwierig realisieren. Voraussetzung wäre der Start jedes Filtrationszyklus mit zwei Modulen, die exakt gleiche Parameter aufweisen bezüglich aktiver Membranfläche und Reinwasserfluss. Ein Rückschluss aus der Betrachtung der einzelnen Reinigungsvorgänge in Bild 5-43 ist, dass die Ultraschallparameter, die nur das Ultraschallmodul betreffen, gegenüber den hydraulischen Parametern der Spülungen und der vorausgehenden Verschmutzung weniger bedeutsam sind. Die Bewertungsparameter für den Reinigungsgüte $\kappa \cdot v$ liegen trotz Änderungen der Ultraschallparameter für das Referenz- und das Ultraschallmodul immer nah beieinander.

Fazit

Mit der ultraschallunterstützten Rückspülung scheint sich eine Pfropfenbildung inside-out betriebenen Kapillarmembranen vermeiden zu lassen. Exakt gleiche Parameter bezüglich aktiver Membranfläche und Reinwasserfluss (gleiche Grundverschmutzung) wären für aussagekräftige Parametervariationen notwendig. Der Einfluss der hydraulischen Parameter des Rückspülvorgangs und die vorausgegangene Verschmutzung sind für die Güte des einzelnen Reinigungsvorgangs entscheidender als die Ultraschallparameter.

Weitere Trends, die sich aus der Betrachtung der Versuche bei der Milchfiltration ableiten lassen:

- Die beste Reinigungswirkung für das Modul ohne Ultraschall tritt auf, wenn die vorangehende Flächenbelastung der Filtration am niedrigsten ist.
- Bezüglich des Sauberkeitsgrad v (Wiedererreichens des ursprünglichen druckbezogenen Fluxes; Reinwasserfluss einer sauberen Membran) wirken sich hohe Spülgeschwindigkeiten in den Membrankapillaren besonders stark aus.
- Der Vorteil eines einzelnen Reinigungsvorgangs mit Ultraschall gegenüber einem ohne Ultraschall zeigt sich bei suboptimalen hydraulischen Parametern (niedrige Rückspülgeschwindigkeit und kurze Rückspülzeit) aber hohen Ultraschallleistungen am deutlichsten.

Es lässt sich somit das Rückspülvolumen bei gleicher Reinigungswirkung durch den Einsatz von Ultraschall verringern.

5.4.4 Versuchsreihe: Ultraschallunterstützte Rückspülung bei der Filtration von Titandioxidsuspension

Intention

In Ergänzung zu dem aus praktischen Filtrationsanwendungen bekannten Stoffsystem Trockenmilch soll in diesem Kapitel das Verhalten des für die wissenschaftliche Vergleichbarkeit interessanten Stoffsystems Titandioxid untersucht werden.

Versuchsmethode

Die Versuchsmethode unterscheidet sich von den vorangehenden Kapiteln 5.4.1 und 5.4.3 lediglich durch die Verwendung des Stoffsystems Titandioxid. Um deutliche Unterschiede von Reinigungsvorgang zu Reinigungsvorgang beobachten zu können wurde eine hohe Partikelkonzentration von 12,87 g/l gewählt. Nach der Abschätzung Glg. 4-17 bildet sich bei dieser Konzentration und einem Flux von 140 l/(m²h) eine erste geschlossene Deckschicht nach 1,4 s aus (vgl. Tabelle 4-12).

Versuchsdurchführung

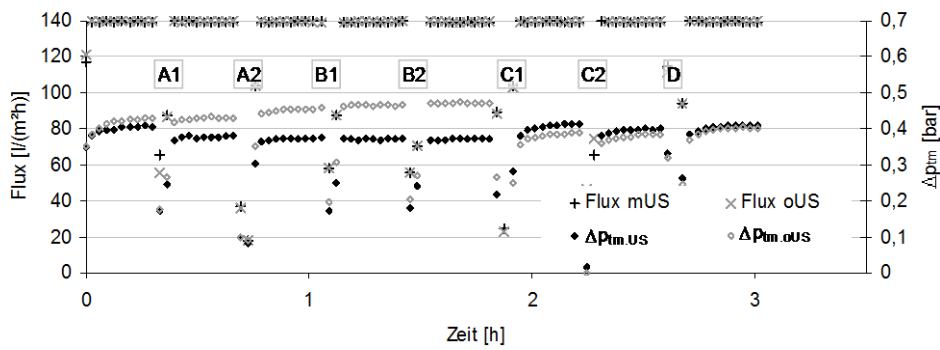
Wie in Kapitel 5.4.3.

Versuchsergebnis

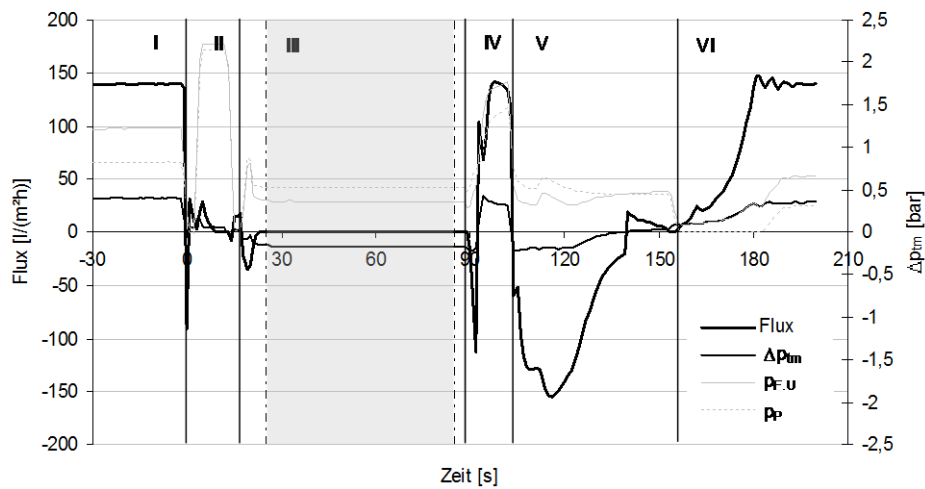
Analog zu dem vorangegangenen Kapitel zeigt Bild 5-44 a ein Filtrationsexperiment mit Titandioxidsuspension, bei dem die Parameter Rückspüldruck, Ultraschalleinwirkdauer und Ultraschallleistung variiert wurden. In Tabelle 5-8 sind die Voreinstellungen für die einzelnen Reinigungsvorgänge zu finden. Jeweils gleiche Einstellungen werden zusammengefasst und die Ergebnisse gemittelt. Bei dieser Versuchsreihe beginnt der Reinigungsvorgang mit einer Überströmphase gegen die Filtrationsrichtung (top-down). Es folgt die Rückspülung und eine weitere Überströmphase in Filtrationsrichtung (bottom-up). Die wichtigsten Parameter zum Versuch sind in Bild 5-44 c zusammengefasst. In Bild 5-44 a lassen sich folgende Auffälligkeiten beobachten:

- Die Reinigungsvorgänge A1 bis B2 sind im Ultraschallmodul sowie im Referenzmodul ähnlich wirksam.
- Der Reinigungsvorgang C1 ist für das Referenzmodul wirksam, die Reinigung am Ultraschallmodul ist weniger wirkungsvoll.
- Die Reinigungsvorgänge C2 und D erweisen sich für beide Module als ähnlich wirksam.

a)



b)



c)

Stoffsystem		Reinigungsvorgang	
Titandioxid Suspension PH3,5		<u>Reinigungsablauf und Strömungsrichtung</u>	
vgl. Kap. 3.5.2 $c_s = 12,87 \text{ g/l}$		FF (top down); RS mit US (bottom up); FF (bottom up)	
Membran		<u>RS mit US (Phase III)</u>	
Membran: inge multibore		$\Delta t_{RS,1} = 20 - 80 \text{ s}$	<u>US-Parameter (Phase III)</u>
Modul: dizzer 450		$\Delta p_{RS,1} = 0,05 - 0,17 \text{ bar}$	$\Delta t_{US} = 30 - 80 \text{ s}$
Membranfläche: $A_M = 4,25 \text{ m}^2$		$v_{P,RS,max} = 10 - 16 \text{ } \mu\text{m/s}$	$P_{US} = 180 - 240 \text{ W}$
Filtrationsparameter		<u>FF und RS2 (Phasen V, VI)</u>	
Betriebsweise: $v_p = \text{konst} = 140 \text{ l/(m}^2\text{h)}$		$\Delta t_{RS,2} = 40 \text{ s}$	$\Delta t_{FF} = 10 \text{ s}$
Filtrationszeit: $\Delta t_f = 20 \text{ min}$		$\Delta p_{RS,2} = 0,2 \text{ bar}$	$v_{FF,max} = 0,05 \text{ m/s}$

Bild 5-44:

- a) Filtrationsversuch mit Titandioxidsuspension bei Variation der Ultraschallreinigungparameter im Überblick (2 min – Mittelwerte)
- b) exemplarische Detailansicht für den Reinigungsvorgang D
- c) wichtigste Versuchsparameter

Zunächst ist zur Interpretation dieser Reinigungsexperimente festzustellen, dass mit extrem niedrigen Rückspüldruck gearbeitet wurde. Für das Referenzmodul wirkt sich der niedrige Rückspüldruck negativ aus. Es findet kaum eine Reinigung statt. Der Verlauf der transmembranen Druckdifferenz für das Referenzmodul in Bild 5-44 a) wird durch die Reinigungsvorgänge kaum beeinflusst. Für das Ultraschallmodul erweisen sich die gewählten Parameter in den Reinigungsvorgängen A1 bis B2 als vorteilhaft.

Bei dem Reinigungsvorgang C1 wird der Rückspüldruck erhöht und mit 80 s eine relativ lange Rückspülung durchgeführt, so dass es auch im Referenzmodul die Deckschicht deutlich reduziert wird. In der Zusammenstellung der Bewertungsparameter für die Reinigungsgüte $(\kappa \cdot v)_{oUS}$ in Tabelle 5-8 sticht dieser einzelne Wert bei Reinigungsvorgang C mit 14,4% deutlich hervor. Wie bereits im vorangegangenen Kapitel gezeigt, lässt sich dies nicht auf die besondere Qualität der Reinigungsbedingungen zurückführen, sondern auf den hohen Verschmutzungsgrad vor dem Reinigungsvorgang.

Tabelle 5-8: Voreinstellungen und Parameter zur Bewertung der Reinigungsvorgänge in Bild 5-44

Voreinstellungen					Ergebnisse						
$\Delta p_{tm,RS.1}$ [bar]	Δt_{US} [s]	P_{US} [W]	$V_{P,RS,max}$ [l/(m ² h)]	$V_{FF,max}$ [m/s]	κ_{mUS}	κ_{oUS}	v_{mUS}	v_{oUS}	$(\kappa \times v)_{mUS}$	$(\kappa \times v)_{oUS}$	
A	0,12	30	240	42	0,047	8,0%	1,3%	77,4%	65,9%	6,2%	0,8%
B	0,10	20	180	35	0,039	1,5%	-1,0%	76,2%	60,0%	1,2%	-0,6%
C	0,17	80	180	60	0,067	5,1%	17,9%	75,5%	80,4%	3,9%	14,4%
D	0,10	60	180	35	0,039	6,0%	6,6%	75,0%	77,6%	4,5%	5,1%

Aus der Messung Bild 5-45 lassen sich keine weiteren Erkenntnisse zu günstigen Ultraschallparametern entnehmen, da die transmembranen Druckdifferenzen von Ultraschall- und Referenzmodul nicht voneinander abweichen. Es wird die Titandioxidsuspension zunächst bei pH 10,5 und einer Leitfähigkeit von 500 $\mu S/cm$ filtriert. Im weiteren Verlauf erfolgt eine pH-Wert-Erniedrigung auf pH 3,5 bei einer Leitfähigkeit von 370 $\mu S/cm$. In dem markierten Bereich in Bild 5-45 erfolgt aufgrund des zu geringen Rückspüldrucks keine Rückspülung. Die Reinigungswirkung wird lediglich durch die Überströmspülungen erreicht. Dabei nimmt offensichtlich die Deckschicht einen günstigeren Aufbau an. Bei der anschließenden Filtration tritt nicht der starke Anstieg des Transmembrandrucks durch die Verdichtung der zuvor durch die Rückspülung gelockerten Deckschicht auf. Stattdessen bleibt die Druckdifferenz über die Filtrationszeit konstant und nimmt bei der nächsten Überströmreinigung weiter ab.

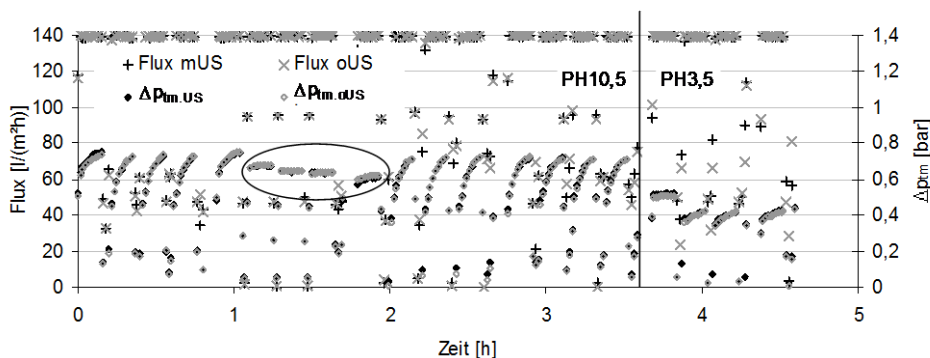


Bild 5-45:

Filtrationsversuch mit Titandioxidsuspension bei Variation der Ultraschallreinigungparameter im Überblick
(2 min – Mittelwerte)

Erkenntnisse aus der Versuchsreihe

Die Deckschicht bei abgesenktem PH-Wert nimmt eine für die Rückspülung günstigen Aufbau an, so dass sich sowohl in Referenzmodul als auch im Ultraschallmodul eine Fluxverbesserung einstellt.

Fazit

An diesen Ergebnissen kann gezeigt werden, dass insbesondere bei ungünstigen Bedingungen für eine übliche Rückspülung (geringer Rückspüldruck) die ultraschallunterstützte Rückspülung zu einer Verbesserung beitragen kann. Für den Gesamtprozess ist so eine Betriebsweise nützlich, da Filtrat für die Rückspülung gespart werden kann.

5.5 Diskussion der Reproduzierbarkeit der Ergebnisse

Die einzelnen Filtrationsexperimente in den Testzellen (Kap. 3.1) sind gut reproduzierbar. Hier konnten neue Versuche immer mit einer neuen bzw. sauberen Membran gestartet werden. Ungenauigkeiten treten aufgrund der unvollkommenen Reinigung der Versuchsanlage auf, so dass in der Einlaufphase unterschiedlich viel Restverunreinigung aus dem Teststand auffiltrierte wurde.

Die Laborexperimente zur ultraschallunterstützten Rückspülung (Kap. 5.2.2) weisen eine zufrieden stellende Reproduktionsgenauigkeit auf. Die Methode weist eine Reihe von Ungenauigkeiten auf, die durch experimentelles Geschick gering gehalten werden können. Zu den Fehlerquellen gehört die Bestimmung des Punktes, an dem der Flüssigkeitsüberstand abfiltriert wurde und die Wägung der Membranscheibe erfolgt. Beim Ausbau der Membran aus der Beschallungsvorrichtung treten Ungenauigkeiten auf, da der Flüssigkeitsüberstand, der auf die Membran vor dem Ausbau zurückfiltriert wird, unterschiedlichen Feststoffgehalt aufweisen kann. Eine weitere Ungenauigkeit besteht im Verlust von Deckschichtmaterial, das an der Flachdichtung oder dem Unterstützungsgitter für die Rückspülung hängen bleibt.

Die Versuchsreihen an den Kapillarmembranmodulen (Kap. 3.3) wurden methodisch so angelegt, dass durch die Verwendung eines Referenzmoduls immer eine Kontrollgröße gegeben ist. Für die Langzeitbetrachtung eines Filtrationsexperiments ist diese Methode gut geeignet. Insbesondere kann dadurch die Wirksamkeit der Ultraschallmethode an verschiedenen Stoffsystemen und an natürlichem Oberflächenwasser gezeigt werden. Natürliches Oberflächenwasser ist als Stoffsystem nicht reproduzierbar.

Für die Untersuchung einzelner Rückspülvorgänge und Parametervariationen ist dieser Ansatz jedoch problematisch. In den Kapiteln 5.4.3 und 5.4.4 konnte gezeigt werden, dass die Grundverschmutzung entscheidend für den Erfolg eines Reinigungsvorgangs ist. Um zwei einzelne Reinigungsvorgänge oder die Reinigungsvorgänge in Ultraschall- und Referenzmodul systematisch miteinander vergleichen zu können, müssen alle Rahmenbedingungen und die Parameter-einstellung gleich sein. Insbesondere das Erreichen der gleichen Grundverschmutzung ist kaum mit einem Modul reproduzierbar erreichbar. Hierfür bräuchte es eine ideale Reinigungsmethode, um jeweils mit einem ideal gereinigten Modul beginnen zu können. Wie bei den Versuchen mit den Testzellen in Kapitel 3.1 würde auch hier die Verwendung eines neuen Membranmoduls für jeden Versuch das Problem lösen. Allerdings ist dieser Ansatz mit hohen Kosten verbunden. Ein anderer methodischer Ansatz, eine möglichst gleiche Grundverschmutzung vor jedem Reinigungsvorgang von Referenz- und Ultraschallmodul zu erreichen, könnte darin bestehen, jeweils mittels Crossflow-Filtration eine stabile und reproduzierbare Deckschicht mit dem gleichen stati-

onären Endwert für den druckbezogenen Flux zu erzeugen. Die so erzeugten Deckschichten unterscheiden sich in ihrem Aufbau von Deckschichten die im Dead-End-Betrieb entstehen. Dafür kann so eine gute Reproduzierbarkeit der Grundverschmutzung erreicht werden. Eine gut definierte und reproduzierbare Grundverschmutzung vor jedem Reinigungsvorgang ist die Voraussetzung für eine systematische Parametervariation. Erst wenn diese gegeben ist, kann der Einfluss von einzelnen Größen wie der Beschallungszeit, der Beschallungsleistung, dem Rückspüldruck und der Rückspüldauer geklärt werden. Aus den in Kapitel 5.4.3 und 5.4.4 durchgeführten Versuchen können wegen der nicht gegebenen gleichen Grundverschmutzung der Membranen daher nur Trends abgeleitet werden.

Bezüglich der Reproduzierbarkeit einzelner Reinigungsvorgänge wurden an dem Testaufbau folgende weitere Quellen für Ungenauigkeiten und Fehler identifiziert. Das Rückspülsystem, das durch einen Druckminderer an das Druckluftsystem angeschlossen ist, kann nur für den statischen Zustand genau eingestellt werden. Während der Rückspülung stellt sich ein Differenzdruck ein, der stark vom Rückspülvolumenstrom und damit vom Deckschichtwiderstand abhängt. Für die Betriebsmodi Überströmung top-down und die Rückspülung in bottom-up Strömungsrichtung wurden in den Tests die Volumenströme nicht korrekt erfasst. Dies erschwert eine Aussage zu den tatsächlichen Randbedingungen, mit der das Modul betrieben wurde.

Weitere Ungenauigkeiten, die eine Reproduzierbarkeit erschweren, sind durch die Vorschädigung und Veränderung des Moduls durch die Entnahme einzelner Multibore® Membranene für Autopsien entstanden. Bei solchen Eingriffen verändern sich die Membraneigenschaften. Zunächst reduzieren sich die aktive Membranfläche und der freie Querschnitt für die Überströmung. Die neuen Flächen wurden rechnerisch korrigiert, so dass die Flächenbelastung bei der Filtration für die beiden Module mit leicht unterschiedlicher Fläche wieder übereinstimmt. Bei den kürzeren Vorgängen, wie der Rückspülung und der Überströmung, konnten die flächenunabhängigen Parameter Überströmgeschwindigkeit und Flächenbelastung nicht eingestellt werden. Hier ist jeweils das Modul mit größerer Membranfläche benachteiligt. In Kapitel 5.4.1 trat teilweise die Situation auf, dass die Fläche des Ultraschallmoduls durch die Reparatur von defekten Membranen geringer war als die des Referenzmoduls, so dass sich für das Referenzmodul bezüglich der tatsächlichen Überströmgeschwindigkeit und Flächenbelastung beim Rückspülen und Überströmen gegenüber dem Ultraschallmodul geringere Werte ergaben. In den Kapiteln 5.4.3 und 5.4.4 haben sich Referenzmodul und Ultraschallmodul in Bezug auf Membranfläche und Anzahl der Kapillaren nicht unterschieden.

5.6 Verbesserte Kavitationskontrolle

Bereits in Kapitel 5.4.2 wurden Maßnahmen zur Vermeidung der beobachteten punktuellen Kavitationsschäden aufgeführt. Theoretisch bietet der Ansatz, eine poröse Membran in einer Überdruckfiltrationsanlage mit Ultraschall zu reinigen, gegenüber den üblichen nicht porösen Oberflächen zwei entscheidende Vorteile (vgl. Kap. 2.5):

- Es lassen sich auf der zu reinigenden und der Filtratseite Drücke einstellen, die für die Ultraschallreinigung geeignet sind.
- Durch die poröse Stützstruktur lässt sich der Gasgehalt im Fluid und damit die Kavitationskeime am Ort der Reinigung gezielt beeinflussen.

Es entstehen durch die poröse Oberfläche zwei zusätzliche Freiheitsgrade bei der Kontrolle der erosiven Aggressivität der Kavitationswirkung. Diese Möglichkeiten wurden in Kapitel 5.2.2 nä-

her untersucht. Es konnte gezeigt werden, dass eine heftige Blasenaktivität das Schallfeld und damit die Mikroströmungen durch Gasblasenoszillation schwächt. Ein Zuviel an Kavitationskeimen führt unter Ultraschalleinfluss zu einer reinen feindispersen Ausgasung. Diese ist nur für sehr schwach anhaftende Deckschichten reinigungswirksam.

In den Filtrationsexperimenten zur Ultraschallreinigung an Kapillarmodulen (Kap. 3.3) konnten die möglichen Einflussgrößen Druck und Gassättigung des Rückspülfluids nur bedingt umgesetzt werden. Ein teilweiser erhöhter Gasgehalt wurde durch die Art der Rückspülung über ein Gas-kissen erreicht. Bei der Einstellung der für die Beschallung optimalen Druckdifferenz an einem Membranmodul treten durch die hohen Rückspülvolumenströme in den Kapillaren Effekte auf, die wiederum eine gute Kavitationswirkung verhindern.

Die Filtrationsexperimente mit einem Ultraschallwandler mit 40 kHz (Kap. 4.3.2) in Kapitel 5.4.3 und 5.4.4 haben gezeigt, dass bei dieser Frequenz im Gegensatz zu einer Beschallung bei 20 kHz keine Membranschäden auftreten. Für die technische Umsetzung der ultraschallunterstützten Rückspülung ist die Wahl einer höheren Frequenz ausschlaggebend, um Kavitations-schäden an der Membran zu vermeiden. Die Untersuchung der Membranschäden in Kapitel 5.4.2 weisen darauf hin, dass zunächst ein möglichst gleichmäßiges Kavitationsfeld erzeugt werden muss. Eine gleichmäßige Schallfeldamplitude über das ganze beschallte Volumen ist Voraussetzung, um eine verfeinerte Kontrolle der Kavitationswirkung zu erzielen. Erst an einem gleichmäßigen Schallfeld kann die Feinjustierung der Kavitationswirkung mit optimalem Differenzdruck und angepasstem Gasgehalt in Angriff genommen werden. Dabei sind für eine Optimierung auch die Druckverluste in der Stützstruktur der Membranen aufgrund der Strömungs-richtung und der Modulgeometrie zu berücksichtigen. In Kapitel 7.2 ist ein Vorschlag ausgearbeitet, wie ein Filtrationsmodul aussehen könnte, bei dem diese Voraussetzungen gegeben sind.

6 Theoretische Überlegungen zur Wirkung von Ultraschall bei der Membranfiltration

Die experimentellen Arbeiten in Kapitel 5 geben eine Orientierung zu verschiedenen Möglichkeiten der Ultraschalleinkopplung zur Unterstützung der Membranfiltration. In diesem Kapitel werden auf Basis der experimentellen Erfahrungen theoretische Ansätze der ultraschallunterstützten Filtration diskutiert.

In den experimentellen Untersuchungen (Kap.5.1) hat sich sehr deutlich gezeigt, dass die Strategie einer ultraschallunterstützten Querstromfiltration in Bezug auf den Deckschichtaufbau und den Energieeinsatz ungünstig ist. Es kann keine dauerhafte Verbesserung des Fluxes erreicht werden. Aufgrund dieser experimentellen Erfahrungen liegt der Schwerpunkt dieses Kapitels bei den periodischen Reinigungsvorgängen, insbesondere dem ultraschallunterstützten Rückspülen. Zielstellung dabei ist, abzuschätzen, welcher Ultraschallmechanismus die Reinigung am wirkungsvollsten unterstützt und mit welchen Parametern sich dieser Mechanismus beeinflussen lässt. Aus diesen Erkenntnissen sollen dann Schlussfolgerungen für das Design eines neuen US-Membranmoduls gezogen werden (Kap. 7.2).

Nach einigen Vorüberlegungen zu den Vorgängen bei der Ablagerung von Deckschichten und der Reinigung von Oberflächen geht das Kapitel 6.1 auf die Auswirkung des Ultraschalls auf makroskopische Modellvorstellungen der Filtration ein. Anschließend werden die einzelnen Ultraschallmechanismen mit einfachen mikroskopischen Modellen in Hinblick auf ihr Potenzial geprüft, einen wichtigen Beitrag zur Oberflächenreinigung zu leisten.

Die hier angestellten Modellrechnungen können lediglich für eine Abschätzung und zum Vergleich einzelner Mechanismen dienen. Insbesondere bei den durch Blasen verursachten Mikroströmungen ist keine Triebkraft kontinuierlich vorhanden. Bei den für eine Berechnung angenommenen Szenarien handelt es sich jeweils um diskrete Momentaufnahme. Für deren Auftreten in einer vergleichbaren geometrischen Anordnung gibt es eine gewisse Wahrscheinlichkeit innerhalb eines längeren Beschallungszeitraums. Aufgrund der chaotischen Natur der Blasendynamik in Schallfeldern und den vielen Ungewissheiten in Bezug auf die Ultraschallmechanismen beschränkte man sich hier auf sehr einfache Ansätze. Es ist denkbar, dass sich mit stochastischen Methoden Ereigniswahrscheinlichkeiten und damit der Anteil abgelöster Partikel quantifizieren ließen. Hierzu sind dem Autor jedoch keine Arbeiten bekannt geworden.

Vorüberlegungen - Reinigen im Alltag

Alle Reinigungsprozesse gleichen sich in ihrer Zusammensetzung aus zwei Grundprozessen, dem Ablösen (Überwindung der Haftkräfte) und dem anschließenden Abtransport der Verunreinigung (siehe Bild 6-1). Aus der Alltagserfahrung lassen sich die Methoden der Temperaturerhöhung und Zudosierung von Detergenzien (lat. *detergere* »abwischen«) beim Waschen und Spülen als erfolgreiche Reinigungsmethode von verunreinigten Oberflächen identifizieren. Die Detergenzien verringern die Grenzflächenspannung zwischen der unerwünschten Ablagerung und dem Reinigungsfluid. Durch die verbesserte Dispergierbarkeit der abgelösten Partikel im Reinigungsfluid wird eine erneute Anhaftung verhindert.

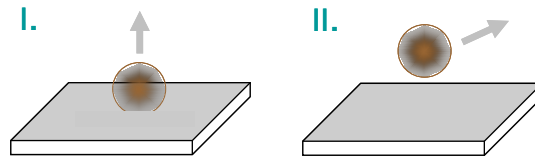


Bild 6-1: Phasen der Reinigung:

I. Ablösen

II. Abtransport

Der hier verfolgte Ansatz eine ultraschallbasierte Reinigungsmethode für Membranen zu untersuchen, zielt gerade darauf ab, ohne chemischen Zusatzstoffe auszukommen und so eine rein mechanische Reinigungsmethode zu nutzen.

