

Untersuchungen zum Einfluss elektrokinetischer
Repulsionseffekte auf die Tiefenfiltration
mit partikulären Schüttbetten

Dissertation

zur Erlangung des Grades

des Doktors der Ingenieurwissenschaften

der Naturwissenschaftlich-Technischen Fakultät III

Chemie, Pharmazie, Bio- und Werkstoffwissenschaften

der Universität des Saarlandes

von

Dipl.-Ing. Miriam Sartor

Saarbrücken

2006

Tag des Kolloquiums: 20. Oktober 2006

Dekan: Univ.-Prof. Dr. K. Hegetschweiler

Berichterstatter: Univ.-Prof. Dr.-Ing. habil. H. Chmiel

Univ.-Prof. Dr. W.F. Maier

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand im Zeitraum von Dezember 2003 bis Mai 2006 während meiner Tätigkeit als wissenschaftliche Mitarbeiterin bei der Gesellschaft für umweltkompatible Prozeßtechnik mbH.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Univ.-Prof. Dr.-Ing. habil. H. Chmiel, ehemals wissenschaftlicher Direktor der upt GmbH, für die Betreuung und Unterstützung dieser Arbeit und die dabei gewährten Freiheiten sowie Herrn Prof. Dr.-Ing. V. Mavrov, Lehrstuhl für Prozesstechnik an der Universität des Saarlandes, für die wissenschaftliche Betreuung der Arbeit sowie die vielen Anregungen und die konstruktive Kritik.

Herrn Prof. Dr. W.F. Maier danke ich für die Übernahme des Korreferates.

Für die erfolgreiche Durchführung war die Unterstützung von allen Seiten der upt GmbH – angefangen bei der Geschäftsführung und der Verwaltung über Kollegen und Diplomanden bis hin zum Analytiklabor und der Werkstatt – hilfreich. Ich bedanke mich bei allen sowohl für die fachliche Zusammenarbeit als auch für das gute Arbeitsklima und die vielen schönen Stunden im Kollegenkreis.

Mein besonderer Dank gilt dabei Herrn Dr.-Ing. M. Kaschek für die Hilfe bei der Einarbeitung in das Themengebiet und die ausdauernde Diskussionsbereitschaft und Herrn MSc M. Mohrdieck und Herrn Dr.-Ing. B. Schlichter für die Bereitschaft zum Gedankenaustausch sowie meinen Diplomandinnen Frau Dipl.-Wirtschafts.-Ing. A. Reusch und Frau Y. Werle für die Unterstützung bei der Durchführung zahlloser Versuchsreihen. Herrn Dipl.-Ing. M. Sartor danke ich für die Unterstützung bei den 3D-Zeichnungen.

Die Charakterisierungsuntersuchungen wurden unterstützt von der Max-Buchner-Forschungsförderung, der ich auf diesem Wege für die Bereitstellung der finanziellen Mittel danken möchte. Der Fa. Pall SeitzSchenk Filtersystems GmbH danke ich für die Förderung des Projektes im Bereich der Bierfiltration und der Karlsbergbrauerei für die Bereitstellung von Bier, Unfiltrat und Hefe.

Meinem Mann Carsten danke ich für die vielen ermunternden Worte und die Geduld beim Korrekturlesen dieser Arbeit.

Zusammenfassung

Bei der Filtration von Suspensionen verhindern hohe Partikelkonzentrationen das Einhalten bestimmter Filtrationsbedingungen und Filtratqualitäten. Während bei der Oberflächenfiltration Deckschichtbildung einen zufriedenstellenden Filtrationsverlauf bei niedrigen Druckdifferenzen verhindert, ist bei der Tiefenfiltration eine vollständige Abscheidung der suspendierten Partikel nicht möglich. Vor allem die teilweise schlechte Ausnutzung der Porosität der Filterschichten, plötzliche Durchbrüche der abgeschiedenen Partikel in das Filtrat sowie die schlechte Regenerierbarkeit der Filtermittel vermindern die Effizienz und Wirtschaftlichkeit der Verfahren der Tiefenfiltration.

Ziel dieser Arbeit ist es, den Einfluss elektrokinetischer Repulsionskräfte auf die Tiefenfiltration von Suspensionen in partikulären Schüttbetten zu untersuchen. Durch die Nutzung eines elektrokinetisch optimierten selektiven Schüttbetts erfolgt dessen Beladung gleichmäßiger bei konstant niedriger Druckdifferenz, und der verfügbare Porenraum kann besser ausgenutzt werden. Durch die Wahl geeigneter Filtermittel kann aufgrund der elektrokinetischen Abstößungskräfte eine selektive Abtrennung der suspendierten Partikeln erfolgen. Das Tiefenfiltrationsverfahren mit elektrokinetisch optimiertem, selektivem Schüttbett kann als Vorfiltrationsstufe bei der Filtration kolloidaler Suspensionen wie beispielsweise der Aufreinigung von Biosuspensionen eingesetzt werden. Da die Adsorption der Partikel am Filtermittel verringert wird, ist das Schüttbett rückspülbar.

Für den Nachweis eines Einflusses elektrokinetischer Kräfte auf das Filtrationsverhalten von Tiefenfiltern erfolgt eine theoretische Betrachtung, die auf der Grundlage experimenteller Untersuchungen konkretisiert wird.

Abstract

Because of high particle concentrations in suspensions, filtration conditions such as pressure, flow velocity or high filtrate quality cannot be fulfilled. As far as surface filtration is concerned, coating layer formation hinders satisfactory filtration at low pressures, while total particle retention in deep-bed filtration is not possible. The efficiency and economic feasibility of deep-bed filtration is restricted further particularly by the insufficient saturation of filter bed porosity, the sudden breakthrough of separated particles into the filtrate as well as the poor regeneration properties of the filter media.

The aim of this work is to investigate the influence of electrokinetic repulsion forces in particulate filtration beds. By using an electrokinetically optimised filter bed, saturation is more uniform at a constant low pressure difference while better use is made of the available pore space. If an appropriate filter media is chosen, the suspended particles can be selectively separated via the electrokinetic repulsion forces. The deep-bed filtration process with electrokinetically optimised selective filtration bed can be used as a pre-filtration step for the filtration of suspensions with colloidal substances such as the purification of biosuspensions. The filter bed can be regenerated because there is less adsorption of the particles on the filter media.

To prove the influence of electrokinetical forces on the filtration behaviour of a deep-bed filtration process, a theoretical examination was conducted and extended on the basis of experimental investigations.

Inhaltsverzeichnis

1	Problemstellung und Zielsetzung.....	1
2	Grundlagen der Filtration sowie der Entstehung von Oberflächenladungen und Zetapotentialen an Phasengrenzen	9
2.1	Übersicht über die verschiedenen Filtrationsverfahren.....	9
2.1.1	Rückhalte­mechanismen bei der Filtration.....	12
2.1.2	Abgrenzung der Tiefenfiltration gegenüber anderen Filtrationsverfahren.....	15
2.1.3	Allgemeine Ansätze zur Beschreibung einer Filtration (Dimensionslose Kennzahlen und Filtergleichungen)	16
2.2	Entstehung von Oberflächenladungen und Zetapotentialen an Phasengrenzen	23
2.2.1	Theorien zur Entstehung der elektrolytischen Doppelschicht (elektrostatische Effekte).....	23
2.2.1.1	Theorie von Helmholtz.....	24
2.2.1.2	Theorie von Gouy und Chapman	25
2.2.1.3	Theorie von Stern	27
2.2.2	Die Entstehung elektrokinetischer Potentiale.....	28
2.2.2.1	Messmethoden zur Bestimmung des Zetapotentials	31
2.2.2.2	Beispiele für Messergebnisse aus der Literatur.....	35
2.2.2.3	Allgemeine Kritik bei der Bestimmung und Interpretation des Zetapotentials	37
2.3	Wechselwirkungen von suspendierten Partikeln mit festen Oberflächen	39
3	Diskussion verschiedener Modelle zur Partikelabscheidung in partikulären Schüttbetten	44
3.1	Fluid- und Partikeltransport in Schüttbetten unter besonderer Berücksichtigung der empirischen Filtrationsmodelle	45
3.2	Anlagerungsmechanismen in Schüttbetten unter besonderer Berücksichtigung elektrokinetischer Wechselwirkungen.....	49

4	Neuer Ansatz zur Modellierung der Partikelabscheidung in partikulären Schüttbetten unter Berücksichtigung der elektrokinetischen Wechselwirkungen.....	53
4.1	Einfluss des Zetapotentials auf den Partikeltransport im Schüttbett.....	54
4.1.1	Modellierung der Porengeometrie zur Verhinderung einer Partikelabscheidung durch den Sperreffekt	56
4.1.2	Wirksamkeit des Zetapotentials als Antransportmechanismus.....	58
4.2	Einfluss des Zetapotentials auf die Partikelanlagerung an der Filtermitteloberfläche	64
4.2.1	Beschreibung der elektrokinetischen Wechselwirkungen bei der Partikelanlagerung an der Filtermitteloberfläche.....	66
4.2.2	Wirksamkeit des Zetapotentials als Anlagerungsmechanismus	71
4.3	Definition neuer dimensionsloser Kennzahlen	74
4.3.1	Erweiterung der Dimensionsanalyse.....	75
4.3.2	Diskussion der erhaltenen Kennzahlen	78
5	Experimentelle Methoden, Laborgeräte und –anlagen, Charakterisierung der eingesetzten Filtermittel und suspendierten Partikel	87
5.1	Eingesetzte Laborgeräte.....	87
5.1.1	Bestimmung der Partikeleigenschaften.....	87
5.1.2	Ermittlung und Einstellung der Partikelgrößenverteilung	89
5.1.3	Ermittlung der Eigenschaften der Trübe und des Filtrates	89
5.2	Anlagen zur Durchführung der Filtrationsversuche.....	89
5.3	Eingesetzte Chemikalien, Filtermittel und suspendierte Partikel	91
5.3.1	Charakterisierung der Filtermittel.....	92
5.3.2	Charakterisierung der eingesetzten suspendierten Partikel.....	100
6	Experimentelle Untersuchung der Tiefenfiltration mit elektrokinetisch optimiertem, selektiven Schüttbett.....	103
6.1	Untersuchungen zur Verifizierung des Filtrationsprinzips	103
6.1.1	Experimentelle Untersuchung der elektrokinetischen Wechselwirkungen	103
6.1.1.1	Einfluss elektrokinetischer Wechselwirkungen auf die Filtrationsart	104

6.1.1.2	Änderung des Filtrationsverhaltens bei Vorzeichenwechsel des Zetapotentials.....	107
6.1.1.3	Einfluss der mittleren Korngröße und der Partikelgrößenverteilung auf das Filtrationsergebnis.....	108
6.1.1.4	Ermittlung des Einflusses der Ionenkonzentration durch Untersuchungen bei verschiedenen Salzgehalten der Modelltrübe.....	113
6.1.2	Diskussion der dimensionslosen Kennzahlen anhand der Filtrationsergebnisse	117
6.1.3	Definition eines elektrokinetischen Filtrationsparameters zur Erweiterung der Carman-Kozeny-Gleichung auf Basis der experimentellen Ergebnisse	123
6.1.3.1	Entwicklung einer Filtergleichung zur Prognose der im elektrokinetisch optimierten, selektiven Schüttbett auftretenden Druckdifferenz.....	124
6.1.3.2	Vergleich der Prognosegenauigkeit bei Einsatz anderer Filtermittel.....	129
6.2	Untersuchungen zur Regenerierbarkeit des Filtermittels	131
6.2.1	Mechanische Stabilität des Filtermittels.....	132
6.2.2	Adsorption bzw. Desorption organischer Verbindungen.....	133
6.2.3	Untersuchungen zur Rückspülung mittels Gegenstromkreislaufspülung	135
7	Einsatz des Tiefenfiltrationsverfahrens mit elektrokinetisch optimiertem, selektivem Schüttbett als Vorfiltrationsstufe bei der Klarfiltration von Bier	137
7.1	Charakterisierung der eingesetzten Trüben und Filtermittel.....	139
7.2	Eignung des Verfahrens als Vorfiltrationsstufe bei der Filtration von Bier.....	141
7.3	Prognose des Druckverlustes mittels modifizierter Filtergleichung	147
7.4	Experimentelle Ermittlung der Gültigkeitsbereiche des Verfahrens.....	150
7.5	Bewertung des Verfahrens mit elektrokinetisch optimiertem, selektivem Schüttbett als Vorfiltrationsstufe	153
8	Schlussfolgerungen und Ausblick.....	155
	Literaturverzeichnis.....	159

Abbildungsverzeichnis

Abb. 2-1:	Wirkprinzip der Filtrationsarten; typische Druck- und Trübungsverläufe	12
Abb. 2-2:	Wirkmechanismen bei der Partikelabscheidung in einem Filter.....	13
Abb. 2-3:	Theorie von Helmholtz	25
Abb. 2-4:	Theorie von Gouy und Chapman	26
Abb. 2-5:	Theorie von Stern.....	28
Abb. 2-6:	Partikel in wässriger Phase mit Ionenschichten und Potentialen	30
Abb. 2-7:	Einfluss der Ionenkonzentration des Elektrolyten auf A) die Konzentration der positiven und negativen Ionen mit zunehmendem Abstand von einer negativ geladenen Oberfläche B) die Lage des Zetapotentials und des Oberflächenpotentials	31
Abb. 2-8:	Einordnung der Messmethoden zur Bestimmung elektrokinetischer Potentiale nach Dichte.....	33
Abb. 2-9:	Veränderung der Zetapotentiale einiger Materialien über den pH-Bereich.....	36
Abb. 2-10:	Zetapotentiale ausgewählter Materialien	37
Abb. 2-11:	Wechselwirkungsenergien bei der Anlagerung bzw. Abstoßung von Partikeln an Oberflächen	42
Abb. 4-1:	Suspendiertes Partikel im Zwischenraum mehrerer Filtermittelpartikel	55
Abb. 4-2:	Wirkung des elektrokinetischen Sperreffektes bei der Partikelabscheidung in einem Filter	55
Abb. 4-3:	Abstand zwischen den Filtermittelpartikeln bei einer kubischer Packung	57
Abb. 4-4:	Kurzer Abstand zwischen den Filtermittelpartikeln bei hexagonaler und rhombohedraler Packung	57
Abb. 4-5:	Ausschnitte aus verschiedenen Kugelpackungen.....	58
Abb. 4-6:	Vereinfachtes Kräftegleichgewicht an einem suspendierten Partikel bei der Durchströmung einer Pore	60
Abb. 4-7:	Im Porenzentrum auf das suspendierte Partikel wirkende Kräfte.....	61
Abb. 4-8:	Kräftegleichgewicht im Nahbereich des Filtermittels.....	67
Abb. 4-9:	Einlagerung eines Partikels in einen Zwickel des Schüttbetts	67
Abb. 4-10:	Auswirkung des entstandenen Potentials auf den Anlagerungsmechanismus des suspendierten Partikels	68
Abb. 4-11:	Befüllung der Porenzwickel	70

Abb. 4-12:	Geschwindigkeits- und Scherspannungsverlauf sowie Konzentrationsprofil in einer geraden Kapillare	70
Abb. 4-13:	Ausschnitt der beiden Oberflächen von Filtermittel und suspendiertem Partikel mit den auf zwei Punkte reduzierten örtlichen Punktladungen.....	72
Abb. 4-14:	Verlauf der Reynoldszahl bei Variation der Filtergeschwindigkeit bei Durchströmung einer Kapillaren und einer Filtermittelschüttung.....	80
Abb. 4-15:	Verlauf der Eulerzahl bei Variation der Filtergeschwindigkeit bei Durchströmung einer Kapillaren und einer Filtermittelschüttung.....	81
Abb. 4-16:	Verlauf der elektrokinetischen Filtrationskennzahl bei verschiedenen Filtergeschwindigkeiten ($\zeta_s/\zeta_{FM} = 1$)	83
Abb. 4-17:	Verlauf der elektrokinetischen Filtrationskennzahl bei verschiedenen Filtergeschwindigkeiten ($\zeta_s/\zeta_{FM} = 0,1$)	84
Abb. 4-18:	Dimensionslose elektrokinetische Kennzahl bei verschiedenen Filtermitteldurchmessern in Abhängigkeit des Zetapotentials des Filtermittels ..	85
Abb. 5-1:	Aufbau Fasermesszelle (A) und der Pulvermesszelle (B)	88
Abb. 5-2:	Zetapotentiale der „leeren“ Messzelle.....	88
Abb. 5-3:	Fließschema des Filtrationsteststandes.....	90
Abb. 5-4:	REM-Aufnahme TP 208.....	93
Abb. 5-5:	REM-Aufnahme MP 62	93
Abb. 5-6:	REM-Aufnahme FS 900 S.....	94
Abb. 5-7:	REM-Aufnahme MN/Y	94
Abb. 5-8:	Kationenaustauscher TP 208	96
Abb. 5-9:	Feldspat FS 900 S.....	96
Abb. 5-10:	Anionenaustauscher MP 62	96
Abb. 5-11:	Aluminiumoxid MN/Y	96
Abb. 5-12:	Kationenaustauscher TP 208	98
Abb. 5-13:	Anionenaustauscher MP 62.....	98
Abb. 5-14:	Feldspat FS 900 S.....	99
Abb. 5-15:	Aluminiumoxid MN/Y	99
Abb. 5-16:	Zetapotentiale der <i>s. carlsbergensis</i> und der <i>s. cerevisiae</i>	102
Abb. 5-17:	Lichtmikroskopische Aufnahme <i>s. carlsbergensis</i>	102
Abb. 6-1:	Filtrationsverhalten der Filtermittel mit positivem und negativem Zetapotential.....	105

Abb. 6-2:	Photos der Bohrkerns sowie lichtmikroskopische Aufnahmen des Schüttbetts	106
Abb. 6-3:	Lichtmikroskopische Aufnahmen aus dem Schüttbett.....	107
Abb. 6-4:	Versuchsergebnisse bei Änderung des pH-Wertes der Modelltrübe	108
Abb. 6-5:	Vergleich inhomogene (A) und homogene (B) Packung.....	109
Abb. 6-6:	Vergleich Fraktionen Feldspat FS 900 S	111
Abb. 6-7:	Optimierte homogene Packung (Idealvorstellung)	112
Abb. 6-8:	Vergleich Mischfraktionen FS 900 S.....	113
Abb. 6-9:	Vergleich der Filtrationsergebnisse der verschiedenen Elektrolyte FS 900 S - Fraktionen F2:F3.....	115
Abb. 6-10:	Vergleich der Filtrationsergebnisse der verschiedenen Elektrolyte FS 900 S - Fraktionen F3:F4.....	115
Abb. 6-11:	Trübung als Funktion der Leitfähigkeit der Modelltrübe bei einem Bettvolumen von 10 bzw. 20 m ³ /m ³ (Fraktion F2:F3).....	116
Abb. 6-12:	Elektrokinetischen Filtrationskennzahl (EFK) in Abhängigkeit von der Leitfähigkeit des Elektrolyten.....	121
Abb. 6-11:	Stoffbilanz an einem Schüttbett zur Beginn der Beladung (t=0).....	124
Abb. 6-12:	Schüttbett im Gleichgewichtszustand (Durchbruch)	125
Abb. 6-13:	Gegenüberstellung der gemessenen Druckverluste und der theoretisch ermittelten Werte bei den verschiedenen Fraktionen des Feldspates FS 900 S.	128
Abb. 6-14:	Gegenüberstellung der gemessenen Druckverluste und der theoretisch ermittelten Werte bei den eingesetzten Filtrationsssanden.....	130
Abb. 6-15:	Partikelgrößenverteilung des FS 900 S vor (0 h) und nach (500 h) der Simulation der Reinigung	133
Abb. 6-16:	CSB-Fracht der Spüllösung nach 10 Minuten Regenerationszeit.....	134
Abb. 6-17:	Abnahme der Trübung in der Spüllösung bei den einzelnen Schritten der Kreislaufspülung.....	136
Abb. 7-1:	Kieselgur	138
Abb. 7-2:	Vergleich Filtermittel mit Modellunfiltrat	142
Abb. 7-3:	Vergleich Filtermittel mit Unfiltrat.....	143
Abb. 7-4:	Vergleich Fraktionen Feldspat FS 900 S mit Modellunfiltrat.....	144
Abb. 7-5:	Vergleich Fraktionen Feldspat FS 900 S mit Unfiltrat	145
Abb. 7-6:	Photos von Bohrkernen aus der Filtermittelschüttung.....	146
Abb. 7-7:	Vergleich der Mischfraktionen Feldspat FS 900 S mit Modellunfiltrat	146
Abb. 7-8:	Vergleich der Mischfraktionen Feldspat FS 900 S mit Unfiltrat	147

Abb. 7-9:	Vergleich der experimentellen und theoretischen Ergebnisse für die Druckdifferenz im Filter beim Modellunfiltrat.....	149
Abb. 7-10:	Vergleich der experimentellen und theoretischen Ergebnisse für die Druckdifferenz im Filter beim Unfiltrat	149
Abb. 7-11:	Verlauf der Kennzahlen Π_4 und Π_5 bei Variation der Filtergeschwindigkeit für Feldspat FS 900 S und s. carlsbergensis.....	151
Abb. 7-12:	Abhängigkeit der Filtrationsleistung von Schütthöhe und Filtergeschwindigkeit	151
Abb. 7-13:	Vergleich der experimentellen und theoretischen Ergebnisse für verschiedene Filtergeschwindigkeiten.....	153

Tabellenverzeichnis

Tab. 2-1:	Zuordnung der Wirkmechanismen zu den Filtrationsarten.....	15
Tab. 2-2:	Gegenüberstellung der Vor- und Nachteile einer Tiefenfiltration im Vergleich zur Oberflächenfiltration	16
Tab. 2-3:	Aussagefähigkeit ausgewählter Filtergleichungen.....	22
Tab. 2-4:	Einteilung der elektrokinetischen Bewegungen nach den Relativbewegungen und der Antriebskraft.....	32
Tab. 2-5:	Vorteile und Untersuchungsbedarf für die Anwendbarkeit der Zetapotentialmessung	39
Tab. 3-1:	Berechnung von Druckverlusten bei verschiedenen Strömungsgeschwindigkeiten und Filtermittelgrößen für drei der vorgestellten konventionellen Filtergleichungen	47
Tab. 3-2:	Beurteilung konventioneller Filtergleichungen.....	48
Tab. 3-3:	Übersicht Ansätze zur Beschreibung elektrostatischer und elektrokinetischer Wechselwirkungen, Anwendungsbereich und Kernaussage.....	52
Tab. 4-1:	Ergebnisse der Berechnung von Strömungskraft und Repulsionskraft für verschiedene Partikelgrößen und Filtergeschwindigkeiten.....	63
Tab. 4-2:	Übersicht Strömungsgeschwindigkeit in den kleinen und großen Poren des Schüttbetts bei hexagonaler bzw. rhombohedraler Packung.....	69

Tab. 4-3:	Ergebnisse der Berechnung von Querkraft und Anziehungskraft für verschiedene Größen der suspendierten Partikel und Filtergeschwindigkeiten... 73
Tab. 5-1:	Allgemeine Charakterisierung der organischen Filtermittel 93
Tab. 5-2:	Allgemeine Charakterisierung der anorganischen Filtermittel 94
Tab. 5-3:	Charakterisierung der Filtermittelschüttung 96
Tab. 5-4:	Zetapotentiale der organischen Filtermittel über den pH-Bereich 98
Tab. 5-5:	Zetapotentiale der anorganischen Filtermittel über den pH-Bereich 99
Tab. 6-1:	Korngrößenbereiche und Porositäten der einzelnen Siebfraktionen FS 900 S .. 109
Tab. 6-2:	Korngrößenbereiche der Mischfraktionen FS 900 S..... 112
Tab. 6-3:	Größenordnungen der durch die Filtrationsversuche ermittelten Kennzahlen .. 117
Tab. 6-4:	Ergebnisse der Berechnung der dimensionslosen Kennzahlen aus den Filtrationsversuchen 118
Tab. 6-5:	Größenordnungen der Kennzahl Π_5 bei verschiedenen Elektrolyten 120
Tab. 6-6:	Theoretisch ermittelter optimaler mittlerer Filtermitteldurchmesser in Abhängigkeit von Filtergeschwindigkeit und Zetapotential des Filtermittels ... 123
Tab. 6-7:	Vergleich zwischen gemessenen und theoretisch ermittelten Druckverlusten bei den drei eingesetzten Filtermitteln 126
Tab. 6-8:	Versuchsbedingungen und –ergebnisse der Vergleichuntersuchungen mit Sanden..... 129
Tab. 6-9:	Kennzahlen der Vergleichuntersuchungen mit Sanden 129
Tab. 6-10:	Spülschritte, Spülwassermenge und –zeit bei der Rückspülung des Filters 136
Tab. 7-1:	Übersicht Biertrubstoffe und Mikroorganismen 139
Tab. 7-2:	Lösliche Ionen in verschiedenen Filterhilfsmitteln und Filtermitteln..... 140
Tab. 7-3:	Eigenschaften der verwendeten Trüben und benötigte Filtermittelgröße 141
Tab. 7-4:	Berechnungen der Filtrationskennzahlen für die Modelltrübe..... 148
Tab. 7-5:	Berechnungen der Filtrationskennzahlen für das Unfiltrat 148
Tab. 7-6:	Ergebnisse Grenzen des Verfahrens..... 152

Symbolverzeichnis

Lateinische Buchstaben

A:	Fläche, Filterfläche	[m ²]
A _K :	Querschnittsfläche einer Kapillare	[m ²]
æ:	spezifische elektrische Leitfähigkeit	[1/Ω·m]
æ _L :	spezifische elektrische Leitfähigkeit der Flüssigkeit	[1/Ω·m]
C _D :	Kapazität der Doppelschicht	[F]
c:	Konzentration Partikel, Salz	[g/l]
c _w :	Widerstandsbeiwert	[-]
d:	Durchmesser Biomasse	[m]
d ₃₂ :	Sauterdurchmesser	[m]
D _{FM} :	Partikeldurchmesser des Filtermittels	[m]
D _K :	Kapillardurchmesser	[m]
D _{Kg} :	Kapillardurchmesser (große Kapillare)	[m]
D _{Kk} :	Kapillardurchmesser (kleine Kapillare)	[m]
D _S :	Durchmesser des suspendierten Partikels	[m]
e ₀ :	Elementarladung	[C]
E:	Energie	[J]
E _A :	Anziehungsenergie	[J]
E _{tot} :	Wechselwirkungsenergie	[J]
E _R :	Abstoßungsenergie	[J]
F _A :	Anziehungskraft	[N]
F _f :	Reibungskraft	[N]
F _R :	Repulsionskraft	[N]
F _S :	Strömungskraft	[N]
F _{Sz} :	Querkraft in z-Richtung	[N]
f(ε _{FM}):	Porositätsfunktion	[-]
g:	Erdbeschleunigung	[m/s ²]
h:	Druckhöhe	[m]
k _B :	Boltzmann-Konstante	[J/K]
k _f :	hydraulische Leitfähigkeit	[m/s]
k _H :	Hamaker-Konstante	[J]
k _{LvdW} :	London-van-der-Waals-Konstante	[J·m]
L:	Länge der Kapillare, Höhe des Schüttbetts	[m]
L _{DH} :	Debye-Hückel-Länge	[m]

n:	Zahl der Ionen pro cm ³ Elektrolyt bei weiter Entfernung von der Oberfläche, $\Psi_0 = 0$	
N:	Anzahl der abgeschiedenen Partikel	[1/m ³]
p:	Druck	[Pa], [bar]
p ₂ :	Druck an der Stelle 2	[Pa], [bar]
P1...P4:	Punkte in einer Elektrolytlösung	
Q _{FM} :	Punktladung (Filtermittel)	[C]
Q _S :	Punktladung (suspendiertes Partikel)	[C]
R _a :	Oberflächenrauigkeit	[m]
R _D :	Filterwiderstand nach Darcy	[1/m]
R _{el} :	elektrischer Widerstand	[Ω]
R _i :	Filterkoeffizient nach Iwasaki	[1/m]
R _K :	Carman-Kozeny-Konstante	[-]
r _s :	Radius des suspendierten Partikels	[m]
r _{FM} :	Radius des Filtermittels	[m]
r _ζ :	Scherebene	[m]
r:	Abstand Partikel – Kapillarwand	[m]
S _V :	spezifische Oberfläche	[m ² /m ³]
T:	absolute Temperatur	[K]
T:	Zeit	[s]
U _S :	Strömungspotential	[V]
u:	Funktion in der DLVO-Theorie	
V _S :	Volumen eines suspendierten Partikels	[m ³]
\dot{V} :	Volumenstrom	[m ³ /s]
V _B :	Bettvolumen	[m ³ /m ³]
\dot{V}_F :	Filtratvolumenstrom	[m ³ /s]
\dot{V}_R :	Rückspülvolumenstrom	[m ³ /s]
v:	Filtergeschwindigkeit, Fließgeschwindigkeit im Filter	[m/s]
v _K :	Fließgeschwindigkeit in einer Kapillare	[m/s]
v _{Kg} :	Fließgeschwindigkeit in einer großen Kapillare	[m/s]
v _{Kk} :	Fließgeschwindigkeit in einer kleinen Kapillare	[m/s]
v _{Kz} :	Fließgeschwindigkeit in einer Kapillare in z- Richtung	[m/s]
v _z :	Geschwindigkeit in z-Richtung	[m/s]
z:	Ionenstärke	[-]

Griechische Buchstaben

Δp :	Druckdifferenz im Filter	[Pa], [bar]
δ :	Abstand	[m]
ε_{FM} :	Porosität des Schüttbetts	[-]
ε_r :	Dielektrizitätszahl	[-]
ε_0 :	Dielektrizitätskonstante im Vakuum	[F/m]
γ_Z :	Funktion der Ionenstärke in der DLVO-Theorie	
η_{el} :	Ladung pro Flächeneinheit	[C/m ²]
$\eta_{0, 1, 2}$:	Ladungen im Bereich der Doppelschicht	[C/m ²]
η_L :	dynamische Viskosität der Flüssigkeit	[Pa · s]
η_R :	Wirkungsgrad der Rückspülung	[-]
φ :	Kornformfaktor	[-]
$\varphi(r_\zeta)$:	Potential an der Stelle r_ζ	[V]
κ :	inverse Debye-Hückel-Länge	[1/m]
λ :	Rohrreibungskoeffizient	[-]
μ :	Umfangfaktor (Tortuosität)	[-]
ρ_L :	Dichte der Flüssigkeit	[kg/m ³]
ρ_S :	Dichte der suspendierten Partikel	[kg/m ³]
ζ :	Zetapotential	[V]
ζ_a :	Zetapotential Adsorbent	[V]
ζ_b :	Zetapotential Biomasse	[V]
ζ_{FM} :	Zetapotential des Filtermittels	[V]
ζ_S :	Zetapotential des suspendierten Partikels	[V]
σ_L :	Leitfähigkeit der Flüssigkeit	[S/m]
τ :	Scherspannung	[N/m ²]
ψ_0 :	Oberflächenpotential	[V]
ψ_{iep} :	Potential am isoelektrischen Punkt	[V]
ψ_S :	Oberflächenpotential des suspendierten Partikels	[V]
ψ_{OF} :	Oberflächenpotential einer beliebigen Oberfläche	[V]

Abkürzungen

CSB:	Chemischer Sauerstoffbedarf
DLVO-Theorie:	Theorie nach Derjagun, Landau, Verwey und Overbeek
EBC:	European Brewery Convention
EFK:	Elektrokinetische Filtrationskennzahl
eos Schüttbett:	elektrokinetisch optimiertes, selektives Schüttbett
Eu:	Eulerzahl
FM:	Filtermittel
FS 900 S:	Ein Feldspat
H ₃ PO ₄ :	Phosphorsäure
HCl:	Salzsäure
IARC:	International Agency on Research of Cancer
KCl:	Kaliumchlorid
KHP:	Kaliumhydrogenphthalat
MN/Y:	Ein Aluminiumoxid
MP 62:	Ein Anionenaustauscher
NaOH:	Natriumhydroxid, Natronlauge
NTU:	Nephelometric Turbidity Unit
PVPP:	Polyvinylpolypyrrolidon
Re:	Reynoldszahl
TP 208:	Ein Kationenaustauscher
VE-Wasser:	Vollentsalztes Wasser
w%:	Gewichtsprozent

1 Problemstellung und Zielsetzung

Die Abtrennung partikulärer, suspensierter Partikel, insbesondere kolloidaler Stoffe, aus wässrigen Lösungen ist bei der Gewinnung von Trinkwasser sowie in vielen Bereichen der industriellen Herstellung von Lebensmitteln, Nahrungsergänzungsmitteln und Pharmazeutika aus unterschiedlichen Gründen notwendig. Die Abtrennung von Mikroorganismen aus Trink- und Abwasser dient vorwiegend dem Schutz der Menschen vor Infektionen [ATV, 1999], [RÜFFLER/ ROSENWINKEL, 1991]. Dazu werden im Bereich der **Trinkwassergewinnung** traditionell primär Kies- und Sandfilter verwendet. Um eine höhere Prozesssicherheit und damit eine bessere Trinkwasserqualität zu gewährleisten, werden diese heute durch Aktivkohlefilter oder Oxidationsmittel ergänzt. Im Bereich der Lebensmitteltechnik – insbesondere in der **Getränketechnik** – erfolgt die Abtrennung von Mikroorganismen und suspendierten Partikeln (Trubstoffen) zur Schönung sowie Haltbarmachung der Produkte [ATV, 2000], [DITTRICH, 1993]. Aufgrund des großen Bedarfs an Filterfläche und zur Wahrung der Prozesssicherheit kommen hier je nach Anwendung hauptsächlich Tuch-, Masse- oder Anschwemmfilter und in den letzten Jahren auch zunehmend Membranprozesse zum Einsatz. Die Separation von Mikroorganismen aus der Fermentationslösung ist bei der Gewinnung und Aufreinigung **biotechnologisch erzeugter Produkte** essentiell [CHMIEL, 2005], [STORHAS, 2003]. In diesem Bereich erfolgt die Abtrennung der Mikroorganismen mit Membranprozessen oder auch mit Hilfe von Zentrifugen. Die Nachteile der genannten konventionellen Filtrationsverfahren liegen in der geringen Regenerierbarkeit der Filtermittel und Filterhilfsmittel und den damit verbundenen hohen Betriebskosten für deren Erwerb und Entsorgung. Ein weiterer Nachteil aller genannten Separationsverfahren ist in dem teilweise sehr hohen Energiebedarf zu sehen.

Je nach Einsatzgebiet ist die Verwendung entsprechend angepasster Filtrationsverfahren notwendig. Die konventionelle Filtration umfasst dabei schwerpunktmäßig die Bereiche der Tiefen- und Oberflächenfiltration, ein neueres und bereits etabliertes Verfahren ist die Membranfiltration. Das Verfahren der **Tiefenfiltration** wird häufig zur Entfernung geringer Konzentrationen von suspendierten Partikeln aus Flüssigkeiten eingesetzt [ADIN/REBHUN, 1987], [COAD/IVES, 1981]. In der Prozess- und Trinkwasseraufbereitung wird dabei in der Regel Sand als Filtermittel in einer oder mehreren Schüttschichten verwendet [MUTSCHMANN/ STIMMELMAYER, 2002]. In den Bereichen in denen eine Filtration höher konzentrierter Suspensionen erfolgt – wie beispielsweise in der Getränkeindustrie und der Biotechnologie – werden die Kuchenfiltration sowie die Anschwemmfiltration (eine Kombination aus Tiefen- und Oberflächenfiltration) seit Jahrzehnten eingesetzt. In erster Linie werden hierfür Kieselgur- und Kieselgel als Filterhilfs-

mittel [DITTRICH, 1993], [NARZISS, 1986] mit den folgenden beiden Einsatzschwerpunkten verwendet [LEIBNITZ, 1994]:

- Klarfiltration von Flüssigkeiten,
- Abtrennung suspendierter Partikel aus biotechnologischen Prozessen.

Ein gravierender Nachteil der Tiefen- und Anschwemmfiltration ist jedoch, dass sie keinen vollständigen Rückhalt für die suspendierten Partikel bieten. Der Einsatz von **Oberflächenfiltrationsverfahren** ermöglicht hier durch den vollständigen Rückhalt der partikulären Stoffe eine Verbesserung, allerdings sind diese Verfahren stark anfällig für die Bildung von gering durchlässigen Deckschichten, vgl. [KLEIN, 1999]. Unabhängig von der Wahl des Verfahrens verursachen die benötigten großen Filterflächen entsprechend hohe Investitions- und Betriebskosten. Die Effizienz der Entfernung von Partikeln und Mikroorganismen aus wässrigen Lösungen mittels Oberflächenfiltration wurde mit Beginn des Einsatzes von technischen **Mikro- und Ultrafiltrationsmembranen**¹ anstelle der konventionellen Filtermittel bedeutend verbessert u.a. [GIMBEL ET.AL., 1999], [RIPPERGER, 1998]. Zusätzliche Sicherheit bietet vielfach die Kombination der Membranfiltration mit Verfahren der Desinfektion. Die Zugabe von entsprechenden Desinfektionsmitteln ermöglicht es, die Membranen frei von einem Mikroorganismenfilm zu halten. Allerdings stellt die Verwendung von Chlor oder Ozon besondere Anforderungen an Membranmaterial, Anlagentechnik sowie Anlagensicherheit [SCHLICHTER, 2003], [STOCKINGER, 1995].

Bei den bereits angesprochenen Prozessen der Lebensmittel- und Biotechnologie hingegen ist die Mikroorganismendichte in den wässrigen Lösungen wesentlich höher als im Bereich der Trinkwasseraufbereitung. Die Adhäsion der Mikroorganismen und damit die Bildung eines Biofilms auf den Membranen werden dadurch begünstigt, und die entstandene Deckschicht aus Mikroorganismen verringert die Standzeit der Membranen deutlich [RIDGWAY/FLEMMING, 1996]. Die Abnahme des Flusses und der Druckanstieg können die Membranverfahren in diesen Bereichen energie- und kostenintensiv machen und sind nur durch eine effiziente Steuerung der Membranreinigung mit Permeat und/oder Reinigungschemikalien zu handhaben [BRITZ, 2005]. Insbesondere bei höher konzentrierten Suspensionen, wie ungeklärten Getränken oder biotechnologischen Fermentationsbrühen, ist es möglich, dass die Deckschicht aus

¹ Zur Gewinnung von keimfreiem und partikelfreiem Trinkwasser werden auch verstärkt getauchte Membransysteme eingesetzt [GUENDER, 2001].

Mikroorganismen nicht mit dem Reinigungs- bzw. Rückspülprozess entfernt werden kann. Die Ausbeuten sinken, was zu einer niedrigen Effizienz der Verfahren führt. Die Desinfektion oder Anwendung von chemischen Reinigern stellt oftmals keine Lösung dar, da diese das Produkt verunreinigen können oder Mikroorganismen, die für eine Verwertung oder Rückführung in den Prozess vorgesehen sind, abtöten. Eine irreversible Schädigung der Membranen durch die Mikroorganismen in der Deckschicht und die entsprechenden Kosten für den Ersatz der Filtermittel sowie der erforderliche Energieeinsatz sorgen vielfach dafür, dass die Produktgewinnung mit hohen Kosten einhergeht, vgl. [ANTRANIKIAN, 2005].

Zur **Verhinderung einer Deckschichtbildung** aus abfiltrierten Partikeln, die eine Permeation des Fluids stark beeinträchtigt, werden bei den konventionellen Verfahren der Oberflächenfiltration Filterhilfsmittel zur Bildung eines porösen Kuchens eingesetzt. Die Membrantechnik bietet in den Bereichen der Lebensmittel- und Biotechnik eine Vielzahl von Möglichkeiten, die Produkte gezielt und in der gewünschten Form aufzureinigen. Ihr effizienter Einsatz muss besonders bei der Filtration von kolloidalen Suspensionen durch eine geeignete Kontrolle der Deckschichtbildung gewährleistet werden. Die Lösung des Problems der Deckschichtbildung besteht in vielen Fällen darin, mehrere Verfahrensstufen zu kombinieren: In der ersten Stufe wird der Großteil der suspendierten Partikel abgetrennt, und in der zweiten Stufe erfolgt der vollständige Rückhalt der verbliebenen Partikel mittels Membranfiltration. Bei den Vorreinigungsstufen handelt es sich aufgrund der großen benötigten Filterfläche und den benötigten Mengen an Filtermittel selten um Filtrationsverfahren als vielmehr um Verfahren der Dichtentrennung. Der Einsatz dieser Vorreinigungsstufen, wie z.B. Sedimentationsbecken oder Zentrifugen, führt entweder zu einer geringen Vorreinigungsleistung bei hohem Investitionsbedarf aufgrund der benötigten Anlagentechnik oder zu hohen Betriebskosten durch die benötigte Energie bei gleichzeitig hoher mechanischer Belastung des Produktes. Dies verdeutlicht, dass ein entsprechendes Vorreinigungsverfahren, das die suspendierten Partikel schonend entfernt und gleichzeitig niedrige Betriebskosten verursacht, für die Lebensmittel- und Biotechnologie einen Fortschritt in der Separationstechnik bedeutet. Auf der Grundlage der geschilderten Kriterien soll im Rahmen dieser Arbeit ein **Filtrationsverfahren als Vorreinigungsstufe** entwickelt werden, das

- im Bereich der Lebensmitteltechnik als Vorfiltration,
- im Bereich der Biotechnologie zur selektiven Abtrennung von Mikroorganismen sowie
- zur sonstigen Abtrennung von suspendierten, kolloidalen Partikeln aus wässrigen Lösungen eingesetzt werden kann.

Um dieses Ziel zu erreichen, ist es notwendig, dass der Filter eine genau **definierte Trenngrenze** einhält und die partikulären Stoffe gezielt abtrennen kann. Die konventionellen Filtrationsverfahren nutzen in der Regel den mechanischen Sperreffekt in Kombination mit Adsorptions- und Adhäsionseffekten und sind daher in ihrem Trennbereich unpräzise. Zur Einstellung einer definierten Trenngrenze wird in dieser Arbeit der Einfluss **elektrokinetischer Phänomene** auf die Filterwirkung untersucht. Da die Betrachtung von elektrostatischen und elektrokinetischen Phänomenen wie beispielsweise die Ausbildung einer elektrolytischen Doppelschicht an einer Phasengrenze Effekte wie Korrosion, Adsorption und Kristallwachstum erklärt [HUNTER, 1981], [RAJAGOPALAN/KIM, 1981] und auch bei der Adsorption von Proteinen an Oberflächen in vielen biotechnologischen Prozessen von Bedeutung ist [FEUSER ET.AL., 1999], [JÖNSSON/STAHLBERG, 1999], soll der Einfluss der elektrokinetischen Abstoßungskräfte auf die Abscheideleistung eines partikulären Schüttbetts untersucht werden. Diese elektrokinetischen Repulsionskräfte werden industriell bereits bei der Herstellung stabiler Suspensionen [BOTH, 2000], [JAMES, 1979], [SCHRAMM, 2005] oder auch zur Destabilisierung bei Flockungsvorgängen [HAHN, 1994], [SCHRÖDER, 2001] genutzt. In der Vergangenheit wurde in der Verfahrenstechnik derartigen Grenzflächensystemen nur wenig Beachtung geschenkt, doch aufgrund aktueller Entwicklungen in den Materialwissenschaften – insbesondere der Nanotechnologie – werden auch hier die Phänomene an den Phasengrenzen verstärkt untersucht [WESER, 1980], da diese eine Optimierung verfahrenstechnischer Prozesse ermöglichen [BORHO, 1998]. Von den zahlreichen Grenzflächeneigenschaften sind neben anderen Effekten die indirekte Bestimmung der Oberflächenspannung durch die Messung des Kontaktwinkels und die indirekte Bestimmung der Oberflächenladung durch die Messung des Zetapotentials von Bedeutung.

Im Gegensatz zu den bisherigen Untersuchungen, in denen zumeist die **Unterstützung von Adsorption und Adhäsion durch die Oberflächenladung** betrachtet wurden, sollen in dieser Arbeit die elektrokinetischen **Repulsionskräfte** zwischen dem Filtermittel und den abzuscheidenden Partikeln im Mittelpunkt der Untersuchungen stehen. Da diese Abstoßungskräfte einerseits die suspendierten Partikeln im Filtermittel zurückhalten und andererseits deren Anhaften verhindern, entsteht lediglich eine lockere Verbindung zwischen Filtermittel und den abzutrennenden suspendierten Partikeln im Schüttbett. Dadurch soll neben einer gezielten Abscheidung einzelner Partikelfraktionen eine einfache Regeneration des Schüttbetts erreicht werden. Entsprechend soll bei dem zu entwickelnden Filtrationsprinzip ein Filtermittel einge-

setzt werden, das ein zu den abzutrennenden suspendierten Partikeln gleichnamiges Zetapotential aufweist. Der Filtrationsverfahren soll dabei den folgenden Ansprüchen genügen:

- **geringer Energiebedarf** durch geringe Druckdifferenz – dies soll durch den Einsatz einer Tiefenfiltration anstelle einer Oberflächenfiltration erreicht werden,
- **leichte Regenerierbarkeit** – durch glatte Oberflächen des Filtermittels und ein zu den abzutrennenden Stoffen gleichnamiges Zetapotential soll eine Adsorption dieser Partikel am Filtermittel verringert bzw. verhindert werden,
- **geringe Beanspruchung des Produktes** aufgrund geringer Scherkräfte – durch Wahl niedriger Strömungsgeschwindigkeiten und Einsatz einer Tiefenfiltration anstelle einer Oberflächenfiltration kann auf eine Foulingkontrolle mittels Cross-Flow-Überströmung verzichtet werden.

In der Vergangenheit wurden bereits mehrfach Ansätze diskutiert, bei denen die Oberflächenladung der Filter- und Filterhilfsmittel und der abzutrennenden suspendierten Partikel betrachtet wurden, u.a. [COOKSON, 1970], [SPIELMAN/FRIEDLANDER, 1974]. Dabei wurde auf die mögliche Unterstützung einer ungleichnamigen Oberflächenladung auf die Adsorptionsprozesse in einem Filter hingewiesen. So zeigten DONHAUSER (1982) und auch NEUMANN (1983), dass bei der Abtrennung der überwiegend negativ geladenen Mikroorganismen aus Getränken wie Bier und Wein der Einsatz von positiv geladenen Filtermitteln die Adsorptionswirkung verstärkt und das Filtrationsergebnis positiv beeinflusst. Bei den meisten Autoren wurde ein Einfluss der Oberflächenladung auf die Filtrationsleistung jedoch abgestritten. Die Begründungen hierfür waren:

- Bei Modelluntersuchungen zur Wirkung eines gleichnamigen Zetapotentials bei der Abscheidung von Latexpartikeln in einem Bett aus Glaskugeln konnte kein Einfluss auf das Filtrationsergebnis nachgewiesen werden [FITZPATRICK/SPIELMAN, 1973].
- Zur Untersuchung des Einflusses des Zetapotentials auf die Adsorptionswirkung bei der Abscheidung von kleinen Partikeln in Getränken wurden positiv geladene Filtermittel verwendet, um die negativ geladenen Mikroorganismen abzutrennen [RAISTRICK, 1983]. Das Ergebnis der Untersuchungen war, dass die kleinen Partikel aufgrund der statistischen Abscheidung während der Passage des Schüttbetts und nicht aufgrund der Adsorption aus der Flüssigkeit entfernt werden.

- Untersuchungen an Entkeimungsfiltern unter Berücksichtigung der Wirkung des elektrokinetischen Potentials zeigten, dass die Wirkung insbesondere bei hohen Oberflächenrauigkeiten zu vernachlässigen ist [HUBERT, 1983].
- Eine erfolgreiche und gut durchgeführte Voranschwemmung sowie die Porenstruktur der eingesetzten Filterschichten haben den größten Einfluss auf das Filtrationsergebnis [BRENNER/OECHSLE, 1985]. Andere Effekte, die auf die Eigenschaften des Filtermittels und der Suspension zurückgeführt werden können, haben nur einen untergeordneten Einfluss auf die Filtrationsergebnisse.

Alle genannten Untersuchungen – unabhängig von der verwendeten Filtrationsart – fanden bei breiten Partikelgrößenverteilungen des Filtermittels statt und sollten breite Verteilungen von suspendierten Partikeln abtrennen. Aus diesem Grund ist deren Aussagefähigkeit hinsichtlich der Nutzung elektrokinetischer Repulsionskräfte für die Einstellung einer definierten Trenngrenze in einem partikulären Schüttbett eines Tiefenfilters gering. Seit einiger Zeit wird jedoch die Nutzung der Oberflächenladung bzw. des elektrokinetischen Potentials in Grenzschichten bei der Optimierung von Abscheidvorgängen von Mikroorganismen sowie bei der Foulingkontrolle von Membranen wieder verstärkt diskutiert. Die Diskussion wird in den verschiedensten Bereichen, in denen suspendierte Partikel – insbesondere Mikroorganismen – aus wässrigen Lösungen abgetrennt werden, geführt. Es handelt sich hierbei u.a. um die:

- Betrachtung der adsorptiven Wechselwirkungen von Zellen mit Gasblasen und Öltröpfchen in biotechnologischen Prozessen [KOMAROV/GANIN, 2004],
- Abtrennung von Mikroorganismen aus Fermentationslösungen mittels Chromatographie und Unterstützung der Adsorption durch das elektrokinetische Potential [FERNANDEZ-LAHOE ET.AL., 2000], [LIN ET.AL., 2001], [LIN ET.AL., 2003],
- Optimierung der Partikel-Partikeltrennung bei der Charakterisierung von (ähnlichen) Mikroorganismen [VAN HEE ET.AL., 2006], [PFETSCH, 1999],
- Aufwuchsimmobilisierung von Mikroorganismen auf anorganischen Oberflächen [KREKELER ET.AL., 1991],
- Unterstützung der Tiefenfiltration durch Adsorptionskräfte und Nutzung des Zetapotentials bei der Entfernung von Partikeln aus Suspensionen und Trinkwasser [DITTRICH, 1993], [STEPHAN/CHASE, 2001], [WANG, 1998],

- Optimierung von Flockungs- und Koagulationsprozessen bei der Trinkwasseraufbereitung durch Kontrolle der Zetapotentiale [LYTLE/FOX, 1994],
- Verringerung des Foulingpotentials von Membranen, u.a. [BOWEN ET.AL., 1999], [BLANK ET.AL., 1998], [BURNS/ZYDNEY, 2000], [PONTIÉ ET.AL., 1998],
- Reinhaltung von Oberflächen durch Abstoßungskräfte: Die Abtrennung von Tonpartikeln mit Hilfe von Glasperlen funktionierte wesentlich besser als erwartet [ODIACHI/PRIEVE, 1999]. Ebenso konnte bei der Abtrennung eines positiv geladenen Bakteriums auf Glas und Teflon gezeigt werden, dass die Adhäsion mit negativem Zetapotential der Materialien zu- und bei einem positiven Zetapotential abnimmt [JUCKER ET.AL., 1996]. Bei Untersuchungen zur Anhaftung von Mikroorganismen an Oberflächen in der Lebensmittelindustrie konnte durch die Wahl der entsprechenden Materialien mit einem gleichnamigen Zetapotential eine Adsorption der Mikroorganismen verhindert werden [WEIGL, 2004].

Diese Untersuchungen zeigen, dass den elektrokinetischen Kräften in der aktuellen Diskussion eine hohe Bedeutung beigemessen wird, obwohl sie selber und ihre Wirkung noch nicht umfassend beschrieben sind [LEIBNITZ, 1994]. Die Erweiterung der Kenntnisse um die elektrokinetischen Phänomene ist daher ein wichtiger Schritt, um diese technisch nutzbar zu machen. Auch wenn diese Phänomene derzeit noch nicht detailliert beschrieben werden können, da die physikalisch-chemischen Messmethoden und ihre Theorien begrenzt sind, vgl. auch [HERMANSSON, 1999], soll die Elektrokinetik ein wesentlicher Aspekt dieser Arbeit sein. Dazu soll neben anderen der Ansatz von GREGORY und WISHART (1980) aufgegriffen werden, die gezeigt haben, dass kleine Partikel mit gleichnamigem Zetapotential dazu neigen, sich abzustößen, während Partikel mit ungleichnamigem Zetapotential sich anziehen und aneinander adsorbieren. Da andere Autoren ebenfalls zeigten, dass die Adsorption durch ein ungleichnamiges elektrokinetisches Potential gefördert wird, u.a. [JUCKER ET.AL., 1996], [LIN ET.AL., 2003] und gleichnamige Zetapotentiale die Adsorption verhindern [COOKSON, 1970], [WEIGL, 2004] soll die **Förderung des Rückhaltes** durch die **gezielte Einstellung des Porendurchmessers** des Schüttbetts über die **Filtermittelgröße** und das **elektrokinetische Potential** in dieser Arbeit betrachtet werden.

Das Ziel dieser Arbeit ist somit die Untersuchung der Einflüsse elektrokinetischer Repulsionskräfte zwischen Filtermittel und abzutrennenden suspendierten Partikeln sowie der Partikelgrößenverteilung des Filtermittels auf das Filtrationsergebnis. Als elektrokinetische Kenngröße wird das Zetapotential der verschiedenen Feststoffoberflächen (Filtermittel und

suspendierte Partikel) verwendet. Bei der eingesetzten Filtrationsart soll es sich um die Tiefenfiltration handeln, und das eingesetzte Filtermittel soll eine gute Regenerationseigenschaft aufweisen. Hierzu wird eine mehrstufige Vorgehensweise gewählt: Zunächst erfolgt eine theoretisch orientierte Modellierung des Filtrationsprinzips mit anschließender Definition geeigneter dimensionsloser Kennzahlen. Im Anschluss daran wird das Tiefenfiltrationsverfahren mit elektrokinetisch optimiertem, selektivem Schüttbett in praktischen Versuchen auf seine Funktionsfähigkeit hin untersucht. Auf der Basis dieser Versuchsreihen erfolgt dann die Erweiterung einer Filtergleichung durch einen Filtrationsparameter, der die elektrokinetischen Wechselwirkungen berücksichtigt. Die Anwendbarkeit des Verfahrens und der theoretischen Modelle wird abschließend durch Untersuchungen an einem realen Fluid – der Vorfiltration von Bier – nachgewiesen.

2 Grundlagen der Filtration sowie der Entstehung von Oberflächenladungen und Zetapotentialen an Phasengrenzen

Das Ziel dieser Arbeit ist es, den Einfluss elektrokinetischer Wechselwirkungen in Form von durch das Zetapotential verursachten Repulsionskräften auf die Filtration von Suspensionen zu untersuchen und zu beschreiben, wobei die verwendete Filtrationsart die Tiefenfiltration sein soll. Um diese von den anderen Filtrationsarten abgrenzen zu können, wird im Folgenden die Tiefenfiltration von den anderen Typen der Filtration differenziert und deren Vor- und Nachteile einander gegenübergestellt. Neben gängigen Filtergleichungen werden elektrostatische und elektrokinetische Modelle zur Beschreibung von Oberflächenladungen sowie zur Beschreibung von Wechselwirkungen zwischen geladenen Oberflächen diskutiert.

2.1 Übersicht über die verschiedenen Filtrationsverfahren

Unter Filtration wird das Trennen eines Fluid-Feststoffgemisches in seine Bestandteile mit Hilfe eines für das Fluid durchlässigen Filtermittels [GASPAR ET. AL., 2000] verstanden. Bei dem Fluid kann es sich dabei sowohl um Gase als auch um Flüssigkeiten handeln. Im Folgenden wird der Fall einer **Suspension**, also eines flüssigen, wässrigen Fluids, das suspendierte Partikel enthält, betrachtet. Diese Suspension wird in der Filtration meist als **Trübe** bezeichnet. **Filtermittel** sind im Folgenden Materialien, in denen oder mit denen die suspendierten Partikel zurückgehalten werden. Sie bewirken eine semipermeable Trennung von Flüssigkeit und suspendierten Partikeln, wobei die abgeschiedenen Partikel einen **Filterkuchen** bilden. Eine **Stützschiicht** sorgt für die mechanische Stabilität des Filtermittels und hält dieses im Filterapparat zurück. Im Bedarfsfall wird der Trübe ein **Filterhilfsmittel** zugegeben, das die Filtrationsleistung durch den Aufbau eines stark porösen und damit gut durchlässigen Filterkuchens erhöht [SCHUBERT, 2003].

Die Filtrationsmethoden werden nach dem angelegten Filtrationsdruck oder nach dem Ort der Partikelabscheidung unterschieden [STIEß, 1995]. Entsprechend der Triebkraft für die Filtration wird differenziert zwischen

- **Hydrostatischen Filtern** (Schwerkraftfilter, $\Delta p = 0$),
- **Überdruckfiltern** ($\Delta p = 1 \dots 5 (25) \cdot 10^5$ Pa) und
- **Unterdruckfiltern** ($\Delta p = 0,5 \cdot 10^5$ Pa) [MONOD/BRAULT, 1991], [WIELAND, 1999].

Der Einfluss des Drucks auf das Filtrationsergebnis und die Filtrationsgeschwindigkeit ist mit der Art bzw. dem Ort der Partikelabscheidung eng verbunden. Die Partikelabscheidung erfolgt bei der Filtration durch die Anlagerung der abzutrennenden suspendierten Partikel an der äußeren Oberfläche des Filtermittels oder in den Poren und Zwischenräumen einer aus dem Filtermittel bestehenden Schicht. Diese Anlagerung erfolgt entweder aufgrund der geometrischen Voraussetzungen oder auch durch Adsorption am Filtermittel. Entsprechend wird zwischen den Filtrationsarten **Tiefenfiltration** und **Oberflächenfiltration** unterschieden [DICKENSON, 1997], [GMEHLING/BREHM, 1996], [STIEß, 1995]. Hierbei ist anzumerken, dass es sich bei dieser Unterteilung um eine vereinfachte Modellvorstellung handelt, die wesentliche Unterschiede der Filtrationsarten darstellt. Bei den meisten technischen Anwendungen treten die Filtrationsarten **kombiniert** auf, und der Prozess wird entsprechend der dominierenden Filtrationsart benannt [GASPAR ET. AL., 2000], [SCHUBERT, 2003], [STIEß, 1995].

Bei der **Tiefenfiltration** ist der Durchmesser der abzutrennenden suspendierten Partikel **kleiner** als der Durchmesser der Filterporen. Der Rückhalt erfolgt primär durch physikalisch-chemische Mechanismen (z.B. Adsorption und Adhäsion), die zu einer Anlagerung der suspendierten Partikel in den Kanälen und Poren führen [BAUMANN ET. AL., 1993]. Bevor die untersten Poren des Filtermittels mit suspendierten Partikeln blockiert sind und damit nachfolgende Partikel durch einen Sperreffekt zurückgehalten werden, wird daher keine vollständige Reinigung erzielt. Sind alle Poren des Schüttbetts mit abgetrennten Partikeln gefüllt, ist der Filter erschöpft und es können keine weiteren Partikel zurückgehalten werden; es kommt zu einem Durchbruch des Filters [SCHUBERT, 2003], vgl. **Abb. 2-1 A**. Bei dieser Filtrationsart erfolgt die Durchströmung des Filtermittels immer orthogonal, d.h. in Flussrichtung der Trübe (Dead-End-Filtration). In der Regel tritt dabei kein oder lediglich ein geringer Druckanstieg auf [GASPAR ET. AL., 2000]. Um einerseits hohe Druckanstiege und andererseits unerwünschte Partikel im Filtrat zu vermeiden, müssen Tiefenfilter regelmäßig zur Entfernung der abgetrennten Partikel aus dem Schüttbett zurückgespült werden. Wenn dies nicht möglich ist, muss das Schüttbett ausgetauscht werden. Diese Filtrationsart findet ihre Anwendung bei der Filtration von Suspensionen mit geringer Feststoffbelastung. Sie eignet sich dabei allerdings sehr gut zur Filtration von schwer filtrierbaren Suspensionen [GASPAR ET. AL., 2000].

Ist der Durchmesser der abzutrennenden suspendierten Partikel **größer** oder **gleich** dem Durchmesser der Filterporen, dann handelt es sich um eine **Oberflächenfiltration**. Die Rück-

haltemechanismen sind hierbei überwiegend der Sperreffekt und die Adsorption. Die Siebwirkung entsteht in der obersten Schicht des Filtermittels durch einen anwachsenden, kompressiblen Filterkuchen, der entweder nur aus den abzutrennenden Partikeln oder auch aus einem Gemisch dieser Stoffe und einem Filterhilfsmittel bestehen kann, und dessen Porenweite geringer ist als die Größe der abzutrennenden Partikel. Ist dieser Filterkuchen maßgeblich an der Abscheidewirkung des Filters beteiligt, dann wird bei dieser Art der Oberflächenfiltration auch von **Kuchenfiltration** gesprochen, u.a. [DICKENSON, 1997]. Bei der Oberflächenfiltration wird über die gesamte Filtrationsdauer eine konstante Reinigung der Trübe erreicht, vgl. **Abb. 2-1 B**. Die Durchströmung des Filtermittels erfolgt bei der konventionellen Oberflächenfiltration sowie ihrer Variante der Kuchenfiltration ebenfalls **vertikal**. Die Oberflächenfiltration wird bevorzugt für Suspensionen mit hohen Partikelkonzentrationen und in Bereichen eingesetzt, in denen die suspendierten Partikel vollständig zurückgehalten werden müssen (z.B. Sterilfiltration) [GASPAR ET. AL., 2000]. Charakteristisch für die Oberflächenfiltration ist, dass der Strömungswiderstand im Filterapparat mit wachsendem Filterkuchen – also steigender Zahl an abgeschiedenen Partikeln – ansteigt [BAUMANN, ET. AL., 1993]. Ein signifikanter Druckanstieg deutet auf eine Erschöpfung des Filters hin [STIEB, 1995], vgl. **Abb. 2-1 B**. Eine Zugabe von kuchenauflöckernden Filterhilfsmitteln kann die Standzeiten derartiger Filter durch die Kombination der Oberflächenfiltration mit den Mechanismen der Tiefenfiltration erhöhen. Die konventionelle Oberflächenfiltration ist für die Filtration von schnell blockierenden – meist zähen oder schleimigen – Stoffen nicht geeignet, da aufgrund einer Deckschichtbildung die benötigte Druckdifferenz stark ansteigt und diese Deckschicht bei einer Rückspülung nicht ausreichend entfernt werden kann.

Mit der dynamischen Oberflächenfiltration, die auch als **Querstromfiltration** bezeichnet wird, kann die Reinigungsleistung bei hohen Konzentrationen von suspendierten kolloidalen Partikeln gegenüber der konventionellen Oberflächenfiltration erhöht werden. Bei der Querstromfiltration (Cross-Flow-Filtration) erfolgt eine **tangentiale** Überströmung des Filtermittels [GASPAR ET. AL., 2000]. Das Fluid dringt hier durch das Filtermittel, während der Großteil der Partikel sich nicht auf dessen Oberfläche ablagert, sondern mit der Strömung abtransportiert und auf diese Weise im Fluid aufkonzentriert wird [MELIN/RAUTENBACH, 2003]. Mit dieser Filtrationsart kann über die gesamte Filtrationsdauer ebenfalls eine konstante Reinigungsleistung bei konstanten und meist niedrigen Druckverlusten erreicht werden, vgl. **Abb. 2-1 C**. Häufigster Anwendungsfall der Querstromfiltration ist die Filtration mit Membranen als Filtermittel [SCHUBERT, 2003].

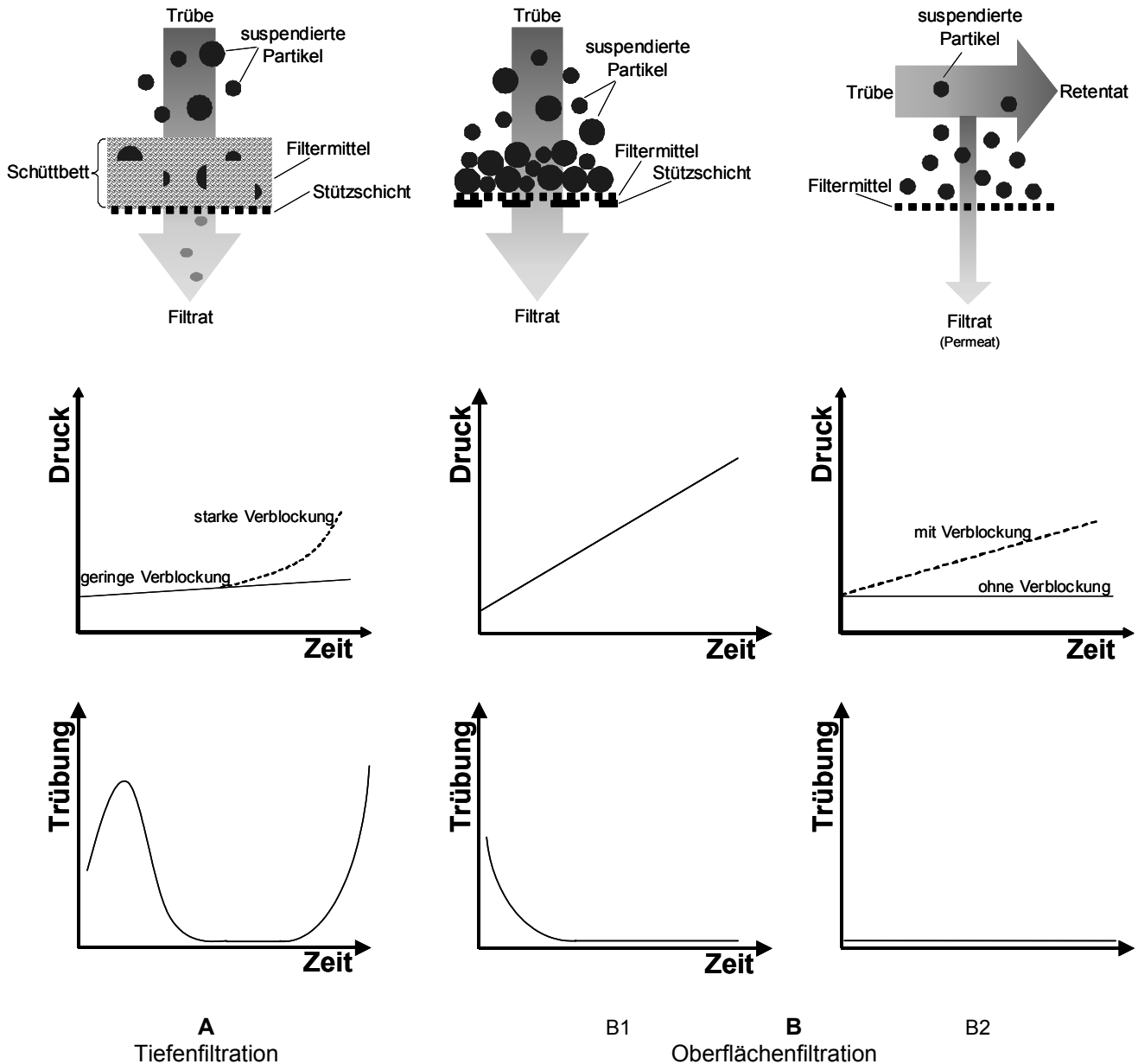


Abb. 2-1: Wirkprinzip der Filtrationsarten; typische Druck- und Trübungsverläufe; A: Tiefenfiltration, B: Oberflächenfiltration (B1: Kuchenfiltration, B2: Querstromfiltration)

2.1.1 Rückhaltemechanismen bei der Filtration

Die Abscheidung von Partikeln mit Filtern wird durch zwei grundlegende Schritte beschrieben: Den **Antransport** und die **Anlagerung** an das Filtermittel (Oberflächenfiltration) oder im Filtermittel (Tiefenfiltration). Dabei können die folgenden Wirkmechanismen als Rückhaltemechanismen identifiziert werden u.a. [BOHNET, 2004], [ERGUN, 1952], [IVES, 1975], **Abb. 2-2**:

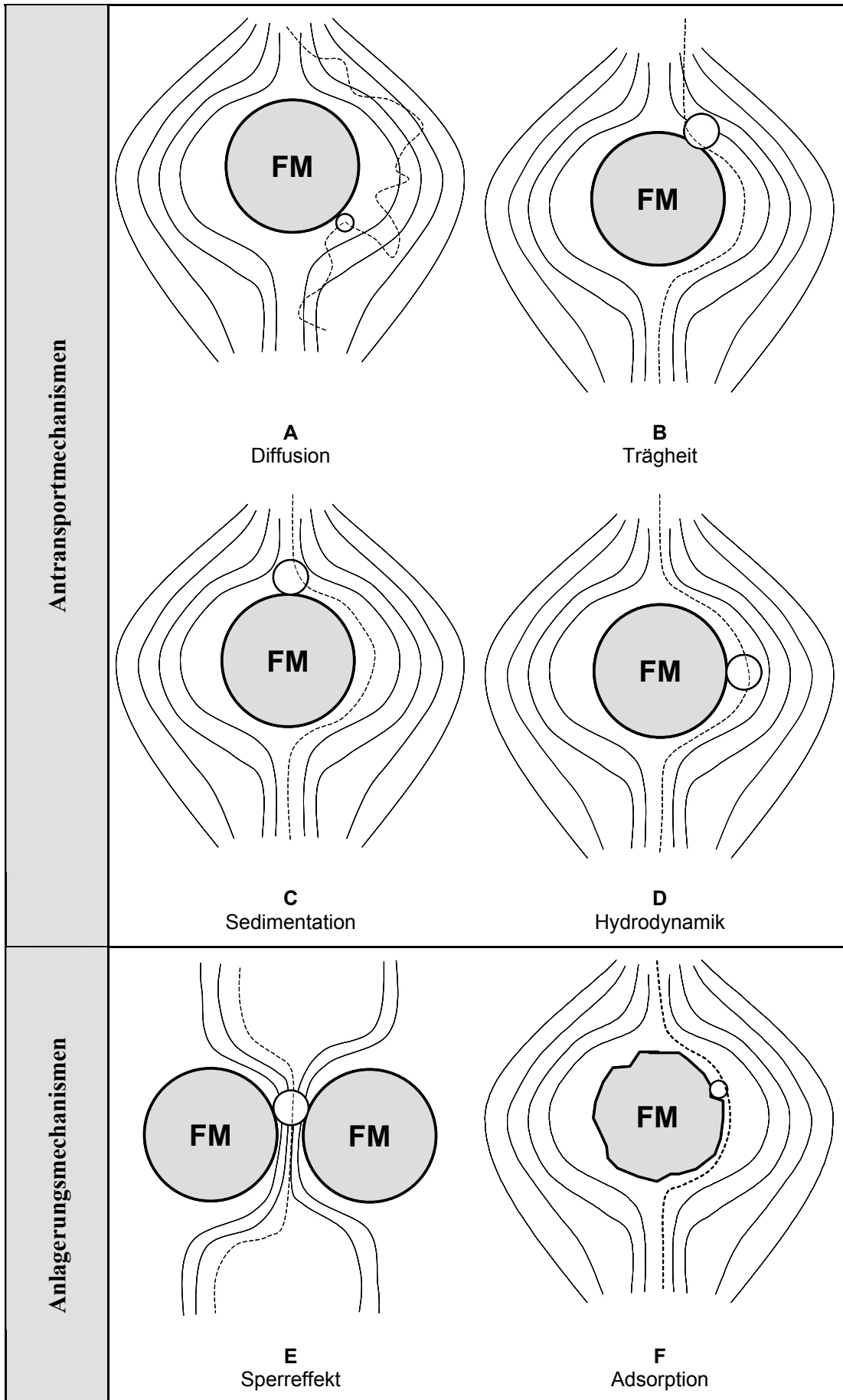


Abb. 2-2: Wirkmechanismen bei der Partikelabscheidung in einem Filter

Die **Antransportmechanismen** (A-D) beruhen auf der Wirkung bestimmter Kräfte während des Partikeltransportes im Fluid. Die **Diffusion** (Abb. 2-2 A) spielt bei der Filtration von Flüssigkeiten nur als Abscheidemechanismus von kleinen Partikeln ($< 0,5 \mu\text{m}$) eine Rolle. Sie wird von der Brownschen Molekularbewegung verursacht, die dem Strömungswiderstand der kleinen Partikel in der Flüssigkeit entgegen gerichtet ist [CHIANG/TIEN, 1982]. **Trägheit** und **Sedimentation** (Abb. 2-2 B, C) wirken hingegen hauptsächlich bei größeren Partikeln. Es erfolgt eine Trägheitsabscheidung, wenn die Partikel der Strömung nicht schnell genug folgen können und so auf das Filtermittel treffen, vgl. [DICKENSON, 1997]. Aufgrund der Dichte wässriger Fluide und der Abhängigkeit der Trägheitsabscheidung von der Partikelgröße spielt dieser Abscheidemechanismus bei der Filtration wässriger Suspensionen nur eine untergeordnete Rolle [IVES, 1980]. Die Sedimentation ist bei großen Dichteunterschieden in der Suspension wirksam, wenn gleichzeitig geringe Strömungsgeschwindigkeiten vorliegen [STIEB, 1995]. Bei einem laminaren Fluss in einem Filter variiert die Fließgeschwindigkeit in den Poren von null am Rand der Poren selber bis zu einem Maximum in der Porenmitte. Dieser Gradient verursacht Querkräfte (**hydrodynamische Einflüsse**), die insbesondere nicht-sphärische Partikel aus der Strömung gegen die Oberfläche des Filtermittels transportieren (Abb. 2-2 D) [IVES, 1980].

Der **Sperreffekt** ist kein echter Transportmechanismus, sondern verursacht als **Anlageungsmechanismus** eine Abscheidung des Partikels. Bei der Oberflächenfiltration ist er der vorwiegend wirksame Mechanismus, da er eine Passage der Partikel durch das Filtermittel verhindert. Auch bei der Tiefenfiltration ist der Sperreffekt ein wichtiger Wirkmechanismus. Dabei kann er einerseits zwischen zwei Filtermittelpartikeln auftreten, indem ein größerer Partikel eingeklemmt wird (Abb. 2-2 E), andererseits aber auch bei kleinen Partikeln, die aufgrund der Oberflächenrauigkeit an der Oberfläche des Filtermittels anhaften [IVES, 1975]. Das gleiche gilt für die **Adsorption**, die neben Partikeln auch Moleküle, die sich in dem wässrigen Fluid befinden, an der Oberfläche des Filtermittels zurückhält (Abb. 2-2 F) [BORHO, 1998], [GMEHLING/BREHM, 1996].

Die diskutierten Wirkmechanismen treten nicht isoliert, sondern stets in Kombinationen auf [IVES, 1975], wobei die verschiedenen Kombinationen den einzelnen Filtrationsarten zugeordnet werden können, wie dies in **Tab. 2-1** geschehen ist. Entsprechend diesen unterschiedlichen Wirkmechanismen ist die Auslegung und Optimierung von Fest-Flüssig-Filtern in großem Maße empirisch, da mehr als 20 Faktoren Einfluss auf die genannten Wirkmechanismen und damit das Filtrationsergebnis haben [GASPAR, 2004]. Zu diesen Einflussfaktoren zählen u.a. Druckdiffe-

renz, Filtergeschwindigkeit, Volumenstrom, Viskosität, Partikelkonzentration in der Suspension und Filterfläche [DICKENSON, 1997], [GASPER, 2004], [GMEHLING/BREHM, 1996].

Tab. 2-1: Zuordnung der Wirkmechanismen zu den Filtrationsarten

Tiefenfiltration	Oberflächenfiltration (kuchenbildende Filtration)	Oberflächenfiltration (Querstromfiltration)
Trägheit	Sperreffekt	Sperreffekt
Hydrodynamik	Adsorption	Adsorption
Sperreffekt	Hydrodynamik	
Adsorption	Diffusion	
Sedimentation		
Diffusion		

2.1.2 Abgrenzung der Tiefenfiltration gegenüber anderen Filtrationsverfahren

In der Verfahrenstechnik werden für Tiefenfiltrationsverfahren von Flüssigkeiten zwei Arten von Filtermitteln unterschieden [RAJAGOPALAN/TIEN, 1979]. Diese sind:

- partikuläre Schüttbetten sowie
- Vliese und Gewebe.

Im Fokus dieser Arbeit befindet sich der erste Anwendungsfall: Die Filtration von Flüssigkeiten in partikulären Schüttbetten.

Der Einsatz von Filtern zur Abtrennung von Partikeln, die nach dem Prinzip der **Tiefenfiltration** arbeiten, bedeutet für flüssige Medien stets, dass **kein vollständiger Rückhalt** erfolgt. Dies ist darauf zurückzuführen, dass in technischen Schüttschichten keine absolut homogenen Packungen erzeugt werden können, und Inhomogenitäten in der Packung das Filtrationsergebnis negativ beeinflussen [LEIBNITZ, 1994]. Dies ist insbesondere bei breiten Partikelgrößenverteilungen der suspendierten Partikel der Fall, da die kleinsten suspendierten Partikel das Schüttbett zu Beginn der Beladung ungehindert passieren können [SANTOS/BEDRINKOVETSKY, 2004]. Diese kleinen Partikel dringen tiefer in das Schüttbett ein als die größeren [SANTOS/BEDRINKOVETSKY, 2004], da sie rein statistisch betrachtet später als jene auf eine „enge“ Pore treffen und abgeschieden werden. Erst wenn die Poren in der unteren Hälfte des Schüttbetts durch abgeschiedene Partikel verstopft sind, verringert sich der Porendurchmesser und

auch die kleineren Partikel können zurückgehalten werden. Bei der Oberflächenfiltration und der Querstromfiltration erfolgt der Partikelrückhalt bereits vollständig zu Beginn der Filtration, da die Partikel an der Oberfläche des Filtermittels abgeschieden werden. Durch die sich ausbildende Deckschicht werden mit diesen Verfahren auch feinere Partikel zurückgehalten, weshalb die Durchlässigkeit des Filtermittels ab- sowie der Druckverlust während der Filtration zunimmt und dann deutlich über dem eines Tiefenfilters liegt. Da der Sperreffekt aus den geschilderten Gründen bei der Tiefenfiltration als alleiniger Anlagerungsmechanismus nicht ausreichend ist, werden für eine bessere Abscheidung von Partikeln in einem Tiefenfilter nach Möglichkeit gezielt Adsorptionseffekte zur Unterstützung der Partikelabscheidung gefördert. Bei den anderen Filtrationsarten ist die Adsorption nur bedingt erwünscht, da sie zu einer schnellen Deckschichtbildung und somit einer Verblockung des Filtermittels an der Oberfläche führt, was dessen Reinigung und Rückspülung erschwert. Bei der Tiefenfiltration kann jedoch die Adsorptionswirkung den Nachteil des nicht vollständigen Rückhaltes vermindern [HANNILA/HALLMAN, 1979], [RAISTRICK, 1986], [RAJAGOPALAN/KIM, 1981]. Die Vor- und Nachteile der Tiefenfiltration sind in **Tab. 2-2** einander gegenübergestellt.

Tab. 2-2: Gegenüberstellung der Vor- und Nachteile einer Tiefenfiltration
im Vergleich zur Oberflächenfiltration

Vorteile	Nachteile
<ul style="list-style-type: none"> • Geringe Druckdifferenz • Geringes Foulingpotential 	<ul style="list-style-type: none"> • Kein vollständiger Rückhalt • Filtermittel schlecht regenerierbar bzw. rückspülbar • Filterhilfsmittel nicht wieder einsetzbar

2.1.3 Allgemeine Ansätze zur Beschreibung einer Filtration (Dimensionslose Kennzahlen und Filtergleichungen)

Für eine allgemeine Beschreibung von Filtrationsvorgängen können

- mathematische Modelle,
- Ähnlichkeitstheoretische Methoden und
- empirische Ansätze

herangezogen werden. Zunächst kann die Durchströmung einer porösen Schüttung vereinfacht als Fluidströmung in einer Kapillare und damit als Rohrströmung aufgefasst werden.

Die Einflüsse auf eine derartige Strömung können zu einer Vielzahl für verschiedene Fluide und Fließbedingungen geltenden **mathematischen Gleichungen** kombiniert werden, von denen die **Navier-Stokes-Gleichung** eine fundamentale Gleichung für inkompressible Fluide darstellt [CHMIEL, 2005], [GMEHLING/BREHM, 1996], [SCHEIDEGGER, 1960]. Da die Navier-Stokes-Gleichung eine allgemeine Darstellung einer Strömung für räumliche und auch instationäre Vorgänge ist, weist sie eine hohe Komplexität auf, und ihre formale mathematische Lösung ist ausgesprochen kompliziert [SCHEIDEGGER, 1960]. Sie lautet z.B. für die Strömung in z-Richtung (Gl. 2-1):

$$\rho_L \cdot \left(\frac{\partial v_{Kz}}{\partial t} + v_{Kz} \cdot \frac{\partial v_{Kz}}{\partial z} \right) = \rho_L \cdot g - \frac{\partial p_2}{\partial z} + \eta_L \cdot \left(\frac{\partial^2 v_{Kz}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v_{Kz}}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 v_{Kz}}{\partial z^2} \right) \quad (\text{Gl. 2-1})$$

Mit:

ρ_L :	Dichte der Flüssigkeit	[kg/m ³]	v_{Kz} :	Fließgeschwindigkeit in einer Kapillare	
g :	Erdbeschleunigung	[m/s ²]		in z- Richtung	[m/s]
p_2 :	Druck an der Stelle 2	[Pa]	η_L :	dynamische Viskosität der Flüssigkeit	[Pa · s]

Haben weitere Parameter Einfluss auf die Strömung oder ändern sich die Rahmenbedingungen für die aufgestellte Differentialgleichung, so ist sie nicht mehr gültig und eine korrekte Darstellung des Strömungszustandes ist nicht möglich. Die mathematische Beschreibung der Strömung muss unter Berücksichtigung der weiteren Parameter neu definiert werden. Für eine Übertragung von verfahrenstechnischen Prozessen in unterschiedliche Maßstäbe ist es jedoch nicht zwingend notwendig, die Einflussparameter in einer komplexen mathematischen Beziehung wiederzugeben. An ihrer Stelle dienen oftmals Ähnlichkeitstheoretische Methoden und empirische Ansätze als Hilfsmittel für eine praxisorientierte Auslegung der Prozesse.

Ähnlichkeitstheoretische Methoden finden in der Verfahrenstechnik ihre Anwendung beim Vergleich von Transportvorgängen. Dabei werden dimensionslose Kennzahlen definiert, die zur Maßstabsübertragung eingesetzt werden können. So sind zwei Strömungen zäher Newtonscher Flüssigkeiten unter dem Einfluss von Trägheits- und Reibungskräften einander mechanisch ähnlich, wenn ihre Reynoldszahl übereinstimmt. Eine Ähnlichkeit unter dem Einfluss von Druck- und Trägheitskräften liegt bei Strömungen vor, deren Eulerzahl gleich ist. Sind die dimensionslosen Kennzahlen eines Systems bekannt, so kann bei Konstanz dieser Kennzahlen ein Up- oder Down-Scale des Prozesses erfolgen. Eine Möglichkeit zur Herleitung der dimensionslosen Kenngrößen bieten bereits die systembeschreibenden Differentialgleichungen, wie z.B. die genannte Navier-Stokes-Gleichung. Dabei werden zunächst die dimensionsbehafteten

abhängigen und unabhängigen Variablen der Gleichung in eine dimensionslose Form gebracht. Im Anschluss werden die weiteren Faktoren bzw. Faktorengruppen durch geeignete Multiplikationen ebenfalls dimensionslos gemacht, wodurch sich die entsprechenden dimensionslosen Kennzahlen ergeben.

Sind die systembeschreibenden Gleichungen jedoch in ihrer Gesamtheit nicht bekannt, so ist eine Beschreibung der physikalischen Vorgänge unter Verwendung der charakteristischen Größen des Systems ein geeignetes Mittel. Entsprechend der Ähnlichkeitslehre können **dimensionslose Kennzahlen** definiert werden, die aufgrund der grundsätzlichen Darstellbarkeit von physikalischen Gesetzmäßigkeiten komplexe Sachverhalte vereinfacht darstellen [STICHLMAIR, 1990], [ZIEREP, 1991]. Die Beschreibung einer Durchströmung von porösen Schichten erfolgt in der konventionellen Filtrationstechnik üblicherweise mit den folgenden sieben dimensionsbehaftete Einflussgrößen [SCHEIDEGGER, 1960], [STIEB, 1997]:

- Δp : Druckdifferenz im Schüttbett [Pa],
- v : Filtergeschwindigkeit [m/s],
- D_{FM} : Partikeldurchmesser des Filtermittels [μm],
- L : Höhe des Schüttbetts [m],
- ρ_L : Dichte der Flüssigkeit [kg/m^3],
- η_L : dynamische Viskosität der Flüssigkeit [$\text{Pa}\cdot\text{s}$],
- ε_{FM} : Porosität des Schüttbetts [-].

Aus diesen Größen lassen sich mit Hilfe des Π -Theorems nach Buckingham [PAWLOWSKI, 1971], [STICHLMAIR, 1990], [ZIEREP, 1991] vier dimensionslose Kennzahlen ermitteln. Ein zweckmäßiger und vollständiger Satz dieser dimensionslosen Kennzahlen lautet [STIEB, 1997]:

$$\Pi_1 = \frac{\Delta p}{\rho_L \cdot v^2} = \text{Eu} \quad \text{Eulerzahl} \quad (\text{Gl. 2-2})$$

$$\Pi_2 = \frac{v \cdot D_{FM} \cdot \rho_L}{\eta_L} = \text{Re} \quad \text{Reynoldszahl} \quad (\text{Gl. 2-3})$$

$$\Pi_3 = \frac{L}{D_{FM}} \quad \text{Längensimplex} \quad (\text{Gl. 2-4})$$

$$\Pi_4 = \varepsilon_{FM} \quad \text{Porosität} \quad (\text{Gl. 2-5})$$

Mit diesen Kennzahlen ist zwar eine Maßstabsübertragung eines funktionierenden Filtrationsverfahrens möglich, sie geben jedoch **keine Auskunft** über die **Beziehung der einzelnen Größen** zueinander und deren Einfluss auf den Filtrationsverlauf und das Filtrationsergebnis. Die verschiedenen Einflüsse und deren Wechselwirkungen können nur mit Hilfe systembeschreibender Filtergleichungen näher betrachtet werden. Bis heute wurden zahlreiche, die Dimensionierung von Filtern betreffende Gleichungen, auf der Basis experimenteller Untersuchungen entwickelt siehe u.a. [ADIN, 1978], [BEAR, 1961], [CHIANG/TIEN, 1985], [COOKSON, 1970], [MALOSZEWSKI/HENDRY, 1997], [NASSAR ET.AL., 1986], [NICOLAOU, 2003], [PAYATAKES ET. AL., 1974], [SAATCI/HALILSOY, 1987], wobei die dimensionslosen Kennzahlen hier vielfach als allgemeiner Ansatz für die Durchströmungsgleichungen dienen. Im Folgenden werden die fünf maßgeblich prägenden **empirischen Filtergleichungen** vorgestellt, die ihren Eingang in Lehrbücher gefunden haben und den anderen genannten spezialisierten Filtergleichungen zu Grunde liegen. Hierbei handelt es sich um die Gleichungen nach Hagen/Poiseuille, Darcy, Carman/Kozeny, Ergun und Iwasaki.

Wird die Navier-Stokes Gleichung für ein gerades Rohr und laminare² Strömung gelöst, so ergibt sich der erste Ansatz für die Beschreibung von Strömungsvorgängen in engen Röhren bzw. Kapillaren den **Hagen und Poiseuille** auf Grundlage experimenteller Untersuchungen herleiteten (Gl. 2-6) [GASPAR ET. AL., 2000], [SCHILLER, 1933].

$$\begin{aligned} \Delta p &= \frac{128 \cdot \dot{V} \cdot L \cdot \eta_L}{\pi \cdot D_K^4} \\ &= \frac{32 \cdot v_K \cdot L \cdot \eta_L}{D_K^2} \end{aligned} \quad (\text{Gl. 2-6})$$

Mit:

Δp :	Druckdifferenz im Filter	[Pa]	\dot{V} :	Volumenstrom	[m ³ /s]
L:	Länge der Kapillare	[m]	v_K :	Fließgeschwindigkeit in einer Kapillare	[m/s]
η_L :	dynamische Viskosität der Flüssigkeit	[Pa · s]	D_K :	Kapillardurchmesser	[m]

² Bei der allgemeinen Umströmungen von Partikeln bzw. der Durchströmung von Röhren und Kapillaren sind laminare Strömungsprofile von Bedeutung. In einem aus vielen Kanälen bestehenden partikulären Schüttbett, in dem die Strömung mehrfach umgelenkt und verzweigt wird, wird sich keine echte Schichtenströmung ausbilden. Daher wird der relevante Bereich auch als „zäher“ oder „Stokes“ Durchströmungsbereich bezeichnet [STIEB, 1995], [BIRD ET.AL., 2002]. Relevant für die zähe Durchströmung sind Reynoldszahlen $0,1 > Re > 10$.

In vielen natürlichen und technischen Systemen treten Kapillarströmungen durch Kapillarbündel auf. Zur Beschreibung der Durchströmung von Bodenschichten stellte Darcy (Gl. 2-7) einen Ansatz auf, der die Gleichungen von Hagen und Poiseuille derart modifiziert, dass er nun das Fließen durch einen Filter bzw. einen porösen Körper beschreibt [HÖLTING, 1996], [SCHUBERT, 2003]. Das **Gesetz von Darcy** gilt nur bei den folgenden Bedingungen [SCHEIDEGGER, 1960]:

- Die Strömung muss laminar sein, im Fall einer Porenströmung bedeutet das $Re < 1$; bereits der Übergangsbereich einer Porenströmung mit $Re = 1 \dots 10$ ist für die Gültigkeit der Gleichung nach Darcy kritisch.
- Die Strömung muss stationär und einphasig sein.
- Das fließende Medium muss inkompressibel sein und darf keine Wechselwirkungen mit dem Material des Schüttbetts zeigen.

$$\Delta p = \frac{v \cdot \eta_L}{R_D} \quad \text{Gesetz von Darcy} \quad (\text{Gl. 2-7})$$

Mit:

v : Filtergeschwindigkeit [m/s] η_L : dynamische Viskosität der Flüssigkeit [Pa · s]
 R_D : Filterwiderstand nach Darcy [1/m]

In diesem Ansatz werden die filterspezifischen Eigenschaften – wie beispielsweise die Porosität – durch den Filterwiderstand nach Darcy R_D beschrieben. **Carman und Kozeny** [STIEB, 1995] erweiterten diese Konstante derart, dass auch die Porosität und die spezifische Oberfläche mit in die Gleichung einbezogen werden (Gl. 2-8) [ERGUN, 1952]. Bei der Annahme, dass sich in der durchströmten Schicht starre Partikel mit $D_{FM} < 10$ mm befinden, ist die Carman-Kozeny-Konstante $R_K \sim 5$ [SCHUBERT, 2003], [STIEB, 1995].

$$\Delta p = v \cdot L \cdot \eta_L \cdot S_V^2 \cdot f(\varepsilon_{FM}) \quad (\text{Gl. 2-8})$$

Mit:

S_V : spezifische Oberfläche [m²/m³] $f(\varepsilon_{FM})$: Porositätsfunktion [-]
 ε_{FM} : Porosität des Schüttbetts [-]

Die Porositätsfunktion lautet:

$$f(\varepsilon_{FM}) = R_K(\varepsilon) \cdot \frac{(1 - \varepsilon_{FM})^2}{\varepsilon_{FM}} \quad \text{Porositätsfunktion nach Carman-Kozeny} \quad (\text{Gl. 2-9})$$

Mit:

$R_K(\varepsilon)$: Carman-Kozeny-Konstante [-]

Bei den bisher vorgestellten Filtergleichungen fließt die Korngröße des Filtermittels nur indirekt durch Einbeziehen der Porosität des Schüttbetts in die Filtergleichungen ein. Unter der Voraussetzung, dass ein zäh-turbulenter Strömungsbereich³ vorliegt, entwickelte **Ergun** [SCHEIDEGGER, 1960] eine Gleichung, die den Partikeldurchmesser sowie die Viskosität und die kinetischen Energieverluste in Form der bei der Durchströmung des Filtermittels entstehenden Reibung berücksichtigt (Gl. 2-10). Dabei nimmt Ergun an, dass das durchströmte Medium aus einer Ansammlung von Kapillaren besteht [ERGUN, 1952].

$$\Delta p = L \cdot \left(150 \cdot \frac{(1 - \varepsilon_{FM})^2}{\varepsilon_{FM}^3} \cdot \frac{\eta_L \cdot v}{d_{32}^2} + 1,75 \cdot \frac{(1 - \varepsilon_{FM})}{\varepsilon_{FM}^3} \cdot \frac{\rho_L \cdot v^2}{d_{32}} \right) \quad (\text{Gl. 2-10})$$

An dieser Stelle soll auf eine Betrachtung von turbulenten Strömungsvorgängen in Filtern jedoch nicht weiter eingegangen werden, weil sie für die folgenden Überlegungen nicht relevant sind, da das Strömungspotential messtechnisch bei laminarer Durchströmung ermittelt wird und die in dieser Arbeit untersuchten Vorgänge daher nur bei diesem Strömungszustand gelten.

Bei der Tiefenfiltration sind insbesondere **zwei Vorgänge** für die Partikelabscheidung **relevant**: Der **Transport** der Partikel zur Oberfläche eines Filtermittelpartikels und das **Haften** an diesem. Die bisher vorgestellten Gleichungen dienen ausschließlich zur Beschreibung der Transportvorgänge, wie sie bei der Durchströmung poröser Materialien – also auch bei der Oberflächen- und Membranfiltration (Mikro- und Ultrafiltration) – verwendet werden können. Für das Haften am Filtermittel im Schüttbett eines Tiefenfilters sind in erster Linie elektrostatische und Van-der-Waals-Kräfte verantwortlich [STIEB, 1995]. Durch die Zugabe von Chemikalien, die das Wechselwirkungspotential zwischen den Haftpartnern verändern, können die Haftkräfte entsprechend dem gewünschten Filtrationsergebnis beeinflusst werden. Bei Nutzung von Adsorptionsprozessen in einer Filtration mit Durchbruch ist die Anreicherung proportional zu der anfänglich vorhandenen Konzentration [COAD/IVES, 1981]. **Iwasaki** hat eine Filtergleichung aufgestellt, in der diese Veränderung der Konzentration über die Filtrationsdauer beschrieben wird. Ein Filterkoeffizient bildet speziell alle für die Tiefenfiltration relevanten Einflussgrößen ab, s. (Gl. 2-11), so dass die Wahrscheinlichkeit des Rückhalts eines Teilchens in der Filterschicht be-

³ Für die zäh-turbulente Durchströmung gelten Reynoldszahlen im Bereich $10 < Re < 2300$ [IVES, 1980]. Höher turbulente Strömungsvorgänge werden im Bereich der Passage von Bodenschichten lediglich bei FORCHHEIMER (1901) betrachtet.

mung des Rückhaltes von Partikeln in porösen Schichten – wie z.B. Sandschichten – in erster Linie die Adsorption als Wirkmechanismus untersucht [STEPHAN/CHASE, 2001], aber ein in der praktischen Anwendung nachweisbarer Einfluss wurde durchgehend verneint [BÖRNER ET.AL., 1994], [RAISTRICK, 1983]. Die Betrachtung der selektiven Wirkung des Filtermittels aufgrund einer elektrokinetischen Abstoßung wurde bei diesen Untersuchungen weitgehend vernachlässigt. Bis heute ist daher die Rolle der elektrischen Wechselwirkungen in Suspensionen und Emulsionen [HUNTER, 2001], [SCHRAMM, 2005] oder auch bei der Filtration nicht eindeutig geklärt, auch wenn ihre Wirksamkeit in den letzten Jahren wieder verstärkt diskutiert wird u.a. [KOMAROV/GANIN, 2004], [LIN ET AL., 2001], [ODIACHI/PRIEVE, 1999]. Im Folgenden wird für ein besseres Verständnis die Entstehung von Oberflächenladungen und elektrokinetischen Effekten sowie Messmethoden zur Ermittlung dieser Effekte diskutiert.

2.2 Entstehung von Oberflächenladungen und Zetapotentialen an Phasengrenzen

In der Elektrochemie und Kolloidchemie werden verschiedene elektrostatische und elektrokinetische Vorgänge unterschieden. Elektrostatische Effekte werden durch die Oberflächenladungen von Partikeln oder Verbindungen hervorgerufen und beispielsweise für die Herstellung stabiler disperser Systeme (z.B. Suspensionen und Emulsionen) oder auch bei der Optimierung von Flockungsvorgängen eingesetzt [HUNTER, 1981], [SCHRAMM, 2005]. Elektrokinetische Transportvorgänge werden durch das Vorhandensein einer elektrostatischen Grenzfläche zwischen zwei Phasen verursacht, sind aber nur bei einer Relativbewegung der beiden Phasen messbar [KADEN, 1999]. Für das Verständnis dieser Vorgänge werden zunächst die gängigsten Theorien zur Entstehung einer elektrostatischen Doppelschicht vorgestellt und anschließend das Zetapotential definiert sowie verschiedene elektrokinetische Messmethoden gegeneinander abgegrenzt.

2.2.1 Theorien zur Entstehung der elektrolytischen Doppelschicht (elektrostatische Effekte)

Bei den meisten Substanzen, die in Kontakt mit einem polaren Lösungsmittel kommen, entsteht eine Oberflächenladung, die durch Ionisation, Adsorption, Ablösung oder Diffusion von Ionen verursacht wird [SCHRAMM, 2005]. Diese Oberflächenladung kann in drei verschiedene Arten eingeteilt werden: Die

- permanente strukturbedingte Ladung,
- adsorbierte Oberflächenladung und die
- dissoziierte Oberflächenladung [DAVIS/KENT, 1990].

Die **permanente strukturbedingte Ladung** tritt immer dann auf, wenn durch den isomorphen Austausch von Kationen in der Gitterstruktur der festen Phase Potentialunterschiede verursacht werden. Befinden sich funktionelle Gruppen oder Ionen an der Oberfläche des Materials, so verändern sie die Oberflächenladung entsprechend. In diesem Fall wird von der **adsorbierten Oberflächenladung** gesprochen, die insbesondere von den Gegenionen aus der flüssigen Phase verursacht wird. Die Ionen, die sich in der diffusen Schicht um die Feststoffoberfläche befinden, bilden die **dissoziierte Oberflächenladung**. Die beiden letztgenannten Typen der Oberflächenladung werden bei der Modellierung von elektrostatischen Kräften wie z.B. bei der Bildung einer elektrolytischen Doppelschicht, je nach Modell weitergehend unterteilt.

Alle Modelle basieren auf der Annahme, dass beim Kontakt zweier Phasen ein Überschuss an Ionen einer Phase von einer entgegengesetzten Ladung in den angrenzenden Oberflächenregionen der zweiten Phase ausgeglichen wird und auf diese Weise eine neutrale Phasengrenze entsteht. Sind jedoch die elektrischen Ladungen in der Phasengrenze aufgrund von Überschusselektronen durch Ionen oder ionogene Gruppen ungleichmäßig verteilt, so bildet sich eine elektrolytische Doppelschicht aus [KADEN, 1999]. Nähern sich zwei Oberflächen aneinander an, so ändert sich die Konzentration der potentialbestimmenden Ionen in der Nähe der Oberfläche, und damit wird auch das Dissoziationsgleichgewicht beeinflusst [HUBERT, 1983].

Die Entstehung von elektrostatischen Doppelschichten analog zur Wirkungsweise eines elektrischen Kondensators wurde von Helmholtz beschrieben und von Gouy und Chapman verfeinert. Stern konzipierte auf dieser Grundlage das noch heute verwendete Modell zur Beschreibung elektrostatischer Doppelschichten [DAVIS/KENT, 1990], [HANNILA/HALLMANN, 1979].

2.2.1.1 Theorie von Helmholtz

Erste Betrachtungen zur Beschreibung der elektrostatischen Doppelschicht an Oberflächen wurden von Helmholtz durchgeführt [STERN, 1924]. Helmholtz vergleicht das Verhalten einer Grenzfläche zwischen einer festen und einer flüssigen Phase mit dem Verhalten eines Plattenkondensators [HELMHOLTZ, 1879]. Dabei nimmt er an, dass die Gegenionen sich direkt an der

Oberfläche der festen Phase befinden, um deren permanente strukturbedingte Ladung auszugleichen. Eine entsprechende Darstellung zeigt **Abb. 2-3 A**. Diese Doppelschicht besteht nach Helmholtz aus einer homogenen, flächenhaften Ladungsverteilung, deren Kapazität wie bei einem Plattenkondensator [DOBRINSKI, ET.AL., 2003], [WEDLER, 2004] berechnet werden kann, vgl. (Gl. 2-12).

$$C_D = \frac{A \cdot \epsilon_r \cdot \epsilon_0}{\delta} \quad (\text{Gl. 2-12})$$

Mit:

C_D : Kapazität der Doppelschicht	[F]	A: Fläche	[m ²]
ϵ_r : Dielektrizitätszahl	[-]	ϵ_0 : Dielektrizitätskonstante im Vakuum	[F/m]
δ : Abstand	[m]		

Das Potential an der Oberfläche nimmt mit zunehmender Entfernung von der festen Phase linear ab, siehe **Abb. 2-3 B**.

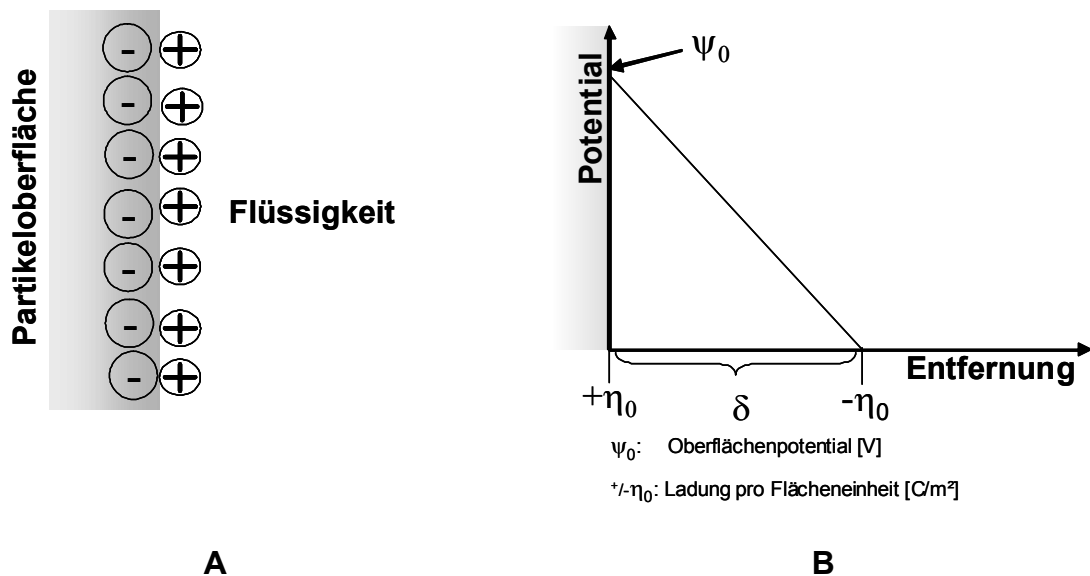


Abb. 2-3: Theorie von Helmholtz A) Schema der elektrostativen Doppelschicht, [EIGENE DARSTELLUNG] B) Potentialverlauf mit zunehmender Entfernung von der Oberfläche, modifiziert nach [KADEN, 1999]

2.2.1.2 Theorie von Gouy und Chapman

Gouy und Chapman verfeinerten diese Theorie indem sie die Verteilung der Gegenionen als diffusen Schwarm über der geladenen Festkörperoberfläche beschrieben [STERN, 1924]. Die-

ses Modell betrachtet zwei Punkte, von denen sich der eine auf der Oberfläche der festen Phase und der andere in theoretisch unendlicher Entfernung in der flüssigen Phase befindet. Während an dem ersten Punkt ein Überschuss an Ladungen vorliegt, sind an dem zweiten Punkt keine Ladungen mehr vorhanden, und es herrscht zwischen diesen beiden Punkten eine Potentialdifferenz. **Abb. 2-4 A** zeigt das Schema der elektrostatischen Doppelschicht nach Gouy und Chapman. Das elektrische Potential nimmt mit zunehmender Entfernung von der Festkörperoberfläche ab und ist bei ausreichender Entfernung von der festen Phase konstant [MÜLLER, 1996]. Durch die Annahme der punktförmigen Ionen kann die Ladung theoretisch beliebig nahe an die Oberfläche gebracht werden [WEDLER, 2004]. Bei einer regelmäßigen Anordnung der Gegenionen ist der Potentialabfall linear. Erfolgt eine Anreicherung der Gegenionen nahe der festen Phase – wie es in technischen Systemen meist üblich ist – ist der Spannungsabfall exponentiell (**Abb. 2-4 B**).

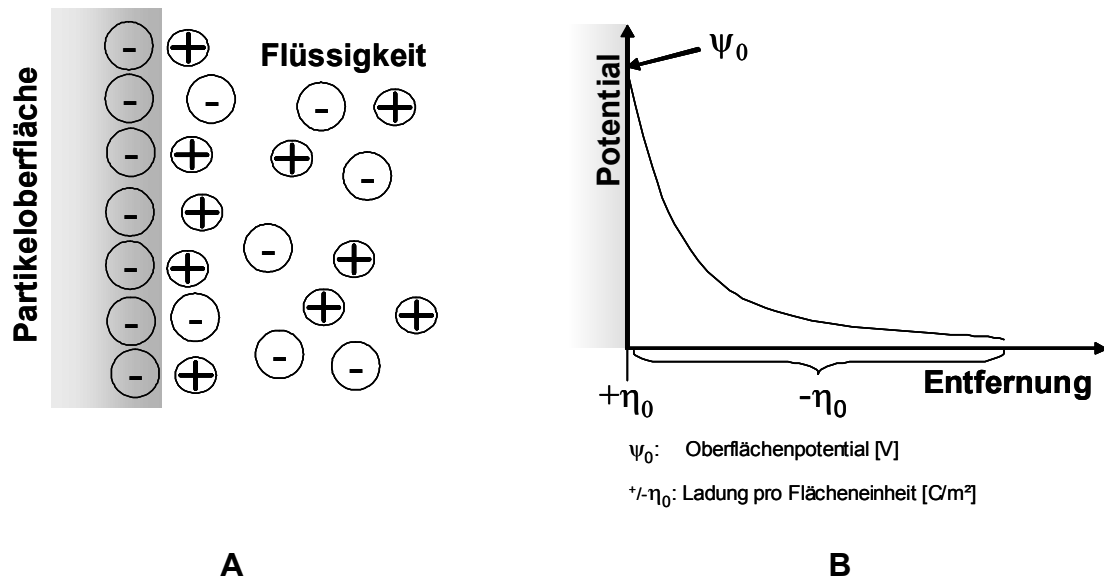


Abb. 2-4: Theorie von Gouy und Chapman, A) Schema der elektrostatischen Doppelschicht, B) Potentialverlauf mit zunehmender Entfernung von der Oberfläche
[EIGENE DARSTELLUNG]

Die Speicherung der Ladungen in der elektrostatischen Doppelschicht wird nach Gouy und Chapman mit folgender Gleichung (Gl. 2-13) beschrieben:

$$C_D = A \cdot \varepsilon_r \cdot \varepsilon_0 \cdot \kappa \cdot \cosh \left[\frac{z \cdot e_0 \cdot (\Psi_0 - \Psi_{iep})}{2 \cdot k_B \cdot T} \right] \quad (\text{Gl. 2-13})$$

Mit:

A:	Fläche	[m ²]	κ :	inverse Debye-Hückel-Länge	[1/m]
z:	Ionenstärke	[-]	ϵ_0 :	Elementarladung	[C]
Ψ_0 :	Oberflächenpotential	[V]	Ψ_{iep} :	Potential am isoelektrischen Punkt	[V]
k_B :	Boltzmann-Konstante	[J/K]	T:	Absolute Temperatur	[K]

2.2.1.3 Theorie von Stern

Die Theorie von Stern [STERN, 1924] basiert auf einer Kombination der Vorstellung der Doppelschicht von Helmholtz mit der Theorie der diffusen Schicht von Gouy und Chapman. Stern geht davon aus, dass die vorhandenen Ladungen nicht als Punktladungen, sondern als geladene Kugeln betrachtet werden, um eine überhöhte Berechnung der elektrischen Kapazität der Doppelschicht zu vermeiden [STERN, 1924] und zeigt, dass die Ionenwolke um das Feststoffpartikelteilchen herum einen äußerst komplexen Aufbau hat [DAVIES/KENT, 1990].

Laut Stern bewirken die Oberflächenkräfte an der Grenzfläche zwischen fester und flüssiger Phase eine Adsorption einer Monoschicht aus Gegenionen an der Oberfläche der festen Phase. Die Ionen verlieren bei der Adsorption ihre Hydrathülle und werden an der Oberfläche fixiert (innere Helmholtz-Schicht). Auf diese Monoschicht aus Gegenionen lagert sich nun eine zweite, ebenfalls fixierte Monoschicht aus Koionen an, die ihre Hydrathülle behalten (äußere Helmholtz-Schicht). Die beiden Helmholtz-Schichten werden auch als Stern-Schicht oder Sternsche Doppelschicht bezeichnet, siehe **Abb. 2-5 A**. Aufgrund ihrer Hydrathülle haben die Koionen einen größeren Raumbedarfs, so dass von ihnen eine geringere Menge in der äußeren Helmholtz-Schicht enthalten ist als Gegenionen in der inneren Helmholtz-Schicht. Daher kann kein vollständiger Ladungsausgleich erfolgen. Damit das Teilchen in der flüssigen Phase trotzdem nach außen neutral wirkt, ist es von einer diffusen Schicht frei beweglicher Ionen umgeben, die eine diffuse Doppelschicht bilden [KADEN, 1999]. Die diffuse Schicht endet, sobald die Konzentration an Ko- und Gegenionen gleich ist und damit der Ladungsausgleich abgeschlossen ist, wobei die Ausdehnung dieser Schicht insbesondere von der Elektrolytkonzentration abhängig ist [HUNTER, 1981], [SCHMIDT, 2003], [SCHRAMM, 2005]. Der Potentialverlauf ist entsprechend in der inneren Helmholtz-Schicht zunächst linear und nimmt dann bis zum Ladungsausgleich exponentiell ab, vgl. **Abb. 2-5 B**.

Nach Stern berechnet sich die Kapazität der elektrolytischen Doppelschicht ohne Berücksichtigung der spezifischen Adsorption entsprechend (Gl. 2-14) aus der das elektrostatische Potential zwischen Sternschicht und diffuser Doppelschicht – das Sternpotential – bestimmt werden kann:

$$C_D = A \cdot \frac{\eta_0}{\Psi_0} = A \cdot \frac{\eta_1 + \eta_2}{\Psi_0} \quad \text{Dabei sind } \eta_1, \eta_2 = f(\Psi_0, c, z) \quad (\text{Gl. 2-14})$$

Mit:

$\eta_{0, 1, 2}$:	Ladung pro Flächeneinheit	[C/m ²]	Ψ_0 :	Oberflächenpotential	[V]
C_D :	Kapazität der Doppelschicht	[F]	z :	Ionenstärke	[-]

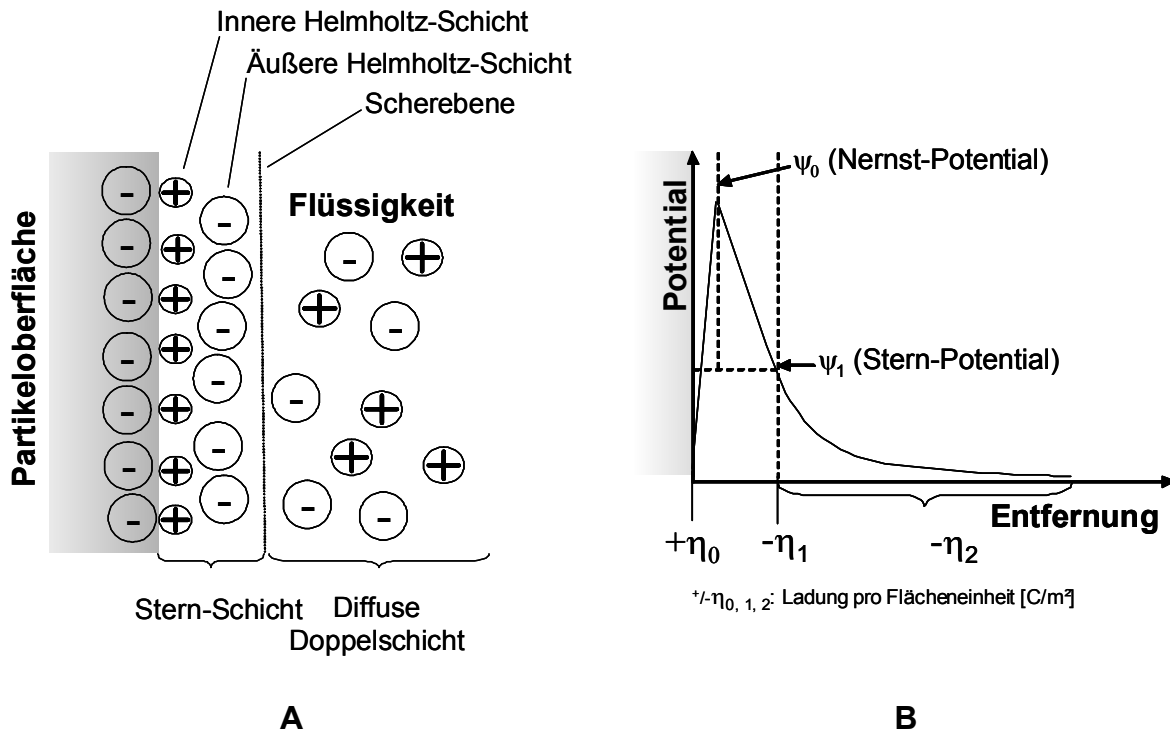


Abb. 2-5: Theorie von Stern, A) Schema der elektrostatischen Doppelschicht, B) Potentialverlauf mit zunehmender Entfernung von der Oberfläche [EIGENE DARSTELLUNG]

2.2.2 Die Entstehung elektrokinetischer Potentiale

Wird eine elektrische Spannung an eine Flüssigkeit angelegt, so bewegen sich darin enthaltene Partikel aufgrund ihrer Oberflächenladung in diesem Potentialfeld. Ebenso erzeugt eine Relativbewegung zwischen Partikel und Flüssigkeit eine elektrische Spannung bzw. einen elektrischen Strom [HUNTER, 1981]. Es gibt eine Reihe derartiger elektrokinetischer Phänomene, die alle für die indirekte Bestimmung der Oberflächenladungen von Festkörpern eingesetzt werden [CHANG/HsIEH, 1991], [HUNTER, 2001]. Dabei wird häufig die Messung des Zetapotentials eingesetzt, um Rückschlüsse auf die Oberflächenladung einer festen Phase ziehen zu können [JACOBASCH ET.AL., 1996-A], [KADEN, 1999], da die Messung des Zetapo-

tentials die Bestimmung der scheinbaren Oberflächenladung eines Partikels in einem Elektrolyten [STEPHAN/CHASE, 2001] ermöglicht.

In wässrigen Elektrolytlösungen werden im basischen pH-Bereich bevorzugt OH⁻-Ionen und im saueren pH-Bereich bevorzugt H₃O⁺-Ionen adsorbiert [SCHMIDT, 2003]. An der Phasengrenze entsteht eine Potentialdifferenz, die durch Messung des Zetapotentials ermittelt werden kann [MÜLLER, 1996]. Betrag und Vorzeichen des Zetapotentials sind abhängig von dem Material der festen Phase, dem jeweiligen pH-Wert, der Temperatur und der Konzentration des Elektrolyten bzw. dessen potentialbestimmenden Ionen [PRIEVE/RUCKENSTEIN, 1976]. Bei Adsorption von positiven Ionen an der Feststoffoberfläche ist per Definition $\zeta > 0$ und bei Adsorption von negativen Ionen $\zeta < 0$. Ist $\zeta = 0$, so liegt entweder der isoelektrische Punkt oder der ladungsfreie Punkt (point of zero charge) vor. Am isoelektrischen Punkt gleicht sich die Anzahl der positiven und negativen Ladungen aus, so dass die Nettoladung null ist; am point of zero charge sind keine Ionen an der Oberfläche des Partikels adsorbiert, und das Partikel ist elektrisch neutral [SCHMIDT, 2003]. Dabei ist die Ansammlung von Ladungen in einem bestimmten Bereich der Überströmung durch das Medium proportional der Konzentrationskomponente an der Oberfläche bzw. deren Aufnahmekapazität [ADIN/REBHUN, 1987].

Das Zetapotential charakterisiert den Potentialabfall im beweglichen Teil der Doppelschicht, wenn sich keine Überschussladungen in der festen Phase befinden. Da es aus elektrokinetischen Messungen bestimmt wird, liefert es eine Aussage über deren beweglichen Ladungsanteil. Das Zetapotential entspricht dem Potential, das an der Scherebene zwischen fester und diffuser Schicht entsteht, wenn sich die beiden Phasen relativ zueinander bewegen [DAVIS/KENT, 1990], [JAMES, 1979]. Das Zetapotential kann näherungsweise dem Sternpotential gleichgesetzt werden und ist vom Betrag her immer niedriger als das Nernstpotential⁴ [HUNTER, 1981], [JACOBASCH ET.AL., 1996-A], welches dem Potential an der Oberfläche der festen Phase entspricht. Die Oberflächenladung ist dann die Summe aus elektrokinetischer Ladung und Ladung in der Grenzschicht mit inversem Vorzeichen. Existiert keine Grenzschicht, so entspricht die elektro-

⁴ Das Nernstpotential entsprechend der Nernst-Gleichung aus der Thermodynamik dient zur Bestimmung von elektrochemischen Potentialen (diese entsprechen dem Oberflächenpotential), z.B. [ATKINS/HÖPFNER, 2001], [WEDLER, 2004]. Es kann vom Betrag her wesentlich größer sein als das elektrokinetische Potential und ggf. auch ein entgegengesetztes Vorzeichen haben [STERN, 1924].

kinetische Ladung der Oberflächenladung [HUBERT, 1983], [HUNTER, 1981]. Eine Zuordnung der verschiedenen Potentiale zu den Ionenschichten um ein Partikel zeigt **Abb. 2-6**.

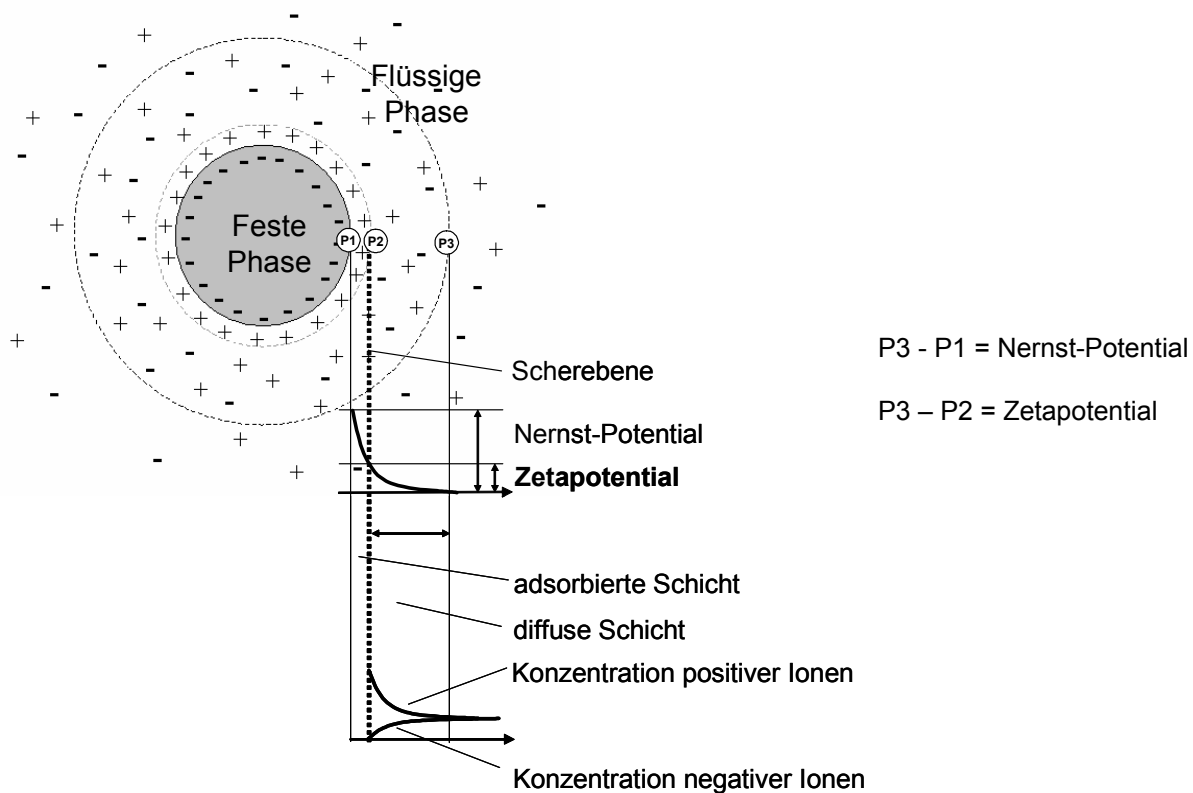


Abb. 2-6: Partikel in wässriger Phase mit Ionenschichten und Potentialen,
nach [JAMES, 1979], [KADEN, 1999] und [RUTGERS, 1940]

Es wird deutlich, dass der Betrag des Zetapotentials von der Lage der Scherebene abhängt. Diese befindet sich in einem nicht genau definierten Abstand von der Oberfläche des Feststoffes [BETTEN, 2003]. Die Schichtdicke der adsorbierten Schicht hängt von den dort adsorbierten Ionen und ihrem Radius ab und schwankt zwischen 5 bis 200 nm [HUNTER, 1981]. Sie wird ebenso wie die Dicke der diffusen Schicht vor allem von der Ionenkonzentration des Elektrolyten beeinflusst [SCHRAMM, 2005], wie **Abb. 2-7 A** zeigt. Die Dicke der elektrostatischen Doppelschicht entspricht beispielsweise bei einem 1:1-Elektrolyten der inversen Debye-Hückel-Länge⁵

⁵ Die Debye-Hückel-Länge $L_{DH} = 1/\kappa$ beschreibt die charakteristische Entfernung bei der elektrische Felder frei beweglicher Ladungsträger beider Vorzeichen abgeschirmt werden, u.a. [ATKINS/HÖPFNER, 2001], [DOBRINSKI ET.AL., 2003]. In ihrer ursprünglichen Bedeutung gilt sie ausschließlich für wässrige Ionenlösungen, wird aber mittlerweile auch für die Beschreibung von Molekülen verwendet. Für wässrige 1:1-Elektrolyten ergibt sich für eine 10^{-3} molare Lösungen bei Raumtemperatur $1/\kappa = 9,6 \text{ nm}$ [SCHMIDT, 2003].

[HERMANSSON, 1999]. Mit zunehmendem Abstand von der festen Oberfläche nimmt die Ionenkonzentration der diffusen Schicht und damit die Dicke der elektrostatischen Doppelschicht ab [LIN ET.AL., 2003]. Da die Dicke der diffusen Schicht bei hohen Ionenkonzentrationen geringer ist [HUNTER, 1981], [SCHMIDT, 2003], hängt auch die Höhe des Zetapotentials von der Ionenkonzentration ab, vgl. **Abb. 2-7 B**. Obwohl das Nernst-Potential unabhängig von der Elektrolytkonzentration ist, ist die Lage des Zetapotentials abhängig von der Lage der adsorbierten und diffusen Schicht bzw. der Scherebene zwischen den beiden Schichten und verändert sich entsprechend der Elektrolytkonzentration [LIN ET.AL., 2003], [SCHRAMM, 2005].

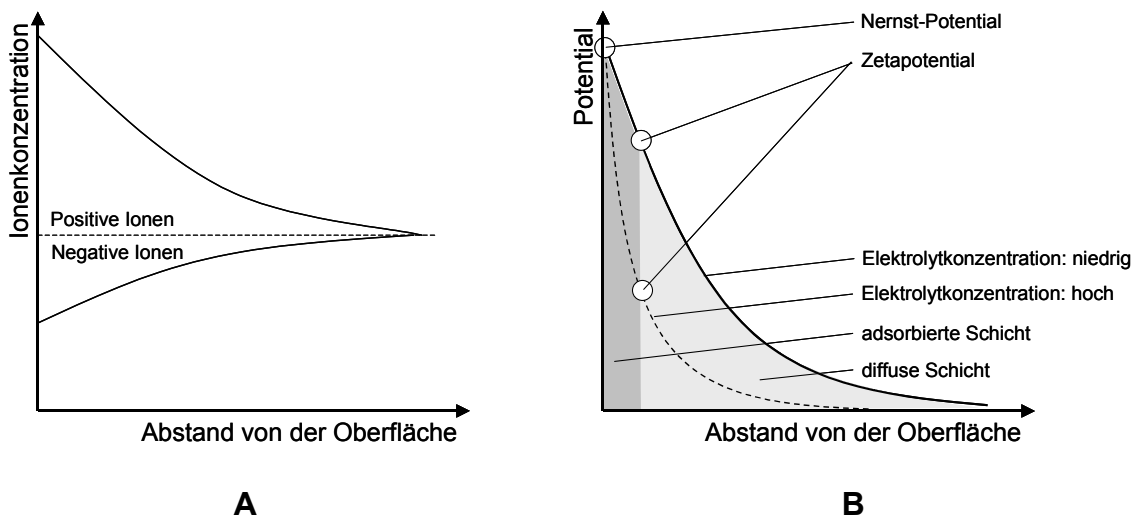


Abb. 2-7: Einfluss der Ionenkonzentration des Elektrolyten auf

- A) die Konzentration der positiven und negativen Ionen mit zunehmendem Abstand von einer negativ geladenen Oberfläche, nach [SCHMIDT, 2005], [SCHRAMM, 2005]
 B) die Lage des Zetapotentials und des Oberflächenpotentials, nach [SCHRAMM, 2005]

2.2.2.1 Messmethoden zur Bestimmung des Zetapotentials

Da Oberflächenladungen mit den heute verfügbaren Methoden nicht direkt bestimmt werden können, aber die Möglichkeit besteht, dissoziierte Oberflächenladungen indirekt durch Verschiebung der Ladungen zweier Phasen gegeneinander zu ermitteln, ist dies derzeit die überwiegend angewandte Methode zur indirekten Bestimmung von Oberflächenladungen. Die dabei ermittelte Größe ist das Zetapotential [ZETAMETER INC., 2005], [SCHRAMM, 2005], [ANTON PAAR, 2004]. Dieses Potential entsteht, wenn nahe der Feststoffoberfläche durch die Flüssigkeit Ladungen abtransportiert werden, die sich weiter stromabwärts anreichern. Auf diese Weise ent-

steht ein elektrisches Feld. Mit dem elektrischen Strom werden Ionen durch das Fluid entgegen dem Fluidstrom transportiert [HUNTER, 2001]. In Abhängigkeit der Phasenbewegungen zueinander werden vier unterschiedliche elektrokinetische Effekte unterschieden. Dies sind:

- Elektroosmose,
- Elektrophorese,
- Sedimentationspotential und
- Strömungspotential.

Dabei werden die Messmethoden zur Ermittlung des Zetapotentials mit Hilfe dieser Effekte dahingehend differenziert, ob sich das Teilchen in einer ruhenden Flüssigkeit bewegt oder ob die Flüssigkeit ein ruhendes Teilchen umströmt. Die Bewegung kann hierbei durch ein elektrisches Potential erzeugt sein oder selber eines erzeugen, vgl. **Tab. 2-4**.

Tab. 2-4: Einteilung der elektrokinetischen Bewegungen nach den Relativbewegungen und der Antriebskraft (modifiziert nach [KOLB, 1970], ergänzt nach [KADEN, 1999] und [ELIMELECH ET.AL., 1994])

Antriebskraft Relativbewegung	Ein äußeres elektrisches Potential erzeugt eine Bewegung einer Phase	Eine Bewegung einer Phase erzeugt ein elektrisches Potential
Innerhalb einer ruhenden Flüssigkeit bewegen sich Feststoffteilchen	Elektrophorese	Sedimentationspotential
Innerhalb ruhender Fest- stoffe (Kapillarsystem) bewegt sich eine Flüssigkeit	Elektroosmose (Elektroakustik)	Strömungspotential

In der Vergangenheit wurde häufig die **Elektroosmose** zur indirekten Bestimmung der Teilchenladung genutzt [KADEN, 1999]. Bei dieser Methode umströmt die flüssige Phase aufgrund eines angelegten elektrischen Feldes die Teilchen und streift dabei deren diffuse Schicht ab [REUSS, 1808]. Die Leitfähigkeit der Lösung verändert sich aufgrund der zusätzlich in der Flüssigkeit enthaltenen Ionen, und das Zetapotential kann entsprechend berechnet werden [KIM ET.AL., 1996], [SZYMCZYK ET.AL., 1998]. Ein hingegen heute häufig eingesetztes Verfahren zur Ermittlung des Zetapotentials nutzt das Prinzip der **Elektrophorese**. Bei einer von außen angelegten definierten Spannung bewegt sich das Teilchen durch eine flüssige Phase. Dabei wird ein Teil der diffusen Schicht abgestreift, und das Teilchen ist nicht mehr neutral. Das Zetapotential

wird durch Messung der konstanten Teilchengeschwindigkeit bestimmt [MÜLLER, 1996]. Die Elektrophorese hat sich gegen die anderen Verfahren durchgesetzt, da sie für sämtliche Größenordnungen kolloidaler Materialien anwendbar ist [HUNTER, 1981], [JOHNSON, 1999]. Mit ihr können Materialien zwischen 0,01 μm und 20 μm Partikeldurchmesser bei geringen Konzentrationen vermessen werden, vgl. **Abb. 2-8**. Das **Sedimentationspotential** nutzt die Bewegung des Partikels während des Absinkens in einer flüssigen Phase, um das Zetapotential zu bestimmen, und ist daher für Partikel zwischen 1 μm und 150 μm bei hohen Konzentrationen geeignet. Ein weiteres Verfahren besteht in der Ermittlung eines **Strömungspotentials**, das während der Durchströmung poröser Schichten mit einer flüssigen Phase auftritt [RUTGERS/DESMET, 1947]. Dadurch können Partikelpackungen beliebiger Dichte und mit Partikeln größer 25 μm vermessen werden [JOHNSON, 1999]. Das Strömungspotential kann direkt in das Zetapotential umgerechnet werden [JACOBASCH ET.AL., 1996-B]. Dabei kann das Strömungspotential durch verschiedene Effekte verursacht werden [ELIMELECH ET.AL., 1994]:

- Bewegung der Ionen durch die Fluidbewegung – es entsteht ein Strömungsstrom,
- Ansammlung von Ionen im Abstrombereich des Fluids – es entsteht eine Potentialdifferenz,
- Kriechstrom in der Flüssigkeit – durch die Potentialdifferenz entsteht ein Strömungsstrom.

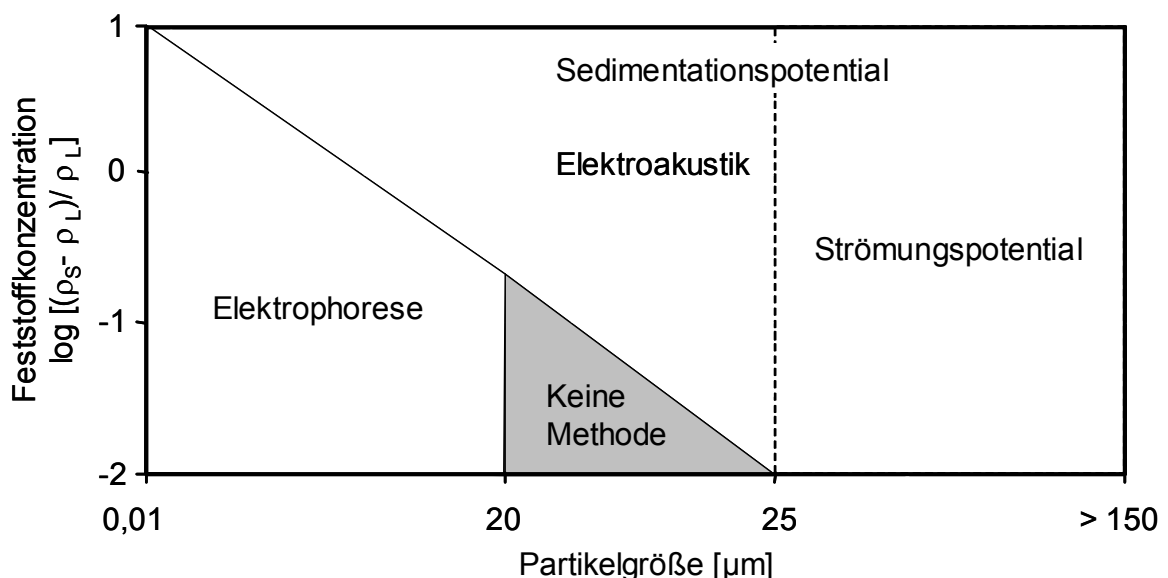


Abb. 2-8: Einordnung der Messmethoden zur Bestimmung elektrokinetischer Potentiale nach Dichte (ρ_S : Partikeldichte, ρ_L : Fluiddichte) und Partikelgröße, erweitert nach [ANTON PAAR, 2004], ergänzt nach [KADEN, 1999]

Da die Scherebene durch die Lage der äußeren Helmholtzschicht unabhängig von der angelegten mechanischen oder elektrischen Kraft präzise definiert ist, sollten alle Messmethoden zur Bestimmung des Zetapotentials zu den gleichen Ergebnissen führen [JACOBASCH/SCHURZ, 1988]. Entsprechend dieser Annahme gilt für reale Kapillarsysteme mit einem Produkt von inverser Debye-Hückel-Länge und Partikeldurchmesser von $\kappa \cdot D_S > 100$ – wie Schüttungen aus Pulver, Faserhaufwerke, Filtermaterialien – die Helmholtz-Smoluchowski-Gleichung [ELIMELECH ET.AL., 1994], [HUNTER, 1981], [JACOBASCH ET.AL., 1985], [RUTGERS, 1940], [SMOLUCHOWSKI, 1921]. Mit dieser Gleichung (Gl. 2-15) kann das Zetapotential unabhängig von der Partikelform und -größe aus einem gemessenen Strömungsstrom berechnet werden⁶ [OVERBEEK/WIERSEMA, 1967].

$$\zeta = \frac{U_S \cdot \eta_L \cdot L}{\Delta p \cdot \varepsilon_r \cdot \varepsilon_0 \cdot A_K \cdot R_{el}} \quad \text{Auswertung nach Helmholtz-Smoluchowski} \quad (\text{Gl. 2-15})$$

Mit:

U_S : Strömungspotential	[V]	η_L : Viskosität der Flüssigkeit	[Pa · s]
L : Länge der Kapillare	[m]	Δp : Druckdifferenz	[bar]
ε_r : Dielektrizitätszahl von Wasser	[-]	ε_0 : Dielektrizitätskonstante im Vakuum	[F/m]
A_K : Querschnittsfläche der Kapillare	[m ²]	R_{el} : elektrischer Widerstand	[Ω]

Um diese Gleichung zur Bestimmung des Zetapotentials aus einem über Messungen ermittelten Strömungspotential anwenden zu können, müssen die Dimensionen der durchströmten Kapillare bzw. Pore bekannt sein. FAIRBROTHER/MASTIN (1924) zeigten, dass das Verhältnis von Länge und Querschnitt des mit Elektrolyten gefüllten Kapillarbündels über die spezifische elektrische Leitfähigkeit (ε) und den elektrischen Widerstand des Materials beschrieben werden kann, s. (Gl. 2-16).

$$\frac{L}{A_K} = \varepsilon \cdot R_{el} \quad (\text{Gl. 2-16})$$

Mit:

L : Kapillarlänge	[m]	A_K : Kapillarquerschnitt	[m ²]
ε : spezifische elektr. Leitfähigkeit	[1/Ω·m]	R_{el} : el. Widerstand	[Ω]

Für stark verdünnte Elektrolyten ($c < 10^{-3}$ M) kann anstelle der spezifischen elektrischen Leitfähigkeit des Materials die spezifische elektrische Leitfähigkeit der Messlösung (ε_L) verwendet werden. Daraus ergibt sich für die Berechnung des Zetapotentials aus dem Strömungspotential (Gl. 2-17).

⁶ Für Partikel mit $\kappa \cdot D_S < 1$ gilt der Ansatz nach Hückel [HÜCKEL, 1924], vgl. [HUNTER, 1981].

$$\zeta = \frac{U_s \cdot \eta_L \cdot \alpha_L}{\Delta p \cdot \varepsilon_r \cdot \varepsilon_0} \quad (\text{Gl. 2-17})$$

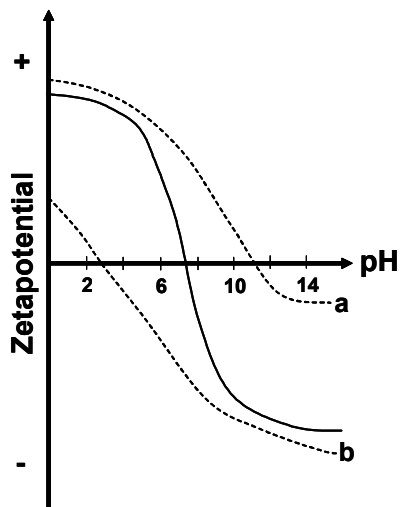
Dabei ist (Gl. 2-17) nur für Proben mit geringer Oberflächenleitfähigkeit gültig. Diese Näherung ist aber in den meisten Fällen ausreichend genau und wird im Regelfall zur Umrechnung verwendet u.a. [JACOBASCH ET.AL., 1985]. Für Proben, deren Packungsdichte und Kapillargeometrie durch Erhöhung des Druckes variiert werden, kann ein empirischer Ansatz nach CHANG/ROBERTSON (1967) angewendet werden, der den Abstand der Elektroden zueinander berücksichtigt.

2.2.2.2 Beispiele für Messergebnisse aus der Literatur

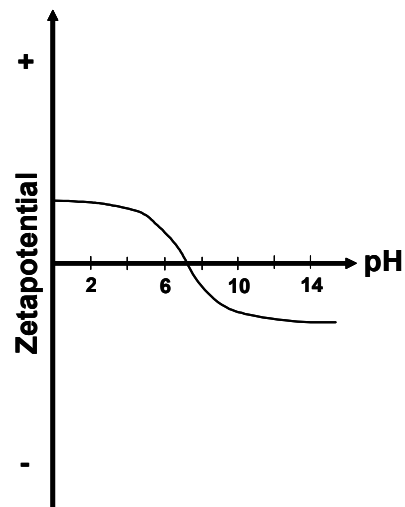
Das Zetapotential spiegelt die elektrochemischen Eigenschaften eines Materials wider und befindet sich in einem nicht genau bestimmbar Abstand von der Materialoberfläche in der flüssigen Phase in der Nähe der Sternschicht [BETTEN, 2003]. Durch zahlreiche Untersuchungen konnten einigen Materialgruppen typischen Zetapotentialverläufen über den pH-Bereich zugeordnet werden, u.a. [DAVIES/KENT, 1990], [KIM ET.AL., 1996], [PARKS/DEBRUYN, 1962].

Die meisten anorganischen Materialien zeigen bei niedrigen pH-Werten ein positives Zetapotential und bei hohen pH-Werten ein negatives. Ihr isoelektrischer Punkt liegt im Bereich zwischen pH 5 und 8 [AYDIN ET.AL., 2004], [PARKS, 1965], [DAVIES/KENT, 1990]. Durch die Adsorption von Anionen bzw. Kationen kann sich die Lage der Kurve sowie des isoelektrischen Punktes deutlich verschieben. Den typischen Verlauf des Zetapotentials anorganischer Materialien zeigt **Abb. 2-9 A**. Polymere Materialien (**Abb. 2-9 B**) enthalten in der Regel keine Ionen und zeigen ein sehr unterschiedliches Verhalten. Trotzdem weisen die meisten positive Zetapotentiale bei niedrigen pH-Werten und negative Zetapotentiale bei hohen pH-Werten auf [KIM ET.AL., 1996]. Die maximalen Beträge sind deutlich niedriger als bei anorganischen Materialien. Viele Materialien enthalten auch saure oder basische Gruppen bzw. nehmen diese aus der umgebenden Phase auf. **Abb. 2-9 C** zeigt die Auswirkungen von starken bzw. schwachen saueren Gruppen auf die Oberflächenladung eines Materials. Bei stark sauren Gruppen findet die Veränderung der Oberflächenladung aufgrund der Dissoziation sofort statt, das Zetapotential ist über den pH-Bereich konstant. Bei schwach sauren Gruppen – wie beispielsweise Carboxylgruppen – stellt sich ein konstantes Zetapotential nur langsam ein, vgl. Abb. 2-9 C. Ähnliche Auswirkungen haben basische Gruppen, nur dass von diesen eine Veränderung des Zetapotentials in den positiven Bereich erfolgt. Bei stark basischen Gruppen ist das Zetapotential über den gesamten pH-

Bereich nahezu konstant und fällt erst ab pH 10 deutlich ab, während bei schwach basischen Gruppen die Oberflächenladung nur bis etwa pH 8 positiv ist, vgl. **Abb. 2-9 D**.

**A**

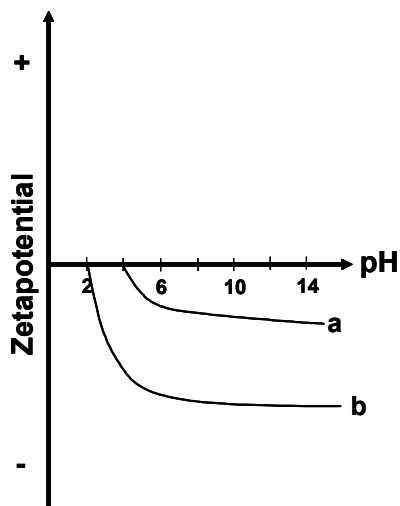
Anorganische Oxide

**B**

Nicht-ionische Gruppen bei Polymeren

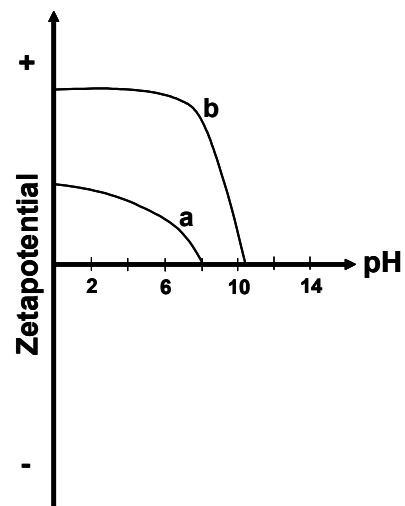
Veränderung der Kurvenlage durch Adsorption von a: Kationen, b: Anionen aus dem Elektrolyten an der Partikeloberfläche, erweitert nach [DAVIES/KENT, 1990], [MÖCKEL ET.AL., 1998]

nach [KIM ET.AL., 1996], [MÖCKEL ET.AL., 1998]

**C**

Saure Gruppen

a: schwach sauer, b: stark sauer, erweitert nach [KIM ET.AL., 1996], [RIBITSCH ET.AL., 1991]

**D**

Basische Gruppen

a: schwach basisch, b: stark basisch erweitert nach [KIM ET.AL., 1996], [RIBITSCH ET.AL., 1991]

Abb. 2-9: *Veränderung der Zetapotentiale einiger Materialien über den pH-Bereich*

Die folgende **Abb. 2-10** zeigt beispielhaft Zetapotentiale ausgewählter organischer und anorganischer Materialien über den pH-Bereich. Während bei den anorganischen Materialien über den gesamten pH-Bereich sowohl positive als auch negative Zetapotentiale vorzufinden sind, zeigen die organischen Materialien oberhalb von pH 5 ausschließlich negative Zetapotentiale.

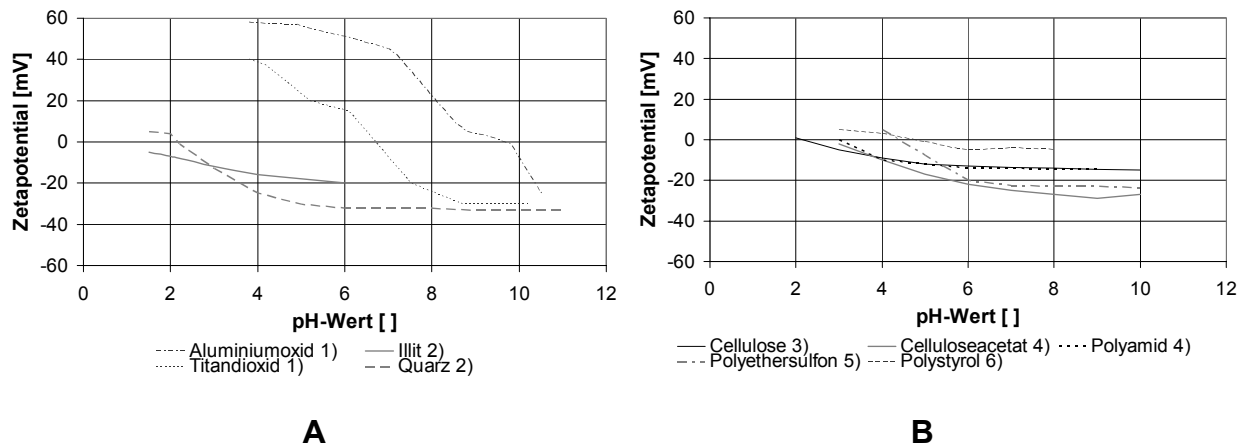


Abb. 2-10: Zetapotentiale ausgewählter Materialien

A: Anorganische Materialien,

B: Organische Materialien,

nach 1) [BETTEN, 2003], 2) [FOHRMANN, 2002], 3) [RIBITSCH ET.AL., 1991],

4) [ELIMELECH ET.AL., 1994], 5) [ERNST ET.AL., 2000], 6) [HUISMAN ET.AL., 2000]

2.2.2.3 Allgemeine Kritik bei der Bestimmung und Interpretation des Zetapotentials

Entsprechende Methoden, um das Zetapotential und damit die Oberflächenladung experimentell zu bestimmen, werden seit Jahrzehnten in der Kolloidchemie eingesetzt, obwohl ihre Anwendungsmöglichkeiten noch immer kontrovers diskutiert werden [DAVIES/KENT, 1990], [JACOBASCH/SCHURZ, 1988]. So schwanken die ermittelten Zetapotentiale eines Materials je nach Labor sogar innerhalb einer Messmethode. Dies liegt einerseits daran, dass unterschiedliche Messverfahren und Elektrolyte eingesetzt werden. Andererseits werden bei der Berechnung des Zetapotentials mittels Helmholtz-Smoluchowski-Gleichung die Effekte der Ionenstärke sowie die Wertigkeit der verwendeten pH-Puffer vernachlässigt [KIRBY/HASSELBRINK, 2004]. Zudem wurde beispielsweise gezeigt, dass Beträge des Zetapotentials, die über Strömungspotentialmessungen ermittelt werden, niedriger sind als jene, die über das Verfahren der Elektroosmose bestimmt werden [KIM ET.AL., 1996], und die Ergebnisse der Elektroosmose wiederum niedriger sind als jene Ergebnisse, die mit Elektrophorese oder Sedimentationspotential ermittelt werden [HIDAL-

GO-ALVAREZ, ET.AL., 1985]. Die Abweichungen können zwischen 10 und 20 mV betragen, wobei das Vorzeichen stets eingehalten wird. Das Strömungspotential ist jedoch einfacher zu messen und hat weniger Wechselwirkungen mit anderen Phänomenen, so dass die Ergebnisse auch besser reproduzierbar sind als bei anderen Verfahren zur Messung elektrokinetischer Potentiale [KIM ET.AL., 1996]. Für komplexe Partikelgeometrien ist der Zusammenhang zwischen elektrophoretischer Beweglichkeit und der Ionenstärke schwierig zu interpretieren, so dass die Güte der elektrophoretischen Messung in Frage gestellt wird [DAVIES/KENT, 1990]. Außerdem wurde von ELIMELECH ET.AL. (2000) gezeigt, dass bei der Bestimmung des Zetapotentials bei natürlichen Materialien durch deren inhomogene Oberflächeneigenschaften stark schwankende Messwerte auftreten. Die Messung des Strömungspotentials erfolgt unabhängig von der Korngröße und -form [JOHNSON, 1999], während die Elektrophorese nur bei kleinen Kolloiden angewendet werden kann; auch dies führt zu unterschiedlichen Ergebnissen der Methoden. In der Literatur wird die Nutzbarkeit des Zetapotentials oft in Frage gestellt. Viel diskutierte Probleme sind u.a. nach [BÖRNER ET.AL., 1994]:

- Die Annahmen der Helmholtz-Smoluchowski-Gleichung sind bei vielen Problemstellungen und Messmethoden nicht erfüllt, so dass (Gl. 2-15) nicht allgemeingültig ist, vgl. auch [JACOBASCH ET.AL., 1988].
- Der Abstand zwischen Scherebene und Oberfläche ist abhängig von experimentellen Einflüssen.
- Bei Strömungspotentialmessungen kann das Ergebnis durch Elektrodenpolarisation beeinflusst sein.
- Die Oberflächenleitfähigkeit wird nicht ausreichend berücksichtigt, vgl. auch [HERMANSSON, 1999].
- Bei der Berechnung des Zetapotentials wird die Dielektrizitätskonstante benötigt. Diese ist nicht exakt bestimmbar, da sie sich innerhalb der elektrostatischen Doppelschicht ändert: Im Inneren der Doppelschicht nimmt sie kleinere Werte an als an der Grenzfläche zum Elektrolyten [LYKLEMA/OVERBEEK, 1961].