Adhäsionsmodell

Das Modellsystem, wie es in Bild 6-2 dargestellt ist, setzt ein Modell für die Dispersions- und Adhäsionseigenschaften des Stoffsystems voraus. Hierfür wird mit der bekannten DLVO-Theorie von Deryargin, Landau (Deryaguin 1941) und Vervey, Overbeek (Verwey 1955) gearbeitet. Die zahlreichen, sehr viel detaillierteren Adhäsionsmodelle berücksichtigen zum Beispiel elastische Deformierbarkeit, komplexe Partikelformen und die Haftkräfte bei verbreiterter Kontaktfläche. Solche Modelle wären für eine genauere Quantifizierung des Ablösepotenzials sehr hilfreich. Eine gute Übersicht bietet Thomas (2004). Für das hier verfolgte Ziel einer vergleichenden Abschätzung der Reinigungspotenziale unterschiedlicher Ultraschallmechanismen ist es vor allem wichtig, für die Adhäsionskräfte von den gleichen Annahmen auszugehen. Die DLVO-Theorie konnte hierfür als geeignete Basis verwendet werden.

Für die Berechnung der Adhäsionskraft wird auf die Literatur verwiesen (Deryaguin 1941, Verwey 1955, Wiese 1970, Harmant 1998, Kaulitzky 1999, Altmann 2000). Die verwendeten Gleichungen und Parameter sind in Anhang 2 aufgeführt.

6.1 Literaturstudie zu makroskopischen Modellen der Filtration und die Möglichkeiten zur Einbindung von Ultraschalleffekten

In Kyllönen, Pirkonen et al. (2005b) wurden Berechnungsmodelle auf makroskopischer Ebene zur Vorhersage des Filtratstroms zusammengestellt, die auch in Verbindung von Filtration mit Ultraschall angewendet wurden. Sowohl das Stofftransportmodell als auch das Widerstandsmodell werden in verschiedenen Arbeiten zur Charakterisierung des Filtrationsprozesses unter Ultraschalleintrag verwendet.

Bei Anwendung des Widerstandsmodells, das auf das Gesetz einer durchströmten Schüttung von Darcy zurückgeht (Li 2002, Matsumoto 1996), lässt sich die positive Wirkung des Ultraschalls an verringerten Widerstandsbeiträgen der Polarisationsgrenzschicht und der Deckschicht erkennen. Zu den hydrodynamischen Effekten in der Kavitationszone an einer Sonotroden spitze gehören akustische Strömungseffekte, Mikroströmungen um oszillierende und kollabierende Blasen, sowie visko-inertiale Effekte. In der Zone treten hohe Geschwindigkeitsgradienten und damit

Wandschubspannungen auf, die zur Verbesserung der Durchmischung und des Stofftransportes beitragen und damit die Konzentrationspolarisation verringern.

Simon, Gondrexon et al. (2000a) hat gezeigt, dass sich die Fluxverbesserung durch Ultraschall auf den Widerstand der wiederablösbaren Deckschicht R_{DS} auswirkt. Der Membranwiderstand R_M und irreversibler Foulingwiderstand R_F werden nicht beeinflusst. Arbeiten von Tran, Gray et al. (2009) und Cai, Wang et al. (2007) bestätigen die nicht vorhandene oder negative Auswirkung der Beschallung während der Crossflow-Filtration aus Kapitel 5.1. Wijmans, Nakao et al. (2009) haben gezeigt, dass der Widerstandsbeitrag des irreversiblen Foulings R_F sich durch den Schalleintrag gegenüber einfachem Rühren erhöht. Die Vibrationen führen dazu, dass Partikel in sehr stabile Positionen »gerüttelt« werden können. Für das Reihenwiderstandsmodell (z.B. Wijmans 1985) kann aus der Messung des Reinwasserflusses der Membranwiderstand bestimmt werden.

$$\dot{V}_p = \frac{A_M \cdot \Delta p_{tm}}{\eta \cdot R_{tot}} \quad \text{mit} \quad R_{tot} = R_M + R_{DS} + R_F \quad \text{Glg. 6-1}$$

Die Messung des Durchflusses nach der Filtration gibt den Gesamtwiderstand R_{tot} an. Um die einzelnen Beiträge Membranwiderstand R_M , reversibler Deckschichtwiderstand R_{DS} irreversibler Foulingwiderstand R_F angeben zu können, muss in einem Zwischenschritt der Reinwasserfluss durch die von der Konzentrationsgrenzschicht und Deckschicht sauber gespülte Membran gemessen werden. Der Zwischenschritt zur Bestimmung von R_F und R_{DS} wurde in Kapitel 5.1 nicht durchgeführt.

Im Stofftransportmodell (z.B. Wijmans 1984) stellt der Stofftransportkoeffizient k den einzigen Parameter dar, durch den der Einfluss des Ultraschalls auf den Grenzflux $v_{p,kr}$ bei der Crossflow-Filtration berücksichtigt werden kann.

$$v_{p,kr} = k \cdot \ln \frac{C_{DS}}{C_\infty} \quad \text{Glg. 6-2}$$

Durch eine Erhöhung der Teilchenbeweglichkeit und ein »turbulentes« Strömungsregime verbessert sich sowohl der konvektive als auch der diffusive Stofftransport. Bei der Crossflow-Filtration bewirkt ein verbesserter diffusiver Rücktransport eine schwächer ausgeprägte Polarisationsgrenzschicht. Der Strömungszustand des Fluids in der Kavitationszone unter einer Sonotrode lässt sich als eine Art turbulente Zweiphasenströmung (Mettin 2005) beschreiben. Bei der Charakterisierung dieses Strömungszustands mit Hilfe einer allgemeingültigen dimensionslosen Kennzahl, wie der Reynoldszahl treten leider große Schwierigkeiten auf. Eine »ultraschallinduzierte Reynoldszahl« für die Strömung an akustischen Schwingersystemen ist aufgrund der verschiedenen Ausführungen und Geometrien von Ultraschallwandlern schwer festzulegen.

In der Kavitationszone sorgen akustische Strömungseffekte, Mikroströmungen um oszillierende Bläschen und kollabierende Kavitationsblasen für eine starke Durchmischung mit steilen Geschwindigkeitsgradienten und Wirbelströmen. In Analogie zu einer höheren Überströmgeschwindigkeit ist zu erwarten, dass sich durch so eine ultraschallinduzierte Strömungszone der Grenzflux $v_{p,kr}$ erhöht und sich damit der Übergang vom druckkontrollierten zum stoffübergangskontrollierten Bereich zu höheren Fluxwerten verschiebt (Muthukumar 2005a, Matsumoto 1996). Eine kleinere Geschwindigkeitsgrenzschicht und eine veränderte Reynoldszahl beeinflussen die Sherwoodzahl und damit den Diffusionskoeffizienten (Glg. 6-4).

Bei dem Modell zur Fluxvorhersage über den osmotischen Druck (vgl. Glg. 6-3), das in der Literatur häufig für die Crossflow-Ultrafiltration von Dextranen Verwendung findet (z.B. Wijmans 1985), kann der Ultraschalleintrag einerseits die Konzentration an der Grenzschicht und damit den osmotischen Druck beeinflussen, andererseits kann der Ultraschall an dem Parameter für den Filtrationswiderstand R_{tot} Veränderungen herbeiführen.

$$v_p = \frac{\Delta p_{tm} - \Delta \Pi}{\eta \cdot R_{tot}}$$

Glg. 6-3

Analoge Betrachtungsweise einer Dead-End-Filtration unterstützt durch Rühren und unterstützt durch Ultraschall

In Simon, Penpenic et al. (2000b) wurde eine Dead-End-Filtration mit einer Filternutsche vorgestellt, die in einem Fall durch Rühren (Rührzelle) und im anderen Fall durch Ultraschalleintrag (Stabsonotrode) unterstützt wurde. Hierbei wurde der Einfluss des Ultraschalls auf die Eigenschaften des Fluidsystems und auf die Membranpermeabilität vernachlässigt. Es wird davon ausgegangen, dass der Ultraschall lediglich die Hydrodynamik im System verändert. In dem Stofftransportmodell Glg. 6-4 wirkt sich die Beschallung unmittelbar auf die Reynoldszahl aus und damit indirekt auf den Stoffaustauschkoeffizienten k .

$$v_{p,kr} = k \cdot \ln \frac{c_{DS}}{c_\infty}$$

$$\text{mit } Sh = 0,87 \cdot Re^{0,47} Sc^{0,33}, \quad Sh = \frac{k \cdot r_R}{D}, \quad Re = \frac{\omega_{US} \cdot r_R^2}{\nu}, \quad Sc = \frac{\nu}{D} \quad \text{Glg. 6-4}$$

$$\text{und } \omega_{US} = \alpha \cdot P_{US}$$

In Glg. 6-4 ist ν die kinematische Viskosität, r_R der charakteristische Radius der Rührzelle, D der Diffusionskoeffizient, P_{US} der Leistungseintrag durch Ultraschall, $v_{p,kr}$ der Grenzflux, c_{DS} die Konzentration der Deckschicht und c_∞ die Konzentration in der Kernströmung. Sh , Re und Sc stehen für die dimensionslosen Kennzahlen Sherwood, Reynolds und Schmidt. Um eine analoge Betrachtung durchführen zu können, wurde eine Pseudorührerdrehzahl ω_{US} eingeführt. Der Koeffizient α ist experimentell zu 1,14 1/J bestimmt worden. Es wurde eine gute Übereinstimmung dieses Modells mit den Experimenten festgestellt. Ein Vorteil der Beschallung gegenüber der klassischen Rührzelle ist der geringere Anteil Widerstands der durch irreversibles Fouling verursacht wird (Simon 2000a). Die Analogie zur Rührzelle und die Einführung einer Pseudorührerdrehzahl stellt das einzige bekannt gewordene makroskopische Modell für die ultraschallunterstützte Filtration dar. In diesem Modell wird nicht zwischen den einzelnen Ultraschallmechanismen unterschieden, sondern deren gesamte Wirksamkeit bezüglich der induzierten hydrodynamischen Effekte betrachtet. Bei dem Ansatz wären die Gesetze der Ähnlichkeitslehre für eine Übertragung auf andere Dimensionen anwendbar. Allerdings bleibt zu klären, wie geometrische Parameter in dem Ansatz für die Pseudorührerdrehzahl bei einer Übertragung auf größere Membranflächen realisiert werden können.

6.2 Mikroskopische Modelle für verschiedene Ultraschallmechanismen in Kombination mit einem Modellansatz für die Querstromfiltration

Bei der akustischen Strömung, den visko-inertialen Effekten und der direkten Schwingungsanregung kann man von einer einigermaßen homogenen Verteilung der Phänomene über das ganze Schallfeld ausgehen. Diese Effekte lassen sich daher auf einer makroskopischen Modellebene diskutieren, wie in Kapitel 6.1 vorgestellt. Dies gilt auch für die spezielle Strömungszone unterhalb einer Sonotrode. Zur Klärung der ultraschallinduzierten Effekte mit Kavitationblasen bietet sich eine mikroskopische Betrachtung der Einzelpartikel an. Hierzu konnten in der Fachliteratur keine Veröffentlichungen gefunden werden. Im Folgenden werden einige Überlegungen zur Ablö-

sung von Einzelpartikeln vorgestellt. Sie sollen einen Vergleich der verschiedenen ultraschallinduzierter Mechanismen ermöglichen und klären, welche dieser Mechanismen für die Ablösung von Partikeln am wichtigsten ist.

Die Szenerie einer einzelnen, reinigenden Blase auf der Deckschichtoberfläche entspricht den Beobachtungen des Reinigungsvorgangs in Kapitel 5.1.2. Im Hinblick auf die Verfahrenskombination »ultraschallunterstütztes Rückspülen« ist die Analyse der Vorgänge an Einzelpartikeln von großem Interesse, da mit hydrodynamischen Reinigungsmethoden -Überspülen und Rückspülen- keine vollständige Reinigung erreicht werden kann. Die Unterstützung durch Ultraschall ist dann besonders interessant, wenn sie die kleinsten Einzelpartikel ablöst, die von allen anderen Maßnahmen nicht erfasst werden.

Hydrodynamische Kräfte am umströmten Einzelpartikel in Wandnähe

Das Modell von Altmann (2000) berücksichtigt die Kräfte auf Einzelpartikel bei der Querstromfiltration. Auf Basis dieses Modellansatzes werden im Folgenden die zusätzlichen Kräfte auf die Partikel durch die Wirkung des Ultraschalls betrachtet (Bild 6-2).

Die Auswirkungen der bereits bekannten hydrodynamischen Mechanismen in der Situation des ultraschallunterstützten Rückspülens sind:

- Die Liftkraft erzeugt durch den Pincheffekt,
- die Schleppkraft bei der Rückspülung,
- die Widerstandskraft bei der Überströmung, die ein Abrollmoment erzeugt,
- Rückdiffusion (bei sehr kleinen Partikeln).

Den hydrodynamischen Mechanismen sind ultraschallinduzierte Mechanismen überlagert:

- Vibration der Oberfläche,
- visko-inertiale Effekte,
- akustisches Strömen,
- Kavitation und Mikroströmungen an kollabierenden und oszillierenden Blasen.

In der Situation der Rückspülung wirken auf die Partikel eine Liftkraft F_L , eine Schleppkraft F_S und eine Widerstandskraft F_W , die zusammen die ablösenden Kräfte F_{ab} bilden. Die orthogonal von der Membranoberfläche weggerichtete Normalkraft setzt sich aus der Liftkraft F_L und der Schleppkraft F_S des Rückspülvolumenstroms zusammen. Wobei die Liftkraft auf dem Pinch-Effekt beruht, der durch das Strömungsprofil der Überströmung hervorgerufen wird. Aus dem tatsächlichen Angriffspunkt der Widerstandskraft und den Kontaktpunkten mit anderen Partikeln ergibt sich ein Hebelarm δ und ein Abrollmoment M_R , das zu den ablösenden Mechanismen gezählt werden kann. Die Reibungskraft auf der Oberfläche F_R und die Adhäsionskraft F_{Ad} bzw. Haftkräfte F_H verhindern ein Ablösen der Partikel. Zur Veranschaulichung der zusätzlichen Ultraschalleffekte sind in Bild 6-2 stellvertretend eine schwingende Membranoberfläche und eine oszillierende Blase angedeutet.

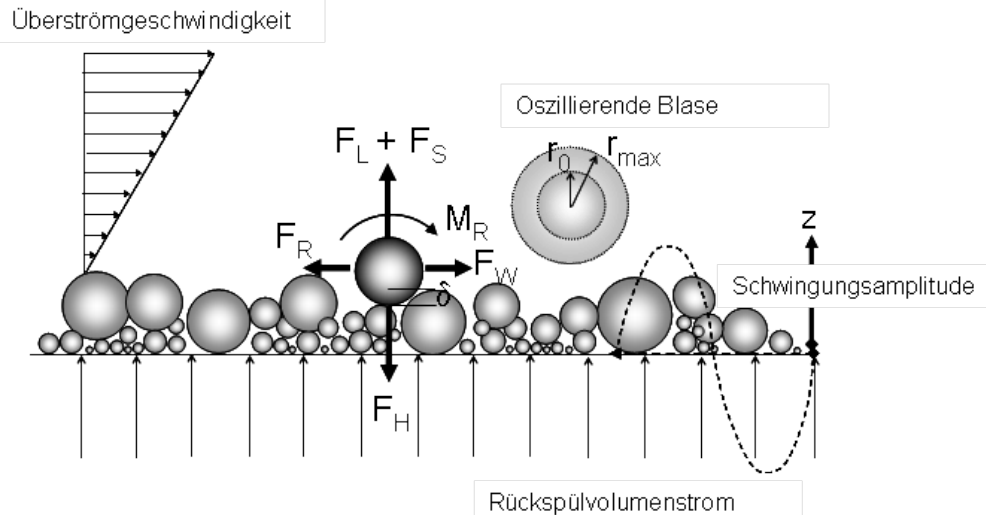


Bild 6-2: Schematische Darstellung der Modellvorstellung für die Anlagerung bzw. Ablösung einer Einzelpartikel in der Deckschicht unter Berücksichtigung zusätzlicher Ultraschalleffekte.

Für das Ablösen einer Partikel gilt, dass die Summe der ablösenden Kräfte größer als die Haftkräfte sein muss:

$$\sum_{ab} \vec{F}_{ab} > \sum_H \vec{F}_H$$

Glg. 6-5

Die Vorgänge des hydrodynamischen Abtransports (Phase II in Bild 6-1) unterscheiden sich von den bereits beschriebenen Transportvorgängen bei der Querstromfiltration lediglich in der Situation der Rückspülung durch die umgekehrte Durchströmung der Membran. Die Reinigungsvorgänge im Kapillarmembranmodul (Kap. 3.3) setzen sich alle aus mehreren Phasen zusammen. Die Phase der ultraschallunterstützten Rückspülung lässt sich im Wesentlichen dem Grundprozess der Ablösung zuordnen (Phase I in Bild 6-1). Hauptaufgabe von Überströmungs- und normaler Rückspülphase ist der Abtransport bereits gelöster Partikel. Die Klassiereffekte der Querstromfiltration (Altmann 2000) und die charakteristischen Partikelbahnen (Panglisch 2001) in Abhängigkeit der Partikelgröße bei inside-out-betriebenen Kapillaren spielen für die Reinigung insofern eine Rolle, da diese Effekte über die Deckschichtzusammensetzung entscheiden. Je nach Beschaffenheit der Deckschicht kann sich diese in größeren zusammenhängenden Plättchen, als Gelschicht oder in Form von Einzelpartikeln lösen. Da die hydrodynamischen Transportvorgänge an verschiedenen Membrangeometrien bekannt sind, sollen sich die Überlegungen hier auf die zusätzlichen, durch Ultraschall induzierten Ablösemechanismen beschränken.

6.2.1 Akustisches Strömen

Das akustische Strömen ist auf die intrinsische Absorption der Schallwelle in der homogenen Phase zurückzuführen. Durch den Impulsaustausch zwischen den Wassermolekülen entsteht eine gerichtete Strömung. Diesem so genannten Quarzwind oder Eckarttyp der Strömung werden in der Literatur (Busnaina 2002) besonders steile Geschwindigkeitsgradienten zugeschrieben. Diese könnten eine verbesserte Anströmung sehr kleiner Partikel bewirken und so die durch

den Pinch-Effekt entstehende Liftkraft auf sehr kleine Partikel erhöhen. Die Folge wäre, dass für eine ultraschallunterstützte Crossflow-Filtration, bei der ein deutlicher Anteil der Querströmung durch die akustische Strömung realisiert wird, deutlich höhere Durchflusswerte zu erwarten wären.

Die intrinsische Dämpfung ist frequenzabhängig. Bei Frequenzen im Megahertzbereich sind sehr hohe akustische Strömungseffekte zu beobachten. Zur Überprüfung dieser These wurden die Experimente in Kapitel 5.2.1 mit einem Megaschalltauschwinger bei Vakuumfiltration durchgeführt. Die Ergebnisse konnten die These nicht bestätigen. Die Kombination aus Megaschalleinwirkung und Rückspülen weisen gute Reinigungseffekte auf. Ein Hinweis auf ein steileres Geschwindigkeitsprofil und eine Verbesserung des Pinch-Effektes konnten nicht gefunden werden. Bei dem Vorschlag zur Berechnung der Liftkraft an frei beweglichen Partikeln von Otto, Nowak et al. (1993) würde eine höhere Strömungsgeschwindigkeit im wandnahen Bereich in Form einer höheren Schubspannung in der laminaren Strömungsgrenzschicht einfließen. Es könnten sich deutlich höhere Liftkräfte einstellen. Es bleibt jedoch zu prüfen, ob die Berechnung der Wandschubspannung für die laminare Unterschicht bei der akustischen Strömung zulässig ist.

In den Experimenten (Kap. 5.2.1) konnte nur eine geringe Strömungswirkung durch den Schallwandler beobachtet werden, durch die der Deckschichtaufbau nicht verhindert wurde. Aktuelle Forschungsergebnisse gehen eher davon aus, dass die Erfolge bei der Feinstreinigung von nanostrukturierten Bauteilen und Waferoberflächen auf eine sanfte Kavitationswirkung zurückzuführen sind (Otto 2008, Kim 2009) (vgl. Bild 2-3). Da besonders steile Geschwindigkeitsgradienten und hohe Strömungsgeschwindigkeiten in Wandnähe experimentell nicht bestätigt werden konnten, wird auf eine Nachrechnung dieser Modelle verzichtet.

Ein praktisches Problem bei der Arbeit mit Frequenzen im Megaschallbereich ist die gute Absorption in Kunststoffen, so dass es zur thermischen Schädigung von Testzellenteilen und Spacermaterialien kam.

6.2.2 Partikelablösung durch die Vibration der Membranoberfläche

Die direkte Schwingungsanregung der Oberfläche kann als eine konsequente Fortsetzung des Prinzips der hochfrequenten Rückspülung angesehen werden. Bei der Mikrofiltration lassen sich mit moderaten Druckpulsen von der Filtratseite gute Fluxsteigerungen erreichen. Bei einer feinporigen Mikrofiltration und der Ultrafiltration sind deutlich höhere Druckpulse notwendig, um eine Fluidisierung der Polarisationsgrenzschicht zu erreichen. Eine Realisierung wird sehr material- und kostenaufwändig. Durch die direkte Schwingungsanregung der Membranoberfläche kann ohne die hohen Druckstöße der Rückspülung eine Relativbewegung zwischen Membran und dem Fluid erreicht werden. Die aufgenommenen Schwingungsmuster zeigen, dass große Flächen durch diese Methode in Schwingung versetzt werden könnten (vgl. Kap. 4.3.2). Eine makroskopische Betrachtung dieses Vorgangs wäre daher berechtigt. Das Potenzial der Methode wird zur besseren Vergleichbarkeit für die Einzelblase abgeschätzt.

In Abhängigkeit vom Membranmaterial und der Anregungsmethode ist eine mehr oder weniger starke Schwingung der Membran im Ultraschallfeld zu erwarten. Die Versuche in Kapitel 5.1.4 haben gezeigt, dass für die direkte Körperschallanregung entscheidend ist, dass es sich um ein starres, schwingungsfähiges Membranmaterial handeln muss (Keramik, Metall), damit eine große Fläche zu hochfrequenten Schwingungen angeregt werden kann. Diese Bewegung bewirkt für anhaftende Partikel alternierende Trägheitskräfte, die abwechselnd die Partikel anpressen

oder wegschleudern. In Kapitel 4.3.2 wurde die Ausbildung claudischer Schwingungsmuster gezeigt mit losen trockenen Sandpartikeln, die sich an den Stellen geringerer Schwingungsamplituden sammeln. Bild 6-3 zeigt eine vereinfachte Modellvorstellung für die Einzelpartikel auf einer schwingenden Membran bei einer eindimensionalen Auslenkung der Membran in z-Richtung.

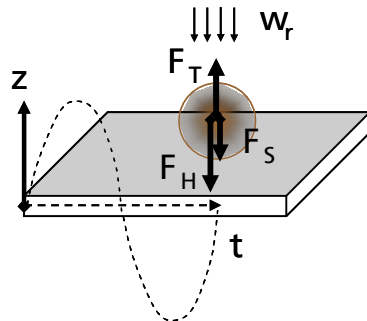


Bild 6-3: Schwingende Membran mit anhaftender Partikel

Zusätzlich zur Trägheitskraft wirkt auch die Schleppkraft der alternierenden, relativen Anströmgeschwindigkeit w_r des Fluids. Für die Bedingung der Partikelablösung ist die Summe aller ablösenden Kräfte zu berücksichtigen (Glg. 6-5). Die ablösende Schleppkraft, die während der Zugphase der Schwingung (negative z-Richtung) aufgrund einer relativen Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung auftritt, kann nur sehr gering sein. Die Membran verhindert einen freien Zufluss in den Zwischenraum zwischen Partikel und Membran.

Aus der Formulierung der Schwingungsgleichung für Auslenkung, Bewegungsgeschwindigkeit und Beschleunigung lässt sich der Betrag der maximalen Trägheitskraft formulieren.

$$s(t) = A_{US} \cdot \sin(\omega_{US} \cdot t)$$

$$v(t) = \dot{s}(t) = A_{US} \cdot \omega_{US} \cdot \cos(\omega_{US} \cdot t) \quad \text{Glg. 6-6}$$

$$a(t) = \ddot{s}(t) = -A_{US} \cdot \omega_{US}^2 \cdot \sin(\omega_{US} \cdot t)$$

$$F_{T,max} = A_{US} \cdot \omega_{US}^2 \cdot m_p \quad \text{Glg. 6-7}$$

Die maximale Geschwindigkeit und die maximale Beschleunigung treten um ein Viertel der Schwingungsdauer zeitlich verzögert auf (Bild 6-4). Die Geschwindigkeit in Glg. 6-6 und Bild 6-4 entspricht der Geschwindigkeit der schwingenden Oberfläche. Die relative Strömungsgeschwindigkeit des Fluids ist dieser entgegengesetzt. So kommt es im Bereich nach dem oberen Umkehrpunkt (grau hinterlegter Bereich in Bild 6-4) zur Addition von ablösender Schleppkraft verursacht durch eine relative Strömungsgeschwindigkeit in z-Richtung und ablösende Trägheitskraft. Da, wie oben begründet, für diese Anströmung der Partikel und damit für die Schleppkraft in z-Richtung aufgrund der eingeschränkten Zufluss von der Seite der Membran her nur sehr kleine Werte zu erwarten sind, kann für eine Abschätzung als größte ablösende Kraft die Schleppkraft vernachlässigt werden und nur die maximale Trägheitskraft (Glg. 6-7) angenommen werden.

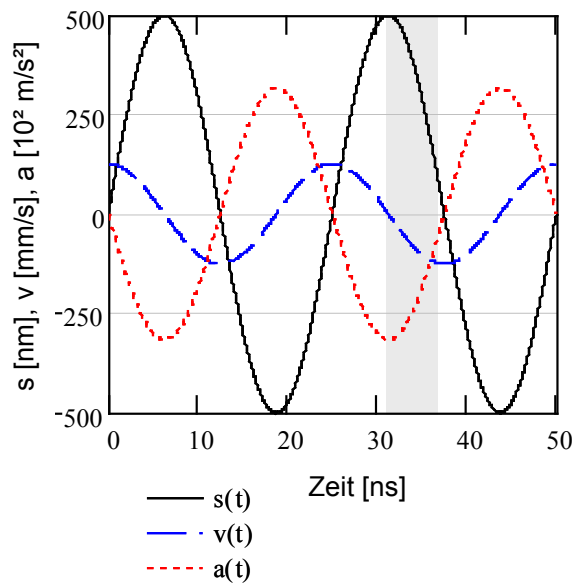


Bild 6-4: Schwingungsamplitude, Geschwindigkeit und Beschleunigung für $A_0=500$ nm und $f_{US}=40$ kHz.

Zur Darstellung der Ablösebedingungen bei der schwingungstechnischen Anregung der Oberfläche (Bild 6-5) wird das Verhältnis von Trägheitskraft aufgrund der Beschleunigung durch die Membranoberfläche und Adhäsionskraft gebildet (Glg. 6-8).

$$\alpha_{\text{Vibration}} = \frac{F_T}{F_{\text{Ad}}} \quad \begin{array}{l} \text{für } \alpha_{\text{Vibration}} > 1 \text{ Abschleudern der Partikel} \\ \text{für } \alpha_{\text{Vibration}} < 1 \text{ Haften der Partikel} \end{array} \quad \text{Glg. 6-8}$$

In Bild 6-5 werden für eine Parametervariation Schwingungsamplituden der Oberflächen und zugehörige Frequenzen gewählt (Tabelle 6-1). Der Wert bei einer Beschallung von 40 kHz und einer Amplitude von 0,5 μm entspricht der vibrometrischen Messung des Schallwandlersystems mit direkter Körperschallanregung (Kap. 4.3.2).

Tabelle 6-1: Ultraschallparameter für die schwingungstechnische Anregung der Membranoberfläche

Frequenz f_{US} [kHz]	Amplitude A_{US} [nm]	Intensität I_{US} [W/m ²]
40	10	5
130	10	50
20	1000	$1,17 \times 10^4$
40	500	$1,17 \times 10^4$

Bei der Beschleunigung der Partikel durch die schwingende Membranoberfläche geht die Kreisfrequenz quadratisch ein (Glg. 6-6). Darum lassen sich bei der gleichen Beschallungsintensität mit höheren Frequenzen kleinere Partikel ablösen.