In **Tab. 2-5** sind die Vorteile der Nutzung von Zetapotentialmessungen in verschiedenen Anwendungsbereichen sowie die derzeit diskutierten Kritikpunkte bzw. der Klärungsbedarf, um die Methode zweifelsfrei anwenden zu können, einander gegenüber gestellt. Trotz dieser kontroversen Diskussion sowie unterschiedlichen Kurvenverläufen und Beträgen der Messmethoden zeigt sich, dass die Lage des isoelektrischen Punktes und damit die Vorzeichen gut reprodu-

zierbar sind und der isoelektrische Punkt von vielen Autoren bei der Beschreibung von Adsorptionsprozessen verwendet wird [DAVIES/KENT, 1990]. Aufgrund der verhältnismäßig einfachen Messmethoden dient das Zetapotential in dieser Arbeit als ein **Summenparameter**, der die scheinbare Oberflächenladung eines Partikels und damit dessen **Oberflächeneigenschaften** sowie **Wechselwirkungen mit der umgebenden wässrigen Phase** beschreibt.

Tab. 2-5: Vorteile und Untersuchungsbedarf für die Anwendbarkeit der Zetapotentialmessung, nach [HERMANSSON, 1999], [JACOBASCH/SCHURZ, 1988], [KIRBY/HASSELBRINK, 2004]

Vorteile	Untersuchungsbedarf
<ul style="list-style-type: none"> • Einfache Anwendbarkeit, niedrige Investitionskosten, niedriger Arbeitsaufwand • Anwendbar auf verschiedene Materialgeometrien • Korrelation des Zetapotentials mit diversen technisch und biologisch relevanten Parametern • Korrelation des Zetapotentials mit vielen materialwissenschaftlichen Parametern 	<ul style="list-style-type: none"> • Widersprüche zwischen den Messergebnissen verschiedener Laboratorien • Abhängigkeit der Messergebnisse von der angewendeten Methode • Starker Einfluss geometrischer Faktoren auf das Messergebnis (u.a. Form, Porenstruktur) • Theorie zweifelhaft, da Lage der Scherebene unklar • Einfluss der Oberflächenleitfähigkeit ist zu beachten • Komplexer Einfluss verschiedener Materialkennwerte auf das Messergebnis • Zulässigkeit der Berechnungsverfahren für das Zetapotential aus den elektrokinetischen Messungen

2.3 Wechselwirkungen von suspendierten Partikeln mit festen Oberflächen

Die Adsorption von in Suspensionen enthaltenen Partikeln an Oberflächen wird durch die verschiedenen zwischen den Haftpartnern wirksamen Kräften induziert. Bei den vorwiegend auftretenden Arten von Haftkräften, die meist in Kombination wirksam sind, handelt es sich um [ATKINS/HÖPFNER, 2001], [CHMIEL, 1973], [CHMIEL ET.AL., 1983], [JAN, 1979]:

- Molekülbindungskräfte (vor allem Wasserstoffbrückenbindungen) und
- Dispersionskräfte (Van-der-Waals- und elektrostatische Kräfte).

Die starken Wechselwirkungen, die durch die **Wasserstoffbrückenbindung** hervorgerufen werden, sind jedoch ausschließlich dann vorhanden, wenn die Oberflächen die **Vorraussetzung** für eine derartige Bindung **erfüllen**. Dies bedeutet, dass sie vor allem zwischen den geladenen und polaren Partikeln einer Suspension wirken [ATKINS/HÖPFNER, 2001], [WEDLER, 2004]. Bei den **Dispersionskräften** hingegen handelt es sich um Wechselwirkungen, die **grundsätzlich** im Nahbereich von Molekülen **wirksam sind**. In der Literatur existieren verschiedene Ansätze zur Beschreibung der letztgenannten Wechselwirkungen von Partikeln mit Oberflächen. Hierbei handelt es sich unter anderem um Berechnungen des Einflusses

- der elektrostatischen Doppelschicht auf die konvektive Diffusion von Partikeln [ADAMCZYK, 1978],
- der Wechselwirkungen in der elektrostatischen Doppelschicht bei zwei Zylindern [JAMES/WILLIAMS, 1981],
- der elektrischen Wechselwirkungen aufgrund von Oberflächenladungen zwischen Partikeln und einer ebenen Platte [MOLINA ET.AL., 1999] oder auch
- des elektrokinetischen Flusses in schmalen zylindrischen Kapillaren bei hohen Zetapotentialen [LEVINE ET.AL., 1975].

In den letzten Jahren wurden diese Wechselwirkungen auch verstärkt für den Bereich der Membrantechnik betrachtet, so untersuchten beispielsweise BOWEN ET.AL. (1999) die Interaktion eines geladenen kolloidalen Partikels mit einer geladenen Membran in einer elektrolytischen Lösung und die Transportmechanismen in einer Pore unter Berücksichtigung des Strömungspotentials. Nach CHANG/HsIEH (1991) sind bei der Untersuchung von **Anhaftungen von suspendierten Partikeln an Oberflächen** vor allem die beteiligten **elektrostatischen Wechselwirkungen** zu untersuchen. Die gängigste Theorie hierfür ist die nach Derjaguin-Landau-Verwey und Overbeek (DLVO-Theorie) [CHANG/HsIEH, 1991], [HERMANSSON, 1999]. Sie dient in ihrer ursprünglichen Bedeutung der Beschreibung von Stabilitätsproblemen bei Suspensionen.

Die klassische **DLVO-Theorie** beschreibt den Zusammenhang zwischen den **elektrostatischen Wechselwirkungen** und den Wechselwirkungen aufgrund der **Van-der-Waals-Kräfte** mit dem Ziel, die Gesamtheit der Wechselwirkungsenergie zwischen den Oberflächen als eine Funktion des Abstandes zwischen beiden zu erfassen. Sie dient somit der Beschreibung von **Adsorption und Adhäsion geladener Kolloide**. Dazu verknüpfen die Autoren allgemein die Interaktion zwischen den beiden Oberflächenenergien durch Summieren der Wechselwirkungen von elektrostatischer Energie und der Van-der-Waals-Energie [DERJAGUIN/LANDAU,

1941], [VERWEY/OVERBEEK, 1948], siehe (Gl. 2-18). Die resultierende Energie gibt Aussage darüber, ob sich die beiden Oberflächen anziehen oder abstoßen.

$$E_{\text{tot}} = E_A + E_R \quad (\text{Gl. 2-18})$$

Mit:

E_{tot} :	Wechselwirkungsenergie	[J]	E_A :	Anziehungsenergie	[J]
E_R :	Repulsionsenergie	[J]			

Dabei besteht E_A aus den Van-der-Waals-Kräften, die in der Regel anziehend wirken (Gl. 2-19) und E_R aus den Kräften, die aufgrund der Überlappung der elektrostatischen Doppelschichten entstehen und meist eine abstoßende Wirkung haben (Gl. 2-20).

$$E_A = -\frac{k_{\text{LvdW}}}{6 \cdot \delta} \quad (\text{Gl. 2-19})$$

$$E_R \propto \psi_S \cdot \psi_{\text{OF}} \cdot e^{-\kappa \cdot \delta} \quad (\text{Gl. 2-20})$$

$$E_R = 2 \cdot \pi \cdot D_S \cdot \epsilon_0 \cdot \epsilon_r \cdot \zeta_{\text{FM}} \cdot \zeta_S \cdot e^{-\kappa \cdot \delta} \quad (\text{Gl. 2-20a})$$

[WANG, 1998]

Mit:

k_{LvdW} :	London-van-der-Waals-Konstante	[J·m]	δ :	Abstand zwischen den Oberflächen	[m]
$\psi_{\text{S, OF}}$:	Oberflächenpotential des suspendierten Partikels bzw. der Oberfläche	[V]	κ :	inverse Debye-Hückel-Länge	[1/m]

Beide Energien haben sehr geringe Reichweiten, die sich in Größenordnungen $< 0,1 \mu\text{m}$ bewegen [DERJAGUIN/LANDAU, 1941], [IVES, 1980], [VERWEY/OVERBEEK, 1948]. Für einige Elektrolyte ergibt sich eine erhöhte Abstoßung für Entfernungen um $0,01 \mu\text{m}$, s. **Abb. 2-11**. Ein Partikel, dass diese Energiebarriere überwindet (beispielsweise durch eine ausreichende kinetische Energie) wird dann durch die starken Anziehungskräfte an die Oberfläche angelagert. Wird diese Energiebarriere nicht überwunden, so findet keine Adhäsion zwischen Partikel und Oberfläche statt. Es ist zu erkennen, dass bei vollentsalztem Wasser eine kleine Energiebarriere vorhanden ist, die bei einwertigen Ionen im Elektrolyten zunächst verschwindet, aber mit zunehmender Wertigkeit der enthaltenen Ionen wieder zunimmt. Aufgrund der im Trinkwasser enthaltenen Ionen wird diese Energiebarriere für die Modellierung von Filtern im Trinkwasserbereich zu meist vernachlässigt [IVES, 1980]. Die DLVO-Theorie gilt für perfekte, ebene Oberflächen [HERMANSSON, 1999], wobei schon Oberflächenrauigkeiten von 5 nm zu Querkräften von 10^{-13} N führen. Diese sind in der Größenordnung der hydrodynamischen Kräfte, die parallel zur überströmten Oberfläche wirken. Daraus ergibt sich, dass es trotz gleichnamigen Partikelladungen zur Anziehung kommen kann, da bei kleiner Ionenstärke zwar die elektrostatischen Abstoßungskräfte größer sind als die anziehenden Kräfte, die durch die Van-der-Waals-Kräfte verur-

sacht werden, aber bei hohen Ionenstärken sind letztere größer als die abstoßenden Kräfte, s. u.a. [DERJAGUIN/LANDAU, 1941], [VERWEY, OVERBEEK, 1948], [WANG, 1998]. Erfolgt eine Anpassung der DLVO-Theorie an die Poisson-Boltzmann-Gleichung⁷, so kann gezeigt werden, dass die elektrische Wechselwirkung V_R als erste Näherung proportional zum Oberflächenpotential und dem Abstand von Partikel und der Oberfläche zueinander sowie der Debye-Hückel-Länge ausgedrückt werden kann [CHAN/WHITE, 1980].

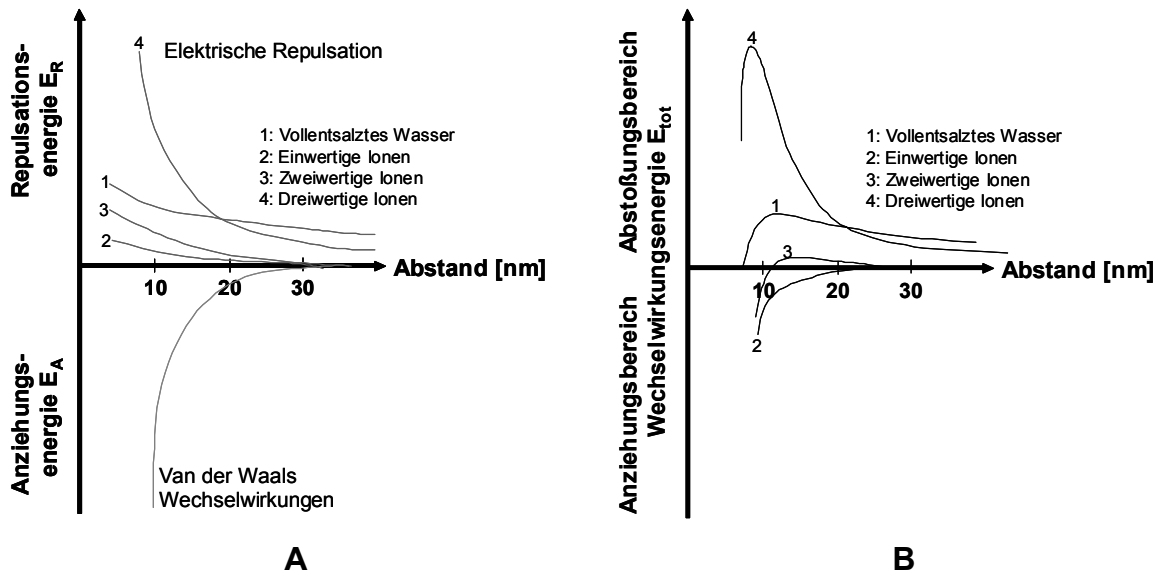


Abb. 2-11: Wechselwirkungsenergien bei der Anlagerung bzw. Abstoßung von Partikeln an Oberflächen, A: Molekulare Van-der-Waals und elektrische Repulsionsenergie, B: Resultierende Wechselwirkungsenergie

BROOKS ET.AL. zeigten bereits 1967, dass die DLVO-Theorie auch zur Beschreibung von Zelladhäsion geeignet ist. Darauf aufbauend beschreibt die **DLVO-Theorie im Speziellen**⁸ die Wechselwirkungen zwischen **Oberflächen und Mikroorganismen** [BUSALMEN/SÁNCHEZ, 2001],

⁷ Die Poisson-Boltzmann-Gleichung dient zur quantitativen Behandlung interionischer Wechselwirkungen, vgl. [WEDLER, 2004]. Mit ihr wird in der Elektrostatik entweder die Debye-Hückel-Länge oder das im Elektrolyten abgeschirmte Potential bestimmt.

⁸ Dabei vernachlässigt dieser Ansatz den Einfluss der zusätzlich zu den im Nahbereich wirksamen Kräften auftretenden stärkeren Bindungskräfte. Die Wasserstoffbrückenbindungen sind bei biologischen Molekülen besonders wirksam, da sie die Interaktion von Proteinen beeinflussen. Eine Anlagerung von Proteinen an geeignete Oberflächen wird daher durch diese Kräfte sehr stark unterstützt [CHMIEL, 1973]. Durch die Proteinadsorption werden die elektrostatischen Kräfte abgeschirmt und damit die Van-der-Waals-Kräfte verstärkt [CHESKO ET.AL., 2005]. Daher kann auch eine Adhäsion von Mikroorganismen an Oberflächen auch oder vor allem auf die Proteinbindungskräfte zurückgeführt werden.

[VAN HEE ET.AL., 2006] und erklärt damit die natürliche Besiedlung von Oberflächen durch Mikroorganismen. Die Kolonisierung beginnt damit, dass einzelne Zellen oder Zellaggregate durch Adhäsion an einer Oberfläche anhaften. Sind die Lebensbedingungen für Mikroorganismen gut, so werden diese Zellen wachsen und sich durch Teilung vermehren, und es bildet sich eine komplexe Gemeinschaft, die Biofilm genannt wird. Die Anhaftungen sind je nach Anwendung im Bereich der Filtrationstechnik erwünscht und werden in ausgewählten technischen Prozessen ausgenutzt, doch vorwiegend sind sie in verfahrenstechnischen Prozessen unerwünscht [HERMANSSON, 1999].

3 Diskussion verschiedener Modelle zur Partikelabscheidung in partikulären Schüttbetten

Die traditionelle Filtertechnik beschränkt sich bei der Betrachtung von Filtrationsprozessen in erster Linie auf die Kontrolle von Filtrationsgeschwindigkeit und -druck sowie die Porengröße des Schüttbetts, dessen Höhe und Porosität. Seltener werden daneben die chemischen Eigenschaften der Trübe kontrolliert, um ein optimales Filtrationsergebnis zu erhalten. Eine derartige Überwachung zur Optimierung des Filtrationsverlaufes wird insbesondere dann genutzt, wenn die Filtration durch Adsorptionseffekte oder Flockungsvorgänge verbessert werden kann. Hier wird teilweise die Auswirkung des Zetapotentials der suspendierten Partikel zur Unterstützung der Adsorption diskutiert, vgl. [LIN ET.AL., 2003], [STEPHAN/CHASE, 2000 und 2001], [WANG, 1998].

Für den Einsatz aller im vorhergehenden Kapitel vorgestellten Filtergleichungen gilt, dass für deren Anwendung bei der Auslegung von Filtern in Vorversuchen die für die Trennaufgabe geeignete Porengröße des Schüttbetts und damit der mittlere Durchmesser des partikulären Filtermittels ermittelt werden muss. Die Filtergleichungen dienen im Anschluss zur Berechnung der benötigten Filterfläche bei dem durch die Rahmenbedingungen vorgegebenem und in Vorversuchen ermitteltem Volumenstrom. Andere Gleichungen dienen wiederum zur – meist inkrementalen – Berechnung der Filterbeladung und damit zur Bestimmung der Filterstandzeiten, z.B. [O'MELIA/ALI, 1978]. Einzelne Ansätze gehen jedoch detaillierter vor und verfolgen die Berechnung von Partikelbahnen (Trajektorien) u.a. [GÜNTER, 1998], [PAYATAKES ET.AL., 1974] oder auch eine inkrementale Betrachtungsweise der Filterbeladung, vgl. [BEAR, 1961], [CHIANG/TIEN, 1985], [IWASAKI, 1937]. Eine theoretische Bestimmung der notwendigen physikalischen Eigenschaften des Filtermittels – wie beispielsweise bei einer Partikelschüttung deren mittlerer Partikeldurchmesser – bei einem vorgegebenen suspendierten Partikel erfolgt jedoch nicht. Bei der Filtration von unbekanntem oder oft wechselnden Suspensionen ist eine derartige Berechnung auch nicht möglich, bzw. es ist wirtschaftlicher und effizienter, eine Filtermittelgröße auszuwählen, die suspendierte Partikel verschiedener Größenordnungen abtrennen kann. Diese beträgt in konventionellen Tiefenfiltern zur Wasseraufbereitung zwischen 0,5 und 3 mm [ORTIZ-ARROYO, 2004], [SCHUBERT, 2003], [WIELAND, 1999]. Durch die minimale Schüttbetthöhe von $L = 1$ m ist dann die Wahrscheinlichkeit, eine für die Filtrationsaufgabe ausreichende Menge an kleinen suspendierten Partikeln abzuscheiden, sehr hoch. Ist jedoch die Art und Größe der suspendierten Partikel bekannt, so kann – vergleichbar mit Membranprozessen – ein speziell für diese Trennaufgabe geeignetes Filtermittel die Filtration optimieren.

Zur Modellierung des Einflusses des elektrokinetischen Potentials auf die Tiefenfiltration einer Suspension soll im Rahmen dieser Arbeit eine geeignete Darstellung zur Beschreibung der Vorgänge in einem porösen Schüttbett entwickelt werden. Hierzu werden an dieser Stelle zunächst die konventionellen Filtergleichungen sowie Modelle zur Beschreibung der Partikel-Partikel-Wechselwirkungen und ihre Eignung zur Beschreibung eines elektrokinetisch optimierten, selektiven Schüttbetts diskutiert. Für die detaillierte Betrachtung werden die beiden Abscheidemechanismen **Antransport** an das Filtermittel und **Anlagerung** am Filtermittel separat betrachtet. Dazu werden einige ausgewählte Ansätze zum Fluid- und Partikeltransport in porösen Schichten und anschließend Modelle der Abscheidemechanismen mit einem besonderen Schwerpunkt auf den elektrokinetischen Wechselwirkungen einander gegenübergestellt.

3.1 Fluid- und Partikeltransport in Schüttbetten unter besonderer Berücksichtigung der empirischen Filtrationsmodelle

Für die Filtration ist zunächst der Antransport eines Partikels an das Filtermittel entscheidend. Wird der Antransport eines Partikels an einen Kollektor betrachtet, so wird bei Brownschen Partikeln ($D_s < 0,5 \mu\text{m}$) der Transport von Konvektion und Diffusion dominiert, vgl. [CHIANG/TIEN, 1982], [PRIEVE/RUCKENSTEIN, 1976], [O'MELIA/ALI, 1978], [RAJAGOPALAN/KIM, 1981] während bei dem Transport mittelgroßer Partikel ($1 \mu\text{m} < D_s < 10 \mu\text{m}$) in erster Linie mechanische (Trägheit und Sperreffekt) und hydrodynamische Kräfte wirksam sind [ELIMELCH, 1991], [O'MELIA, 1988], [CHIANG/TIEN, 1985]. Die Modelle können in zwei verschiedene Unterarten aufgeteilt werden. Dabei kann zwischen

- empirischen Modellen und
- numerischen Modellen unterschieden werden, wobei letztere in
 - stochastische Simulationen
 - Netzwerksimulationen und
 - Trajektorienimulationen

unterteilt werden. Die **empirischen Modelle** liefern eine vereinfachte Darstellung der Vorgänge der Filtration und bilden diese in einer Filtergleichung ab, mit der beispielsweise der notwendige Filtrationsdruck oder die benötigte Filterfläche bei vorgegebenem Fluss berechnet werden können. Hierbei werden physikalische Gesetzmäßigkeiten in die Bestimmung der Gleichung einbezogen [STIEB, 1997], [ORTIZ-ARROYO, 2004]. Beispiele hierfür finden sich bei

[ADIN/REBHUN, 1987] [IVES, 1975], [JODEIT, 1985], [RAJAGOPALAN/TIEN, 1979]. In den **stochastischen Modellen** wird das Ausmaß der Porenverblockung simuliert. Der Zustand einer Pore (offen oder verblockt) wird über eine Wahrscheinlichkeitsregel, in die Fluidfluss und örtliche Permeabilität mit einbezogen werden, bestimmt. Diese Modelle basieren auf der Ermittlung von Daten mittels Simulationen und deren nachträgliche Ergänzung durch experimentelle Ergebnisse. Daher eignen sie sich nicht zur exakten Berechnung von Filtereigenschaften oder zur Prognose der Reinigungsleistung, und ihr Einsatz ist sehr begrenzt [ORTIZ-ARROYO, 2004]. Die **Netzwerkmodelle** bilden den Filter als ein Zufallsnetzwerk ab, bei denen eine statistische Ablagerung der Partikel nach deren Eintritt in das Netzwerk erfolgt. Der Transport der Partikel entsprechend des Zeitpunkts ihrer Abscheidung erfolgt mittels Simulation, z.B. [MELLI ET.AL., 1990]. Ein derartiges Modell eignet sich nur bei einem bekannten System aus Trübe und Filtermittel zur Vorhersage der Reinigungsleistung bzw. der Konzentrationsabnahme in der Trübe und zur Ermittlung der Filterkoeffizienten [ORTIZ-ARROYO, 2004]. Die **Trajektorienmodelle** basieren vorwiegend auf den Ansätzen von PAYATAKES und TIEN [PAYATAKES ET.AL., 1974], [CHIANG/TIEN, 1985], [RAJAGOPALAN/KIM, 1981]. Die Simulation der Ablagerung der Partikel erfolgt über die Berechnung der Trajektorien und das statistische Auftreffen eines Partikels auf das Filtermittel. Für die genaue Bestimmung ist es bei den numerischen Simulationen notwendig, die beim Eintritt in den Filter auf das Partikel wirkenden Kräfte zu ermitteln.

Vor dem Hintergrund dieser Ausführungen wird deutlich, dass bei allen numerischen Ansätzen die Wirkmechanismen der Filtration bekannt sein müssen, um eine Simulation durchführen zu können. Da in dieser Arbeit jedoch ein neuer, bisher nur selten berücksichtigter Wirkmechanismus betrachtet und detailliert untersucht werden soll, wird der phänomenologisch-empirische Ansatz ausgewählt, bei dem die physikalisch-chemischen Wirkmechanismen und ihre Wechselwirkungen betrachtet werden. Alle in Kapitel 2 vorgestellten empirischen Filtergleichungen gelten für inkompressible Newtonsche Fluide. **Tab. 3-1** zeigt die Ergebnisse für die Berechnung von Druckverlusten bei den Gleichungen nach Hagen-Poiseuille, Carman-Kozeny und Ergun⁹.

⁹ Die Bedingungen für die Berechnung lauten: Fließgeschwindigkeit in den Kapillaren $v_K = 5 \cdot v$, der mittlere Durchmesser der Kapillaren $D_K = 0,155 \cdot D_{FM}$, unter Berücksichtigung eines Umwegfaktors (Tortuosität) von $\mu = 2$ beträgt die Kapillarlänge $L = 0,1$ m, Carman-Kozeny-Konstante $R_K = 5$, bei kugelförmigen Partikeln gilt $S_V = 6/D_{FM}$, aufgrund einer gleichförmigen Partikelgrößenverteilung gilt $D_{32} = D_{FM}$.

Tab. 3-1: Berechnung von Druckverlusten bei verschiedenen Strömungsgeschwindigkeiten und Filtermittelgrößen für drei der vorgestellten konventionellen Filtergleichungen

Filter- mittelgröße [µm]	Filterge- schwindig- keit [m/s]	Filtergleichung					
		Hagen-Poiseuille		Carman-Kozeny		Ergun	
		$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-3}$
		Resultierende Druckdifferenz [bar]					
100		$6,7 \cdot 10^{-3}$	$6,7 \cdot 10^{-1}$	$1,0 \cdot 10^{-3}$	$1,0 \cdot 10^{-1}$	$8,5 \cdot 10^{-4}$	$8,5 \cdot 10^{-2}$
300		$7,4 \cdot 10^{-4}$	$7,4 \cdot 10^{-2}$	$1,13 \cdot 10^{-4}$	$1,13 \cdot 10^{-2}$	$9,4 \cdot 10^{-5}$	$9,4 \cdot 10^{-3}$

Es zeigt sich, dass die ermittelten Werte zwar voneinander abweichen, jedoch näherungsweise für die Berechnung einer Strömung in einem bekannten Systems geeignet sind. Diese Gleichungen dienen im Bereich der Filtration jedoch ausschließlich zur Bestimmung des Druckverlustes in einem leeren Schüttbett bzw. der Modellierung der Durchströmung von Kapillaren eines Filtermittels bei der Oberflächenfiltration. Dabei wird die zunehmende Verblockung eines Filtermaterials durch bereits abgeschiedene Partikel nicht berücksichtigt. Je nach Porosität des Filtermittels und Beladungszustand der Schüttung kann der Druckverlust jedoch schnell zunehmen und leicht mehrere bar betragen.

Während die Gleichungen nach Hagen-Poiseuille, Darcy und Carman-Kozeny eine Strömungsmodellierung bieten, handelt es sich bei den Modellen von Ergun und Iwasaki um echte Filtergleichungen, bei denen Partikeltransport bzw. -rückhalt berücksichtigt werden. Für die Beschreibung der Filtration unter Berücksichtigung elektrokinetischer Abstoßung ist es jedoch zusätzlich notwendig, dass die Porengeometrie in der Filtergleichung berücksichtigt wird. Dies erfolgt bei den drei Strömungsmodellen nicht. Bei wechselnder Porengeometrie wird die Prognose von Druckdifferenz und Fließgeschwindigkeit bei Hagen-Poiseuille ungenau und erlaubt ebenso wenig wie Darcy die Existenz von Wechselwirkung zwischen Suspension und Filtermittel bzw. Apparatewand. Aus diesen Gründen scheidet die ersten drei Strömungsgleichungen für die weitere Betrachtung aus. Die Gleichung nach Ergun berücksichtigt zwar die Geometrie der Poren, gilt allerdings nur für eine zäh-turbulente Durchströmung, bei der wiederum die Ansätze für die Ermittlung des Zetapotentials nicht erfüllt sind. Die Gleichung nach Iwasaki gilt für Tiefenfiltration, berücksichtigt aber lediglich die rein mechanischen Abscheidemechanismen. Die Vor- und Nachteile der verschiedenen Filtrationsmodelle zeigt **Tab. 3-2**.

Tab. 3-2: Beurteilung konventioneller Filtergleichungen

Filtergleichung	Gültigkeitsbereich	Vorteil	Nachteil
Hagen-Poiseuille	<ul style="list-style-type: none"> • Laminares, stetiges Fließen in einer einzelnen Röhre • Keine Adhäsion an Apparatewand oder Filtermittel 	<ul style="list-style-type: none"> • Einfach • Grobe Abschätzung von Druckverlust oder Strömungsgeschwindigkeit möglich 	<ul style="list-style-type: none"> • Ohne Berücksichtigung einer porösen Schicht • Ungenau bei wechselnden Rohrgeometrien, wie z.B. poröse Schichten
Darcy	<ul style="list-style-type: none"> • Zäh Durchströmung • Kleine Reynoldszahlen ($Re < 1$) • Keine Wechselwirkungen mit dem Filtermittel • Poröse Schüttungen 	<ul style="list-style-type: none"> • Berücksichtigung der Porosität in einer Kennzahl R_D • Einfach 	<ul style="list-style-type: none"> • Starke Abhängigkeit der Durchlässigkeit R_D von der Partikelgröße ($R_D \sim D_{FM}^2$)
Carman-Kozeny	<ul style="list-style-type: none"> • Durchströmung eines Kapillarsystems • Zäh Durchströmung • $0,3 < \varepsilon < 0,65$ 	<ul style="list-style-type: none"> • Erweitert Darcy um Porosität 	<ul style="list-style-type: none"> • Geometrie wird nicht berücksichtigt
Ergun	<ul style="list-style-type: none"> • Zäh turbulente Durchströmung $3 < Re < 100$ • Enge Korngrößenverteilungen 	<ul style="list-style-type: none"> • Berücksichtigung der Filtermittelgeometrie 	<ul style="list-style-type: none"> • Geometrische Eigenschaften der Schicht müssen bekannt sein
Iwasaki	<ul style="list-style-type: none"> • Langsamfilter (Filtergeschwindigkeit 0,1 - 0,5 m/h) 	<ul style="list-style-type: none"> • Berücksichtigung der Abnahme der Partikelkonzentration in der Trübe • Berücksichtigung der zunehmenden Filterbeladung 	<ul style="list-style-type: none"> • Rein mechanische Betrachtung der Vorgänge im Filter

Neben diesen Modellen existiert eine Vielzahl neuerer Filtertheorien, die sich dieser konventionellen Theorien als Grundlage bedienen. Ein Beispiel hierfür ist die Bestimmung der Abscheiderate nach O'MELIA und ALI (1978), die ähnlich wie IWASAKI (1937) die Veränderung der Partikelabscheidung durch zusätzliche Abscheidung von Partikeln durch bereits abgeschiedene Partikel berücksichtigt. Sie erweitern die vorgestellten Gleichungen zusätzlich um den Faktor Adsorption. Dadurch handelt es sich hier nicht mehr ausschließlich um eine Beschreibung der physikalischen Transportmechanismen, sondern bereits ansatzweise um eine Gleichung zur Modellierung der durch die chemisch-physikalischen Wechselwirkungen induzierten Anlagerungsmechanismen. Im Folgenden sollen Ansätze diskutiert werden, die das Zetapotential bzw. die Oberflächenladung für die Modellierung des Partikeltransportes und der Partikelablagerung heranziehen.

3.2 Anlagerungsmechanismen in Schüttbetten unter besonderer Berücksichtigung elektrokinetischer Wechselwirkungen

Für die Beschreibung von Wechselwirkungen zwischen suspendierten Partikeln wurde in den letzten Jahrzehnten vorwiegend die DLVO-Theorie herangezogen. Neben ihrer Anwendung zur Berechnung der Stabilität kolloidaler Suspensionen wird sie auch in einigen Ansätzen für die Modellierung von speziellen Problemen im Bereich der Filtration verwendet. Diese Ansätze sowie einige eigenständige Modelle, die über eine Variation der DLVO-Theorie hinausgehen, werden im Folgenden hinsichtlich ihrer Eignung zur Beschreibung der elektrokinetischen Repulsion diskutiert.

Eine der angesprochenen Untersuchungen betrachtet eingehend den Einfluss chemischer Eigenschaften der Suspension auf die Leistungsfähigkeit eines Filters [WANG, 1998]. Das Ziel ist in diesem Fall die Verstärkung der Adsorptionswirkung im Filter durch deren kontrollierte Beeinflussung. Als Indikator für deren Wirkung verwendet WANG (1998) einen Effizienzfaktor für die Partikelentfernung, der mit Hilfe der DLVO-Theorie aus der Kombination von chemischen und physikalischen Parametern entwickelt wurde. Dieser Faktor ermöglicht die Kontrolle einer Filtration durch Steuerung der Eigenschaften der Suspension. Wang kommt zu dem Schluss, dass Filtrationsprozesse mit Koagulationsprozessen vergleichbar sind, wenn die Partikel-Partikel-Wechselwirkungen auf das Zetapotential zurückgeführt werden. Hierbei kommt dem Zetapotential eine wichtige Rolle bei der Anlagerung und Adsorption von suspendierten Partikeln am Filtermittel zu. Besonders wichtig für eine gute Abscheideleistung ist

die Kontrolle der chemischen Bedingungen in der Suspension [WANG, 1998]. Vor allem Zetapotentiale um 0 mV fördern seinen Untersuchungen zur Folge die Filtration.

Zur Beschreibung des Transportes von kolloidalen Partikeln im Boden – was prinzipiell dem Transport bzw. Rückhalt von Mikroorganismen in einem Tiefenfilter ähnlich ist – nutzt ELIMELECH (1991) als Ansatz ebenfalls die DLVO-Theorie. Auch hier ist das Ziel der Untersuchungen, die Adsorptionseffekte besser zu verstehen. Es entstehen jedoch keine reproduzierbaren Aussagen, da die Partikeloberfläche bzw. deren chemisch-physikalischen Eigenschaften bei den eingesetzten Naturstoffen sehr heterogen sind [ELIMELECH ET.AL., 2000]. Auch wurde bei den Untersuchungen gezeigt, dass sich der Durchbruch des Filters bei Änderung der Ionenstärke kaum ändert und diese somit auf die elektrokinetischen Wechselwirkungen wenig Einfluss hat [ELIMELECH ET.AL., 2000]. Zu ähnlichen Aussagen kamen bereits GREGORY und WISHART (1980), als sie die Ablagerung von kolloidalen Partikeln auf Fasern unter Berücksichtigung des Zetapotentials beider Materialien, des pH-Wertes und der Ionenstärke der Suspension untersuchten. Sie zeigten, dass die Filtrationsleistung deutlich steigt, wenn Partikel und Filtermittel ein ungleichnamiges Zetapotential aufweisen und fanden heraus, dass die Abscheiderate am isoelektrischen Punkt nahezu unabhängig von der Ionenstärke des Elektrolyten ist. In der klassischen DLVO-Theorie wird angenommen, dass sich das Zetapotential mit der Ionenstärke des Elektrolyten deutlich ändert. Entsprechend wird eine Zunahme der Partikelabstoßung mit niedriger Ionenstärke prognostiziert. Bei der Übertragung der DLVO-Theorie auf die Filtration konnte in diesen beiden Untersuchungen eine derartige Abhängigkeit experimentell nicht nachgewiesen werden. Dies bedeutet, dass die **DLVO-Theorie** in ihrer ursprünglichen Form **nicht** für die **Beschreibung der Wechselwirkungen** zwischen Filtermittel und suspendierten, kolloidalen Partikeln **im Filter** herangezogen werden kann. Dies ist vor allem darauf zurückzuführen, dass die Basis der DLVO-Theorie auf der Betrachtung der Wechselwirkungsenergien zwischen kolloidalen Partikeln als Summe von elektrostatischer Abstoßungsenergie und Van-der-Waals-Anziehungsenergie beruht. Der Betrag der elektrostatischen Energie ist abhängig von der Dicke der elektrostatischen Doppelschicht, welche in erster Linie durch die Debye-Hückelkonstante und damit von der Ionenstärke beeinflusst wird. Für die Bestimmung der Debye-Hückelkonstante wird davon ausgegangen, dass das Partikel sich im Vakuum bzw. in einer ionenarmen Lösung befindet und keinen Einflüssen von anderen Partikeln ausgesetzt ist. In einem Filter treten zwischen den suspendierten Partikeln selber und dem Schüttbett jedoch Wechselwirkungen auf, so dass die Debye-Hückelkonstante als beschreibender Parameter ungenau wird.

Aus obiger Diskussion wird deutlich, dass die **DLVO-Theorie für die Filtration nicht eindeutig anwendbar** ist. Basierend auf dem Abscheidemodell von O'MELIA und ALI (1978) untersuchten CHANG und VIGNESWARAN (1990) den Einfluss des Zetapotentials als Materialeigenschaft des Filtermittels auf die Partikelabscheidung in Tiefenfiltern. Sie entwickelten einen Faktor zur Beschreibung der Partikelabscheidung unter Berücksichtigung des Zetapotentials. Ihre Betrachtungen gehen wiederum davon aus, dass mit steigender Ionenstärke das Zetapotential abnimmt und die Filtrationsleistung daher stark vom Betrag des Zetapotentials abhängig ist. Ihren Untersuchungen zufolge ist die Filtrationsleistung bei Zetapotentialen nahe 0 mV am besten. Gleichnamige Zetapotentiale von Filtermittel und suspendiertem Partikel sollten vermieden werden, da eine Unterstützung der Abscheidung durch Adsorption verhindert wird. Durch gezielte Einstellung des Zetapotentials kann daher die Abscheideleistung durch Förderung der Adsorption erhöht werden. Auch die Untersuchungen von LIN ET.AL. (2001 und 2003) zur Verstärkung des Biomasserückhalts bei der expanded bed adsorption (EBA) durch ungleichnamige Zetapotentiale betrachten die elektrokinetischen Wechselwirkungen. Sie definieren einen „Zeta-Parameter“ mit $(-\zeta_a \zeta_b d)$, dessen Betrag für eine gute Abscheiderate in der Bettadsorption stets $< 120 \text{ mV}^2 \cdot \mu\text{m}$ sein soll. Sie stellen fest, dass das Zetapotential ein guter Parameter zur Optimierung und Prognose von Adsorptionsprozessen ist.

Die nachfolgende **Tab. 3-3** bietet nochmals eine kurze Übersicht über die oben diskutierten Ansätze, die das Zetapotential bei der Beschreibung einer Tiefenfiltration berücksichtigen. Bei den Variationen der DLVO-Theorie wurden nur Partikel betrachtet, für die bereits die Diffusion der dominierende Abscheidemechanismus ist.

Für alle vorgestellten Modelle gilt, dass die betrachteten Partikel- bzw. Filtermittelgrößen sehr stark variieren, so dass keine Gesetzmäßigkeit zu erkennen ist. Alle Ansätze gehen bei der Untersuchung einer Wirksamkeit elektrokinetischer Kräfte von einer Unterstützung der Adsorptionswirkung durch ungleichnamige Zetapotentiale aus und weisen diese auch nach.

Da das Ziel dieser Arbeit jedoch in der Betrachtung der Wirkung der **Repulsionskräfte** besteht, wird keiner dieser Ansätze weiter verfolgt. Lin et.al. (2003) haben eine Wirkung des Zetapotentials auf die Adsorption von Partikeln, die der Diffusion nicht mehr unterworfen sind, nachgewiesen. Die von den elektrokinetischen Kräften verursachten Wechselwirkungen sind also groß genug, um auch bei Partikeln dieser Größenordnung eine Wirkung zu zeigen. Ist eine Verstärkung der **Adsorption durch gleichnamige Zetapotentiale** wie dort gezeigt mög-

lich, so kann durch **ungleichnamige Zetapotentiale** ebenso eine **Abstoßung** gefördert werden. Die detaillierte Betrachtung der elektrokinetischen Wechselwirkungen, insbesondere der Abstoßungskräfte und die theoretische Beschreibung deren Einflüsse auf die Filtration ist Gegenstand der nachfolgenden Betrachtungen.

Tab. 3-3: Übersicht Ansätze zur Beschreibung elektrostatischer und elektrokinetischer Wechselwirkungen, Anwendungsbereich und Kernaussage

Theorie	Gültigkeitsbereich	Aussage
Wang	Partikelgröße: $< 0,5 \mu\text{m}$ Filtermittelgröße: $400 \mu\text{m}$	<ul style="list-style-type: none"> • Koagulation und Filtration sind vergleichbar • $\zeta \approx 0$ fördert Abscheidung durch Adsorption
Elimelech	Partikelgröße: $< 0,5 \mu\text{m}$ Filtermittelgröße: $125 \mu\text{m}$	<ul style="list-style-type: none"> • DLVO-Theorie für Filtration ungeeignet
Gregory/Wishart	Partikelgröße: $< 0,5 \mu\text{m}$ Filtermittelgröße: $2 \mu\text{m}$ (Faserdurchmesser)	<ul style="list-style-type: none"> • DLVO-Theorie für Filtration ungeeignet • gleichnamige Partikel stoßen sich ab, keine Abscheidung möglich
Chang/Vigneswaran	Partikelgröße: $0,5 - 10 \mu\text{m}$ Filtermittelgröße: $100 - 300 \mu\text{m}$	<ul style="list-style-type: none"> • $\zeta \approx 0$ fördert Abscheidung • gleichnamige Partikel stoßen sich ab, keine Abscheidung möglich
Lin et.al.	Partikelgröße: $3 - 15 \mu\text{m}$ Filtermittelgröße: $300 - 400 \mu\text{m}$	<ul style="list-style-type: none"> • $\zeta_a \zeta_b d > 120 \text{ mV}^2 \mu\text{m}$ \Rightarrow Rückhalt kleiner 10 % • Zetapotential ist für Adsorptionsprognose und Optimierung geeignet

4 Neuer Ansatz zur Modellierung der Partikelabscheidung in partikulären Schüttbetten unter Berücksichtigung der elektrokinetischen Wechselwirkungen

Aus obiger Diskussion ergibt sich, dass keiner der vorgestellten Ansätze ohne weitere Modifikation geeignet ist, die Wirksamkeit von elektrokinetischen Kräften, insbesondere der Repulsion, bei der Tiefenfiltration zu beschreiben. Es ist daher ein Ansatz zu formulieren, der diese Kräfte berücksichtigt und anschließend deren Auswirkungen auf die Filtration mit einer mathematischen Analyse theoretisch erfasst. Die zu entwickelnde Filtergleichung soll für Filtrationsaufgaben, bei denen elektrokinetische Repulsionskräfte für eine Abtrennung genutzt werden können bzw. zu einer leichteren Regeneration des Filtermittels führen, eine Berechnung der benötigten mittleren Filtermittelgröße bei gegebenem Zetapotential von Filtermittel und suspendiertem Partikel ermöglichen.

In der Filbertechnik erfolgt zur Prozesskontrolle meist eine Überwachung und Steuerung physikalischer Parameter wie Fließgeschwindigkeit, Druckverlust, Höhe und Porosität des Schüttbetts. Die zusätzliche Betrachtung chemischer bzw. elektrochemischer Vorgänge kann dabei helfen, unzureichende Filtrationsleistungen zu erklären und die limitierenden Faktoren zu minimieren [WANG, 1998]. Außerdem kann die Filtration an einen konkreten Bedarfsfall angepasst und optimiert werden. Die konventionellen Filtergleichungen und auch deren Weiterentwicklungen betrachten vorwiegend den Transport des Fluids durch die Schüttung oder teilweise auch etwas detaillierter den **Antransport** des abzuschheidenden Partikels an das Filtermittel sowie dessen vorwiegend durch Adsorption induzierte **Anlagerung**. Bei den Betrachtungen zur Anlagerung durch Adsorption wurde in der Literatur stets deren Verstärkung durch elektrostatische und elektrokinetische Kräfte bzw. die Verringerung der elektrischen Abstoßungskräfte durch Kontrolle der Elektrolyteigenschaften zur Verbesserung der Partikelabscheidung in Tiefenfiltern untersucht. In einigen Bereichen ist eine Anpassung der Trübeeigenschaften zur Optimierung des Filtrationsergebnissen nicht möglich, wenn beispielsweise die Trübe gleichzeitig ein Produkt ist (Getränkeindustrie) oder eine Veränderung der chemischen Suspensionseigenschaften die Rückführung der Mikroorganismen in den Prozess verhindert (fed-batch und kontinuierliche Fermentationsprozesse). Vielmehr ist hier eine Anpassung des Filtermittels an die Trennaufgabe, d.h. an die Eigenschaften der Trübe und der suspendierten Partikel unter Berücksichtigung deren Wechselwirkungen mit dem Filtermittel notwendig.

Bei den folgenden Betrachtungen soll die grundlegende Annahme daher auf den **Abstoßungseffekten** beruhen, die sich durch gleichnamige Zetapotentiale von Filtermittel und dem abzutrennenden suspendierten Partikel ergeben. Ferner soll auf die Möglichkeiten **der Schüttbettoptimierung** durch die Berücksichtigung dieser elektrokinetischen Effekte eingegangen werden. Zunächst wird der Antransport eines Partikels und im Anschluss dessen Anlagerung an das Filtermittel betrachtet.

4.1 Einfluss des Zetapotentials auf den Partikeltransport im Schüttbett

Wird die Abstoßung zwischen Filtermittel und suspendierten Partikeln durch das elektrokinetische Potential als Wirkmechanismus bei einer Filtration betrachtet, so verengt sich durch die elektrokinetischen Abstoßungskräfte bei gleichnamigen Vorzeichen die Pore im Filtermittel. Da angenommen wird, dass neben den Trägheitskräften und den hydrodynamischen Kräften zusätzlich elektrokinetische Abstoßungskräfte wirksam sind, ergibt sich aus diesem Gedankenmodell, dass der Zwischenraum zwischen den Partikeln des Filtermittels durch diese zusätzlich verengt wird und auch kleinere Partikel, die normalerweise die Pore passieren können, problemlos abgeschieden werden. Als dreidimensionale Ansicht für eine bessere Anschaulichkeit der Überlegungen zeigt **Abb. 4-1** einen Ausschnitt aus einer homogenen hexagonalen Packung ohne und mit Berücksichtigung des Zetapotentials. Es ist direkt zu erkennen, dass auf **Abb. 4-1 A** der eingezeichnete suspendierte Partikel durch die Kanäle der Schüttung transportiert werden kann, dass er auf **Abb. 4-1 B** jedoch aufgrund des angenommenen elektrokinetischen Sperreffektes in der Schüttung zurückgehalten wird. Entsprechend ist es einem Partikel, das unter Berücksichtigung der rein geometrischen Bedingungen die Pore gerade noch passieren kann, unmöglich, diese bei Berücksichtigung der elektrokinetischen Kräfte zu passieren. Dieser erste Ansatz ist auf **Abb. 4-2** angelehnt an die konventionellen Wirkmechanismen (vgl. **Abb. 2-2**) dargestellt.

Hinsichtlich der konventionellen Wirkmechanismen wird angenommen, dass die Diffusion nicht zu berücksichtigen ist, da sie nur bei sehr kleinen Partikel ($D_S < 0,5 \mu\text{m}$) einen Einfluss auf die Filtration hat. Von den Relativbewegungen werden die Trägheit und die hydrodynamischen Effekte hauptsächlich zur Abscheidung beitragen. Die Sedimentation findet keine Berücksichtigung, da die Filtrationsgeschwindigkeit über der Sedimentationsgeschwindigkeit liegen soll und auch erst für große suspendierte Partikel ($D_S > 10 \mu\text{m}$) relevant wird, vgl. u.a. [HERZIG, ET.AL., 1970]. Der Sperreffekt wird als Filtrationseffekt vernachlässigt, da die Parti-

kel kleiner sind als die Poren des Filtermittels. Entsprechend des zu untersuchenden Filtrationsprinzipes sollen die elektrokinetischen Repulsionskräfte für die Partikelabscheidung verantwortlich sein. Nach einer Modellierung der Porengeometrie des Schüttbetts erfolgen die Darstellung der am Partikeltransport beteiligten Kräfte und deren Berechnung.

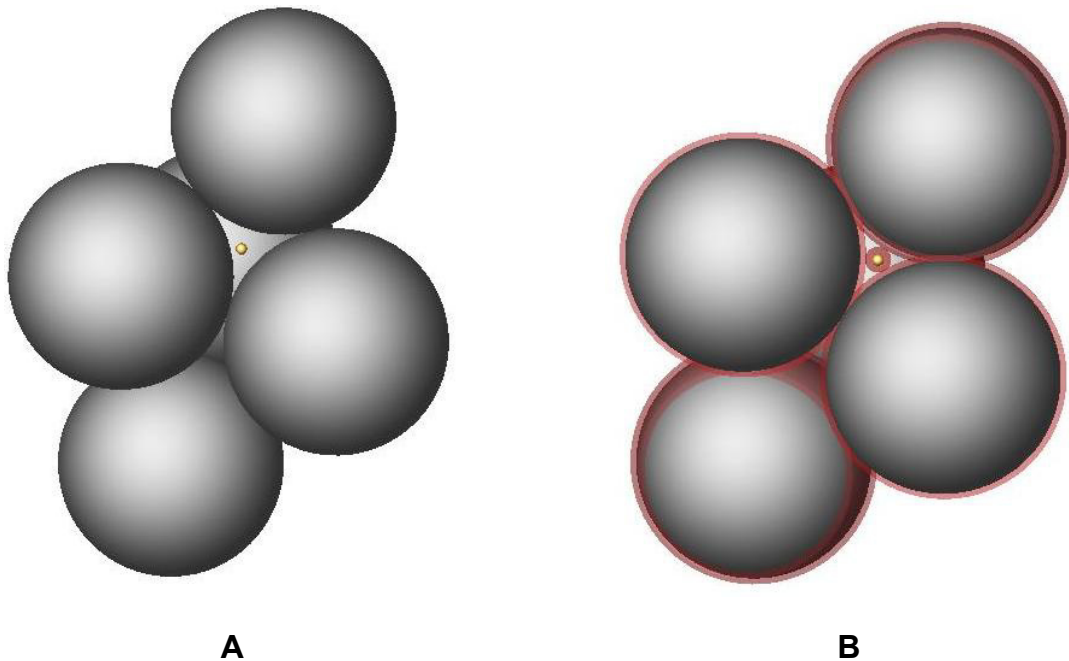


Abb. 4-1: Suspendiertes Partikel im Zwischenraum mehrerer Filtermittelpartikel, A: ohne Berücksichtigung des Zetapotentials, B: mit Berücksichtigung des Zetapotentials

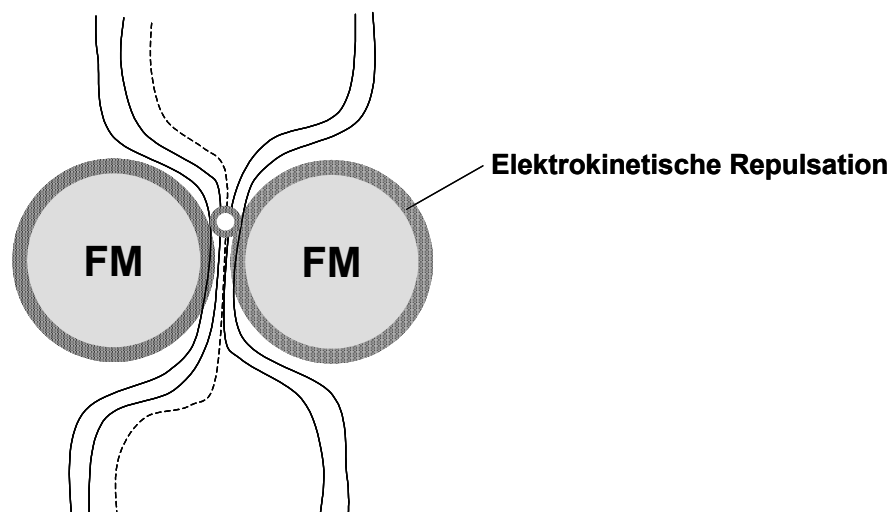


Abb. 4-2: Wirkung des elektrokinetischen Sperreffektes bei der Partikelabscheidung in einem Filter, es findet keine Adsorption statt

4.1.1 Modellierung der Porengeometrie zur Verhinderung einer Partikelabscheidung durch den Sperreffekt

Die Größe der Poren und damit das Einsetzen des Sperreffektes für ein suspendiertes Partikel sind abhängig von der Packungsdichte des Schüttbetts. Die einfachste Kugelpackung ist die kubische Packung. Bei dieser werden Poren durch vier begrenzende Kugeln geformt, vgl. auch [BARGEL/SCHULZE, 1994]. Diese Kugelschicht liegt zentriert über den Achsen einer weiteren Schicht aus Kugeln. Ein kugelförmiges Partikel, das diese Pore passieren will, darf maximal 40 % der Größe des Filtermitteldurchmessers aufweisen, vgl. **Abb. 4-3** und (Gl. 4-1). Die Porosität eines derartigen Schüttbetts beträgt $\varepsilon_{FM} = 47,6 \%$, [HÖLTING, 1996], [STIEB, 1997].

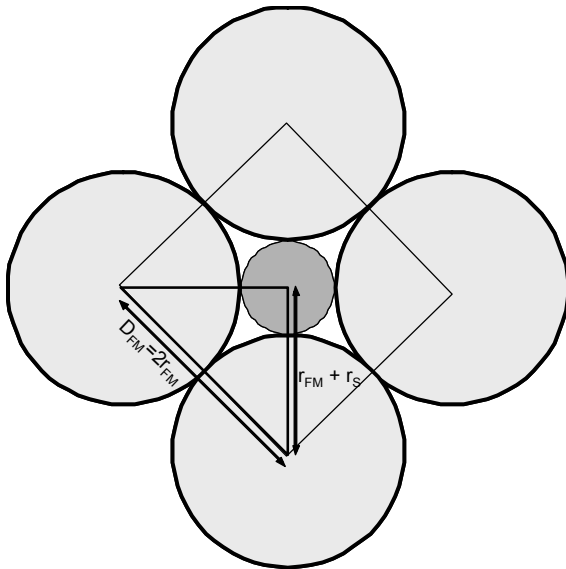
In der Filtertechnik angewendete Schüttungen sind weniger geordnet und haben eine deutlich höhere Packungsdichte. Wird angenommen, dass der Hohlraum einer Pore durch ideal runde gleichgroße Kugeln einer hexagonalen oder rhombohedralen Packung¹⁰ geformt wird, so ergeben sich neben den großen Hohlräumen auch engere Hohlräume, die von drei Kugeln geformt werden, siehe hierzu **Abb. 4-5**.

Bei der hexagonalen Packung sind etwa 25 % aller Hohlräume des Schüttbetts kleiner ($\varepsilon_{FM} = 39,1 \%$), bei der rhombohedralen knapp 50 % ($\varepsilon_{FM} = 25,9 \%$) als bei der kubischen Packung, vgl. [HÖLTING, 1996]. Entsprechend (Gl. 4-2) ergibt sich aus dem Durchmesser der Kugeln D_{FM} und dem Durchmesser der abzutrennenden Partikel D_S dessen maximale Größe, mit der ein Partikel in die Pore eindringen könnte, siehe **Abb. 4-4**.

Für ein Schüttbett ergibt sich hieraus, dass der suspendierte Partikel maximal 15 % der Größe des Filtermittels haben darf, vgl. auch [HERZIG ET.AL., 1970], damit er durch den Filter hindurch wandern kann und nicht bei Eintritt in den Filter durch den Sperreffekt und damit in Form einer Oberflächenfiltration direkt an der ersten Schicht des Filtermaterials zurückgehalten wird. Unter realen Filtrationsbedingungen werden jedoch bereits kleinere Partikel abgeschieden, da in den Kapillaren verschiedene Wechselwirkungen wie Reibung und Randeffekte auftreten und das Partikel deshalb u.a. durch Trägheitskräfte, Sperreffekt und Hydrodynamik abgeschieden wird. Das Minimum der Partikelgröße, die durch diese Mechanismen in einem

¹⁰ Bei der hexagonalen Packung wird das Gitter in einer Richtung um $D_{FM}/2$ verschoben, bei der rhombohedralen bzw. hexagonalen dichtesten Packung in zwei Richtungen.

partikulären Schüttbett abgeschieden werden kann, ergibt sich aus der Annahme, dass keine Diffusion stattfinden soll. Mit $D_S > 0,5 \mu\text{m}$ ergibt sich ein minimaler Filtermitteldurchmesser von etwa $D_{FM} = 5 \mu\text{m}$.



$$\cos 45^\circ = \frac{D_{FM} + D_S}{(2 \cdot D_{FM})} \quad (\text{Gl. 4-1})$$

$$D_S = D_{FM} \cdot (2 \cdot \cos 45^\circ - 1)$$

$$D_S = 0,414 \cdot D_{FM}$$

Mit:

D_{FM} : Durchmesser Filtermittel [m]

r_{FM} : Radius Filtermittel [m]

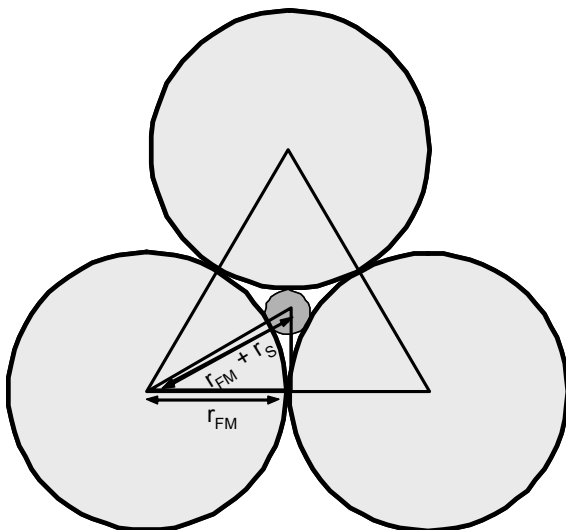
D_S : Durchmesser Partikel [m]

r_S : Radius Partikel [m]

Passieren der Pore möglich,

wenn $D_S < 0,414 \cdot D_{FM}$

Abb. 4-3: Abstand zwischen den Filtermittelpartikeln bei einer kubischer Packung



$$\cos 30^\circ = \frac{D_{FM}}{(D_{FM} + D_S)} \quad (\text{Gl. 4-2})$$

$$D_S = D_{FM} \cdot \left(\frac{1}{\cos 30^\circ} - 1 \right)$$

$$D_S = 0,155 \cdot D_{FM}$$

Mit:

D_{FM} : Durchmesser Filtermittel [m]

r_{FM} : Radius Filtermittel [m]

D_S : Durchmesser Partikel [m]

r_S : Radius Partikel [m]

Passieren der Pore möglich,

wenn $D_S < 0,155 \cdot D_{FM}$

Abb. 4-4: Kurzer Abstand zwischen den Filtermittelpartikeln bei hexagonaler und rhombohedraler Packung

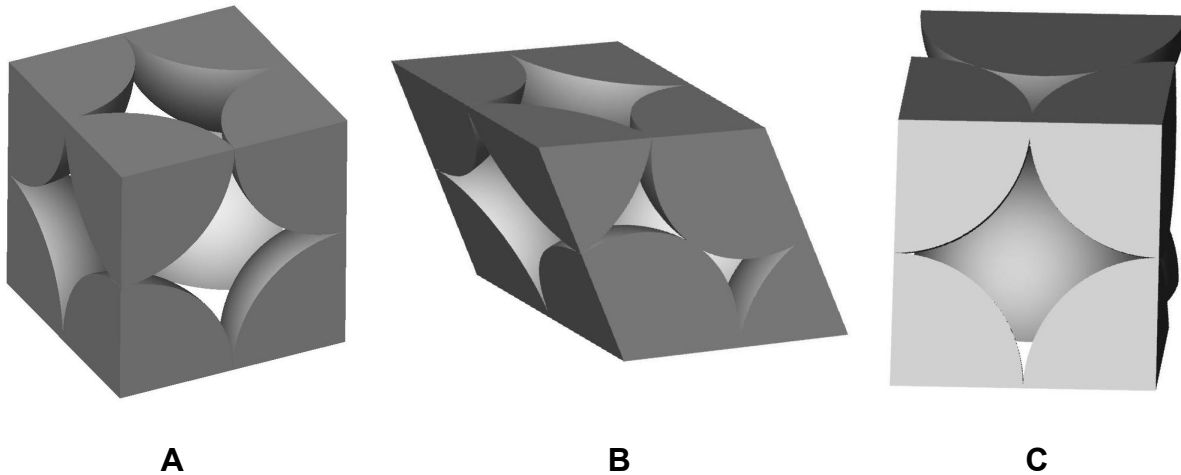


Abb. 4-5: Ausschnitte aus verschiedenen Kugelpackungen, die unterschiedlichen Porenformen sind deutlich zu erkennen;
A: Kubische Packung, B: Hexagonale Packung, C: Rhombohedrale Packung

4.1.2 Wirksamkeit des Zetapotentials als Antransportmechanismus

Ziel der nachfolgenden Überlegungen ist es, eine Aussage darüber zu treffen, ob es möglich ist, ein Partikel mit Hilfe elektrokinetischer Kräfte aus der Strömung heraus abzuschleiden. In einem porösen Schüttbett ist die Strömung aufgrund der häufigen Umlenkungen und der variierenden Porengröße instationär. Durch die auftretenden hydrodynamischen Effekte und Trägheitskräfte verlassen die Partikel in der Suspension ihre Bahn und werden in den Zwickeln des Schüttbetts abgeschieden. Ein Teil der Partikel bleibt jedoch auf seiner Bahn oder wird durch Rücktransportmechanismen wieder in die Kernströmung transportiert. Im Falle einer Partikelabscheidung durch elektrokinetische Repulsionskräfte wird angenommen, dass Abstoßungskräfte bei gleichnamigem Zetapotential von Filtermittel und suspendiertem Partikel wirksam sind und dadurch für diesen eine „Verengung“ der Poren eintritt. Der suspendierte Partikel wird so – gemäß der Annahme – durch einen elektrokinetischen Sperreffekt zurückgehalten.

Der Antransport des Partikels an das Filtermittel wird von Kräften, die im Fernbereich des Filtermittels ($\delta > 1 \mu\text{m}$) wirksam sind, verursacht. Diese sind ebenso wie die Rücktransportmechanismen im Bereich der porösen Schüttungen nicht ausreichend beschrieben, daher soll an dieser Stelle überprüft werden, ob die Erkenntnisse zur Beschreibung der Durchströmung von Rohren und Kapillaren mit Suspensionen Verwendung finden kann. Bei dieser treten unter stationären, laminaren Strömungsbedingungen Entmischungserscheinungen auf, vgl. [CHMIEL

ET.AL., 1983], [HALOW/WILLS, 1970], [RIPPERGER, 1993]. Sie werden von einer aufgrund der Viskositäts- und Trägheitseffekte entstehenden Querkraft verursacht, die an einer Oberfläche abgeschiedene Partikel wieder zurück in die Strömung transportiert¹¹ [CHMIEL ET.AL., 1983], [FRITSCHING/BAUCKHAGE, 1991], [RIPPERGER, 1993]. In geraden Kapillaren und Röhren verarmt die Suspension dadurch nahe der Rohr- bzw. Kapillaroberfläche an Teilchen, d.h., an der Oberfläche kommt es zu keinen oder lediglich geringen Partikelanhaftungen. In den unregelmäßig geformten Kapillaren eines Tiefenfilters hingegen erfolgt eine Partikelabscheidung. Diese lässt sich dadurch erklären, dass der beschriebene Entmischungseffekt nur für gerade durchströmte Röhre und Kapillare definiert ist: Die Entmischung erfolgt umso vollständiger, je länger der verfügbare Strömungsweg ist [BAUCKHAGE, 1982], [MATAS ET.AL., 2004]. In porösen, partikulären Schüttbetten ist der gerade Strömungsweg hingegen extrem kurz.

Es wird daher im Folgenden angenommen, dass **bei der Partikelabscheidung durch elektrokinetische Abstoßungskräfte** bei gleichnamigem Zetapotential von Filtermittel und suspendierten Partikeln ein Antransport des Partikels an das Filtermittel durch Sedimentation, Trägheit und hydrodynamische Effekte sowie ein Rücktransport in die Strömung vernachlässigt werden kann. Für die weitere Betrachtung wird zudem angenommen, dass ausschließlich die elektrokinetischen Kräfte den Strömungskräften entgegen wirken und das Partikel – wie in Abb. 4-2 gezeigt – von diesen am Passieren der Pore gehindert wird. Wird entsprechend den getroffenen Annahmen ein suspendiertes Partikel beim Passieren einer Pore betrachtet, (**Abb. 4-6**) so ergibt sich folgendes stark vereinfachtes Kräftegleichgewicht (Gl. 4-4). Den Strömungskräften wirken ausschließlich die elektrokinetischen Repulsionskräfte entgegen. Mit diesem Kräftegleichgewicht können die in der Pore auf das Partikel einwirkenden Kräfte berechnet werden.

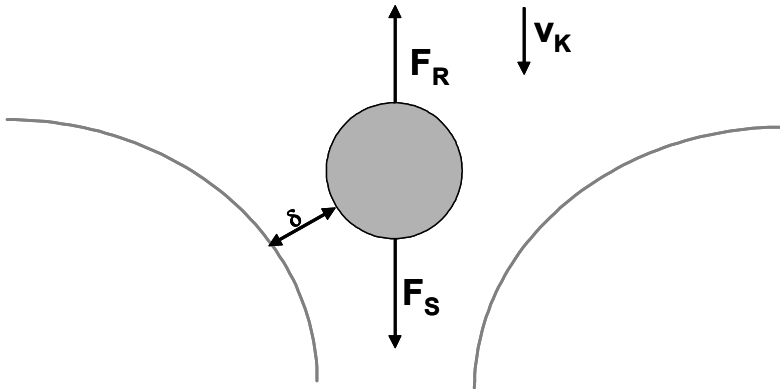
Die Strömungskraft ergibt sich aus dem Strömungswiderstand, der Anströmfläche und dem Reibungswiderstand:

$$F_S = \frac{\rho_L}{2} v_K^2 \cdot \frac{\pi}{4} D_S^2 \cdot c_w \quad (\text{Gl. 4-3})$$

¹¹ Dieses Phänomen wurde zuerst von SEGRÉ und SILBERBERG (1962) für das Verhalten von Partikelsuspensionen in Röhren beschrieben. PORTER zeigte 1972, dass dieser Effekt auch für den Rücktransport von Partikeln in die Kernströmung bei der Crossflow-Membranfiltration wirksam ist. Diese Art der Entmischungerscheinung wird entsprechend in der Literatur als „Segré-Silberberg“ oder auch als „tubular-pinch“ Effekt bezeichnet.

Mit:

ρ_L : Dichte der Flüssigkeit [kg/m³] v_K : Fließgeschwindigkeit in den Kapillaren [m/s]
 D_S : Durchmesser des Partikels [m] c_w : Widerstandsbeiwert [-]



$$F_S - F_R = 0 \quad (\text{Gl. 4-4})$$

Mit:

F_R : Repulsionskraft [N]
 F_S : Strömungskraft [N]
 v_K : Strömungsgeschwindigkeit in der Kapillaren [m/s]
 δ : Abstand zwischen Feststoff und Filtermittel [m]

Abb. 4-6: Vereinfachtes Kräftegleichgewicht an einem suspendierten Partikel bei der Durchströmung einer Pore: $0,5 \mu\text{m} < D_S < 10 \mu\text{m}$ laut Annahme

Für eine stationäre, zähe bzw. laminare Strömung ($Re < 1$) gilt nach Stokes $c_w = 64/Re$. Für die folgende Betrachtung wird angenommen, dass der Widerstandsbeiwert mit diesem Zusammenhang bestimmt werden kann. Unter dieser Voraussetzung ergibt sich für die kinetische Kraft folgende Gleichung, vgl. u.a. [BIRD, ET.AL., 2002]:

$$F_S = 3 \cdot \pi \cdot \eta_L \cdot D_S \cdot v_K \quad \text{Mit } v_K = 5 \cdot v \quad (\text{Gl. 4-5})$$

Mit:

η_L : Dynamische Viskosität der Flüssigkeit [Pa · s]

Für die elektrostatische Repulsionskraft F_R gilt nach VERWEY und OVERBEEK (1948):

$$F_R = 2 \cdot n \cdot k_B \cdot T \cdot (\cosh[u] - 1) \quad (\text{Gl. 4-6})$$

Mit:

n : Zahl der Ionen pro cm³ Elektrolyt bei weiter Entfernung von der Oberfläche, $\Psi_0 = 0$
 Ψ_0 : Oberflächenpotential [V] k_B : Boltzmann-Konstante [J]
 T : Temperatur [K]

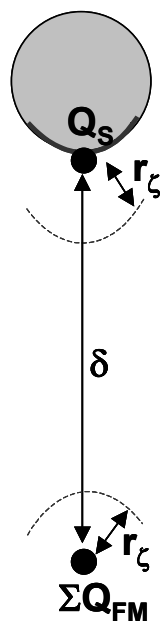
Dabei ist u eine Funktion eines elektrischen Potentials im Abstand δ von der Oberfläche, von Oberflächenleitfähigkeit, Oberflächenpotential und Ionenstärke des Elektrolyten [VERWEY/OVERBEEK, 1948].

$$u = 8 \cdot \gamma_z \cdot e^{-\kappa \cdot \delta} \quad (\text{Gl. 4-7})$$

Mit:

$\gamma_z = f(z)$: Funktion der Ionenstärke	z : Ionenstärke	[-]
κ : inverse Debye-Hückel-Länge [1/m]	δ : Abstand von der Oberfläche	[m]

Die Funktion u nach (Gl. 4-7) bzw. γ_z ist für reale Systeme nicht exakt lösbar, da die enthaltenen Parameter nicht eindeutig ermittelbar sind. Die erforderlichen Annahmen gehen mit einer hohen Ungenauigkeit der berechneten Kräfte einher, so dass deren Bestimmung sehr unzuverlässig ist. Die Repulsionskraft kann aber auch auf die Coulombschen Wechselwirkungen zurückgeführt werden [HERMANSSON, 1999]. Für die Berechnung der Repulsionskraft wird daher auf die Theorie von Coulomb zurückgegriffen, da hier weniger Parameter unbekannt sind. Dazu wird ein Ausschnitt aus der Oberfläche des suspendierten Partikels als Punktladung betrachtet, die mit den elektrokinetischen Kräften der umgebenden Filtermittel in Wechselwirkung tritt. Die elektrokinetischen Kräfte werden idealisiert als Punktladung im Zentrum der Pore zusammengefasst, siehe **Abb. 4-7**.



Mit:

Q_S :	Punktladung Partikel	[J]
Q_{FM} :	Punktladung Filtermittel	[J]
r_ζ :	Scherebene	[m]
δ :	Abstand zwischen Partikel und Filtermittel	[m]

Abb. 4-7: Im Porenzentrum auf das suspendierte Partikel wirkende Kräfte

Zur Ermittlung der Punktladungen wird als Potential im Feld der Punktladung das Zetapotential gewählt, und angenommen, dass sich die Scherebene etwa $r_\zeta = 5 \text{ nm}$ vom Zentrum der

Punktladung entfernt befindet¹². Im radialsymmetrischen Feld beträgt das Potential [DOBRINSKI ET.AL., 2003]:

$$\varphi(r_\zeta) = \zeta = \frac{1}{4 \cdot \pi \cdot \varepsilon_0 \cdot \varepsilon_r} \cdot \frac{Q}{r_\zeta} \quad (\text{Gl. 4-8})$$

Mit:

$\varphi(r_\zeta)$:	Potential an der Stelle $r_\zeta = \zeta$	[V]	ζ :	Zetapotential	[V]
Q:	Ladung	[C]	ε_0 :	Dielektrizitätskonstante	[F/m]
ε_r :	Dielektrizitätszahl von Wasser	[-]	r_ζ :	Abstand der Scherebene vom Partikel	[m]

Für den als Punktladung dargestellten Ausschnitt der Oberfläche des suspendierten Partikels sowie die zur Punktladung zusammengefassten Einzelladungen der Filtermittel gilt zur Bestimmung der zwischen ihnen wirkenden Kraft das Coulombsche Gesetz, vgl. [DOBRINSKI ET.AL., 2003]. Für die Repulsionskraft ergibt sich entsprechend (ähnlich auch bei [WEIGL, 2004]):

$$F_R = \frac{1}{4 \cdot \pi \cdot \varepsilon_0 \cdot \varepsilon_r} \cdot \frac{Q_{FM} \cdot Q_S}{\delta^2} \quad (\text{Gl. 4-9})$$

Unter der Annahme, dass diese Kraft bereits in einem gewissen Abstand von der Oberfläche wirksam sein muss, um das Partikel an der Passage der Pore zu hindern, wird für den Abstand zwischen Filtermittel und Partikel $\delta = 1 \mu\text{m}$ angenommen. Dieser Abstand ist mindestens notwendig, um eine Aussage über eine Fernwirkung der gleichnamigen Zetapotentiale beim Antransport treffen zu können. Die wirksame elektrokinetische Kraft wird für einen Unterschied der Zetapotentiale von Filtermittel und suspendiertem Partikel von Faktor 10 sowie für gleich große Zetapotentiale der beiden Oberflächen berechnet. Die Zetapotentiale des Filtermittels betragen bei der Rechnung $\zeta_{FM} = -50$ bzw. -5 mV und das des suspendierten Feststoffs $\zeta_S = -5$ mV. Dadurch können Wechselwirkungen beschrieben werden, wie sie einerseits zwischen Oberflächen unterschiedlicher Zetapotentiale – z.B. denen von Filtermittel und suspendiertem Partikel – und andererseits zwischen einander sehr ähnlicher Oberflächen – beispielsweise bei der Wechselwirkung zweier suspendierter Partikel – auftreten können. Die Ergebnisse der Berechnungen zeigt **Tab. 4-1**.

¹² Diese Annahme entspricht der Größenordnung der Debye-Hückel-Länge, vgl. Abschnitt 2.2.2. und [ATKINS/HÖPFNER, 2001].