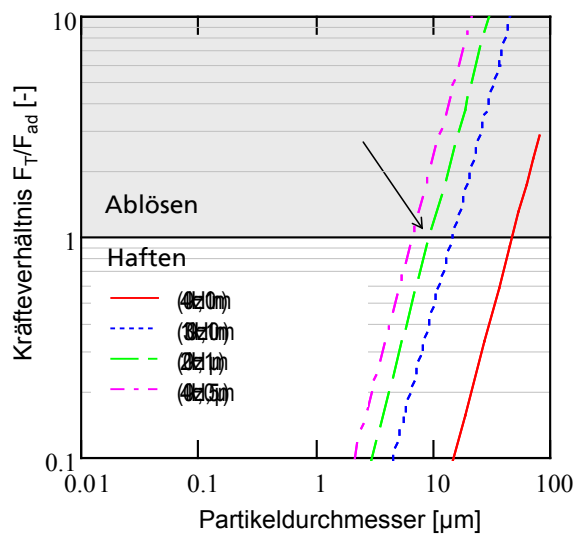


Bild 6-5: Ablösebedingung durch die Vibration der Membranoberfläche bei unterschiedlichen Beschallungssituationen.
 Parameter zur Berechnung der Haftkraft, sowie für die Partikel- und Fluideigenschaften sind in Anhang 2 - Adhäsionmodell DLVO-Theorie aufgeführt.

Das einfache Modell bestätigt die experimentellen Erfahrungen aus Kapitel 5.1.3, nach denen bei einer guten schwingungstechnischen Anregung die Deckschicht abgelöst werden kann. Um mit der Methode der Oberflächenschwingung auch die kleinste Partikelfraktion abzulösen, sind über die ganze Oberfläche der Membran möglichst hohe Frequenzen und Amplituden zu realisieren. Allerdings wäre für das Ablösen einer Partikel von 50 nm Durchmesser und einer Frequenz von 1 MHz, bei der noch eine akzeptable Reichweite der Schwingung im Material vorstellbar ist, eine Amplitude von 14 μm benötigt. Schwingungsamplituden dieser Größenordnung sind bei Frequenzen im MHz-Bereich mit bekannten Membranmaterialien nicht realisierbar. Die Partikelfraktion im Nanometerbereich lagert sich also trotz schwingungstechnischer Anregung der Membran ab und bildet eine Deckschicht aus. Der Effekt, dass eine Belegung der Membran durch die direkte Körperschallanregung nicht dauerhaft verhindert werden kann, entspricht auch den Erfahrungen aus den Experimenten (Kap. 5.1.3).

6.2.3 Blasenoszillation und resultierende Mikroströmungen

Mit einem sehr einfachen Modell soll abgeschätzt werden, welchen Einfluss oszillierende Blasen auf die Ablösung von Partikeln haben können. Bei den Experimenten in Kapitel 5.1.2 konnte deutlich gezeigt werden, dass gut sichtbare Bläschen, die über die Oberfläche wandern, eine starke Reinigungswirkung haben. Bei der vereinfachten Betrachtung einer einzelnen Partikel und einer daneben angeordneten, oszillierenden Blase (vgl. Bild 6-6) wird deutlich, dass die resultierende Anströmung der Partikel von vielen Faktoren abhängt. In dem skizzierten Szenario sind Feststoffpartikel und Blase etwa gleich groß ($d_p \cong d_{bn}$). Für ein denkbare Szenario, bei der die Blase deutlich kleiner als die Partikel ist, sind ungünstigere Verhältnisse der Anströmung und den Ablösemechanismen zu erwarten. Je größer die Blase im Verhältnis zur Partikel, umso günstiger wird das zu erwartende Strömungsprofil für eine ablösende Wirkung auf die Partikel. Letztlich ist das angenommene Szenario entscheidend für die ablösende Wirkung.

Für die Abschätzung der Wirksamkeit dieses Mechanismus wird ein Szenario angenommen, bei dem die Blase direkt auf der Membranoberfläche aufliegt. Wie im Kapitel 2.3.2 diskutiert, wird durch die Oberfläche ein radialsymmetrisches Oszillieren der Blase verhindert, da die Flüssigkeit von der Seite der Membran nicht ungehindert nachströmen kann. Da die Richtung eines sich ausbildenden Flüssigkeitsstrahls (Kavitationsjet) aufgrund des asymmetrischen Blasenkollapses für den Fall der mit einer Deckschicht belegten Membran noch ungeklärt ist, wird dieser Fall für die Abschätzung zunächst nicht betrachtet. Je nach Abstand und Größenverhältnissen sowie der Oberflächenbeschaffenheit kann sich ein Jet in Richtung der Partikel, in Richtung der Membranoberfläche oder jeweils in entgegengesetzter Richtung ausbilden (vgl. Kap. 2.3.2).

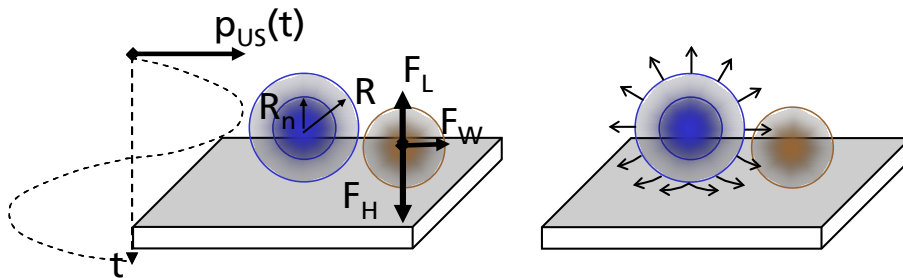


Bild 6-6: Oszillierende Blase und resultierende Mikroströmung.

Anheben der Partikel aufgrund der Mikroströmung

Für die Abschätzung der Reinigungswirkung wird die Liftkraft auf eine angeströmte, fest anhaftende Partikel nach Rubin (1977) und Saffman (1968) berechnet:

$$F_L = 0,808 \cdot \frac{\tau_w^{1,5} \cdot d_p^3 \cdot \rho_{liq}^{0,5}}{\eta} \quad \text{Glg. 6-9}$$

mit $\tau_w = \eta \cdot \left(\frac{dv}{dy} \right)_{y=0} = \frac{6 \cdot \eta \cdot \bar{v}}{h}$

In Glg. 6-9 wird bei der Berechnung der Wandschubspannung τ_w von laminaren Strömungsbedingungen in einem Kanal ausgegangen. Entscheidend sind nun die Annahmen, die für die Geschwindigkeit und die Höhe des Strömungskanals angenommen werden. An der Wand gilt die Haftbedingung und die maximale Strömungsgeschwindigkeit ist etwa im Abstand des Ruheradius der Blase erreicht. Für die Höhe des Strömungskanals wurde für diese spezielle Form einer Mikroströmung vereinfachend der maximale Blasenradius R_{max} angenommen. Aus dem laminaren Strömungsprofil in einem Kanal mit der Höhe $2 R_{max}$ und einer maximal auftretenden Geschwindigkeit in der Mitte des Kanals bei $y = R_{max}$ ergibt sich für die mittlere Geschwindigkeit in dem angenommenen Strömungskanal:

$$\bar{v} = \frac{2}{3} v_{max} \quad \text{Glg. 6-10}$$

Eine einfache Annahme für die maximal auftretende Geschwindigkeit der Mikroströmung ist die Geschwindigkeit mit der die Blase die Flüssigkeit verdrängt. Bei einer radialsymmetrischen Ausdehnung muss dabei beachtet werden, dass die Änderungsgeschwindigkeit des Blasenradius in der Flüssigkeit um die Blase herum quadratisch mit dem Radius abnimmt. Eine wirkungsvolle

Mikroströmung aufgrund der Blasenoszillation ist somit nur in unmittelbarer Nähe der Blase zu erwarten.

Eine Möglichkeit, die Blasendynamik einer radial pulsierenden Einzelblase zu berechnen, wurde in Kapitel 2.3.1 mit dem Keller-Miksis-Modell (Glg. 2-2) vorgestellt. Bild 6-7 zeigt für verschiedene Ruheradien die zu erwartende Blasenschwingung bei der Beschallung mit der Schwingerplatte bei 35 kHz. Die zugehörige Schalldruckmessung mit dem faseroptischen Sondenhydrophon (Bild 4-35) ergab eine Schalldruckamplitude von 2 - 4 bar. Für eine konservative Abschätzung wird in der Rechnung von 2 bar Schalldruckamplitude ausgegangen. Für die Nachrechnung der Oszillationsbewegung der Bläschen, die in Bild 5-7 und Bild 5-8 über die Membran wandern und gereinigte Spuren hinterlassen, mussten deren Ruheradien festgelegt werden. Mit dem Auge lassen sich die reinigenden Blasen gut erkennen. Der Durchmesser dieser während der Beschallung gut sichtbaren Blasen liegt etwa bei 0,5 mm. Ihr Ruheradius kann deutlich kleiner sein. Da sich die beobachteten Bläschen unterscheiden und ihr Ruheradius schwer zu bestimmen ist, wurde die Rechnung für drei verschiedene, relativ große Ruheradien durchgeführt (50 μm , 100 μm und 200 μm).

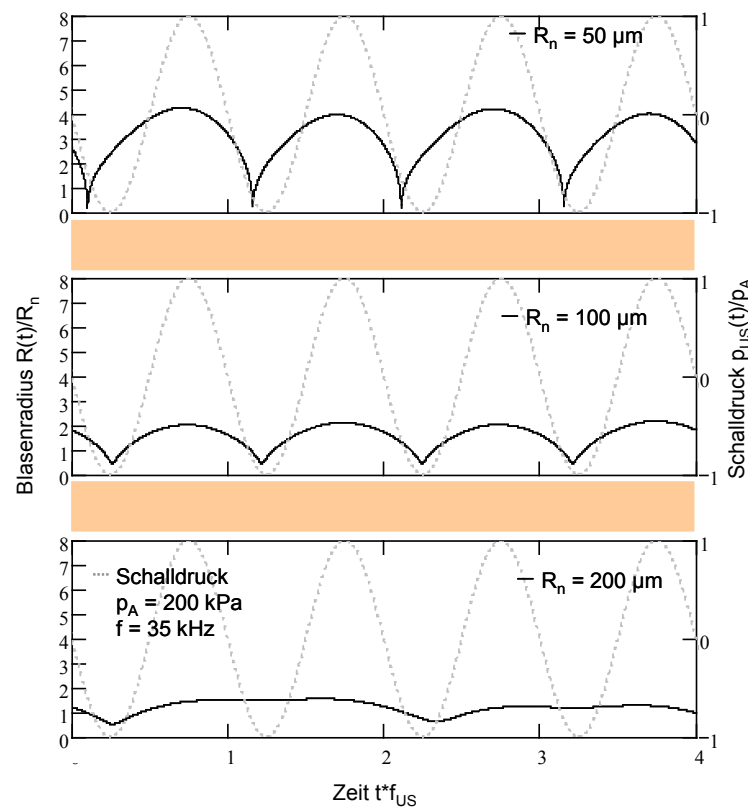


Bild 6-7: Radialsymmetrische Blasenoszillation gemäß der Schalldruckmessung in Bild 4-35 und den Parametern für das Keller-Miksis-Modell in Tabelle 6-2. Offener Behälter mit Schwingerplatte bei einer Anregungsfrequenz $f_{US} = 35 \text{ kHz}$.

Während Blasen mit einem Ruheradius von 50 μm noch sehr deutliche Schwingungen ausführen, wobei der vierfache Ruheradius erreicht wird, verhält sich eine Blase mit 200 μm Ruheradius sehr viel träger und schwingt kaum noch auf. Es zeigt sich, dass ausgehend von unterschiedlichen Ruheradien der maximale Blasendurchmesser für alle drei Ruheradien bei Beschallung bei etwa 400 μm liegt.

Tabelle 6-2: Parameter für die Darstellung der Blasendynamik nach dem Keller-Miksis-Modell Glg. 2-2.

Ruheradien	R_n	50, 100, 200 μm
Umgebungsdruck	p_{stat}	10^5 Pa
Sättigungsdampfdruck bei 20°C	p_v	$2,34 \times 10^3$ Pa
Oberflächenspannung	σ	$72,75 \times 10^{-3}$ N/m
Fluidichte	ρ_{liq}	998 kg/m ³
Schallgeschwindigkeit im Fluid	c_{liq}	1480 m/s
Isentropenkoeffizient	κ	5/3
dyn. Viskosität der Flüssigkeit	η	10^{-3} Pa s
Schalldruckamplitude	p_A	2×10^5 Pa
Anregungsfrequenz	f_{US}	35 kHz und 130 kHz

Keller-Miksis-Modell:

$$\left(1 - \frac{\dot{R}}{c_{\text{liq}}}\right) R \ddot{R} + \frac{3}{2} \left(1 - \frac{\dot{R}}{3c_{\text{liq}}}\right) \dot{R}^2 = \left(1 + \frac{\dot{R}}{c_{\text{liq}}}\right) \frac{\Delta p_B}{\rho_{\text{liq}}} + \frac{R}{\rho_{\text{liq}} c_{\text{liq}}} \frac{d\Delta p_B}{dt}$$

Glg. 2-2

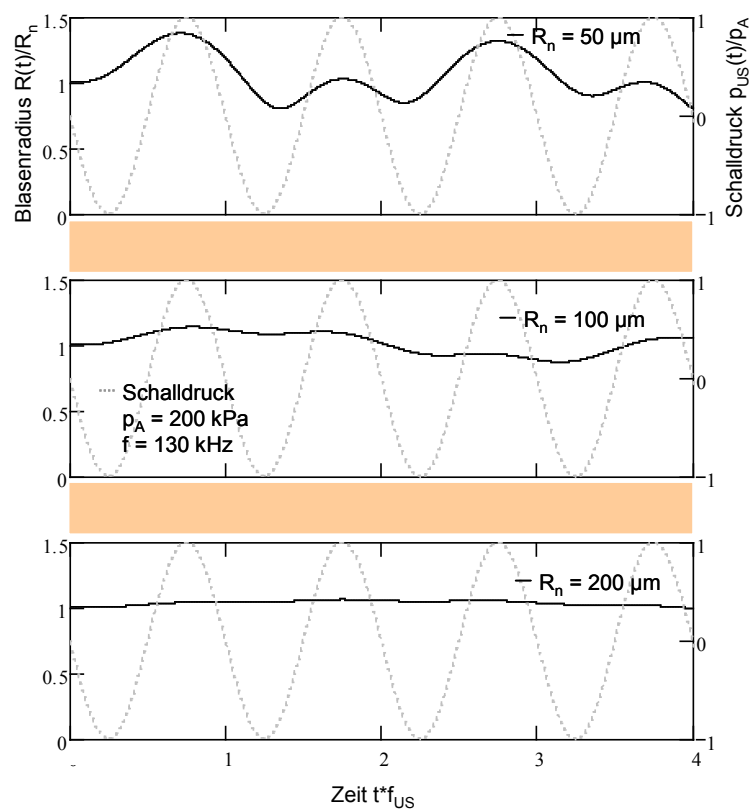


Bild 6-8: Radialsymmetrische Blasenoszillation gemäß der Schalldruckmessung in Bild 4-35 und den Parametern für das Keller-Miksis-Modell in Tabelle 6-2. Offener Behälter mit Schwingerplatte bei $f_{US} = 130$ kHz.

Zur Nachrechnung der zu erwartenden Blasendynamik in dem verwendeten Kapillarmembranmodul mit einem zur Schwingung angeregtem Hüllrohr wurde die Beschallung bei 40 kHz mit dem UIW 800 spec verwendet (Kap. 4.3.2). Für die Kombination aus Ultraschallgerät UIW 800 spec und dem Edelstahlhüllrohr liegen keine Schalldruckmessungen mit dem faseroptischen Sondenhydrophon im Inneren der Kapillaren und im Permeatraum vor. Diese Messungen konnten nur für das Schwingungssystem Ultraschallgerät UIP 1000 (20 kHz) und dem Edelstahlrohr durchgeführt werden (Kap. 4.4.2). Es sollen Werte für eine konservative Abschätzung der Reinigungswirksamkeit verwendet werden. Kapitel 2.3.1 hat gezeigt, dass sich die Blasen-schwingung bei höheren Frequenzen abschwächt. Daher kann bei einer Nachrechnung mit 40 kHz und einem Wert für den vermessenen Schalldruck von 10 bar (Kap. 4.4.2) von einer konservativen Abschätzung ausgegangen werden. Die Nachrechnung für die höhere Frequenz von 40 kHz ist auch deshalb besonders interessant, da bei Verwendung dieses Schallwandlers keine Schäden an der Membran beobachtet wurden (Kap. 5.4.3 und 5.4.4).

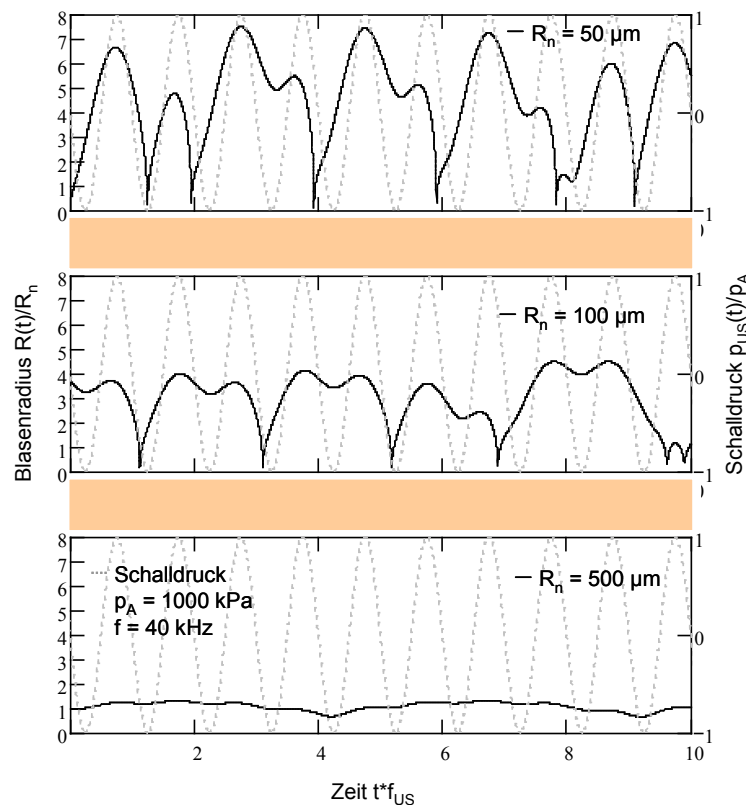


Bild 6-9: Radialsymmetrische Blasenoszillation gemäß der Beschallungssituation in Kap. 5.4.3 und 5.4.4 und den Parametern für das Keller-Miksis-Modell in Tabelle 6-3. Zu erwartende Blasendynamik auf der Feedseite während des ultraschallunterstützten Rückspülens bei Verwendung des Ultraschallwandlers UIW 800 spec, Anregungsfrequenz $f_{US} = 40$ kHz und einem Überdruck von 0,2 bar.

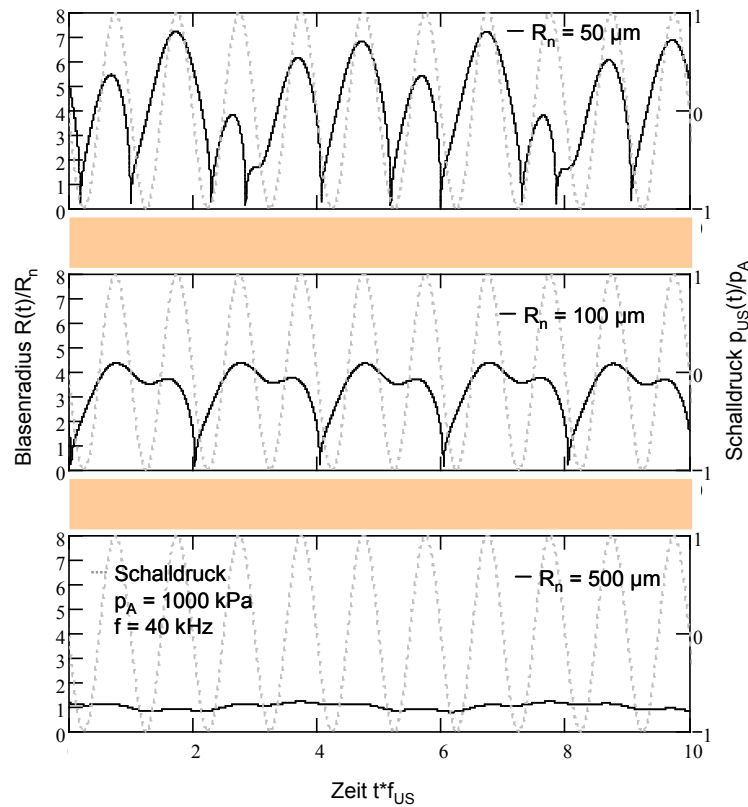


Bild 6-10: Radialsymmetrische Blasenoszillation gemäß der Beschallungssituation in Kap. 5.4.3 und 5.4.4 und den Parametern für das Keller-Miksis-Modell in Tabelle 6-3. Zu erwartende Blasendynamik auf der Permeatseite während des ultraschallunterstützten Rückspülens bei Verwendung des Ultraschallwandlers UIW 800 spec, Anregungsfrequenz $f_{US} = 40$ kHz und einem Überdruck von 1,8 bar.

Tabelle 6-3: Veränderte Parameter für die Darstellung der Blasendynamik im Kapillarmodul gegenüber Tabelle 6-2.

Ruheradien	R_n	50, 100, 500 μm
Umgebungsdruck	p_{stat}	$0,2 \times 10^5$ Pa; $1,8 \times 10^5$ Pa
Schalldruckamplitude	p_A	10×10^5 Pa
Anregungsfrequenz	f_{US}	40 kHz

Auf Basis der Blasendynamik in den Bild 6-8 bis Bild 6-10 wird die maximale Geschwindigkeit der Radiusveränderung v_{max} ermittelt. Es ist offensichtlich, dass die größten Geschwindigkeiten beim Kollaps der Blasen und dem anschließenden Aufschwingen auftreten (vgl. Anhang 3). Diese Geschwindigkeiten treten nur sehr kurzzeitig auf und haben eine kurze Reichweite. Es ist daher für eine konservative Abschätzung des Potenzials für das Ablösen von Partikeln nicht ratsam mit den rechnerisch ermittelten Maximalwerten der Geschwindigkeit zu arbeiten. Stattdessen wird die maximale Geschwindigkeit gemäß Glg. 6-6 als Produkt aus maximaler Blasenausdehnung R_{max} und ω gebildet. Damit wird unabhängig von der tatsächlichen Periodizität der Blasen-schwingungen ein sinusförmiger Verlauf angenommen. Aus der Berechnung der Blasendy-

namik geht somit lediglich das Vielfache z des Ruheradiuses, der am Punkt der maximalen Ausdehnung erreicht wird, in die Berechnung der maximalen Geschwindigkeit ein.

$$v_{\max} = z \cdot R_n \cdot \omega_{US}$$

$$\text{mit } z = \frac{R_{\max}}{R_n} \quad \text{und} \quad \omega_{US} = 2 \cdot \pi \cdot f_{US}$$

Glg. 6-11

Die Ermittlung der maximalen Geschwindigkeit der Veränderung des Blasenradius mit der Annahme eines sinusförmigen Verlaufs kann damit interpretiert werden, dass vor allem die etwas langsamere Ausdehnungsphase der Blase für das Ablösemodell verwendet wird. Der häufig abrupte Kollaps (z.B. Bild 2-3), für den die Strömungsverhältnisse noch wesentlich komplexer als für die Ausdehnungsphase sind, wird somit für dieses stark vereinfachte Modell der Ablösung nicht berücksichtigt. In der Kollapsphase lässt sich durch die Asymmetrie und auftretende Jetströmungen die tatsächliche Anströmung der benachbarten Partikel wesentlich schwieriger beschreiben.

Mit Hilfe des Kräfteverhältnisses von Liftkraft zu Adhäsionskraft lässt sich die Bedingung der Ablösung für verschiedene Parameter analysieren und darstellen.

$$\alpha_{\text{Anheben}} = \frac{F_L}{F_{Ad}}$$

für $\alpha_{\text{Anheben}} > 1$ Anheben der Partikel

Glg. 6-12

für $\alpha_{\text{Anheben}} < 1$ Haften der Partikel

Abrollen der Partikel aufgrund der Mikroströmung

Basis für die Berechnung der Liftkraft ist die Kenntnis eines Strömungsprofils. Hier wurden für die Anströmung der Partikel sehr starke Vereinfachungen getroffen. Es ist schwer einzuschätzen, ob das Ersatzmodell eines laminar durchströmten Kanals eine zulässige Vereinfachung darstellt.

Ebenso wie ein Abheben der Partikel aufgrund der Liftkraft ist ein Abrollen aufgrund der Reibungskräfte denkbar. Auch für dieses zweite Ablösemodell werden starke Vereinfachungen getroffen. Basis ist wieder die Annahme einer laminaren Strömung in einem Kanal mit der Höhe $2 R_{\max}$. Die maximale Geschwindigkeit ergibt sich aus der Blasenoscillation. Aus dem laminaren Strömungsprofil (Glg. 6-14) ergibt sich die mittlere Strömungsgeschwindigkeit von $2/3$ der Maximalgeschwindigkeit (Glg. 6-10). Für die Schleppkraft aufgrund der Mikroströmung wird der Ansatz von Rubin (1977) für eine an der Wand anhaftende, ruhende Partikel genutzt:

$$F_w = 6,325 \cdot \pi \cdot v \left(\frac{d_p}{2} \right) \cdot \eta \cdot d_p$$

Glg. 6-13

$$\text{mit } v(y) = 6 \cdot \bar{v} \cdot \left(\frac{y}{2 \cdot R_{\max}} - \frac{y^2}{(2 \cdot R_{\max})^2} \right)$$

Glg. 6-14

Altmann (2000) hat mit den Geometrieverhältnissen von monodispersen, kugelförmigen Partikeln, die in der dichtesten Kugelpackung angeordnet sind, unter Berücksichtigung des Kippmoments einer abrollenden Partikel eine resultierende Kraft bestimmt.

$$F_{\text{res}} = 0,829 \cdot F_w - 0,577 \cdot F_N - 0,816 \cdot \sqrt{3} \cdot F_{Ad}$$

Glg. 6-15

Im Fall ohne einer orthogonalen Durchströmung der Membran (Rückspülung oder Filtration) verschwindet die zusätzliche Normalkraft F_N in Glg. 6-15. Ist diese resultierende Kraft größer Null, beginnt die Partikel zu rollen. Mit der Widerstandskraft nach Rubin (Glg. 6-13) und den Abrollbedingungen von Altmann (Glg. 6-15) lässt sich eine weitere Ablösebedingung (Glg. 6-16) formulieren.

$$\alpha_{\text{Abrollen}} = \frac{0,829 \cdot F_W}{0,816 \cdot \sqrt{3} \cdot F_{Ad}} \quad \text{für } \alpha_{\text{Abrollen}} > 1 \text{ Anheben der Partikel} \quad \text{Glg. 6-16}$$

$$\text{für } \alpha_{\text{Abrollen}} < 1 \text{ Haften der Partikel}$$

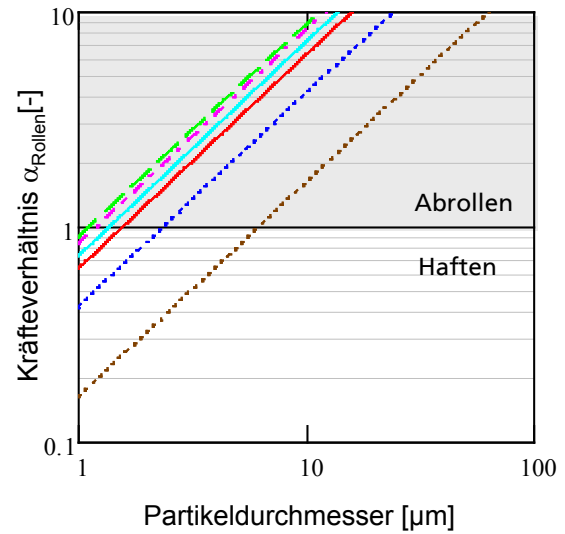
Aus den Berechnungen der Blasendynamik lassen sich die maximalen Blasenausdehnungen für die betrachteten Fälle in den Versuchsanlagen ablesen (vgl. Tabelle 6-4) und die bezogene maximale Ausdehnung z berechnen. Diese aus den Grafiken der Blasendynamik ausgelesenen Werte in Tabelle 6-4 werden zur Berechnung der maximalen Geschwindigkeit mit der die Blase das umliegende Wasservolumen verdrängt verwendet.

Tabelle 6-4: Maximalwerte des Blasenradiuses als Vielfache z des Ruheradiuses R_n für die ausgewählten Beschallungssituationen aus den Bild 6-7 bis Bild 6-10.

Ultraschallsystem	Frequenz f_{US} [kHz]	Überdruck p_{stat} [bar]	Schalldruck p_{US} [bar]	Ruheradius R_n [μm]	z [-]
Schwingerplatte	35	-	2	50	4
				100	2
				200	1,5
	130			50	1,4
				100	1,2
				200	1,1
Kapillarmodul mit 40 kHz US-Wandler - Permeatvolumen	40	0,2	10	50	7
				100	4
				500	1,2
Kapillarmodul mit 40 kHz US-Wandler - Feedvolumen	40	1,8	10	50	7
				100	4
				500	1,2

a)

—	$z = 4$	$R_n = 50 \mu\text{m}$	$f_{US} = 35 \text{ kHz}$
- - -	$z = 2$	$R_n = 100 \mu\text{m}$	$f_{US} = 35 \text{ kHz}$
- · - ·	$z = 1,5$	$R_n = 50 \mu\text{m}$	$f_{US} = 130 \text{ kHz}$
- · - ·	$z = 7$	$R_n = 50 \mu\text{m}$	$f_{US} = 40 \text{ kHz}$
- · - ·	$z = 4$	$R_n = 100 \mu\text{m}$	$f_{US} = 40 \text{ kHz}$
- · - ·	$z = 1,2$	$R_n = 500 \mu\text{m}$	$f_{US} = 40 \text{ kHz}$



b)

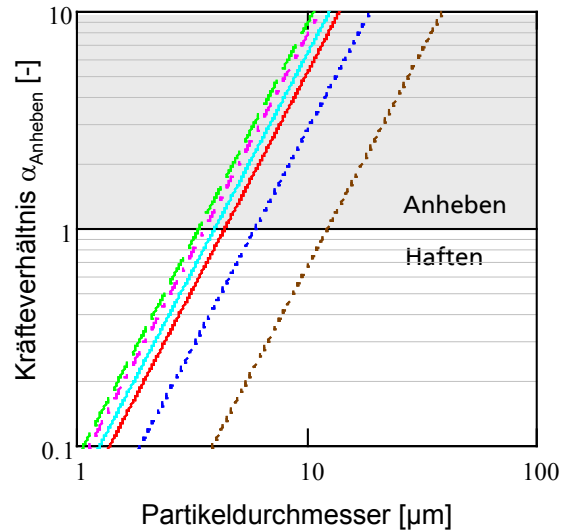


Bild 6-11: Kräfteverhältnis für das Ablösen aufgrund der Mikroströmung durch die Blasenoszillation

a) Abrollen nach Glg. 6-16;

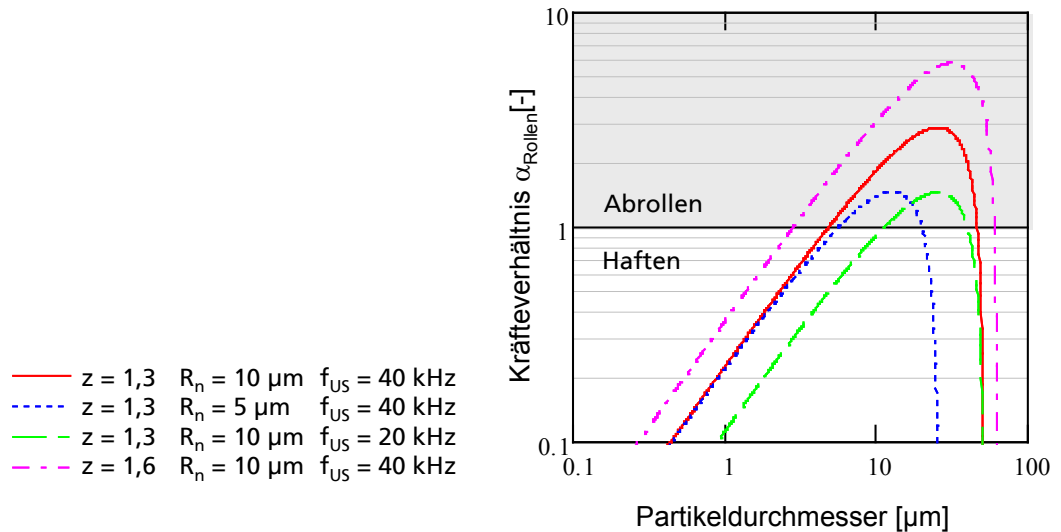
b) Abheben nach Glg. 6-12. Weitere Parameter zur Berechnung der Haftkraft, sowie für die Partikel- und Fluideigenschaften sind in Anhang 2 - Adhäsionmodell DLVO-Theorie aufgeführt.

Für beide Modelle, dem Anheben nach Glg. 6-12 und dem Abrollen nach Glg. 6-16 liegt der kritische Partikeldurchmesser, der gerade noch abgelöst werden kann, im Bereich zwischen 1 und 10 μm (siehe Bild 6-11). Das Ablösemodell, das von einem Abrollen aufgrund der angreifenden Widerstandskraft ausgeht (Bild 6-11 a), kommt zu geringfügig kleineren kritischen Partikeldurchmessern. Entsprechend den Annahmen bewirken Bläschen, die eine große, dafür aber langsamere Bewegung ausführen, ähnliche Reinigungswirkung wie schnell schwingende Bläschen, die kleinere Radienänderungen durchlaufen.

Eine Parametervariation an den beiden Modellen zeigt für das Modell des Abrollens der Partikel (Bild 6-12 a) eine deutliche Abhängigkeit von dem Anfangsradius der Blase. Mit kleinen Blasen können auch nur Partikel bis zu einer gewissen Größe abgelöst werden. Bei Verkleinerung des

Ruheradiuses einer Blase sinkt die obere Grenze für den Partikeldurchmesser, der noch abgereinigt werden kann, während sich die untere Grenze nur geringfügig Richtung größerer Partikel verschiebt. Eine höhere Frequenz erweitert das ablösbare Partikelgrößenspektrum zu kleineren Partikeln, die größte noch ablösbare Partikel bleibt hingegen nahezu unverändert.

a)



b)

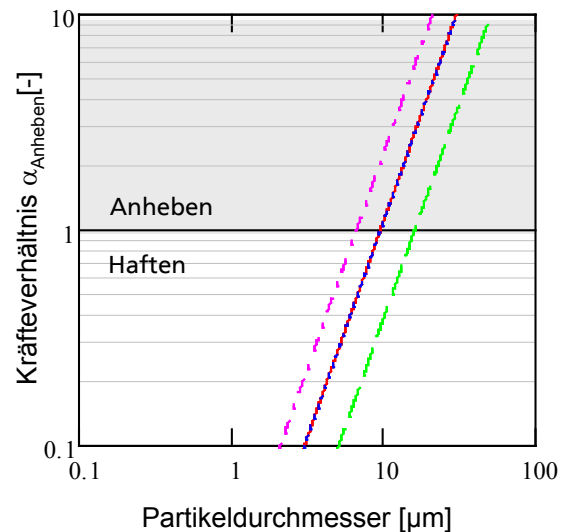


Bild 6-12: Parametervariation der Ablösemodelle:

a) Abrollen aufgrund der Mikroströmung;

b) Anheben aufgrund des Strömungsprofils der Mikroströmung. Weitere Parameter zur Berechnung der Haftkraft, sowie für die Partikel- und Fluideigenschaften sind in Anhang 2 - Adhäsionsmodell DLVO-Theorie aufgeführt.

Eine heftigere Blasenoszillation durch ein höheres Aufschwingen des Blasenradiuses (höherer z -Wert) weitet das Spektrum der ablösbaren Partikelgrößen in beide Richtungen zu kleineren und größeren Partikeln hin aus. Die Parametervariation zeigt auch, dass das Modell des Anhebens aufgrund der Liftkraft unabhängig von dem Ruheradius der Blase ist (Bild 6-12 b). Kleinere Frequenzen verringern das Potenzial kleine Partikel abzulösen, während ein starkes Aufschwingen (hohe z -Werte) der Blase auch die Reinigung kleinerer Partikel ermöglicht.

6.2.4 Spezialfall asymmetrischer Blasen kollaps

Der asymmetrische Blasen kollaps mit einer auf die Oberfläche gerichteten Jetströmung stellt einen Spezialfall bezüglich der auftretenden Mikroströmungen durch die Blasenoszillation dar. Ohl, Arora et al. (2006a) haben mittels Particle Image Velocimetry die auftretenden Geschwindigkeiten bei einem unter experimentellen Bedingungen herbeigeführten asymmetrischen Blasen kollaps vermessen.

Dabei wurden für die verschiedenen Phasen unterschiedliche Strömungsgeschwindigkeiten gemessen:

- Blasenexpansion 1 m/s
- Blasen kollaps 1 m/s
- Jetstromaufprall 10 m/s
- Erneute Expansion 10 m/s

In Bild 6-13 wurden die maximalen Geschwindigkeiten nicht nach Glg. 6-11 bestimmt. Stattdessen wurden diese vermessenen Werte für die maximale Geschwindigkeit der Mikroströmung für die Ablösemodelle (Glg. 6-12 und Glg. 6-16) verwendet.

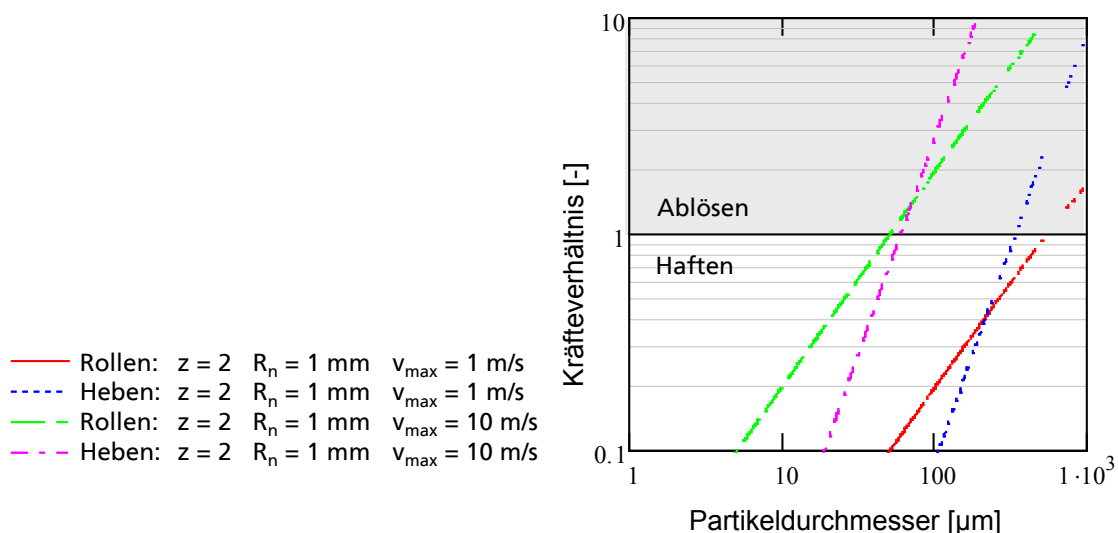


Bild 6-13: Ablösebedingungen bei Verwendung der maximalen Geschwindigkeit des von Ohl, Arora et al. (2006a) vermessenen asymmetrischen Blasen kollapses; $R_n = 1$ mm, $z = 2$. Weitere Parameter zur Berechnung der Haftkraft, sowie für die Partikel- und Fluideigenschaften sind in Anhang 2 - Adhäsionsmodell DLVO-Theorie aufgeführt.

Mit den Werten aus Ohl, Arora et al. (2006a) lassen sich für die Expansionsgeschwindigkeit von 1 m/s nur Partikel ab etwa 400 μm ablösen. Bei den höheren Geschwindigkeiten des Jetstromaufpralls und der erneuten Expansion von 10 m/s ergibt sich eine Grenze der Partikelgröße von etwa 55 μm . Aufgrund des sehr großen Ruheradiuses von 1 mm, der in diesen Experimenten gewählt wurde, lässt sich dieser Fall nur bedingt auf die Situation der akustischen Kavitation anwenden. Bei der Diskussion der Ergebnisse von Ohl, Arora et al. (2006a) muss berücksichtigt werden, dass die Vermessungsmethode der Particle image velocimetry die Überwindung von Haftkräften voraussetzt. Zur Visualisierung der Strömungen wurden in diesem Fall fluorisierende Polymerkügelchen mit 8 μm Durchmesser verwendet, deren Adhäsionskräfte, Schlepp- und Widerstandskräfte die gemessene Geschwindigkeit reduzieren. Die vermessene Partikelgeschwindigkeit entspricht nicht der maximalen Strömungsgeschwindigkeit, sondern ist bereits eine Folge

der Anströmung. Das Ergebnis dieser Abschätzung mit den Literaturwerten kann daher als sehr konservativ bewertet werden.

6.2.5 Visko-inertialer Effekt

Der visko-inertiale Effekt (Babick 2005) tritt in einem Schallfeld bereits unterhalb der Kavitationschwelle auf. Bei der Kombination von akustischem Feld mit elektrischem Feld zur Verbesserung der Filtration (Tarleton 1992b) konnten sehr große synergetische Effekte gezeigt werden. Ein Ansatz, diese synergetischen Effekte zu erklären, besteht darin, dass sich der Dispersionszustand des Stoffsystems durch den visko-inertialen Effekt ändert. Die Relativgeschwindigkeit zwischen kontinuierlicher Phase und Partikel sorgt für ein Abstreifen der Hydratationshülle und damit der Ladungsdoppelschicht (Smythe 2000). Die abstoßende elektrische Wechselwirkung der Partikel wird verstärkt. Die Wanderung der Partikel in einem elektrischen Feld nimmt zu (Elektrophorese). Ohne das zusätzliche elektrische Feld würde dieser Effekt für die Filtration bedeuten, dass sich die Partikelgrößenverteilung hin zu kleineren Partikeln verschiebt. Damit ergibt sich eine Verschärfung des Deckschichtproblems. Eine klare Zuordnung dieses Effektes konnte bei den durchgeführten Experimenten in Kapitel 5 nicht gefunden werden.

Bei der Anpassung der bekannten hydrodynamischen Modelle auf diesen Fall tritt das Problem auf, dass sich hier keine räumliche Begrenzung eines Strömungskanals festlegen lässt. Ein Ansatz wäre, die halbe Wellenlänge des Schalls in dem Fluid als Begrenzungsmaß eines laminardurchströmten Kanals zu wählen. Dieser Ansatz setzt die Annahme einer Ausbreitungsrichtung der Schallwelle parallel zur Membranoberfläche voraus. Mit diesen beiden stark vereinfachenden Annahmen lässt sich eine Abschätzung gemäß den in Kapitel 6.2.3 beschriebenen Modellen für das Anheben aufgrund der Liftkraft und das Abrollen aufgrund der Widerstandskraft in einem laminar durchströmten Kanal mit der Höhe $\lambda/2$ durchführen.

Für die maximale auftretende Geschwindigkeit wird die Schallschnelle angesetzt.

$$v_{\max} = \frac{p_{US}}{\rho \cdot c_{liq}} = A_{US} \cdot \omega_{US} \quad \text{und} \quad h = \frac{\lambda}{2} \quad \text{Glg. 6-17}$$

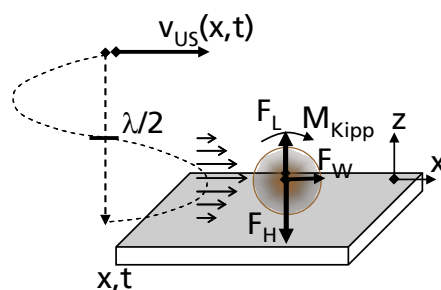


Bild 6-14: Schematische Darstellung der auftretenden Schleppkräfte an einer Partikel aufgrund des visko-inertialen Effekts.

Mit den Annahmen aus Glg. 6-17 und der Ablösebedingung aus Glg. 6-12 lassen sich bei einem Schallwechseldruck von 20 bar und einer Frequenz von 20 kHz Partikel größer als etwa 1,5 mm

Durchmesser ablösen. Dieser Effekt ist damit für die Ablösung der feinen Partikelfraktion uninteressant und wird nicht weiterverfolgt.

6.2.6 Vergleich der ultraschallinduzierten Ablösemechanismen

Die Widerstandskräfte an einer Partikel aufgrund des visko-inertialen Effektes erweisen sich in der obigen Abschätzung für eine Ablösung der kleinsten Partikelfraktion als zu schwach.

Eine Veränderung des Strömungsprofils durch die akustische Strömung konnte im Experiment nicht beobachtet werden. Hier besteht insbesondere die Chance den Pincheffekt zu verbessern und eine Verbesserung der Crossflow-Filtration ohne Erhöhung der Pumpenleistung zu erreichen. Gezielte Untersuchungen dieses Effektes könnten für einfache Flachmembrangeometrien oder getauchte Kissenstapel interessante Ergebnisse ergeben.

Die Mechanismen der Mikroströmung aufgrund der Oszillationsbewegungen der Blasenwand und die direkte Körperschallanregung der Membranoberfläche bieten das interessanteste Potenzial zur Ablösung der Partikel. Die Begrenzung der Vibrationsmethode für Partikel kleiner als etwa 1 μm wurde oben bereits aufgezeigt.

Die Mikroströmungen aufgrund der Blasenoszillation weisen für die aller kleinste Partikelfraktion ein hohes Potenzial auf, diese abzulösen. Jetströmungen, die auf die Oberfläche gerichtet sind, können dabei als vorteilhafter Spezialfall behandelt werden, da hierdurch eine größere Reichweite bezüglich der Partikelablösung erreicht wird. Die Möglichkeit, Partikel mit Hilfe der Mikroströmungen abzulösen, erscheint nach Bild 6-12 a zunächst auch für kleinere Partikelradien unbegrenzt. Allerdings muss berücksichtigt werden, dass der typische Ruheradius für heftig kollabierende Blasen sich im Wasser (bei den typischen Parametern aus Tabelle 2-3) in dem Bereich zwischen 1 μm und 10 μm einstellen wird. Ab etwa 1 μm Ruheradius wächst der benötigte Schalldruck zur Erzeugung von großen Blasen-schwingungen für noch kleinere Ruheradien deutlich an (Blake-Schwelle; vgl. Bild 2-6 und Anhang 4). Größere Anfangsradien erschweren das Erreichen hoher z-Werte (vgl. Bild 6-8 bis Bild 6-10 und

Bild A3-0-8). Ein Verschieben des Bereichs der ablösbaren Partikel in Bild 6-12 a hin zu kleineren Durchmessern kann somit durch höhere Frequenzen und eine größere, bezogene Ausdehnung der Blase (höhere Werte für z) erreicht werden. Beides setzt einen höheren Eintrag Ultraschallleistung voraus oder zusätzlichen Aufwand durch ein Absenken des Systemdrucks.

Bei Trennprozessen von schwerfiltrierbaren Stoffsystemen mit Partikelfraktionen im Nanometerbereich stellen die Mikroströmungen somit einen neuen Weg dar, den Filtrationsprozess aufrecht zu erhalten. Es können somit Rückspülprozesse verbessert und das irreversible Fouling reduziert werden.

Für die Verbesserung des Fluxes bei der Filtration muss neben dem Potenzial für die Ablösung der kleinsten Partikelfraktionen auch die Quantität dieser Ablösevorgänge diskutiert werden.

Vorausgesetzt die problematische schwingungstechnische Anregung der Membran gelingt, ist bei der Vibrationsmethode eine relativ gleichmäßige Wirkung über die gesamte Membranfläche zu erwarten (vgl. claudische Schwingungsmuster Bild 4-15 und Bild 4-19).

Bei den Mikroströmungen stellt sich die Frage nach dem Wann und Wo des Auftretens eines reinigungswirksamen Blasen-kollapses oder einer reinigungswirksamen, stabil oszillierenden Bla-

se. Es wird die richtige Blase am richtigen Ort benötigt und dort muss die notwendige Anregungsschalldruckwelle vorhanden sein, um in einem akzeptablen Zeitraum den gewünschten Reinigungseffekt zu erzielen. Angesichts der wenigen Mikrometer großen Blasen und den mehrere Quadratmeter großen Membranflächen stellt die Kontrolle dieser Blasen die zentrale Herausforderung für eine effiziente Reinigungsmethode dar.

Krefting (2003) hat in ihrer Arbeit die Raum- und Zeitskalen der Kavitationsvorgänge von der Einzelblase bis zu der Translationsbewegung von Mehrblasenstrukturen in einem Schallfeld analysiert. Das Verständnis dieser Skalen stellt für die Diskussion der Beeinflussung von Ereignishäufigkeit und des Ereignisortes eine wichtige Grundlage dar.

In den Experimenten (Kap. 5) sind zur Kontrolle von Ort und Häufigkeit des Auftretens von Blasen die zusätzlichen Möglichkeiten getestet worden, die eine poröse Membranoberfläche ermöglichen: Gezielte Beeinflussung der Kavitationskeime durch Rückspülung mit gasgesättigtem Wasser und Einstellung des Druckunterschieds zwischen Permeat und Feedvolumen. In den Experimenten am Kapillarmembranmodul (Kap. 3.3) wurden zur Kontrolle der Blasenaktivität die Druck- und Rückspülverhältnisse variiert. Da die Blasenaktivität im Inneren der Kapillaren messtechnisch nicht zugänglich ist, kann der Erfolg der Maßnahmen nur an der Verbesserung des Durchflusses insgesamt gezeigt werden. Für genauere Untersuchungen zur Kontrolle der Blasenaktivität wurde in Kap. 5.2.2 neben Rückspülvolumenstrom und Druckdifferenz auch der Gasgehalt zur Kontrolle der Bläschenaktivität untersucht. Die Bläschenhäufigkeit kann sehr effektiv durch Druckabsenkung auf der Feedseite unter Umgebungsdruck und die Rückspülung mit gasgesättigtem Wasser beeinflusst werden. Allerdings nimmt dabei die Heftigkeit der Bläschen-schwingung ab. Auf leicht abzulösende, große Partikel hat sich die höhere Zahl an Bläschen positiv ausgewirkt. Bei der Reinigung von Deckschichten aus kleineren Partikeln hat sie sich negativ ausgewirkt. Das Thema der Kontrolle der Blasenaktivität wird im Kapitel 8 »Ausblick und Vorschläge für Anschlussarbeiten« noch mal aufgegriffen.

7 Vorschläge für technische Anwendungen

Für die betrachteten Ansätze, Ultraschall zur Verbesserung der Membranfiltration einzusetzen, war die Skalierbarkeit auf einen für die technische Anwendung relevanten Maßstab ausschlaggebend. Neben der technischen Realisierbarkeit müssen zur Bewertung der Technologie auch die Wirtschaftlichkeitsaspekte diskutiert werden.

7.1 Überlegungen zu den Kosten der Technologie

Für die Ultraschallausrüstung in der vorgestellten Ausführung für das Kapillarmembranmodul (Kap. 4.2.7) -bestehend aus Edelstahlhüllrohr, einigen Modifikationen am Modul und dem Leistungsultraschallwandler- entstehen Kosten, die etwa dem 10-fachen der Kosten für das Kapillarmembranmodul entsprechen. Bei Berücksichtigung aller Kostenreduktionspotenziale, die gegenüber der Erstellung einer Testanlage auftreten können, werden Ultraschallwandler und der Hochfrequenzgenerator dennoch dafür sorgen, dass sich die Kosten pro Modul vervielfachen. Sofern sich im Bereich der Ultraschallgerätetechnik keine deutlichen Kostensenkungen ergeben, wird die Integration von Ultraschall in Großanlagen daher auf absehbare Zeit keine wirtschaftliche Lösung darstellen. Für Nischenanwendungen von schwerfiltrierbaren Stoffsystemen oder für die Fraktionierung von Nanopartikeln ist ein technischer Einsatz vorstellbar. Für den ursprünglich mit dem Forschungsprojekt anvisierten Bereich von Kleinanlagen, die nach Möglichkeit als Stand-alone-Lösung ohne technisches Personal betrieben werden sollen, lässt sich die Situation differenzierter beschreiben. Für solche kleinen Einheiten stellt die Peripherie für chemische Reinigungen, bestehend aus Dosierpumpen, Messtechnik, Behältern und Rohrleitungen eine mit der Ultraschallausrüstung vergleichbare Kostenposition dar. Für autark arbeitende Kleinanlagen ergeben sich zudem für die Versorgung mit Betriebsmitteln für die chemische Reinigung oder Flockung, sowie deren fachgerechte Entsorgung hohe Anforderungen an die Wartungsinfrastruktur. Für diese Nische bietet die ultraschallunterstützte Membranfiltration auch wirtschaftlich eine Alternative, sofern damit dauerhaft der Verzicht auf chemische Reinigungsmaßnahmen erreicht werden kann.

7.2 Designvorschläge für selbstreinigende Membranmodule

Aus den theoretischen Überlegungen und den Experimenten ließen sich die direkte Körperschall-schwingung und die Mikroströmungen aufgrund von Blasenoszillation als wichtigste Ultraschallmechanismen für die Membranreinigung identifizieren. Dabei ist das Reinigungspotenzial für die kleinsten Partikel bei der Blasenoszillation höher. Für beide Ansätze sollen hier kurz Vorschläge zur Realisierung skizziert werden.

7.2.1 Designvorschlag schwingungstechnisch angeregte Membran

Für sehr kleine Spezialmembranen beispielsweise aus Sintermetall ist eine direkte schwingungstechnische Anregung ähnlich wie in Kapitel 4.2.3 realisierbar. Hiermit lassen sich sehr kompakte,

selbstreinigende Filter realisieren. Dieser Ansatz ist durch ein großes Verhältnis von installierter Leistung für die Reinigung zur Membranfläche gekennzeichnet.

Ein günstigeres Verhältnis von Ultraschalleistungseintrag für die Reinigung zu Membranfläche, bei der auch größere Flächen in Schwingung versetzt werden, könnte sich zukünftig durch den Einsatz miniaturisierter Leistungsultraschallwandler ergeben, die zum Beispiel in Streifen, direkt auf die Membranoberfläche geklebt werden. Hierfür bieten sich, wie in Kapitel 5.1.4 aufgezeigt, nur Membranmaterialien an, die selbst hochfrequente Schwingungen weiterleiten können wie keramische und metallische Membranen. Zwei vielversprechende Ansätze für solche Miniultraschallwandler wurden in Kapitel 2.6.1 bereits vorgestellt. In der Arbeit von Lamminen, Walker et al. (2006a) werden schmale eingebettete Piezokeramikscheiben als Flächenwandler genutzt. In diese Richtung der Miniaturisierung und Integration von Schwingungsgebern wird auch im Bereich der zerstörungsfreien Werkstoffprüfung gearbeitet. Beispielsweise können zur Anregung von Oberflächenwellen Bimorph-Biege wandler in Form einer flexiblen Folie auf Oberflächen aufgeklebt werden (Hanselka 2003). Denkbar wäre ein flächiger flexibler Wandler auch in Form einer PVDF-Folie. PVDF-Folien weisen selbst einen Piezoeffekt auf und werden in der Messtechnik z.B. für Hydrophone eingesetzt. Als Folie, die mit zwei leitfähigen Elektrodenfolien umgeben ist, wäre eine flächige Schwingungsanregung vorstellbar. So ein Typ von Flächenschwinger in Form einer Folie könnte beispielsweise ähnlich wie ein Abstandsgewebe (Spacer) in Kissenmodulen und Spiralwickelmodulen verbaut werden. Solche Ansätze könnten in den Typ der Schwingungsanregung mit direkter Körperschallanregung (Kap. 5.1.3 und 5.1.4) münden. Insbesondere für Kissenmodule ist es aber auch denkbar, dass so ein folienartiger Flächenschwinger eine Kavitationszone zwischen zwei Kissen erzeugt. Andere Ansätze, die in eine ähnliche Richtung gehen, über eine größere Fläche eine gleichmäßige Schwingung zu erzeugen, bestehen im Abscheiden piezoelektrischer Dünnschichten, was heute bereits in der Sensortechnik durchgeführt wird.