Tab. 4-1: Ergebnisse der Berechnung von Strömungskraft und Repulsionskraft für verschiedene Partikelgrößen und Filtergeschwindigkeiten

Strömungskraft F_S [N]		
Filtergeschwindigkeit v [m/s] Partikelgröße D_S [μm]	$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-3}$
5	$2,4 \cdot 10^{-12}$	$2,4 \cdot 10^{-10}$
10	$4,7 \cdot 10^{-12}$	$4,7 \cdot 10^{-10}$

Repulsionskraft ¹³ F_R [N]		
ζ_S/ζ_{FM}	0,1	1
	$5,6 \cdot 10^{-17}$	$5,6 \cdot 10^{-18}$

Die Ergebnisse dieser Berechnung zeigen deutlich, dass die Repulsionskraft wesentlich kleiner ist als die auf das Partikel einwirkende Strömungskraft. Ein Rückhalt des Partikels durch einen elektrokinetischen Sperreffekt aufgrund der gleichnamigen Zetapotentiale erscheint aufgrund der hohen Abweichung zwischen vorhandener und benötigter Kraft unwahrscheinlich. Für ein Eingreifen in den Transportprozess müsste die Differenz der Zetapotentiale der in Wechselwirkung tretenden Oberflächen im Bereich $1 \cdot 10^6$ liegen. Allerdings wird in dieser Berechnung bedingt durch die hohe Komplexität des Systems nur die Strömungskraft als einzige Einflussgröße berücksichtigt. Trotzdem wird aus dieser Abschätzung wird deutlich, dass die **elektrokinetischen Kräfte** als Wirkmechanismus beim **Antransport** nur eine **untergeordnete Rolle** spielen, vgl. auch [IVES, 1975].

¹³ Bei der Berechnung der Repulsionskraft mit Hilfe der DLVO-Theorie nach (Gl. 4-7) werden unter Annahme von Standardbedingungen, $z = 6$, $\kappa \cdot \delta = 0,2$ und $n = 0,001$ sogar nur Kräfte in der Größenordnung von $F_R = 10^{-21}$ erhalten. HAMERSVELD ET.AL. (1994) zeigten bei Messungen der Anziehungskräfte zwischen Hefezellen, dass diese 2000fach größer sind als jene, die über Berechnungen mit der DLVO-Theorie ermittelt wurden. Bei Wechselwirkungen zwischen Mikroorganismen sind demnach die Anziehungskräfte zwischen den einzelnen Mikroorganismen besonders ausgeprägt und auf zusätzlich zu den physikalischen Effekten ablaufende biochemische Wirkungen zurückzuführen, vgl. auch S. 42 f. Dadurch können die Abstoßungskräfte gegenüber anderen Oberflächen durchaus höher sein als bisher angenommen.

Die Ansätze nach Hagen-Poiseuille, Darcy und Carman-Kozeny beschreiben somit den Fluidtransport hinreichend genau, und die Ansätze von Ergun und Iwasaki oder auch O'MELIA/ALI (1978) erscheinen für die Modellierung des Filtrationsvorganges zunächst ausreichend, da sie die Abnahme der Partikelkonzentration bzw. Veränderung des Filtermediums oder des Druckverlustes durch abgeschiedene Partikel berücksichtigen. Verschiedene Autoren beobachten jedoch eine verstärkte Partikelabscheidung bei ungleichnamigen Zetapotentialen, Zetapotentialen von Filtermittel und Partikeln nahe null oder auch eine schlechtere Adsorptionswirkung bei gleichnamigen Zetapotentialen [CHANG/VIGNESWARAN, 1990], [DONHAUSER, 1982], [FITZPATRICK/SPIELMAN, 1973], [GREGORY/WISHART, 1980], [HERMANSSON, 1999], [LIN ET.AL., 2003], [WANG, 1998]. Dies weist darauf hin, dass die elektrokinetischen Wechselwirkungen einen Einfluss auf die Partikelabscheidung haben. Da wie oben hergeleitet dieser Einfluss nicht stark genug ist, um auf den **Partikeltransport** einwirken zu können, wird im Folgenden der Einfluss elektrokinetischer Effekte auf den Mechanismus der **Partikelanlagerung** untersucht.

4.2 Einfluss des Zetapotentials auf die Partikelanlagerung an der Filtermitteloberfläche

Neben dem Sperreffekt ist die Adsorption der für die Anlagerung notwendige Mechanismus. Sind hier zusätzlich **elektrokinetische Kräfte** wirksam, so müssen sie auch einen **Einfluss** auf die **Partikeladsorption** am Kollektor haben. Dies würde bedeuten, dass die bisherigen Modelle zur Anlagerung von Partikeln an einer Oberfläche die realen Vorgänge nur ansatzweise und stark vereinfacht wiedergeben. Die Arbeiten von IVES (1990), der Tiefenfilter mit einem Endoskop untersuchte, zeigen, dass der Großteil der bisher entwickelten Filtermodelle die beobachtete Realität nur unzureichend wiedergibt. Einer der Hauptkritikpunkte von Ives ist, dass der Vorgang der Partikelanlagerung und -abscheidung nicht zufrieden stellend erfasst ist. Neben der Bewegung der Strömung in Flussrichtung entstehen auch Seitwärts- und Gegenstrombewegungen. Seine Beobachtungen zeigen hinsichtlich der Partikelanlagerung, dass es Sammelporen gibt, in denen sich die abgetrennten Partikel ansammeln. Unterhalb dieser Poren befindet sich ein großer Hohlraum. Die Pore wird von den suspendierten Partikeln angefüllt bzw. verstopft, und sobald der Druck der nachfolgenden Suspension bzw. der enthaltenen Partikel zu hoch wird, erfolgt ein lawinenartiger Weitertransport in die nächste freie Pore und auch darüber hinaus. Dieser Impuls sorgt für ein Mitreißen der bereits angelagerten Partikel und dadurch für ein Entleeren der Pore. Ist die Schütthöhe des Filters zu gering gewählt, so

kann dieses Phänomen bereits zu einem Durchbruch führen obwohl das Schüttbett nicht vollständig befüllt ist, vgl. auch [EVERS, 2005]. Ives vermutet, dass die Grenzen der traditionellen Filtermodellierung in diesen lawinenartigen Abgängen zu suchen sind, und diese zu einem großen Teil auf die vorhandene Scherbeanspruchung der Ablagerungen zurückzuführen sind.¹⁴

Sind die elektrokinetischen Wechselwirkungen an der Anlagerung der Partikel und deren Abscheidung beteiligt, so könnten sie einen entscheidenden Einfluss auf die Art des Partikeltransportes im Schüttbett haben. Die Verringerung der Adsorptionskräfte könnte eine stoßartige Entladung unterdrücken und einen „sanften“ Weitertransport in die nächste Pore ermöglichen. Der Filter kann gleichmäßiger beladen und die Kapazität des Filtermittels besser genutzt werden. Für die entsprechenden Betrachtungen soll – ähnlich der vorhergehenden Diskussion über den Antransport der Partikel – die Rolle des Zetapotentials bei den Anlagerungs- und Abscheidemechanismen untersucht werden. Bei den elektrostatischen Kräften handelt es sich – ebenso wie bei den Van-der-Waals-Kräften – um Kräfte, die nicht nur im direkten Kontaktbereich von Partikel und Oberfläche wirken, sondern auch eine gewisse Fernwirkung aufweisen, weshalb sie einen nicht zu vernachlässigenden Einfluss auf die Gesamthaftkraft haben, vgl. auch [WEIGL, 2004]. Im Falle einer Anhaftung erfolgt nach dem ersten Kontakt zwischen Partikel und Oberfläche an einem Kontaktpunkt insbesondere durch diese Kräfte und durch verschiedene andere Wechselwirkungen eine Verstärkung der Haftkräfte. Vor allem bei rauen Oberflächen¹⁵ sorgen viele Kontaktpunkte für eine stabilere Anhaftung, vgl. [GIMBEL, 1982]. Durch intermolekulare Kräfte wird die Kontaktfläche soweit erhöht, bis die Haftkräfte und die Deformationskräfte im Gleichgewicht sind [WEIGL, 2004]; das Partikel haftet fest an der Oberfläche und ist endgültig abgeschieden. Bei den folgenden Betrachtungen zu den Repulsionskräften besteht die **Arbeitsthese** darin, dass ein **gleichnamiges Zetapotential** eine stärkere **adsorbitive Verbindung** nach dem Erstkontakt **verhindert**. Da keine feste Bindung entstehen und damit das Partikel bei steigenden Strömungskräften wieder leichter abgelöst werden kann, wird der Widerstand im Filter nicht so hoch und der pulsartige Weitertransport der Partikel bei der Porenentleerung [IVES, 1990]

¹⁴ Auch GIMBEL (1982) bemängelt die Diskrepanz zwischen Filtertheorien und den Ergebnissen realer Untersuchungen, die er auf die idealisierten Annahmen bei der theoretischen Behandlung von Transport- und Anlagerungsmechanismen zurückführt.

¹⁵ Selbst glatte Oberflächen weisen Oberflächenrauigkeiten im Nanometerbereich auf. Die Oberflächenrauigkeit wird durch den arithmetischen Mittenrauigkeitswert R_a nach DIN 4768 ermittelt.

verhindert. Eine gleichmäßige Beladung mit guten Reinigungsleistungen, niedrigen Druckverlusten und hoher Ausnutzung der Kapazität ist somit möglich.

4.2.1 Beschreibung der elektrokinetischen Wechselwirkungen bei der Partikelanlagerung an der Filtermitteloberfläche

Beim Zetapotential handelt es sich um einen elektrokinetischen Effekt. Dies bedeutet, dass er im Gegensatz zu den elektrostatischen Wechselwirkungen nur bei einer Relativbewegung von Partikel und Fluid – durch Verschiebung der Ionen in der Hydrathülle, die das Partikel umgibt – entsteht. Wird ein suspendiertes Partikel im Fluidstrom transportiert, so bewirkt diese Hydrathülle, dass er nach außen elektrostatisch neutral wirkt. Da die Filtermittel nicht transportiert werden, führt die Überströmung hier zur Ausbildung eines elektrokinetischen Potentials. Durch die Wirkung der Transportmechanismen gelangt das suspendierte Partikel in die Nähe der Oberfläche. Da die Suspension während der Passage des Filtermittels permanent aus Poren mit einem großen Querschnitt in Poren mit einem kleinen Querschnitt wechselt, verändert sich die Strömungsgeschwindigkeit von Pore zu Pore. In den engen Poren kann es vorübergehend zur Ausbildung zäh-turbulenter Strömungen kommen, während in den großen Poren weiterhin zähe Strömungsbedingungen vorliegen. Durch die plötzliche Vergrößerung der Poren entstehen Bereiche einer deutlich langsameren Durchströmung. In den großen Poren kann es in den Zwickeln unter Umständen zu einem Erliegen der Strömung kommen, es entstehen strömungsarme bis sogar strömungsfreie Bereiche. Die sich ändernden Strömungsbedingungen sorgen für einen Erstkontakt des Partikels mit der Oberfläche. Ein Partikel, das nahe genug an das Filtermittel herankommt, ist neben den Strömungskräften auch den Anziehungskräften des Filtermittels, insbesondere den Van-der-Waals-Kräften, unterworfen. In der Nähe der Filtermitteloberfläche wird das Partikel weitertransportiert bis es so viele Kontaktpunkte mit der Oberfläche hat, dass es durch die Van-der-Waals-Kräfte fest an der Oberfläche adsorbiert wird. Solange das Partikel bereits den Anziehungskräften unterworfen ist aber auch noch durch die Strömungskräfte fortbewegt wird, entsteht eine Reibungskraft, die der Strömungskraft entgegengerichtet ist (Gl. 4-10) und **Abb. 4-8**. Nachdem das Partikel an die Oberfläche des Kollektors antransportiert wurde, findet solange ein weiterer Transport des Partikels in die Zwickel und strömungsarmen Bereiche statt, wie die Strömungskraft größer ist als die durch die Anziehungskräfte verursachte Reibungskraft. Dabei entstehen durch die Oberflächenrauigkeit des Filtermittels auch zahlreiche Kontaktflächen zwischen Partikel und Oberfläche, so dass eine endgültige Abscheidung durch die Van-der-Waals-Kräfte begünstigt wird. Sobald die Anziehungs- bzw. Haftkräfte groß genug sind, bzw. die Kontaktfläche ausreichend

groß ist, wird das Partikel abgeschieden, vgl. [CHANG/HSIEH, 1991], [DERJAGUIN/LANDAU, 1941], [VERWEY/OVERBEEK, 1948].

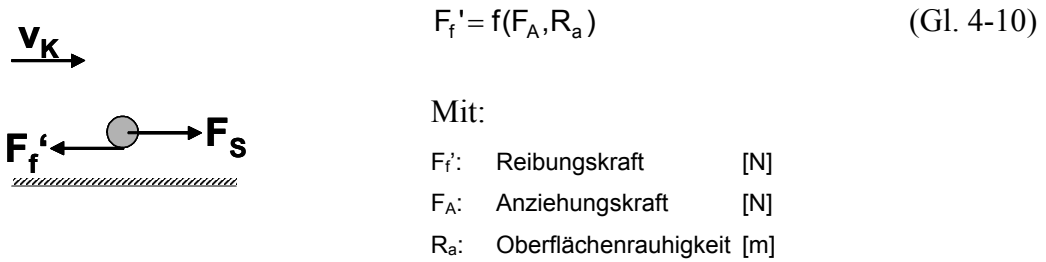


Abb. 4-8: Kräftegleichgewicht im Nahbereich des Filtermittels

In einem Zwickel mit beruhigter Strömung geht die Strömungskraft gegen null, vgl. **Abb. 4-9**, und ein Ablösen des Partikels durch Strömungskräfte sowie dessen Rücktransport in den Fluidstrom sind unwahrscheinlich. Sind die Zwickel der Filterporen bereits mit abgeschiedenen Partikeln gefüllt, so dienen diese – u.a. auch wegen der Erhöhung der Oberflächenrauigkeit – als zusätzliche Kollektoren, vgl. auch [O'MELIA/ALI, 1978]. Diese zusätzlichen Kollektoren weisen natürlich das gleiche Zetapotential auf wie die abzuschheidenden Partikel. Ist die Differenz zwischen den Zetapotentialen des Filtermittels und den suspendierten Partikeln größer als die Differenz des Zetapotentials der suspendierten Partikel untereinander, so sind in diesem Fall die Abstoßungskräfte zwischen ihnen geringer. Handelt es sich um biologische Stoffe, wie z.B. Mikroorganismen, kann sogar ein deutlicher Hafteffekt eintreten, vgl. Fußnote S. 63.

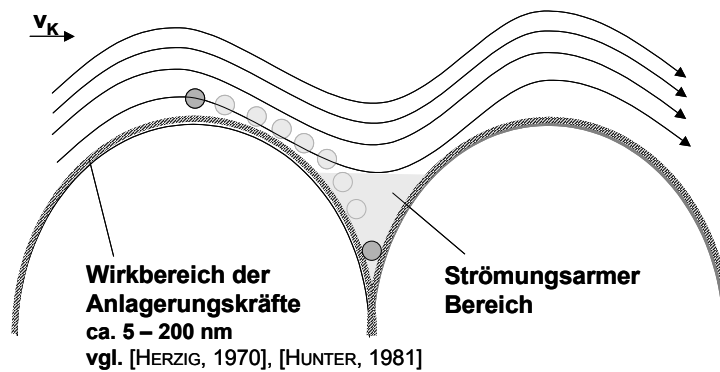


Abb. 4-9: Einlagerung eines Partikels in einen Zwickel des Schüttbetts

Bei der Anlagerung eines suspendierten Partikels im Nahbereich des Filtermittels ($\delta < 0,2 \mu\text{m}$) verlässt dieser seine Bahn, und es tritt eine **Relativgeschwindigkeit zwischen Partikel und Fluid** auf. Die Hydrathülle und mit ihr die diffuse Schicht aus Ionen, die sich um das Partikel herum befindet und die bisher für eine elektrostatisch neutrale Erscheinung gesorgt hat, verschieben sich. Dadurch entsteht an der Grenze zwischen Fluid und dem Partikel in der Scherebene zwischen fes-

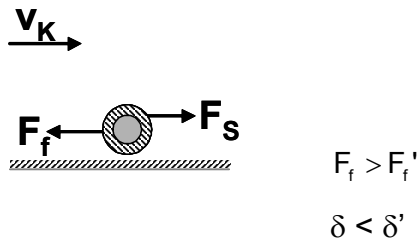
ter und diffuser Schicht eine Potentialdifferenz – das Zetapotential – das die elektrokinetischen Wechselwirkungen widerspiegelt. Die durch die Anziehungskräfte entstehende Reibungskraft verändert sich durch die elektrokinetischen Wechselwirkungen. Es kann eine neue Reibungskraft definiert werden, die zusätzlich zu der aus (Gl. 4-10) vom Zetapotential abhängig ist (Gl. 4-11):

$$F_f = f(F_f', \zeta) \quad (\text{Gl. 4-11})$$

Das Auftreten eines Zetapotentials an dem transportierten Partikel verursacht die folgenden Effekte:

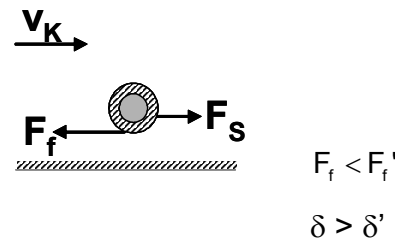
- Die Anziehungskräfte und damit die Reibungskraft werden bei **ungleichnamigem Zetapotential** verstärkt, siehe **Abb. 4-10 A**. Der Abstand δ zwischen Filtermittel und suspendiertem Partikel wird verringert und das Partikel lagert sich schließlich fest an der Oberfläche des Filtermittels an.
- Bei **gleichnamigem Zetapotential** werden die Anziehungskräfte verringert und das Teilchen lässt sich von der Strömungskraft wieder leichter von der Oberfläche des Kollektors ablösen. Der Abstand δ vergrößert sich und der suspendierte Partikel behält eine lockere Bindung zum Filtermittel, adsorbiert jedoch nicht vollständig, siehe **Abb. 4-10 B**.

Ungleichnamiges Zetapotential



A

Gleichnamiges Zetapotential



B

Abb. 4-10: Auswirkung des entstandenen Potentials auf den Anlagerungsmechanismus des suspendierten Partikels, A: Ungleichnamiges Zetapotential, B: Gleichnamiges Zetapotential zwischen Filtermittel und suspendiertem Partikel

Zunächst ergibt sich bei der Anlagerung der Partikel kein deutlich bemerkbarer Unterschied zwischen der Art der Anhaftung, da sich in beiden Fällen das Partikel in der Nähe des Filtermittels befindet und aus der Strömung abgetrennt wird. Auf den bereits angelagerten Partikeln werden weitere Partikel abgelagert. Bei **ungleichnamigen Zetapotentialen** sind die Haftkräfte zwischen Filtermittel und suspendiertem Partikel größer als zwischen den suspendierten

Partikeln selber, da diese eine Gleichnamigkeit untereinander aufweisen. Bei **gleichnamigem Zetapotential** von Filtermittel und suspendierten Partikeln kann eine stärkere Bindung zwischen den suspendierten Partikeln vorliegen, wenn die Differenz zwischen deren Zetapotentialen geringer ist als zwischen Filtermittel und suspendierten Partikeln. Die suspendierten Partikeln werden in diesem Fall stärker von den Repulsionskräften, die zwischen ihnen und dem Filtermittel auftreten, abgestoßen. Sind alle Zwickel der Pore gefüllt, werden die weiteren Partikel innerhalb der Pore im Strömungsquerschnitt angelagert. Die großen Poren sind ungefähr drei Mal größer als die kleinen Poren, und die Strömungsgeschwindigkeit in den kleinen Poren daher etwa 10 Mal größer als die in den großen Poren, vgl. **Tab. 4-2**.

Tab. 4-2: Übersicht Strömungsgeschwindigkeit in den kleinen und großen Poren des Schüttbetts bei hexagonaler bzw. rhombohedraler Packung

	Hexagonale Packung	Rhombohedrale Packung
Verhältnis der Kapillaren	$\frac{D_{Kg}}{D_{Kk}} = 2,67$	
Verhältnis Kapillargeschwindigkeit	$v_{Kk} = 7,1 \cdot v_{Kg} \Rightarrow v_{Kk} \approx 10 \cdot v_{Kg}$	
Porosität ε_{FM}	0,4	0,25
Mittlere Kapillargeschwindigkeit v_K	$v_K = 5 \cdot v$	$v_K = 8 \cdot v$
Anteil kleine Poren	25 %	50 %
Kapillargeschwindigkeit große Poren v_{Kg}	$v_K = 0,25 \cdot v_{Kk} + 0,75 \cdot v_{Kg}$ $v_K = 5 \cdot v = 10 \cdot 0,25 \cdot v_{Kk} + 0,75 \cdot v_{Kg}$ $\Rightarrow v_{Kg} = \underline{\underline{1,54 \cdot v}}$	$v_K = 0,5 \cdot v_{Kk} + 0,5 \cdot v_{Kg}$ $v_K = 8 \cdot v = 10 \cdot 0,5 \cdot v_{Kk} + 0,5 \cdot v_{Kg}$ $\Rightarrow v_{Kg} = \underline{\underline{1,46 \cdot v}}$

Daher werden während des Filtrationsprozesses zunächst die großen Poren befüllt, bis deren Strömungsdurchmesser dem der kleinen Poren entspricht (vgl. **Abb. 4-11**) und es keine Geschwindigkeitsschwankungen mehr im Filter gibt, die einen Antransport verursachen können. Werden nun weitere Partikel im Strömungsquerschnitt abgelagert, so verringert sich der Porendurchmesser durch die anhaftenden Partikel weiter, und es treten lokal höhere Strömungsgeschwindigkeiten auf. Die Scherspannungen sind am Rande der Kapillare am größten (**Abb. 4-12**), so dass ein abgeschiedenes Partikel durch die auftretenden Querkräfte wieder abgerissen und weiter durch das Schüttbett transportiert wird, bis eine erneute Anlagerung erfolgt. In

diesem Beladungszustand des Schüttbetts ist die Geometrie der Kapillaren hinsichtlich ihres Durchmessers gleichförmiger. Aufgrund der auftretenden Scherspannung, vgl. [BAUCKHAGE 1977], ist erneut zu diskutieren, inwieweit es bei diesen Bedingungen zur Ausbildung von Entmischungserscheinungen, wie sie in Rohren und Kapillaren zu beobachten sind, kommen kann. Eine vollständige Ausbildung des Konzentrationsprofils in geraden Kapillaren bei laminarer Entmischung (s. Abb. 4-12) wird sich jedoch wegen der häufigen Umlenkungen und der instationäre Strömung in dem porösen Schüttbett nicht ausbilden. Außerdem behindern sich die Partikel bei höheren Partikelkonzentrationen gegenseitig während des Rücktransportes in die Kernströmung [BAUCKHAGE, 1975], [JONES/WEINBERGER, 1997], so dass eine Abscheidung von Partikeln erfolgt. Unter **Berücksichtigung der elektrokinetischen Abstoßung** kann aber die **auf die Partikel wirkende Querkraft**, die sich in Teilbereichen des Schüttbetts durch die auftretenden Scherspannungen ausbildet, verstärkt werden.

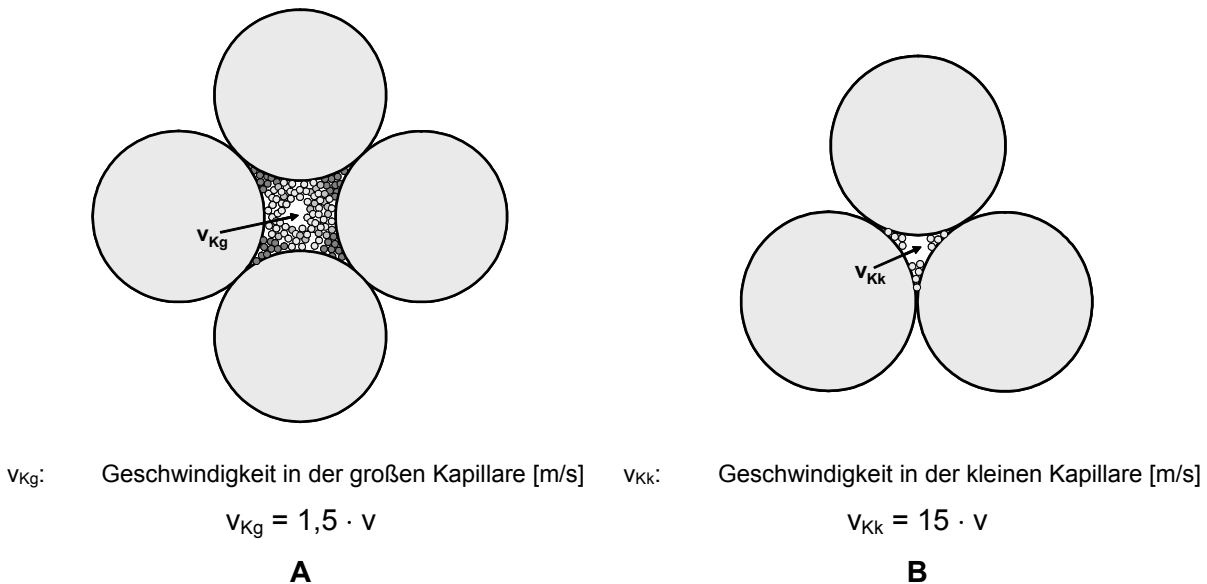


Abb. 4-11: Befüllung der Porenzwickel, dunkelgrau: zu Beginn abgelagerte Partikel, hellgrau später abgelagerte Partikel

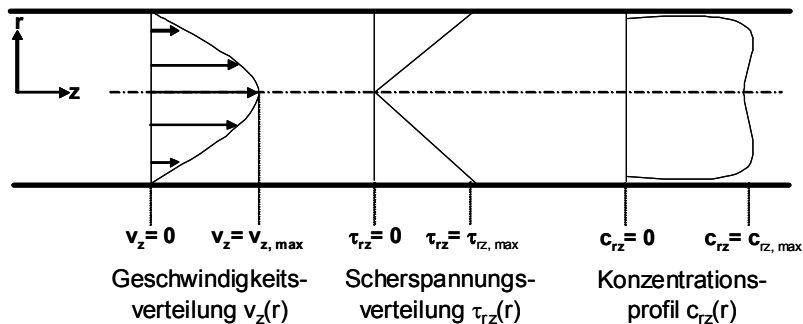


Abb. 4-12: Geschwindigkeits- und Scherspannungsverlauf sowie Konzentrationsprofil in einer geraden Kapillare

Adsorbieren die suspendierten Partikel fest an dem Filtermittel (bei ungleichnamigen Zetapotential) so kann die gesamte Pore verblocken, bis die Querkraft groß genug ist, um die Partikel weiterzutransportieren. Wenn sich die suspendierten Partikel früher voneinander als vom Filtermittel lösen, kann die gesamte abgelagerte Schicht – ohne die Randschicht – aus der Pore gelöst werden und wieder in den Fluidstrom gelangen. Dies entspricht den von Ives beobachteten pulsartigen Partikeltransporten. Bei einem gleichnamigen Zetapotential ist die Haftkraft nicht so groß bzw. die Reibungskraft verringert und ein Abtransport kann früher stattfinden. Der Abtransport erfolgt, bevor die Pore vollständig verblockt ist. Die Partikel neigen untereinander außerdem eher dazu, aneinander zu haften, so dass auch kleinere Agglomerate von Partikeln weitertransportiert werden können. Die Beladung des Schüttbetts erfolgt bei diesen Bedingungen gleichförmiger, und in den Sammelporen treten daher keine großen Druckdifferenzen auf, die zu einer Ablösung der abgeschiedenen Partikel führen könnten. Eine Erschütterung des Schüttbetts durch größere Mengen sich ablösender Partikel wird damit verhindert. Durch die lockere Verbindung von Filtermittel und suspendiertem Partikel ist eine Regeneration des Filtermittels leichter möglich.

4.2.2 Wirksamkeit des Zetapotentials als Anlagerungsmechanismus

Die Überprüfung des aufgestellten Modells der Partikelabscheidung erfolgt durch die Berechnung der am Partikel wirksamen Kräfte. Liegen die am Partikel wirkenden Quer-, Anziehungs- und Abstoßungskräfte in der gleichen Größenordnung vor, so beeinflussen sie sich gegenseitig und haben Einfluss auf die Art und Weise der Partikelabscheidung bzw. deren Transport durch den Filter. Die Querkraft kann dabei über die Definition der Scherspannung berechnet werden (Gl. 4-12), ist aber auch eine Funktion des Druckverlustes in der Kapillaren [BIRD ET.AL., 2002] und gibt damit die Strömungsverhältnisse im Filter wieder.

$$\tau = \frac{F_{S_z}}{A} = \eta_L \cdot \left(\frac{dv_z}{dr} \right)_s \quad (\text{Gl. 4-12})$$

Mit:

τ :	Scherspannung	[N/m ²]	F_{S_z} :	Querkraft in z-Richtung	[N]
A:	Kontaktfläche	[m ²]	η_L :	dynamische Viskosität der Flüssigkeit	[Pa · s]
v_z :	Geschwindigkeit in z-Richtung	[m/s]	r:	Abstand Partikel – Kapillarwand	[m]

Die auf das Partikel wirkenden Anziehungskräfte werden nach VERWEY und OVERBEEK (1958) anhand von (Gl.4-13) berechnet. Sie entstehend überwiegend aus den Van-der-Waals-Kräften.

$$F_A = \frac{k_H \cdot D_S}{12 \cdot \delta^2} \quad (\text{Gl. 4-13})$$

Mit:

F_A :	Abziehungskraft	[N]	k_H :	Hamaker-Konstante	[J]
D_S :	Durchmesser des Partikels	[m]	δ :	Abstand	[m]

Die Bestimmung der Repulsionskräfte, mit denen die elektrokinetischen Wechselwirkungen wiedergegeben werden, erfolgt analog zu Abschnitt 4.1.2. Dazu wird, wie in **Abb. 4-13** gezeigt, ein Ausschnitt von Filtermittel- und Partikeloberfläche betrachtet. Kommt ein Partikel nahe genug an die Oberfläche heran, dass die elektrokinetischen Repulsionskräfte es von der Oberfläche abstoßen können, so wird vereinfacht angenommen, dass je ein Kontaktpunkt am Filtermittel und am suspendierten Partikel miteinander in Wechselwirkung treten. Da die Ladungsdichte der beiden miteinander in Wechselwirkungen stehenden Partikel ebenso wenig wie die Oberflächenladung bzw. das Oberflächenpotential bekannt ist, wird angenommen, dass sich am Ende der gedachten Verbindungslinie Punktladungen befinden.

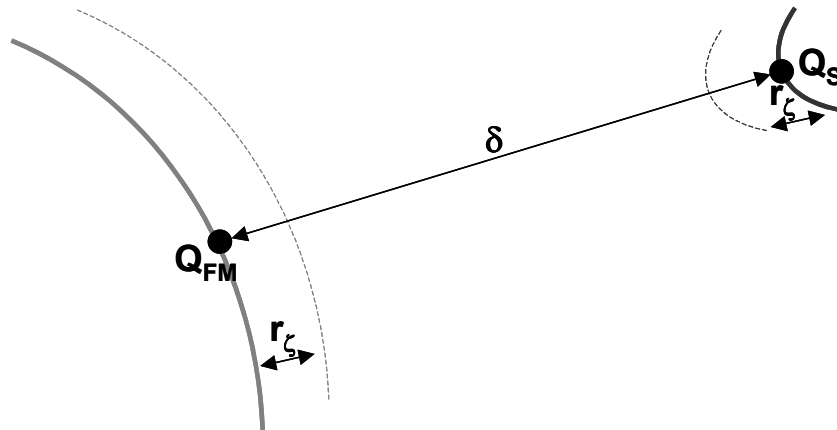


Abb. 4-13: Ausschnitt der beiden Oberflächen von Filtermittel und suspendiertem Partikel mit den auf zwei Punkte reduzierten örtlichen Punktladungen

Die Betrachtung zeigt, dass die durch die Strömung verursachte Querkraft bei höheren Strömungsgeschwindigkeiten größer ist als die durch die Van-der-Waals-Kräfte verursachte Anziehungskraft, vgl. **Tab. 4-3**. Die Partikel können demnach nur bei geringen Strömungsgeschwindigkeiten mit den Van-der-Waals-Kräften aus dem Fluid entfernt werden. Wird zusätzlich eine Abstoßungskraft auf Grundlage der elektrokinetischen Wechselwirkungen betrachtet, so zeigt sich, dass die Kräfte in Richtung der Querkraft bei der langsamen Durchströmung um 10 % erhöht werden und so eine Ablösung bereits bei geringen Strömungsgeschwindigkeiten stattfinden kann.

Tab. 4-3: Ergebnisse der Berechnung von Querkraft und Anziehungskraft für verschiedene Größen der suspendierten Partikel und Filtergeschwindigkeiten¹⁶

Querkraft F_{Sz} [N]		
Filtergeschwindigkeit [m/s]	$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-3}$
Partikelgröße D_s [μm]		
5	$2,0 \cdot 10^{-11}$	$2,0 \cdot 10^{-9}$
10	$7,9 \cdot 10^{-11}$	$7,9 \cdot 10^{-9}$

Anziehungskraft F_A [N]	
5	$1,7 \cdot 10^{-10}$
10	$3,3 \cdot 10^{-10}$

Repulsionskraft F_R [N]		
ζ_s/ζ_{FM}	0,1	1
	$2,2 \cdot 10^{-12}$	$2,2 \cdot 10^{-13}$

Da die Partikel nicht direkt an der Oberfläche adsorbieren, sondern nur eine lose Verbindung zwischen suspendiertem Partikel und Filtermittel besteht, können die suspendierten Partikel bei steigender Strömungsgeschwindigkeit ohne Druckanstieg mit der Strömung in die nächste freie Pore abtransportiert werden. Extreme Erhöhungen der Strömungsgeschwindigkeit werden durch die frühzeitige Ablösung verhindert. Die Füllung der Poren erfolgt daher in zwei Stufen:

1. Gleichmäßige Füllung aller Porenzwickel mit suspendierten Partikeln, solange die Haftkräfte durch die Schicht der abgeschiedenen Partikel wirksam sind.
2. Füllung der verbliebenen Hohlräume der Poren.

¹⁶ Die Bedingungen für die Berechnung lauten: der halbe Querschnitt des Partikels ist der Strömung ausgesetzt

$A = \frac{1}{2} \cdot \frac{\pi}{4} \cdot D_s^2$, $\delta = 5 \cdot 10^{-9}$ m, $k_H = 10^{-20}$ J (nach [WEIGL, 2004], [HERZIG ET.AL., 1970]).

Bei beiden Schritten werden zunächst die großen Poren und danach die kleineren Poren gefüllt. Sind alle Poren des Schüttbetts befüllt, so kommt es zu einem Durchbrechen der Trübe in das Filtrat. Daher bleibt in diesem **elektrokinetisch optimiertem Schüttbett** die Druckdifferenz geringer und die Partikel verteilen sich gleichmäßiger im Filter, was zu einer **besseren Ausnutzung Porosität** des Schüttbetts führt.

Die obigen Betrachtungen bilden die realen Vorgänge im Filter nicht vollständig ab. Aufgrund der komplexen Wechselwirkungen zwischen Filtermitteln und suspendierten Partikeln in dem Filter ist eine vertiefende theoretische Betrachtung weder möglich noch sinnvoll. Eine detaillierte Darstellung ist nach der Verifizierung des Ansatzes mit Ergebnissen aus Filtrationsuntersuchungen vorzunehmen. Die experimentellen Ergebnisse werden eine Ergänzung für die theoretische Beschreibung liefern. Da die systembeschreibende Gleichung nicht ermittelt werden kann, werden im nächsten Abschnitt zunächst die Abhängigkeiten der zusätzlich bei diesem Filtrationsprinzip betrachteten Größen anhand einer Dimensionsanalyse näher betrachtet.

4.3 Definition neuer dimensionsloser Kennzahlen

Aus den Abbildungen 4-1 und 4-2 ergibt sich, dass neben den bekannten und in den konventionellen Filtergleichungen berücksichtigten Parametern Druckverlust, Fluidströmung, -dichte und -viskosität sowie den geometrischen Schüttbeteigenschaften wie Partikelgröße, Porenlänge und Porosität auch das Zetapotential von Filtermittel und suspendiertem Partikel sowie der Durchmesser des abzutrennenden Partikels berücksichtigt werden sollten. Da die systembeschreibende Gleichung hier nicht bekannt ist, erfolgt die Erweiterung der Dimensionsanalyse entsprechend des Π -Theorems¹⁷ [PAWLOWSKI, 1971]. Hierdurch sollen die verschiedenen Abhängigkeiten im Filter auf Grundlage der vorgestellten theoretischen Vorstellungen mathematisch formuliert werden. Die Einbindung weiterer Einflussfaktoren führt zu Bildung neuer systembeschreibender Kennzahlen, die den Filtrationsmechanismus detaillierter beschreiben. Sie sollen das Ermitteln der notwendigen Filtermittelgröße bei gegebenem suspen-

¹⁷ Das Π -Theorem nach Buckingham ist die Grundlage aller Ähnlichkeitstheoretischen Methoden und besagt, dass grundsätzlich alle physikalischen Gesetzmäßigkeiten durch mathematische Beziehungen zueinander darstellbar sind. Diese Darstellung erfolgt mit Hilfe dimensionsloser Π -Größen, die ihre Bedeutung insbesondere bei der Maßstabsübertragung haben.

diertem Partikel (Durchmesser und Zetapotential) ermöglichen, so dass für die verschiedenen Filtrationsaufgaben das passende Filtermittel ausgewählt werden kann.

4.3.1 Erweiterung der Dimensionsanalyse

Wie bereits im Kapitel 2 diskutiert wurde, werden bei der konventionellen Beschreibung einer Filtration mittels Dimensionsanalyse die Größen Druckverlust, Strömungsgeschwindigkeit, Partikelgröße, Kapillarlänge, Dichte und Viskosität des Mediums sowie die Porosität des Filtermittels betrachtet, vgl. (Gl. 2-2) bis (Gl. 2-5). Für die Durchführung der Dimensionsanalyse werden diese Größen mit kleinen Änderungen übernommen. Da bei einer Schüttung aus gleich großen Kugeln Porosität und Kapillargeometrie bereits durch den Kugeldurchmesser festgelegt sind, entfallen diese beiden Größen. Anstelle der Fließgeschwindigkeit des Mediums in den Kapillaren, die in einem Tiefenfilter mit porösem Schüttbett nicht gemessen, sondern lediglich über die Porosität abgeschätzt werden kann, wird die Filtergeschwindigkeit v (Fließgeschwindigkeit der Trübe im Filterapparat, Leerrohrgeschwindigkeit) verwendet. Als zusätzliche Zielgrößen werden neben diesen Prozessvariablen der Durchmesser des suspendierten Partikels D_S und die Zetapotentiale von Filtermittel ζ_{FM} und suspendiertem Partikel ζ_S berücksichtigt. Deren Beschreibung und Abhängigkeiten werden daneben noch um die Leitfähigkeit der Trübe σ_L ergänzt. Die Leitfähigkeit der Trübe wird deshalb in die Betrachtungen mit eingezogen, da in der Literatur häufiger die Abhängigkeit des Zetapotential von der Ionenstärke bzw. Leitfähigkeit des Elektrolyten diskutiert wird [VERWEY/OVERBEEK, 1948], [ELIMELECH ET.AL., 2000], [CHANG/VIGNESWARAN, 1990]. Da aber aus messtechnischen Gründen das Zetapotential nicht mit starken Elektrolyten ermittelt werden kann, wird eine entsprechende Korrektur des Modells durch Einbeziehen der Leitfähigkeit der Trübe vorgenommen. Der Dichteunterschied zwischen mikrobiellen suspendierten Partikeln und der wässrigen Lösung ist vernachlässigbar, weshalb angenommen wird, dass keine Schwerkraftabscheidung vorherrscht, und die Erdbeschleunigung g wird als Einflussgröße nicht betrachtet. Die Bestimmungsgleichung lautet entsprechend:

$$f(\Delta p, v, \rho_F, \eta_L, \sigma_L, D_{FM}, D_S, \zeta_{FM}, \zeta_S) = 0 \quad (\text{Gl. 4-14})$$

Mit den relevanten Größen:

Δp : Druckdifferenz	[Pa] = [kg/s ² ·m]	v : Filtergeschwindigkeit	[m/s]
ρ_F : Dichte des Mediums	[kg/m ³]	η_L : Dynamische Viskosität	[Pa·s] = [kg/m]
σ_L : Leitfähigkeit des Fluids	[S/m] = [A ² ·s ³ /kg·m ³]	D_{FM} : Filtermitteldurchmesser	[m]
D_S : Durchmesser des Partikels	[m]	ζ_{FM} : Zetapotential des Filtermittels	[V] = [kg·m ² /s ³ ·A]
ζ_S : Zetapotential des Partikels	[V] = [kg·m ² /s ³ ·A]		

Aus dieser Relevanzliste mit $n = 9$ Größen ergibt sich mit den vorgegebenen vier Dimensionen (Länge, Zeit, Masse, Stromstärke) eine Matrix mit $q = 4$ für die Wahlgrößen. Gewählt werden hier der Druckverlust im Filter, die Filtergeschwindigkeit, der Filtermitteldurchmesser und das Zetapotential des Filtermittels. Die Bezugsgrößen lauten entsprechend Durchmesser und Zetapotential des suspendierten Partikels sowie Dichte, dynamische Viskosität und Leitfähigkeit der Trübe. Mit dem Rang $q = 4$ der Kernmatrix der Wahlgrößen und den relevanten Größen $n = 9$ sind gemäß $m = n - q$ fünf linearunabhängige Kennzahlen zu bestimmen.

Das Π -Theorem lautet allgemein:

$$\Pi_j = x_j \cdot \prod_i x_i^{-p_{ij}} \quad (\text{Gl. 4-15})$$

bzw. entsprechend (Gl. 2-13) auf das vorliegende Problem angewendet:

$$\Pi_j = D_{FM}^{x_{1j}} \cdot v^{x_{2j}} \cdot \Delta p^{x_{3j}} \cdot \zeta_{FM}^{x_{4j}} \cdot D_S^{x_{5j}} \cdot \zeta_S^{x_{6j}} \cdot \rho_F^{x_{7j}} \cdot \eta_F^{x_{8j}} \cdot \sigma_L^{x_{9j}} \quad (\text{Gl. 4-16})$$

Daraus ergibt sich durch Kombination der Relevanzliste und dem Dimensionssystem (L, T, M, I) folgende Dimensionsmatrix:

	D_{FM}	v	Δp	ζ_{FM}	D_S	ζ_S	ρ_F	η_F	σ_L
L:	1	1	-1	2	1	2	-3	-1	-3
T:	0	-1	-2	-3	0	-3	0	-1	3
M:	0	0	1	1	0	1	1	1	-1
I:	0	0	0	-1	0	-1	0	0	2

(Gl. 4-17)

Durch Anwenden des Gauß Algorithmus zur Erzeugung einer Einheitsmatrix in der Kernmatrix kann das Gleichungssystem gelöst werden:

	D_{FM}	v	Δp	ζ_{FM}	D_S	ζ_S	ρ_F	η_F	σ_L
L:	1	0	0	0	1	0	0	1	1
T:	0	1	0	0	0	0	-2	-1	1
M:	0	0	1	0	0	0	1	1	1
I:	0	0	0	1	0	1	0	0	-2

(Gl. 4-18)

Mit (Gl. 4-15) können die korrespondierenden Π -Größen, vgl. (Gl. 4-23) bis (Gl. 4-19), ermittelt werden.

$$\Pi_I = \frac{D_S}{D_{FM}} \quad (\text{Gl. 4-19})$$

$$\Pi_{II} = \frac{\zeta_S}{\zeta_{FM}} \quad (\text{Gl. 4-20})$$

$$\Pi_{III} = \frac{\rho_L \cdot v^2}{\Delta p} = \frac{1}{Eu} \quad (\text{Gl. 4-21})$$

$$\Pi_{IV} = \frac{v \cdot \eta_L}{D_{FM} \cdot \Delta p} \quad (\text{Gl. 4-22})$$

$$\Pi_V = \frac{\zeta_{FM}^2 \cdot \sigma_L}{D_{FM} \cdot \Delta p \cdot v} \quad (\text{Gl. 4-23})$$

Durch Multiplikation von Π_{III} mit (-1) ergibt sich die Eulerzahl. Wird Π_{IV} (Gl. 4-22) durch Π_{III} (Gl. 4-21) dividiert und anschließend mit (-1) multipliziert, so ergibt sich eine weitere für die Filtration bekannte Kennzahl, die Reynoldszahl, vgl. (Gl. 4-27). Da die Kennzahl zur Beschreibung des Filters unter Berücksichtigung des elektrokinetischen Potentials sowohl Filtermittel als auch suspendiertes Partikel berücksichtigen sollte, werden abschließend die Kennzahlen Π_{II} (Gl. 4-20) und Π_V (Gl. 4-23) miteinander multipliziert und auf diese Weise eine elektrokinetische Filtrationskennzahl gebildet, siehe (Gl. 4-28). Der vollständige Kennzahlensatz, der die Filtration bei Berücksichtigung der Durchmesser von Filtermittel und suspendiertem Partikel sowie deren Zetapotential beschreibt, lautet nun (Gl. 4-24) bis (Gl. 4-28):

$$\Pi_1 = \frac{D_S}{D_{FM}} \quad \text{Dimensionslose Geometrie Kennzahl} \quad (\text{Gl. 4-24})$$

$$\Pi_2 = \frac{\zeta_S}{\zeta_{FM}} \quad \text{Dimensionsloses Zetapotential} \quad (\text{Gl. 4-25})$$

$$\Pi_3 = \frac{\Delta p}{\rho_L \cdot v^2} = Eu \quad \text{Eulerzahl} \quad (\text{Gl. 4-26})$$

$$\Pi_4 = \frac{v \cdot D_{FM} \cdot \rho_L}{\eta_L} = Re \quad \text{Reynoldszahl}^{18} \quad (\text{Gl. 4-27})$$

$$\Pi_5 = \frac{\zeta_{FM} \cdot \zeta_S \cdot \sigma_L}{D_{FM} \cdot \Delta p \cdot v} \quad \text{Elektrokinetische Filtrationskennzahl (EFK)} \quad (\text{Gl. 4-28})$$

¹⁸ Variationen der Reynoldszahl für verschiedene Strömungsbedingungen und -zustände werden u.a. auch von [IVES, 1975] diskutiert.

4.3.2 Diskussion der erhaltenen Kennzahlen

Die Kennzahlen Π_1 (Geometriefaktor) und Π_2 (dimensionsloses Zetapotential) dienen zur Beschreibung des Gültigkeitsbereiches des Filtrationsprinzips. Der Geometriefaktor Π_1 spiegelt die physikalisch-geometrischen Voraussetzungen wieder. Wie bereits in (Gl. 4-2) gezeigt wurde, muss $\Pi_1 < 0,155$ sein, damit eine **Tiefenfiltration** möglich ist. Aufgrund der grundsätzlichen Annahme, dass die Filtration auf **elektrokinetischer Repulsion** beruht, muss $\Pi_2 > 0$ sein. Bei einem negativen Wert von Π_2 ist eine Filtration, die durch Abstoßungskräfte unterstützt wird, nicht möglich. $\Pi_2 = 1$ entspricht einem gleich großen Zetapotential von Filtermittel und suspendiertem Partikel, $\Pi_2 \neq 1$ zeigt an, dass die Beträge des Zetapotentials zwischen den beiden Partikel unterschiedlich sind. Entsprechend können mit Π_2 die Voraussetzungen für den Einsatz des Filtrationsprinzips überprüft werden.

Von den drei weiteren Kennzahlen werden zunächst die beiden bekannten Kennzahlen nach Reynolds und Euler betrachtet. Diese beiden Kennzahlen dienen zur Darstellung der Druckcharakteristik in einem Filter [PAWLOWSKI, 1971]. Dabei beschreibt die Reynoldszahl durch Kombination von Trägheits- und Reibungskraft das Strömungsprofil im Filter. In Filtern herrschen bei zäh-turbulenter Durchströmung Reynoldszahlen im Bereich $1 < Re < 10^2$ [STIEB, 1997] und bei zäher Durchströmung im Bereich $1 \cdot 10^{-3} < Re < 1$ [BIRD ET.AL., 2002]. Die Eulerzahl dient durch die Darstellung von Druck- und Trägheitskraft allgemein zur Beschreibung der Rohrrauigkeit und bei Schüttungen zur Beschreibung des Durchströmungswiderstandes. Für Schüttungen existieren verschiedene empirische Ansätze zur Ermittlung der Widerstandszahl¹⁹. Bei Reynoldszahlen $Re > 100$ ist der Widerstandsbeiwert nahezu unabhängig von der Reynoldszahl und liegt im Bereich von 1 bis 10, was Eulerzahlen zwischen $1 \cdot 10^5$ und $1 \cdot 10^6$ entspricht. Für niedrigere Reynoldszahlen nimmt der Widerstand deutlich zu und kann Werte um $Eu > 1 \cdot 10^8$ deutlich übersteigen.

Die konventionellen Reynolds- und Eulerzahl beschreiben Strömungsvorgänge in Rohren oder auch Kapillaren, wie sie beispielsweise auch bei der Modellierung von Strömungsvor-

¹⁹ In der deutschsprachigen Literatur wird anstelle der Eulerzahl (Eu) der Rohrreibungskoeffizient λ verwendet. Der Rohrreibungskoeffizient wird durch empirische Gleichungen ermittelt. Für einige dieser Gleichungen s. [BIRD ET.AL., 2002], [BEITZ/GROTE, 2001]. Der Zusammenhang zwischen Rohrreibungskoeffizient und Eulerzahl lautet: $\lambda = \frac{D_K}{L} \cdot Eu$.

gängen in Oberflächenfiltern vorliegen. In der durchgeführten Dimensionsanalyse wurden diese beiden Kennzahlen zur Beschreibung einer Tiefenfiltration mit der Filtergeschwindigkeit ermittelt, die niedriger ist als die Kapillargeschwindigkeit eines Filters. Bei der Diskussion der beiden Kennzahlen für verschiedene Variationen der Filtrationsparameter wird nachfolgend der Unterschied der Verläufe bei Oberflächen- und Tiefenfiltration berücksichtigt. In den Abbildungen **Abb. 4-14** (oben) und **Abb. 4-15** (oben) sind Reynolds- und Eulerzahl für einen Oberflächenfilter mit folgenden Bedingungen bei verschiedenen Filtergeschwindigkeiten aufgetragen:

- Der mittlere Durchmesser der Kapillaren bei der Berechnung der Reynoldszahl entspricht $D_K = 0,155 \cdot D_{FM}$,
- Die Fließgeschwindigkeit in den Kapillaren beträgt das Fünffache der Filtergeschwindigkeit $v_K = 5 \cdot v$, u.a. auch [IVES, 1975]. Hierfür wird angenommen, dass 50 % der Porosität des Filtermittels zum Durchströmen genutzt werden kann. Es wird eine hexagonale Packung angenommen, die Porosität beträgt entsprechend $\varepsilon_{FM} = 0,391$.
- Dichte und dynamische Viskosität des Mediums entsprechen Wasser bei Standardbedingungen.

Bei diesen Bedingungen liegt die Reynoldszahl bei Filtergeschwindigkeiten um $v < 1 \cdot 10^{-4}$ m/s unter $Re = 0,5$. Bei steigenden Fließgeschwindigkeiten steigt die Reynoldszahl auf über $Re = 1$ an, womit die Strömung vom zähen Bereich in den zäh-turbulenten Strömungsbereich übergeht, vgl. auch [BIRD ET.AL., 2002]. Auch mit größeren Kapillardurchmessern nimmt die Reynoldszahl höhere Werte an. Die Eulerzahl hingegen sinkt mit steigenden Filtergeschwindigkeiten und mit abnehmendem Druck. Die **Abb. 4-14** (unten) und **Abb. 4-15** (unten) zeigen Werte der Reynolds- und Eulerzahl über die Filtergeschwindigkeit bei Durchströmung einer Partikelschüttung in einem Tiefenfilter. Die Reynoldszahl Re nimmt in diesem Fall bei Filtergeschwindigkeiten um $v < 1 \cdot 10^{-4}$ m/s Werte deutlich unter $Re = 1 \cdot 10^{-3}$ an. Mit zunehmenden Filtergeschwindigkeiten steigen die Beträge der Reynoldszahl bis in den Bereich $Re = 0,1$ an. Die Eulerzahl Eu nimmt insgesamt höhere Werte an als bei der Betrachtung der reinen Strömung durch Kapillaren.

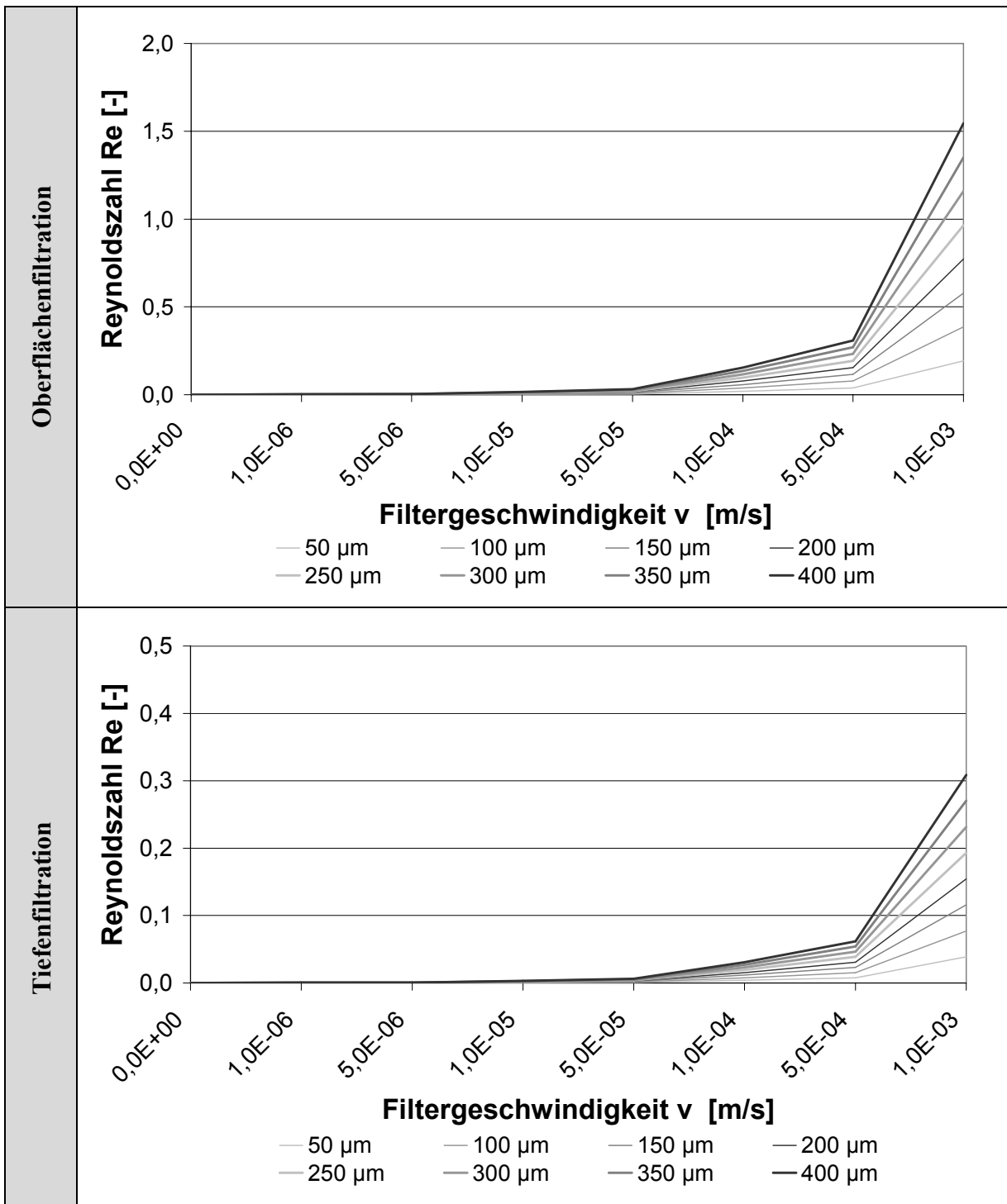


Abb. 4-14: Verlauf der Reynoldszahl bei Variation der Filtergeschwindigkeit bei Durchströmung einer Kapillaren (Oberflächenfiltration) und einer Filtermittelschüttung (Tiefenfiltration)

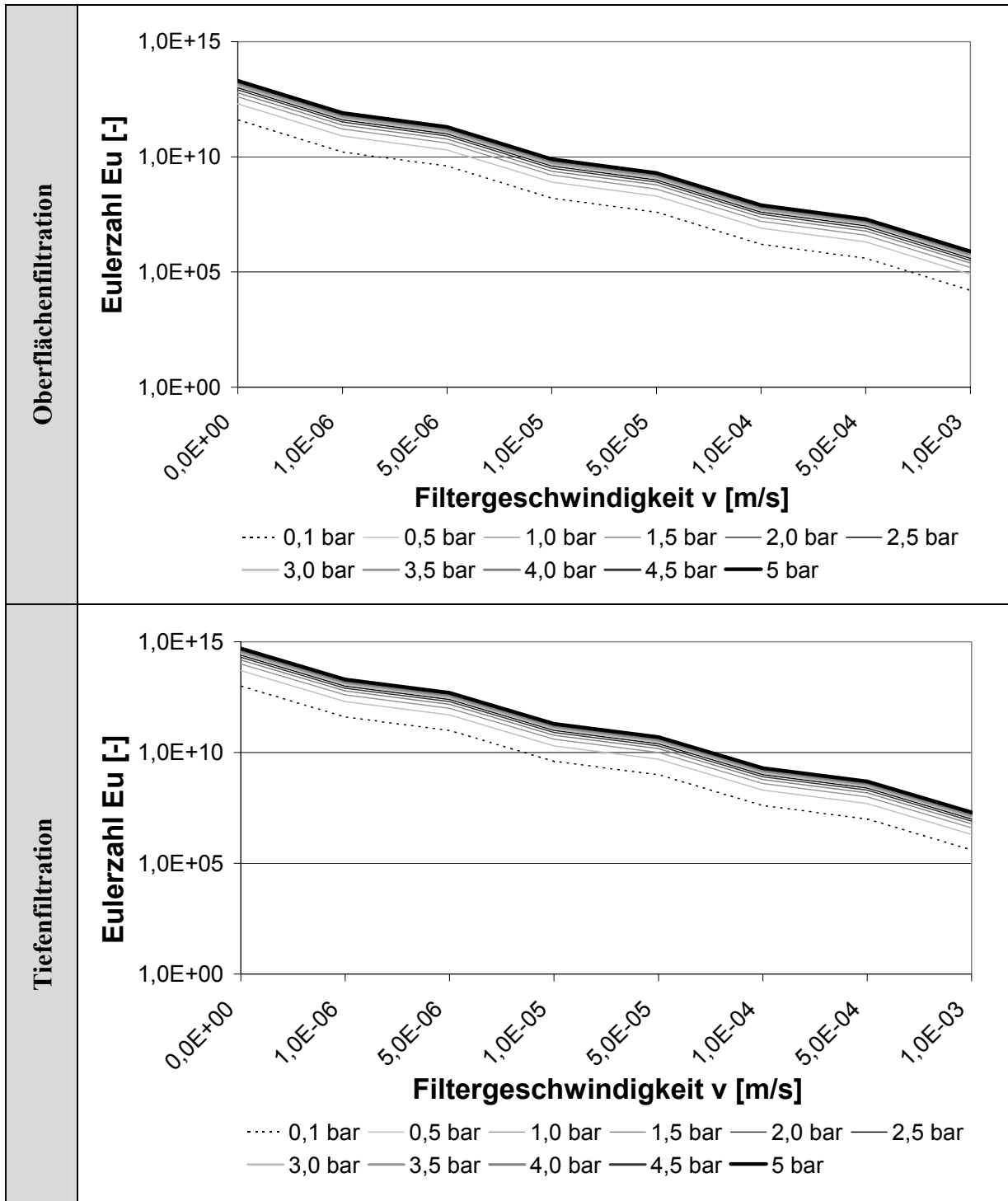


Abb. 4-15: Verlauf der Eulerzahl bei Variation der Filtergeschwindigkeit bei Durchströmung einer Kapillaren (Oberflächenfiltration) und einer Filtermittelschüttung (Tiefenfiltration)

Neben den konventionellen dimensionslosen Filterkennzahlen soll die neue elektrokinetische Filtrationskennzahl betrachtet werden. Die Bedingungen lauten hier (soweit in den Abbildungen nicht anders angegeben) zusätzlich:

- Druckverlust im Filter $\Delta p = 0,5$ bar,
- Leitfähigkeit der Trübe $\sigma_L = 0,5$ S/m,
- Durchmesser des Filtermittels $D_{FM} = 250$ μm .

Die Kennzahl wird bei gleichem Zetapotential von Filtermittel und suspendiertem Partikel betrachtet, d.h. $\zeta_S/\zeta_{FM} = 1$, wobei das Zetapotential $\zeta_{FM} = -10$ mV beträgt, **Abb. 4-16**, sowie bei unterschiedlichen Zetapotentialen desselben Vorzeichens $\zeta_S/\zeta_{FM} = 10$ und $\zeta_S/\zeta_{FM} = 0,1$. Die Ergebnisse sind hier entsprechend der Definition der elektrokinetischen Filtrationskennzahl (Gl. 4-28) identisch. Das Zetapotential des Filtermittels beträgt bei dieser Berechnung $\zeta_{FM} = -50$ mV und das des suspendierten Partikels $\zeta_S = -5$ mV (**Abb. 4-17**). Die elektrokinetische Filtrationskennzahl nimmt bei niedrigen Filtergeschwindigkeiten $v < 1 \cdot 10^{-4}$ m/s, kleinen Druckdifferenzen und kleinen Filtermitteldurchmessern Werte an, die deutlich über $EFK > 10$ liegen. Diese Kennzahl steigt auch, je stärker $\zeta_S/\zeta_{FM} \neq 1$ ist. Näherungsweise verdoppelt sich der Betrag der elektrokinetischen Filtrationskennzahl bei gleichem Vorzeichen bei einem Unterschied zwischen den beiden Zetapotentialen von Faktor 10. Die Abhängigkeit der elektrokinetischen Filtrationskennzahl von der Differenz der Zetapotentiale von Filtermittel und suspendiertem Partikel ist bei unterschiedlichen Filtermittelgrößen wesentlich ausgeprägter als bei der Variation des Druckes.

Bei den bisherigen Betrachtungen wurde eine konstante Leitfähigkeit der Trübe angenommen. Die **Abb. 4-18** zeigt eine Darstellung der dimensionslosen elektrokinetischen Filterkennzahl in Abhängigkeit des Zetapotentials des Filtermittels bei verschiedenen Filtermittelgrößen und bei zwei verschiedenen Leitfähigkeiten (Teilabbildungen A und B). Dabei ist zu erkennen, dass die elektrokinetische Filtrationskennzahl aufgrund der linearen Abhängigkeit von der Leitfähigkeit bei einer höheren Leitfähigkeit deutlich größere Werte annimmt als bei geringen Leitfähigkeiten der Trübe. Die Bedingungen für diese Berechnung lauten:

- Fließgeschwindigkeit $v = 1 \cdot 10^{-4}$ m/s,
- Druckverlust im Filter $\Delta p = 0,5$ bar.

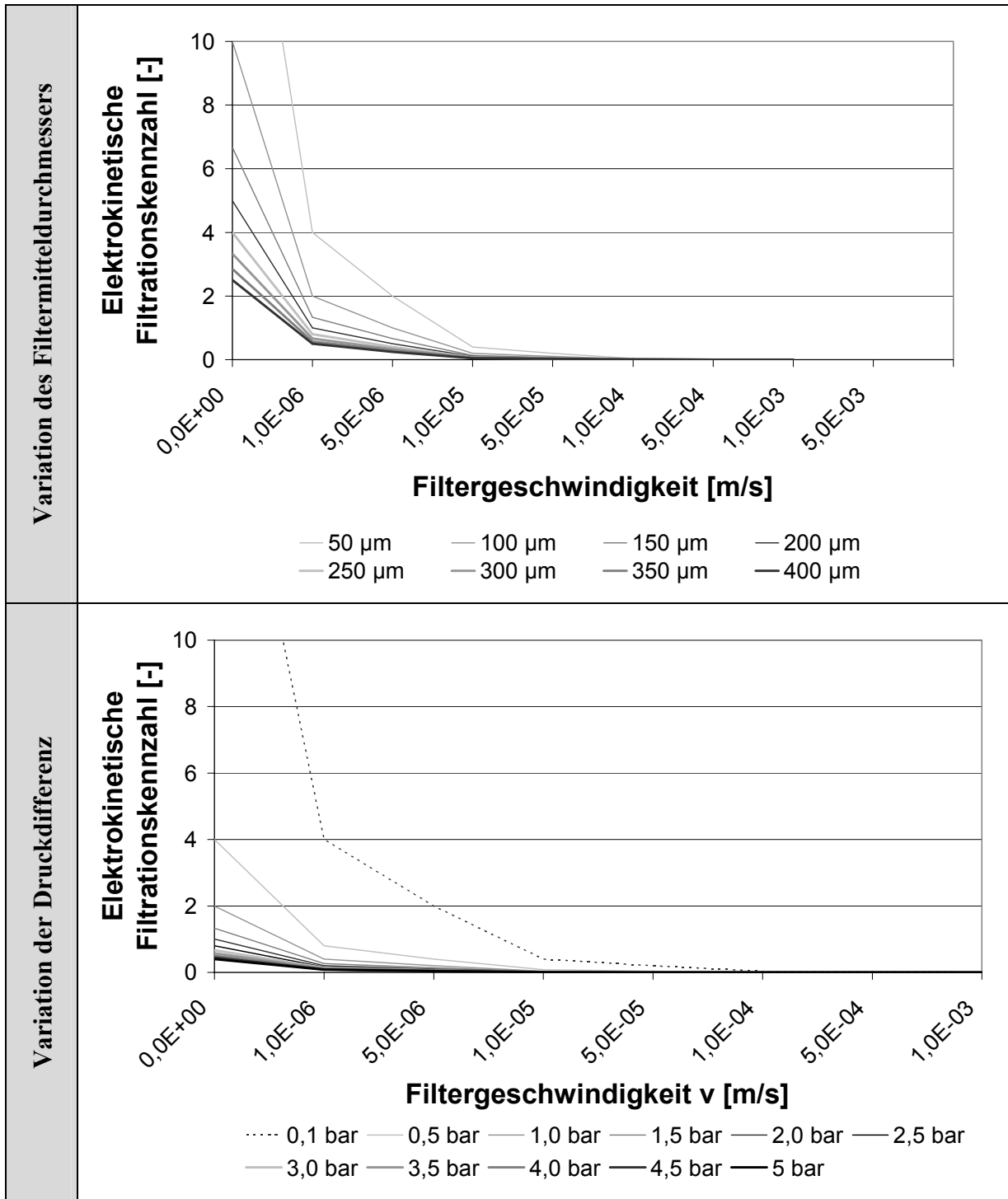


Abb. 4-16: Verlauf der elektrokinetischen Filtrationskennzahl bei verschiedenen Filtergeschwindigkeiten in Abhängigkeit von Filtermittelgröße bzw. Druckdifferenz ($\zeta_S/\zeta_{FM} = 1$)

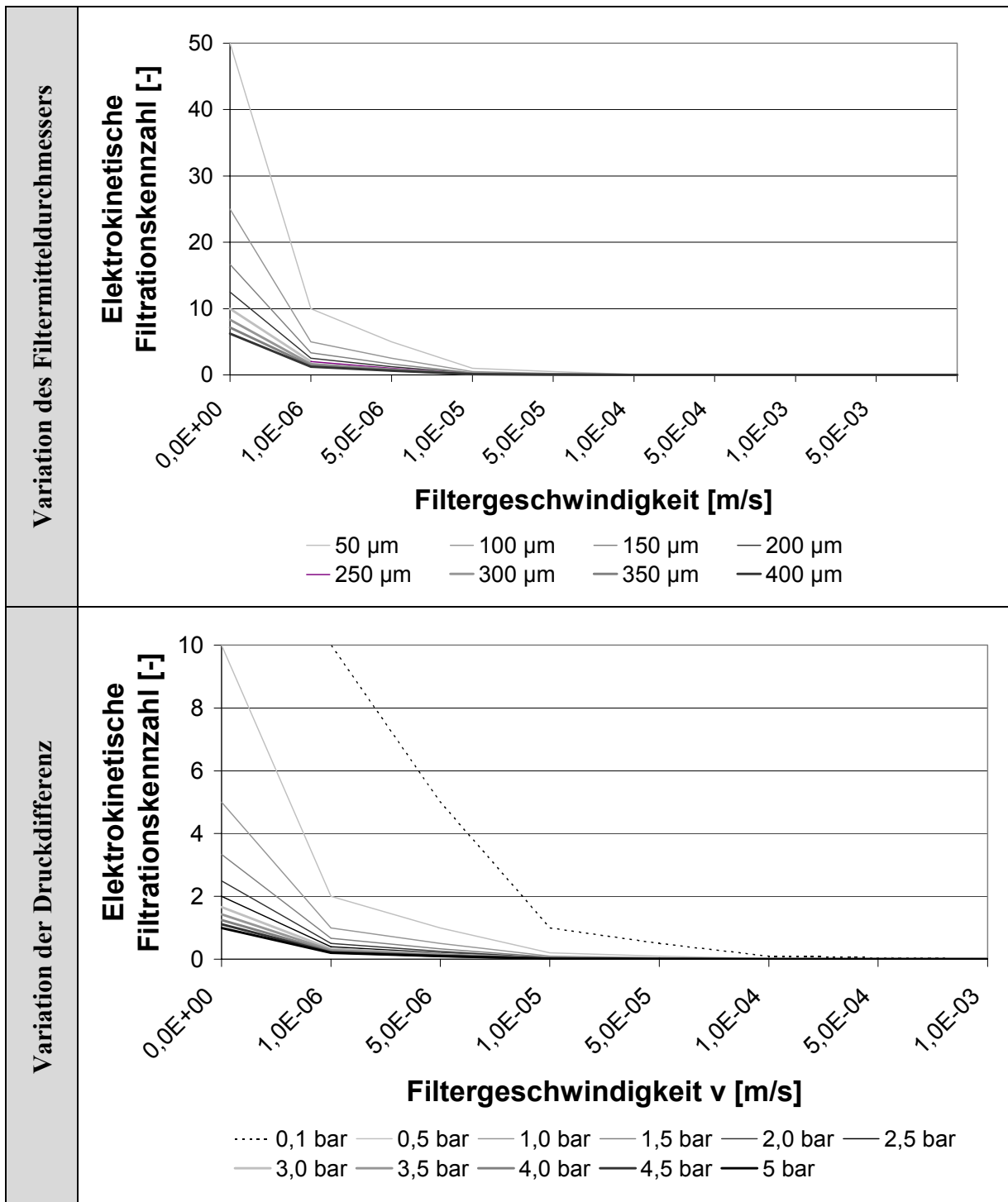


Abb. 4-17: Verlauf der elektrokinetischen Filtrationskennzahl bei verschiedenen Filtergeschwindigkeiten in Abhängigkeit von Filtermittelgröße bzw. Druckdifferenz ($\zeta_s/\zeta_{FM} = 0,1$)

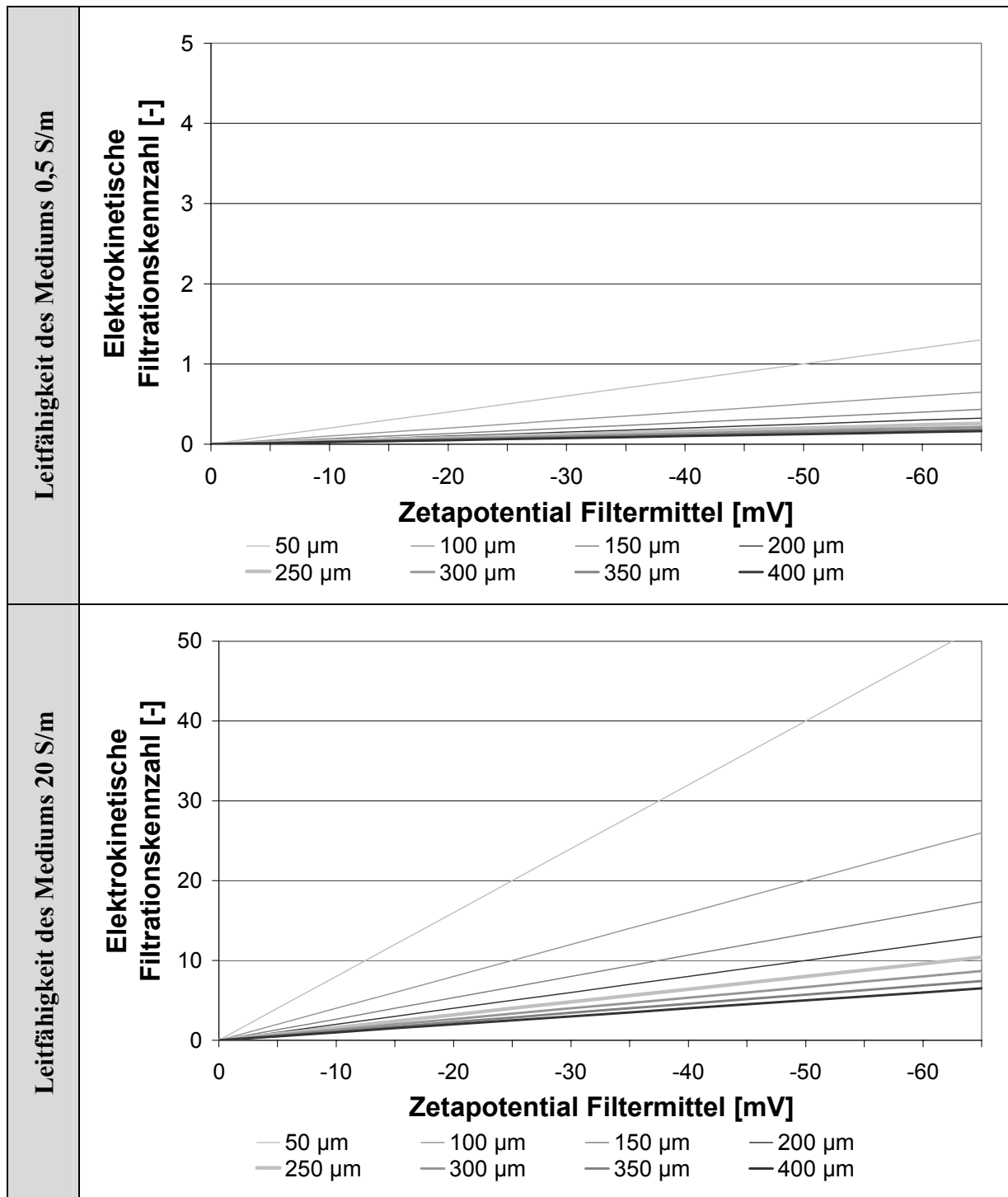


Abb. 4-18: Dimensionslose elektrokinetische Kennzahl bei verschiedenen Filtermitteldurchmessern in Abhängigkeit des Zetapotentials des Filtermittels

Aus den Betrachtungen ergeben sich folgende Eigenschaften der elektrokinetischen Filtrationskennzahl (EFK):

- Die EFK ist gültig bei $\zeta_S/\zeta_{FM} > 0$ und $D_S/D_{FM} < 0,155$.
- Die EFK steigt mit abnehmendem Durchmesser des Filtermittels bis auf Werte $EFK > 10$ an und sinkt mit zunehmender Filtrationsgeschwindigkeit oder mit zunehmender Druckdifferenz im Filter unter 1 ($EFK < 1$).
- Je stärker $\zeta_S/\zeta_{FM} \neq 1$ oder je höher die Leitfähigkeit der Trübe ist, desto eher nimmt die elektrokinetische Filtrationskennzahl Werte über 100 an ($EFK > 100$).

Eine weitere Konkretisierung und Modellierung der Vorgänge im Filter kann erst unter Berücksichtigung von Versuchsergebnissen aus Filtrationsversuchen und Zetapotentialmessungen erfolgen, vgl. auch die Ausführungen auf S. 73 f. Der folgende Abschnitt bietet einen Überblick über die bei diesen Untersuchungen eingesetzten Materialien, Methoden und Laboranlagen sowie eine Charakterisierung der verwendeten Filtermittel und suspendierten Partikel. Im Anschluss erfolgt die Darstellung von Filtrationsversuchen mit einer Modelltrübe, die der Konkretisierung der theoretischen Beschreibung des Filtrationsprinzips unter elektrokinetischen Wechselwirkungen dient.

5 Experimentelle Methoden, Laborgeräte und –anlagen, Charakterisierung der eingesetzten Filtermittel und suspendierten Partikel

Auf der Grundlage von experimentellen Untersuchungen soll die Gültigkeit der aufgestellten These – gleichnamige Zetapotentiale führen zu einem verbesserten Filtrationsverhalten eines Tiefenfilters und ermöglichen eine selektive Trennung der suspendierten Partikel sowie eine leichte Regenerierbarkeit des Filtermittels – im Folgenden nachgewiesen werden. In diesem Abschnitt werden die in den Versuchen verwendeten Messgeräte, Materialien und Versuchsstände vorgestellt.

5.1 Eingesetzte Laborgeräte

Für die Auswahl der geeigneten Filtermittel ist es notwendig, die Eigenschaften der Filtermittel und der suspendierten Partikel detailliert zu erfassen. Vor allem die Kenntnis des Zetapotentials und der mittleren Partikelgröße sind hierfür besonders wichtig. Die für die Charakterisierung von Filtermittel, Partikeln und Suspension und zur Einstellung der Partikelgrößenverteilung eingesetzten Analysengeräte und -methoden werden im Folgenden benannt.

5.1.1 Bestimmung der Partikeleigenschaften

Durchlichtmikroskop Axioskop UltraObjective der Carl-Zeiss-Jena GmbH, Jena, mit verschiedenen Objektiven. Die Mikroskopbilder können mit einer Digitalkamera AxioCam MRc digitalisiert werden.

Strömungspotentialmessgerät EKA von Anton Paar GmbH, Graz, mit Fasermesszelle und Pulvermesseinsatz sowie Auswertesoftware EKS 100 und RTU (Titriereinheit). Der Pulvermesseinsatz hat einen Durchmesser von 17 mm und kann mit Partikelpackungen von wahlweise 8 und 4 mm Schütthöhe gefüllt werden. Eine schematische Darstellung von Fasermesszelle mit integriertem Einsatz zur Vermessung von Pulvern zeigt **Abb. 5-1 A**. Als Rückhaltemembranen für die Partikel (s. **Abb. 5-1 B**) werden die vom Hersteller mitgelieferten Nylonfilter (mittlerer Porendurchmesser 50 und 25 μm) sowie Nylonnetzfilter von Millipore (NY11 047 00), 11 μm , sowie Papierfilter von Schleicher und Schuell (Blaubandfilter) ($< 5 \mu\text{m}$) eingesetzt. Durch den Einsatz der beiden letztgenannten Membranen konnte die vom Hersteller angegebene untere Grenze des Messbereiches des EKA verschoben werden. Somit ist es nun möglich, auch mit einem Strömungspotentialmessgerät das **Zetapotential von Partikeln** bis **ca. 5 μm** Größe zu ermitteln.

Abb. 5-2 zeigt das Zetapotential der leeren Messzelle mit den drei eingesetzten Membranen. Alle drei Membranen weisen nur ein geringes (negatives) Zetapotential auf. Um diese Werte sind die Messergebnisse der Zetapotentialmessung vor allem bei geringen Höhen der Partikelschüttung verfälscht und müssen bei sensiblen Messungen (d.h. kleinen Beträgen des Zetapotentials) entsprechend korrigiert werden.

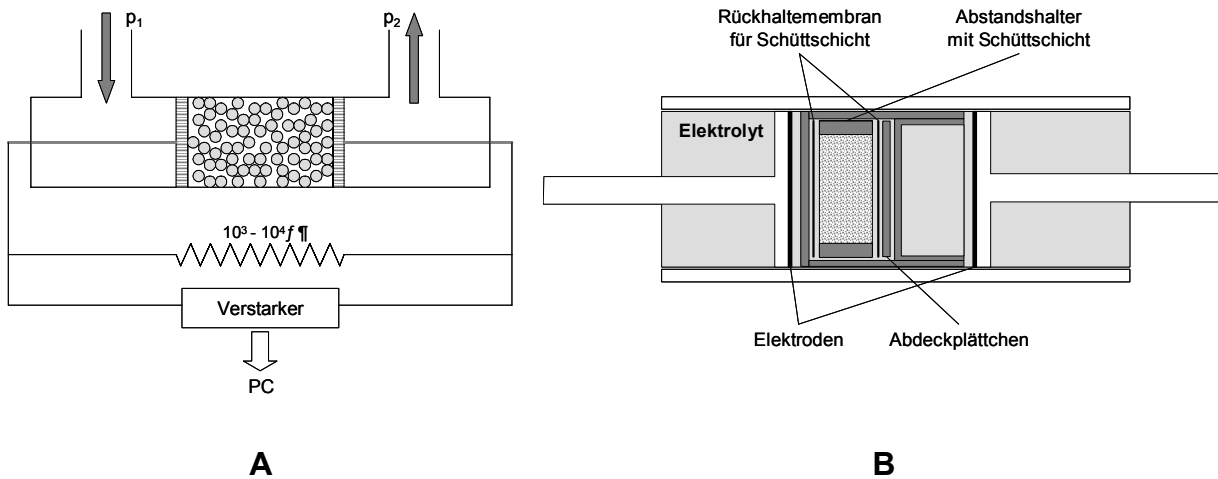
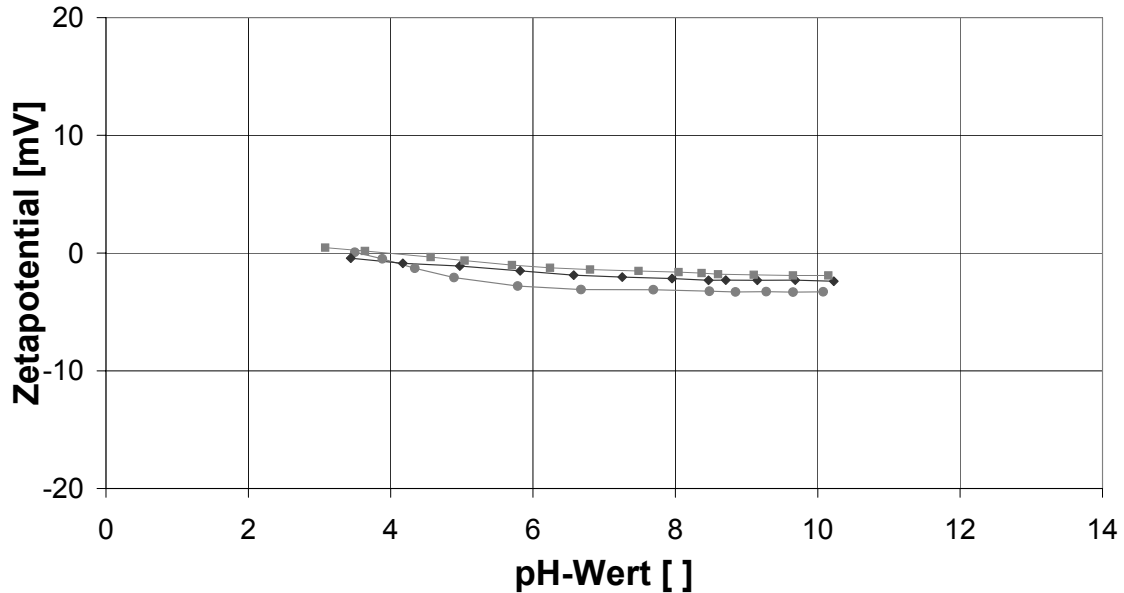


Abb. 5-1: Aufbau Fasermesszelle (A) und der Pulvermesszelle (B)



- ◊ Schleicher & Schuell, Papierfilter, <math><2\mu\text{m}</math>
- Anton Paar, Nylonfilter, 25 $\mu\text{m}</math>$
- Millipore, Nylonfilter, 11 $\mu\text{m}</math>$

Abb. 5-2: Zetapotentiale der „leeren“ Messzelle

Alle Zetapotentialmessungen erfolgen mit 10^{-3} M Kaliumchloridlösung als Elektrolyten. Für die Titration zur Einstellung des jeweiligen pH-Wertes werden Salzsäure und Natronlauge verwendet.

5.1.2 Ermittlung und Einstellung der Partikelgrößenverteilung

Analysensiebmaschine AS 200 Digit, Fa. Retsch, Haan, mit Analysensiebböden.

Partikelgrößenverteilungsmessgerät LS-100 Q mit SVM (Small Volume Modul), Beckmann-Coulter GmbH, Krefeld, und zugehöriger Auswertesoftware.

Schütteltisch AK 15, Infors AG, Bottmingen

Überkopfschüttler 3040, GFL, Burgwedel.

5.1.3 Ermittlung der Eigenschaften der Trübe und des Filtrates

Trübungsmessgerät Nephla LPG239, Dr. Lange (heute: Hach–Lange GmbH), Berlin, mit Deckel (Eigenbau) zur störungsfreien, kontinuierlichen Probennahme unter Überdruck. Die Messung erfolgt wahlweise in NTU (Nephelometric Turbidity Units) oder EBC (European Brewery Convention). Die Einheiten NTU und EBC sind über den Faktor 0,24 verknüpft (1 EBC = 4,16 NTU).

Leitfähigkeit, pH - **Multimeter**, WTW, Weilheim

5.2 Anlagen zur Durchführung der Filtrationsversuche

Für die Durchführung der Filtrationsversuche zur Untersuchung des Tiefenfilters mit elektrokinetisch optimiertem, selektivem Schüttbett wird ein **Filtrationsteststand** im bench-scale (Eigenbau) verwendet, dessen Fließbild **Abb. 5-3** zeigt. Der Teststand ermöglicht die Erfassung der Druckdifferenz im Filter über vor und hinter der Filterkammer angebrachten Drucksensoren (905932, Hydac, St. Ingbert). Die Drucksensoren haben eine Messgenauigkeit von 0,1 bar. Der Fluss wurde über die verwendete Pumpe konstant gehalten und mit einer Waage (30000G, Precisa Instruments AG, Dietikon) und einem Messwerterfassungsprogramm (Eigenprogramm) zur digitalen Weiterverarbeitung aufgezeichnet.

Die Filterkammer ist doppelwandig und kann gekühlt werden. Zur Kühlung wird ein Kühlaggregat (F30, Julabo Labortechnik GmbH, Seelbach) eingesetzt. Je nach Bedarf kann die Filterkammer ausgetauscht werden. Um mögliche Randeffekte ausschließen zu können, muss der

Durchmesser der Filterkammer $> 50 \cdot D_{FM}$ sein, u.a. [HILL, 1983], [SCHWARZ, 2003]. Bei Filtermittelpartikel mit einem Durchmesser von $D_S = 100$ bis $500 \mu\text{m}$ muss die Filterkammer daher einen Mindestdurchmesser von 5 bis 25 mm aufweisen. Die Randeffekte sind vernachlässigbar, wenn der Durchmesser der verwendeten Apparate diese Werte überschreitet, und die Filtrationsergebnisse können auf beliebig große Filtrationsapparate übertragen werden. Für die Versuche werden zwei Filterkammern mit verschiedenen Durchmessern verwendet:

- Für die **Filtrationsversuche** steht eine Filterkammer mit einem Durchmesser von **45 mm** zur Verfügung. Diese wird mit einer Zahnradpumpe (MDG-R2RVB230, Iwaki Co. Ltd., Willich) beschickt. Der Filtermittelrückhalt in der Messzelle erfolgt mit einer Sinterplatte aus CrNi-Stahl und einer Trenngrenze von $30 \mu\text{m}$ (SIKA-R 30 AX, GKN Sinter Metals Filters GmbH, Radevormwald). Das Volumen der Filterkammer beträgt 0,4 l. In dieser Filterkammer kann ein Volumenstrom von ca. 0,35 bis 0,6 l/h filtriert werden.
- Für die **Rückspüluntersuchungen** wird eine Filterkammer mit einem Durchmesser von **90 mm** Durchmesser verwendet. Diese Filterkammer (Gesamtvolumen 1,3 l) wird mit einer flusskonstanten und pulsationsarmen Taumelkolbenpumpe (MCP CPF Process, QP.Q1.CSC-WT, Ismatec, Wertheim-Mondfeld) beschickt. Der Filtermittelrückhalt erfolgt ebenfalls mit einer Edelstahlsinterplatte, (CrNi-Stahl, $30 \mu\text{m}$, SIKA-R 30 AX, GKN Sinter Metals Filters GmbH, Radevormwald). In dieser Filterkammer kann ein Volumenstrom von ca. 2,5 bis 5 l/h filtriert werden.

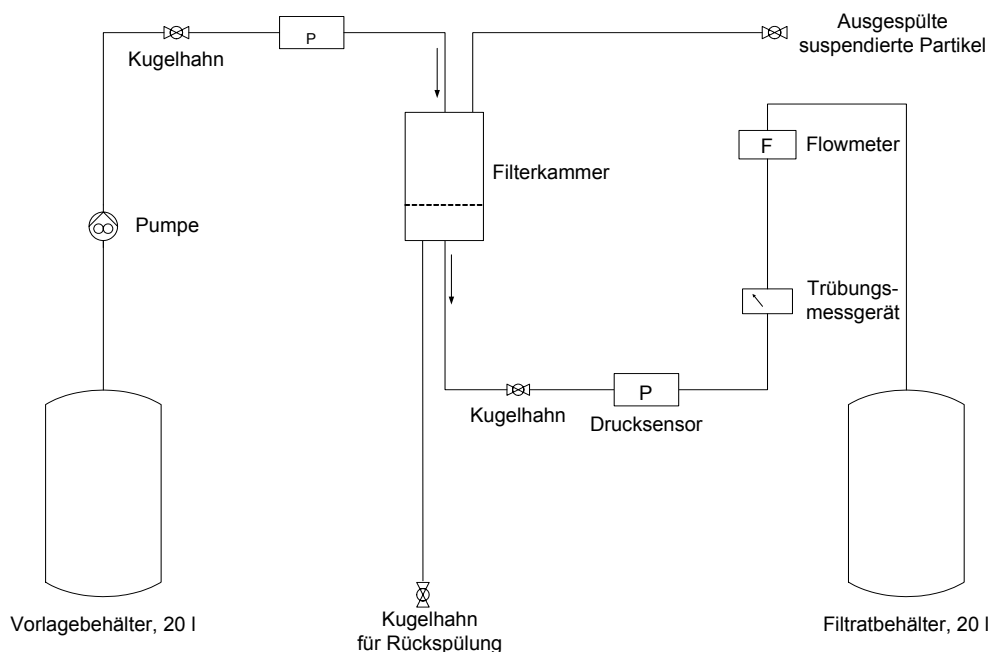


Abb. 5-3: Fließschema des Filtrationsteststandes

5.3 Eingesetzte Chemikalien, Filtermittel und suspendierte Partikel

Chemikalien	HCl, NaCl (Natriumchlorid, rein): Fluka Laborchemikalien, Seelze; NaOH (Natriumhydroxydplättchen, rein), KCl (reinst), MgCl ₂ (Magnesiumchlorid-hexahydrat zur Analyse): Merck KGaA, Darmstadt; CO ₂ (für Schankanlagen): Schankanlagen Koch, Wadern
Kalibrierlösungen	pH-Puffer (pH 4): Mettler-Toledo; pH-Puffer (pH 10): Hamilton; Kaliumchlorid 0,01 mol/l 1,413 mS/cm, (Kalibrierlösung für Leitfähigkeitsmessungen): Merck KGaA, Darmstadt
VE-Wasser	Hausanlage
Filtermittel	Ionenaustauscher TP 208 und MP 62: Bayer Chemicals AG, Leverkusen; Feldspat FS 900 S: AKW Kick GmbH & Co. KG, Hirschau, Quarzwerke GmbH, Frechen; Aluminiumoxid Martoxid MN/Y: Martinswerk GmbH, Bergheim; Quarzsand Nr. 2 und Nr. 3: Quarzwerke GmbH, Frechen; Quarzsand Nr. 1: Dansaand A/S, Braedstrup
Mikroorganismen	<i>saccharomyces carlsbergensis</i> bereitgestellt von der Karlsbergbrauerei, Homburg, <i>saccharomyces cerevisiae</i> (Backhefe) aus dem Handel

Die Betrachtung der Materialeigenschaften, insbesondere der Oberflächenladung und -rauigkeit sowie der Eigenschaften des Schüttbetts wie Porosität und Durchlässigkeit sind bei den experimentellen Untersuchungen zum Einfluss des Zetapotentials auf die Filtration von Bedeutung. Daneben spielt auch die chemische Aktivität des Filtermittels, also die Fähigkeit Ionen auszutauschen oder Verbindungen zu adsorbieren, eine wichtige Rolle. Das Filtermittel soll möglichst chemisch inert sein, um die Filtrationseigenschaften nicht zu verändern. Die eingesetzten und im Rahmen dieser Arbeit intensiver betrachteten Filtermittel und suspendierten Partikel (Mikroorganismen) werden im Folgenden hinsichtlich ihrer physikalischen und chemisch-physikalischen Eigenschaften charakterisiert.

5.3.1 Charakterisierung der Filtermittel

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Vielzahl von möglichen organischen und anorganischen Materialien auf ihre Eignung als inertes, regenerierbares Filtermittel für den Einsatz im porösen Schüttbett untersucht. Die organischen Stoffe sind Ionenaustauscher, deren organische Grundstruktur als Filtermittel dient. Die Ionenaustauscher werden hierbei **nicht** in ihrer Funktion als Ionenaustauscher eingesetzt, sondern dienen in den folgenden Untersuchungen als **organisches**, makroporöses **Filtermittel**. Dabei wird ausgenutzt, dass das Grundgerüst eines Kationenaustauschers negativ und das eines Anionenaustauschers positiv geladen ist [HELFFERICH, 1959], [DORFNER, 1970]. Bei den anorganischen Filtermitteln handelt es sich hauptsächlich um natürlich vorkommende Materialien wie Siliziumoxidverbindungen und Metalloxide. Die im weiteren Verlauf der Untersuchungen umfassend betrachtete Auswahl an Filtermitteln umfasst je zwei organische und anorganische Materialien. Die organischen Filtermittel sind ein Kationen- und ein Anionenaustauscher, die anorganischen ein Feldspat und ein Aluminiumoxid. Die in dieser Arbeit betrachteten Filtermittel wurden derart ausgewählt, dass sowohl Filtermittel mit einem im relevanten pH-Bereich von 3,5 - 8,5 negativen als auch einem positiven Zetapotential eingesetzt werden können.

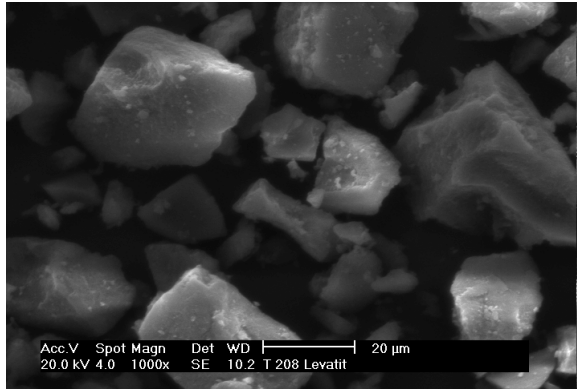
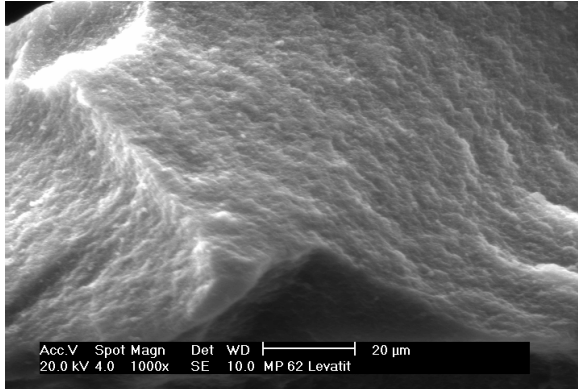
Bei den beiden **organischen Filtermitteln** handelt es sich um makroporöse Ionenaustauscher aus vernetztem Polystyrol. Beide Ionenaustauscher wurden zermahlen, um eine Partikelgröße im gequollenen Zustand von ca. 120 μm zu erhalten. Bei dem Kationenaustauscher handelt es sich um Lewatit TP 208 von Bayer. Er ist schwachsaure mit chelatbildenden Iminodiessigsäuregruppen zur selektiven Bindung von Erdalkali- und Schwermetallen [BAYER, 2002-A]. Der Anionenaustauscher MP 62 hingegen ist schwachbasisch mit einem tertiären Amin als funktioneller Gruppe und dient zur Entsalzung von Wasser [BAYER, 2002-B].

Die **anorganischen Filtermittel** sind natürlichen Ursprungs. Das Aluminiumoxid wird auch als Tonerde bezeichnet und ist als Oxidationsprodukt des Aluminiums eine in der Erdkruste häufig vorkommende, nicht wasserlösliche Verbindung [SALMANG/SCHOLZE, 1982], [PETZOLD/ULBRICHT, 1991]. Das eingesetzte Aluminiumoxid besteht zu mehr als 85 % aus $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (Korund) und ist damit eine mechanisch, thermisch, elektrisch und chemisch sehr gut beständige Oxidkeramik [ALBEMARLE, 2003]. Feldspat ist ein Silikatmineral, das neben Quarz den Hauptbestandteil von Granit bildet, und ist damit eines der häufigsten gesteinsbildenden Mineral der Erdkruste [SALMANG/SCHOLZE, 1982], [HEIM, 1990]. Der eingesetzte Feldspat ist ein Alkalifeldspat-Mischkristall [LORENZ/GWOSDZ, 2003] aus 86 % Kalifeldspat $\text{K}[\text{AlSi}_3\text{O}_8]$

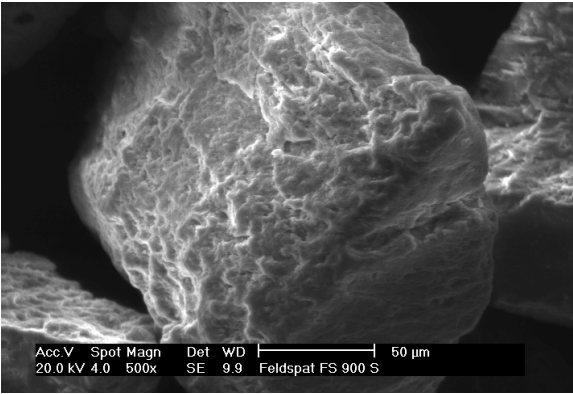
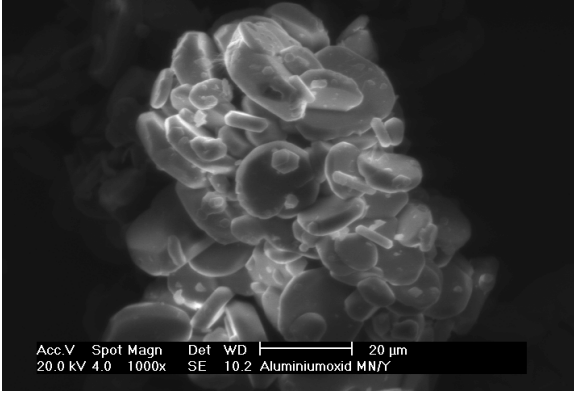
(Orthoklas) und 7 % Natronfeldspat $\text{Na}[\text{AlSi}_3\text{O}_8]$ (Albit) mit einem Restanteil von Quarz und Kaolinit [AMBERGER, 2004].

Für die Charakterisierung werden einerseits die physikalischen andererseits die chemischen Eigenschaften herangezogen. **Tab. 5-1** und **Tab. 5-2** geben einen Überblick über die **allgemeinen Eigenschaften** sowie REM-Aufnahmen (Abb. 5-4 bis Abb. 5-7) der einzelnen Filtermittel.

Tab. 5-1: Allgemeine Charakterisierung der organischen Filtermittel

Kationenaustauscher TP 208	
Farbe:	beige
Rieselfähigkeit:	mittel
Mittlere Partikelgröße [μm]:	100 - 130
Dichte [g/cm^3]:	1,17
Schüttdichte (trocken) [g/cm^3]:	0,58
Spez. Oberfläche [m^2/g]:	13,1
pH-Stabilität:	0 – 14
Temperaturstabilität:	max. 120°C
	
<p><i>Abb. 5-4: REM-Aufnahme TP 208</i> [FGK, 2005]</p>	
Anionenaustauscher MP 62	
Farbe:	weiß-hellgrau
Rieselfähigkeit:	mittel
Mittlere Partikelgröße [μm]:	100 - 120
Dichte [g/cm^3]:	1,02
Schüttdichte (trocken) [g/cm^3]:	0,40
Spez. Oberfläche [m^2/g]:	39,4
pH-Stabilität:	0 – 14
Temperaturstabilität:	max. 120°C
	
<p><i>Abb. 5-5: REM-Aufnahme MP 62</i> [FGK, 2005]</p>	

Tab. 5-2: Allgemeine Charakterisierung der anorganischen Filtermittel

Feldspat FS 900 S	
Farbe:	beige
Rieselfähigkeit:	gut
Mittlere Partikelgröße [μm]:	150 - 200
Dichte [g/cm^3]:	2,6
Schüttdichte (trocken) [g/cm^3]:	1,3
Spez. Oberfläche [m^2/g]:	0,39
pH-Stabilität:	0 – 14
Temperaturstabilität:	> 1000°C
	
<p>Abb. 5-6: REM-Aufnahme FS 900 S [FGK, 2005]</p>	
Aluminiumoxid MN/Y	
Farbe:	weiß
Rieselfähigkeit:	gut
Mittlere Partikelgröße [μm]:	110 - 120
Dichte [g/cm^3]:	3,98
Schüttdichte (trocken) [g/cm^3]:	0,90
Spez. Oberfläche [m^2/g]:	0,2
pH-Stabilität:	0 – 11
Temperaturstabilität:	> 1000°C
	
<p>Abb. 5-7: REM-Aufnahme MN/Y [FGK, 2005]</p>	

Es ist gut zu erkennen, dass die Oberflächen aller Filtermittel – wie eingangs vorausgesetzt – verhältnismäßig glatt sind. Bei den beiden anorganischen Filtermitteln ist die spezifische Oberfläche, die nach der BET-Methode²⁰ bestimmt wurde, sehr klein, ca. 10fach niedriger als die einer durchschnittlichen Feinkieselgur mit 5 bis 10 m^2/g . So bieten sie für die suspendierten Partikel kaum Möglichkeiten in die Makroporen einzudringen, und auch nur wenige Moleküle können in den Meso- und Mikroporen adsorbiert werden. Bei den organischen Filtermitteln hingegen kann eine größere spezifische Oberfläche gemessen werden, so dass ge-

²⁰ Methode nach BRUNAUER, EMMET, TELLER (1938) entsprechend DIN 66131.

benenfalls viele Stoffe adsorbiert werden können. Trotzdem liegt die spezifische Oberfläche ca. 10fach niedriger als die einer handelsüblichen Aktivkohle zur Wasserreinigung mit einer spezifischen Oberfläche von ca. 600 bis 1500 m²/g allerdings höher als die einer durchschnittlichen Kieselgur mit 1 bis 2 m²/g. Die Dichte der Ionenaustauscher ist aufgrund ihrer Polystyrolunterstruktur nahe der des Wassers, weshalb vermutet wird, dass diese Filtermittel in Wasser leicht aufschwimmen werden. Da sich ihre Dichte nur geringfügig von der der Mikroorganismen unterscheidet, sind sie außerdem für eine in-situ-Reinigung nicht geeignet.

Eine weitere für die Filtration wichtige **Eigenschaft** ist die Partikelgrößenverteilung (Abb. 5-8 bis Abb. 5-11) sowie die Porosität **der gesamten Schüttung** und deren Durchlässigkeit. Die Durchlässigkeit einer Schüttung wird angelehnt an Darcy bei einer vorgegebenen Druckdifferenz in einer Schüttung aus Volumenstrom und Filterfläche ermittelt [HÖLTING, 1996]. Dieser Wert wird auch als k_f -Wert bezeichnet, (Gl. 5-1).

$$k_f = \frac{\dot{V} \cdot L}{A \cdot h} \quad k_f\text{-Wert [m/s]} \quad (\text{Gl. 5-1})$$

Mit:

\dot{V} :	Volumenstrom	[m ³ /s]	L:	Druckhöhe	[m]
A:	durchströmte Fläche	[m ²]	h:	Druckhöhe	[m]

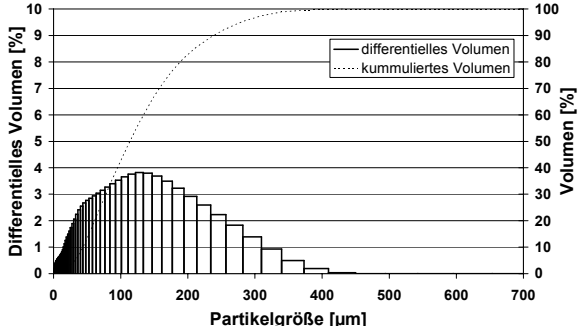
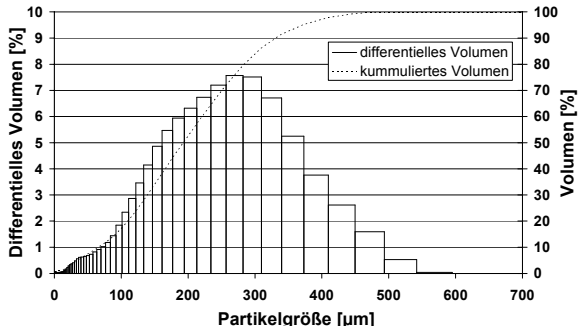
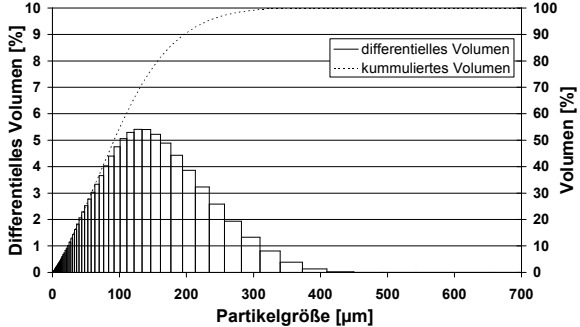
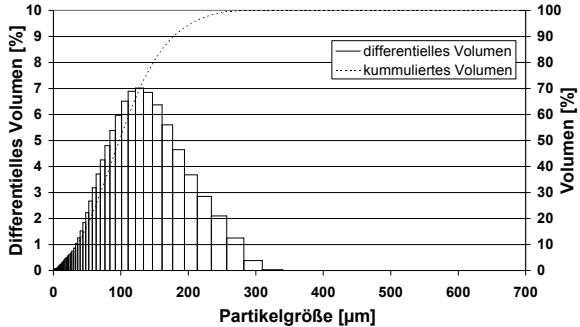
Die Angaben zur Charakterisierung der Filtermittelschüttung finden sich in **Tab. 5-3**. Bei allen untersuchten Materialien werden für die ersten Untersuchungen die Gesamtfractionen der Filtermittel so verwendet, wie sie geliefert wurden. Die mittlere Partikelgröße beträgt zwischen 90 und 200 µm. Die Filtermittel mit negativem Zetapotential zeigen eine um Faktor 100 geringere Durchlässigkeit als die Filtermittel mit positivem Zetapotential.

Im Hinblick auf die Ausgangsannahme, dass das Filtermittel gleichnamig zu den abzutrennenden suspendierten Partikeln sein soll, wird das **elektrokinetische Potential (Zetapotential)** als Strömungspotential über den pH-Bereich von pH 3 bis pH 10 bestimmt. Die Messungen erfolgen an den Filtermitteln, nachdem sie je 24 h – zur Einstellung eines stationären Zustandes – in VE-Wasser, unfiltriertem Bier (Unfiltrat), Magnesiumchlorid, Natronlauge bzw. Salzsäure vorkonditioniert wurden. Hierbei wird das VE-Wasser in Kombination mit dem für die Messung eingesetzten Elektrolyten Kaliumchlorid als Beispiel für eine monovalente Ionenlösung verwendet, Magnesiumchlorid wird exemplarisch für bivalente Ionenlösungen gewählt, während das unfiltrierte Bier (Unfiltrat) ein komplexes, reales Medium darstellt. Natronlauge und Salz-

säure sind typische Reinigungsmedien, weshalb ihre Wirkung auf das elektrokinetische Potential der Filtermittel von besonderem Interesse ist. Es zeigt sich, dass die in den Lösungen enthaltenen Stoffe entsprechend den bisher diskutierten Quellen aus Kapitel 2 Einfluss auf den Betrag des Zetapotentials haben und auch den isoelektrischen Punkt leicht verschieben können.

Tab. 5-3: Charakterisierung der Filtermittelschüttung

(Partikelgrößenverteilung, Porosität und k_f -Wert der Filtermittel)

Organische Filtermittel	Anorganische Filtermittel
 <p>Porosität des Schüttbetts [%]: 30 % k_f-Wert [m/s]: $4,6 \cdot 10^{-4}$</p> <p><i>Abb. 5-8: Kationenaustauscher TP 208</i></p>	 <p>Porosität des Schüttbetts [%]: 34 % k_f-Wert [m/s]: $9,3 \cdot 10^{-4}$</p> <p><i>Abb. 5-9: Feldspat FS 900 S</i></p>
 <p>Porosität des Schüttbetts [%]: nicht bestimmbar k_f-Wert [m/s]: $1,15 \cdot 10^{-1}$</p> <p><i>Abb. 5-10: Anionenaustauscher MP 62</i></p>	 <p>Porosität des Schüttbetts [%]: 30 % k_f-Wert [m/s]: $1,15 \cdot 10^{-2}$</p> <p><i>Abb. 5-11: Aluminiumoxid MN/Y</i></p>

Der Verlauf des Zetapotentials (Tab. 5-4) der beiden organischen Filtermittel ist über den gesamten pH-Bereich sehr konstant. Der Verlauf des Kationenaustauschers TP 208 (siehe **Abb. 5-12**) ähnelt dem schwachsauren Verlauf (Abb. 2-9) und liegt stets im schwach negativen Bereich bei -3 bis -10 mV, während sich der Anionenaustauscher MP 62 schwachbasisch verhält (Abb. 2-9) und stets im positiven Bereich bei +2 bis +7 mV liegt, vgl. **Abb. 5-13**. Bei der Rei-

nigung mit HCl verschiebt sich das Zetapotential des Kationenaustauschers im pH-Bereich von 5 bis 8 um etwa 15 mV in den negativeren Bereich. Die Konditionierung mit NaOH hat keinen Einfluss auf den Verlauf seines Zetapotentials. Der Verlauf des Zetapotentials verändert sich bei dem Anionenaustauscher durch die Reinigung und Konditionierung hingegen nicht. Da die Ionenaustauscher aktiv Ionen aus den Elektrolyten austauschen, erweist sich die Messung des Zetapotentials als besonders schwierig. Da die Ionenaustauscher bevorzugt mehrwertige Ionen austauschen, ist davon auszugehen, dass nach der Konditionierung mit $MgCl_2$ kein Ionenaustausch mit dem Messelektrolyten Kaliumchlorid mehr erfolgte und die Messung konnte ohne störende Einflüsse durchgeführt werden. Es zeigt sich, dass auch diese Messung eine große Konstanz über den pH-Bereich ergibt und alle Ergebnisse nahezu unabhängig von der Konditionierung sind.

Bei den anorganischen Filtermitteln verläuft das Zetapotentials des Feldspates FS 900 S (**Abb. 5-14**) bei der VE-Wasserspülung und nach der Spülung mit unfiltriertem Bier jenseits von pH 3 im negativen Bereich. Der Verlauf ist ähnlich der Messung von FOHRMANN (2002), vgl. Abb. 2-10. Der isoelektrische Punkt liegt hier bei ca. pH 3,2. Nach der Spülung mit der ionenhaltigen Lösung bzw. den Reinigern ist die Kurve etwas nach oben verschoben, so dass der isoelektrische pH-Wert etwa $pH_{ieP} = 6$ beträgt. Das Aluminiumoxid MN/Y beschreibt – wie auf **Abb. 5-15** zu sehen ist – in seinem Zetapotentialverlauf eine leichte S-Kurve über den pH-Bereich und verläuft damit der typischen Kurve für anorganische Oxide entsprechend, vgl. Abb. 2-9. Den höchsten positiven Wert hat das Aluminiumoxid bei einem pH von 3 mit einem Zetapotential von +60 mV. Der isoelektrische Punkt befindet sich bei $pH_{ieP} = 6,5$ bis 8,5, dies entspricht dem typischen isoelektrischen Punkt von Aluminiumoxiden [BETTEN, 2003]. Bei pH 10 wird beim Aluminiumoxid mit -40 mV das negativste Zetapotential gemessen, danach steigt der Wert wieder, wobei anzunehmen ist, dass das Aluminiumoxid in diesen pH-Bereichen bereits beginnt, sich chemisch zu zersetzen. Während der Kurvenverlauf durch die Spülungen in $MgCl_2$ und den Reinigungslösungen nur unwesentlich verschoben wird, verursacht die Spülung mit Unfiltrat bei pH-Werten $< pH 8$ eine deutliche Verschiebung des Zetapotentials in den negativen Bereich.

Tab. 5-4: Zetapotentiale der organischen Filtermittel über den pH-Bereich

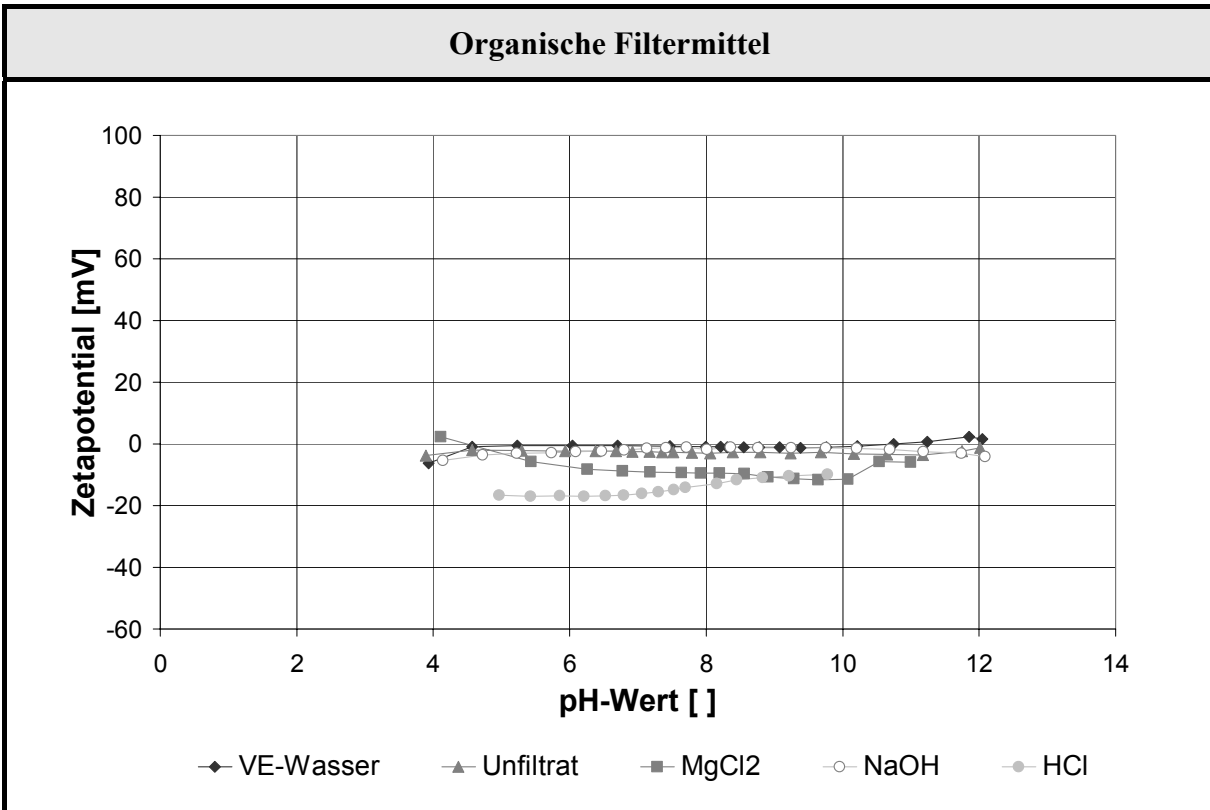


Abb. 5-12: Kationenaustauscher TP 208

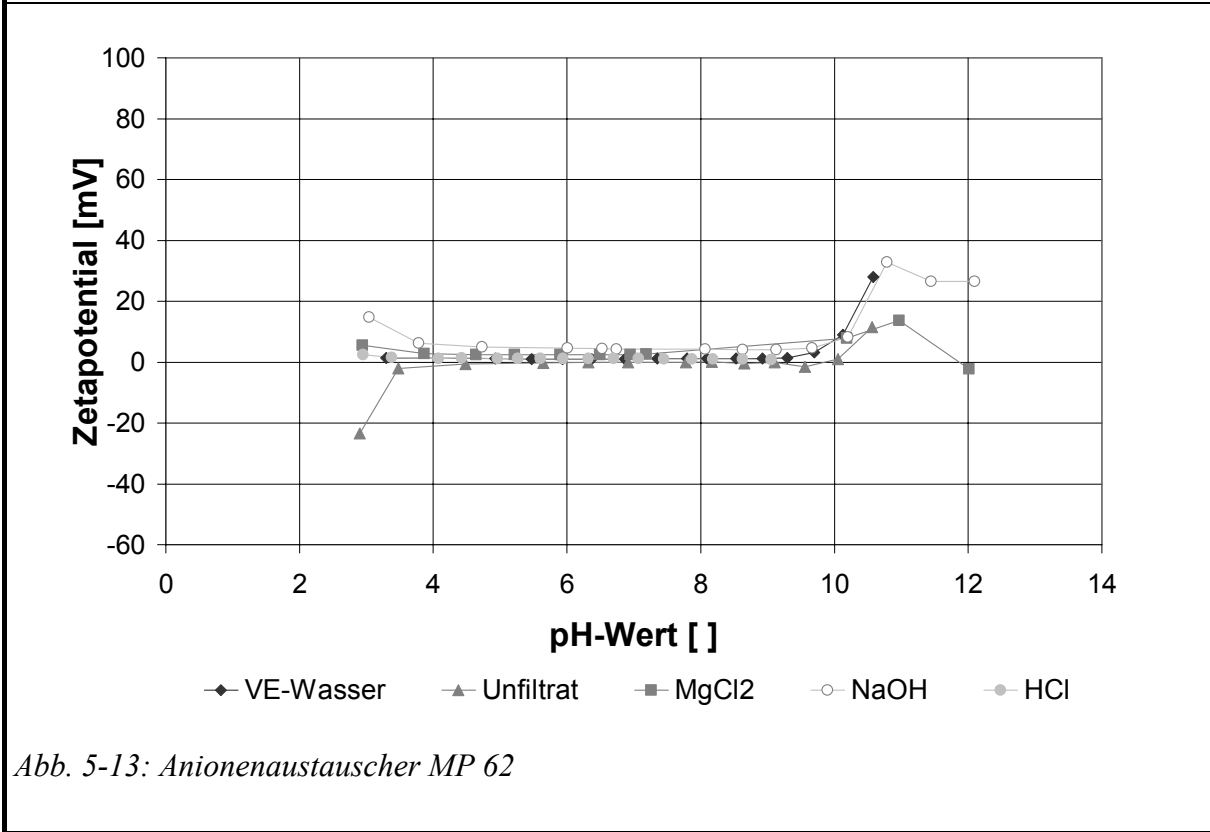


Abb. 5-13: Anionenaustauscher MP 62

Tab. 5-5: Zetapotentiale der anorganischen Filtermittel über den pH-Bereich

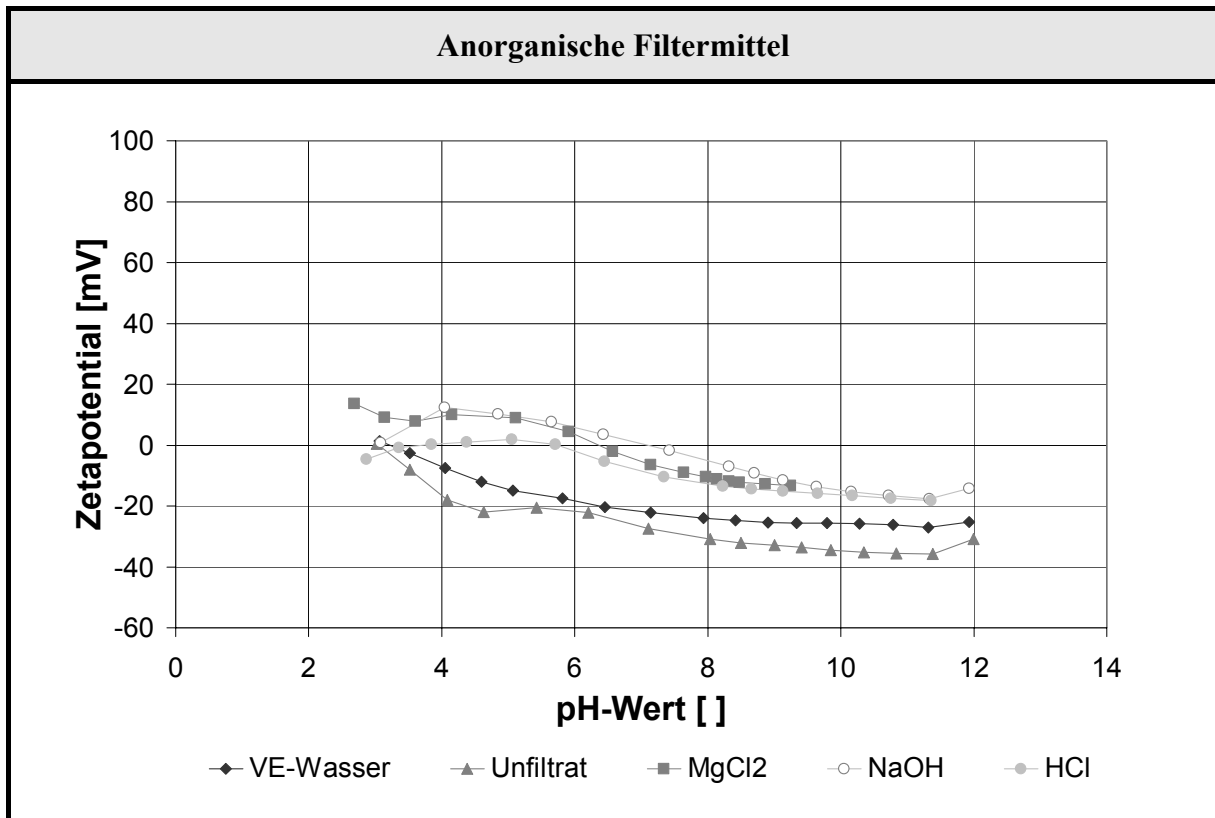


Abb. 5-14: Feldspat FS 900 S

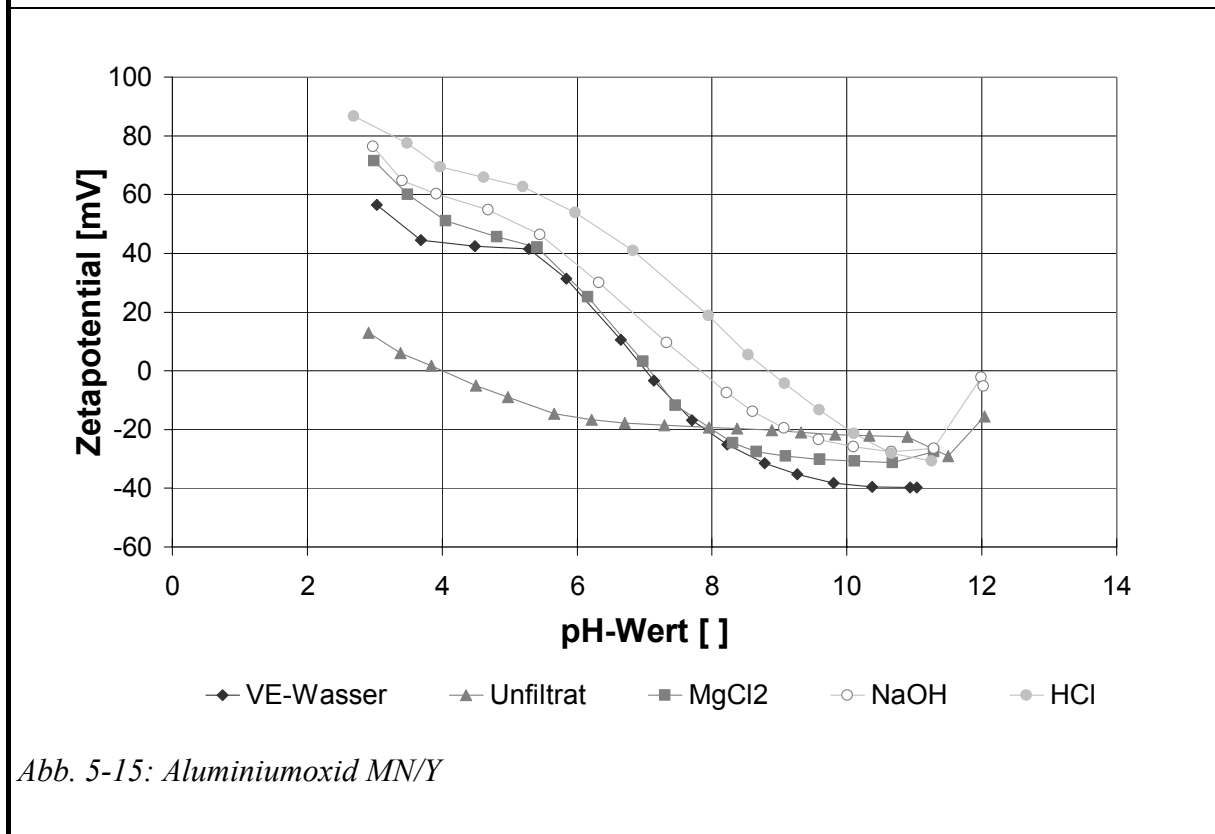


Abb. 5-15: Aluminiumoxid MN/Y

5.3.2 Charakterisierung der eingesetzten suspendierten Partikel

Bei den abzutrennenden suspendierten Partikeln handelt es sich in allen folgenden Untersuchungen um Mikroorganismen. Diese Wahl ist damit zu begründen, dass Abtrennung von Mikroorganismen bei der Filtration von Suspensionen ein häufig auftretendes Trennproblem ist.

Für die Untersuchungen zur Überprüfung der Wirksamkeit des Filtrationsprinzips mit elektrokinetischen Abstoßungskräften sind die elektrokinetischen Wechselwirkungen der Mikroorganismen mit dem Filtermittel von Bedeutung. Bei der Zellmembran von Mikroorganismen handelt es sich um ein dynamisches System. Daher muss die Aussagekraft der Modelle zur Beschreibung der elektrokinetischen Wechselwirkungen mit Hilfe des Zetapotentials für einen Mikroorganismus überprüft werden. Das Zetapotential hängt sowohl von den an der Oberfläche adsorbierten Stoffen (Oberflächenpotential) als auch von den Umgebungsbedingungen (pH, Ionenkonzentration) ab, vgl. Abschnitt 2.2.2. Damit ein entsprechendes Potential an der Oberfläche von Zellen entstehen kann, müssen Ladungsträger vorhanden sein, die die Zellmembran nicht verlassen können. Die entsprechenden Gegenionen hingegen müssen diese passieren können, damit die Zelle eine elektrostatische Ladung aufweist. Dabei wird davon ausgegangen, dass sich die Ladungen nicht ausschließlich an der Oberfläche des Partikels, sondern gleichmäßig verteilt innerhalb einer definierten Schicht nahe der Oberfläche befinden²¹. Es entsteht somit bereits in der Zellmembran ein Potentialgefälle in Richtung des Elektrolyten. Als Grenzfall kann hier betrachtet werden, dass der Elektrolytfluss innerhalb der Zellmembran bezüglich der innerhalb der Zelle befindlichen Ladungsträger zu vernachlässigen ist. In diesem Fall kann die **Gleichung nach Smoluchowski** auch für die **Berechnung des Zetapotentials von Mikroorganismus** verwendet werden [PFETSCH, 1999]. Diese Annahme wird durch Untersuchungen an Mikroorganismen bestätigt, bei denen elektrokinetische Wechselwirkungen zur

- Charakterisierung und Separation verschiedener Mikroorganismen [VAN HEE ET.AL., 2006], [PFETSCH, 1999] und zur
- Unterstützung der Adsorptionskräfte bei der Chromatographie [LIN ET.AL., 2006]

eingesetzt wurden. Bei diesen Untersuchungen wurde keine grundsätzlichen Änderung der elektrokinetischen Eigenschaften der Mikroorganismen in unterschiedlichen Elektrolyten fest-

²¹ [PFETSCH, 1999] bietet eine ausführliche Übersicht über Modelle zur Beschreibung der elektrostatischen Wechselwirkungen in der Zellmembran bzw. der Zellhülle mit einem Elektrolyt.

gestellt, so dass das Zetapotential auch hier zur Beschreibung der elektrokinetischen Eigenschaften der suspendierten Partikel eingesetzt werden kann.

Als Modellorganismen werden wegen ihrer nahezu ideal sphärischen Form [DEACON, 1984], [SCHLEGEL/ZABOROSCH, 1992] Hefen der Gattung *saccharomyces* verwendet. Die Wahl fiel auf Hefen, da diese Mikroorganismen sehr detailliert beschrieben [ANTRANIKIAN, 2005] und darüber hinaus leicht zu handhaben sind. Aus diesem Grund sind sie ein in der Forschung häufig eingesetzter Modellorganismus [KASPAR ET AL., 2005].

Bei einem Teil der eingesetzten Hefe handelt es sich um die Gattung *saccharomyces carlsbergensis*, die von der Karlsbergbrauerei in Homburg/Saarpfalz zur Verfügung gestellt wurden, der andere Teil ist im Handel erworbene Backhefe (*saccharomyces cerevisiae*), „Dr. Moormanns Frischbackhefe“ Uniform GmbH & Co. KG, Werne. Obwohl beide Hefestämme im allgemeinen als Bier- oder Backhefen bezeichnet werden [BRINK, 2005], [DITTRICH, 1993], [TUTTE/OLIVER, 1991], sollen sie hier ebenfalls unterschieden werden, da sie sich in ihrer Größe und ihrem Zetapotential geringfügig von einander unterscheiden [DENGIS/ROUXHET, 1997]. Auch in der Literatur wird oft zwischen den obergärigen *saccharomyces cerevisiae* und untergärigen Hefen *saccharomyces uvarum* bzw. *saccharomyces carlsbergensis* unterschieden [ANTRANIKIAN, 2005], [JENNINGS/LYSEK, 1999], [NARZISS, 1986], [SCHLEGEL/ZABOROSCH, 1992], da sie leichte Unterschiede in ihrer DNS [CHRISTIANSEN/CHRISTIANSEN, 1976] und daraus resultierend in ihrem Stoffwechsel aufweisen [STRATHERN ET.AL., 1982]. Die durchschnittliche Größe einer *saccharomyces cerevisiae* beträgt zwischen 2 bis 15 μm [WEIGL, 2004], wobei die meisten Zellen etwa 5 μm groß sind, während die der verwendeten *saccharomyces carlsbergensis* etwa 5 bis 18 μm mit einer hauptsächlichen Größe von 7 μm beträgt [EIGENE MESSUNG].

Das Zetapotential ist in der folgenden **Abb. 5-16** für beide Hefestämme aufgetragen. Laut ROUXHET sind die obergärigen Hefen hydrophober und bei pH 4 weniger negativ geladen als die untergärigen Hefen [AMORY/ROUXHET, 1988], [DENGIS/ROUXHET, 1997]. Dabei sind die einzelnen untersuchten Arten bei ihm in ihren Eigenschaften sehr unterschiedlich und es gibt durchaus einzelne Arten der *s. cerevisiae*, die einen höheren Betrag im Zetapotential aufweisen als die *s. carlsbergensis*. LIN ET.AL. (2003) geben allerdings deutlich höhere Beträge (im Bereich von -15 mV) für das Zetapotential der *saccharomyces cerevisiae* an. THONART ET.AL., (1982) messen sogar Beträge von -30 mV. Dies wird von den eigenen Messungen bestätigt, auch wenn diese ein deutlich niedrigeres Zetapotential als die Vergleichsmessungen der Literatur zeigen. Dies liegt allerdings u.a. an der Wahl des Messverfahrens, da die eigenen Messungen mittels Strö-

mungspotential erfolgen, die Literaturwerte jedoch mittels Elektrophorese bestimmt wurden. Bestimmungen des Zetapotentials über das Strömungspotential zeigen stets kleinere Beträge als elektrophoretische Messungen [KIM ET.AL., 1996]. Eine lichtmikroskopische Aufnahme der *saccharomyces carlsbergensis* zeigt **Abb. 5-17**.

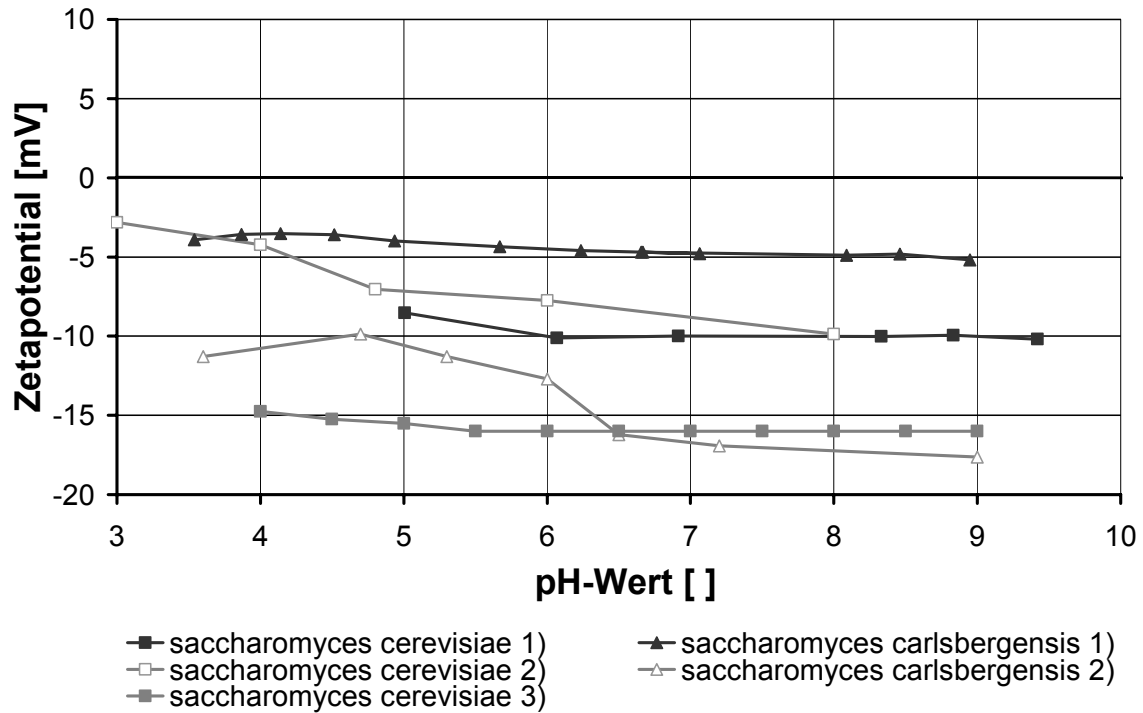


Abb. 5-16: Zetapotentiale der *s. carlsbergensis* und der *s. cerevisiae*

1) EIGENE MESSUNG, Strömungspotential, 2) DENGIS/ROUXHET, 1997, Elektrophorese 3) LIN ET.AL., 2003, Elektrophorese

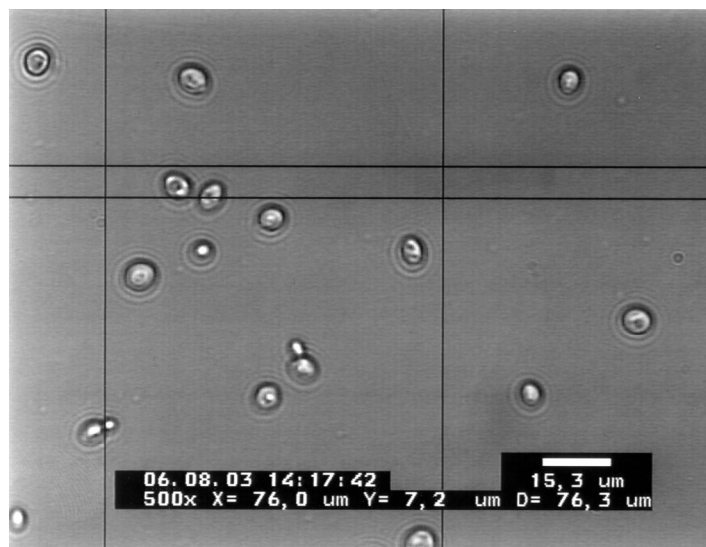


Abb. 5-17: Lichtmikroskopische Aufnahme *s. carlsbergensis*, EIGENE AUFNAHME

6 Experimentelle Untersuchung der Tiefenfiltration mit elektrokinetisch optimiertem, selektiven Schüttbett

Zur Ermittlung der Wirksamkeit des angenommenen Filtrationsprinzips werden experimentelle Untersuchungen mit den folgenden beiden Schwerpunkten durchgeführt: Durch Filtrationsversuche wird die Funktion des Filtrationsprinzips unter Änderung verschiedener Einflussparameter detailliert untersucht. Vor dem Hintergrund dieser Ergebnisse wird die Eignung der dimensionslosen Kennzahlen zur Beschreibung des Filtrationsprinzips diskutiert und eine Filtergleichung zur Modellierung der Vorgänge aufgestellt. Darüber hinaus erfolgen Untersuchungen zur Regenerationsfähigkeit des Filtermittels und zur Rückspülbarkeit des Schüttbetts.

6.1 Untersuchungen zur Verifizierung des Filtrationsprinzips

Im Vordergrund der Untersuchungen zur Konkretisierung der Filtermodellierung steht die Überprüfung des Einflusses der elektrokinetischen Repulsionskräfte auf die Filtration von Suspensionen mit suspendierten Partikeln im Mikrometerbereich mit porösen Schüttbetten. Um die Gültigkeit der aufgestellten These zu beurteilen, werden mit den im vorhergehenden Kapitel vorgestellten Filtermitteln Filtrationsuntersuchungen durchgeführt. Ein bedeutender Aspekt ist dabei neben der Betrachtung der Filtrationsergebnisse von Filtermitteln mit gleichnamigem bzw. ungleichnamigem Zetapotential auch die Wahl der geeigneten mittleren Partikelgröße des Filtermittels sowie dessen Partikelgrößenverteilung. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen finden ihren Eingang in die Definition der Gültigkeitsbereiche des Filtrationsverfahrens durch die dimensionslosen Kennzahlen sowie die Konkretisierung einer systembeschreibenden Filtergleichung.

6.1.1 Experimentelle Untersuchung der elektrokinetischen Wechselwirkungen

Die experimentelle Untersuchung des Filtrationsprinzips dient einerseits der Ermittlung des Einflusses der elektrokinetischen Wechselwirkungen bei der Unterstützung einer Tiefenfiltration andererseits der Verifizierung der Regenerationsfähigkeit des Filtermittels. Hierzu werden vier verschiedene Versuchsreihen durchgeführt, mit denen die Einflussnahme verschiedener Parameter

- auf die Filtrationsart durch Betrachtung
 - der unterschiedlichen elektrokinetischen Wechselwirkungen und
 - der Veränderung des Zetapotentials sowie

- auf das Filtrationsergebnis durch Variation
 - der Partikelgrößenverteilung und
 - der Ionenkonzentration des Elektrolyten

beleuchtet wird. Für die Versuche wird eine Modelltrübe eingesetzt, die sowohl möglichen Filtrationsaufgaben in der Getränkeindustrie als auch denen der Biotechnologie entspricht. Dabei werden als Modellorganismus Hefen der Gattung *saccharomyces carlsbergensis* (Abschnitt 6.1.1, 6.1.2, 6.1.3) und *saccharomyces cerevisiae* (Abschnitt 6.1.4) mit Minimalmedium in einer 0,1 w % wässrigen Lösung für die Versuche verwendet. Die Höhe des Schüttbetts beträgt $L = 5$ cm. Die Versuchsbedingungen sowie die Laufzeit der Versuche sind zur besseren Vergleichbarkeit der Ergebnisse konstant. Die Laufzeit eines Versuches beträgt vier Stunden bei einer Filtrationsgeschwindigkeit von 0,25 m/h. Erhöht sich in dieser Zeit die Filtratrübe oder die benötigte Druckdifferenz deutlich, so dass entweder der Beginn eines Durchbruches oder eine Oberflächenfiltration zu erkennen ist, wird der Versuch vor Ende der angestrebten Laufzeit beendet. Insbesondere ein deutlicher Anstieg der Trübung im Filtrat deutet auf eine Erschöpfung der Schüttbettkapazität hin; die vor allem im industriellen Einsatz geforderten Filtratqualitäten können nicht mehr eingehalten werden. Da aus den geschilderten Gründen die Laufzeit der Versuche sowie in geringem Maße auch die Filtergeschwindigkeit variieren können, werden alle Filtrationsergebnisse über das **Bettvolumen V_B (m^3 Filtrat/ m^3 Schüttbett) als Bezugsgröße** dargestellt, um auf diese Weise eine eindeutige Vergleichbarkeit von Leistungsfähigkeit und Kapazität des Schüttbetts zu erhalten. Die Mikroorganismenkonzentration wird qualitativ über die Messung der Trübung des Filtrates mittels Streulichtdetektion bei 90° ermittelt. Um das Filtrationsverfahren als **Vorfiltration** einsetzen zu können, soll ein **Rückhalt von mindestens 75 %** ($c/c_0 = 0,25$) erreicht werden.

6.1.1.1 Einfluss elektrokinetischer Wechselwirkungen auf die Filtrationsart

In der ersten Versuchsreihe wird der Einfluss elektrokinetischer Wechselwirkungen auf die Filtrationsart, insbesondere die Wirkungsweise von gleichnamigen bzw. ungleichnamigen Zeta-potentialen von Filtermitteln und abzutrennenden suspendierten Partikeln, untersucht.

Die Versuche werden mit einer Modelltrübe aus einer Suspension von Hefen der Gattung *saccharomyces carlsbergensis* mit dreien der vorgestellten Filtermittel durchgeführt. Die eingestellte Trübung beträgt $c_0 = 200$ EBC (≈ 850 NTU), dies entspricht einem Hefegehalt von 0,1 w %. Der pH-Wert dieser Suspension beträgt ca. pH 6 bei einer Leitfähigkeit von

25 mS/m. Die Versuche wurden mit den Filtermitteln Kationenaustauscher (TP 208), Feldspat (FS 900 S) und Aluminiumoxid (MN/Y) durchgeführt. Der Anionentauscher MP 62 wird nicht verwendet, da er – wie in Kapitel 5 bereits angesprochen – aufgrund des geringen Dichteunterschiedes zu Wasser in diesem aufschwimmt und die Durchführung einer Filtration daher nicht möglich ist. In der **Abb. 6-1** ist deutlich der Unterschied zwischen den sich einstellenden Filtrationsarten bei den beiden gleichnamig zu der Hefe geladenen Filtermitteln und dem Filtermittel mit ungleichnamigem Zetapotentiale zu erkennen.

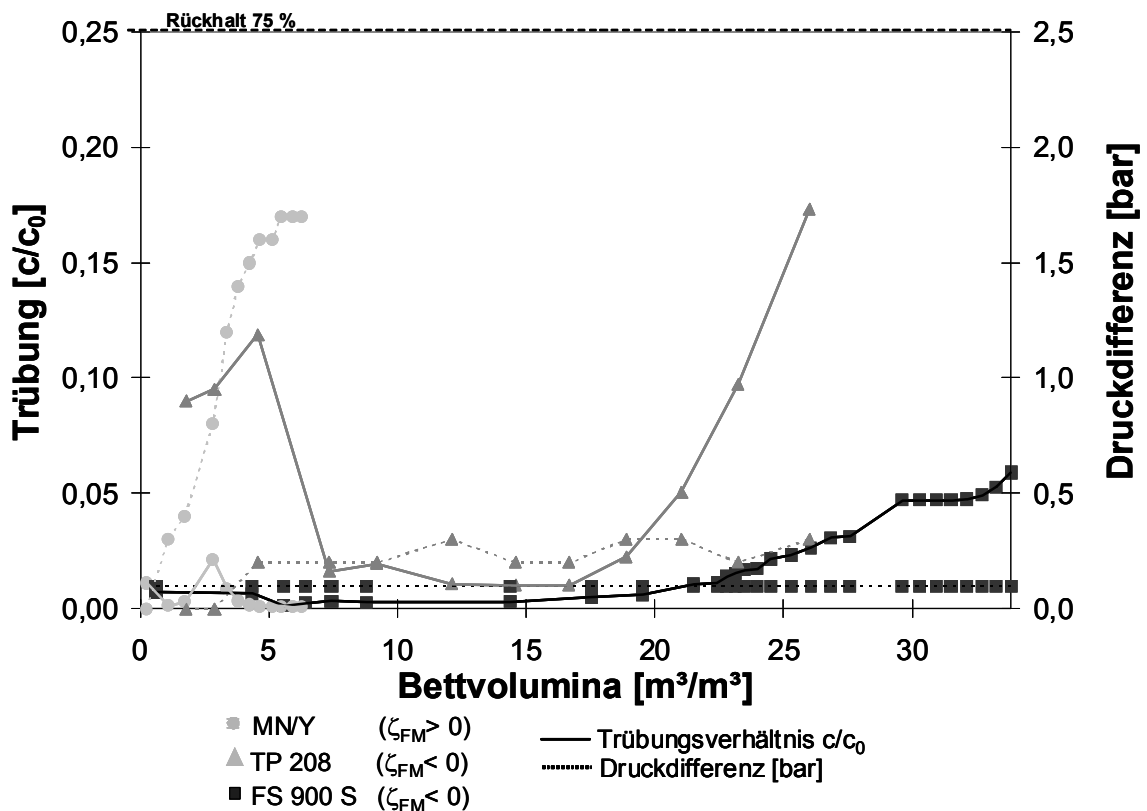


Abb. 6-1: Filtrationsverhalten der Filtermittel mit positivem und negativem Zetapotentiale

Das Aluminiumoxid MN/Y weist bei diesem pH-Wert ein **positives Zetapotentiale** auf. Bei der Filtration mit diesem Filtermittel wird die Trübung um mehr als 98 % ($c/c_0 < 0,2$) reduziert, allerdings steigt die Druckdifferenz innerhalb kurzer Zeit auf fast 2 bar an. Dies deutet darauf hin, dass eine **Oberflächenfiltration** stattfindet. Eine entsprechende Probenahme aus der Schüttung nach Ende des Versuches zeigt dies deutlich (**Abb. 6-2, A**). Die Filtermittel mit dem **negativen Zetapotentiale** zeigen eine etwas geringere Reinigungsleistung bei einer geringen Druckdifferenz von $\Delta p = 0,2$ bar. Der Kationenaustauscher TP 208 durchläuft den für **Tiefenfiltration** typischen Trübungsverlauf mit Anlaufphase, Filtrationsphase bei ca. 98 % Rückhalt und Durchbruch. Der Druck ist leicht schwankend, und die Filtrationsleistung liegt

bei über $25 \text{ m}^3/\text{m}^3$. Der Feldspat FS 900 S verhält sich ähnlich, allerdings ist die Anlaufphase stark verkürzt und die Druckdifferenz wesentlich konstanter bei einem Bettvolumen von $30 \text{ m}^3/\text{m}^3$. Auch hier tritt am Ende der Filtration ein leichter Anstieg der Trübung im Filtrat (Rückhalt kleiner 94 %) ein. Ein Photo des Bohrkerns der Probenahme aus dem Schüttbett, die beim Feldspat FS 900 S erfolgte, zeigt **Abb. 6-2, B**.