7.2.2 Designvorschlag für die ultraschallunterstützte Rückspülung an einem outside-in-betriebenen Kapillarmembranmodul

Für sehr kleine Spezialfilter gibt es kommerzielle Lösungen, die Sintermetallmikrofilter mit der intensiven Kavitationszone des Ultraschalls regenerieren (MicroSintFilter™; Firma Aquaworx Deutschland GmbH). Hier kann der Vorteil des hohen Reinigungspotenzials für die kleinsten Partikel ausgenutzt werden. Diese Lösung ist für sehr kleine kompakte Aufbereitungsanlagen konzipiert, die nahezu wartungsfrei arbeiten.

Für größere Anlagen ermöglichen große Membranflächen einen Betrieb bei geringen Flächenbelastungen und niedrigem spezifischen Energieeinsatz. Die installierte Leistung von Pumpen und anderen Peripheriegeräten wie der Ultraschallausrüstung zur Reinigung kann bezogen auf die Membranfläche wesentlich kleiner als im obigen Beispiel sein. Zwei Ansätze für größere Membrananlagen sind in dieser Arbeit bereits vorgestellt worden. Die Experimente an dem inside-out-betriebenen Kapillarmembranmodul (vgl. Kap. 4.2.7 und 3.3) und das getauchte Membranmodul der Arbeitsgruppe Lauterborn (Lauterborn 2008), das mit Tauchschwingern ausgestattet ist (vgl. Kap. 2.6.1). Bei der Vakuumfiltration sind aufgrund des begrenzten Transmembrandrucks keine flexiblen Anpassungen des Betriebszustands auf höhere Fluxwerte möglich, um beispielsweise eine variable Konzentration der Feststofffracht ausgleichen zu können. Kapitel 5.4.2 hat eindrucksvoll gezeigt, dass das Konzept eines mit einem einzigen leistungsstarken Ultraschallwandler angeregte Edelstahlhüllrohr bezüglich der Ausbildung eines möglichst gleichmäßigen und kontrollierbaren Schallfeldes Defizite aufweist.

Folgender Designvorschlag für das ultraschallunterstützte Rückspülen an einem outside-in-betriebenen Membranmodul weist die Nachteile der beiden genannten Ansätze nicht auf. Ge-

genüber inside-out-betriebenen Kapillarmembranen sind die Anströmverhältnisse während des Rückspülvorgangs und bei der Querstromfiltration für die Deckschichtkontrolle in outside-in-betriebenen Kapillarmembranen weniger geeignet. Vorteile der outside-in-betriebenen Kapillarmembran bestehen darin, dass keine Pfropfenbildung auftreten kann, sehr dünne Kapillaren eingesetzt werden können und sich die Deckschicht aufgrund der gleichmäßigen Druckverteilung gleichmäßiger ausbildet (Panglich 2001). Eine möglichst gleichmäßige Deckschicht ist Voraussetzung für eine gute Rückspülbarkeit. In Bezug auf die Beschallung ist es empfehlenswert, bei outside-in-betriebenen Membranen mit Tauchschwingern zu arbeiten. Tauchschwinger bieten alle Vorzüge eines modernen Ultraschallreinigungssystems. Als Ultraschallfrequenz werden 80-150 kHz für die Anwendung empfohlen. Bei schallabsorbierenden Membranmaterialien wird durch die gewählte Frequenz die Mindestbreite der durchströmten Zwischenräume zwischen den Membranlagen festgelegt (vgl. Glg. 5-1). Wenn neue Möglichkeiten wie das wandernde Stehwellenfeld (Lauterborn 2004b) zur weiteren Vergleichmäßigung des Schallfeldes technisch ausgereift sind, wären sie für diese Reinigungsanwendung sehr interessant.

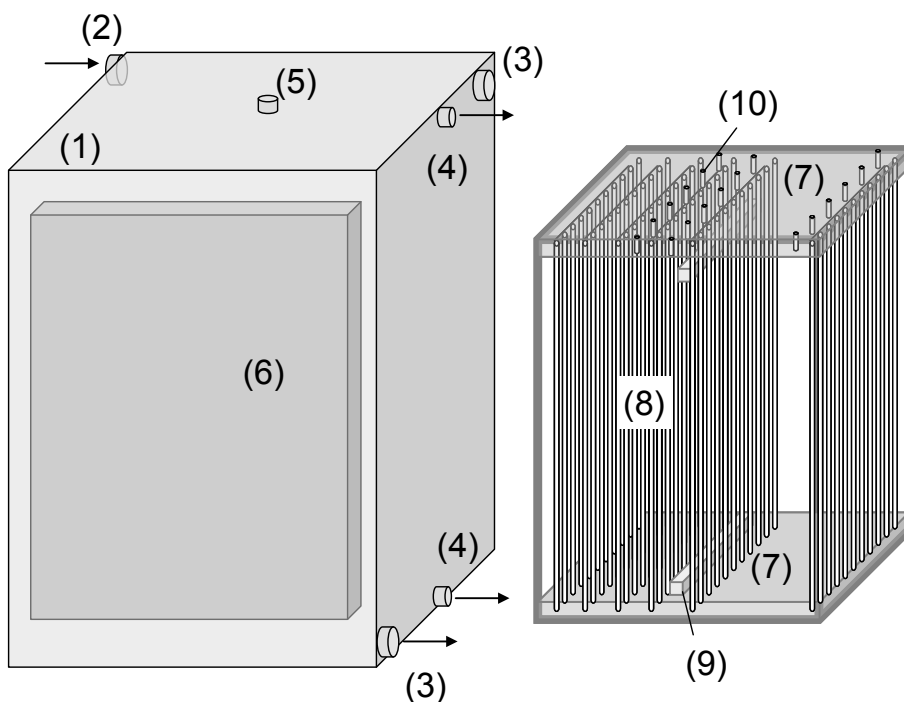


Bild 7-1: Designvorschlag - outside-in-betriebenes Kapillarmembranmodul zur ultraschallunterstützten Rückspülung in Kassettenbauweise. (1) Kunststoffgehäuse, (2) Feedzulauf, (3) Konzentratausgang, (4) Filtratausgang, (5) Modulentlüftung, (6) Tauchwandler, (7) Harzblöcke, (8) Kapillarmembranen für Outside-in-Betriebsweise, (9) Abstandshalter, (10) Perforierung des oberen Harzblocks zur Entlüftung.

Der Modulvorschlag knüpft an den Vorschlag von Panglich (2001) an. Entscheidender Unterschied stellt die Anordnung der Membranen und damit der Harzblöcke dar. Grundbaustein ist ein rechteckiger Behälter (1) mit Anschlüssen für Feed (2), Konzentrat (3) und Filtrat (4). In den Behälter wird eine Kapillarmembrankassette eingesetzt. Die Kapillarmembranen (8) sind vorzugsweise oben und unten eingeharzt. Die Filtratsammelkanäle im Deckel und Boden, sowie die Sammelkanäle für die Entlüftung des Gehäuses (1) sind in Bild 7-1 nicht eingezeichnet. Abstandshalter (8) sorgen für eine Anordnung der Kapillaren in Strängen, die freie Zwischenräume für die Ausbreitung des Schallfeldes bietet. Da die Harzblöcke (7) und Filtratabzugseinheiten den aufwändigsten Teil der Konstruktion darstellen, ist eine Realisierung in Hochformat zu bevorzugen. Diese Geometrie stellt einen Kompromiss aus Aufwand für das Einharzen und dem Vorteil kürzerer Kapillaren wegen ihres geringeren Druckverlusts bei der Rückspülung dar. Die Realisierung der Zwischenräume in vertikaler Ausrichtung ist für die Reinigungsmethode mit Mikroströ-

mungen durch aktivierte Bläschen von zentraler Bedeutung, damit die Blasen nach der Beschallung nach oben abgespült werden können. Für den oberen Abschluss der Kapillarmembrankassette wären daher auch eine Perforierung (10) und die Sammelleitungen im Deckel des Gehäuses (nicht dargestellt) zu einem Entlüftungsventil (5) vorteilhaft. Die Ultraschalltauchwandler sind gegenüberliegend seitlich an den Membrankassetten angeordnet.

Ein Ansatz, dieses System möglichst kosteneffizient zu gestalten, besteht darin, bei der Verwendung mehrere Kassetten nur mit einem Tauchschwingerpaar (6) zu arbeiten. Hierzu muss die Seitenwand zwischen den Modulen angepasst werden und eine Verfahrvorrichtung (11) integriert werden. In der Skizze Bild 7-2 ist für das Verfahren der Tauchschwinger vor und hinter dem Membranmodul exemplarisch nur der vordere Tauchschwinger, des sich gegenüberstehenden Tauchschwingerpaares eingezeichnet und exemplarisch ein Schienensystem als Verfahrvorrichtung angedeutet.

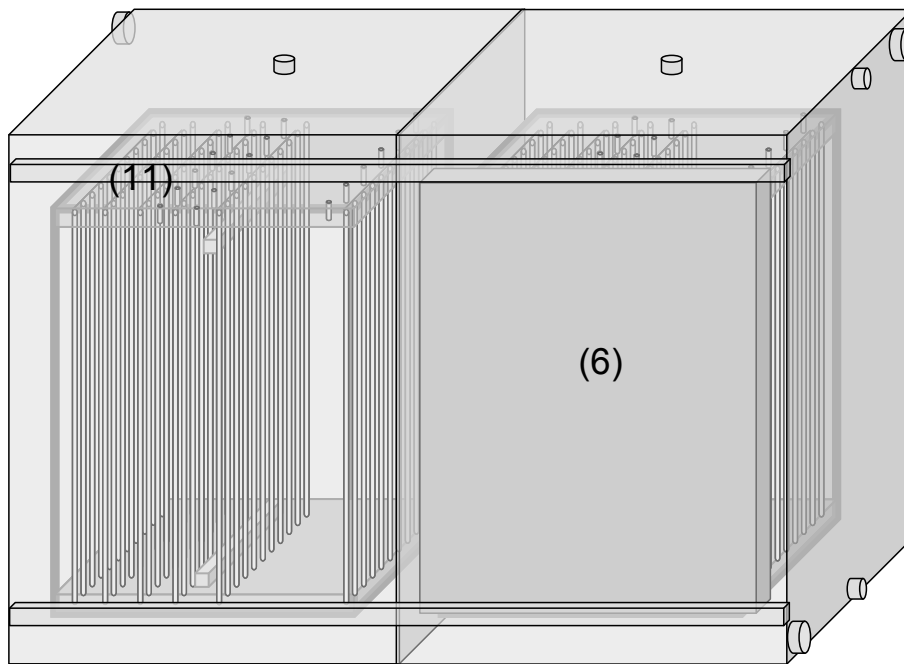


Bild 7-2: Nutzung von einem Tauchschwingerpaar (6) (nur Vorderseite gezeigt) für mehrere Modulkassetten mit Hilfe einer Verfahrvorrichtung (11).

8 Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurden die Verbesserungsmöglichkeiten der Mikro- und Ultrafiltration durch Ultraschall untersucht. Die Vielzahl der Ansätze zur Nutzung des Ultraschalls in der Membranfiltration wurde systematisiert. Zahlreiche Ansätze wurden in orientierenden Experimenten untersucht und bewertet (Kap. 5).

Hierbei konnten die wirksamsten Ultraschallreinigungsmechanismen identifiziert werden: Im Schallfeld oszillierende gut sichtbare Bläschen in der Größenordnung von 10-500 μm . Eine vereinfachte Modellrechnung (Kap. 5) unterstützt diese Schlussfolgerung aus der visuellen Beobachtungen (Kap. 5.1.2; Bild 5-8) bzgl. der wirksamsten Reinigungsmechanismen an Membranen.

Aus dieser Erkenntnis und der Analyse der Bläschenaktivität im Schallfeld (akustische Kavitation Kap. 2.3.) lässt sich erklären, warum die Crossflow-Filtration durch den Ultraschalleinsatz nicht verbessert wird. Beim Ultraschalleinsatz während der Crossflow-Filtration werden aufgrund der Druck und Strömungsverhältnisse, die reinigungswirksamen im Wechseldruck oszillierende Bläschen verhindert.

An handelsüblichen Kapillarmembranmodulen konnte mit verschiedenen Stoffsystemen gezeigt werden, dass die Kombination aus Ultraschalleinsatz und Rückspülung die wirksamste Technologiekombination zur Verbesserung der Membranfiltration darstellt.

Um einerseits eine möglichst gleichmäßige und kontrollierbare Zone aktiv schwingender Bläschen mit Reinigungspotenzial zu erzeugen und andererseits, den apparativen Aufwand und die zu installierende Ultraschallwandlerleistung für das zu beschallende Volumen klein zu halten, wurde in Kapitel 7.2.2 der Aufbau eines outside-in durchströmten Kapillarmembranmoduls mit verschiebbaren Ultraschallwandlereinheiten vorgeschlagen.

Bei ersten Filtrationsversuchen mit natürlichem Oberflächenwasser konnten Schäden an der Membran festgestellt werden, die auf eine lokale Kavitationsstruktur an der Ankopplungsstelle des Ultraschallwandlers zurückzuführen waren (Kap. 5.4.2). Schäden an den Membranen konnten durch geringeren Ultraschallleistungen und die Nutzung höherer Frequenzen in nachfolgenden Experimenten vermieden werden.

Bei der Analyse der Bewertungsparameter hat sich gezeigt, dass die „Vorgeschichte“ (Verschmutzung und Filtrationsparameter) und die hydrodynamischen Parameter (Rückspüldruck, -dauer, Überströmgeschwindigkeit, -dauer, -richtung) jedes Rückspülreinigungsvorgangs eine zentrale Rolle für den einzelnen Reinigungsvorgang spielen und entscheidender sind als die Parameter des Ultraschalls. Zur reproduzierbaren Bewertung einzelner Reinigungsvorgänge an Membranmodulen wird daher empfohlen, mit wenigstens zwei parallel geschalteten Membranen zu arbeiten, um die gleichen Voraussetzungen bzgl. der Stoffsysteme und Deckschicht Aufbau zu garantieren. Es sollte darauf geachtet werden, dass die Membranmodule möglichst Baugleich sind und die gleiche aktive Membranfläche aufweisen. Vor jedem Reinigungsversuch ist durch Crossflow-Filtration bei gleicher Überströmung und transmembraner Druckdifferenz bei den parallel betriebenen Membranmodulen der gleiche dynamische Endwert für den Flux einzustellen. Mit diesen Voraussetzungen kann von einem vergleichbaren Deckschichtaufbau ausgegangen werden und damit einzelne Reinigungsvorgänge reproduzierbar durchgeführt werden. Im Kapitel »Stand des Wissens« (Kap. 2) hat sich gezeigt, dass insbesondere in den Bereichen Medizin und Physik bereits ein tiefes Verständnis der Ultraschallvorgänge vorhanden ist. In die technische Anwendung des Ultraschalls zur Verbesserung der Membranfiltration hat dieses Know-how bislang nur wenig Einzug gehalten (Kap. 2.6).

Die direkte Körperschallanregung von schwingungsfähigen, starren Membranen konnte als ein weiterer wirkungsvoller Reinigungseffekt identifiziert werden. Bislang verhindern die technischen Probleme der Schallankopplung für die direkte Körperschallanregung eine Maßstabsübertragung auf industrielle Anwendungen (Kap. 5.1.4).

Vorschlag für eine erweiterte Analysetechnik bei Arbeiten mit inside-out betriebenen Membranmodulen

Bei der Realisierung des Kapillarmembranmoduls mit Ultraschalleinkopplung in dem experimentellen Kapitel 3.3 sind viele Fragen offen geblieben. Neben der Kontrolle und gezielten Beeinflussung der Blasendynamik für eine effektive Reinigung, bleibt noch die Frage zu klären, wie eine Blasenschwingung innerhalb einer engen Kapillare aussieht. Da das Innere einer Kapillare für die ausgefeilten optischen Methoden der Kavitationsforschung wie der Hochgeschwindigkeitsvideometrie nicht zugänglich sind, besteht ein Vorschlag darin, die Anwesenheit und Aktivität von Bläschen im Inneren von Kapillaren mit hochauflösendem diagnostischen Ultraschallgeräten zu klären. Zur Überprüfung des Schalldrucks innerhalb der Kapillaren konnte in dieser Arbeit das faseroptische Sondenhydrophon eingesetzt werden. Bei den Messungen ist unklar geblieben, ob die Messungen durch ungeklärte Vorkommnisse gestört wurden. In Kombination mit dem bildgebenden Ultraschall könnte hier mehr Klarheit geschaffen werden. Auch These einer potentiellen Schädigung durch Auftreten von Kavitation innerhalb der Schaumstoffstruktur könnte mit solchen Analysemethoden aus der Medizintechnik eventuell geklärt werden.

Vorschlag zur Entwicklung eines Auslegungstools für Reinigungsanwendungen

Kapitel 2.3 zeigt, dass die physikalische Beschreibung der Blasendynamik weit fortgeschritten ist. Eine Nutzung dieser Erkenntnisse für die ingenieurmäßige Auslegung von Reinigungsanwendungen ist bisher nicht bekannt geworden. Um das Know-how aus Medizintechnik und Physik für andere Anwendungen zugänglicher und damit nutzbar zu machen, sollte hierzu gemeinsame Forschungsvorhaben vorangetrieben werden.

Eine wichtige Aufgabe dabei wäre es, die Modelle so zu reduzieren, dass mit vertretbarer Rechenleistung Aussagen zur benötigter Ultraschalleistung und dem Energieeintrag für eine gewünschte Wirkung gemacht werden können. Mit so einem Werkzeug sollten folgende Fragen beantwortet werden können:

- In welcher Zeit wird eine vorgegebene Fläche gereinigt?
- Wie viel Energieeinsatz ist dafür notwendig (im Vergleich zu anderen Reinigungsmöglichkeiten)?
- Welche Partikelgröße (Plaques, Einzelpartikel) können tatsächlich abgelöst werden?

Vorstellbar ist, dass die Probleme reale Eingangsparameter für die physikalischen Modelle (wie z.B. das Keller-Miksis-Modell Glg. 2-2) zu finden, durch eine Kombination von statistischen Methoden und neuen Messmethoden überwunden werden kann. Für die Messung von Schalldruck, lokalem Systemdruck, Temperatur, Strömungsgeschwindigkeit und der Blasengrößenverteilung stehen teilweise Messmethoden zur Verfügung, die sich auf die technische Problemstellung in einem Leistungultraschallfeld anpassen ließen (Doppler-Ultraschall, Ultraschalldiagnostik, Thermographie). Bisher ist gerade bei der Vermessung des Ultraschallfeldes mühsames Abscannen mit Hydrophonen notwendig. Die Entwicklung einer Messmethode, die schneller und zuverlässiger Auskunft über das sich tatsächlich einstellende Schallfeld in komplexen Geometrien gibt als die Schallfeldsimulation und das Abscannen mit Hydrophonen, könnte dafür genutzt werden, die Häufigkeitsverteilung von Ereignissen an gewünschten Punkten zu ermitteln.

Damit wären alle Eingangsparameter für die Berechnung der Blasendynamik vorhanden. Diese kann dann für häufige Szenarien durchgeführt werden und der gewünschte Effekt (z.B. Membranreinigung) überprüft werden. Zur Vermeidung von Schäden an der Oberfläche müssen die Extremsituationen analysiert und deren Auftretenswahrscheinlichkeit so weit wie möglich herabgesetzt werden. In einem iterativen Prozess sind die Werte der Eingangsparameter für die Blasendynamik und die Häufigkeit ihres Auftretens mit Hilfe der Prozessparameter (Frequenz, Konzentration, Systemdruck, Anregungsamplitude,...) zu optimieren.

Alternative technische Ansätze des identifizierten Reinigungseffektes

Mikroströmungen in der Umgebung von aktivierten Bläschen haben ein hohes Reinigungspotenzial für sehr kleine Partikel. Das Problem an dieser Reinigungsmethode liegt darin, dass diese aktiven »Reinigungshelfer« in Form von oszillierenden und kollabierenden Blasen sehr klein und nicht sehr häufig sind. Um eine gezielte Reinigung zu erreichen, bedarf es einer möglichst guten Kontrolle dieser oszillierenden und kollabierenden Blasen. Der effizienteste Weg, diese Methode bei der Membranfiltration anzuwenden, bestünde demnach in zwei Schritten. Im ersten Schritt werden die »Reinigungshelfer« gezielt zur Membran transportiert. Dieser Schritt ließe sich zum Beispiel durch Auffiltrieren oder Rückspülen erreichen. Im zweiten Schritt müssten diese reinigenden Partikel an diesem Aufenthaltsort aktiviert werden.

In der Medizintechnik wurden diese beiden Schritte bereits erfolgreich getrennt. Es wird daran geforscht, hüllenstabilisierte Bläschen (Ultraschallkontrastmittel) bis zu ihrem Einsatzort (z.B. geschädigtes Gewebe) in der Blutbahn zu transportieren. Dort werden sie von hochintensivem fokussiertem Ultraschall zum Kollabieren angeregt, um beispielsweise Medikamente freizusetzen.

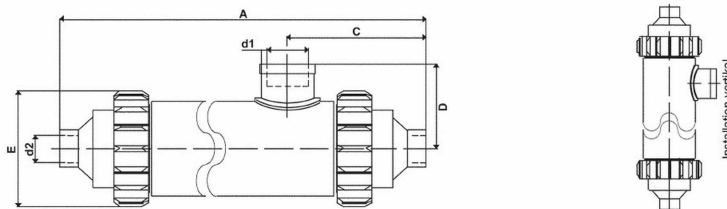
Der Transport von Partikeln zum Ort des Reinigungsbedarfs ist bei der Membranfiltration einfach zu bewerkstelligen. Die Schwingungsanregung von Blasen bei wechselndem Schalldruck ist unter der Voraussetzung, ein ausgedehntes, gleichmäßiges Schallfeld von außen aufprägen zu können, eine sehr elegante Methode der Aktivierung. Intensive Ultraschallfelder auf große Flächen mit komplexer Geometrie gleichmäßig zu übertragen, erweist sich aber als sehr schwierige Aufgabe. Daher lohnt es sich zu untersuchen, ob das gleiche Prinzip nicht mit anderen Mikrooszillatoren umsetzbar ist. Vorstellbar wären für diesen Zweck Nanokapseln, in denen eine chemische Reaktion abläuft, die eine Oszillation der Kapselwand auslöst. Eine Aktivierung wäre z.B. durch Temperaturerhöhung vorstellbar. Ein anderer zu prüfender Ansatz könnte die Verwendung von elektromagnetischen Mikrooszillatoren darstellen, die sich durch ein elektromagnetisches Feld von außen anregen lassen.

Anhang 1 - Datenblatt Kapillarmodul

Datenblatt Kapillarmembranmodul dizzer 220 und 450 der Firma inge AG



dizzer® 220 Multibore® Ultrafiltrationsmodul Technische Spezifikation dizzer® 450



Moduldaten		dizzer® 220	dizzer® 450
Länge (einschl. Endkappen) (A)	mm	672 ±2	1172 ±2
Länge (ohne Endkappen)	mm	500 ±1,5	1000 ±1,5
Außendurchmesser Modul	mm	110	
Abstand Filtratanschluß (C)	mm	65 ±1	75 ±1
Abstand Filtratanschluß - Modulachse (D)	mm	98	99
Überwurfmutter (B) (Ø aussen) (E)	mm	135	
Klebestutzen Feed / Konzentrat (d ₁)	mm	32	
Gewindeanschluss Filtrat (d ₂)	BSP	1 1/4"	1 1/2"
Material			
Gehäuse		PVC-U	
Endkappe		PVC-U	
Max. Betriebsdruck	bar	5	
Multibore® Kapillaren			
Kapillaren pro Faser		7	
Außendurchmesser	mm	4,3	
Innendurchmesser	mm	0,9	
Material		PESM	
Trenngrenze (MWCO)	kD	100-150	
Aktive Membranfläche	m ²	2,2	4,5
Typische Betriebsdaten			
Zulässiger Temperaturbereich	°C	max. 40	
Zulässiger pH-Bereich		3-10	
Betrieb		3-10	
Reinigung		1-13	
Reinigungs-/ Desinfektionschemikalien		max. 200 ppm or 200.000 ppm/h	
bezogen auf aktives Chlor		max. 500	
H ₂ O ₂ (Wasserstoffperoxid)	ppm	max. 500	
Flächenbelastung		60-140	
Filtration	l/(m ² h)	60-140	
Rückspülung	l/(m ² h)	200-250	
Transmembraner Druck (TMP)		0,1 - max. 0,8	
Filtration	bar	0,1 - max. 0,8	
Rückspülung	bar	0,3 - max. 2,5	
Berstdruck (Multibore-Faser)	bar	> 8	
Filtrationsvolumenstrom		220 450	
bei 100l/(m ² h)	l/h	220 450	
Gewicht			
Gewicht (trocken)	kg	4	7

Weitere Sonderbauformen auf Anfrage. Membran-Module sollten ständig feucht gelagert werden - eine dauerhafte Lagerung sollte in 0,1%iger Natriumbisulfid Lösung erfolgen. Die Membran darf weder polaren, organischen Lösungsmitteln, chlorhaltigen Lösungsmitteln oder konzentrierten Säuren ausgesetzt werden. Bitte beachten Sie, dass wir uns für oben angegebene Daten die Möglichkeit eines Irrtums und evtl. Änderungen vorbehalten. Bei Rückfragen kontaktieren Sie bitte das Team der inge AG.

Anhang 2 - Adhäsionsmodell DLVO-Theorie

Berechnung der Adhäsionskraft nach der DLVO - Theorie von Deryaguin, Landau (1941) und Verwey, Overbeek (1955)

Elektrostatische Wechselwirkungen

$$E_{el} = \frac{\epsilon_r \cdot \epsilon_0 \cdot d_p}{2} \cdot \zeta^2 \cdot \ln \left(\frac{1 + e^{-\kappa \cdot a}}{1 - e^{-\kappa \cdot a}} - \ln(1 - e^{-2 \cdot \kappa \cdot a}) \right)$$

mit

$$\kappa = \sqrt{\frac{e_{ele}^2}{\epsilon_r \cdot \epsilon_0 \cdot k_b \cdot T} \cdot \sum_i [n_i \cdot (z_i)^2]}$$

Glg. A2.1

Van-der-Waals-Wechselwirkung

$$E_{vW} = \frac{-A_H}{6} \cdot \left[\frac{\frac{d_p^2}{2}}{(a + d_p)^2 - d_p^2} + \frac{\frac{d_p^2}{2}}{(a + d_p)^2} + \ln \left[1 - \left(\frac{d_p}{a + d_p} \right)^2 \right] \right]$$

Glg. A2.2

Bornsche Abstoßungsenergie

$$E_B = \frac{1.55 \cdot 10^{-60} \cdot m^6}{2} \cdot \frac{d_p}{a^7} \cdot A_H$$

Glg. A2.3

Gesamte Wechselwirkungsenergie

$$E_{ges} = E_{el} + E_{vW} + E_B$$

Glg. A2.4

Adhäsionskraft

$$F_{ges} = - \left(\frac{d}{da} E_{ges} \right)$$

Glg. A3.5

Tabelle A2.1: verwendete Parameter des Adhäsionsmodells

Partikeldurchmesser	d_p	600	nm	Elementarladung	e_{ele}	$1,6022 \times 10^{-19}$	C
Zetapotenzial	ζ	-50	mV	Boltzmannkonstante	k_B	$1,3807 \times 10^{-23}$	J/K
Dichte	ρ_p	3900	kg/m ³	Avogadrokonstante	N_A	$6,022141 \times 10^{26}$	L/kmol
Hammakerkonstante	A_H	10^{-20}	J	Temperatur	T	293,15	K
Dielektrizitätszahl	ϵ_r	22,5	-	Ionenstärke	I	1×10^{-3}	mol/l
absolute Dielektrizitätskonstante	ϵ_0	$8,8542 \times 10^{-12}$	C/(Vm)	Debye-Hückel-Parameter	κ	$3,916 \times 10^8$	1/m
Konzentrationen der Ionsorten in der Lösung	c_i		mol/l	Ladungszahlen der Ionsorten	z_i		-
Abstand der Partikel	a		nm	Elektrische Wechselwirkungsenergie	E_{ele}		J
Van-der-Waals Wechselwirkungsenergie	E_{vW}		J	Bornsche Wechselwirkungsenergie	E_B		J
Gesamte Wechselwirkungsenergie	E_{ges}		J	Gesamte Adhäsionskraft	F_{ad}		N

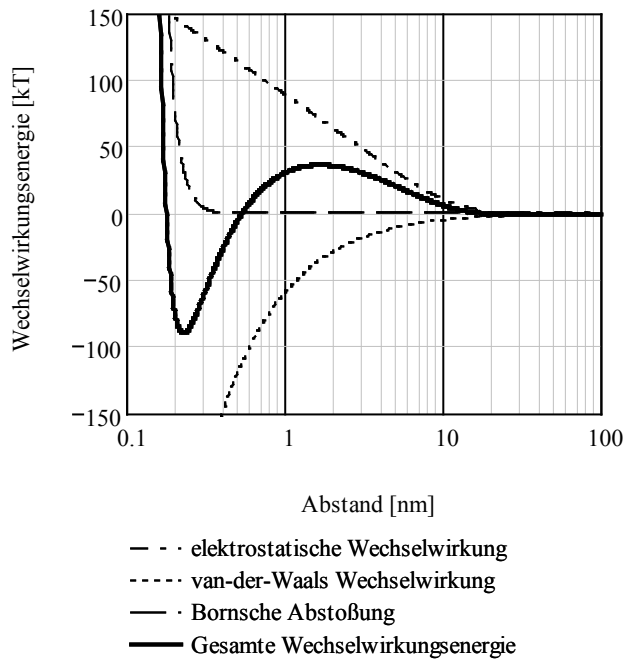


Bild A2.1:

Darstellung der Wechselwirkungsenergien über dem Abstand für die Parameter aus Tabelle A-4.1.