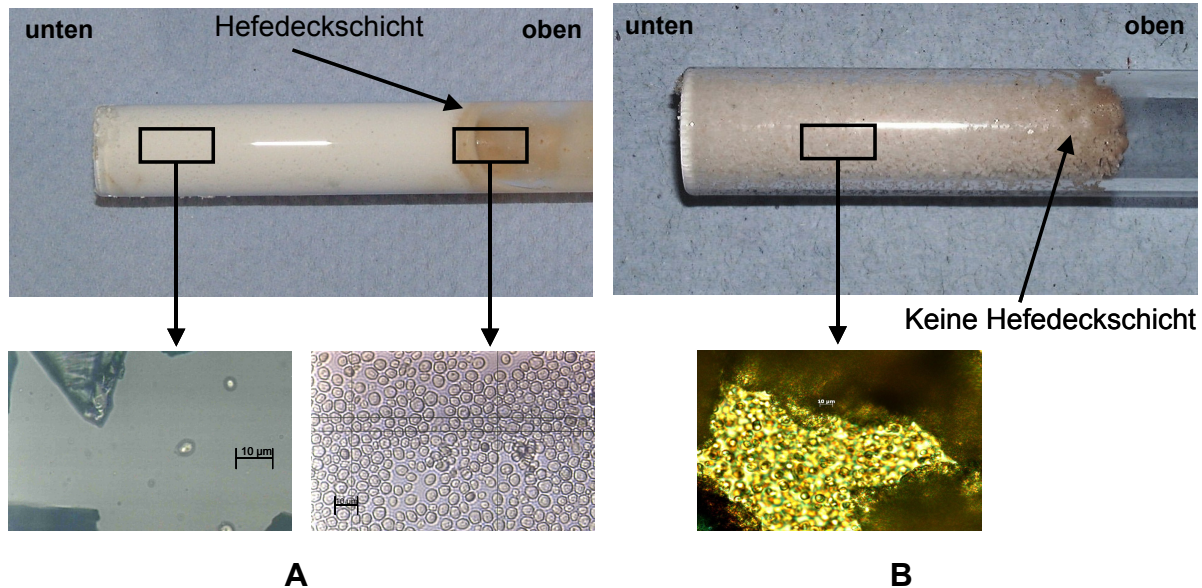


Abb. 6-2: Photos der Bohrkerns sowie lichtmikroskopische Aufnahmen des Schüttbetts

*A: Aluminiumoxid MN/Y mit Hefedeckschicht,
vereinzelt Hefezellen im Schüttbett*

*B: Feldspat FS 900 S ohne Deckschichtbildung,
im Schüttbett zurückgehaltene Hefezellen*

Bei beiden Filtermitteln mit negativem – und damit mit einem zu den abzutrennenden Partikeln gleichnamigem – Zetapotential erfolgte eine Tiefenfiltration, bei dem Filtermittel mit positivem – und damit ungleichnamigem – Zetapotential hingegen eine Oberflächenfiltration. Dies bestätigt die Annahme, dass zwar ungleichnamige Zetapotentiale eine Adsorption und damit eine Abscheidung im Schüttbett fördern, dass eine **Filtration bei gleichnamigen Zetapotentialen** jedoch ebenfalls **möglich** ist und dabei nur ein **geringer Druckverlust** auftritt.

Bei lichtmikroskopischen Aufnahmen des beladenen Schüttbetts ist zu erkennen, dass die Hefezellen nicht direkt am Filtermittel adsorbieren. Teilweise befinden sie sich nahe am Filtermittel, was auf eine mögliche Adsorption hindeutet, jedoch besteht keine feste, adhäsive Verbindung zum Filtermittel, siehe **Abb. 6-3**.

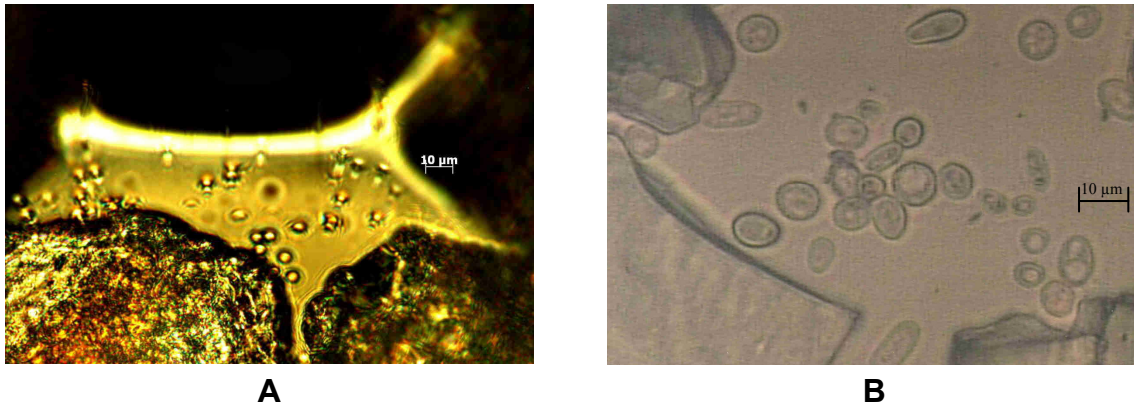


Abb. 6-3: Lichtmikroskopische Aufnahmen aus dem Schüttbett (Feldspat FS 900 S)

A: Pore im Schüttbett mit Hefezellen

B: Filtermittelpartikel und Hefezellen im Wassertropfen

6.1.1.2 Änderung des Filtrationsverhaltens bei Vorzeichenwechsel des Zetapotentials

Um die Veränderung des Filtrationsverhaltens eines Filtermittels bei den **unterschiedlichen Vorzeichen der Zetapotentiale** genauer zu untersuchen, erfolgen Filtrationsversuche mit dem Aluminiumoxid MN/Y bei verschiedenen pH-Werten. Das Aluminiumoxid wird deshalb für diese Versuche ausgewählt, da sein isoelektrischer Punkt bei pH 7 liegt, und es daher innerhalb der Lebensbedingungen von Mikroorganismen zwei verschiedene Vorzeichen des Zetapotentials aufweist. Diese Versuche wurden ebenfalls mit einer 0,1 w % Hefesuspension aus *s. carlsbergensis* durchgeführt, dabei werden zwei unterschiedliche pH-Werte, pH 5,5 ($\zeta_{FM} = +40$ mV) und pH 10 ($\zeta_{FM} = -40$ mV), eingestellt. Das Zetapotential der Hefen ändert sich bei dem pH-Wertwechsel hingegen nicht, vgl. **Abb. 5-16**.

Die Versuchsergebnisse (**Abb. 6-4**) zeigen, dass der Rückhalt bei beiden pH-Werten vergleichbar ist. Allerdings erfolgt die Filtration mit zwei verschiedenen Filtrationsarten. Aufgrund der eintretenden Oberflächenfiltration erfolgt der Rückhalt bei pH 5,5 zu nahezu 100 %, während die Druckdifferenz auf über 2 bar ansteigt. Hier wird die Leistungsfähigkeit des Filtermittels aufgrund der stark gestiegenen Druckdifferenz limitiert. Bei pH 10 ist der Rückhalt geringfügig schlechter, die anliegende Druckdifferenz beträgt allerdings weniger als 0,5 bar. Hier ist durch den Anstieg der Trübung von $c/c_0 < 0,005$ auf $c/c_0 > 0,02$ (< 98 % Rückhalt) der Beginn eines Durchbruches zu erkennen. Die Ergebnisse deuten darauf hin, dass bei pH 5,5 eine Oberflächenfiltration erfolgt ist, während bei pH 10 eine Tiefenfiltration stattfindet. Probenahmen aus dem Schüttbett bestätigen diese Vermutungen. Damit ist gezeigt, dass **die Filtrationsart** bei gleicher Porengröße des Filtermittels – und Konstanz aller weiteren Größen – vom Vorzeichen des **Zetapotentials determiniert** wird.

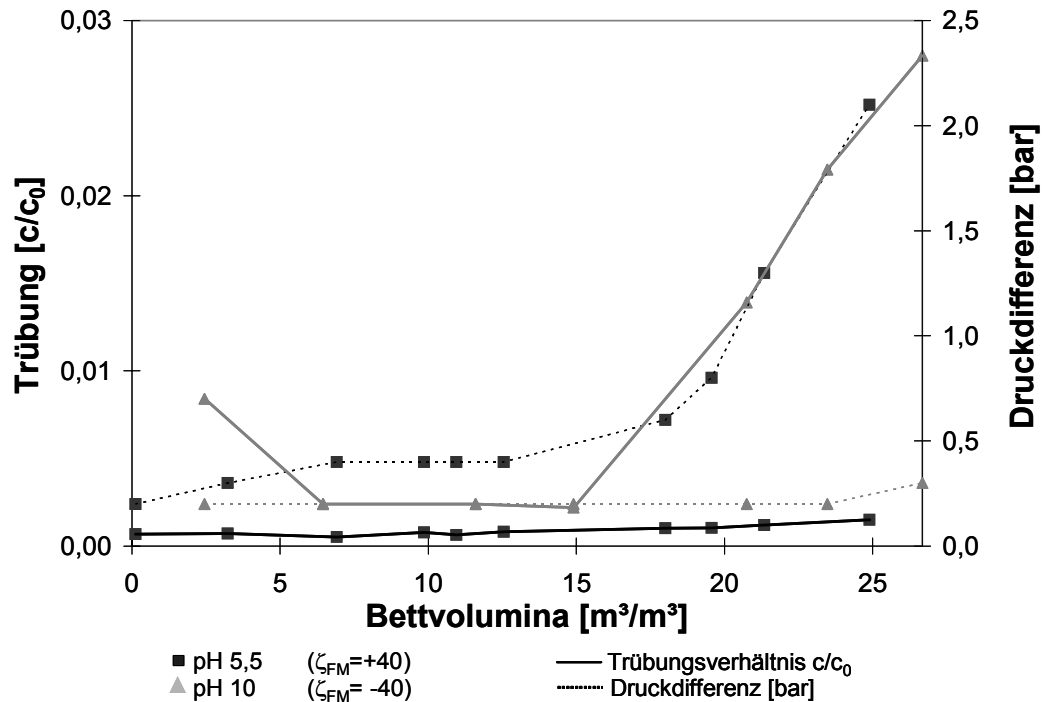


Abb. 6-4: Versuchsergebnisse bei Änderung des pH-Wertes der Modelltrübe

6.1.1.3 Einfluss der mittleren Korngröße und der Partikelgrößenverteilung auf das Filtrationsergebnis

Aufgrund der geringen Reichweite der elektrokinetischen Wechselwirkungen ist zu vermuten, dass durch eine präzise Abstimmung der **mittleren Partikelgröße** des Filtermittels eine **Optimierung der Poren** möglich ist, wodurch das Filtrationsergebnis maßgeblich beeinflusst wird. Aufgrund der sehr breiten Porenverteilung – die durch die Partikelgrößenverteilung vorgegeben wird – füllen kleinere Partikel des Filtermittels dessen Hohlräume auf, siehe **Abb. 6-5 A**. Der zur Einlagerung von suspendierten Partikeln zur Verfügung stehende Hohlraum ist bei inhomogenen Packungen entsprechend reduziert, weshalb deren Kapazität gering ist. Teilweise sind die Hohlräume zu eng, um das suspendierte Partikel passieren zu lassen. Die dadurch auftretende partielle Oberflächenfiltration ermöglicht zwar einen hohen Rückhalt, jedoch ist die Leistungsfähigkeit des Filtermittels hinsichtlich der Permeabilität beeinträchtigt. Bei einer homogenen Packung sind die Poren gleich groß und durch die höhere Porosität hat das Filtermittel auch eine hohe Kapazität, vgl. **Abb. 6-5 B**.

Um die Neigung des Materials des Filtermittels eine Oberflächenfiltration aufgrund zu enger Poren zu begünstigen auszuschließen, wird die Abhängigkeit des Rückhaltes von der Partikelgröße sowie der Partikelgrößenverteilung ermittelt. Die Homogenität der Poren wird durch

Einengung der Partikelgrößenverteilung mittels Siebung erzeugt. Entsprechend den vom Hersteller angebotenen Analysesieben wurden fünf homogene Fraktionen eingestellt. Wie **Tab. 6-1** zeigt, steigt die Porosität einer homogenen Fraktion gegenüber der inhomogenen Packung um 20 % von $\varepsilon_{FM} = 0,34$ auf 0,4 an.

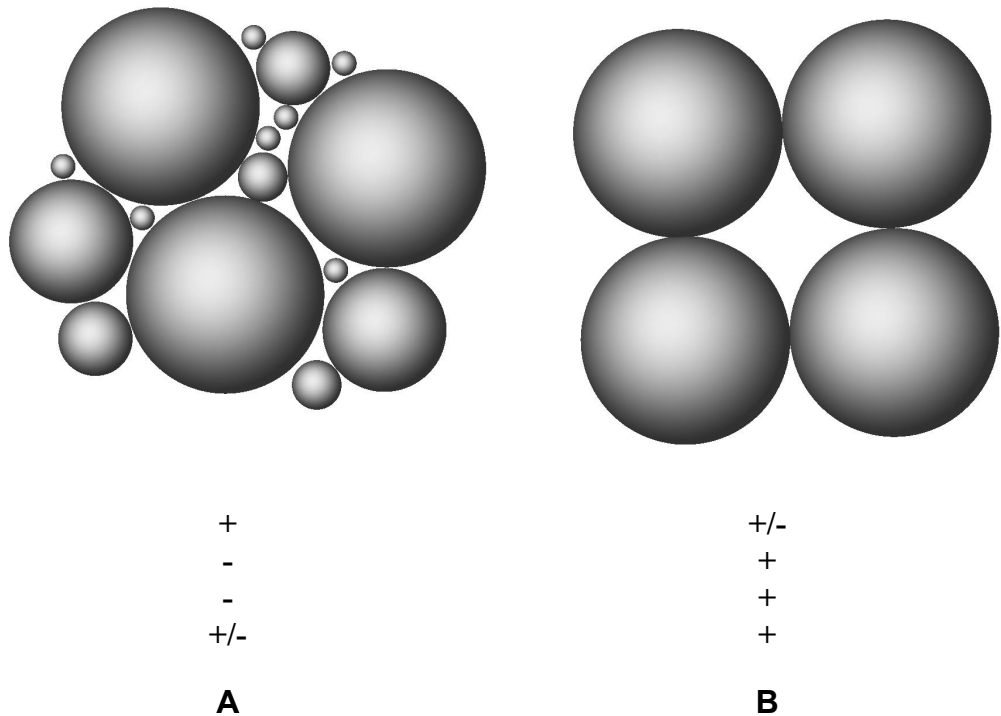


Abb. 6-5: Vergleich inhomogene (A) und homogene (B) Packung

Tab. 6-1: Korngrößenbereiche und Porositäten der einzelnen Siebfractionen FS 900 S

Fraktion Nr.	Korngrößenbereich [µm]	Porosität [-]
Ungesiebt	0 - 500	0,34
Ohne Fein-/Grobkorn	50 - 355	0,35
F1	100 – 150	0,38
F2	150 – 200	0,40
F3	200 – 250	0,40
F4	250 – 300	0,40
F5	300 – 355	0,40

Für diese Versuche wird wiederum eine Modelltrübe aus 0,1 w % *s. carlsbergensis* verwendet. Aufgrund der Ergebnisse der bisherigen Versuchsreihen wird im Folgenden nur noch der Feldspat FS 900 S untersucht, da er im normalen pH-Lebensmilieu der meisten Mikroorganismen²² ein negatives Zetapotential aufweist und zuverlässigere Filtrationsergebnisse ermöglicht als der Ionenaustauscher TP 208.

Abb. 6-6 zeigt die Ergebnisse der Beladungsversuche der genannten Fraktionen. Es zeigt sich, dass Fraktion F1 und F2 zuvor nahezu 100 % Rückhalt erreichen, wobei der Druck jedoch im Zeitverlauf stark schwankt und bei der Fraktion F1 auf 0,3 bar ansteigt. Dies deutet darauf hin, dass bei dieser Fraktion der dominante Filtrationsmechanismus die Oberflächenfiltration ist. Bei den Fraktionen F3 bis F5 steigt die Trübung an, während der Druck konstant bei 0,2 bar bleibt, weshalb als Filtrationsmechanismus eine Tiefenfiltration vermutet wird. Probenahmen im Schüttbett zeigen, dass bei den Fraktionen F1 und F2 eine Oberflächenfiltration erfolgte und bei den gröberen Fraktionen eine Tiefenfiltration. Allerdings nimmt bei diesen der Rückhalt stark ab, d.h. viele suspendierte Partikel passieren die Poren, ohne an das Filtermittel antransportiert und abgelagert zu werden.

Die Versuche zeigen, dass die Leistung der Einzelfraktionen fast 50 % geringer ist als die der Gesamtfraktion. Da es sich bei dem Feldspat um ein Naturprodukt handelt, sind die Partikel keine idealen Kugeln, sondern vielmehr Vielecke. Die Porenstruktur ist daher ebenfalls nicht ideal, und es kann zur Ausbildung besonders großer Poren kommen, die durch die Siebung in die Fraktionen nun nicht mehr durch kleinere Partikel gefüllt werden. Diese großen Poren lassen die Hefen schneller passieren, und aufgrund der geringen Schüttbetthöhe ist die statistische Abscheiderate sehr gering. Die Summe dieser Einflüsse sorgt für die geringere Filtrationsleistung der Einzelfraktionen gegenüber der Gesamtfraktion. Eine Möglichkeit, die Porenstruktur weiter zu optimieren, besteht darin, die großen Poren gezielt mit einem ca. 30-40 % kleineren Partikel zu füllen. Der Durchmesser der Poren wird geringer als bei den Einzelfraktionen, und auch die Porosität wird geringfügig reduziert. Durch die gezielte Auswahl der Partikel und die gewählte Homogenität der Packung wird die Ausbildung besonders gleichförmiger Poren erreicht, vgl. **Abb. 6-7**. Dadurch sollten die Kapazität des Schüttbetts sowie dessen Rückhalt hoch sein und zu einem guten Fluss bei gleichzeitig niedrigem Druckverlust führen.

²² Die meisten Mikroorganismen weisen ein negatives Zetapotential auf, vgl. auch Kapitel 5.

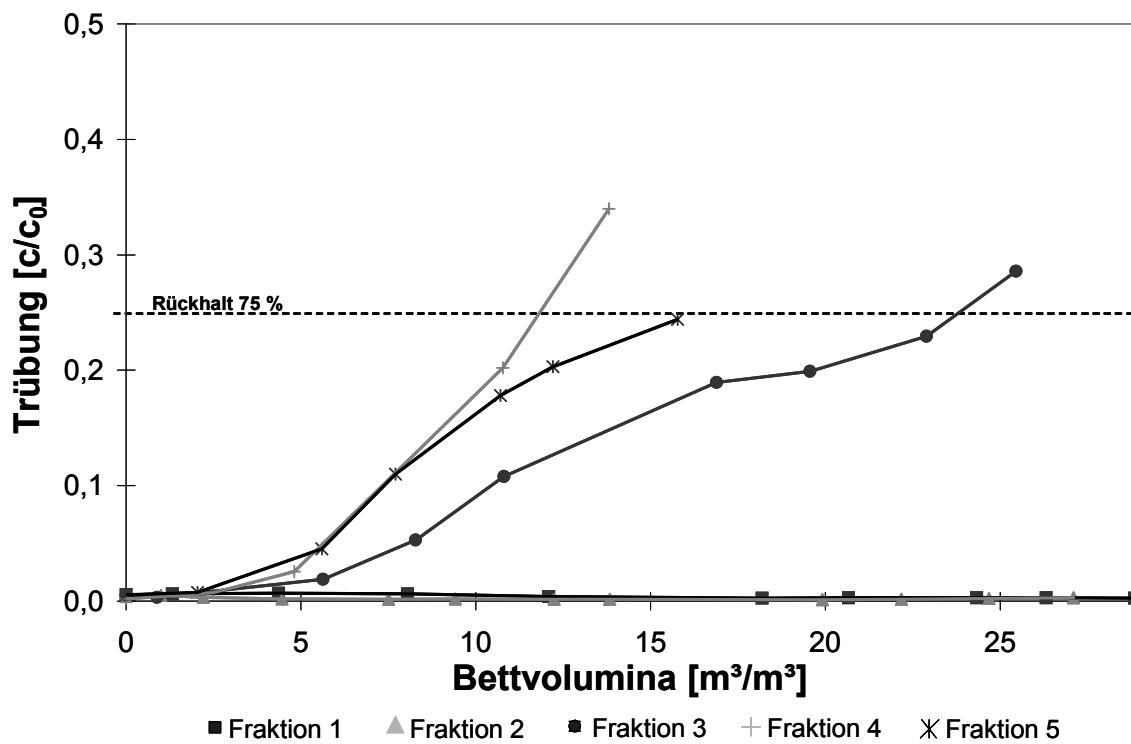
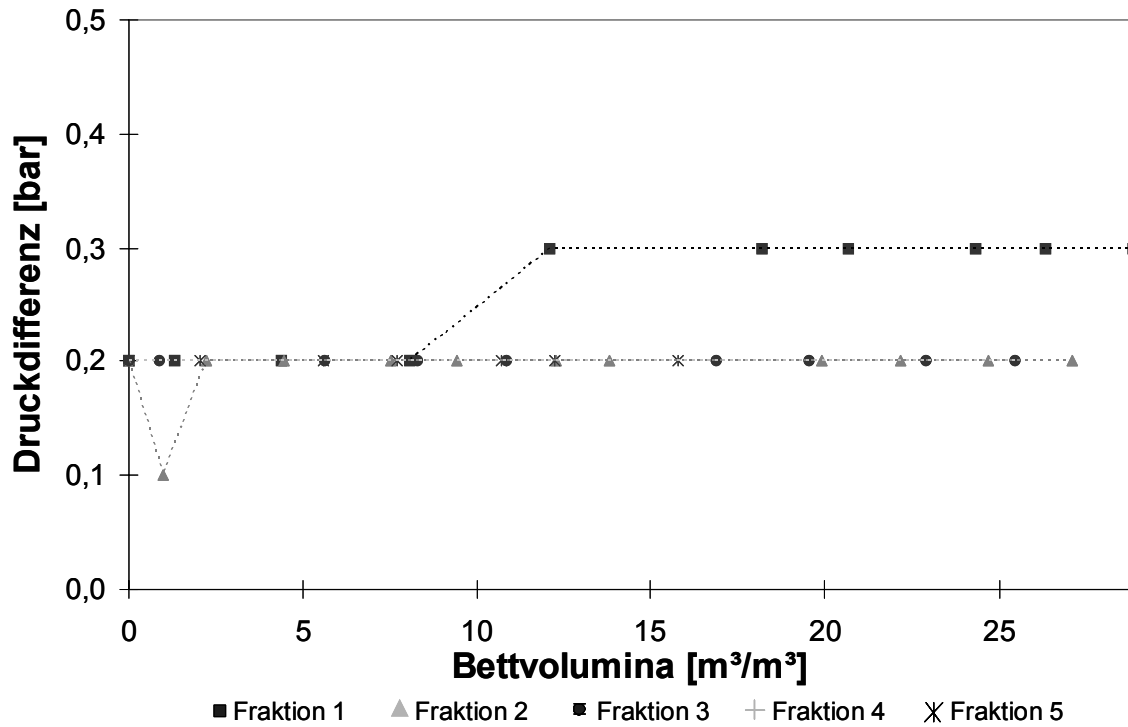


Abb. 6-6: Vergleich Fraktionen Feldspat FS 900 S,
Druckdifferenzen (oben), Trübungsreduktion (unten)

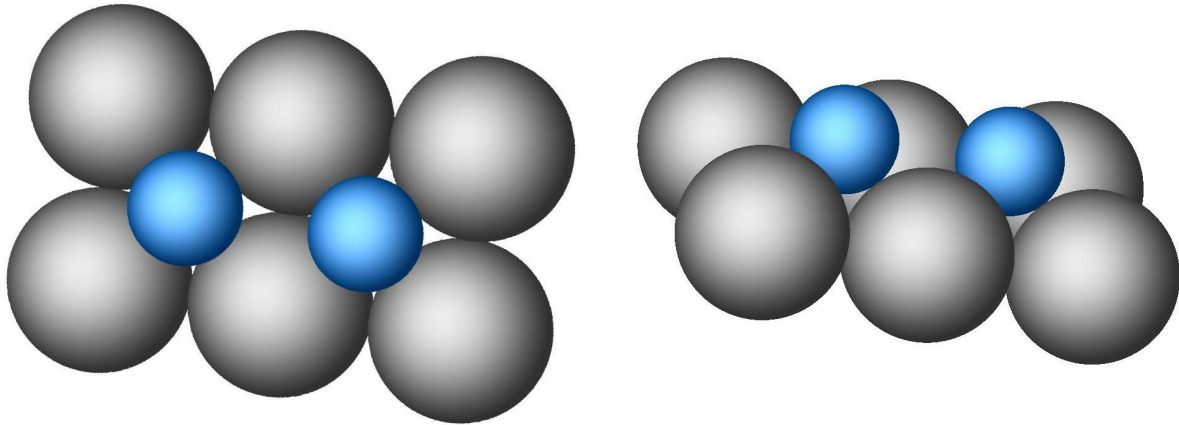


Abb. 6-7: Optimierte homogene Packung (Idealvorstellung)

Um die optimale Kornfraktion bzw. Porenstruktur weiter einzuengen, werden Mischfraktionen aus den in den obigen Versuchen am besten geeigneten Fraktionen 2 und 3 sowie den Fraktionen 3 und 4 hergestellt. Die Mischung der Fraktionen erfolgte im Verhältnis 1:1 (w). Die Porosität nimmt gegenüber den Einzelfraktionen geringfügig ab, s. **Tab. 6-2**.

Tab. 6-2: Korngrößenbereiche der Mischfraktionen FS 900 S

Fraktion Nr.	Korngrößenbereich [µm]	Porosität [-]
F2:F3	150 - 250	0,39
F3:F4	200 – 300	0,38

Die Ergebnisse dieser Beladungsversuche zeigt **Abb. 6-8**. Bei beiden Fraktionen beträgt die Druckdifferenz konstant 0,2 bar, wobei die Mischung der Fraktionen F3 und F4 trotz geringerer Porosität eine höhere Hefeaufnahmekapazität hat. Die Mischung der Fraktionen F2:F3 zeigt eine geringere Leistung als Fraktion F3:F4. Dies kann darauf zurückgeführt werden, dass es sich – wie oben bereits diskutiert – bei den Feldspatpartikeln nicht um vollständig ideal runde Kugeln handelt, und daher bei Fraktion F2:F3 aufgrund der Partikelstruktur die entstehenden Hohlräume größer sind als bei der Fraktion F3:F4. Bei der Fraktion F2:F3 kann es zudem der Fall sein, dass eine geringere Anzahl an für die Ablagerung der Hefezellen geeigneten Hohlräumen zur Verfügung steht und das Schüttbett daher schneller erschöpft ist. Entsprechend werden mit dieser Fraktion weniger Hefezellen abgetrennt, die Filterstandzeit ist nicht so hoch und die Filtratqualität ist schlechter als bei Fraktion F3:F4. Die letztere zeigt eine Leistung von knapp 25 m³/m³, ohne dass Anzeichen einer Oberflächenfiltration auftreten. Die

Filtratrübung ist zwar mit 75-80 % Rückhalt gegen Ende der Beladung schlechter als bei der Gesamtfraktion mit 80-85 %, allerdings ist der Druckverlust stabil und steigt während der Versuchsdauer nicht an. Diese Fraktion entspricht damit den Entwicklungszielen des Verfahrens sehr gut. Vor dem Hintergrund dieser Beobachtungen wird deutlich, dass durch **Einstellen der optimalen Porengröße** über den mittleren Partikeldurchmesser des Filtermittels eine **Qualitätssteigerung der Filtrationsergebnisse** möglich ist.

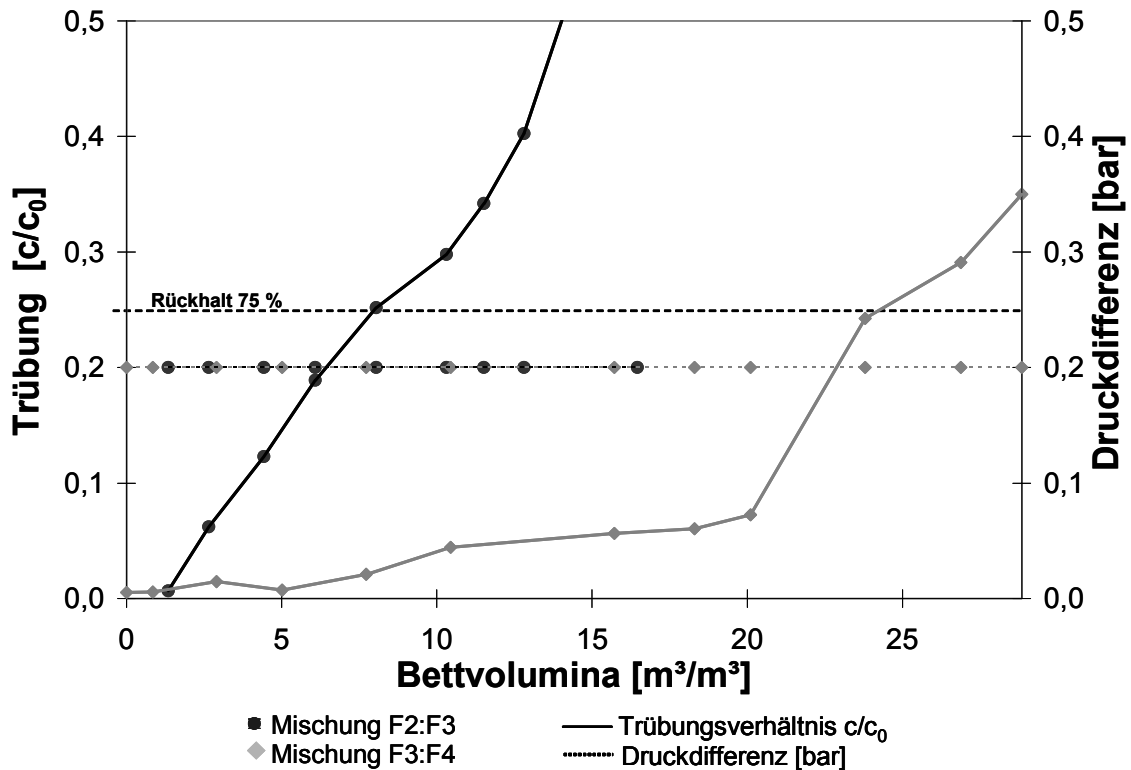


Abb. 6-8: Vergleich Mischfraktionen FS 900 S

6.1.1.4 Ermittlung des Einflusses der Ionenkonzentration durch Untersuchungen bei verschiedenen Salzgehalten der Modelltrübe

In der Literatur, u.a. [CHANG/VIGNESWARAN, 1990], [LIN ET.AL., 2003], wird häufiger angeführt, dass die Dicke der elektrolytischen Doppelschicht und damit das Zetapotential und dessen Wirkung eine starke Abhängigkeit vom Gehalt und der Art der Ionen in der Lösung aufweist. Es wird hier angenommen, dass elektrokinetische Wechselwirkungen nur bei geringen Leitfähigkeiten deutlich wirksam sind. Andere Autoren wiederum bemerken keine Abhängigkeit des Zetapotentials und der Filtrationsergebnisse von der **Leitfähigkeit des Elektrolyten**

[CHANG/ROBERTSON, 1967]. Für die Überprüfung einer derartigen Abhängigkeit werden Versuche mit verschiedenen Salzgehalten der Modelltrübe durchgeführt.

Für die Versuche wurde eine Modelltrübe aus 0,1 w % *s. cerevisiae* mit Kochsalz (NaCl) als Elektrolyt eingesetzt. In diesem Fall wurde die Bäckerhefe als Modellorganismus ausgewählt, da sie in gereinigter Form erhältlich ist und keine weiteren Salze in die Modelltrübe einträgt. Verglichen wurden Trüben mit

- geringem Salzgehalt (25 mS/m),
- mittlerem Salzgehalt, Bereich Trinkwasser (100, 500, 1000 mS/m) und
- hohem Salzgehalt, Bereich Brack- und Meerwasser (5000, 10.000, 20.000 mS/m).

Als Filtermittel werden die beiden im vorhergehenden Abschnitt untersuchten Mischfraktionen des Filtermittels Feldspat FS 900 S verwendet. Es ist anzumerken, dass die Ergebnisse bei einer Leitfähigkeit von 25 mS/m sich von denen der vorhergehenden Versuche deshalb unterscheiden, da eine andere Hefe eingesetzt wird. Diese Hefe hat einen kleineren Durchmesser ($D_s = 5 \mu\text{m}$) und weist außerdem ein stärkeres Zetapotential auf als die Bierhefe ($D_s = 7 \mu\text{m}$). Die Änderungen der Eigenschaften des suspendierten Partikels wirken sich – wie im Folgenden zu sehen ist – überwiegend auf eine verbesserte Abscheidung in Fraktion F2:F3 aus. Der Rückhalt der gröberen Fraktion F3:F4 ist hingegen schlechter, da die kleinere Hefeart in den deutlich zu großen Poren nicht zurückgehalten werden können. Diese Beobachtungen verdeutlichen erneut die Notwendigkeit, die Porengröße exakt auf den abzutrennenden suspendierten Partikel abzustimmen.

Bei beiden Mischfraktionen bleibt die Druckdifferenz während der Filtrationsversuche konstant bei $\Delta p = 0,3 \text{ bar}$. Bei der kleineren Mischfraktion F2:F3 (vgl. **Abb. 6-9**) zeigt sich, dass die Trüben mit den mittleren Leitfähigkeiten (100 und 500 mS/m) geringere Filterstandzeiten und schlechtere Filtrationsergebnisse aufweisen als diejenige mit niedriger Elektrolytkonzentrationen (25 mS/m), die bisher für die Versuche verwendet wurde. Mit weiter steigenden Salzgehalten verbessern sich die Filtratqualität und die Filterstandzeit wieder, bis der höchste Salzgehalt sogar bessere Leistungen zeigt als die Trübe mit der geringen Leitfähigkeit.

Bei der gröberen Fraktion F3:F4 (s. **Abb. 6-10**) zeigen ausschließlich die beiden Modelltrüben mit den geringen Salzgehalten eine schlechte Abtrennleistung. Mit zunehmendem Salzgehalt in der Trübe nimmt die Filtratqualität deutlich zu, und auch die Filterstandzeit ist größer.

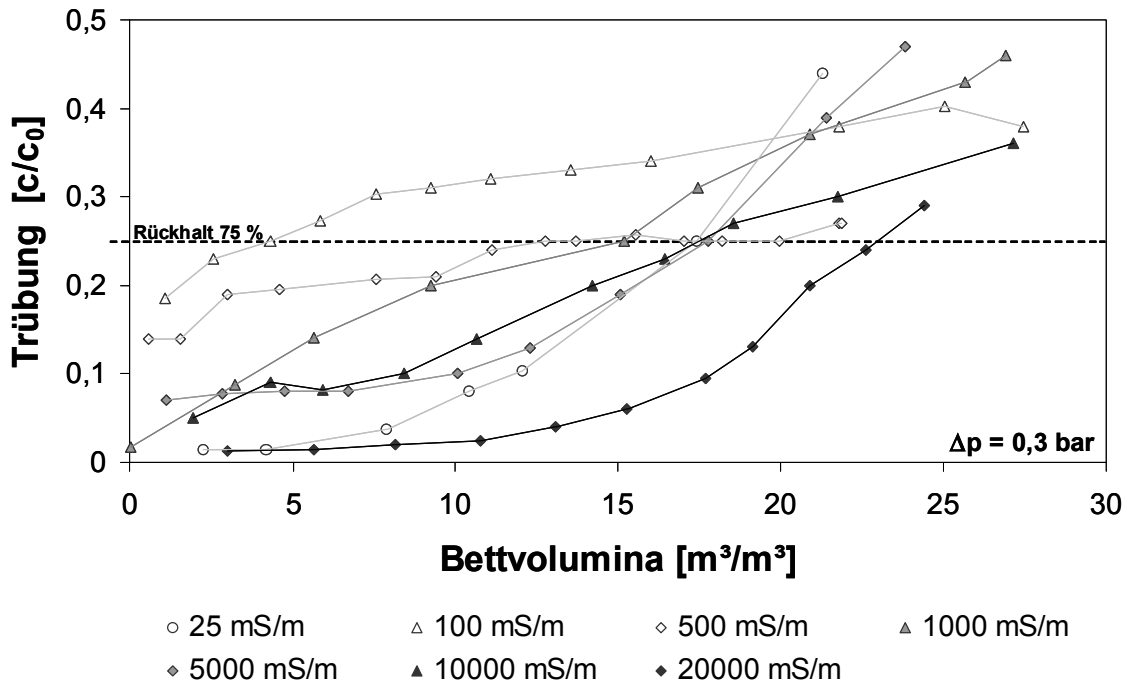


Abb. 6-9: Vergleich der Filtrationsergebnisse der verschiedenen Elektrolyte
FS 900 S - Fraktionen F2:F3

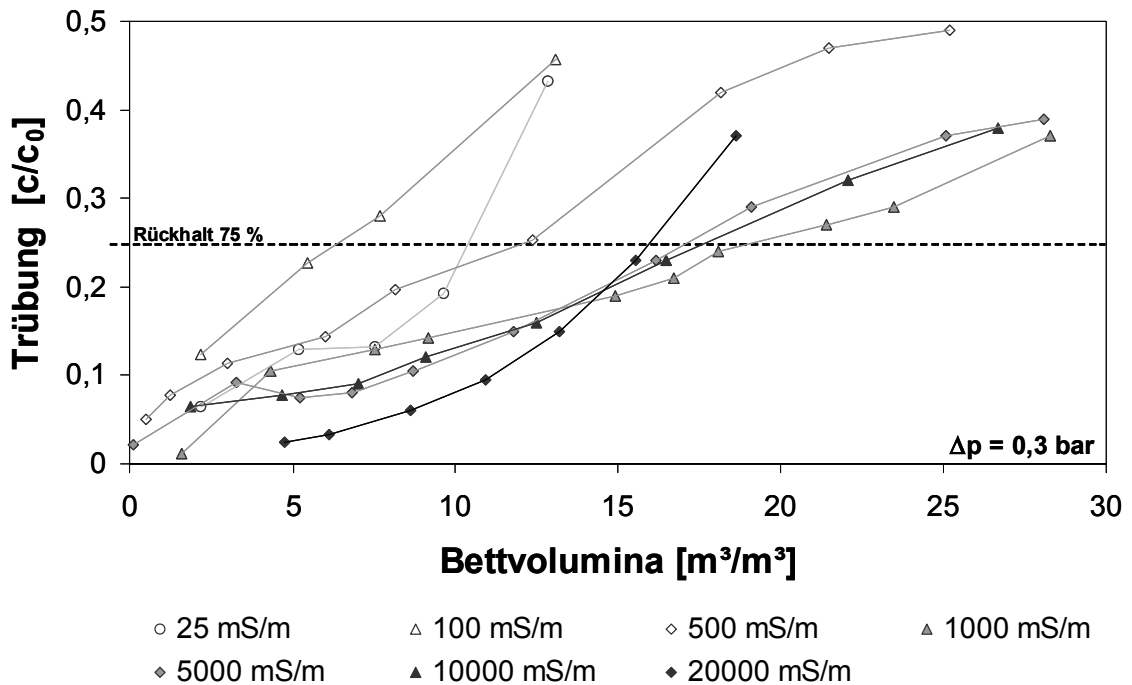


Abb. 6-10: Vergleich der Filtrationsergebnisse der verschiedenen Elektrolyte
FS 900 S - Fraktionen F3:F4

Wird die Trübung als Funktion der Leitfähigkeit der Modelltrübe für die Fraktion F2:F3 für ausgewählte Bettvolumina aufgetragen, so zeigt sich, dass die Reinigungsleistung mit zunehmender Leitfähigkeit zunimmt, vgl. **Abb. 6-13**.

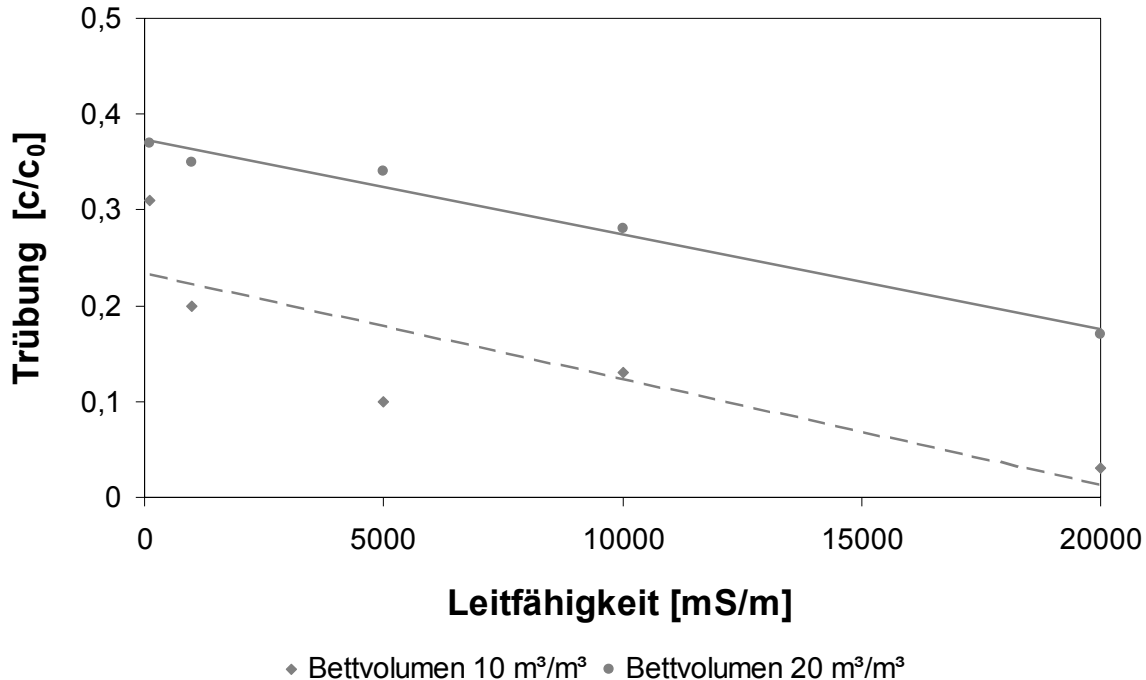


Abb. 6-11: Trübung als Funktion der Leitfähigkeit der Modelltrübe bei einem Bettvolumen von 10 bzw. 20 m³/m³ (Fraktion F2:F3)

Bei der Filtration der einzelnen Modelltrüben kann **unabhängig** von der **Elektrolytkonzentration** ein **Rückhalt** von mehr als **75 %** erzielt werden, was den Zielen einer **Vorfiltrationsstufe** genügt. Aus den Versuchen kann geschlossen werden, dass die Ionenkonzentration des Elektrolyten die Filtration nicht negativ beeinflusst, da geringe und hohe Salzgehalte zu ähnlichen Filtrationsergebnissen führen. Aufgrund der durchgeführten Untersuchungen lässt sich ein Widerspruch zu den in der Literatur aufgeführten Ergebnissen feststellen: Eine zunehmende Leitfähigkeit führt zu einer (fast) linearen Verringerung der Trübung. Durch höhere Elektrolytkonzentrationen kann das Filtermittel mit der geringeren mittleren Partikelgröße F2:F3 sogar deutlich ertüchtigt werden. Lediglich Salzgehalte im Trinkwasserbereich zeigen bei der größeren Mischfraktion deutlich schlechtere Ergebnisse als die Fraktion F2:F3, hier beträgt der Rückhalt weniger als 75 %.

Da in den durchgeführten Versuchen der **Einfluss des Zetapotentials** auf die **Filtrationsergebnisse bestätigt** werden konnte, erfolgt nun die Überprüfung der theoretischen Beschrei-

bung des Filtrationsprinzips durch die neu definierten Kennzahlen. Dazu werden die dimensionslosen Kennzahlen zur Beschreibung der elektrokinetischen Wechselwirkungen im Schüttbett für die durchgeführten Versuche bestimmt und die erhaltenen Ergebnisse diskutiert. Es wird überprüft, ob die elektrokinetische Filtrationskennzahl für eine Berechnung der benötigten mittleren Partikelgröße des Filtermittels und damit für eine Übertragung auf andere Systeme geeignet ist. Im Anschluss wird eine Filtrationsgleichung betrachtet und anhand eines geeigneten Parameters an die Filtration unter Berücksichtigung der elektrokinetischen Effekte angepasst.

6.1.2 Diskussion der dimensionslosen Kennzahlen anhand der Filtrationsergebnisse

Die Ergebnisse der Berechnung der dimensionslosen Kennzahlen für die durchgeführten Versuche gibt **Tab. 6-4** wieder. Es zeigt sich, dass die Kennzahlen, die ein gut funktionierendes Filtersystem beschreiben (d.h. in der Tab. 6-4 mit + oder +/- bewertet wurden) in den folgenden Größenordnungen liegen müssen (**Tab. 6-3**):

Tab. 6-3: Größenordnungen der durch die Filtrationsversuche ermittelten Kennzahlen

Kennzahl		Größenordnung
Π_1	Dimensionslose Geometrie Kennzahl	0,03 – 0,06
Π_2	Dimensionsloses Zetapotential	< 0,5
Π_3	Eulerzahl	> $4 \cdot 10^9$
Π_4	Reynoldszahl	<0,03
Π_5	Elektrokinetische Filtrationskennzahl (EFK)	> 0,005

Tab. 6-4: Ergebnisse der Berechnung der dimensionslosen Kennzahlen aus den Filtrationsversuchen

Versuche	Ergebnisse des Filtrationsversuches				Kennzahlen					
	Δp [bar]	c/c_0	m^3/m^3	Filtrationsart	Bewertung	$\Pi_1 = \frac{D}{D_{100}}$	$\Pi_2 = \frac{\Delta p}{\rho \cdot v \cdot \mu}$	$\Pi_3 = \frac{c_{100} \cdot D_{100} \cdot \mu}{D_{100} \cdot \Delta p \cdot v}$		
Alle Filtermittel (6.1.1)										
TP 208	0,2	0,02	>25	Tiefenfiltration	+	0,06	2,00	4.154.262.246	0,01	0,001
MN/Y	> 1,0	0,004	<10	Oberflächenfiltration	-	0,06	-0,10	20.771.311.229	0,01	-0,005
FS 900 S	0,3	0,025	>25	Tiefenfiltration	+	0,04	0,22	6.231.393.369	0,01	0,005
pH-Shift (6.1.2)										
MN/Y - pH 5,5	> 1,5	<0,001	>20	Oberflächenfiltration	-	0,06	-0,10	14.539.917.860	0,01	-0,007
MN/Y - pH 10	0,3	0,02	>20	Tiefenfiltration	+	0,06	0,10	5.192.827.807	0,01	0,020
Kornfraktionen (6.1.3)										
Einzelfraktionen										
FS 900 S - F1	0,3	<0,01	>25	Oberflächenfiltration	-	0,06	0,24	6.231.393.369	0,01	0,007
FS 900 S - F2	0,3	<0,01	>25	Oberflächenfiltration	-	0,04	0,24	6.231.393.369	0,01	0,005
FS 900 S - F3	0,2	0,1	20	Tiefenfiltration	+	0,03	0,24	4.154.262.246	0,02	0,005
FS 900 S - F4	0,2	0,2	12	Tiefenfiltration	+/-	0,03	0,24	4.154.262.246	0,02	0,004
FS 900 S - F5	0,2	0,2	12	Tiefenfiltration	+/-	0,02	0,24	4.154.262.246	0,02	0,004
Mischfraktionen										
FS 900 S - F2:F3	0,2	<0,2	<10	Tiefenfiltration	+/-	0,04	0,24	4.154.262.246	0,01	0,006
FS 900 S - F3:F4	0,2	<0,1	25	Tiefenfiltration	+	0,03	0,24	4.154.262.246	0,02	0,005
Salzgehalte (6.1.4)										
FS 900 S - F2:F3; Leitfähigkeit [mS/m]										
25	0,3	<0,2	17	Tiefenfiltration	+/-	0,03	0,47	6.231.393.369	0,01	0,008
100	0,3	0,3	<10	Tiefenfiltration	-	0,03	0,47	6.231.393.369	0,01	0,033
500	0,3	0,25	20	Tiefenfiltration	+/-	0,03	0,47	6.231.393.369	0,01	0,163
1000	0,3	0,25	15	Tiefenfiltration	-	0,03	0,47	6.231.393.369	0,01	0,326
5000	0,3	0,15	17	Tiefenfiltration	+/-	0,03	0,47	6.231.393.369	0,01	1,632
10000	0,3	0,15	17	Tiefenfiltration	+/-	0,03	0,47	6.231.393.369	0,01	3,264
20000	0,3	<0,1	>20	Tiefenfiltration	+	0,03	0,47	6.231.393.369	0,01	6,528
FS 900 S - F3:F4; Leitfähigkeit [mS/m]										
25	0,3	<0,2	10	Tiefenfiltration	-	0,02	0,47	6.231.393.369	0,02	0,007
100	0,3	>0,3	<10	Tiefenfiltration	-	0,02	0,47	6.231.393.369	0,02	0,026
500	0,3	>0,25	12	Tiefenfiltration	-	0,02	0,47	6.231.393.369	0,02	0,131
1000	0,3	0,15	20	Tiefenfiltration	+	0,02	0,47	6.231.393.369	0,02	0,261
5000	0,3	0,2	17	Tiefenfiltration	+/-	0,02	0,47	6.231.393.369	0,02	1,306
10000	0,3	0,2	17	Tiefenfiltration	+/-	0,02	0,47	6.231.393.369	0,02	2,611
20000	0,3	0,15	17	Tiefenfiltration	+/-	0,02	0,47	6.231.393.369	0,02	5,222

Für die Ermittlung des mittleren Durchmessers des Filtermittels zur Abtrennung eines suspendierten Partikels müssen diese Kennzahlen²³ in den genannten Bereichen vorliegen. So können auch die schlechten Ergebnisse der Filtrationsversuche der Fraktion F3:F4 bei den Versuchen mit den unterschiedlichen Salzgehalten (Abschnitt 6.1.1.4) erklärt werden. Im Gegensatz zu dem Versuch in Abschnitt 6.1.1.3, in dem diese Fraktion hervorragende Ergebnisse brachte, waren die Ergebnisse bei den niedrigen und mittleren Salzgehalten ausgesprochen schlecht. Die in den Versuchen zur Korngrößenverteilung eingesetzte Hefe *s. carlsbergensis* ist mit einer mittleren Partikelgröße von 7 µm etwa 30 % größer als die bei den Versuchen in Abschnitt 6.1.1.4 eingesetzte Hefe *s. cerevisiae*. Die Kennzahl $\Pi_1(\text{F3:F4}) = 0,02$ ist damit außerhalb des Definitionsbereiches. Wird die in den Versuchen mit der *s. carlsbergensis* ermittelte Kennzahl $\Pi_1(\text{F3:F4}) = 0,028$ konstant gehalten, so kann die optimale mittlere Partikelgröße für die Hefe *s. cerevisiae* bei sonst vergleichbaren Versuchsbedingungen bestimmt werden:

$$D_{\text{FM}}^{5\mu\text{m}} = \frac{D_{\text{S}}}{\Pi_1^{7\mu\text{m}}} = \frac{5\mu\text{m}}{0,028} = 179\mu\text{m} \quad (\text{Gl. 6-1})$$

Vor dem Hintergrund dieses Ergebnisses ist zu erwarten, dass die Fraktion F2 die besten Filtrationsergebnisse für die Filtration von *s. cerevisiae* aus der Modelltrübe liefert. Entsprechende Filtrationsversuche mit der Fraktion F2 zeigen, dass gute Filtrationsergebnisse mit einem Bettvolumen von $V_{\text{B}} > 15 \text{ m}^3/\text{m}^3$ bei einer Druckdifferenz von $\Delta p = 0,2 \text{ bar}$ und $c/c_0 < 0,25$ erreicht werden können. Bei dieser Berechnung ist nicht berücksichtigt worden, dass sich neben dem Durchmesser des suspendierten Partikels auch dessen Zetapotential verändert hat. Daher kann davon ausgegangen werden, dass es sich bei dem Filtermitteldurchmesser, der über die **dimensionslose Geometrie Kennzahl Π_1** bestimmt werden kann, um den **geometrisch notwendigen Mindestdurchmesser** (vgl. Kapitel 4) handelt, der kleiner ist als der Durchmesser unter Berücksichtigung der elektrokinetischen Repulsion.

Liegen die ersten vier Kennzahlen stets gleichzeitig in den genannten Größenordnungen vor, so können sie für eine Maßstabsübertragung eingesetzt werden. Da nicht zwangsläufig davon ausgegangen werden kann, dass immer ein Filtermittel zur Verfügung steht, das bei wechseln-

²³ Für die Auswertung wurde das Ergebnis des TP 208 der Kennzahl Π_2 invertiert betrachtet, da in diesem Fall $\zeta_{\text{S}} > \zeta_{\text{FM}}$. Für eine bessere Vergleichbarkeit der Ergebnisse wird im Folgenden stets das geringere Zetapotential in den Zähler eingesetzt.

dem Zetapotential des suspendierten Partikels konstante Werte der Kennzahl Π_2 ermöglicht, soll überprüft werden, ob es möglich ist, mit der elektrokinetischen Filtrationskennzahl Π_5 die Größenordnung des benötigten Durchmessers eines vorhandenen Filtermittels zu bestimmen. Die Möglichkeit der Bestimmung des optimalen mittleren Partikeldurchmessers mit der elektrokinetischen Filtrationskennzahl soll anhand der Versuche bei unterschiedlichen Salzgehalten überprüft werden. Die Definition der elektrokinetischen Kennzahl Π_5 erfolgte in Abhängigkeit von der Leitfähigkeit der Trübe. Dies bedeutet, dass sich ihre gültige Größenordnung mit der Änderung der Leitfähigkeit der Trübe ändert (vgl. Tab. 6-4). Entsprechend den Resultaten jener Versuchsreihe bei den verschiedenen Salzgehalten muss für die Dimensionierung des Filtermittels der Größenbereich der dimensionslosen elektrokinetischen Filtrationskennzahl nach **Tab. 6-5** ausgewählt werden.

Tab. 6-5: Größenordnungen der Kennzahl Π_5 bei verschiedenen Elektrolyten

Leitfähigkeit [mS/m]	Größenordnung EFK (Π_5)
< 10	< 0,005
10 - 100	0,005 – 0,02
100 - 1000	0,02 – 0,2
1000 - 10000	0,2 – 2
> 10000	> 2

Abb. 6-12 zeigt die elektrokinetische Filtrationskennzahl in Abhängigkeit von der Leitfähigkeit des Elektrolyten als doppellogarithmische Darstellung. Für eine bessere Anschaulichkeit wurde die Leitfähigkeit mit der Leitfähigkeit von Trinkwasser ($\sigma_{\text{Trinkwasser}} = 250 \text{ mS/m}$) normiert. Damit ist es möglich, den Wert der elektrokinetischen Filtrationskennzahl (Π_5) bei bekannter Leitfähigkeit der Suspension abzuschätzen.

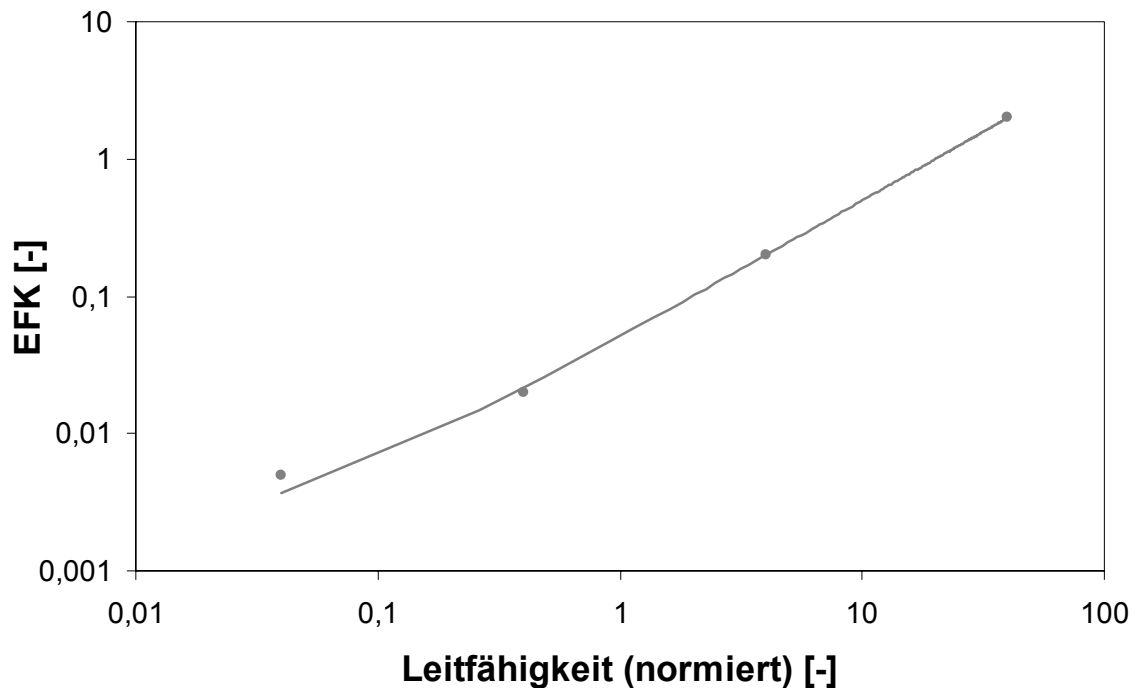


Abb. 6-12: Elektrokinetischen Filtrationskennzahl (EFK) in Abhängigkeit von der Leitfähigkeit des Elektrolyten
(normiert mit Leitfähigkeit von Trinkwasser $\sigma_{\text{Trinkwasser}} = 250 \text{ mS/m}$)

Die Anwendung der dimensionslosen elektrokinetischen Filtrationskennzahl zur Berechnung des benötigten mittleren Filtermitteldurchmessers wird exemplarisch für die Fraktion F2:F3 bei den Versuchen mit verschiedenen Salzgehalten der Trübe demonstriert. Bei der Fraktion F2:F3 (150 – 250 μm) beträgt die Leitfähigkeit bei dem Versuch mit den besten Filtrationsergebnissen $\sigma_L = 20.000 \text{ mS/m}$. Für eine Bestimmung der mittleren Filtermittelgröße muss zunächst eine geeignete Kennzahl Π_5 festgelegt werden. Dazu wird die elektrokinetische Filtrationskennzahl für die oben (Gl. 6-1) bestimmte mindestens benötigte Filtermittelgröße bei dieser Leitfähigkeit berechnet:

$$\Pi_5^{D_{\text{FM}}^{5\mu\text{m}}} = \frac{\zeta_{\text{FM}} \cdot \zeta_{\text{S}} \cdot \sigma_L}{D_{\text{FM}}^{5\mu\text{m}} \cdot \Delta p \cdot v} = 7,5 \quad (\text{Gl. 6-2})$$

Die elektrokinetische Filtrationskennzahl bei der Fraktion, die für die Filtration nicht mehr geeignet war (F3:F4) beträgt $\Pi_5 = 5,2$. Damit muss die Kennzahl zur Bestimmung der optimalen mittleren Partikelgröße bei einer Leitfähigkeit von $\sigma_L = 20.000 \text{ mS/m}$ $5,2 < \Pi_5 < 7,5$ betragen. Aus diesen Angaben kann die mittlere Partikelgröße wie folgt berechnet werden:

$$D_{FM}^{20000\text{mS/m}} = \frac{\zeta_{FM} \cdot \zeta_S \cdot \sigma_L}{\Pi_5 \cdot \Delta\rho \cdot v} = 206 \mu\text{m} \quad (\text{Gl. 6-3})$$

Dieser Wert liegt im Bereich der mittleren Partikelgröße der Fraktion F2:F3 und es ist durch die theoretische Betrachtung erklärt, warum die Filtration mit den hohen Salzgehalten bei dieser Fraktion funktionierte. Die iterative Bestimmung der mittleren Partikelgröße eines Filtermittels für ein bekanntes suspendiertes Partikel ist mit den dimensionslosen Kennzahlen Π_1 (Geometrie Kennzahl) und Π_5 (elektrokinetische Filtrationskennzahl) möglich. Über die dimensionslose Geometrie Kennzahl kann auf der Grundlage entsprechender Daten eine geeignete Filtermittelgröße vorgewählt werden, mit der die Größenordnung der elektrokinetischen Filtrationskennzahl und im Anschluss die benötigte Filtermittelgröße abgeschätzt werden kann. Bei den Iterationsschritten handelt es sich im Einzelnen um die:

- Bestimmung des mittleren Filtermitteldurchmessers in erster Näherung aus den bekannten Kennzahlen Π_1 und Π_5 ,
- Bestimmung des Gültigkeitsbereiches der erhaltenen Π_5 aus dem ermittelten Filtermitteldurchmesser,
- Bestimmung des Filtermitteldurchmessers mit der erhaltenen Π_5 .

Die Qualität der Prognose hängt stark von der Genauigkeit des vorhandenen Datenmaterials ab. Die **Tab. 6-6** zeigt die Berechnung der optimalen mittleren Filtermittelgröße in Abhängigkeit von Filtergeschwindigkeit und Zetapotential des Filtermittels. Dieser Tabelle ist die Sensitivität der theoretischen Bestimmung der Filtermittelgröße mit der elektrokinetischen Filtrationskennzahl zu entnehmen. Die Filtermittelgröße kann bei Schwankungen des Zetapotentials um ± 1 mV um 10 % und bei Schwankungen der Filtergeschwindigkeit um $\pm 0,01$ m/h um 5 % variieren, so dass eine aussagefähige Prognose möglichst exakte Daten erfordert.

Die Ergebnisse zeigen, dass die **Größenordnung des benötigten Filtermitteldurchmessers** mit den dimensionslosen Kennzahlen Π_1 und Π_5 bestimmt werden kann. Um ein gutes Filtrationsergebnis zu erhalten, ist es notwendig, die Filtergeschwindigkeit exakt einzuhalten. Neben dem Zetapotential des Filtermittels müssen außerdem die Eigenschaften wie Durchmesser und Zetapotential des suspendierten Partikels genau bekannt sein. Werden die Veränderungen der dimensionslosen Filtrationskennzahl durch die unterschiedliche Leitfähigkeit der Trübe berücksichtigt, so kann mittels dieser Kennzahl bei gegebener Filtrationsaufgabe, d.h. ein hinsichtlich

Partikelgröße und Zetapotential bekannter Trübstoff, und dem Zetapotential des Filtermittels, die benötigte mittlere Partikelgröße des Filtermittels berechnet werden. Π_5 beschreibt damit zusammen mit den anderen **dimensionslosen Kennzahlen** die **Wechselwirkungen der einzelnen Einflussparameter** in einem Filter unter Berücksichtigung **elektrokinetischer Repulsionskräfte**. Die Nutzung elektrokinetischer Repulsionseffekte führt zu einer **Optimierung des Partikelrückhalts** und damit zu einer Steigerung der Kapazität des Schüttbetts.

Tab. 6-6: Theoretisch ermittelter optimaler mittlerer Filtermitteldurchmesser in Abhängigkeit von Filtergeschwindigkeit und Zetapotential des Filtermittels

v [m/h]		σ_L [mS/m] / ζ_{FM}				
		0,24	0,25	0,26	0,27	0,28
25	-15 mV	245	235	226	218	210
20.000		189	182	175	168	162
25	-17 mV	278	267	256	247	238
20.000		214	206	198	191	184
25	-19 mV	310	298	287	276	266
20.000		240	230	221	213	205

6.1.3 Definition eines elektrokinetischen Filtrationsparameters zur Erweiterung der Carman-Kozeny-Gleichung auf Basis der experimentellen Ergebnisse

Auf Grundlage der Versuchsergebnisse soll das Filtrationsverfahren mit einer Filtergleichung beschrieben werden, wobei eine geeignete Modifikation der konventionellen Durchströmungsgleichungen Verwendung finden soll. Dieser Gleichung soll bereits eine Partikelschüttung bei zäher Durchströmung zu Grunde liegen, daher wird die Carman-Kozeny-Gleichung ausgewählt. Diese beschreibt den Druckverlust bei der Durchströmung einer porösen Schüttung, betrachtet dabei jedoch nicht die Veränderung der Porosität durch bereits abgeschiedene Partikel. Aus diesem Grund kann die Gleichung nach Carman-Kozeny einen Filter, der aus einem partikulären Schüttbett besteht – und dessen Porosität sich während der Beladung permanent verändert – nur unzureichend beschreiben. Durch die abgelagerten Partikel wird die Porosität der Schüttung verringert, und der Druckverlust steigt gegenüber dem berechneten Wert

chanismus – d.h. neben der Abscheidung durch physikalische und/oder chemische Vorgänge – auch der zur Verfügung stehenden Platz für eine Ablagerung der nachfolgenden Partikel – also Porosität und Geometrie der verbliebenen Hohlräume – eine entscheidende Rolle.

$$N = f\left(\frac{dc}{dt}, A, v, \varepsilon_{FM}, \zeta_{FM}, \zeta_S, D_{FM}, D_S\right) \quad (\text{Gl. 6-5})$$

Mit:

c:	Partikelkonzentration	[g/l]	A:	Filterfläche	[m ²]
v:	Filtergeschwindigkeit	[m/s]	ζ_{FM} :	Zetapotential des Filtermittels	[V]
ζ_S :	Zetapotential des Partikels	[V]	D_{FM} :	Durchmesser des Filtermittels	[m]
D_S :	Durchmesser des Partikels	[m]			

Durch die abgeschiedenen Partikel ändern sich die Strömungsbedingungen im Schüttbett und auch die für die Filtration benötigte Druckdifferenz. Da zwischen den suspendierten Partikeln und den Partikeln des Schüttbetts Zwickel entstehen, die nicht gefüllt werden können, gibt die Geometrie der Poren des Schüttbetts vor, wie viele Partikel abgeschieden werden können. Zusätzlich kann aufgrund des nicht verdrängbaren Haftwasseranteils im Schüttbett die Porosität nicht voll ausgenutzt werden, s. auch [HÖLTING, 1996]. Mit abnehmender Porosität steigt die für die Filtration benötigte Druckdifferenz an, so dass zunächst einzelne Partikel wieder aus dem Schüttbett gelöst und mit dem Filtrat abtransportiert werden. Sobald das Schüttbett vollständig beladen ist und keine weiteren Partikel aufnehmen kann, tritt der Durchbruch ein. Die Menge der abgeschiedenen und wieder abgelösten Partikel ist im Gleichgewicht und im Schüttbett werden keine weiteren Partikel abgeschieden, vgl. **Abb. 6-14**.

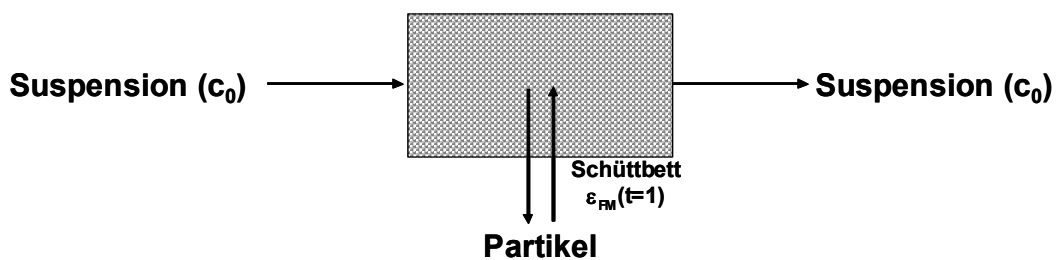


Abb. 6-14: Schüttbett im Gleichgewichtszustand (Durchbruch)

Die Porosität des Schüttbetts im Gleichgewichtszustand, d.h. am Beginn des Durchbruchs, ist abhängig vom Filtrationsmechanismus und damit von den Abscheidemechanismen, den geometrischen Bedingungen, den Strömungsbedingungen und der Druckdifferenz, s. (Gl. 6-6).

$$\varepsilon_{t=1} = f(D_{FM}, D_S, \Delta p, \frac{d\varepsilon}{dt}) \quad (\text{Gl. 6-6})$$

Aufgrund der hohen Komplexität eines derartigen Systems ist es bisher noch nicht gelungen, einen Filter und die Wirkmechanismen bzw. deren Wechselwirkungen exakt zu beschreiben, siehe Ausführungen auf S. 63 f. und auch [IVES, 1990]. Da die genauen Zusammenhänge von Partikeltransport, -anlagerung und -abscheidung nicht bekannt sind und eine vollständige Porositätsfunktion mit den vorhandenen theoretischen Modellen nicht aufgestellt werden kann, wird diese im Folgenden anhand der Versuchsergebnisse empirisch ermittelt.

Um die systembeschreibende Modifikation der Porositätsfunktion aufzustellen, wird angenommen, dass 75 % des vorhandenen Porenvolumens für die Einlagerung der Partikel genutzt werden können²⁴. Die Porosität eines Schüttbetts mit einer Ausgangsporosität von $\varepsilon_{FM} = 0,4$ beträgt entsprechend $\varepsilon_{FM} = 0,1$. Wird diese veränderte Porosität in die Carman-Kozeny-Gleichung eingesetzt (Ergebnisse s. **Tab. 6-7**), so liegen diese Berechnungen bereits in der Größenordnung der Messergebnisse.

Tab. 6-7: Vergleich zwischen gemessenen und theoretisch ermittelten Druckverlusten bei den drei eingesetzten Filtermitteln

Filtermittel	Druckverlust [bar]	Druckverlust nach Carman-Kozeny [bar]	
	Messergebnis	$\varepsilon = 0,4$	$\varepsilon = 0,1$
TP 208	0,2	$4,9 \cdot 10^{-3}$	0,71
MN/Y	1,0	$5,3 \cdot 10^{-3}$	0,77
FS 900 S	0,3	$2,3 \cdot 10^{-3}$	0,33

Diese Berechnungen zeigen auf, dass eine exaktere Beschreibung des Schüttbetts bzw. der Filterbeladung notwendig ist. Da die exakte Porosität und ihre Veränderung während der Filterbeladung nicht ermittelt werden kann, wird an dieser Stelle die Porositätsfunktion $f(\varepsilon_{FM})$ der Carman-Kozeny-Gleichung auf Grundlage der durchgeführten Filtrationsversuche modifiziert²⁵. Dabei wird der Einfluss der Porosität auf die Druckdifferenz gegenüber der Porositäts-

²⁴ Ein Teil des Porenvolumens kann aufgrund der zwischen dem Filtermittel sowie den abgeschiedenen Partikeln entstehenden Zwickeln nicht genutzt werden, ein anderer Teil steht aufgrund von Haftwassereffekten nicht zur Verfügung, vgl. auch [HÖLTING, 1996].

²⁵ Eine Aufstellung diverser Porositätsfunktionen anderer Autoren bietet [Schubert, 2003].

funktion von Carman-Kozeny etwas verringert, und anstelle der Carman-Kozeny-Konstante eine weitere Konstante zur Beschreibung der physikalisch-chemischen Eigenschaften des Schüttbetts in die Gleichung eingeführt (Gl. 6-7). Diese beschreibt den Zusammenhang zwischen Filtermittel- und Partikelgröße sowie deren Zetapotentialen. Da das Zetapotential als Summenparameter der Wechselwirkungen von Partikeloberfläche und Elektrolyt angesehen wird, sind in dieser Konstante sämtliche chemisch-physikalische Parameter zur Beschreibung der Schüttbetteigenschaften bei dieser Art der Filtration enthalten. Die Carman-Kozeny-Gleichung beschreibt die physikalischen Parameter, so dass durch Veränderung der Porositätsfunktion eine Gleichung definiert werden kann, die neben den physikalischen Einflüssen bei der Durchströmung einer porösen Schicht auch die chemisch-physikalischen Parameter bei der Filtration berücksichtigt (Gl. 6-9).

$$f(\varepsilon_{FM}) = R_{\zeta} \cdot \frac{(1 - \varepsilon_{FM})^2}{\varepsilon_{FM}^2} \quad \text{Neue Porositätsfunktion} \quad (\text{Gl. 6-7})$$

Mit der Konstanten:

$$R_{\zeta} = \frac{\Pi_2^2}{\Pi_1^3} = \left(\frac{\zeta_S}{\zeta_{FM}} \right)^2 \cdot \left(\frac{D_{FM}}{D_S} \right)^3 \quad \text{Elektrokinetische Konstante} \quad (\text{Gl. 6-8})$$

Daraus ergibt sich als **modifizierte Carman-Kozeny-Gleichung**:

$$\Delta p = v \cdot L \cdot \eta_L \cdot S_V^2 \cdot \left(\frac{\zeta_S}{\zeta_{FM}} \right)^2 \cdot \left(\frac{D_{FM}}{D_S} \right)^3 \cdot \frac{(1 - \varepsilon_{FM})^2}{\varepsilon_{FM}^2} \quad (\text{Gl. 6-9})$$

Bei Annahme gleichförmiger kugelförmiger Partikel einer Partikelgröße ergibt sich die angepasste Filtergleichung mit $S_V = 6/D_{FM}$ zu:

$$\Delta p = 36 \cdot v \cdot L \cdot \eta_L \cdot \left(\frac{\zeta_S}{\zeta_{FM}} \right)^2 \cdot \frac{D_{FM}}{D_S^3} \cdot \frac{(1 - \varepsilon_{FM})^2}{\varepsilon_{FM}^2} \quad (\text{Gl. 6-10})$$

Abb. 6-15 zeigt die Ergebnisse der Berechnung der Druckdifferenz im Filter nach (Gl. 6-10) und stellt sie den Messergebnissen und den Berechnungen der Carman-Kozeny-Gleichung gegenüber.