Das lokale Minimum der Wechselwirkungsenergie liegt bei einem Abstand von 0,231 nm. Das Maximum der Abstoßungsbarriere liegt bei $a_{ab} = 1.69$ nm.

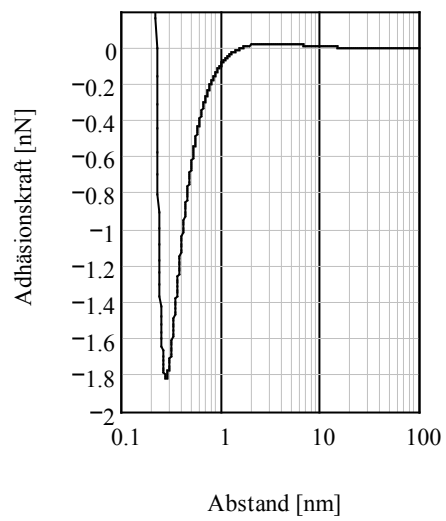


Bild A2.2:
Adhäsionskraft über dem Abstand

Das primäre Adhäsionsmaximum (-1,8 nN) liegt bei einem Abstand von 0,288 nm. Das Maximum der abstoßenden Kräftebarriere bei 3,235 nm.

Anhang 3 - Einflussgrößen auf die radialsymmetrische Blasendynamik

Tabelle A3-0-1 gibt die Berechnungsparameter für die Berechnung der Blasendynamik nach Keller-Miksis (Keller 1980, Keller 1956) gemäß Glg. 2-2 und Glg. 2-3 an. Die jeweils variierten Parameter sind in den Diagrammen angegeben. Es soll die Art der Blasendynamik in Abhängigkeit der Anregungsfrequenz, des Überdrucks im System, des Anfangsblasenradius und der Temperatur gezeigt werden.

Außerdem wird die Heftigkeit der Blasenkollekt auch anhand der ersten und zweiten Ableitung des sich veränderten Blasenradius gezeigt und an einem Beispiel errechnete Maximalwerte für Geschwindigkeit und Beschleunigung der Radiusveränderung angegeben.

Tabelle A3-0-1: Parameter für die Berechnung der radialsymmetrischen Blasendynamik.

κ	5/3
η	0,001 Ns/m ²
ρ_{liq}	998 kg/m ³
c_{liq}	1482 m/s
p_{stat}	im Diagramm angegeben
$p_v(20^\circ\text{C})$	2,34 10 ³ Pa
σ	72,75 10 ⁻³ N/m
$R_n(p_{\text{stat}} = 1 \cdot 10^5 \text{ Pa})$	5 μm
f_{US}	im Diagramm angegeben
p_A	im Diagramm angegeben

Radialsymmetrische Blasendynamik bei unterschiedlicher Anregungsfrequenz

Bild A3-0-1 zeigt die Auswirkung einer höheren Anregungsfrequenz bei sonst gleichen Bedingungen. Durch auf die Anregungsfrequenz bezogene x-Achse lässt sich erkennen, dass im Verhältnis zur Anregungsamplitude die Blase bei höheren Frequenzen verzögert folgt und der maximale Blasenradius aufgrund der kürzeren Zeit für die Expansion bei hohen Frequenzen kleiner ist.

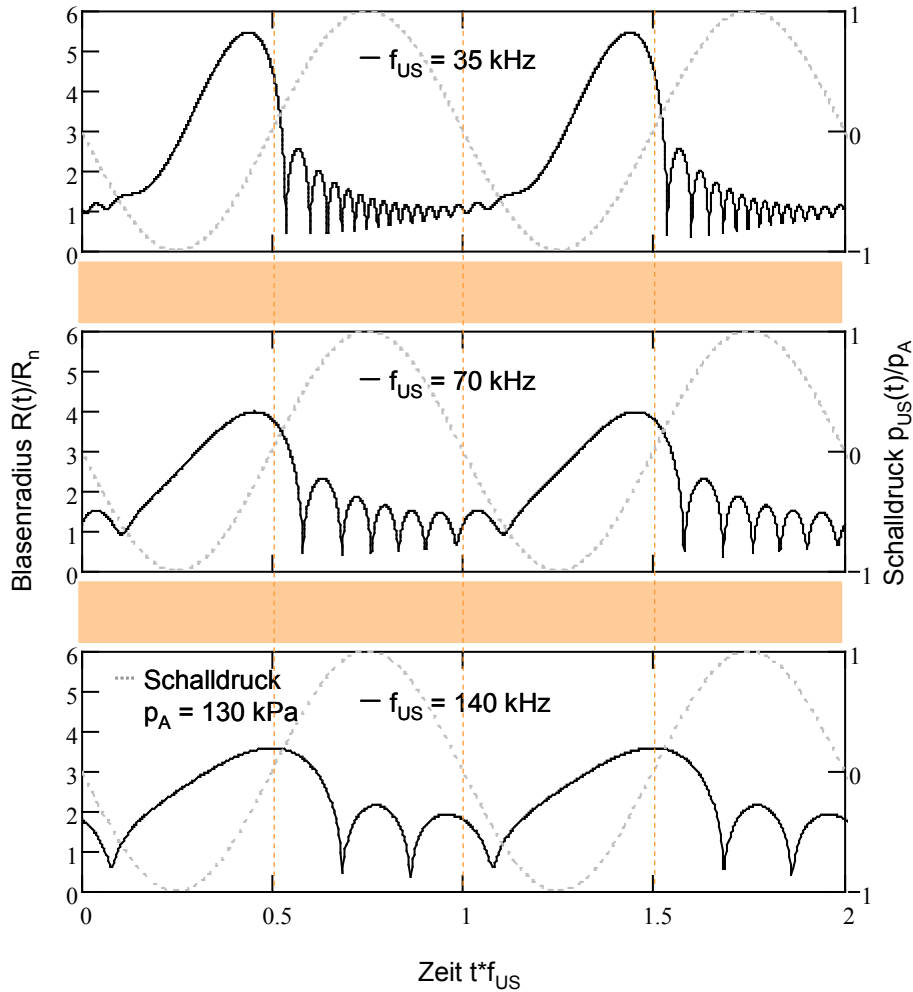


Bild A3-0-1: Blasendynamik bei steigender Anregungsfrequenz

Radialsymmetrische Blasendynamik bei unterschiedlichem Überdruck im System

Bild A3-0-2 zeigt die Blasendynamik bei sinkendem Umgebungsdruck. Insgesamt kann die Blase bei geringerem statischem Überdruck im System zu größeren Maximalradien aufschwingen. Der Kollaps verschiebt sich deutlich in den Bereich der Überdruckphase. Aufgrund der Verschiebung des Kollapses über den Bereich des Überdrucks hinaus verkürzt sich die Phase des Oszillierens um den Ruheradius der Blase und die Blase wird sofort wieder aufgezogen.

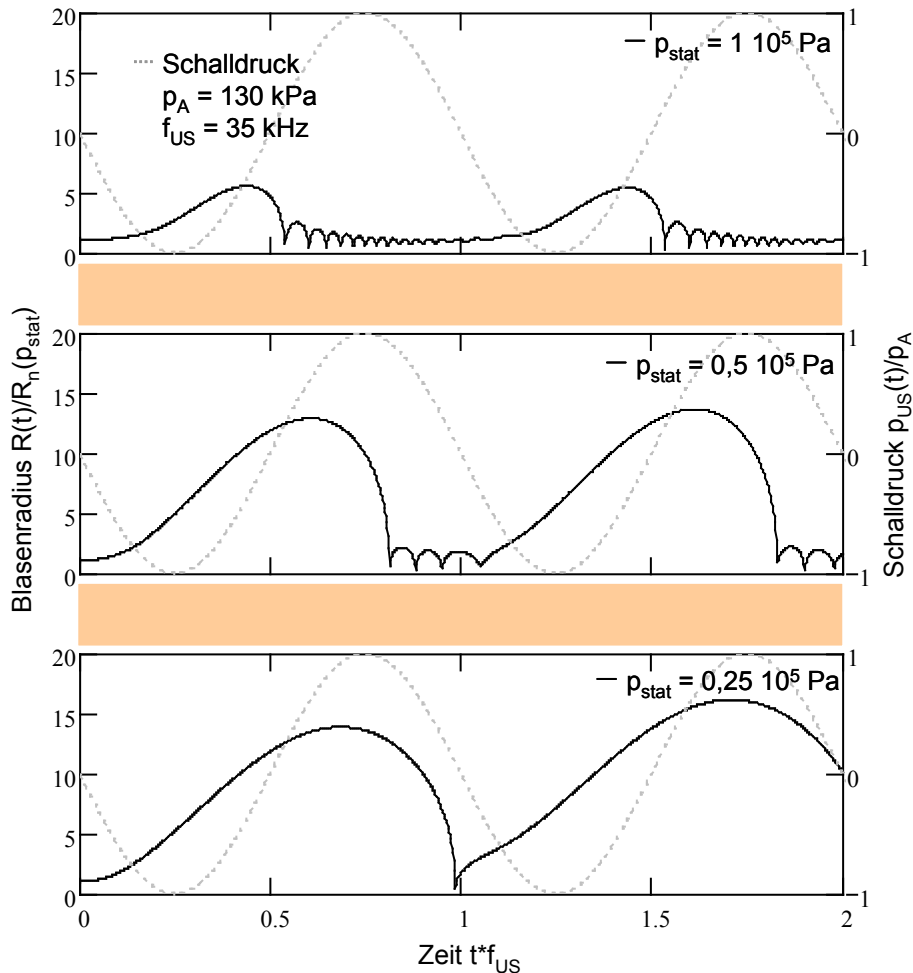


Bild A3-0-2: Blasendynamik bei Absenken des Systemdrucks

Bei sonst gleichen Parametern verringert sich die maximale Blasenausdehnung mit steigendem statischem Systemdruck und das Kollapsverhalten verschwindet (Bild A3-0-3). In Bild 2-6 ist bereits zu erkennen, dass für einen Partikel bei einem Ruheradius von $4\ \mu\text{m}$ (2 bar) und $3\ \mu\text{m}$ (5 bar) die Schalldruckamplitude von 1,3 bar nicht mehr ausreichend ist, um einen Blasenknall auszulösen (vgl. Blake-Schwelle Glg. 2-6).

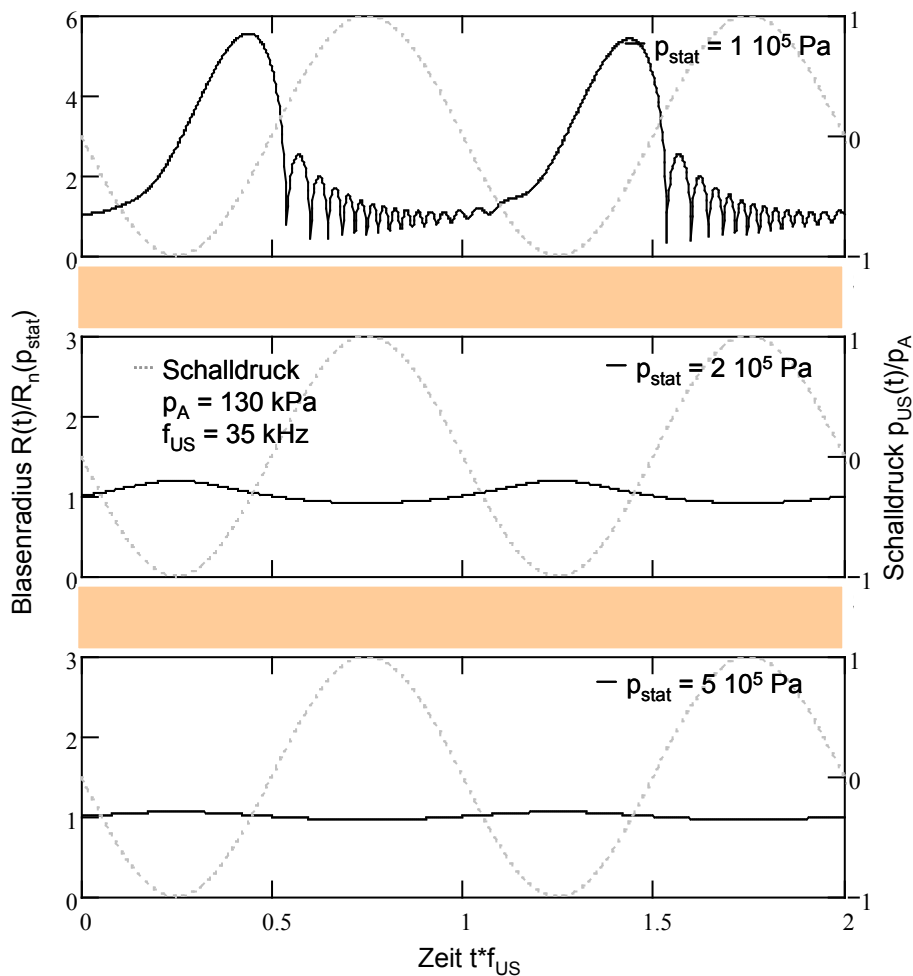


Bild A3-0-3: Blasendynamik bei Steigerung des Systemdrucks

Heftigkeit des Blasenkollapses und Systemdruck

Die nächsten Bild A3-0-4 bis Bild A3-0-6 zeigen, dass Pauschalaussagen, wie »mit sinkendem Systemdruck wird die Kavitationswirkung sanfter und die erosive Kavitationsaggressivität nimmt ab« mit der Modellrechnung nicht bestätigt werden können. Bei gleicher Schalldruckamplitude kann sich die Heftigkeit des Blasenkollapses mit steigendem Druck verringern und zum Erliegen kommen. Wenn die Schalldruckamplitude zusammen mit dem statischen Systemdruck erhöht wird, nimmt die Heftigkeit des Kollapsereignisses zu.

Bild A3-0-4 zeigt deutlich, dass das Kollapsverhalten verschwindet bei nur geringer Druckerhöhung von 1 auf 1,3 bar. Bild A3-0-5 zeigt die zu der Radienveränderung in Bild A3-0-4 zugehörigen Änderungsgeschwindigkeiten und Beschleunigungen. Geschwindigkeit und Beschleunigung des Kollapses sind bei einem Systemdruck von 250 mbar geringer als bei 1 bar. Für 1,3 bar sind sie bei der gewählten Skalierung nicht mehr zu erkennen.

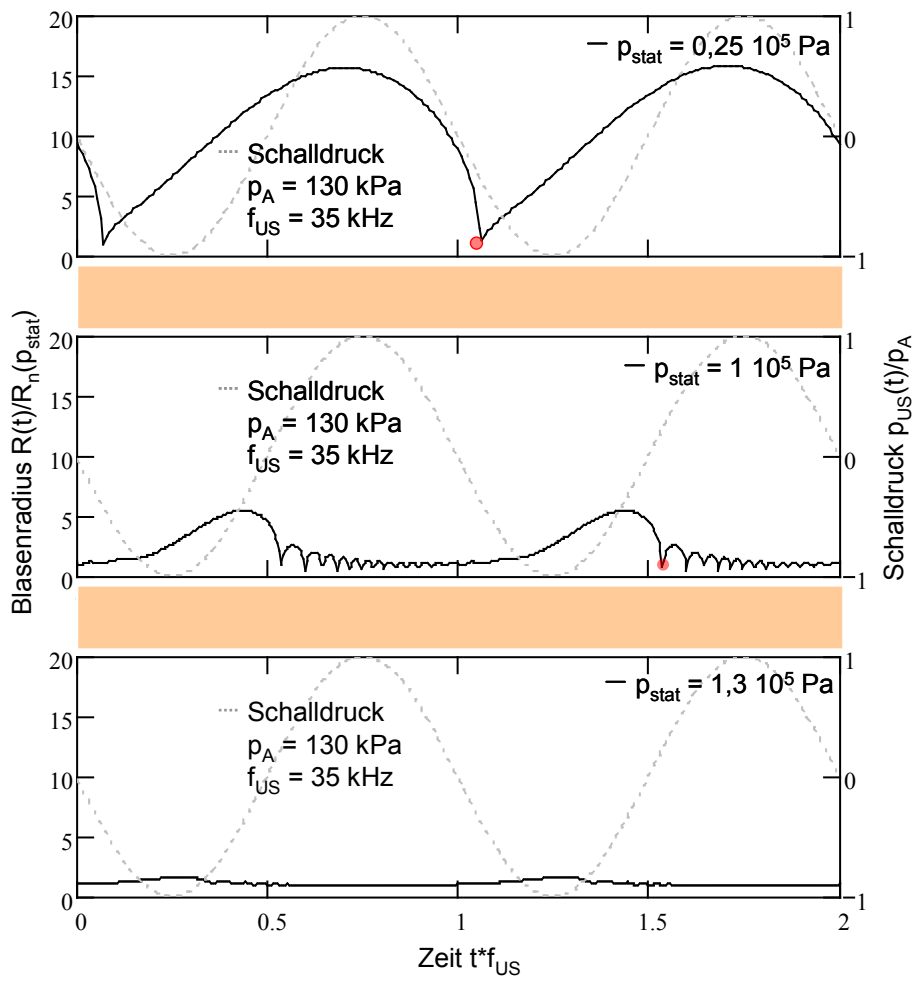


Bild A3-0-4: Blasenkolllaps bei unterschiedlichem Systemdruck

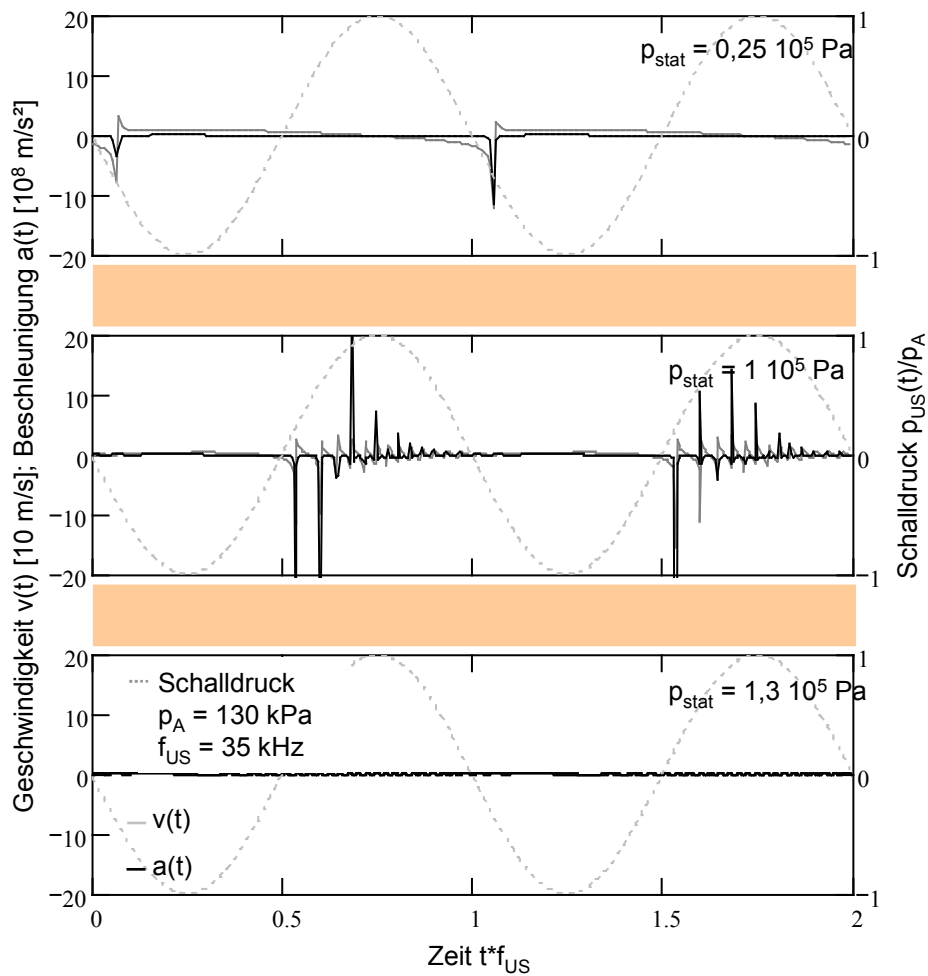


Bild A3-0-5: Geschwindigkeit und Beschleunigung des Blasenradius bei unterschiedlichem Systemdruck

Werden Systemdruck und Schalldruckamplitude der Anregung gemeinsam gesteigert, fällt der Blasen kollaps deutlich vehementer aus. Beim Durchgang durch die Ruhelage des Blasenradius ergeben sich mit dem Modell die Werte aus Tabelle A3-0-2.

Tabelle A3-0-2: Geschwindigkeit und Beschleunigung jeweils beim ersten Blasen kollaps (rote Punkte in Bild A3-0-4 und Bild A3-0-6)

	$v(R(t)/R_n = 1)$ [m/s]	$a(R(t)/R_n = 1)$ [10^8 m/s ²]
$p_{\text{stat}} = 0,25 \cdot 10^5$ Pa $p_A = 130$ kPa	-153	-21
$p_{\text{stat}} = 1 \cdot 10^5$ Pa $p_A = 130$ kPa	-98	-28
$p_{\text{stat}} = 2 \cdot 10^5$ Pa $p_A = 250$ kPa	-243	-199

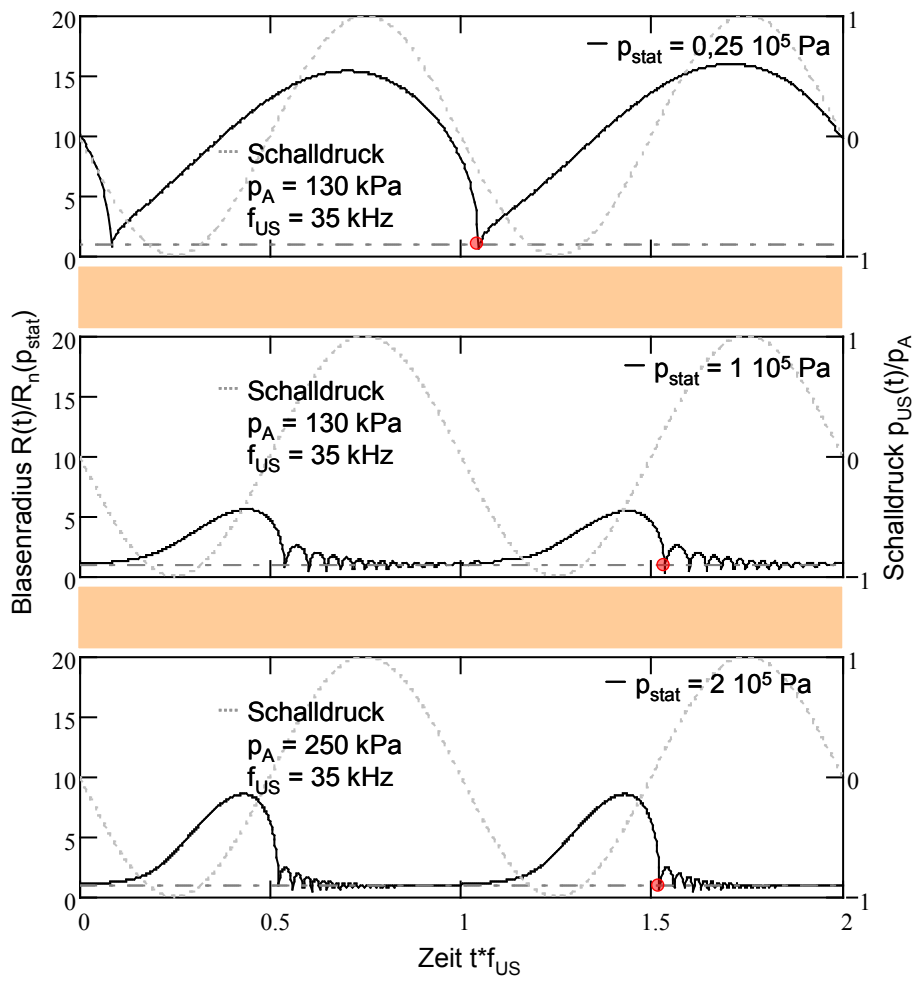


Bild A3-0-6: Blasen kollaps bei unterschiedlichem Systemdruck und Anregungsschalldruck

Detailansicht eines Blasenkollapses

Bild A3-0-7 zeigt den Blasenkollaps berechnet nach dem Keller-Miksis-Modell im Detail. Dabei lässt sich erkennen, dass der erste Kollaps die größte Steigung aufweist. Die nachfolgenden »Rebounds« um den Ruheradius werden immer weniger heftig, bis sie in ein sanftes sinusförmiges Schwingen um die Ruhelage übergehen.

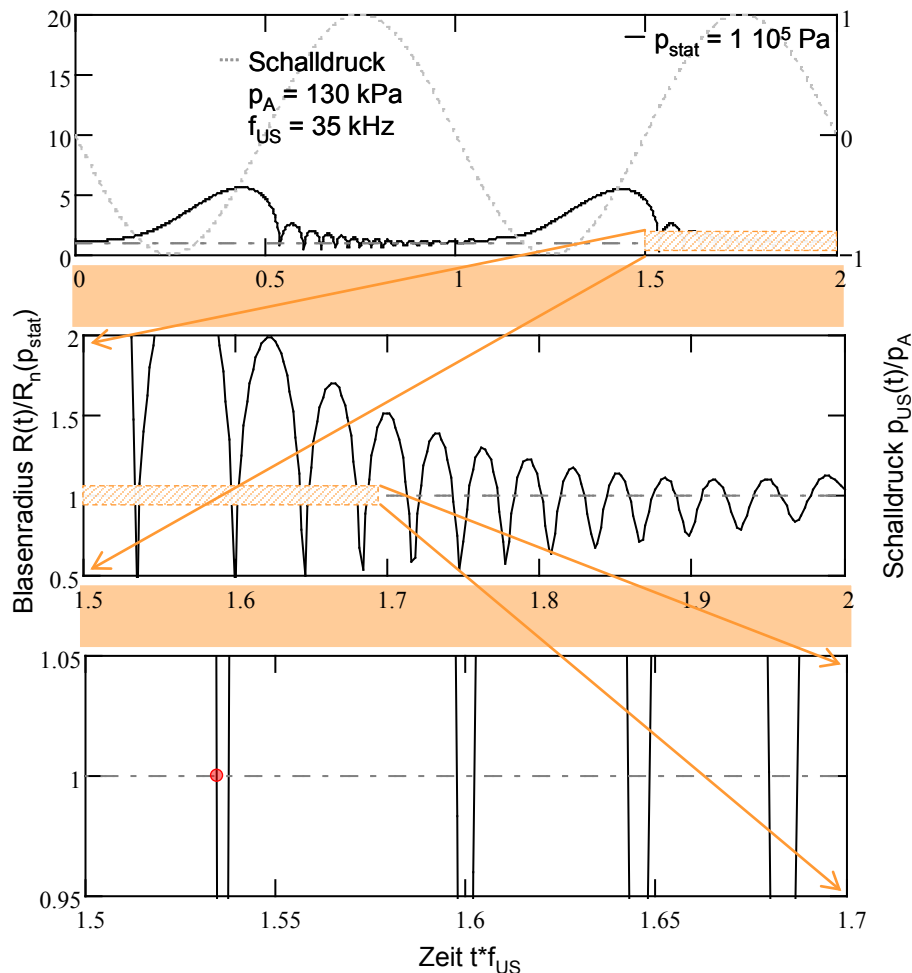


Bild A3-0-7: Detailansicht des ersten Blasenkollapses bei $p_{stat} = 1 \text{ bar}$, $f_{US} = 35 \text{ kHz}$ und $p_A = 130 \text{ kPa}$ (Parameter aus Tabelle A3-0-1).