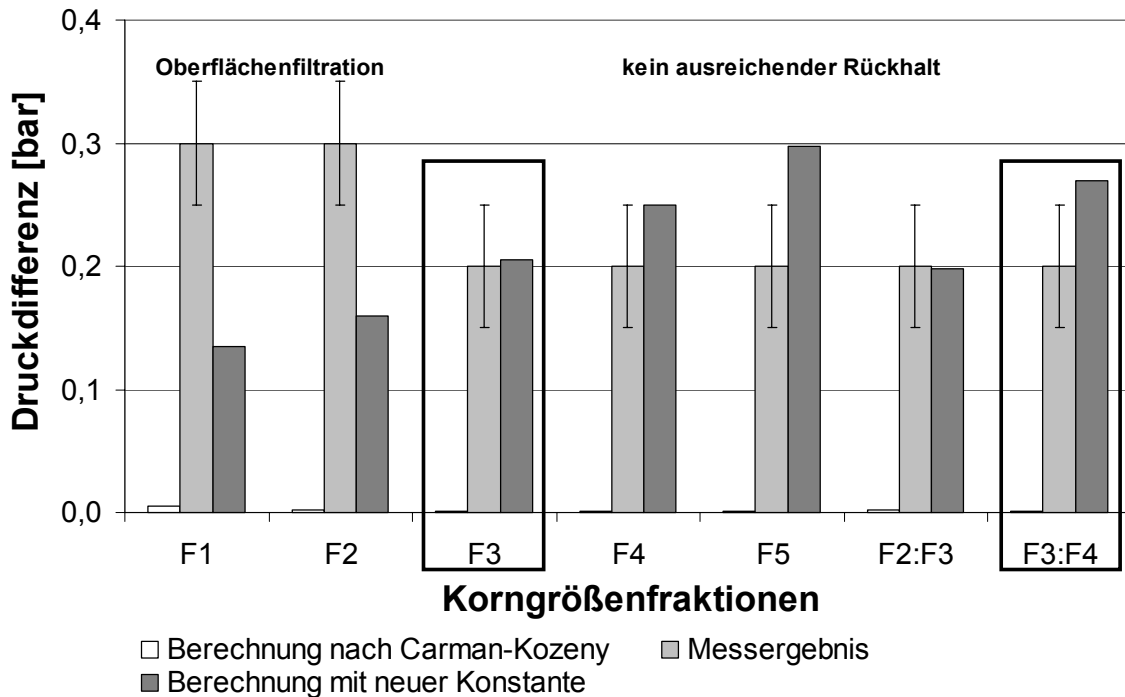


Abb. 6-15: Gegenüberstellung der gemessenen Druckverluste und der theoretisch ermittelten Werte bei den verschiedenen Fraktionen des Feldspates FS 900 S

Zwischen den Messwerten und der Berechnung mit der neuen Konstante ergeben sich Abweichungen, die darauf zurückzuführen sind, dass messtechnisch nur Werte der ersten Nachkommastelle erfasst werden können (Messgenauigkeit 0,1 bar). Außerdem wird für die Berechnung vorausgesetzt, dass es sich bei den Filtermittelpartikeln um ideal kugelförmige Partikel handelt. Da in den praktischen Untersuchungen Naturstoffe eingesetzt werden, die keine ideale Kornform aufweisen, führt dies zwangsläufig zu einer Ungenauigkeit in der durchgeführten Berechnung. Werden die berechneten Werte gerundet, so zeigt sich, dass die **Berechnung** der Druckdifferenz mit der **modifizierten Carman-Kozeny-Gleichung hinreichend genau** ist. Allerdings gilt dies ausschließlich für jene Fraktionen, bei denen das Filtrationsprinzip angewendet werden kann, also bei denen in den Filtrationsversuchen gute Filtrationsleistungen bei Tiefenfiltration erreicht werden. Dies sind bei den Versuchen mit den Feldspatfraktionen die Fraktionen F3 und F3:F4. Die Fraktionen, die in den Filtrationsversuchen schlechte Ergebnisse zeigten – d.h. Oberflächenfiltration oder keinen ausreichenden Rückhalt der Hefezellen – gehorchen definitionsgemäß dem vorgestellten Filtrationsmodell nicht und werden daher von der Filtergleichung nicht exakt beschrieben.

6.1.3.2 Vergleich der Prognosegenauigkeit bei Einsatz anderer Filtermittel

Für den Nachweis, dass die Filtration auch mit anderen Filtermitteln – die den genannten Anforderungen hinsichtlich des Zetapotentials und der mittleren Partikelgröße entsprechen – durchführbar ist, werden Filtrationssande für Vergleichsuntersuchungen verwendet. Die Versuchsbedingungen und die Versuchsergebnisse gibt **Tab. 6-8** wieder, die aus den Ergebnissen berechneten dimensionslosen Kennzahlen **Tab. 6-9**.

Tab. 6-8: Versuchsbedingungen und –ergebnisse der Vergleichsuntersuchungen mit Sanden

Filtersande	Versuchsbedingungen			Ergebnisse des Filtrationsversuches				
	D_{FM} [μm]	v [ml/h]	ζ_{FM}	Δp [bar]	c/c_0	m^3/m^3	Filtrationsart	Bewertung
Nr. 1	196	0,3	-17	0,3	<0,1	>20	Tiefenfiltration	+
Nr. 2	155	0,35	-25	0,2	<0,01	>25	Tiefenfiltration	+
Nr. 3	165	0,35	-5	0,9	<0,2	15	Tiefenfiltration	-

Tab. 6-9: Kennzahlen der Vergleichsuntersuchungen mit Sanden

Filtersande	Kennzahlen				
	Π_1	Π_2	Π_3	Π_4	Π_5
Nr. 1	0,04	0,24	4.371.142,366	0,02	0,0035
Nr. 2	0,05	0,16	2.140.967,669	0,01	0,0083
Nr. 3	0,04	0,80	9.634.354,602	0,02	0,0003

Es ist zu erkennen, dass die **Filtration mit einem Filtermittel**, das **ähnliche Merkmale** wie der in den oben verwendeten Versuchen eingesetzte Feldspat aufweist, zu **vergleichbaren Ergebnissen** führt. Die leicht erhöhte Filtrationsgeschwindigkeit verursacht geringfügig schlechtere Reinigungsergebnisse (Nr.1). Bei Einsatz eines Sandes mit höherem negativem Zetapotential

können mit einer weiter erhöhten Filtrationsgeschwindigkeit sehr gute Reinigungsergebnisse erzielt werden. Die Partikelgröße muss aufgrund der höheren Filtrationsgeschwindigkeit etwas kleiner gewählt werden (Nr.2). Bei beiden Sanden stimmen Prognose und Messergebnis gut überein, vgl. **Abb. 6-16**. Nachdem eine neue Charge des Sandes Nr.2 bezogen wurde, veränderte sich das Filtrationsverhalten dramatisch. Es wird nahezu kein Rückhalt mehr erzielt, ebenso stimmten berechneter Druck und Messergebnis nicht überein, vgl. **Abb. 6-16**. Mit einer Kontrollmessung des Zetapotentials wurde festgestellt, dass die elektrokinetischen Eigenschaften dieses Sandes sich verändert hatten, vgl. **Tab. 6-8 / Nr. 3**. Das Zetapotential ist deutlich geringer als das der vorher eingesetzten Charge. Damit steigt Π_2 über den Wert 0,5 an und liegt außerhalb des Definitionsbereiches. Die Differenz zwischen den Zetapotentialen ist somit zu gering, um die elektrokinetische Repulsion für die Filtration nutzen zu können.

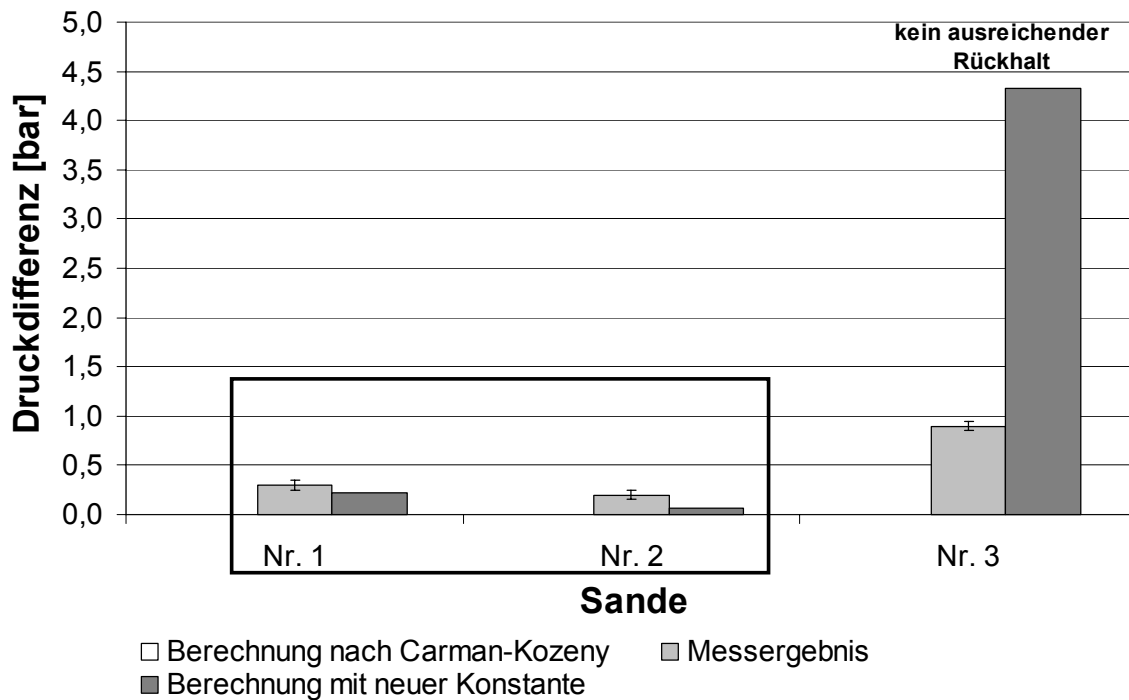


Abb. 6-16: Gegenüberstellung der gemessenen Druckverluste und der theoretisch ermittelten Werte bei den eingesetzten Filtrationsanden

Nachdem durch die Filtrationsversuche die **Gültigkeit der Ausgangsannahme** – die Optimierung einer Filtration ist durch Nutzung elektrokinetischer Repulsionskräfte möglich und geht mit der Realisierung niedriger Druckdifferenzen einher – **nachgewiesen** wurde, konnte auf der Basis dieser Ergebnisse das Filtrationsprinzip detailliert beschrieben werden. Die definierten **dimensionslosen Kennzahlen** ermöglichen die **Anpassung der Filtrationsbedingungen** ei-

ner gegebenen Filtrationsaufgabe an das **Filtrationsprinzip mit elektrokinetischer Repulsion**. Die elektrokinetische Filtrationskennzahl unterstützt die Auswahl der geeigneten Filtermittelgröße für das Schüttbett bei bekanntem abzutrennendem suspendiertem Partikel. Mit Hilfe der neu definierten **Porositätsfunktion** kann die Carman-Kozeny-Gleichung derart modifiziert werden, dass die für die Filtration mit einem elektrokinetisch optimierten, selektiven (eos) Schüttbett benötigte **Druckdifferenz bestimmt** werden kann.

Das neu entwickelte Verfahren gilt für **exakt definierte Separationsaufgaben** mit einem **bekanntem suspendierten Partikel**, bei denen andere Separationsverfahren aufgrund

- eines zu hohen Foulingpotentials (Membranprozesse) oder
- einer zu hohen Beanspruchung der Trübe (Cross-Flow-Filtration, Zentrifugation) bzw.
- der möglichen chemischen Veränderung der Trübe (Fällungsprozesse)

nicht angewendet werden können. An deren Stelle kann das entwickelte Verfahren mit elektrokinetisch optimiertem, selektivem Schüttbett als **Entlastung nachfolgender Prozessschritte und zur Vorfiltration** von Suspensionen dienen. Um in diesen Fällen die suspendierten Partikel zu entfernen, muss das Schüttbett sowie die Filtrationsbedingungen exakt auf die Trennaufgabe angepasst werden.

6.2 Untersuchungen zur Regenerierbarkeit des Filtermittels

Eine wesentliche Anforderung an das neu zu entwickelnde Filtrationsprinzip ist, dass das Schüttbett regeneriert werden kann. Dementsprechend wird das Filtermittel (der für die Filtration gut geeignete Feldspat FS 900 S) im Folgenden auf seine **Regenerierbarkeit** bzw. das Schüttbett auf die **Rückspülbarkeit** (Ziel: in-situ-Reinigung) hin untersucht.

Bei klassischen Tiefenfiltern, wie z.B. Kies- und Sandfilter zur Trinkwasseraufbereitung, werden für die Reinigung insgesamt sechs bis acht m³ Wasser pro m² Filterfläche benötigt [WIELAND, 1999]. Jeder Reinigungsschritt dauert durchschnittlich 10 Minuten. Dabei wird das Schüttbett mit einer Geschwindigkeit von 0,04 m/s (≈ 150 m/h) durchströmt [MONOD/BRAULT, 1999], [WIELAND, 1999]. Zusätzlich wird oftmals für eine verbesserte Auflockerung und Durchströmung des Schüttbetts Luft mit einer Geschwindigkeit von 0,02 m/s zugegeben. Diese Werte bedeuten allerdings, dass für das neu entwickelte Filtrationsprinzip bereits in der größeren Filterkammer (Volumen 1,3 l) ca. 40 bis 50 l Wasser für die Rückspülung be-

nötigt werden. Aufgrund der wesentlich höheren Partikelfracht in der Trübe gegenüber einer Trinkwasseraufbereitung und einer niedrigeren Schütthöhe ist das Schüttbett viel schneller beladen und die Reinigungszyklen sind entsprechend kürzer. Für einen wirtschaftlichen Betrieb des Filters muss daher die benötigte Spülwassermenge deutlich reduziert werden. Das Verhältnis von Filtrat zu Rückspülwasser, d.h. der Wirkungsgrad der Spülung, ist definiert als:

$$\eta_R = \frac{\dot{V}_F}{\dot{V}_R} = \frac{\text{Filtratvolumenstrom}}{\text{Rückspülvolumenstrom}} \quad (\text{Gl. 6-11})$$

Bei den obigen Annahmen liegt der Rückspülwirkungsgrad für den entwickelten Filter bei $\eta_R = 0,05$. Bei einem wirtschaftlichen und umweltverträglichen Verfahren sollte er jedoch bei $\eta_R \geq 1$ liegen. Um dieses Ziel zu erreichen, soll anstelle einer kontinuierlichen Reinigung ein Kaskadenbetrieb eingeführt werden. Nach einer Vorreinigung soll für den Hauptreinigungsschritt entsprechend ein Kreislaufbetrieb eingeführt werden, und im Anschluss an die Nachreinigung soll eine erneute Konsolidierung des Schüttbetts durch Durchströmen im Gleichstrom erfolgen. Durch den Einsatz von Kreisläufen in industriellen Spülprozessen können bis zu 90 % Spülwasser eingespart werden, vgl. [KASCHEK, 2002]. In den Untersuchungen soll überprüft werden, ob eine Kaskaden- bzw. Kreislaufspülung auch für die Reinigung des Schüttbetts eingesetzt werden kann. Hierzu erfolgen zunächst Untersuchungen hinsichtlich der mechanischen Stabilität sowie der Adsorption von organischen Stoffen an den Filtermitteln. Im Anschluss daran wird die Trennung von Filtermittel und eingelagerten Hefen sowie der Austrag der Hefen aus dem Schüttbett in einer Kreislaufspülung untersucht.

6.2.1 Mechanische Stabilität des Filtermittels

Für die Überprüfung der mechanischen Stabilität des Filtermittels wird der Feldspat 500 h in VE-Wasser geschüttelt. Wird angenommen, dass ein Reinigungsvorgang 30 Minuten dauert, entspricht dies einer Simulation von 1000 Reinigungszyklen. Der verursachte Abrieb wird durch Partikelgrößenverteilungsmessungen vor und nach der Simulation der Reinigung ermittelt, siehe **Abb. 6-17**. Es ist zu erkennen, dass sich die Kurvenform nur geringfügig verändert. In erster Linie werden einige der großen Partikel durch Abrieb verkleinert. Hier kann es sich allerdings auch um Agglomerate handeln, die während der Simulation zerfallen sind. Da die Partikel in ihrem ursprünglichen Zustand nicht ideal rund sind, zeigt diese Untersuchung, dass sich die Partikel während der Reinigung stärker an die ideale Kugelform angleichen.

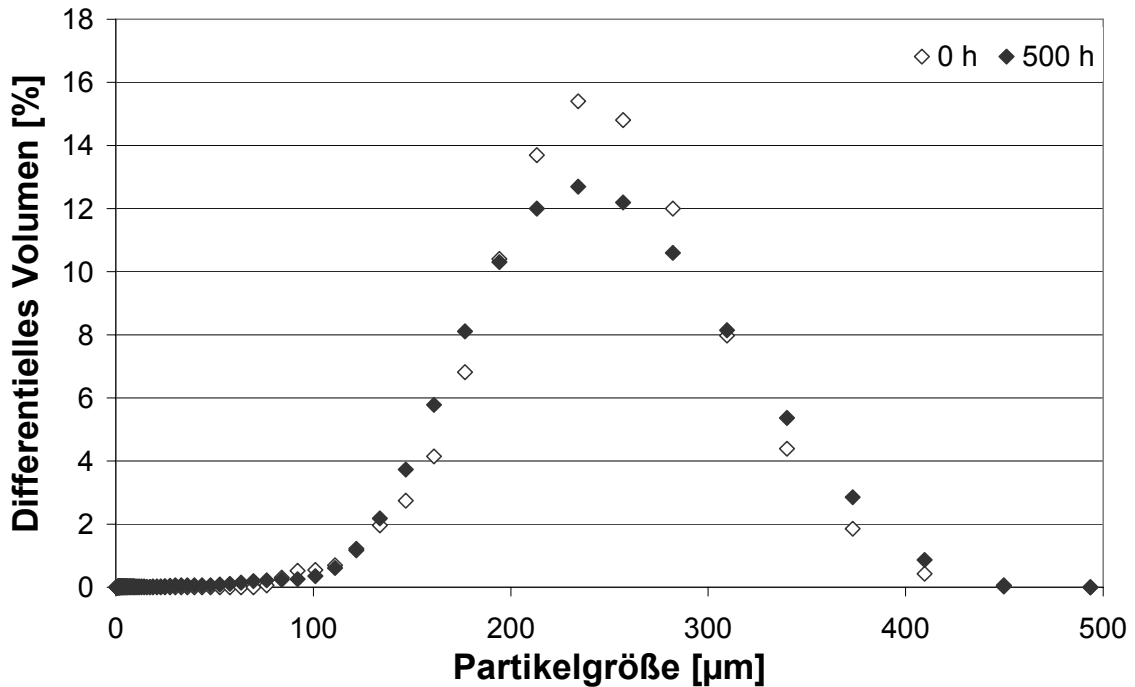


Abb. 6-17: Partikelgrößenverteilung des FS 900 S vor (0 h) und nach (500 h) der Simulation der Reinigung²⁶

6.2.2 Adsorption bzw. Desorption organischer Verbindungen

Bei diesen Untersuchungen werden der Feldspat FS 900 S und der Ionenaustauscher TP 208 betrachtet. Die Wahl fällt auf diese beiden Filtermittel, da der Feldspat in den bisherigen Untersuchungen die besten Filtrationsergebnisse lieferte; der Ionenaustauscher soll als organische Verbindung für einen Vergleich und eine bessere Einordnung der Ergebnisse dienen. Da die Filtermittel nur eine bestimmte Menge an organischen Verbindungen adsorbieren können, ist weniger die Adsorptionskapazität von Interesse als vielmehr die bei der Reinigung desorbierte Menge organischer Verbindungen.

Um den Gebrauch der Filtermittel mit organischen Stoffen aus der Lebensmitteltechnik zu simulieren, werden die Filtermittel 24 Stunden lang in Bier (als reales Medium) gespült. Danach erfolgt eine chemische Reinigung der Filtermittel. Bei den eingesetzten Reinigern handelt es sich um

²⁶ Untersuchungen mit mehrfach gereinigtem Filtermittel zeigten eine deutliche Zunahme der Bettkapazität und eine Leistungssteigerung um 50 %.

- Wasser
- Natronlauge 0,5 % und 3 %
- Phosphorsäure 0,5 % und 3 %.

Alle Reinigungsmedien werden bei 20°C und 70°C eingesetzt. Als Summenparameter zur Erfassung der freigesetzten organischen Verbindungen wird die CSB-Fracht im Spülwasser bestimmt. Durch die Entnahme von Proben im Abstand von 5 Minuten wurde festgestellt, dass sich die Konzentration in der Spüllösung bereits nach den 5 bis 10 Minuten nicht weiter erhöht, und es kann gefolgert werden, dass sich nach dieser Zeit die leicht zu entfernenden organischen Verbindungen von der Oberfläche der Filtermittel abgelöst haben und die fest adsorbierten Verbindungen nicht weiter entfernt werden können. Dies bedeutet, dass für die Reinigung des Filtermittels von anhaftenden Verbindungen eine Reinigungszeit von 10 Minuten ausreichend ist. Die Ergebnisse (**Abb. 6-18**) zeigen, dass der Feldspat bei allen Spüllösungen ungefähr dieselbe Menge an organischen Verbindungen in das Spülmedium abgibt. Sowohl Temperatur als auch Art bzw. pH-Wert der Spülmedien haben auf die Reinigung des Feldspates wenig Einfluss. Lediglich bei stark verdünnter heißer Natronlauge (0,5 % NaOH, 70°C) ist die Menge der desorbierten organischen Verbindungen etwas höher. Daraus ergibt sich, dass eine Reinigung mit Wasser in der Regel bereits mit dem gewünschten Reinigungserfolg einhergeht und sowohl Filtermittel als auch suspendierte Partikel – vor allem Mikroorganismen – problemlos zurück gewonnen werden können. In bestimmten Intervallen kann für eine weitergehende Reinigung eine Natronlaugespülung erfolgen. Der Ionenaustauscher gibt insbesondere bei den kalten Spülungen deutlich mehr organische Verbindungen in das Spülmedium ab als der Feldspat. Dies liegt auch an seiner bereits im Kapitel 5 diskutierten Eigenschaft, Ionen auszutauschen und Stoffe zu adsorbieren. Diese Ergebnisse bestätigen, dass sich das organische Filtermittel für eine Filtration mit Regeneration des Filtermittels nicht eignet.

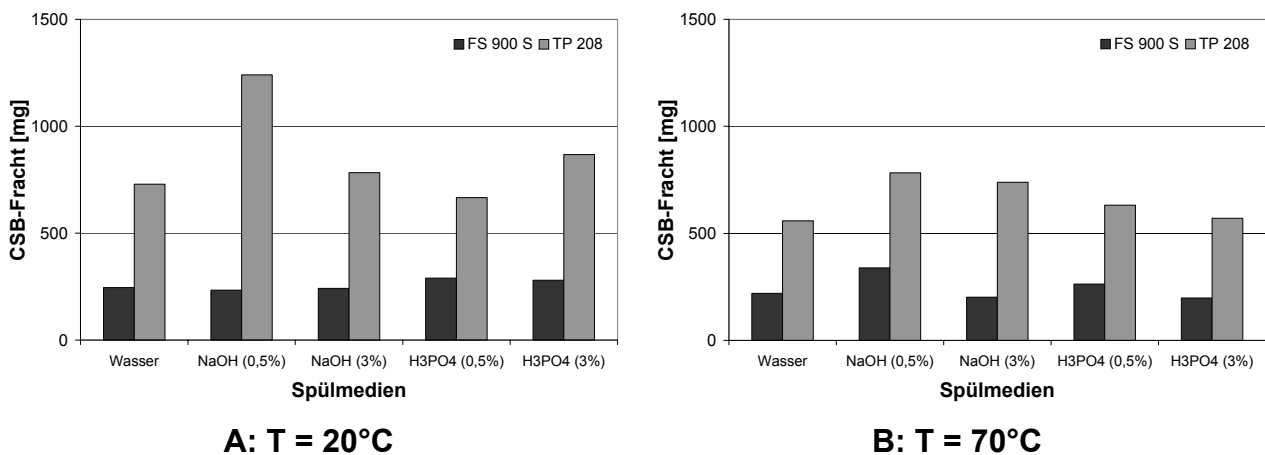


Abb. 6-18: CSB-Fracht der Spüllösung nach 10 Minuten Regenerationszeit

6.2.3 Untersuchungen zur Rückspülung mittels Gegenstromkreislaufspülung

Die Versuche zur Rückspülung werden in der größeren Filterkammer mit 65 cm² Filterfläche durchgeführt. Bei 5 cm Schütthöhe beträgt das Bettvolumen 0,32 l. Da Reinigungen in situ erfolgen sollen, werden die Rückspülungen nur noch mit dem für die Filtration gut geeigneten Feldspat FS 900 S (Mischfraktion F3:F4) durchgeführt. Als Trübe wurde eine 0,1 % Suspension mit *saccharomyces carlsbergensis* verwendet. Für die Reinigung wird das Filtermittel ins Wirbelbett gebracht. Der Lockerungspunkt für die Rückspülung kann mit Hilfe des Ansatzes nach Ergun wie folgt berechnet werden [SCHUBERT, 2003], [STIEB, 1996]²⁷:

$$v_L = 42,9 \cdot (1 - \varepsilon_L) \cdot \frac{\eta_L \cdot \varphi}{\rho_L \cdot D_{FM}} \cdot \left(\sqrt{1 + 3,11 \cdot 10^{-4} \cdot \frac{\varepsilon_L^3}{(1 - \varepsilon_L)^2} \cdot \frac{\Delta\rho \cdot \rho_L \cdot g \cdot D_{FM}^3}{\varphi^3 \cdot \eta_L^2}} - 1 \right) \quad (\text{Gl. 6-12})$$

$$= 1,06 \cdot 10^{-3} \text{ m/s}$$

Mit:

ε_L :	Porosität am Lockerungspunkt	[-]	η_L :	dynamische Viskosität	[Pa · s]
φ :	Kornformfaktor	[-]	ρ_L :	Dichte der Flüssigkeit	[kg/m ³]
D_{FM} :	Durchmesser des Filtermittels	[m]			

Die Strömungsgeschwindigkeit für das Rückspülen erhöht sich mit $1 \cdot 10^{-3}$ m/s auf das 10fache der Beladungsgeschwindigkeit (ca. $1 \cdot 10^{-4}$ m/s). Die Betausdehnung beträgt im Wirbelbett 50 %, womit das Bettvolumen beim Rückspülen knapp 0,6 l einnimmt. Da das gesamte Volumen der Filterkammer 1,3 l beträgt, muss bei der Reinigung beachtet werden, dass auch dieses Volumen mit ausgetauscht werden muss. Der Reinigungsablauf mit den verwendeten Wassermengen und Spülzeiten zeigt **Tab. 6-10**. Der Wirkungsgrad der Spülung beträgt:

$$\eta_R = \frac{\dot{V}_F}{\dot{V}_R} = \frac{10}{4,5} = 2,2, \text{ wobei bei einem größeren Filterapparat eine relative Abnahme der benötigten}$$

Spülwassermenge und damit eine weitere Steigerung des Spülwirkungsgrades zu erwarten ist.

Durch die Eindosierung von Luft in den Spülwasserstrom wird das Austragen der im Bett enthaltenen Hefezellen verbessert. Dabei wird ein Luftstrom zwischen 0,001 und 0,01 l/min dem Rückspülwasser zugegeben. Bei Luftgeschwindigkeiten > 4 l/min werden Filtermittelpartikel ausgetragen. **Abb. 6-19** zeigt die Abnahme der Trübe im Ablauf und die zyklische Zunahme der Trübe in der Vorlage nach Erneuerung eines Teils des Spülwassers.

²⁷ Die Annahmen für die Berechnung betragen: $\varepsilon_L = 0,43$, $\eta_L(50^\circ\text{C}) = 547,1 \cdot 10^{-6} \text{ Pa} \cdot \text{s}$, $\rho_L(50^\circ\text{C}) = 988,1 \text{ kg/m}^3$, $\rho_S = 2650 \text{ kg/m}^3$, φ (abgerundete Partikel) = 1,16, $D_{FM} = 250 \mu\text{m}$, vgl. [VDI Wärmeatlas, 2006].

Bei erneutem Einsatz des Filtermittels für eine Filtration ist keine Abnahme der Filtrationsleistung zu erkennen. Die eingehende Forderung nach einer guten Rückspülbarkeit des Filtermittels ist damit erfüllt. Die Ergebnisse dieser Versuche zeigen, dass die **elektrokinetischen Wechselwirkungen** für Realisierung eines Filtrationsverfahrens, das eine **Regeneration des Filtermittels** und eine gute **Rückspülbarkeit des Schüttbetts** ermöglicht, genutzt werden können.

Tab. 6-10: Spülschritte, Spülwassermenge und –zeit bei der Rückspülung des Filters

Spülschritt	Benötigte Spülwassermenge [l]	Zeit [min]	Austauschverhältnis in der Filterkammer
Vorspülung	1,0	3	2/3
Hauptspülgang	2,5 ($EBC_{Zu} = EBC_{Aus}$; 0,5 l wird ausgetauscht)	3x5 (2,5 l/min), 1x4 (3 l/min), 1x4 (3,5 l/min)	jeweils 1/3
Nachspülung	0,5	2,5	1/3
Konsolidierung (Gleichstrom)	0,5	2,5	1/3
Summe	4,5	31	7/3

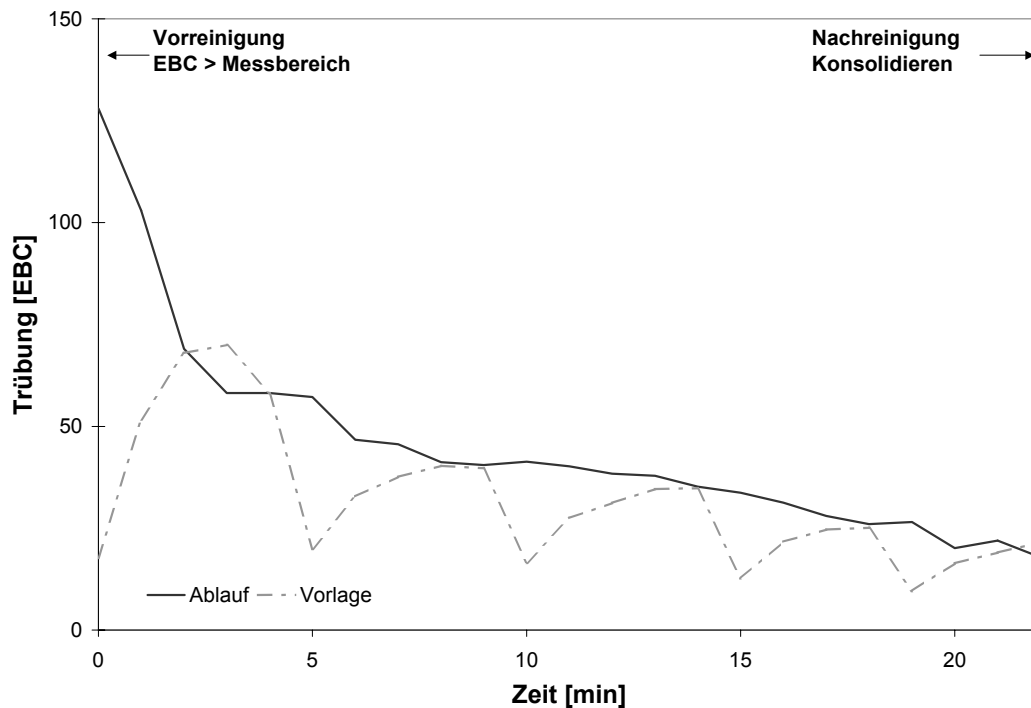


Abb. 6-19: Abnahme der Trübung in der Spüllösung bei den einzelnen Schritten der Kreislaufspülung

7 Einsatz des Tiefenfiltrationsverfahrens mit elektokinetisch optimiertem, selektivem Schüttbett als Vorfiltrationsstufe bei der Klarfiltration von Bier

Im Jahr 2004 wurden von deutschen Brauereien $105,8 \cdot 10^6$ Hektoliter Bier und ca. $2,6 \cdot 10^6$ Hektoliter Biermischgetränke [WIESE, 2005] verkauft. Da ein Großteil dieses Bieres als klares Bier abgesetzt wird, muss die am Brauprozess maßgeblich beteiligte Hefe abgetrennt werden. Bei dieser Klarfiltration werden neben den Bierhefen auch andere Mikroorganismen und Trubstoffe, wie Eiweißgerbstoffverbindungen und Hopfenharze, aus dem unfiltrierten Bier (Unfiltrat) abgetrennt, wodurch auch der Geschmack des Bieres verfeinert wird. Die Klarfiltration erfolgt seit einigen Jahrzehnten durch Kieselgurfiltration. Die Kieselgur wird dabei als Filterhilfsmittel bei der Anschwemmfiltration eingesetzt [NARZISS, 1986]. Hierfür werden pro Hektoliter ca. 100 bis 200 g Kieselgur benötigt [HODENBERG ET.AL., 1987], [SPECKNER/KIENINGER, 1984]. Dies ergibt allein in Deutschland pro Jahr eine Menge von etwa 25.000 t Kieselgurabfällen. Kieselgur ist ein Naturprodukt, das aus Siliziumoxid in Form amorpher Kieselsäure besteht und durch die Struktur der fossilen Kieselalgenskelette eine sehr große Oberfläche hat. **Abb. 7-1** zeigt eine REM-Aufnahme einer Kieselgur. Die spezifische Oberfläche einer typischen Kieselgur beträgt zwischen 1,2 (Grobgur) bis 7,0 (Feingur) m^2/g .

Die auf der Erde vorhandenen Kieselgurlagerstätten werden beim derzeitigen Verbrauch voraussichtlich in den nächsten 20 bis 30 Jahren erschöpft sein [BIFA, 1999]. Außerdem ergibt sich aus der aktuellen Gesetzgebung ein Entsorgungsproblem für Kieselgurschlämme, da die Kieselgur nach der Filtration mit organischen Substanzen belastet ist und nicht ohne Vorbehandlung auf Deponien der Klasse I und II abgelagert werden kann [ABFABLV, 2001]. Bei der alternativen Entsorgung der Kieselgur auf landwirtschaftlichen Flächen muss beachtet werden, dass nur eine gewisse Menge an Kieselgurschlamm [BIOABFV, 1998] und diese nur während der Vegetationszeiten aufgebracht werden darf, um eine schnelle Aufnahme der Nährstoffe zu gewährleisten. Außerdem wird kristalline Kieselgur von der International Agency on Research of Cancer (IARC) als „beim Menschen krebserregend“ eingestuft. Bei der offenen Entsorgung des Kieselgurschlammes auf Deponien oder landwirtschaftlichen Flächen ist nach dessen Trocknung durch Verwehungen bei Anwohnern und Deponiepersonal mit Gesundheitsschäden zu rechnen, falls die Partikel in die Atemluft gelangen [BIFA, 1999].

Aus diesen Gründen wurden in den letzten Jahren mehrere aufwändige nasschemische oder thermische Verfahren für die Regeneration von Kieselgur entwickelt, die bereits in einigen

Brauereien eingesetzt werden [EVERS, 1996], [LEUBNER/GOCK, 2004]. Zudem gibt es auch diverse Ansätze den Verbrauch an Kieselgur zu reduzieren [OLIVER-DAUMEN, 1999] oder die Kieselgur durch andere Filterhilfsmittel zu ersetzen, u.a. [DONHAUSER ET.AL., 1989], [EISELT, ET.AL., 1999], [EVERS, 1996], [KREYE, 1999], [SCHMID, 2002].

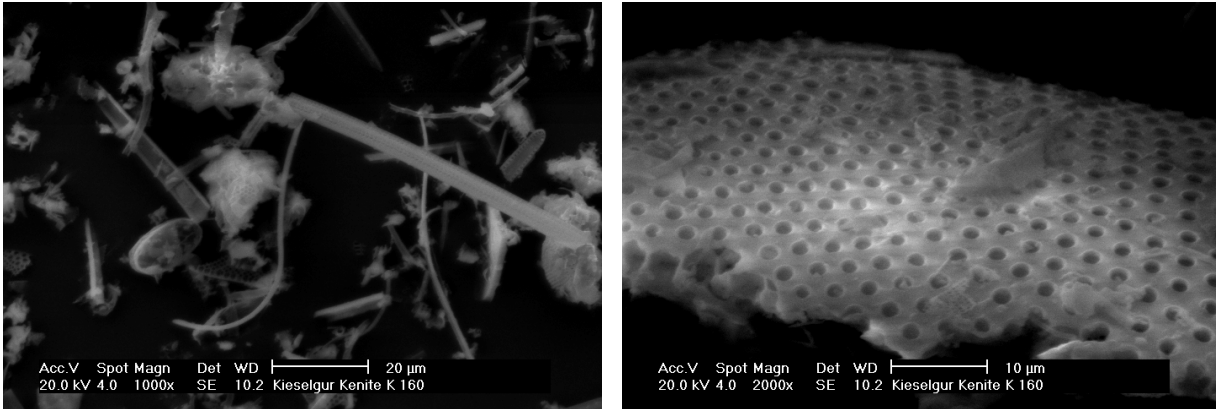


Abb. 7-1: Kieselgur [FGK, 2005]

Bei der Klarfiltration von Bier erfolgt die **Separation von Mikroorganismen** durch Filtration und die **Entfernung der weiteren Trubstoffe** und organischen Verbindungen durch Adsorption in einem Schritt; das Filtermittel muss entsprechend beiden Anforderungen genügen. Gerade bei hohen Hefebelastungen führt dieser Kompromiss zu kurzen Filterstandzeiten und teilweise unbefriedigenden Filtrationsergebnissen. Neuere Arbeiten setzen Verfahren der Membranfiltration zur Klarfiltration von Getränken ein [BRENNER/OECHSLE, 1987], [LIPNIZKI, 2005], [NOORDMAN/VAN DER NOORDT, 2005], [VILMORIN/CADOT, 2005]. Auch hier sind die Membranstandzeiten ohne Vorfiltration aufgrund der starken Adsorption von Mikroorganismen und Bierinhaltsstoffen an den Membranen [EVERS, 2005] selten wirtschaftlich. Ziel ist die Entwicklung einer **Vorfiltrationsstufe**, die durch die **Abtrennung der Hefe** die nachfolgenden Filtrationsschritte zur Schönung und Haltbarmachung des Bieres entlastet. So soll beispielsweise der Kieselgurverbrauch minimiert oder eine Membranfiltration ermöglicht werden. Die Eignung des beschriebenen Filtrationsprinzips mit elektrokinetisch optimiertem, selektivem Schüttbett für die Vorfiltration von Bier wird mit den folgenden Untersuchungen überprüft. Als Vorfiltration sollte eine Reinigung von mindestens 75 % erreicht werden, dies entspricht $c/c_0 = 0,25$.

7.1 Charakterisierung der eingesetzten Trüben und Filtermittel

Die Filtrationsuntersuchungen erfolgen mit zwei unterschiedliche Trüben: einem Modellunfiltrat und unfiltriertem Bier (Unfiltrat). Das Modellunfiltrat besteht aus verkaufsfertigem Bier, dem 0,1 w % *saccharomyces carlsbergensis* (Trübung $c_0 = 200$ EBC) zugegeben wurde. Das unfiltrierte Bier hat einen Hefegehalt von 0,01 w% (Trübung $c_0 = 20 - 30$ EBC). Da sich im Unfiltrat neben der Bierhefe auch andere Trubstoffe wie Kühl- und Heißtrub sowie weitere Mikroorganismen aus dem Brauprozess befinden (vgl. **Tab. 7-1**), die eine geringere Partikelgröße aufweisen als die Bierhefe, können diese Stoffe Auswirkungen auf die Filtrat-trübung haben. Daher erfolgt die Filtration zunächst mit dem Modellunfiltrat, damit die Filtrationsaufgabe im ersten Schritt auf die Abtrennung der Bierhefe aus einem komplexen realen Elektrolyten ohne Beeinflussung durch weitere Trubstoffe beschränkt werden kann. Im Anschluss erfolgen dieselben Versuchsschritte mit Unfiltrat, so dass aus dem Unterschied der Filtrationsergebnisse auf den Einfluss der Biertrubstoffe geschlossen werden kann.

Tab. 7-1: Übersicht Biertrubstoffe und Mikroorganismen
(nach [EBC, 1999] und [BACK, 1993])

Bezeichnung	Partikelgröße [μm]
Trubstoffe	
Heißtrub	0 – 5
Kühltrub	0 – 3
Potenzielle Trübung (sofern ausgebildet)	0 – 3
Mikroorganismen	
Brauereihefe (<i>Saccharomyces cerevisiae</i> / <i>Saccharomyces carlsbergensis</i>)	4 – 9 5 – 10
Fremdhefen (<i>Saccharomyces</i> sp.)	5 – 10
<i>Lactobacillus</i> sp.	0,5 – 1
<i>Pediococcus</i> sp.	0,5 – 1
Sporen	< 0,5

Bei den folgenden Untersuchungen werden erneut die beiden Filtermittel mit dem negativen Zetapotential, also der Kationenaustauscher und der Feldspat, eingesetzt. Beide Filtermittel werden auf ihre chemische Stabilität und **Eignung als Filtermittel für Bier** überprüft. Hinsichtlich der Adsorptions- bzw. Desorptionseigenschaften für organische Stoffe zeigt der Io-

nen austauscher eine hohe Aufnahmekapazität für Polyphenole und Geschmackstoffe aus dem Bier und verändert somit dessen analytische und organoleptische Eigenschaften. Dies geschieht beim Feldspat nicht (vgl. Abschnitt 6.2.2), weshalb dieser als das besser geeignete Filtermittel angesehen und im Folgenden verstärkt untersucht wird.

Die durchgeführte Extraktion mit Kaliumhydrogenphthalat (KHP-Extraktion) gibt Aufschluss darüber, inwieweit das Filtermittel Feldspat lösliche Ionen in das Bier abgibt. Insbesondere die Abgabe von Eisen ist äußerst unerwünscht, da Eisen die Stabilität und den Geschmack von Bier nachteilig beeinflusst, vgl. [DONHAUSER, 1983]. Tab. 7-2 zeigt die Untersuchungsergebnisse verschiedener Kieselguren und des Feldspates im Vergleich mit einem Quarzsand. Der bei den Versuchen eingesetzte Feldspat liegt bei allen Werten deutlich unter denen der konventionell eingesetzten Kieselguren und eher im Bereich eines typischen Filtrationsandes und ist daher für die Filtrationsaufgabe geeignet. Andere untersuchte Feldspate zeigten vergleichbare Ergebnisse.

Tab. 7-2: Lösliche Ionen in verschiedenen Filterhilfsmitteln und Filtermitteln, [PALL, 2005]

Filterhilfsmittel und Filtermittel		Eisen KHP-Extrakt [ppm]	Calcium KHP-Extrakt [ppm]	Aluminium KHP-Extrakt [ppm]
Konventionelle Filterhilfsmittel	Feingur	110	600	120
	Mittelgur	75	750	150
	Grobgur	35	500	25
Neue Filtermittel	Feldspat FS 900 S	1,5	131	13
	Quarzsand	19	188	13

Aufgrund der höheren Leitfähigkeit der verwendeten realen Trüben sowie der veränderten pH-Werte und der damit verbundenen geringfügigen Änderung der Zetapotentiale ist zu erwarten, dass die mittlere optimale Filtermittelgröße sich gegenüber den Versuchsergebnissen aus Kapitel 6 ändert. Mit Hilfe der elektrokinetischen Filtrationskennzahl können die notwendigen Filtermitteldurchmesser berechnet werden. Entsprechend den Ergebnissen der Salzversuche mit der Modelltrübe bei 100 mS/m (vgl. Tab. 6-5) wird die elektrokinetische Filtrationskennzahl mit $\Pi_5 = 0,03$ festgelegt. Daraus ergibt sich die optimale mittlere Partikelgröße des Filtermittels für die Filtration von Modellunfiltrat bzw. Unfiltrat zu:

$$D_{FM}^{MU} = \frac{\zeta_{FM} \cdot \zeta_S \cdot \sigma_L}{\Pi_5^{MU} \cdot \Delta p \cdot v} = \frac{-19\text{mV} \cdot -4\text{mV} \cdot 202\text{mS/m}}{0,03 \cdot 0,3\text{bar} \cdot 0,25\text{m/h}} = 245 \mu\text{m} \quad \text{Modellunfiltrat} \quad (\text{Gl. 7-1})$$

$$D_{FM}^U = \frac{\zeta_{FM} \cdot \zeta_S \cdot \sigma_L}{\Pi_5^U \cdot \Delta p \cdot v} = \frac{-21\text{mV} \cdot -4\text{mV} \cdot 155\text{mS/m}}{0,03 \cdot 0,3\text{bar} \cdot 0,25\text{m/h}} = 208 \mu\text{m} \quad \text{Unfiltrat} \quad (\text{Gl. 7-2})$$

Die durch die Berechnung ermittelte mittlere Partikelgröße, die für die Filtration geeignet ist, beträgt für das Modellunfiltrat 245 μm und für das reale Unfiltrat 208 μm . **Tab. 7-3** fasst die Eigenschaften der beiden verwendeten Trüben sowie des benötigten Filtermittels zusammen.

Tab. 7-3: Eigenschaften der verwendeten Trüben und benötigte Filtermittelgröße

	c_0 [w%]	c_0 [EBC]	σ_L [mS/m]	pH [-]	$D_{FM}^{*})$ [μm]
Modellunfiltrat	0,1	200	202	4,6	245
Unfiltrat	0,01	20 - 30	155	5,0	208

*) wie in (Gl. 7-1) und (Gl. 7-2) berechnet

7.2 Eignung des Verfahrens als Vorfiltrationsstufe bei der Filtration von Bier

Die ersten Filtrationsversuche werden mit den beiden Filtermitteln mit negativem Zetapotential durchgeführt, deren Ergebnisse in den Abbildungen **Abb. 7-2** und **Abb. 7-3** visualisiert werden. In diesen Versuchen werden die Gesamtfractionen der Filtermittel eingesetzt. Beim Vergleich der Filtrationsergebnisse des Kationenaustauschers TP 208 und des Feldspates FS 900 S zeigt das organische Filtermittel bei beiden Trüben ähnlich gute Ergebnisse bezüglich des Rückhaltes wie bei den Versuchen mit der Modelltrübe. Bei dem anorganischen Filtermittel (Feldspat FS 900 S) ist der Heferückhalt bei dem Modellunfiltrat hervorragend (Rückhalt > 95 %), während er bei dem realen Unfiltrat geringfügig schlechter ist als bei dem Ionenaustauscher. Beim Modellunfiltrat steigt bei beiden Filtermitteln nach 15 m^3/m^3 der Druck an, und es ist zu vermuten, dass aufgrund der ungeordneten Porenstruktur erste Hohlräume vollständig verblockt sind. Sowohl beim Modellunfiltrat als auch beim Unfiltrat wird bei beiden Filtermitteln einen Rückhalt von 75 % erreicht, wobei bei der Reinigung des Modellunfiltrates höhere Bettvolumina und damit höhere Kapazitäten erzielt werden. Da das Fil-

rat auch bei der Filtration des Unfiltrates nahezu Hefezellen frei ist, wie eine Zellzählung zeigte, bestätigen diese unterschiedlichen Ergebnisse die **selektive Wirkung** des Filters: Es erfolgt eine **Vorfiltration mit Abtrennung der Hefezellen**, alle weiteren im unfiltrierten Bier enthaltenen Trubstoffe verbleiben im Filtrat.

Bei den Versuchen hat sich gezeigt, dass das organische Filtermittel im Gebrauch unzuverlässig ist und die Ergebnisse schlecht reproduzierbar sind. Dies gilt vor allem, wenn die Quellung und Konditionierung ausschließlich mit VE-Wasser durchgeführt wird. Da das Zetapotential des organischen Filtermittels sehr nahe bei 0 mV verläuft, kann davon ausgegangen werden, dass nicht alle Partikel ein negatives Zetapotential aufweisen und einige Partikel mit positivem Zetapotential zu einer partiellen Oberflächenfiltration und Verblockung des Filtermittels in den oberen Schichten führen. Wird mit Salzsäure konditioniert, sind diese Effekte geringer. Da das organische Filtermittel zudem wegen der Adsorption von Polyphenolen und der daraus folgenden Veränderung von Geschmack und die Farbigkeit des Bieres nur bedingt für die Bierfiltration geeignet ist, wird im Folgenden lediglich der Feldspat FS 900 S eingehender untersucht.

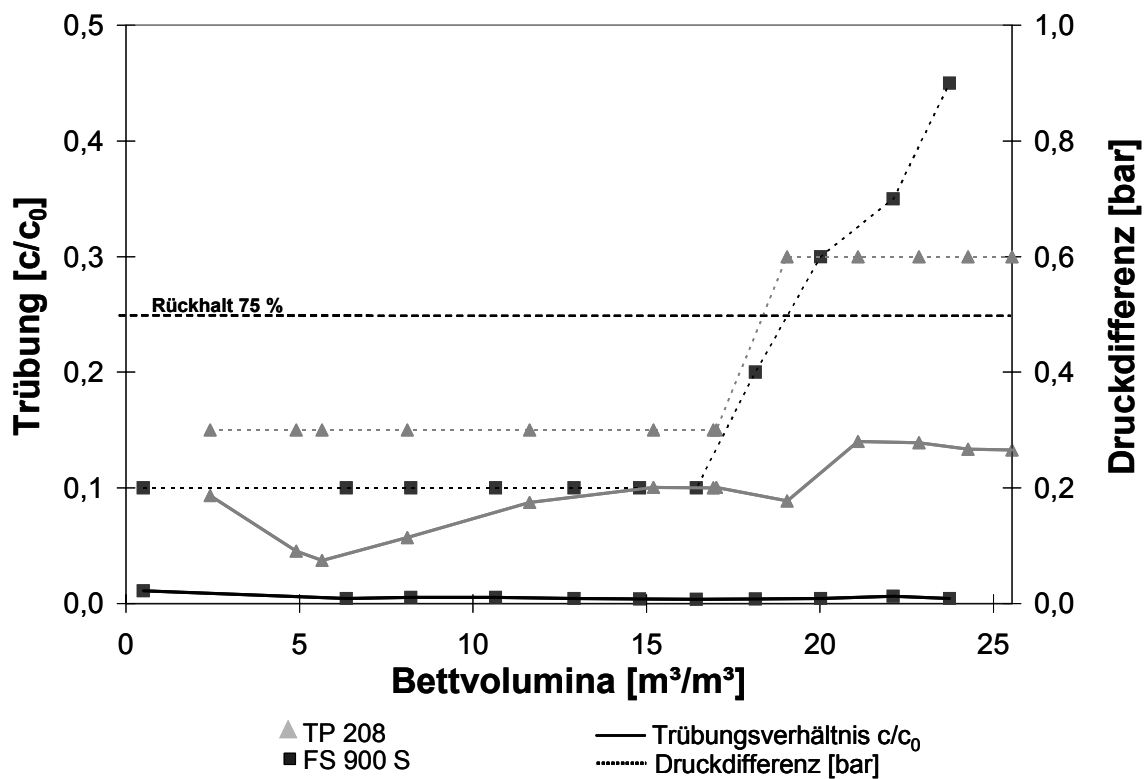


Abb. 7-2: Vergleich Filtermittel mit Modellunfiltrat

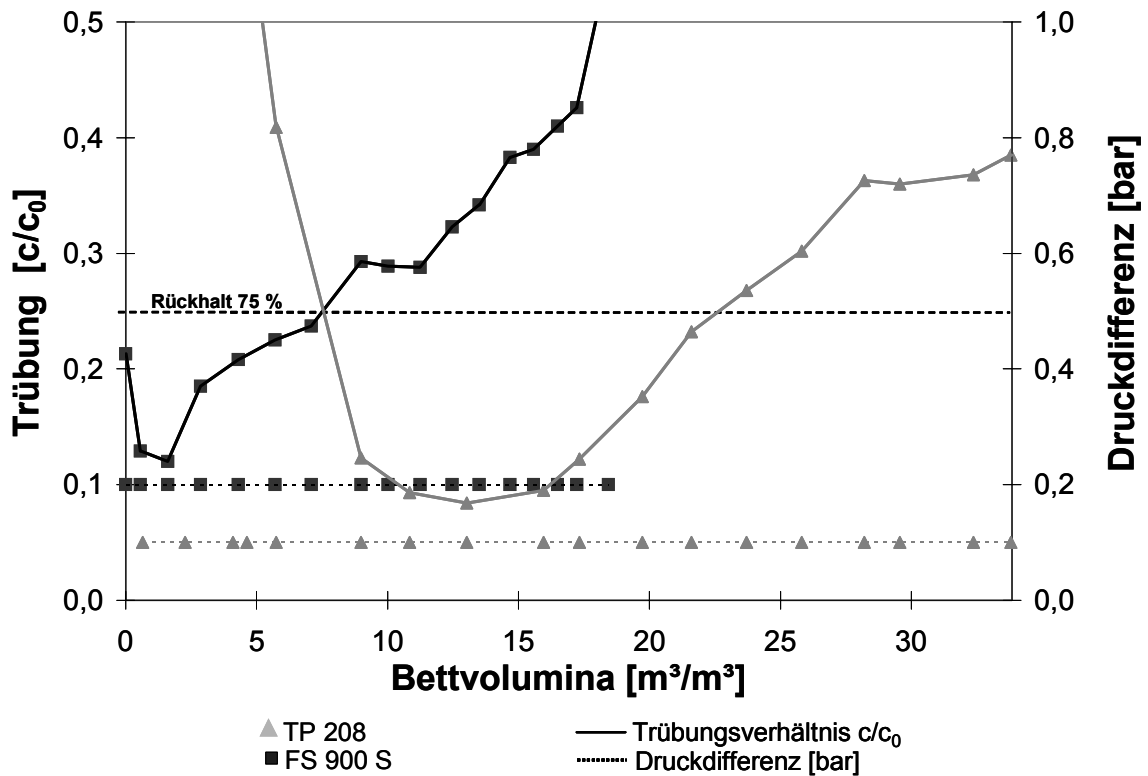


Abb. 7-3: Vergleich Filtermittel mit Unfiltrat

Der Feldspat lässt sich sehr gut handhaben und liefert auch zufriedenstellende Filtrationsergebnisse, deshalb soll überprüft werden, ob bei der Gesamtfraktion einzelne kleine Partikel die Einstellung der optimale Porengröße verhindern und mit den Siebfractionen bessere Ergebnisse erreicht werden können. Aus diesem Grund werden Untersuchungen mit den **verschiedenen Fraktionen** des Feldspates durchgeführt. Das Ziel dieser Untersuchungen ist es, eine zuverlässige Abtrennung der Hefezellen bei minimalem Druckverlust im Filter zu erreichen. **Abb. 7-4** zeigt die Ergebnisse dieser Untersuchungen mit Modellunfiltrat, **Abb. 7-5** die Ergebnisse mit Unfiltrat. Bei beiden Modelltrüben neigen die Fraktionen F1 und F2 zu einer Oberflächenfiltration (vgl. Photo. **Abb. 7-6 A**) und die Druckdifferenz steigt während der Versuchsdauer um mehr als 0,3 bar (Modellunfiltrat) bzw. 1 bar (Unfiltrat) an. Die anderen Fraktionen weisen nur einen geringen Druckverlust um 0,2 bar auf. Die Fraktionen F3 und F4 ermöglichen beim Modellunfiltrat einen konstanten Rückhalt von über 90 %. Beim Unfiltrat ist die Fraktion F4 mit einer Schüttbettkapazität von $20 \text{ m}^3/\text{m}^3$ bereits weniger gut geeignet, die Fraktion F3 hingegen erreicht ihre bisher höchste Aufnahmekapazität für Hefe ($34 \text{ m}^3/\text{m}^3$ bei $c/c_0 > 0,25$) und ist am leistungsstärksten. Insbesondere diese Fraktion eignet sich wesentlich besser für die Filtration als die Gesamtfraktion und zeigt auch bessere Ergebnisse als bei den Versuchen mit der Modelltrübe. Die Fraktion F5 führt vor allem bei der Modelltrübe zu einem

schnellen Anstieg der Trübung im Filtrat und erzielt nur einen geringen Rückhalt der suspendierten Partikel bei einer sehr geringen Aufnahmekapazität. Alle drei Fraktionen F3, F4 und F5 ermöglichen eine Tiefenfiltration bei geringer Druckdifferenz, vgl. **Abb. 7-6 B**.

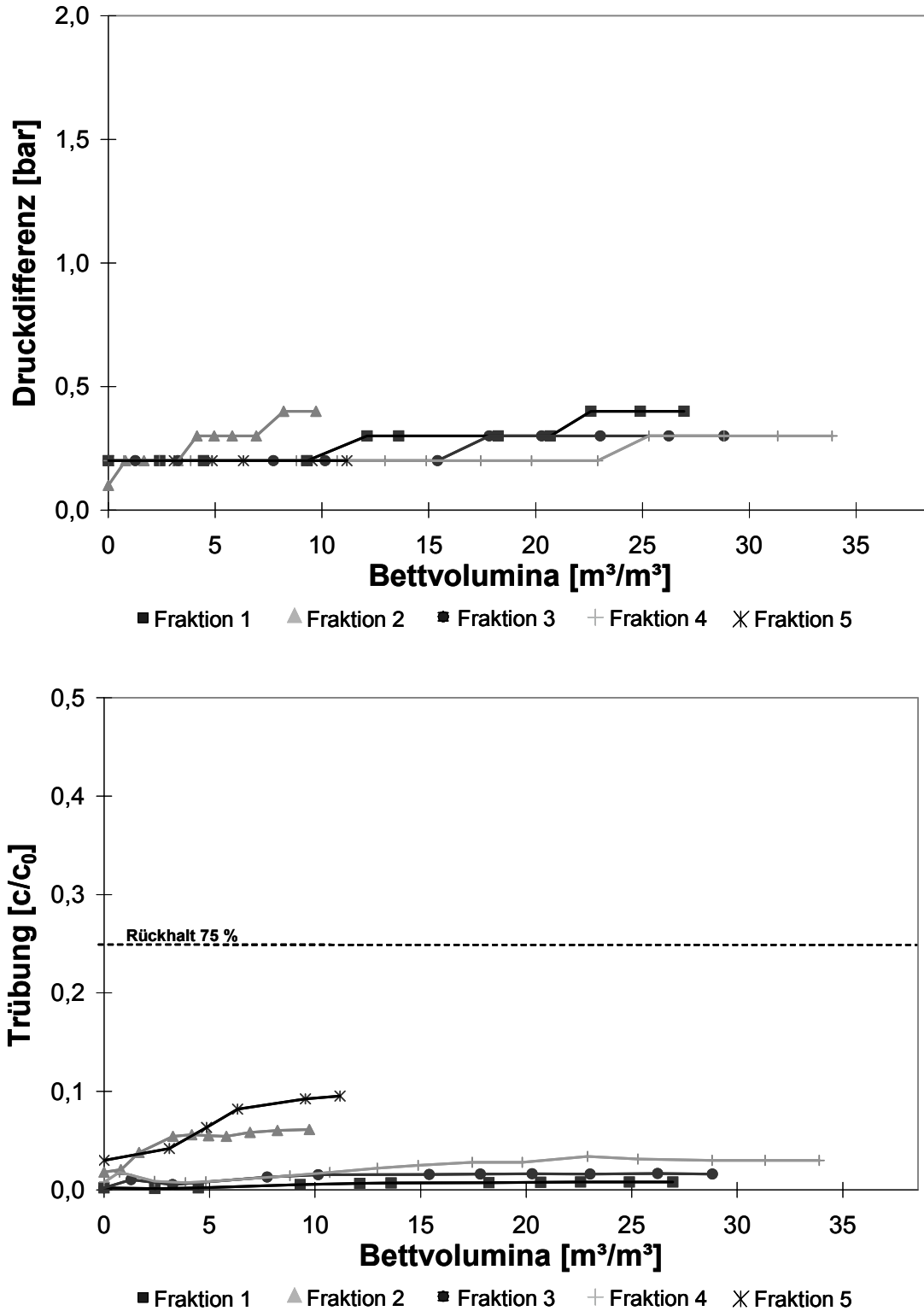


Abb. 7-4: Vergleich Fraktionen Feldspat FS 900 S mit Modellunfiltrat

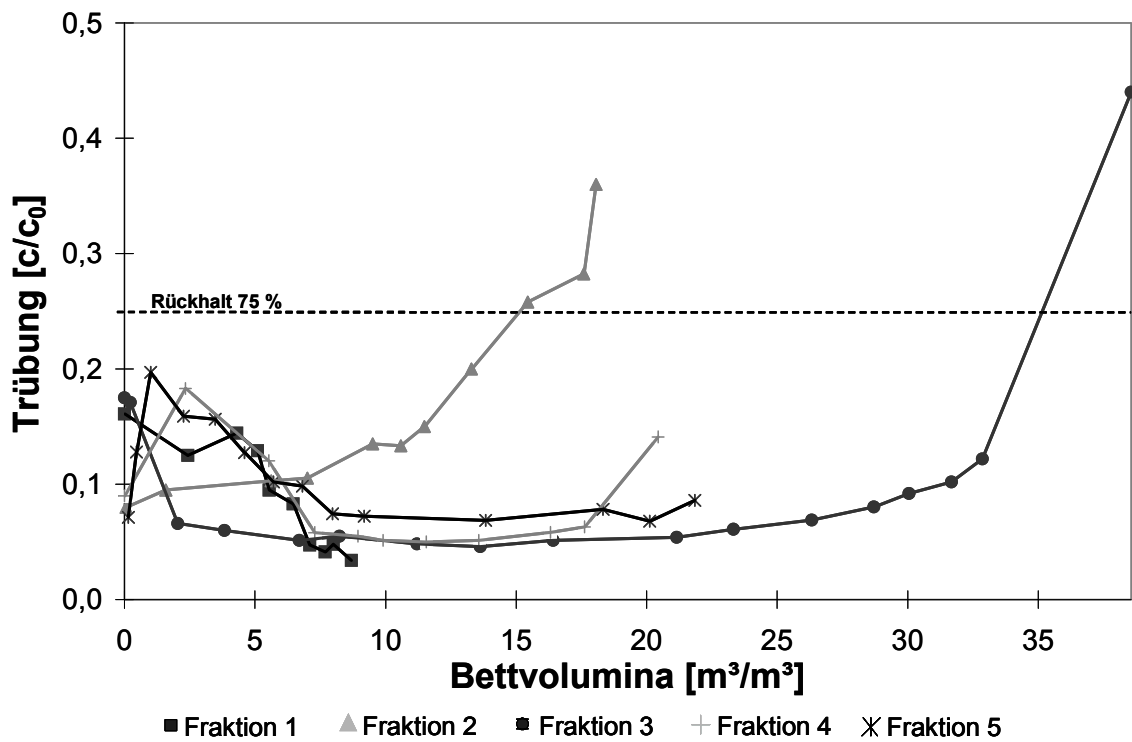
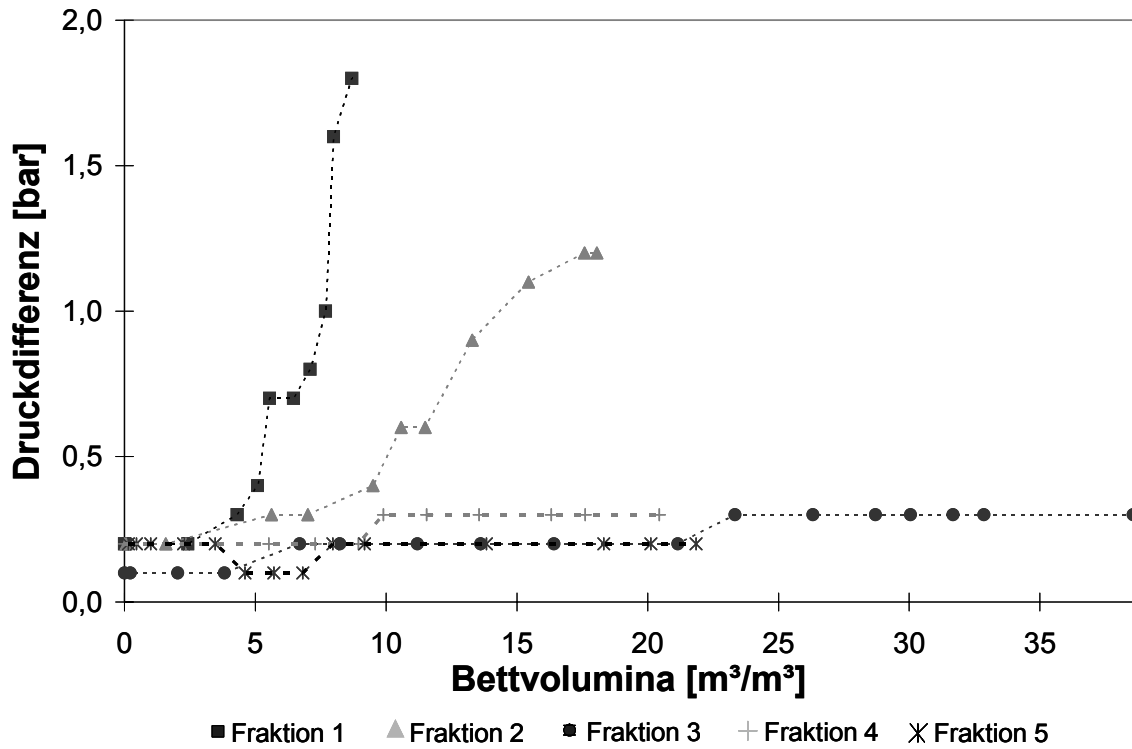


Abb. 7-5: Vergleich Fraktionen Feldspat FS 900 S mit Unfiltrat

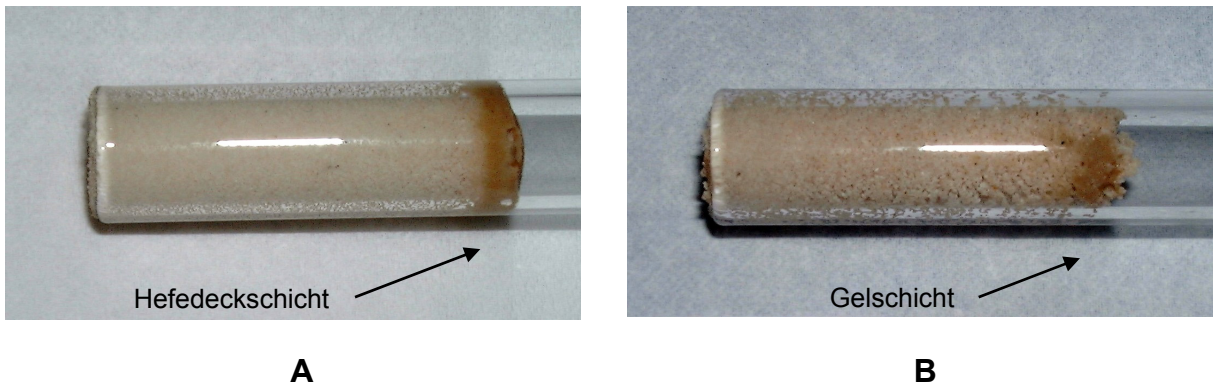


Abb. 7-6: Photos von Bohrkernen aus der Filtermittelschüttung

A: F1 mit Hefedeckschicht,

B: F3 ohne Deckschichtbildung, mit für Tiefenfiltration typischer Gelschicht

Um die optimale Korngrößenverteilung weiter einzuengen, werden entsprechend den Versuchen in Kapitel 6 auch Mischfraktionen erstellt. Bei diesen Untersuchungen, deren Ergebnisse die Abbildungen **Abb. 7-7** und **Abb. 7-8** wiedergeben, ist zu erkennen, dass vergleichbar zu den Untersuchungen mit der Modelltrübe die Leistung und die Hefeaufnahmekapazität der kleineren Mischfraktion F2:F3 etwas geringer ist als die der gröberen. Die unvorteilhaftere Verteilung der Porengröße des eingesetzten Naturmaterials wird in diesen Versuchen erneut bestätigt.

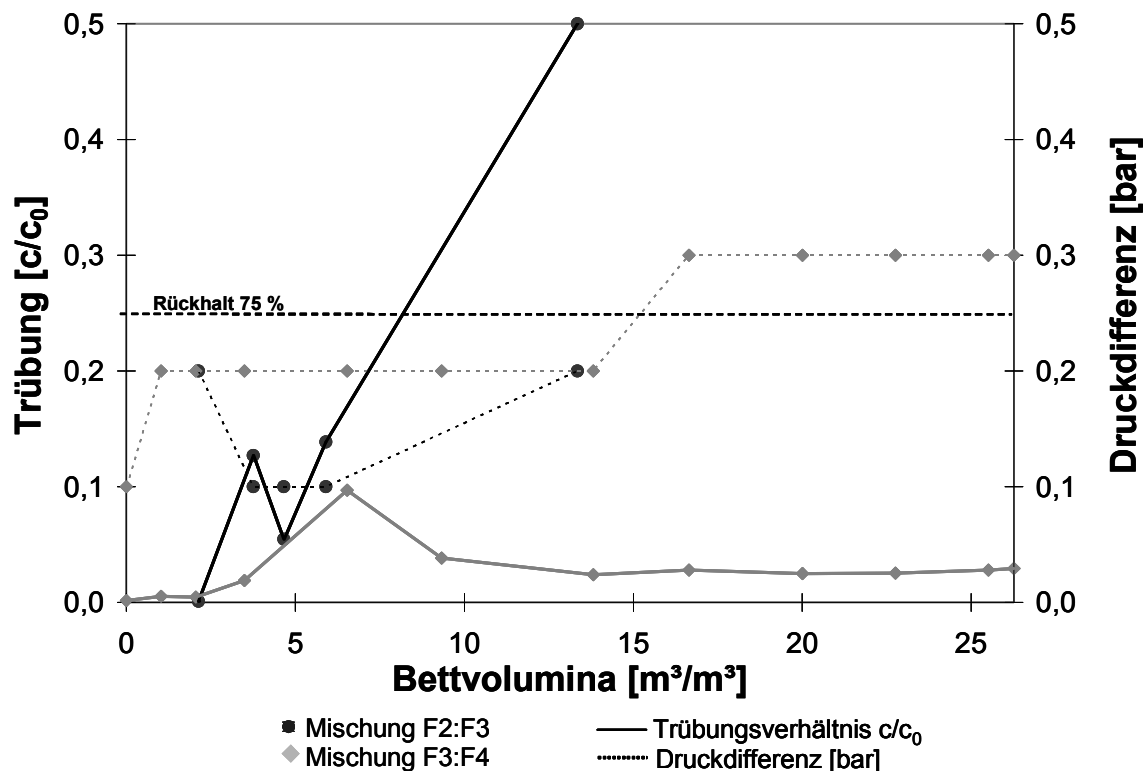


Abb. 7-7: Vergleich der Mischfraktionen Feldspat FS 900 S mit Modellunfiltrat

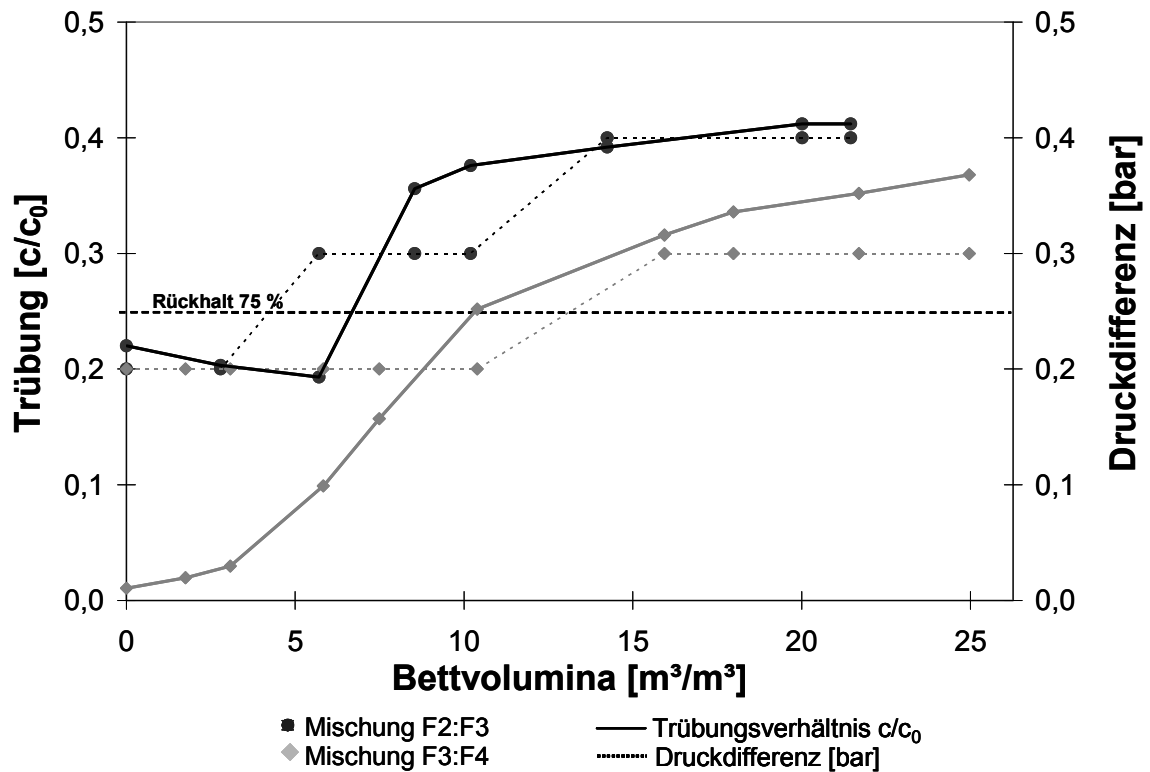


Abb. 7-8: Vergleich der Mischfraktionen Feldspat FS 900 S mit Unfiltrat

Der Vergleich der Versuchsergebnisse mit denen der Versuche von Modelltrübe und Salzgehalten bestätigt, dass auch mit zunehmender Komplexität des Elektrolyten gute Abtrennleistungen zu erwarten sind. Für das **Modellunfiltrat** ist die **optimale Filtermittelfraktion** die **Mischfraktion F3:F4** mit einer mittleren Korngröße von ca. 250 μm . Beim **Unfiltrat** hingegen zeigt die **Fraktion F3** (mittlere Partikelgröße 225 μm) die besten Ergebnisse. Diese Ergebnisse liegen im Bereich der mittels elektrokinetischer Filtrationskennzahl **berechneten Größenordnung** der optimalen Filtermittelfraktion. Die elektrokinetische Filtrationskennzahl eignet sich somit zur Berechnung der benötigten mittleren Filtermittelgröße bei neuen Filtrationsaufgaben.

7.3 Prognose des Druckverlustes mittels modifizierter Filtergleichung

Die aus den Filtrationsversuchen berechneten dimensionslosen Kennzahlen geben **Tab. 7-4** und **Tab. 7-5** wieder. Anhand der in Kapitel 6 entwickelten Filtergleichung wurde der zu erwartende Druckverlust berechnet und in **Abb. 7-9** und **Abb. 7-10** im Vergleich zu den Messwerten aufgetragen. Für das Modellunfiltrat ergibt sich, dass die **theoretischen Ergebnisse** der Fraktionen F3, F4 und F3:F4 – bei denen ein Rückhalt der Hefezellen durch Tiefenfiltrati-

on erreicht wird – **ausreichend genau** sind. Beim Unfiltrat stimmen die Prognosen für die Fraktionen F3, F4 und F5 (gute Filtrationsergebnisse) sehr gut mit den Versuchsergebnissen überein.