Radialsymmetrische Blasendynamik bei unterschiedlicher Anfangsblasengröße

Wie in Kapitel 2.3.5 beschrieben durchläuft jede Blase einen Zyklus. Sie wächst bis zu einem kritischen Radius an, implodiert und teilt sich wieder, bleibt in einem Schallknoten gefangen oder sie wächst weiter an und steigt irgendwann aufgrund des Auftriebs nach oben. Somit ist in einem kavitierenden Schallfeld eine Verteilung unterschiedlicher Blasengrößen zu erwarten. Der Anteil gelöster Gase, der Systemdruck und die Temperatur entscheiden über die Gassättigung und damit die Anfangsgrößenverteilung der Blasen. Bild A3-0-8 zeigt das dynamische Verhalten unterschiedlich großer Blasen. Bei den gewählten Parametern schwingen sehr kleine Blasen in Phase mit der Anregungsdruckwelle. Blasen mit Ruheradien im Bereich von 5-10 μm zeigen ein heftiges Kollapsverhalten. Größere Blasen verhalten sich träger und erreichen im Verhältnis zu ihrem Ruheradius nicht so große maximale Ausdehnungen. Das Schwingungsverhalten der Blase

mit 100 µm Ruheradius ist 180° phasenverschoben zu dem erwartenden Verhalten gemäß des Anregungsschalldrucks.

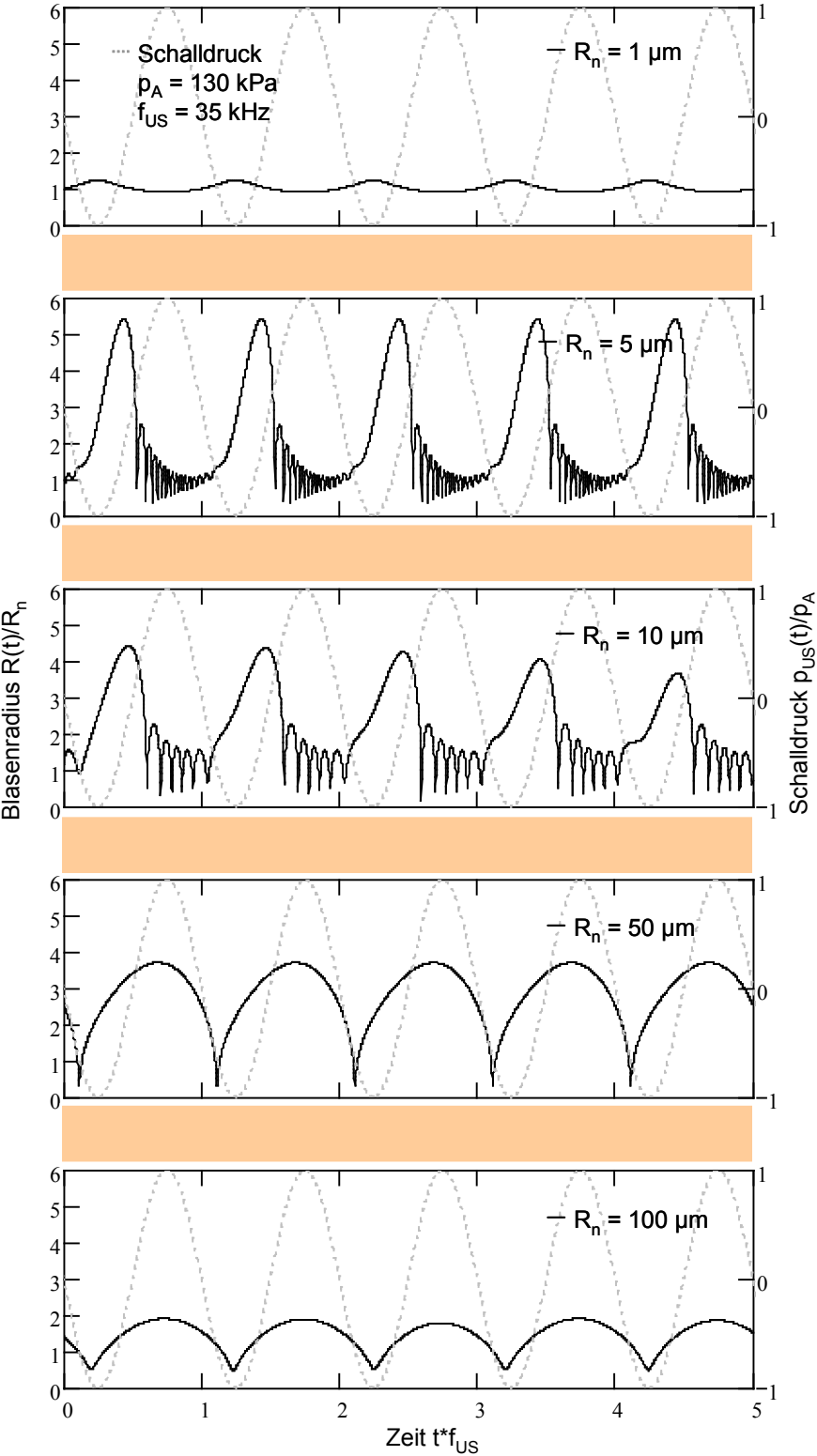


Bild A3-0-8: Blasendynamik für unterschiedliche Ruheradien der Blasen.

Radialsymmetrische Blasendynamik bei unterschiedlicher Temperatur bzw. Oberflächenspannung

Um die Temperaturabhängigkeit der Blasendynamik zu zeigen, wurden die Temperaturabhängigkeiten von Viskosität, Dichte und Oberflächenspannung vernachlässigt. In diesem Beispiel ändert sich mit der Temperatur lediglich der Sättigungsdampfdruck. Hierfür wurde die einfache Näherung nach H.G. Magnus (Sonntag 1982) genutzt. Bild A3-0-9 zeigt, dass mit steigender Temperatur höhere Maximalradien der Blase erreicht werden. Bild A3-0-9 lässt vermuten, dass auch die Heftigkeit des Kollapsverhaltens mit der höheren Temperatur wächst. In der Praxis werden höhere Temperaturen zur verbesserten Entgasung und zur Herabsetzung der Kavitationschwelle genutzt. Ein gegenläufiger Effekt besteht darin, dass die niedrigere Oberflächenspannung bei höheren Temperaturen die Heftigkeit des Blasenkolapses verringert.

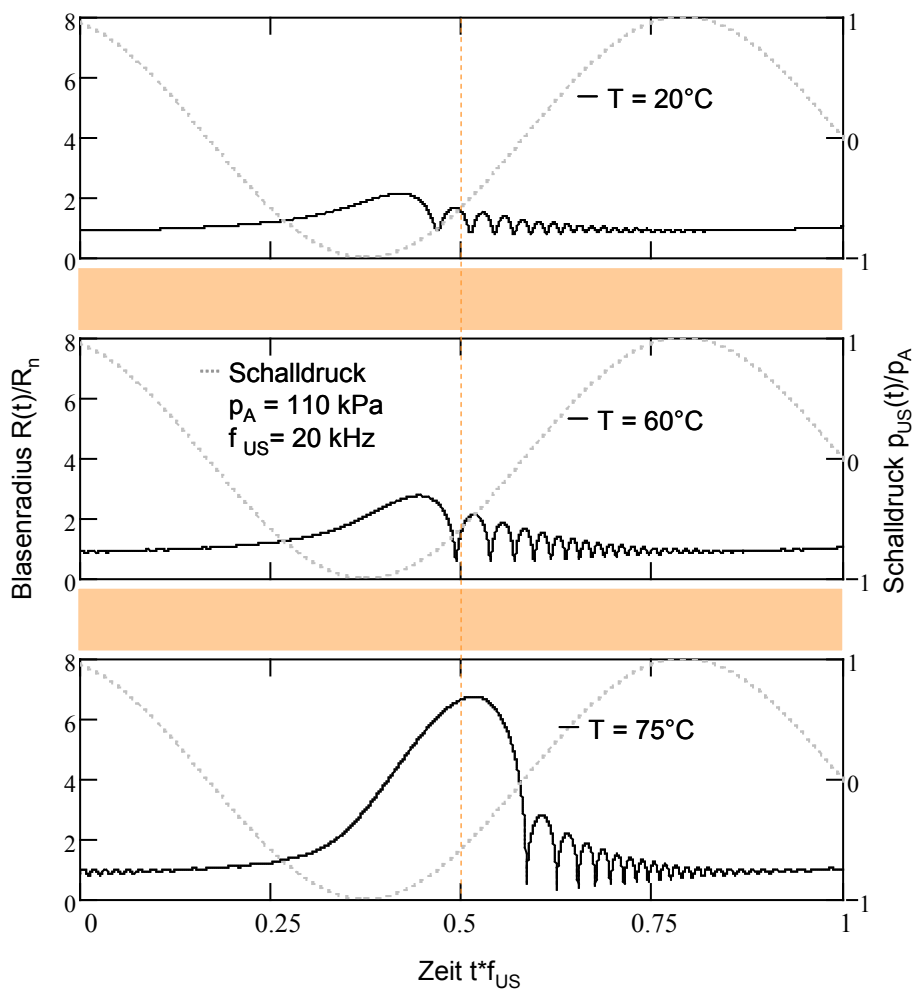


Bild A3-0-9: Blasendynamik für wachsende Temperatur

Anhang 4 - Analyse der Schwellenwerte für Kavitation

Bild A4-0-1 zeigt den Einfluss der Oberflächenspannung. Eine Erniedrigung der Oberflächenspannung wirkt sich vor allem bei kleinen Radien der Anfangsblasen mit einer deutlichen Verringerung der Kavitationsschwelle aus.

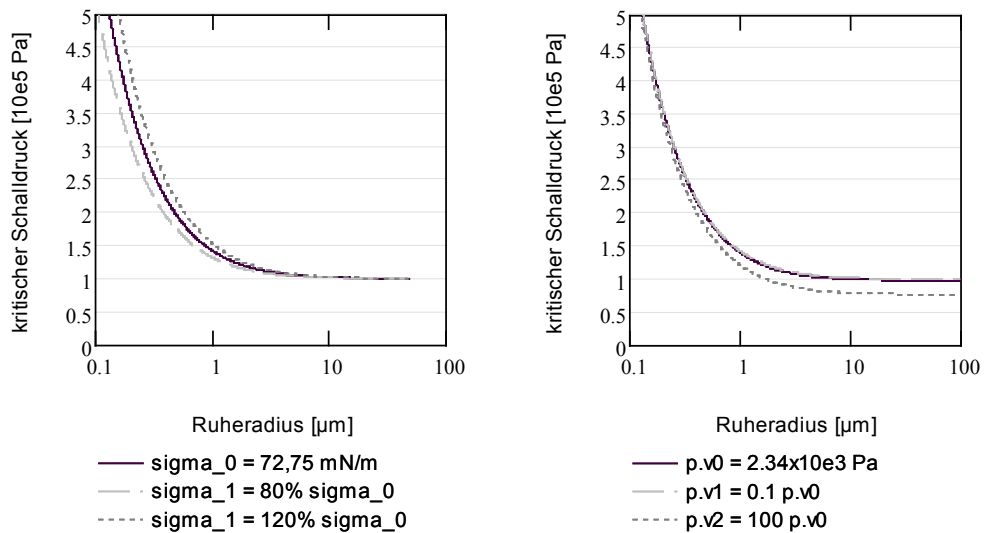


Bild A4-0-1: Parameterabhängigkeit der Kavitationsschwelle: Oberflächenspannung und Dampfdruck; Parameter für die Auswertung siehe

Tabelle 2-3

Setzt man für den Sättigungsdampfdruck in Glg. 2-4 die einfache Näherung nach H.G. Magnus (Sonntag 1982) ein, lässt sich die Temperaturabhängigkeit darstellen (siehe Bild A4-0-2). Es zeigt sich, dass für Temperaturen größer 50°C die Kavitationsschwelle stark sinkt.

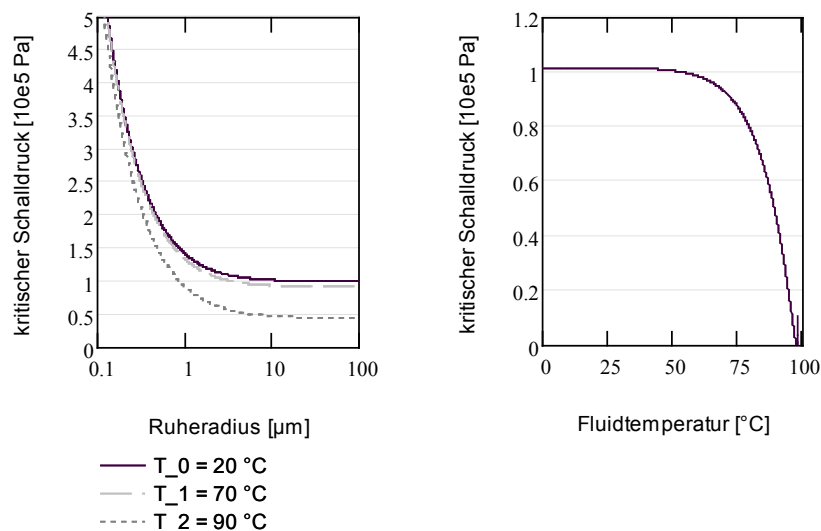


Bild A4-0-2: Parameterabhängigkeit der Kavitationsschwelle von der Fluidtemperatur; Parameter für die Auswertung siehe Tabelle 2-3.

Anhang 5 - Rohwasseranalyse »Dreisam«

Am Biofilm Centre der Universität Duisburg durchgeführte Rohwasseranalyse des Fließgewässers Dreisam in Freiburg. Zur Charakterisierung des Rohwassers wurden folgende Untersuchungen durchgeführt:

- Bestimmung mikrobiologischer Parameter (Gesamtzellzahl, Koloniezahl bei 20 °C und 36 °C, *Escherichia coli* und coliforme Bakterien) am Biofilm Centre (vgl. Tabelle A5-0-1),
- Bestimmung physikalischer und chemischer Parameter in Anlehnung an die Rohwasserrichtlinie Nordrhein-Westfalen, Parametergruppe I, am Rheinisch-Westfälischen Institut für Wasserforschung (IWW; Mülheim an der Ruhr; vgl. Tabelle A5-0-1) und
- eine differenzierte Analytik des gesamten organischen Kohlenstoffs (TOC) mit dem LC-OCD Verfahren im DOC-Labor Dr. Huber (Karlsruhe).

Bei Vergleich mit den Anforderungen gemäß der Trinkwasserverordnung (vom 21.05.2001) lagen die physikalischen und chemischen Parameter meist deutlich unter den entsprechenden Grenzwerten, mit Ausnahme der erhöhten Werte der Trübung für die Dreisam. *E. coli* (Indexorganismus für fäkale Verunreinigungen) wurde nachgewiesen, was auf den Eintrag von Material fäkaler Herkunft in dem Gewässer hinweist. Die Gesamtzellzahlen und die Gehalte an *E. coli* und coliformen Bakterien sind vergleichbar mit Befunden anderer anthropogen mäßig beeinflusster Fließgewässer.

Tabelle A5-0-1: Physikalisch chemische und mikrobiologische Parameter des Rohwassers (Dreisam). Die Angabe von *Escherichia coli* und coliformen Bakterien erfolgte methodenbedingt in MPN (most probable number, der wahrscheinlichsten Keimzahl).

Parameter	Einheit	Dreisam
Temperatur	°C	7,4
pH-Wert		6,8
Elektr. Leitfähigkeit bezogen auf 20 °C	µS/cm	106
Trübung	NTU	1,5
Spektraler Absorptionskoeffizient bei 254 nm	1/m	4,8
Säurekapazität bis pH 4,3 berechnet als Karbonathärte	mmol/L	0,58
Basekapazität bis pH 8,2 berechnet als freie Kohlensäure	mmol/L	0,01
Nitrit	mg/L	< 0,02
Nitrat	mg/L	7,3
Ammonium	mg/L	< 0,02
Chlorid	mg/L	8,2
Sulfat	mg/L	8,4
Natrium	mg/L	6,6
Kalium	mg/L	1,2
Calcium	mg/L	11,6
Magnesium	mg/L	2,3
Phosphor, gesamt	mg/L	< 0,03
Phosphat, gesamt	mg/L	n. b.
Eisen, gesamt	mg/L	0,078
Mangan, gesamt	mg/L	< 0,01
DOC	mg/L	1,7
Gesamtzellzahl	Zellen/mL	$2,29 \cdot 10^5$
Koloniezahl 20 °C	KBE/mL	$2,38 \cdot 10^3$
Koloniezahl 36 °C	KBE/mL	$7,40 \cdot 10^2$
<i>Escherichia coli</i>	MPN/100 mL	$4,10 \cdot 10^1$
Coliforme Bakterien	MPN/100 mL	$1,08 \cdot 10^3$

Über 80% des TOC bildeten refraktäre organische Stoffe (Huminstoffe, »Building Blocks«, partikulärer organischer Kohlenstoff), während der Anteil biogener Stoffe maximal 20% des TOC ausmachten. Die Huminstoffe lagen im Bereich pedogener Fulvinsäuren und stammten aus Auswaschungen von Böden. Aufgrund der Daten kann geschlossen werden, dass der Eintrag von Direkteinleitern in die Dreisam nur gering war.

Literaturverzeichnis

Altmann 2000 ALTMANN, J.: *Partikelablagerung und Deckschichtbildung an überströmten Membranen*. Technische Universität Dresden, Dissertation, 2000.

Apfel 1981a APFEL, R. E.: *Acoustic Cavitation*. In: EDMONDS, P. MARTON, C. (Hrsg.): *Methods of Experimental Physics*. New York: Academic Press, 1981a.

Apfel 1981b APFEL, R. E.: *Acoustic cavitation prediction*. In: *The Journal of the Acoustical Society of America*, 69 (1981b), S. 1624-1633

Avvaru 2008 AVVARU, B.; PANDIT, A. B.: *Experimental investigation of cavitation bubble dynamics under multi-frequency system*. In: *Ultrasonics Sonochemistry*, 15 (2008), S. 578-589

Awad 2002 AWAD, S. B.: *Particle removal with ultrasonic and megasonic*. In: MITTAL, K. L. (Hrsg.): *Particles on surfaces: Detection, Adhesion and Removal*. Utrecht: Brill Academic Publishers, 2002.

Babick 2005 BABICK, F.: *Schallspektroskopische Charakterisierung von submikronen Emulsionen*. Technische Universität Dresden, Dissertation, 2005.

Benjamin 1966 BENJAMIN, T. B.; ELLIS, A. T.: *The Collapse of Cavitation Bubbles and the Pressures thereby Produced against Solid Boundaries*. In: *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences*, 260 (1966), S. 221-240

Best 1994 BEST, J. P.; BLAKE, J. R.: *An estimate of the Kelvin impulse of a transient cavity*. In: *Journal of Fluid Mechanics Digital Archive*, 261 (1994), S. 75-93

Bjerknes 1906 BJERKNES, V. F. K.: *Fields of Force*. In: Columbia University Press, New York, 84 (1906),

Blake 1949 BLAKE, F. G.: *Onset of cavitation in liquids*. Harvard University, Dissertation, 1949.

Blake 1988 BLAKE, J. R.: *The Kelvin impulse: application to cavitation bubble dynamics*. In: *The ANZIAM Journal*, 30 (1988), S. 127-146

Blake 2001 BLAKE, J. R.; PEARSON, A.; OTTO, S. R.: *Boundary Integral Methods for Cavitation Bubbles Near Boundaries*. CAV 2001: Fourth International Symposium on Cavitation, June 20-23, 2001, California Institute of Technology, Pasadena, CA USA: 2001,

Blake 1986 BLAKE, J. R.; TAIB, B. B.; DOHERTY, G.: *Transient cavities near boundaries. Part 1. Rigid boundary*. In: *Journal of Fluid Mechanics Digital Archive*, 170 (1986), S. 479-497

BMI 2010 BMI: *Magermilchpulver*. http://www.bmi-eg.com/de_milchpulver.php. - Aktualisierungsdatum: 09.März.2010

Borkent 2008 BORKENT, B. M.; ARORA, M.; OHL, C.-D.; DE JONG, N.; VERSLUIS, M.; LOHSE, D.; MØRCH, K. A.; KLASEBOER, E.; KHOO, B. C.: *The acceleration of solid particles subjected to cavitation nucleation*. In: *Journal of Fluid Mechanics*, 610 (2008), S. 157-182

- Brennen 1995** BRENNEN, C. E.: *Cavitation and Bubble Dynamics*. McGraw Hill, 1995.
- Brujan 2001** BRUJAN, E.-A.; NAHEN, K.; SCHMIDT, P.; VOGEL, A.: *Dynamics of laser-induced cavitation bubbles near elastic boundaries: influence of the elastic modulus*. In: *Journal of Fluid Mechanics*, 433 (2001), S. 283-314
- Brujan 2005** BRUJAN, E. A.; PEARSON, A.; BLAKE, J. R.: *Pulsating, buoyant bubbles close to a rigid boundary and near the null final Kelvin impulse state*. In: *International Journal of Multi-phase Flow*, 31 (2005), S. 302-317
- Busnaina 2002** BUSNAINA, A. A.; LIN, H.: *The physical removal of nanoscale particles from surfaces*. International Symposium on Micro/Nanoscale Energy Conversion and Transport Phenomena. Antalya, Turkey: 2002,
- Ming 2009** CAI, M.; WANG, S.; ZHENG, Y.; LIANG, H.: *Effects of ultrasound on ultrafiltration of Radix astragalus extract and cleaning of fouled membrane*. In: *Separation and Purification Technology*, 68 (2009), S. 351-356
- Chai 1998** CHAI, X.; KOBAYASHI, T.; FUJII, N.: *Ultrasound effect on cross-flow filtration of polyacrylonitrile ultrafiltration membranes*. In: *Journal of Membrane Science*, 148 (1998), S. 129-135
- Chai 1999** CHAI, X.; KOBAYASHI, T.; FUJII, N.: *Ultrasound-associated cleaning of polymeric membranes for water treatment*. In: *Separation and Purification Technology*, 15 (1999), S. 139-146
- Chen 2002** CHEN, D.; WEAVERS, L. K.: *Sound Cleans Up Water Purification*. In: *Nature*, (15. Mai 2002), S. S.1-S.2
- Chen 2006a** CHEN, D.; WEAVERS, L. K.; WALKER, H. W.: *Ultrasonic control of ceramic membrane fouling: Effect of particle characteristics*. In: *Water Research*, 40 (2006a), S. 840 - 850
- Chen 2006b** CHEN, D.; WEAVERS, L. K.; WALKER, H. W.: *Ultrasonic control of ceramic membrane fouling by particles: Effect of ultrasonic factors*. In: *Ultrasonics Sonochemistry*, 13 (2006b), S. 379-387
- Chen 2006c** CHEN, D.; WEAVERS, L. K.; WALKER, H. W.; LENHART, J. J.: *Ultrasonic control of ceramic membrane fouling caused by natural organic matter and silica particles*. In: *Journal of Membrane Science*, 276 (2006c), S. 135-144
- Dahlem 1999** DAHLEM, O.; REISSE, J.; HALLOIN, V.: *The radially vibrating horn: A scaling-up possibility for sonochemical reactions*. In: *Chemical Engineering Science*, 54 (1999), S. 2829-2838
- Deryaguin 1941** DERYAGUIN, B. V.; LANDAU, L. D.: *Theory of the stability of strongly charged hydrophobic sols and the adhesion of strongly charged particles in solution electrolytes*. In: *Acta Physicochim. URSS* 14, 14 (1941), S. 633
- Dijkink 2008a** DIJKINK, R.; GAC, S. L.; NIJHUIS, E.; BERG, A. V. D.; VERMES, I.; POOT, A.; OHL, C.-D.: *Controlled cavitation-cell interaction: trans-membrane transport and viability studies*. In: *Physics in Medicine and Biology*, 53 (2008a), S. 375-390

Dijkink 2008c DIJKINK, R.; OHL, C.-D.: *Laser-induced cavitation based micropump*. In: Lab on a Chip, 8 (2008b), S. 1676-1681

Dijkink 2008b DIJKINK, R.; OHL, C.-D.: *Measurement of cavitation induced wall shear stress*. In: Applied Physics Letters, 93 (2008c), S. 254107-3

Ebrahim 1994 EBRAHIM, S.: *Cleaning and regeneration of membranes in desalination and wastewater applications: State-of-the-art*. In: Desalination, 96 (1994), S. 225-238

Eckart 1948 ECKART, C.: *Vortices and Streams Caused by Sound Waves*. In: Physical Review, 73 (1948), S. 68-76

Eisenmenger 1991 EISENMENGER, W.; J., S.: *Sampling hydrophone. United States Patent: Patent number 5,010,248* (1991)

Eisenmenger 2010 EISENMENGER, W.; PECHA, R.: *Hydrophile Kavitationskeime*. DAGA 2010. Berlin: 2010,

Flachskampf 2007 FLACHSKAMPF, F. A.: *Sonotrombolysis*. Workshop Kavitation in Technik und Medizin: Beschreibung und Quantifizierung. Bad Honnef: 2007,

Glauert 1956 GLAUERT, M. B.: *The wall jet*. In: Journal of Fluid Mechanics Digital Archive, 1 (1956), S. 625-643

Gogate 2004 GOGATE, P. R.; PANDIT, A. B.: *Sonochemical reactors: scale up aspects*. In: Ultrasonics Sonochemistry; 4th Conference on the Applications of Power Ultrasound in Physical and Chemical Processing, 11 (2004), S. 105-117

Hanselka 2003 HANSELKA, H.; BREITBACH, E.: *Leitprojekt Adaptronik. Adaptive Verbundstrukturen für den Leichtbau - strukturkonform integrierte piezoelektrische Fasern und Folien*. Braunschweig (2003), Schlussbericht

Harmant 1998 HARMANT, P.; AIMAR, P.: *Coagulation of colloids in a boundary layer during cross-flow filtration*. In: Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 138 (1998), S. 217-230

Hilal 2005b HILAL, N.; OGUNBIYI, O. O.; MILES, N. J.; NIGMATULLIN, R.: *Methods Employed for Control of Fouling in MF and UF Membranes: A Comprehensive Review*. In: Separation Science and Technology, 40 (2005), S. 1957 - 2005

Horst 1997 HORST, C.: *Ultraschallreaktoren zur Durchführung von heterogenen Flüssig-Feststoffreaktionen: Entwurf, Betrieb und Modellierung einer Versuchsanlage zur Darstellung von Grignardverbindungen*. Technische Universität Clausthal, Dissertation, 1997.

Ishida 2001 ISHIDA, H.; NUNTADUSIT, C.; KIMOTO, H.; NAKAGAWA, T.; YAMAMOTO, T.: *Cavitation Bubble Behavior Near Solid Boundaries*. CAV 2001: Fourth International Symposium on Cavitation, June 20-23, 2001. California Institute of Technology, Pasadena, CA USA.: 2001,

ITN 2009 ITN: *CFM Systems*. http://www.cfm-systems.com/front_content.php?idcat=45. - Aktualisierungsdatum: 12.2.2009

Junge 2003 JUNGE, L.; OHL, C. D.; WOLFRUM, B.; ARORA, M.; IKINK, R.: *Cell detachment method using shock-wave-induced cavitation*. In: *Ultrasound in Medicine & Biology*, 29 (2003), S. 1769-1776

Kaulitzky 1999 KAULITZKY, J.: *Untersuchungen zur Regeneration herkömmlicher und neuartiger Filtermaterialien zur Tiefenfiltration trübstoffbelasteter Wässer*. Gerhard-Mercator-Universität - Gesamthochschule Duisburg, Dissertation, 1999.

Keller 1956 KELLER, J. B.; KOLODNER, I. I.: *Damping of underwater explosion bubble oscillations*. In: *Journal of Applied Physics*, 27 (1956), S. 1152-1161

Keller 1980 KELLER, J. B.; MIKISIS, M.: *Bubble oscillations of large amplitude*. In: *Journal of Acoustic Society of America*, 68 (1980), S. 628-633

Kim 2009 KIM, W.; KIM, T.-H.; CHOI, J.; KIM, H.-Y.: *Mechanism of particle removal by megasonic waves*. In: *Applied Physics Letters*, 94 (2009), S. 081908-081908-3

Knapp 1970 KNAPP, R. T.; DAILY, J. W.; HAMMITT, F. G.: *Cavitation*. New York: McGraw Hill, 1970.

Kobayashi 1999 KOBAYASHI, T.; CHAI, X.; FUJII, N.: *Ultrasound enhanced cross-flow membrane filtration*. In: *Separation and Purification Technology*, 17 (1999), S. 31-40

Kobayashi 2000 KOBAYASHI, T.; KOBAYASHI, T.; FUJII, N.: *Effect of Ultrasound on Enhanced Permeability During Membrane Water Treatment*. In: *Japanese Journal of Applied Physics*, 39 (2000), S. 2980 LP - 2981

Kobayashi 2003 KOBAYASHI, T.; KOBAYASHI, T.; HOSAKA, Y.; FUJII, N.: *Ultrasound-enhanced membrane-cleaning processes applied water treatments: influence of sonic frequency on filtration treatments*. In: *Ultrasonics*, 41 (2003), S. 185-190

Koch 2008 KOCH, C.; JENDERKA, K.-V.: *Measurement of Sound Field in Cavitating Media by an Optical Fibre-Tip Hydrophone*. In: *Ultrasonics Sonochemistry*, 15 (2008), S. 502-509.

Koch 2010 KOCH, C.; JENDERKA, K.-V.: *Objektive Parameter zur Bestimmung der Wirkung von Kavitation*. DAGA 2010. Berlin: 2010,

Koch 2006 KOCH, P.: *Partikelmodellierung der Strukturbildung akustischer Kavitationsblasen in Wechselwirkung mit dem Schalldruckfeld*. Georg-August-Universität zu Göttingen, Dissertation, 2006.

Kodama 2000 KODAMA, T.; TOMITA, Y.: *Cavitation bubble behavior and bubble-shock wave interaction near a gelatin surface as a study of in vivo bubble dynamics*. In: *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 70 (2000), S. 139-149

Köhler 1999 KÖHLER, M.: *Blasendynamik und Erosion bei akustischer Kavitation*. Aachen: Shaker Verlag, 1999.

Krefting 2003 KREFTING, D.: *Untersuchung von Einzel- und Mehrblasensystemen in akustischen Resonatoren*. Georg-August-Universität, Dissertation, 2003.

Krefting 2002 KREFTING, D.; METTIN, R.; LAUTERBORN, W.: *Kräfte in akustischen Kavitationsfeldern*. Fortschritte der Akustik -DAGA 2002. Oldenburg: 2002, S. 260-261

- Krefting 2004** KREFTING, D.; METTIN, R.; LAUTERBORN, W.: *High-speed observation of acoustic cavitation erosion in multibubble systems*. In: *Ultrasonics Sonochemistry*; 4th Conference on the Applications of Power Ultrasound in Physical and Chemical Processing, 11 (2004), S. 119-123
- Kurz 2007** KURZ, T.; PARLITZ, U.; KAATZE, U.: *Oscillations, Waves and Interactions - Sixty Years* Drittes Physikalisches Institut. Göttingen: Universitätsverlag Göttingen, 2007.
- Kuttruff 1988** KUTTRUFF, H.: *Physik und Technik des Ultraschalls*. Stuttgart: Hirzel, 1988.
- Kyllönen 2005** KYLLÖNEN, H.; P., P.; NYSTRÖM, M.: Aspects in ultrasonically enhanced cross-flow membrane filtration of industrial wastewater. In: NEIS, U. (Hrsg.): *Ultrasound in Environmental Engineering III*. Hamburg: TUHH, 2005a.
- Kyllönen 2006** KYLLÖNEN, H.; PIRKONEN, P.; NYSTRÖM, M.; NUORTILA-JOKINEN, J.; GRÖNROOS, A.: *Experimental aspects of ultrasonically enhanced cross-flow membrane filtration of industrial wastewater*. In: *Ultrasonics Sonochemistry*, 13 (2006), S. 295-302
- Kyllönen 2005** KYLLÖNEN, H. M.; PIRKONEN, P.; NYSTRÖM, M.: *Membrane filtration enhanced by ultrasound: a review*. In: *Desalination*, 181 (2005b), S. 319-335
- Lamminen 2004** LAMMINEN, M. O.; WALKER, H. W.; WEAVERS, L. K.: *Mechanisms and factors influencing the ultrasonic cleaning of particle-fouled ceramic membranes*. In: *Journal of Membrane Science*, 237 (2004), S. 213-223
- Lamminen 2006a** LAMMINEN, M. O.; WALKER, H. W.; WEAVERS, L. K.: *Cleaning of particle-fouled membranes during cross-flow filtration using an embedded ultrasonic transducer system*. In: *Journal of Membrane Science*, 283 (2006a), S. 225-232
- Lamminen 2006b** LAMMINEN, M. O.; WALKER, H. W.; WEAVERS, L. K.: *Effect of Fouling Conditions and Cake Layer Structure on the Ultrasonic Cleaning of Ceramic Membranes*. In: *Separation Science and Technology*, 41 (2006b), S. 3569-3584
- Landau 1991** LANDAU, L. D.; M.LIFSCHITZ, E.: *Hydrodynamik*. Berlin: Akademie Verlag, 1991.
- Latt 2006** LATT, K. K.; KOBAYASHI, T.: *Ultrasound-membrane hybrid processes for enhancement of filtration properties*. In: *Ultrasonics Sonochemistry*, 13 (2006), S. 321-328
- Lauterborn 2008** LAUTERBORN, S.; URBAN, W.: *Ultrasonic cleaning of submerged membranes for drinking water applications*. Acoustics. Paris: 2008, S. 2603-2608
- Lauterborn 1980** LAUTERBORN, W.: *Cavitation and Inhomogeneities in Underwater Acoustics*. Heidelberg: Springer Verlag, 1980.
- Lauterborn 2004** LAUTERBORN, W.: Untersuchung von Kavitationsfeldern, Teilprojekt Beschreibung von akustischen Kavitationsfeldern. Verbundprojekt. Göttingen: 2004a.
- Lauterborn 2004** LAUTERBORN, W.: Untersuchung von Kavitationsfeldern. Teilprojekt: Steuerung von akustischen Kavitationsfeldern ; Verbundprojekt ; Schlussbericht. Göttingen [u.a.]: 2004b.

Lauterborn 1975 LAUTERBORN, W.; BOLLE, H.: *Experimental Investigations of Cavitation-Bubble Collapse in the Neighbourhood of a Solid Boundary*. In: Journal of Fluid Mechanics, 72 (1975), S. 391-399

Lauterborn 1999 LAUTERBORN, W.; KURZ, T.; METTIN, R.; OHL, C.-D.: *Experimental and theoretical bubble dynamics*. In: Advances in Chemical Physics; John Wiley & Sons, 110 (1999), S. 295-380

Leighton 1994 LEIGHTON, T. G.: *The Acoustic Bubble*. London: Academic Press, 1994.

Li 2003 LI, J.; HALLBAUER, D. K.; SANDERSON, R. D.: Direct monitoring of membrane fouling and cleaning during ultrafiltration using a non-invasive ultrasonic technique. In: Journal of Membrane Science, 215 (2003), S. 33-52

Li 2002 LI, J.; SANDERSON, R. D.; JACOBS, E. P.: *Ultrasonic cleaning of nylon microfiltration membranes fouled by Kraft paper mill effluent*. In: Journal of Membrane Science, 205 (2002), S. 247-257

Lohrberg 2002 LOHRBERG, H.: Messung und aktive Kontrolle der erosiven Aggressivität der Kavitation in Turbomaschinen. Technische Universität Darmstadt, Dissertation, 2002.

Luonsi 2002 LUONSI, A.; LAITINEN, N.; BEYER, K.; LEVÄNEN, E.; POUSSADE, Y.; NYSTRÖM, M.: *Separation of CTMP mill-activated sludge with ceramic membranes*. In: Desalination, 146 (2002), S. 399-404

Maas 2008 MAAS, R.: Beitrag zur numerischen und experimentellen Untersuchung des Schall- und Strömungsfeldes bei der Klärschlamm-Desintegration mit Ultraschall. Universität Dresden, Fakultät Maschinenwesen, Dissertation, 2008.

Magyari 2004 MAGYARI, E.; KELLER, B.: *The algebraically decaying wall jet*. In: European Journal of Mechanics - B/Fluids, 23 (2004), S. 601-605

Maskooki 2008 MASKOOKI, A.; KOBAYASHI, T.; MORTAZAVI, S. A.; MASKOOKI, A.: *Effect of low frequencies and mixed wave of ultrasound and EDTA on flux recovery and cleaning of microfiltration membranes*. In: Separation and Purification Technology, 59 (2008), S. 67-73

Masselin 2001 MASSELIN, I.; CHASSERAY, X.; DURAND-BOURLIER, L.; LAINÉ, J.-M.; SYZARET, P.-Y.; LEMORDANT, D.: *Effect of sonication on polymeric membranes*. In: Journal of Membrane Science, 181 (2001), S. 213-220

Matsumoto 1996 MATSUMOTO, Y.; MIWA, T.; NAKAO, S.-I.; KIMURA, S.: *Improvement of Membrane Permeation Performance by Ultrasonic Microfiltration*. In: JOURNAL OF CHEMICAL ENGINEERING OF JAPAN, 29 (1996), S. 561-567

McLaughlin 1993 MCLAUGHLIN, J. B.: *The lift on a small sphere in wall-bounded linear shear flows*. In: Journal of Fluid Mechanics Digital Archive, 246 (1993), S. 249-265

Mettin 2005 METTIN, R.: Bubble structures in acoustic cavitation. In: DOINIKOV, A. A. (Hrsg.): Bubble and Particle Dynamics in Acoustic Fields: Modern Trends and Applications. Research Signpost, Kerala (India), 2005.

Mettin 1999 METTIN, R.; LUTHER, S.; LAUTERBORN, W.: *Bubble size distributions and structures in acoustic cavitation*. 2nd Conference on Applications of power ultrasound in physical and chemical processing. Toulouse, France: 1999, S. 125-129

Minnaert 1933 MINNAERT, M.: *On musical air-bubbles and the sounds of running water*. In: *Phil.Mag.*, 16 (1933), S. 235-248

Mitome 1998 MITOME, H.: *The Mechanism of Generation of Acoustic Streaming*. In: *Electronics and Communications in Japan*, 81 (1998), S. S.1-S.6

Muthukumar 2005a MUTHUKUMARAN, S.; KENTISH, S.; LALCHANDANI, S.; ASHOKKUMAR, M.; MAWSON, R.; STEVENS, G. W.; GRIESER, F.: *The optimisation of ultrasonic cleaning procedures for dairy fouled ultrafiltration membranes*. In: *Ultrasonics Sonochemistry*; Ninth Conference of the European Society of Sonochemistry, 12 (2005a), S. 29-35

Muthukumar 2005b MUTHUKUMARAN, S.; KENTISH, S. E.; ASHOKKUMAR, M.; STEVENS, G. W.: *Mechanisms for the ultrasonic enhancement of dairy whey ultrafiltration*. In: *Journal of Membrane Science*, 258 (2005b), S. 106-114

Muthukumar 2007 MUTHUKUMARAN, S.; KENTISH, S. E.; STEVENS, G. W.; ASHOKKUMAR, M.; MAWSON, R.: *The application of ultrasound to dairy ultrafiltration: The influence of operating conditions*. In: *Journal of Food Engineering*, 81 (2007), S. 364-373

Muthukumar 2004 MUTHUKUMARAN, S.; YANG, K.; SEUREN, A.; KENTISH, S.; ASHOKKUMAR, M.; STEVENS, G. W.; GRIESER, F.: *The use of ultrasonic cleaning for ultrafiltration membranes in the dairy industry*. In: *Separation and Purification Technology*; Selected Papers from the 9th APPChE Conference, September 2002, Christchurch, New Zealand, 39 (2004), S. 99-107

Neppiras 1980 NEPPIRAS, E. A.: *Acoustic cavitation*. In: *Physics Reports*, 61 (1980), S. 159-251

Nowak 2007 NOWAK, T.; METTIN, R.; LAUTERBORN, W.: *Untersuchung von Kavitation an sehr kleinen Ultraschallwandlern*. 33. Jahrestagung der Akustik. Stuttgart: 2007,

Nowak 2009 NOWAK, T.; METTIN, R.; LAUTERBORN, W.: *Bubble motion and jetting at sonotrodes*. NAG/DAGA 2009, International Conference on Acoustics. Rotterdam: 2009, S. 712-714

Ohl 2006a OHL, C.-D.; ARORA, M.; DIJKINK, R.; JANVE, V.; LOHSE, D.: *Surface cleaning from laser-induced cavitation bubbles*. In: *Applied Physics Letters*, 89 (2006a), S. 074102

Ohl 2006b OHL, C.-D.; ARORA, M.; IKINK, R.; DE JONG, N.; VERSLUIS, M.; DELIUS, M.; LOHSE, D.: *Sonoporation from Jetting Cavitation Bubbles*. In: *Biophysical Journal*, 91 (2006b), S. 4285-4295

Ohl 2003 OHL, C.-D.; WOLFRUM, B.: *Detachment and sonoporation of adherent HeLa-cells by shock wave-induced cavitation*. In: *Biochimica et Biophysica Acta (BBA) - General Subjects*, 1624 (2003), S. 131-138

Ory 2000 ORY, E.; YUAN, H.; PROSPERETTI, A.; POPINET, S.; ZALESKI, S.: *Growth and collapse of a vapor bubble in a narrow tube*. In: *Physics of Fluids*, 12 (2000), S. 1268-1277

Otto 2009 OTTO, A.; NOWAK, T.; METTIN, R.; HOLSTEYNS, F.; A.LIPPERT: *Comparison of cavitation bubble arrays at different frequencies*. NAG/DAGA 2009, International Conference on Acoustics. Rotterdam: 2009, S. 1350-1353

Otto 2008 OTTO, A.; NOWAK, T.; METTIN, R.; HOLSTEYNS, F.; LIPPERT, A.: *Untersuchungen zur Kavitation und Reinigung bei Megaschall*. 34. Jahrestagung der Akustik. Dresden: 2008,

Panglisch 2001 PANGLISCH, S.: Zur Bildung und Vermeidung schwer entfernbare Partikelablagerungen in Kapillarmembranen bei der Dead-End-Filtration. Dissertationen aus dem IWW, Dissertation, 2001.

Pantokratoras 2009 PANTOKRATORAS, A.: *The nonsimilar laminar wall jet with uniform blowing or suction: New results*. In: Mechanics Research Communications, 36 (2009), S. 747-753

Pecha 2010 PECHA, R.: *Faseroptisches Sondenhydrophon FOPH 2000*. http://www.rp-acoustics.de/deutsch/FOPH2000_d.htm. - Aktualisierungsdatum: 2.April 2010

Pirkonen 2001 PIRKONEN, P.: *Ultrasound in filtration and sludge dewatering*. In: Advances in Sonochemistry, 6 (2001), S. S.222-S.243

Plesset 1971 PLESSET, M. S.; CHAPMAN, R. B.: *Collapse of an initially spherical vapour cavity in the neighbourhood of a solid boundary*. In: Journal of Fluid Mechanics Digital Archive, 47 (1971), S. 283-290

Quarzwerke 2004 QUARZWERKE: *EG-Sicherheitsdatenblatt Quarzmehl*. Ferchen (2004),

Rayleigh 1917 RAYLEIGH, O. M. L.: *On the pressure developed in a liquid during the collapse of a spherical cavity*. In: Phil. Mag., 34 (1917), S. 94-98

Reuter 2008 REUTER, F.; METTIN, R.; LAUTERBORN, W.: *Pressure fields and their effects in membrane cleaning applications*. Acoustics. Paris: 2008, S. 579-584

Reuter 2009 REUTER, F.; METTIN, R.; LAUTERBORN, W.: *The effects of ultrasonic parameters on pressure fields in a membrane cleaning application*. NAG/DAGA 2009, International Conference on Acoustics. Rotterdam: 2009, S. 1703-1706

Ripperger 1992 RIPPERGER, S.: *Mikrofiltration mit Membranen*. Basel, New York, Weinheim, Cambridge: 1992.

Rockwood 2006 ROCKWOOD: *Laponite - Funktionale Additive*. <http://www.laponite.com/>. - Aktualisierungsdatum: 25.09.2009

Rubin 1977 RUBIN, G.: Widerstands- und Auftriebsbeiwerte von ruhenden, kugelförmigen Partikeln in stationären, wandnahen laminaren Grenzschichten. Universität Karlsruhe, Dissertation, 1977.

Sabri 1997 SABRI, N.; PIRKONEN, P.; SEKKI, H.: *Ultrasonically enhanced membrane filtration of paper mill effluent*. Application of Power Ultrasound in Phys. Chem. Process. 1997, S. 99-104

Saffman 1968 SAFFMAN, P. G.: *The lift on a small sphere in a slow shear flow*. In: Journal of Fluid Mechanics, 22 (1968), S. 385-400, corrigendum, 31 1968), 624

Sassaroli 2006 SASSAROLI, E.; HYNYNEN, K.: *The Threshold for Bubble Collapse in Tubes and in Gel Embedded Microtunnels*. Ultrasonics Symposium, 2006. IEEE. 2006, S. 509-512

Schlichting 2006 SCHLICHTING, H.; GERSTEN, K.: *Grenzschicht-Theorie*. Berlin Heidelberg: Springer-Verlag, 2006.

Shima 1980 SHIMA, A.; SATO, Y.: *The behavior of a bubble between narrow parallel plates*. In: Zeitschrift für Angewandte Mathematik und Physik (ZAMP), 31 (1980), S. 691-704

Shima 1989 SHIMA, A.; TOMITA, Y.; GIBSON, D. C.; BLAKE, J. R.: *The growth and collapse of cavitation bubbles near composite surfaces*. In: Journal of Fluid Mechanics Digital Archive, 203 (1989), S. 199-214

Shu 2007 SHU, L.; XING, W.; XU, N.: *Effect of Ultrasound on the Treatment of Emulsification Wastewater by Ceramic Membranes*. In: Chinese Journal of Chemical Engineering, 15 (2007), S. 855-860

Sievers 2001 SIEVERS, M.; SCHÄFER, O.; ONYECHE, I.; SCHRÖDER, C.: *Reduzierung von Fouling/Scaling durch Ultraschalleintrag in Membranmodule*. Clausthaler Umwelttechnik-Institution GmbH Bremen (2001), Colloquium S. C-11 - C-22

Simon 2000a SIMON, A.; GONDREXON, N.; TAHA, S.; CABON, J.; DORANGE, G.: *Low-Frequency Ultrasound to Improve Dead-End Ultrafiltration Performance*. In: Separation Science and Technology, 35 (2000a), S. 2619 - 2637

Simon 2000b SIMON, A.; PENPENIC, L.; GONDREXON, N.; TAHA, S.; DORANGE, G.: *A comparative study between classical stirred and ultrasonically-assisted dead-end ultrafiltration*. In: Ultrasonics Sonochemistry, 7 (2000b), S. 183-186

Smythe 2000 SMYTHE, M. C.; WAKEMAN, R. J.: *The use of acoustic fields as a filtration and dewatering aid*. In: Ultrasonics, 38 (2000), S. 657-661

Sonntag 1982 SONNTAG, D.; HEINZE, D.: *Sättigungsdampfdruck- und Sättigungsdampfdichtetafeln für Wasser und Eis*. VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, 1982.

Staudenraus 1993 STAUDENRAUS, J.; EISENMENGER, W.: *Fibre-optic probe hydrophone for ultrasonic and shock-wave measurements in water*. In: Ultrasonics, 31 (1993), S. 267-273

Strobel 2007a STROBEL, J.; BRETZ, N.; STAUDACHER, M.; LERCH, R.: *Messtechnische Untersuchungen der Kavitationswirkung in der Ultraschallreinigung*. . DAGA'07. Stuttgart: 2007a, S. pages 121-122, 2007.

Strobel 2007b STROBEL, J.; STAUDACHER, M.; LERCH, R.: *Sauber? Die Quantifizierung von Reinigungsvorgängen*. 4. Workshop Physikalische Akustik - Kavitation in Technik und Medizin: Beschreibung und Quantifizierung. Bad Honnef: 2007b,

Suslick 1988 SUSLICK, K. S.: *Ultrasound: Its Chemical, Physical, and Biological Effects*. Weinheim: VCH Verlagsgesellschaft mbH, 1988.

Sutilov 1984 SUTILOV, V. A.: *Physik des Ultraschalls - Grundlagen*. Berlin: Peter Hauptmann, 1984.

- Tarleton 1992a** TARLETON, E. S.: *The role of Field-assisted techniques in solid/liquid separation*. In: *Filtration & Separation*, 29 (1992a), S. 246-252
- Tarleton 1992b** TARLETON, E. S.; WAKEMAN, R. J.: *Electro-acoustic crossflow microfiltration*. In: *Filtration & Separation*, 29 (1992b), S. 425-432
- Tarleton 1997** TARLETON, E. S.; WAKEMAN, R. J.: *Ultrasonically Assisted Separation Processes*. In: POVEY, M. J. W. MASON, T. (Hrsg.): *Ultrasound in Food Processing*. London: Chapman and Hall, 1997.
- Thomas 2004** THOMAS, J.: *Mechanics of Particle Adhesion*. 16th International Congress of Chemical and Process Engineering, CHISA. Prag: 2004, S. 92
- Tomita 2003** TOMITA, Y.; KODAMA, T.: *Interaction of laser-induced cavitation bubbles with composite surfaces*. In: *Journal of Applied Physics*, 94 (2003), S. 2809-2816
- Tomita 1990** TOMITA, Y.; SHIMA, A.: *High-Speed Photographic Observations of Laser-Induced Cavitation Bubbles in Water*. In: *Acustica*, 71 (1990), S. 161-171
- Töpel 2004** TÖPEL, A.: *Chemie und Physik der Milch*. Hamburg: Behrs Verlag, 2004.
- Tran 2007** TRAN, T.; GRAY, S.; BOLTO, B.; FARMER, T. D.; COLLINGS, T. F.: *Ultrasound enhancement of microfiltration performance for natural organic matter removal*. In: *Organic Geochemistry; Australian Special Issue*, 38 (2007), S. 1091-1096
- VanBavel 2007** VANBAVEL, E.: *Effects of shear stress on endothelial cells: Possible relevance for ultrasound applications*. In: *Progress in Biophysics and Molecular Biology; Effects of ultrasound and infrasound relevant to human health*, 93 (2007), S. 374-383
- Vereecke 2004** VEREECKE, G.; E., P.; HOLSTEYNS, F.; XU, K.; VOS, R.; MERTENS, P. W.; SCHMIDT, M. O.; BAUER, T.: *Investigating the role of gas cavitation in megasonic nanoparticle non removal*. In: *Micro Magazine*, 1 (2004), S. S.1-S.11
- Verwey 1955** VERWEY, E. J. W.; OVERBEEK, J. T. G.: *Theory of the stability of lyophobic colloids*. In: *Journal of Colloid Science*, 10 (1955), S. 224-225
- Wakeman 1998** WAKEMAN, R. J.; TARLETON, E. S.: *Microfiltration Enhancement by Electrical and Ultrasonic Force Fields*. In: *Proceedings of the filtration society*, S.192-S.194 (1998), S. 89
- Wakeman 2002** WAKEMAN, R. J.; WILLIAMS, C. J.: *Additional techniques to improve microfiltration*. In: *Separation and Purification Technology*, 26 (2002), S. 3-18
- Wiese 1970** WIESE, G. R.; HEALY, T. W.: *Effect of particle size on colloid stability*. In: *Trans. Faraday Soc.*, 66 (1970), S. 490 - 499
- Wijmans 1985** WIJMANS, J. G.; NAKAO, S.; BERG VAN DEN, J. W. A.; TROELSTRA, F. R.; SMOLDERS, C. A.: *Hydrodynamic resistance of concentration polarization boundary layers in ultrafiltration*. In: *Journal of Membrane Science*, 22 (1985), S. 117-135
- Wijmans 1984** WIJMANS, J. G.; NAKAO, S.; SMOLDERS, C. A.: *Flux limitation in ultrafiltration: Osmotic pressure model and gel layer model* In: *Journal of Membrane Science*, 20 (1984), S. 115-124

- Young 1989** YOUNG, F. R.: *Cavitation*. London: McGraw-Hill Book Company, 1989.
- Zarembo 1971** ZAREMBO, L. K.: *Acoustic streaming*. In: ROZENBERG, L. D. (Hrsg.): *High intensity ultrasonic fields*. New York: Plenum Press, 1971.
- Zhang 2005** ZHANG, H. Y.; YEO, S. H.: *Single flexible ultrasound transducer for enhancement of permeability of silicone membrane*. In: *Sensors and Actuators A: Physical*, 120 (2005), S. 37-43
- Zhu 1999** ZHU, C.; LIU, G. L.; CHEUNG, C. S.; LEUNG, C. W.; ZHU, Z. C.: *Ultrasonic stimulation on enhancement of air gap membrane distillation*. In: *Journal of Membrane Science*, 161 (1999), S. 85-93
- Zijlstra 2008** ZIJLSTRA, A.; OHL, C. D.: *On fiber optic probe hydrophone measurements in a cavitating liquid*. In: *The Journal of the Acoustical Society of America*, 123 (2008), S. 29-32
- Zwaan 2007** ZWAAN, E.; GAC, S. L.; TSUJI, K.; OHL, C.-D.: *Controlled Cavitation in Microfluidic Systems*. In: *Physical Review Letters*, 98 (2007), S. 254501-4

Liste der Studien- und Diplomarbeiten

Tabelle B-1: Liste der Studien-, Diplom- und Praktikumsarbeiten, die einen Beitrag zu dieser Dissertation geleistet haben:

Art der Arbeit	Autor	Abgabedatum	Titel
Diplomarbeit	Simone Herold	28.02.2005	Planung und Aufbau eines Membranteststandes zur Untersuchung der Deckschichtbildung bei der Querstromfiltration
Diplomarbeit	Daniel Philippen	18. 04.2005	Mess- und Charakterisierungsmethoden für die Deckschichtbildung auf Membranen in Trinkwasseraufbereitungsanlagen
Praktikum	Christian Tötzke	18.06.2004	Membranscreening, Konstruktion einer transparenten Membrantestzelle, Megaschallversuche
Praktikum	Monika Gidt	07.04.2006	In-situ Ultraschallabreinigung für Kleinmembransysteme in der Trinkwasseraufbereitung; Filtrationsversuche
Praktikum	Heiko Pawelczyk	15.10.2005	Filtrationsversuche, Konstruktion und Aufbau Testzelle I und Testzelle II
Praktikum	Marco Modi	29.02.2008	Kavitationsmuster durch Ultraschall; Laborversuche zur ultraschallunterstützten Rückspülung

Lebenslauf

Joachim Went

Ausbildung:

1996 – 2003

Technische Universität Berlin
Studiengang Energie- und Verfahrenstechnik – Diplom

Wissenschaftlicher Werdegang:

Seit 08/2003

wissenschaftlicher Mitarbeiter am Fraunhofer Institut für Solare Energiesysteme
in Freiburg

Inhaltlicher Schwerpunkt als Doktorand:

- Ultraschalleinsatz zur Membranreinigung

Weitere Arbeitsbereiche als Projekt- und Teamleiter:

- Solarbetriebene Wasserpump- und Membranfiltrationsanlagen.
- Sensorentwicklung zur Foulingdetektion auf Membranen.
- Dynamische Prozessführung von Umkehrosmoseanlagen zur Meerwasserentsalzung zum Betrieb mit Photovoltaik.
- Energierückgewinnungssysteme für kleine, autarke Umkehrosmoseanlagen.
- Mechanische Reinigung von keramischen Rotationsscheibenfiltern.
- Rückspülung von Ultrafiltrationsmembranen mit Hypochloridlösung.
- Vanadium Redox-Flow-Batteriesysteme.