Tab. 7-4: Berechnungen der Filtrationskennzahlen für die Modelltrübe

Versuche	Ergebnisse des Filtrationsversuches			Filtrationsart	Bewertung	Kennzahlen			
	Δp [bar]	c/c_0	m^3/m^3			$\frac{D_{10}}{D_{90}}$	$\frac{c_0}{c_{90}}$	$\frac{\Delta p}{v \cdot \rho_s}$	$\frac{\rho_s \cdot D_{10} \cdot y}{g}$
Modellunfiltrat (7.1.2.1)									
Negative Filtermittel									
TP 208	0,3	0,1	17						
FS 900 S	0,2	<0,02	>20	Tiefenfiltration	+/-	0,06	2,00	4.320.864.173	0,005
				Tiefenfiltration	+	0,04	0,21	2.880.576.115	0,008
Kornfraktionen - Einzelfraktionen									
FS 900 S - F1	0,4	<0,01	>25	Oberflächenfiltration	-	0,06	0,21	5.769.808.675	0,006
FS 900 S - F2	0,4	0,05	10	Oberflächenfiltration	-	0,04	0,21	5.769.808.675	0,008
FS 900 S - F3	0,3	0,02	>25	Tiefenfiltration	+	0,03	0,21	4.327.356.506	0,010
FS 900 S - F4	0,3	0,03	>25	Tiefenfiltration	+	0,03	0,21	4.327.356.506	0,013
FS 900 S - F5	0,2	>0,05	5	Tiefenfiltration	-	0,02	0,21	2.884.904.337	0,015
Kornfraktionen - Mischfraktionen									
FS 900 S - F2:F3	0,2	0,2	5	Tiefenfiltration	-	0,04	0,21	2.884.904.337	0,009
FS 900 S - F3:F4	0,3	<0,1	>25	Tiefenfiltration	+	0,03	0,21	4.327.356.506	0,012

Tab. 7-5: Berechnungen der Filtrationskennzahlen für das Unfiltrat

Versuche	Ergebnisse des Filtrationsversuches			Filtrationsart	Bewertung	Kennzahlen			
	Δp [bar]	c/c_0	m^3/m^3			$\frac{D_{10}}{D_{90}}$	$\frac{c_0}{c_{90}}$	$\frac{\Delta p}{v \cdot \rho_s}$	$\frac{\rho_s \cdot D_{10} \cdot y}{g}$
Unfiltrat (7.1.2.2)									
Negative Filtermittel									
TP 208	0,1	0,2	20	Tiefenfiltration	+	0,06	2,00	1.440.288.058	0,005
FS 900 S	0,2	0,3	15	Tiefenfiltration	+/-	0,04	0,19	2.880.576.115	0,008
Kornfraktionen - Einzelfraktionen									
FS 900 S - F1	1,5	<0,2	5	Oberflächenfiltration	-	0,06	0,19	21.636.762.530	0,006
FS 900 S - F2	1,0	0,2	10	Oberflächenfiltration	-	0,04	0,19	14.424.521.687	0,008
FS 900 S - F3	0,3	0,05	30	Tiefenfiltration	+	0,03	0,19	4.327.356.506	0,010
FS 900 S - F4	0,3	0,06	17	Tiefenfiltration	+	0,03	0,19	4.327.356.506	0,013
FS 900 S - F5	0,2	0,08	20	Tiefenfiltration	+	0,02	0,19	2.884.904.337	0,015
Kornfraktionen - Mischfraktionen									
FS 900 S - F2:F3	0,4	0,2	7	Tiefenfiltration	+/-	0,04	0,19	5.769.808.675	0,009
FS 900 S - F3:F4	0,3	0,15	10	Tiefenfiltration	+/-	0,03	0,19	4.327.356.506	0,012

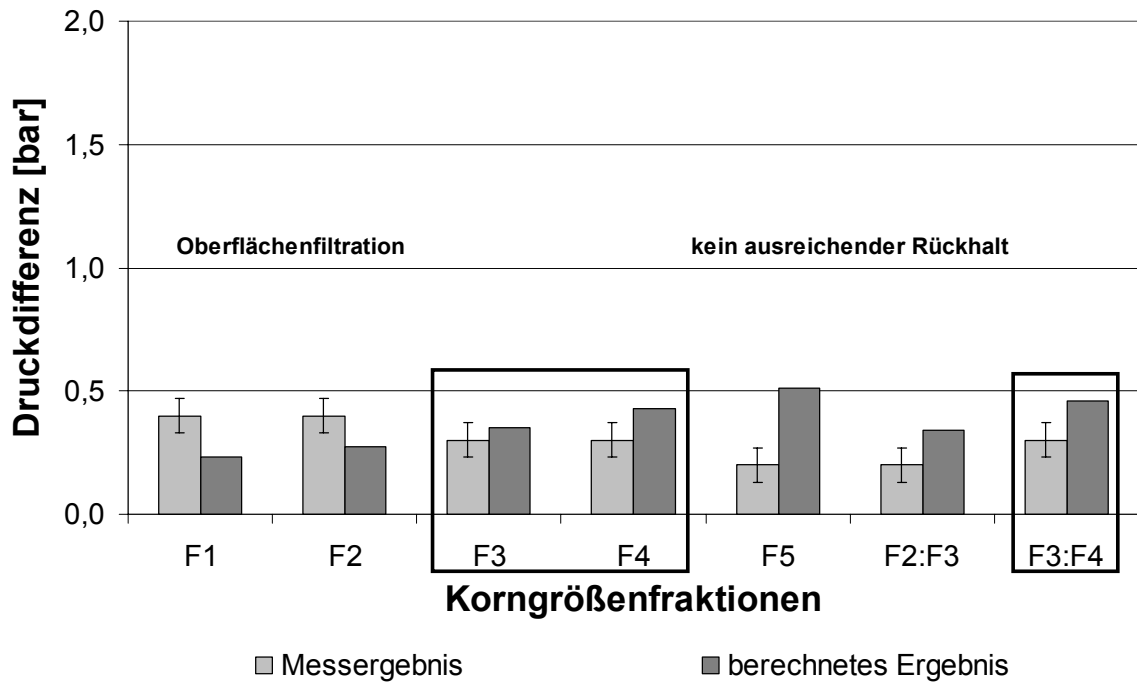


Abb. 7-9: Vergleich der experimentellen und theoretischen Ergebnisse für die Druckdifferenz im Filter beim Modellunfiltrat

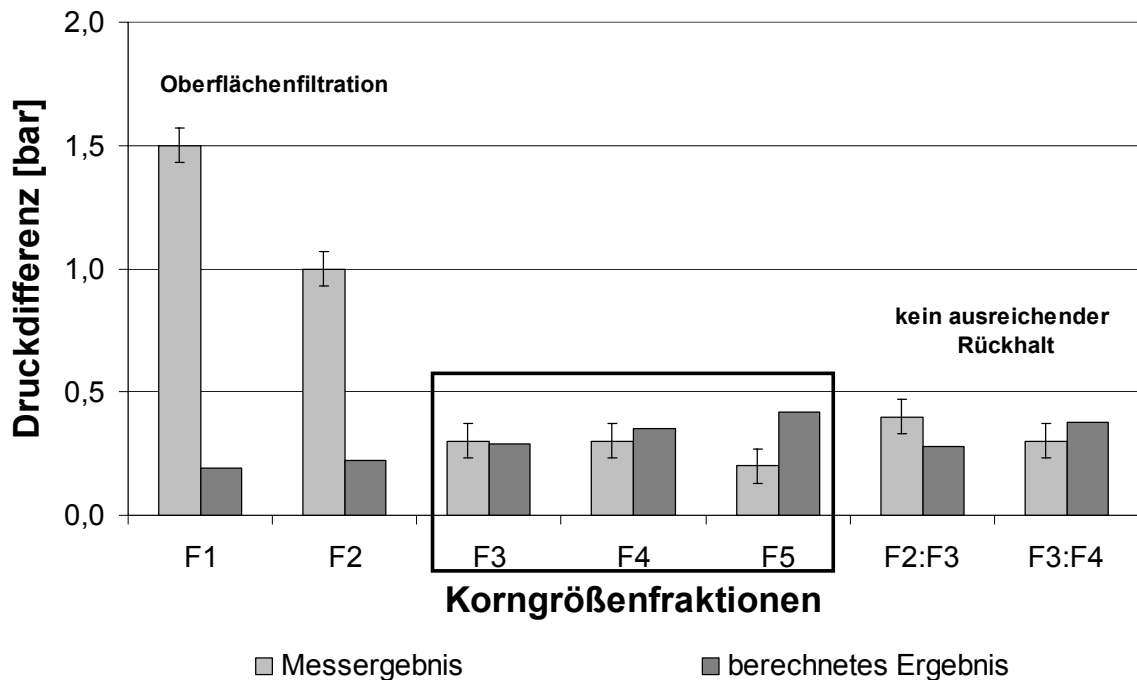


Abb. 7-10: Vergleich der experimentellen und theoretischen Ergebnisse für die Druckdifferenz im Filter beim Unfiltrat

7.4 Experimentelle Ermittlung der Gültigkeitsbereiche des Verfahrens

Zur Vertiefung der Kenntnisse über das neue Filtrationsprinzip erfolgen verschiedene Untersuchungen zur Bestimmung der Gültigkeitsbereiche und Grenzen des Verfahrens. Da es sich bei dem elektrokinetisch optimierten, selektiven Schüttbett um ein Verfahren der Tiefen- und Langsamfiltration handelt, werden Bereiche der mindestens benötigten Schütthöhe und der maximal möglichen Fließgeschwindigkeit ermittelt.

Ein Langsamfilter wird in der Regel mit Fließgeschwindigkeiten bis max. 0,25 m/h (0,25 m³/m²·h) betrieben. Höhere Filtergeschwindigkeiten führen bei diesen Filtern meist zu deutlich schlechteren Filtrationsergebnissen, vgl. auch [BRENNER/OECHSLE, 1985]. Wird die Wirksamkeit der elektrokinetischen Repulsion bei Langsamfiltern zugrunde gelegt, so kann die Filtrationsgeschwindigkeit nicht wesentlich höher angenommen werden, da das Zetapotential nur für zähe Strömungsverhältnisse definiert ist. Der Strömungszustand wird durch die Reynoldszahl Π_4 (Re) und die elektrokinetische Repulsion von der elektrokinetischen Filtrationskennzahl Π_5 (EFK) charakterisiert. Wird eine Filtration des Modellunfiltrates mit dem Feldspat FS 900 S (50 - 355 μm) angenommen, so betragen diese beiden dimensionslosen Kennzahlen entsprechend der Definition in Kapitel 6 $\Pi_4 < 0,03$ und $\Pi_5 = 0,005 - 0,2$. **Abb. 7-11** zeigt den Verlauf der beiden genannten Kennzahlen über die Filtergeschwindigkeit für diese Filtrationsaufgabe bei einer Druckdifferenz von $\Delta p = 0,2 \pm 0,05$ bar. Die Kennzahlen liegen bei jeder aufgeführten Geschwindigkeit in dem Definitionsbereich. Auffällig ist allerdings, dass sich bei einer Geschwindigkeit von $v = 0,6$ bis 0,8 m/h die beiden Verläufe schneiden. Die Bedeutung dieses Schnittpunktes und der Bezug der beiden Kennzahlen zueinander sind daher im Folgenden noch zu klären.

Die experimentellen Untersuchungen zur Bestimmung der Gültigkeitsbereiche des Verfahrens erfolgen an dem Filtermittel Feldspat FS 900 S mit einer Korngröße von 50 - 355 μm , die Feinstfraktion ($< 50 \mu\text{m}$) wurde aus der Schüttschicht entfernt. Dadurch werden die Porenräume nicht von kleinen Partikeln verstopft und stehen für die Filtration zur Verfügung. Als Trübe für die Versuche wurde Modellunfiltrat verwendet. Die Abhängigkeit der Filtrationsleistung von Schüttbetthöhe und Fließgeschwindigkeit zeigt **Abb. 7-12**.

Die dunkelgrau hinterlegte Fläche hebt den Bereich hervor, in dem ein Rückhalt von $> 97,5 \%$ bei einer Druckdifferenz unter 0,9 bar möglich ist. Die hellgrau unterlegte Fläche zeigt den

Bereich, in dem die Abtrennung der Hefen noch bis 85 % möglich ist. Der weiße Bereich kann mit dem Verfahren bei diesen Anforderungen nicht abgedeckt werden. Hier wird entweder die Filtrationsleistung durch einen geringeren Rückhalt von weniger als 75 - 85 % oder einen hohen Druckanstieg limitiert. Bei Filtergeschwindigkeiten über 0,35 m/h dominiert der hohe Druckanstieg die Filtration, da viele Hefezellen nicht mehr in das Schüttbett transportiert werden, sondern bereits an der Oberfläche des Schüttbetts zurückgehalten werden. Auf diese Weise wird eine Oberflächenfiltration begünstigt.

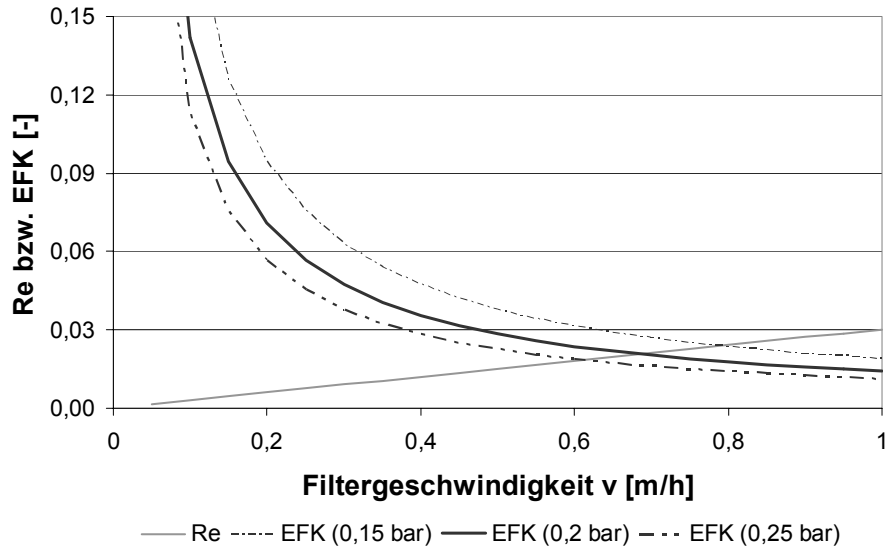


Abb. 7-11: Verlauf der Kennzahlen Π_4 und Π_5 bei Variation der Filtergeschwindigkeit für Feldspat FS 900 S und *s. carlsbergensis* ($D_{FM} = 50-355 \mu\text{m}$; $\sigma_L = 202 \text{ mS/m}$)

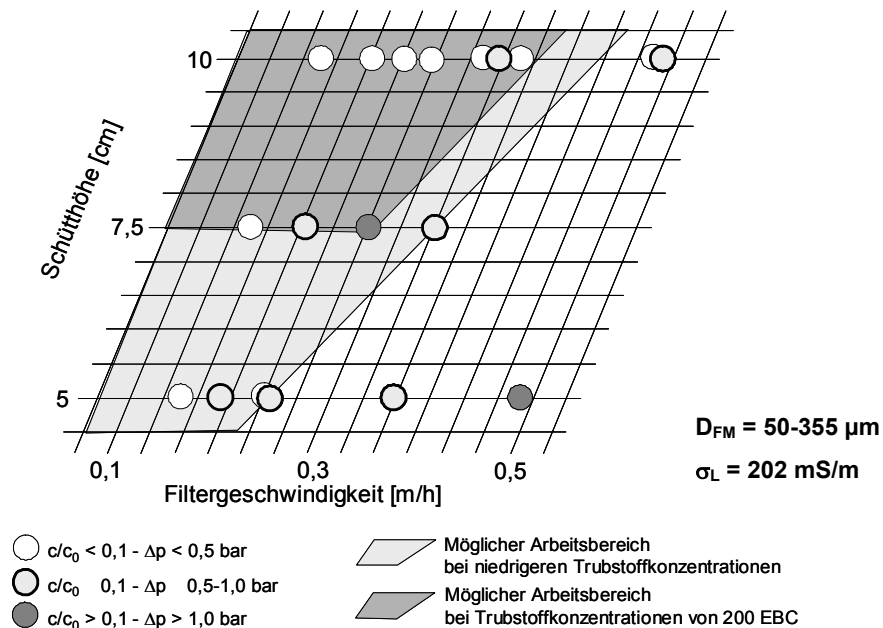


Abb. 7-12: Abhängigkeit der Filtrationsleistung von Schütthöhe und Filtergeschwindigkeit

Tab. 7-6 gibt die Ergebnisse der Untersuchungen zu den Verfahrensgrenzen sowie die berechneten Kennzahlen wieder. Obwohl die definierten Kennzahlenbereiche eingehalten werden, ist eine Steigerung der Filtergeschwindigkeit über 0,5 m/h nicht möglich. Werden entsprechende Messungenauigkeiten bei der Ermittlung der Druckdifferenz und die Problematik der mittleren Korngröße berücksichtigt, so stimmt diese **Grenze** mit dem **Schnittpunkt der Kurvenverläufe** der beiden Kennzahlen überein. Die Gültigkeit der dimensionslosen Kennzahlen muss demnach für reale Suspensionen ($\sigma_L > 100 \text{ mS/m}$) um die Beziehung: $\Pi_4 < \Pi_5$, d.h. **Re** < **EFK** erweitert werden.

Tab. 7-6: Ergebnisse Grenzen des Verfahrens

Versuche	Ergebnisse des Filtrationsversuches				Kennzahlen					
	Δp [bar]	c/c_0	m^3/m^3	Filtrationsart	Bewertung	$\Pi_1 = \frac{D_s}{D_{10}}$	$\Pi_2 = \frac{\xi_{10}}{\xi_{100}}$	$\Pi_3 = \frac{\Delta p}{\rho \cdot v \cdot \rho_s}$	$\Pi_4 = \frac{\rho_s \cdot D_s \cdot v}{\rho}$	$\Pi_5 = \frac{\xi_{100} \cdot \xi_{10} \cdot v}{D_{10} \cdot \Delta p \cdot v}$
Arbeitsbereiche (7.1.2.2)										
Schürthöhe [cm] / Fließgeschwindigkeit [m/h]										
10 / 0,15	0,3	<0,1	>25	Tiefenfiltration	+	0,04	0,21	12.717,129.324	0,005	0,05
10 / 0,2	0,3	<0,1	25	Tiefenfiltration	+	0,04	0,21	7.362.232.241	0,006	0,04
10 / 0,25	0,3	<0,1	20	Tiefenfiltration	+	0,04	0,21	5.761.273.455	0,007	0,03
10 / 0,3	0,4	<0,1	20	Tiefenfiltration	+	0,04	0,21	5.769.808.675	0,008	0,02
10 / 0,35	0,5	0,1	15	Tiefenfiltration	+/-	0,04	0,21	5.008.514.475	0,010	0,01
10 / 0,5	0,9	0,2	10	Oberflächenfiltration	-	0,04	0,21	5.289.208.948	0,013	0,01
7,5 / 0,15	0,3	<0,1	<10	Tiefenfiltration	+	0,04	0,21	17.309.426.024	0,004	0,05
7,5 / 0,2	0,4	0,1	25	Tiefenfiltration	+/-	0,04	0,21	12.982.069.518	0,005	0,03
7,5 / 0,3	1,5	0,2	20	Tiefenfiltration	-	0,04	0,21	20.263.375.939	0,008	0,01
7,5 / 0,35	0,5	0,2	15	Tiefenfiltration	+/-	0,04	0,21	5.298.803.885	0,009	0,01
5 / 0,15	0,3	<0,1	>25	Tiefenfiltration	+	0,04	0,21	17.292.104.473	0,004	0,05
5 / 0,2	0,3	0,1	20	Tiefenfiltration	+/-	0,04	0,21	9.736.552.139	0,005	0,04
5 / 0,25	0,4	0,2	20	Tiefenfiltration	+/-	0,04	0,21	8.308.524.492	0,007	0,02
5 / 0,35	0,5	>0,1	15	Tiefenfiltration	+/-	0,04	0,21	5.293.501.369	0,009	0,01
5 / 0,5	0,9	<0,1	15	Oberflächenfiltration	-	0,04	0,21	5.071.120.906	0,013	0,01

Auch die Gegenüberstellung der in den praktischen Untersuchungen erhaltenen Druckverluste sowie die mit Hilfe der modifizierten Carman-Kozeny-Gleichung erhaltenen Druckverluste bestätigen, dass dieses Filtrationsprinzip nur bei langsamen Strömungsgeschwindigkeiten wirksam ist. Die Prognose stimmt für die hohen Strömungsgeschwindigkeiten nicht mit dem Messergebnis überein, da hier anstelle einer Tiefenfiltration eine Oberflächenfiltration erfolgt. Entsprechend wird ein zu geringer Druckverlust prognostiziert, vgl. **Abb. 7-13**.

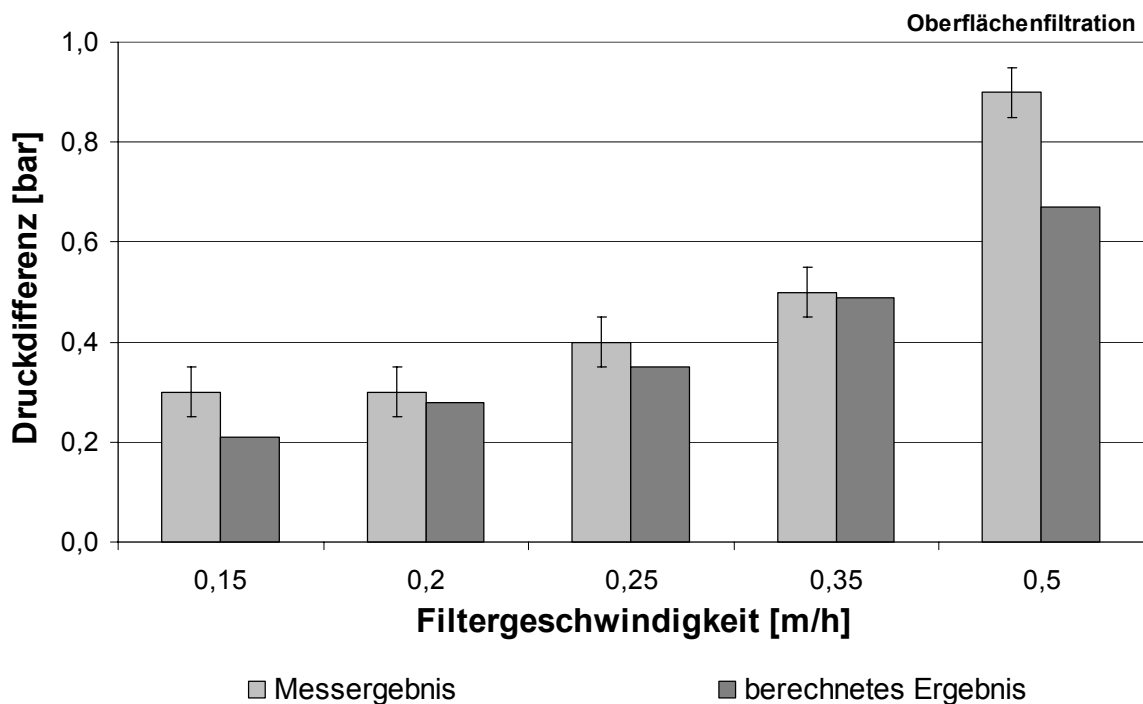


Abb. 7-13: Vergleich der experimentellen und theoretischen Ergebnisse für verschiedene Filtergeschwindigkeiten

7.5 Bewertung des Verfahrens mit elektrokinetisch optimiertem, selektivem Schüttbett als Vorfiltrationsstufe

Die Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen zeigen, dass das Verfahren prinzipiell für die Vorfiltration von Bier zur Entlastung nachfolgender Prozessschritte geeignet ist. In Versuchen konnten folgende Abhängigkeiten festgestellt werden:

- Bei einer Schütthöhe von $L = 10$ cm können Filtergeschwindigkeiten bis $v = 0,3$ m/h mit einer Trübereduktion von 97,5 % (< 5 EBC) erreicht werden.
- Schütthöhen $L < 10$ cm bzw. $L < 7,5$ cm ermöglichen einen Trüberückhalt von 75 – 90 %, wobei sich die Kapazität des Schüttbetts und damit die Standzeiten des Filters gegenüber $L = 5$ cm überproportional erhöhen.

- Fließgeschwindigkeiten von $v > 0,3$ m/h ermöglichen einen Trüberückhalt von 75 – 90 %.
- Niedrige Schütthöhen ($L < 5$ cm) führen dazu, dass die Wahrscheinlichkeit, ein Trubstoffpartikel in einem Zwickel des Schüttbetts abzuscheiden, abnimmt. Das Filtrat ist stärker getrübt als bei größeren Schütthöhen.

⇒ Eine Anpassung der Filterstandzeit kann daher über die Wahl der Schütthöhe erreicht werden.

- Fließgeschwindigkeiten $v > 0,4$ m/h führen dazu, dass die Hefezellen nicht mit dem Medium zusammen in den Filter eindringen können.
 - Bei sehr niedrigen Filtergeschwindigkeiten mit gleichzeitig hoher Hefekonzentration ist die Fluidströmung nicht ausreichend, um die suspendierten Partikel in das Schüttbett zu transportieren.
- ⇒ Die Poren an der Oberfläche des Filtermittels setzen sich zu, und es tritt eine Oberflächenfiltration ein. Dies führt zu einer Verblockung des Filters bei gleichzeitig schnellem Druckanstieg, s. auch [BAUMANN, ET.AL., 1993]

Unter der Voraussetzung, dass eine Resttrübe von 5 EBC eingehalten werden soll – dies entspricht einem Rückhalt von $> 97,5$ % – liegen die Grenzen des Verfahrens bei Wahl des anorganischen Filtermittels Feldspat FS 900 S bei einer Schütthöhe von mindestens 7,5 cm und einer maximalen Fließgeschwindigkeit von 0,3 m/h. Für den Einsatz des entwickelten Vorfiltrationsverfahrens muss ein entsprechender Apparat entwickelt werden, der das Filtermittel aufnehmen kann und mit entsprechenden Einrichtungen für die Rückspülung ausgestattet ist. Aus wirtschaftlichen Gründen ist die Verwendung vorhandener Apparate, die lediglich geringfügig modifiziert werden müssen, ideal. Geeignet sind hierfür:

- Schichtenfilter, wie sie in Brauereien bereits bei der Bierstabilisierung mittels PVPP (Polyvinylpolypyrrolidon) angewendet werden,
- Kerzenfilter, ähnlich den Kieselgurkerzenfiltern. Die Zwischenräume zwischen den Kerzenelementen werden hierbei vollständig mit Filtermittel gefüllt.

Durch den Einsatz eines Tiefenfiltrationsverfahrens mit elektrokinetisch optimiertem, selektivem Schüttbett als Vorfilter können Kieselgurfilter oder andere Massefilter auf der Basis alternativer Filtermittel entlastet werden. Dies führt insgesamt zu einer effizienteren Reinigung. Bei der ebenfalls eingesetzten Kombination von Zentrifuge und Membranfiltration kann der neue Vorfilter die energieintensive Zentrifuge ersetzen.

8 Schlussfolgerungen und Ausblick

Die Filtration von Biosuspensionen lässt sich in zwei prinzipielle Prozessschritte unterteilen: Die **Abtrennung der Biomasse** mittels physikalischer Effekte – wie dem Sperreffekt oder hydrodynamischen Effekten – und die **Abtrennung kolloidaler Substanzen** mittels physikalisch-chemischer Prozesse – wie der Adsorption. Die in der konventionellen Filtertechnik eingesetzten Filtermittel und Filterhilfsmittel, wie z.B. Kieselgur oder Cellulosederivate, haben den Nachteil, dass sie in der Regel bei hohen Konzentrationen von Mikroorganismen schlechte Filtrationsergebnisse liefern. Dies liegt vor allem daran, dass bei diesen Verfahren die beiden genannten Prozessschritte gleichzeitig durchgeführt werden, was zwangsläufig zu einer schlechteren Gesamtleistung des Filtrationsschritts führt, als wenn beide Schritte einzeln erfolgen. Beim Einsatz einer Membranfiltration kann zwar ein nahezu vollständiger Rückhalt der Biomasse erreicht werden, aber die – in diesem Fall unerwünschte – Adsorption kolloidaler Substanzen reduziert deren Leistungsfähigkeit deutlich. Das Entwicklungsziel bestand daher darin, ein Filtrationsverfahren zur **selektiven** Abtrennung der Biomasse (am Beispiel von Hefen der Gattung *saccharomyces*) mit einem **regenerierbaren Filtermittel** und niedrigem Energiebedarf zu entwickeln. Dabei sollte die Filtrationsart eine **Tiefenfiltration** sein, und die hauptsächlichliche Trennwirkung auf der Wahl der optimalen Trenngrenze durch Berücksichtigung der **elektrokinetischen Abstoßungskräfte** beruhen.

Ergebnis der praktischen Untersuchungen ist, dass sich das neuartige Filtrationsprinzip mit elektrokinetisch optimiertem, selektiven (eos) Schüttbett zur Abtrennung von Mikroorganismen aus einer Suspension eignet. Durch die Wahl des entsprechenden Zetapotentials des Filtermittels bei bekanntem suspendiertem Partikel kann die Filtrationsart beeinflusst werden. Der Filtrationsschritt ermöglicht eine **Vorfiltration** einer Biosuspension mit einem **Biomasserückhalt > 75 %**. Die Wahl eines optimierten Schüttbetts ermöglicht trotz hoher Partikelkonzentrationen in der Suspension den Einsatz einer Tiefenfiltration. Durch das gleichnamige Zetapotential von Mikroorganismen und Filtermittel adsorbieren die Zellen aufgrund der Repulsionskräfte nicht fest am Filtermittel und können von diesem bei der Filterregeneration durch Rückspülen mit Wasser abgetrennt werden. Aufgrund der einfachen Rückspülbarkeit fällt kein verbrauchtes und zu entsorgendes Filtermittel an, und es ist möglich, die Mikroorganismen wiederzugewinnen und in den Prozess zurückzuführen. Ein mögliches Einsatzgebiet für das Verfahren ist die Vorfiltration von Bier, bei der eine Entlastung der nachfolgenden Filtrationsschritte erfolgt.

Im Rahmen der theoretischen Beschreibung des Filtrationsprinzipes konnte anhand von Partikeln, die hydrodynamischen Einflüssen unterworfen sind, gezeigt werden, dass es sich bei dem **elektrokinetischen Effekt** nicht um einen Transportmechanismus im Schüttbett handelt, sondern vielmehr um einen **Anhaftmechanismus**. Durch die Verringerung der Adsorption werden die suspendierten Partikel gleichmäßiger im Schüttbett verteilt und es treten geringere Druckverluste auf. Zur Beschreibung des Filtrationsprinzipes und seiner Gültigkeitsbereiche können dimensionslose Kennzahlen verwendet werden. Die Kennzahlen lauten:

$$\begin{aligned} \Pi_1 &= \frac{D_S}{D_{FM}} && \text{Dimensionslose Geometrie Kennzahl} \\ \Pi_2 &= \frac{\zeta_S}{\zeta_{FM}} && \text{Dimensionsloses Zetapotential} \\ \Pi_3 &= \frac{\Delta p}{v^2 \cdot \rho_F} = Eu && \text{Eulerzahl} \\ \Pi_4 &= \frac{\rho_F \cdot D_{FM} \cdot v}{\eta_F} = Re && \text{Reynoldszahl} \\ \Pi_5 &= \frac{\zeta_{FM} \cdot \zeta_S \cdot \sigma_L}{D_{FM} \cdot \Delta p \cdot v} && \text{Elektrokinetische Filtrationskennzahl (EFK)} \end{aligned}$$

Dabei gilt für reale Suspensionen ($\sigma_L > 100 \text{ mS/m}$) $\Pi_4 < \Pi_5$ bzw. Reynoldszahl $<$ EFK. Die elektrokinetische Filtrationskennzahl (EFK) ist zur Bestimmung der Größenordnung des benötigten Filtermittels geeignet. Diese Kennzahl fasst außerdem die Einflussfaktoren von Filtermittel und Suspension zusammen. Vereinfachend kann sogar das **Zetapotential** als **Summenparameter** zu Beschreibung der Wechselwirkungen zwischen Filtermittel und abzutrennenden suspendierten Partikeln und der Trübeeigenschaften (pH, Leitfähigkeit) verwendet werden, da anhand des dimensionslosen Zetapotentials (Π_2) die wesentlichen Wechselwirkungen ermittelt werden können.

Für die praktische Anwendung bei der Berechnung des Druckverlustes in einem Filter ist weniger der Anfangsdruck als vielmehr der Druckverlust im beladenen Schüttbett von Bedeutung. Durch die Anpassung der Porositätsfunktion nach Carman-Kozeny kann mit der Filtergleichung nach Carman-Kozeny der sich einstellende Druckverlust im Filter berechnet werden:

$$\Delta p = v \cdot L \cdot \eta_L \cdot S_V^2 \cdot \left(\frac{\zeta_S}{\zeta_{FM}} \right)^2 \cdot \left(\frac{D_{FM}}{D_S} \right)^3 \cdot \frac{(1 - \varepsilon_{FM})^2}{\varepsilon_{FM}^2}$$

Als Ergebnis kann somit festgehalten werden, dass neben der Verstärkung der Adsorptionseffekte durch ungleichnamige Zetapotentiale auch eine **Verbesserung der Filtrationsergebnisse** durch die **Nutzung elektrokinetischer Repulsionskräfte** erfolgen kann. Bei der Wahl von Filtermitteln (unabhängig ob konventionelle Filtermittel für Tiefen- oder Oberflächenfiltration oder Membranen) sind daher nicht ausschließlich die nominelle Porengröße sowie die Porengrößenverteilung und Porendichte sondern auch das Material bzw. dessen elektrokinetische Eigenschaften entscheidend für die Effizienz, Leistungsfähigkeit und Selektivität des Filtermittels. In der Filtration sollten die elektrokinetischen Effekte stärker berücksichtigt werden, um

- die Abscheideleistung im Schüttbett des Tiefenfilters zu verbessern,
- eine gleichmäßige Beladung des Schüttbetts zu ermöglichen (volle Ausnutzung der Porosität) und damit
 - einen frühen Durchbruch zu verhindern (Steigerung der Kapazität) sowie
 - die Adsorption organischer Stoffe, insbesondere von Mikroorganismen und Zellbestandteilen, zu minimieren sowie
- die Selektivität der Filtration zu erhöhen.

Durch die exakte Auswahl der Filtermittelgröße kann eine **Tiefenfiltration** ermöglicht werden, die durch **Optimierung der elektrokinetischen Wechselwirkungen** eine äußerst **selektive Trennwirkung** hat, die mit einer Mikrofiltrationsmembran vergleichbar ist. Der Vorteil dieses Verfahrens gegenüber der Mikrofiltration liegt in der hohen Aufnahmekapazität des Schüttbetts für Mikroorganismen. Eine Querstromfiltration zur Verhinderung einer Deckschicht auf dem Filtermittel – wie bei der Mikrofiltration üblich – ist daher nicht notwendig, und die Biosuspensionen können schonend bei geringem Druckverlust und niedriger Überströmgeschwindigkeit und damit auch mit geringem Energiebedarf vorfiltriert werden. Nachfolgende Reinigungsschritte zur Schönung oder Sterilfiltration werden effizienter.

Ziel zukünftiger Untersuchungen sollte es sein, die Filtermitteleigenschaften hinsichtlich

- Partikelform und -oberfläche,
- Partikelgröße bzw. Partikelgrößenverteilung und Packungsdichte sowie
- Zetapotential

zu optimieren.

Aus den bisherigen Untersuchungen wird außerdem deutlich, dass die gewonnenen Erkenntnisse auch auf die Entwicklung von (keramischen) Membranen übertragbar sind. Sie beinhalten hier hinsichtlich der Minimierung des Foulingpotentials von Membranen, dem Transport von kolloidalen Stoffen durch die Membran sowie der optimalen Reinigungsprozedur ein entsprechendes Entwicklungspotential.

Literaturverzeichnis

ABFABLV: *Verordnung über die umweltverträgliche Ablagerung von Siedlungsabfällen*,
BGBl I 2001, 305 / 20.02.2001

ABWASSERTECHNISCHE VEREINIGUNG (Hrsg.): *Industrieabwasser – Grundlagen*,
ATV-Handbuch, Ernst&Sohn, Weinheim, 4. Auflage, 1999

ABWASSERTECHNISCHE VEREINIGUNG (Hrsg.): *Industrieabwasser – Lebensmittelindustrie*,
ATV-Handbuch, Ernst&Sohn, Weinheim, 4. Auflage, 2000

ADAMCZYK, Z.: *On the Convective Diffusion of Particles under Electrical Double-Layer Forces*,
Journal of Colloid and Interface Science, 64, 3/1978, S. 580-583

ADIN, A.; REBHUN, M.: *Deep-Bed Filtration: Accumulation-Detachment Model Parameters*,
Chemical Engineering Science, 42, 5/1987, S. 1213-1219

ADIN, A.: *Solution of granular bed filtration equations*,
Journal of the environmental engineering division, 1978, S. 471-484

ALBLEMARLE: *Produktinformationen Aluminiumoxide*, 7/2003

AMBERGER: *Produktinformationen Feldspate*, Amberger Kaolinwerke,
Eduard Kick GmbH & Co. KG, 2004

AMORY, D.E.; ROUXHET, P.G.: *Surface properties of Saccharomyces cerevisiae and Saccharomyces carlsbergensis: chemical composition, electrostatic charge and hydrophobicity*,
Biochemica et Biophysica Acta, 938, 1988, S. 61-70

ANTON PAAR: *Electrokinetic Characterization of Glass Microspheres*,
Firmeninformation Anton Paar, Graz, 2004

ANTRANIKIAN, G. (Hrsg.): *Angewandte Mikrobiologie*, Springer-Verlag, Berlin, 2005

ATKINS, P.W., HÖPFNER, A.: *Physikalische Chemie*,
Wiley-VCH-Verlag, Weinheim, 3. Auflage, 2001

AYDIN, M.; YANO, T.; KILIC, S.: *Dependence of zeta potential and soil hydraulic conductivity on adsorbed cation and aqueous phase properties*,
Soil Science Society of America Journal, 68, 2004, S. 450-459

- BACK, W.: *Mikrobiologische Qualitätskontrolle von Wässern, alkoholfreien Getränken, Bier und Wein*, in Dittrich, H. H. (Hrsg.): *Mikrobiologie der Lebensmittel-Getränke*, B. Behr's Verlag, Hamburg, 1993, S. 348-362
- BARGEL, H.-J.; SCHULZE, G.: *Werkstoffkunde*, VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf, 6. Auflage, 1994
- BAUCKHAGE, K.: *Die Strömung von Suspensionen, Teil II: Größe und Richtung hydrodynamisch bedingter Querkräfte auf kugelförmige Partikeln in laminarer Rohrströmung*, *Chemie-Ingenieur-Technik*, 47, 15/1975, S. 645
- BAUCKHAGE, K.: *Möglichkeiten zur Nutzung hydrodynamisch bedingter Fest/Flüssig-Entmischungen*, *Chemie-Ingenieur-Technik*, 49, 3/1977, S. 249
- BAUCKHAGE, K.: *Fest/Flüssig-Entmischungen schwach sedimentierender Kugeln in vertikaler Poiseuille-Strömung*, *Chemie-Ingenieur-Technik*, 54, 9/1982, S. 844-845
- BAUMANN, G.; BREDERECK, E.; ET.AL.: *Filtration und Flockungsfiltration*, *Galvanotechnik*, 84, 1993, No. 8, S. 2713-2719
- BAYER: Sicherheitsdatenblatt *Lewatit TP 208*, 11/2002-A
- BAYER: Sicherheitsdatenblatt *Lewatit MP62*, 11/2002-B
- BEAR, J.: *On The Tensor Form of Dispersion in Porous Media*, *Journal of Geophysical Research*, 66, 4/1961, S. 1185-1197
- BEITZ, W.; GROTE, K.-H. (Hrsg.): *Dubbel - Taschenbuch für den Maschinenbau*, Springer-Verlag, Berlin, 20. Auflage, 2001
- BETTEN, P.: *Kolloidchemische Untersuchung zur Optimierung von Autoserienlacken*, Dissertation Christian-Albrechts-Universität, Kiel, 2003
- BIOABFV: *Verordnung über die Verwertung von Bioabfällen auf landwirtschaftlich, forstwirtschaftlich und gärtnerisch genutzten Böden*, BGBl I 1998, 1955 / 21.09.1998
- BIFA: *Abfallarme Klärfiltration in Brauereien*, BifA-Texte Nr. 12, Bayerisches Institut für Abfallforschung, Augsburg, 1999
- BIRD, R.B.; STEWART, W.E.; LIGHTFOOD, E.N.: *Transport Phenomena*, John Wiley & Sons, New York, 2. Auflage, 2002

- BLANK, R.; ET.AL.: *Electrokinetic investigations of charged porous membranes*, Colloids and Surfaces, 140, 1998, S. 3-11
- BOHNET, M.: *Mechanische Verfahrenstechnik*, VCH-Wiley-Verlag, Weinheim, 2004
- BORHO, K.: *Grenzflächen - Eine Zukunftstechnologie stellt sich vor*, CIT plus, 1, 1998, S. 20-21
- BÖRNER, M.; JACOBASCH, H.-J.; SIMON, F.; ET.AL.: *Zeta potential measurements with fibre plugs in 1:1 electrolyte solutions*, Colloids and Surfaces, 85, 1994, S. 9-17
- BOTH, H.D.R. VON: *Druckfiltration und Eigenschaften von Siliziumcarbid-Suspensionen mit eingelagerten Porenbildnern*, Dissertation, TH Karlsruhe, 2000
- BOWEN, W.R.; ET.AL.: *Characterisation of membrane surfaces: direct measurement of biological adhesion using an atomic force microscope*, Journal of Membrane Science, 154, 1999, S. 205-212
- BRENNER, F.; OECHSLE, D.: *Filtermedien im Rasterelektronenmikroskop (REM)*, Brauwelt, 4/1985, S. 130-137
- BRENNER, F.; OECHSLE, D.: *Tendenzen in der Bierfiltration*, Brauwelt, 4/1987, S. 118-125
- BRINK, C.: *Genom verdoppelt - Einsichten in die Evolution der Bäckerhefe*, Bioforum, 3/2005, S. 31
- BRITZ, T.: *Einsatz einer neuartigen Hohlfaser-Polymermembran in der kommunalen Abwasserreinigung – Entwicklung und Erprobung eines getauchten Membransystems*, Dissertation Universität des Saarlandes, upt-Schriftenreihe, Saarbrücken, Nr. 3, 2005
- BROOKS D.E.; MILLAR, J.S.; SEAMAN, G.V.F. ET.AL.: *Some physicochemical factors relevant to cellular interactions*, Journal of Cellular Physiology, 69, 1967, S. 155-168
- BRUNAUER, S.; EMMET P.H.; TELLER, E.: *Adsorption of gases in multimolecular layers*, Journal of the American Chemical Society, 60, 1938, S. 309-319.
- BURNS, D. B.; ZYDNEY, A. L.: *Buffer effects on the zeta potential of ultrafiltration membranes*, Journal of Membrane Science, 172, 2000, S. 39-48

- BUSALMEN, J.P.; SANCHEZ, S.R. DE : *Adhesion of Pseudomonas fluorescens (ATCC 17552) to nonpolarized and polarized thin films of gold*,
Applied and Environmental Microbiology, 67, 7/2001, S. 3188-3194
- CHAN, D. Y. C.; WHITE, L. R.: *The electrostatic interaction between spherical colloidal particles - a comment on the paper by Barouch et al.*,
Journal of Colloid and Interface Science, 74, 1/1980, S. 303-305
- CHANG, Y.-I.; HSIEH, C.-Y. : *The effect of cationic electrolytes on the electrophoretic properties of bacterial cells*, Colloids and Surfaces, 52, 1991, S. 21-31
- CHANG, M. Y.; ROBERTSON, A. A.: *Zeta Potential measurements of fibres. D-C Streaming current method*, The Canadian Journal of Engineering, 45, 1967, S. 66-71
- CHANG, J.S.; VIGNESWARAN, S.: *Ionic strength in deep bed filtration*,
Water Research, 24, 11/1990, S. 1425-1430
- CHESKO, J.; KAZAZ, J.; UGOZZOLI, M. ET.AL.: *An investigation of the factors controlling the adsorption of protein antigens to anionic PLG microparticles*,
Journal of Pharmaceutical Sciences, 94, 11/2005, S. 2510-2519
- CHIANG, H.-W.; TIEN, C.: *Deposition of brownian particles in packed beds*,
Chemical Engineering Science, 37, 8/1982, S. 1159-1171
- CHIANG, H.-W.; TIEN, C.: *Dynamics of Deep-Bed Filtration - Part 1: Analysis of Two Limiting Situations*, AIChE Journal, 31, 8/1985, S. 1349-1359
- CHMIEL, H.: *Zur Blutrheologie in Medizin und Technik*,
Habilitationsschrift, RWTH Aachen, 1973
- CHMIEL, H.; STRATHMANN, H.; STREICHER, E. ET.AL.: *Membranen in der medizinischen Verfahrenstechnik*, Chemie-Ingenieur-Technik, 55, 4/1983, S. 282-292
- CHMIEL, H. (Hrsg.): *Bioprozesstechnik*, Spektrum Akademischer Verlag, 2. Auflage, 2005
- CHRISTIANSEN, G.; CHRISTIANSEN, C.: *Comparison of the fine structure of mitochondrial DNA from Saccharomyces cerevisiae and S. carlsbergensis: electron microscopy of partially denatured molecules*, Nucleic Acids Research, 3, 2/1976, S. 465-476

- COAD, M.A.; IVES, K.J.: *Investigation of deep bed filtration using tracers*, Filtech Conference Proceedings, 1981
- COOKSON, J.T.: *Removal of Submicron Particles in Packed Beds*, Journal of Environmental Science Technology, 4, 2/1970, S.128-134
- DAVIS, J.A.; KENT, D.B.: *Surface Complexation Modeling in Aqueous Geochemistry*, Reviews in Mineralogy, Volume 23: Mineral-Water Interface Geochemistry; Hrsg.: HOCELLA, M.: Mineralogical Society of America, Chelsea, 1990, S. 204-231
- DEACON, J.W.: *Introduction to Modern Mycology*, Basic Microbiology, Volume 7, Blackwell Scientific Publications, Edinburgh, 2. Auflage, 1984
- DENGIS, P.B.; ROUXHET, P.G.: *Surface Properties of Top- and Bottom-Fermenting Yeast*, Yeast, 13, 1997, S. 931-943
- DERJAGUIN, B.; LANDAU, L.: *Theory and stability of strongly charged lyophobic sols and of the adhesion of strongly charged particles in solutions of electrolytes*, Acta Physicochemica U.R.S.S., 14, 6/1941, S. 633-662
- DICKENSON, T.C.: *Filters and Filtration Handbook*, Elsevier Advanced Technology, Oxford, 1997
- DIN 4768: *Ermittlung von Rauigkeitskenngrößen R_a , R_z , R_{max} mit elektrischen Tastschnittgeräten, Begriffe, Messbedingungen*, 1990
- DIN 66131: *Bestimmung der spezifischen Oberfläche von Feststoffen durch Gasadsorption nach Brunauer, Emmet und Teller (BET)*, 2002
- DITTRICH, H.H. (Hrsg.): *Mikrobiologie der Lebensmittel – Getränke*, B.Behr's Verlag GmbH & Co., Hamburg, 1993
- DOBRINSKI, P.; KRAKAU, G.; VOGEL, A.: *Physik für Ingenieure*, Teubner Verlag, Stuttgart, 10. Auflage, 2003
- DONHAUSER, S.: *Asbestfreie Filterschichten*, Brauwelt, 28, 1982, S. 1248-1256
- DONHAUSER, S.: *Einfluss von Filterhilfsmitteln auf den Eisengehalt von Bier*, Brauwelt, 29, 1983, S. 1219-1228

- DONHAUSER, S.; WAGNER, D.; WAUBKE, C.: *Beer filtration without kieselguhr – Experiences with a combination of a centrifuge and a horizontal filter as well as regeneratable filter aids*, Brauwelt international, 2/1989, S. 135-140
- DORFNER, K.: *Ionenaustauscher*, Walter de Gruyter & CO., Berlin, 1970
- EBC: *Beer filtration, stabilisation and sterilisation: manual of good practice*, European brewery convention, Fachverlag Hans Carl, Nürnberg, 1999
- EISELT, G.; BACK, W.; GERDES, E.: *Anschwemmfiltration mit organischen Filterhilfsmitteln: Erfahrungen im Technikumsmaßstab und im großtechnischen Einsatz*, EBC-Congress Budapest, 1999, S. 797-806
- ELIMELECH, M.: *Kinetics of Capture of Colloidal Particles in Packed Beds under Attractive Double Layer Interactions*, Journal of Colloid and Interface Science, 146, 2/1991, S. 337-352
- ELIMELECH, M.; CHEN, W.H.; WAYPA, J.J.: *Measuring the zeta (electrokinetic) potential of reverse osmosis membranes by a streaming potential analyzer*, Desalination, 95/1994, S. 269-286
- ELIMELECH, M.; NAGAI, M.; KO, C-H; RYAN, J. N.: *Relative insignificance of mineral grain zeta potential to colloid transport in geochemically heterogeneous porous media*, Environmental Science Technology, 34, 11/2000, S. 2143-2148
- ERGUN, S.: *Fluid flow through packed columns*, Chemical Engineering Progress, 48, 2/1952, S. 89-94
- ERNST, M.; BISMARCK, A.; SPRINGER, J.; ET.AL.: *Zeta-potential and rejection rates of a polyethersulfone nanofiltration membrane in single salt solutions*, Journal of Membrane Science, 165, 2000, S. 251-259
- EVERS, H.: *Ersatz der Kieselgur bei der Bierfiltration durch ein regenerierbares Filterhilfsmittel*, Dissertation, Technische Universität Berlin, 1996
- EVERS, H.: *Die Entwicklung der kieselgurfreien Bierfiltration*, Filtrieren und Separieren, 19, 2/2005, S. 63-68
- FAIRBROTHER, F.; MASTIN, H.: *Studies in Electro-endosmosis. Part 1*, Journal of the Chemical Society, 1924, S. 2319-2330

- FERNANDEZ-LAHOPE, H.M.; GEILENKIRCHEN, S. ET.AL.: *The influence of cell adsorbent interactions on protein adsorption in expanded beds*, Journal of Chromatography A, 873, 2000, S. 195-208
- FEUSER, J.; ET.AL.: *Cell/adsorbent interactions in expanded bed adsorption of proteins*, Bioseparation, 8, 1999, S. 99-109
- FGK: *Prüfbericht 0605/05 über die Rasterelektronenmikroskopische Analyse und Bestimmung der spezifischen Oberfläche nach BET für die Gesellschaft für umweltkompatible Prozesstechnik mbH in Saarbrücken*, Forschungsinstitut für Anorganische Werkstoffe – Glas/Keramik/ GmbH, Höhr-Grenzhausen
- FITZPATRICK, J.A., SPIELMAN, L.A.: *Filtration of aqueous latex suspension through beds of glass spheres*, Journal of Colloid and Interface Science, 43, 2/1973, S. 350-369
- FOHRMANN, G.: *Untersuchungsergebnisse zur Mobilität von Kupfer und Antimon in wasserwirtschaftlich relevanten, porösen Lockergesteinen durch Säulenversuche und mit reaktiver Transportmodellierung*, Dissertation, Ludwig-Maximilian-Universität, München, 2002
- FORCHHEIMER, P.: *Wasserbewegung durch Boden*, Zeitschrift des Vereins deutscher Ingenieure, 45, 1901, S. 1782-1788
- FRITSCHING, U.; BAUCKHAGE, K.: *Zum Impulsaustausch zwischen Fluid und einer kugelförmigen Partikel in laminarer Scherströmung*, Chemie-Ingenieur-Technik, 63, 12/1991, S. 1260-1261
- GASPAR, H.; OECHSLE, D.; PONGRATZ, E.: *Handbuch der industriellen Fest/Flüssig-Filtration*, Wiley-VCH Verlag, Weinheim, 2. Auflage, 2000
- GASPAR, H.: *Projektierung und Optimierung von Fest/Flüssig-Filtrationssystemen*, Chemie Ingenieur Technik, 76, 2004, No. 6, S. 746-750
- GIMBEL, R.: *Einfluss der Filterkornstruktur auf das Verhalten von Tiefenfiltern*, gwf-wasser/abwasser, 123, 5/1982, S. 220-228
- GIMBEL, R.; HAGMEYER, G.; BARON, B. ET.AL. (Hrsg.): *Membranfiltration in der Trinkwasseraufbereitung*, IWW-Schriftenreihe, Nr. 28, Aachen, 1999
- GMEHLING, J.; BREHM, A.: *Grundoperationen - Lehrbuch der Technischen Chemie*, Band 2, Georg Thieme Verlag, Stuttgart, 1996

- GREGORY, J.; WISHART, A. J.: *Deposition of latex particles on alumina fibers*, Colloids and Surfaces, 1980, S. 313-334
- GUENDER, B.: *The Membrane Coupled Activated Sludge Process in Municipal Wastewater Treatment*, Technomic Publishing Co., Lancaster, 2001
- GÜNTER, C.: *Numerische und experimentelle Untersuchungen zur Tiefenfiltration*, VDI-Fortschrittsbericht, VDI-Verlag, Düsseldorf, Reihe 3, Nr. 539, 1998
- HAHN, H.H.: *Chemical and Physical Aspects of Coagulation*, Progress of Colloid and Polymer Science, 95, 1994, S. 153-160
- HAMMERSVELD, E.F. VAN; LOOSDRECHT, M.C.M. VAN; LUYBEN, K.C.A.M.: *How important is the physicochemical interaction in the flocculation of yeast cells?*, Colloids and Surfaces - B Biointerfaces, 2/1994, S. 165-171
- HANNILA, H.H.; HALLMAN, E.D.: *The Adsorption of Gold Sols on Asbestos Surface Charge Sites*, Powder Technology, 23, 1979, S. 149-157
- HEE, P. VAN; HOEBEN, M.A.; LANS, R.G.J.M. VAN DER ET.AL.: *Strategy for selection of methods for separation of bioparticles from particle mixtures*, Biotechnology and Bioengineering, 94, 4/2006, S. 689-709
- HEIM, F.: *Tone und Tonminerale, Grundlagen der Sedimentologie und Mineralogie*, Ferdinand Enke Verlag, Stuttgart, 1990
- HELFFERICH, F.: *Ionenaustauscher – Grundlagen, Struktur, Herstellung, Theorie*, Band 1, Verlag Chemie, Weinheim, 1959
- HELMHOLTZ, H.: *Studien über die elektrischen Grenzschichten*, Annalen der Physik und Chemie, 243, 7/1879, S. 22-382
- HERMANSSON, M.: *The DLVO theory in microbial adhesion*, Colloids and Surfaces B: Biointerfaces, 14, 1999, S. 105-119
- HERZIG, J.P.; LECLERC, D.M.; LE GOFF, P.: *Flow of suspensions through porous media - Application to deep bed filtration*, Industrial and Engineering Chemistry, 62, 5/1970, S. 8-35

- HIDALGO-ALVAREZ, R.; DE LAS NIEVES, F.J.; PARDO, G.: *Comparative sedimentation and streaming potential studies for Zeta-potential determination*,
Journal of Colloid and Interface Science, 107, 2/1985, S. 295-299
- HILL, S.: *Untersuchungen über die Wechselwirkungen zwischen Porenverstopfung und Filterwiderstand mittels Tracermessungen*, Schriftenreihe WAR 18, TH Darmstadt, 1983
- HODENBERG, G. W. v.; SULKE, K.; GAUDCHAU: *Kieselgurentsorgung auf landwirtschaftlichen Flächen*, Brauwelt, 23, 1987, S. 1064-1081
- HÖLTING, B.: *Hydrogeologie – Einführung in die allgemeine und angewandte Hydrogeologie*, Enke Verlag, Stuttgart, 5. Auflage, 1996
- HUBERT, M.: *Elektrokinetische Untersuchungen an Entkeimungsschichten*, Dissertation Universität Dortmund, 1983
- HÜCKEL, E.: *Die Kataphorese der Kugel*, Physikalische Zeitschrift, 25, 3/1924, S. 204-210
- HUISMAN, I.H.; PRÁDANOS, P.; HERNÁNDEZ, A.: *Electrokinetic characterisation of ultrafiltration membranes by streaming potential, electroviscous effect and salt retention*,
Journal of Membrane Science, 178, 2000, S. 55-64
- HUNTER, R.J.: *Zeta Potential in Colloid Science*, Academic Press, Sydney, 3. Auflage, 1981
- HUNTER, R.J.: *Foundations of Colloid Science*,
Oxford University Press, New York, 2. Auflage, 2001
- IVES, K.J.: *Capture mechanisms in filtration*, The scientific basis of filtration: proceedings of the NATO Advanced Study I, Noordhoff-Verlag, Leyden, 1975
- IVES, K.J.: *Deep Bed Filtration: Theory and Practice*,
Filtration and Separation, 1980, S. 157-166
- IVES, K.J.: *The inside story of deep bed filtration*,
5th World Filtration Congress, Proceedings, Nizza, 1990, S. 60-63
- IWASAKI, T.: *Some notes on sand filtration*, J. AWWA, 1937, S. 1591-1602
- JACOBASCH, H.-J.; BAUBÖCK, G.; SCHURZ, J.: *Problems and results of zeta-potential measurements on fibers*, Colloids and Polymer Science, 263, 1985, S. 3-24

- JACOBASCH, H.-J.; SCHURZ, J.: *Characterization of polymer surfaces by means of electrokinetic measurements*, Progress in Colloid & Polymer Science, 77, S. 40-48, 1988
- JACOBASCH, H.-J.; SIMON, F.; WERNER, C.; ET.AL –A-: *Elektrokinetische Meßmethoden: Grundlagen und Anwendungen*, Technisches Messen, 63, 12/1996-A, S. 439-445
- JACOBASCH, H.-J.; SIMON, F.; WERNER, C.; ET.AL. –B-: *Bestimmung des Zetapotentials aus Strömungspotential- und Strömungsstrommessungen*, Technisches Messen, 63, 12/1996-B, S. 447-452
- JAMES, A.M.: *Electrophoresis of Particles in Suspension*, in: GOOD, R.J.; STROMBERG, R.R. (Hrsg.): *Surface and Colloid Science*, Volume 11, Plenum Press, New York, 1979
- JAMES, A.E.; WILLIAMS, D.J.A.: *Electrical double-layer interaction energy for two cylinders*, Journal of Colloid and Interface Science, 79, 1/1981, S. 33-46
- JAN, K.M.: *Role of hydrogen bonding in red cell aggregation*, Journal of Cellular Physiology, 101, 1979, S. 49-56
- JENNINGS, D. H.; LYSEK, G.: *Fungal Biology: Understanding the fungal lifestyle*, BIOS Scientific Publishers Ltd., Oxford, 2. Auflage, 1999
- JODEIT, H.: *Untersuchungen zur Partikelabscheidung in technischen Tiefenfiltern*, Dissertation, TH Karlsruhe, 1985
- JOHNSON, P.R.: *A comparison of streaming and microelectrophoresis methods for obtaining the zeta-potential of granular porous media surfaces*, Journal of Colloid and Interface Science, 209, 1999, S. 264-267
- JONES, F.J.; WEINBERGER, C.B.: *Screening effects when sampling suspensions in laminar flow through pores*, AIChE Journal, 43, 10/1997, S. 2405-2414
- JÖNSSON, B.; STAHLBERG, J.: *The electrostatic interaction between a charged sphere and oppositely charged planar surface and its application to protein adsorption*, Colloids and Surfaces B: Biointerfaces, 14, 1999, S. 67-75
- JUCKER, B.A.; ET.AL.: *Adhesion of positively charged bacterium Stenotrophomonas (Xanthomonas) maltophilia 70401 to glass and Teflon*, Journal of Bacteriology, 178, 18/1996, S. 5472-5479

- KADEN, H.: *Elektrokinetische Phänomene*, Verlag der Sächsischen Akademie der Wissenschaft zu Leipzig, Mathematisch-naturwissenschaftliche Klasse, Band 127, Heft 5, 1999
- KASCHEK, M.: *Das betriebliche Stoffstrommanagement als ein Instrument zur kontinuierlichen Verbesserung der Ökonomie und Ökologie von Produktionsprozessen*, Dissertation, Universität des Saarlandes, Saarbücken, 2002
- KASPAR, C.; SCHEPER, T.; GIERSE, A.; RODE, B.: *Zellzyklus-Untersuchung an oszillierenden Hefen mittels Durchflussszytometrie*, Bioforum, 3/2005, S. 32-24
- KIM, K.J.; FANE, A.G.; NYSTROM, M.; U.A.: *Evaluation of electroosmosis and streaming potential for measurement of electric charges of polymeric membranes*, Journal of Membrane Science, 116, 1996, S. 149-159
- KIRBY, BRIAN J.; HASSELBRINK JR., E. F.: *Zeta Potential of microfluidic substrates: 1. Theory, experimental techniques and effects on separations*, Electrophoresis, 25, 2004, S.187-202
- KLEIN, G.-M.: *Untersuchungen zum Deckschichtaufbau bei Querstrom-Mikrofiltration polydisperser Suspensionen unter definierten Strömungsbedingungen*, VDI-Fortschrittsbericht Reihe 3, Nr. 623, VDI-Verlag, Düsseldorf, 1999
- KOLB, H.E.: *Untersuchungen über elektrokinetische Effekte bei Fließvorgängen von Lagerstättenflüssigkeiten in porösen Körpern*, Dissertation, TU Clausthal, 1970
- KOMAROV, E.V.; GANIN, P. G.: *Zeta-Potential of n-Alkane emulsion droplets and its role in substrate transport into yeast cells*, Applied Biochemistry and Microbiology, 40, 3/2004, S. 272-279
- KREKELER, C.; ZIEHR, H.; KLEIN, J.: *Influence of physicochemical bacterial surface properties on adsorption to inorganic porous supports*, Applied Microbiology and Biotechnology, 35, 1991, S. 484-490
- KREYE, L.: *Entwicklung von umweltverträglichen Tiefenfiltern für Filtrationsverfahren – Abschlussbericht – SeitzSchenk Filtersystems, Bad Kreuznach, 1999*
- LEIBNITZ, R.: *Untersuchung zum Einfluss unterschiedlicher Filterschicht- und Prozessparameter bei der Tiefenfiltration von Suspensionen mit einem Netzwerkmodell*, Dissertation, Technische Universität Dresden, 1994

- LEUBNER, T., GOCK, E.: *Recycling von Kieselgur-Filterschlamm aus Brauereien mithilfe von Mini-Hydrozyklonen*, wlb -Wasser, Luft, Boden-, 6/2004, S. 44-47
- LEVINE, S.; MARRIOTT, J.R.; NEALE, G.; EPSTEIN, N.: *Theory of Electrokinetic Flow in Fine Cylindrical Capillaries at High Zeta-Potentials*,
Journal of Colloid and Interface Science, 52, 1/1975, S. 136-149
- LIN, D.-Q.; FERNANDEZ-LAHOE, H. M.; ET.AL.: *Minimising biomass/adsorbent interactions in expanded bed adsorption processes: a methodological design approach*,
Bioseparation, 10, 2001, S. 7-19
- LIN, D.-Q.; BRIXIUS, P.J.; HUBBUCH, J.J., ET.AL.: *Biomass/Adsorbent Electrostatic Interactions in Expanded Bed Adsorption: A Zeta Potential Study*,
Biotechnology and Bioengineering, 83, S. 149-157, 2/2003
- LIN, D.-Q.; ZHONG, L.-N.; YAO, S.-J.: *Zetapotential as a diagnostic tool to evaluate the biomass electrostatic adhesion during ion-exchange expanded bed application*, Biotechnology and Bioengineering, accepted April 12, 2006 (im Druck)
- LIPNIZKI, F.: OPTIMISATION OF MEMBRANE PROCESSES IN THE BEVERAGE INDUSTRY, 10th Aachen Membrane Colloquium, March 16.-17. 2005 RWTH Aachen,
Preprints, Aachen, 2005, S. 41-49
- LORENZ, W.; GWOSDZ, W.: *Feldspäte und andere Flussmittel*, Geologisches Jahrbuch, Reihe H, Heft 10, Teil 7, E. Schweizerbartsche Verlagsbuchhandlung, Stuttgart, 2003
- LYKLEMA, J.; OVERBEEK, J.TH.G.: *On the interpretation of elektrokinetic potentials*,
Journal of Colloid Science, 16, 1961, S. 501-512
- LYTLE, D.A.; FOX, K.R.: *Particle Counting and Zeta Potential Measurements for Optimizing Filtration Treatment Performance*,
AWWA: American Water Works Association, PT1, 1994, S. 833-856
- MALOSZEWSKI, P.; HENDRY, M.J.: *Mathematische Modellierung des Transportes von Klebsiella Oxytoca und PR1 im wassergesättigten porösen Sand bei unterschiedlichen Fließgeschwindigkeiten*,
GSF-JB Institut für Hydrologie, GSF-Forschungszentrum Neuherberg, 1997, S. 142-150

- MATAS, J.-P.; GLEZER, V.; GUAZZELI, E. ET.AL.: *Trains of particles in finite-Reynolds-number pipe flow*, Physics of fluids, 16, 11/2004, S. 1-4
- MELLI, T.R.; SANTOS, J.M.; KOLB, W.B.; ET.AL.: *Cocurrent downflow in network passages: Microscale roots of macroscale flow regimes*, Industrial Engineering and Chemical Research, 29, 1990, S. 2367-2379
- MELIN, T.; RAUTENBACH, R.: *Membranverfahren*, Springer Verlag, Berlin, 2. Auflage, 2003
- MÖCKEL, D.; STAUDE, E.; DAL-CIN, M.; ET.AL.: *Tangential flow streaming potential measurements: Hydrodynamic cell characterisation and zeta potentials of carboxylated polysulfone membranes*, Journal of Membrane Science, 145, 1998, S. 211-222
- MOLINA, C.; VICTORIA, L.; ARENAS, A.; U.A.: *Streaming potential and surface charge density of microporous membranes with pore diameter in the range of thickness*, Journal of Membrane Science, 163, 1999, S. 239-255
- MONOD, J.; BRAULT, J.L.(Hrsg.): *Water Treatment Handbook, Vol. II*, Degrémont, Rueil-Malmaison, 6. Auflage, 1991
- MULDER, T.; GIMBEL, R.: *On the development of high performance filtration materials for deep bed filters*, Proceedings 5th World Filtration Congress, Nizza, 1990
- MÜLLER, R.H.: *Zetapotential und Partikelladung in der Laborpraxis-Einführung in die Theorie, Praktische Messdurchführung, Dateninterpretation-*, Wissenschaftliche Verlagsgesellschaft mbH, Stuttgart, 1996
- MUTSCHMANN, J.; STIMMELMAYER, F.: *Taschenbuch der Wasserversorgung*, Vieweg-Verlag, Wiesbaden, 13. Auflage, 2002
- NARZISS, L.: *Abriss der Bierbrauerei*, Enke Verlag, Stuttgart, 5. Auflage, 1986
- NASSAR, R.; CHOU, S.T.; FAN, L.T.: *Modelling and simulation of deep-bed filtration: a stochastic compartmental model*, Chemical Engineering Science, 41, 8/1986, S. 2017-2027
- NEUMANN, B.: *Untersuchungen zur Elektrophorese als Transportmechanismus bei der Tiefenfiltration*, Dissertation TH Karlsruhe, 1983
- NICOLAOU, I.: *Kuchen bildende Filtration von Suspensionen und Filterberechnung*, Chemie Ingenieur Technik, 75, 9/2003, S. 1206-1220

NOORDMAN, T.R.; VAN DER NOORDT, M. ET.AL.: *Membrane filtration for the clarification of beer: Development of the process and practical experiences on industrial scale*, 10th Aachen Membrane Colloquium, March 16.-17. 2005 RWTH Aachen, Preprints, Aachen, 2005, S. 23-30

ODIACHI, P.C.; PRIEVE, D.C.: *Effect of added salt on the depletion attraction caused by non-adsorbing clay particles*, Colloids and Surfaces, 146, 1999, S. 315-328

OLIVER-DAUMEN, B.: *Kieselgurrahmenfilter – Relikte aus der Vergangenheit oder Klassiker im Aufwärtstrend*, Brauwelt, 6/7, 1999, S. 246-249

O'MELIA, C.R.; ALI, W.: *The role of retained particles in deep bed filtration*, Progress in Water Technology, 10, 5,6/1978, S. 167-182

O'MELIA, C. R.: *Particle-particle interactions in aquatic systems*, Colloids and Surfaces, 39, 1988, S. 255-271

ORTIZ-ARROYO, A.: *Contribution to the modelling of packed bed reactors under plugging conditions in single and two phase trickle flow*, Dissertation, Universität Laval, Quebec City, 2004

OVERBEEK, J.T.G.; WIERSEMA, P.H.: *The Interpretation of Electrophoretic Mobilities*, Electrophoresis (Bier, M. Hrsg.), New York, Academic Press, 1967

PALL: Persönliche Mitteilung der Fa. Pall SeitzSchenk Filtersystems GmbH, Food and Beverages, 2005

PARKS, G.S.; DEBRUYN, P.L.: *The zero point of charge of oxides*, Journal of Physical Chemistry, 66, 1962, S. 967-973

PARKS, G.A.: *The isoelectric points of solid oxides, solid hydroxides and aqueous hydroxo complex systems*, Chemical Review, 65, 1965, S. 177-198

PAWLOWSKI, J.: *Die Ähnlichkeitstheorie in der physikalisch-technischen Forschung - Grundlagen und Anwendungen*, Springer Verlag, Berlin, 1971

PAYATAKES, A.C.; TIEN, C.; TURIAN, R.M.: *Trajectory calculation of particle deposition in deep bed filter*, AIChE Journal, 20, 5/1974, S. 889-905

- PETZOLD, A.; ULBRICHT, J.: *Aluminiumoxid Rohstoff – Werkstoff – Werkstoffkomponenten*, Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig, 1991
- PFETSCH, A.: *Neue Möglichkeiten zur Charakterisierung von Mikroorganismen mittels Kapillarelektrophorese*, Dissertation, Universität Ulm, 1999
- PONTIÉ, M.; ET.AL.: *Control fouling and cleaning procedures of UF membranes by a streaming potential method*, Separation and Purification Technology, 14, 1998, S. 1-11
- PORTER, M.C.: *Concentration polarization with membrane ultrafiltration*, Industrial Engineering and Chemistry, 11, 3/1972, S. 234-248
- PRIEVE, D.C.; RUCKENSTEIN, E.: *Rates of deposition of Brownian particles calculated by lumping interaction forces into a boundary condition*, Journal of Colloid Interface Science, 57, 3/1976, S. 547-550
- RAISTRICK, J.H.: *The relevance of zeta potential to the filtration of small particles from potable liquids*, Filtration and Separation, 1983, S. 124-126
- RAISTRICK, J.H.: *Advantages of Adsorptive Filtration*, Filtration and Separation, 11/12, 1986, S. 354-357
- RAJAGOPALAN, R.; TIEN, C.: *The theory of deep bed filtration*, in WAKEMAN, R.J. (Hrsg.): Progress in filtration and separation 1, Elsevier, Amsterdam, 1979, S. 179-270
- RAJAGOPALAN, R.; KIM, J.S.: *Adsorption of Brownian Particles in the Presence of Potential Barriers: Effect of Different Modes of Double-Layer Interaction*, Journal of Colloid and Interface Science, 83, 2/1981, S. 428-448
- REUSS, F.F.: *30. Notice sur un nouvel effet de l'électricité galvanique*, Memoires de la Société Impériale des Naturalistes de Moscou, 1808, S. 327-337
- RIBITSCH, V.; JACOBASCH, H.J.; BOERNER, M.: *Streaming potential measurements of film and fibres*, Advances in Measurements and Control of Colloid Processes, 1991, S. 352-365
- RIDGWAY, H.F.; FLEMMING, H.-C.: *Membrane Biofouling*, in MALLEVIALLE, J., ET.AL. (Hrsg.), Water Treatment – Membrane Processes, McGraw-Hill-Verlag, New York, 1996
- RIPPERGER, S.: *Berechnungsansätze zur Crossflow-Filtration*, Chemie-Ingenieur-Technik, 65, 5/1993, S. 533-540

- RIPPERGER, S.: *Mikrofiltration mit Membranen – Grundlagen, Verfahren, Anwendungen*, Wiley-VCH-Verlag, Weinheim, 1998
- RÜFFLER, H.; ROSENWINKEL, K.-H. (Hrsg.): *Taschenbuch der Industrieabwasserreinigung*, Oldenbourg-Verlag, München, 1991
- RUTGERS, J.: *Streaming potentials and surface conductance*, Transactions of Faraday society, 1940, S. 69-80
- RUTGERS, A.J.; SMET, M. DE : *Electroosmosis, streaming potential and surface conductance*, Transactions of Faraday society, 1947, S. 102-111
- SAATCI, A.M.; HALILSOY, M.: *A new Solution of the Deep Bed Filtration Equations*, The Chemical Engineering Journal, 34, 1987, S. 147-150
- SALMANG, H.; SCHOLZE, H.: *Keramik, Teil 1*, Springer-Verlag, Berlin, 2. Auflage, 1982
- SANTOS, A.; BEDRIKOVETSKY, P.: *Size exclusion during particle suspension transport in porous media: stochastic and averaged equations*, Computational & Applied Mathematics, 23, 2-3/2004
- SCHEIDEGGER, A. E.: *The physics of flow through porous media*, University of Toronto Press, Calgary, 1960
- SCHLEGEL, H.G.; ZABOROSCH, C.: *Allgemeine Mikrobiologie*, Georg Thieme Verlag, Stuttgart, 7. Auflage, 1992
- SCHILLER, L.: *Drei Klassiker der Strömungslehre: Hagen, Poiseuille, Hagenbach*, Akademische Verlagsgesellschaft mbH, Ostwald's Klassiker der exakten Wissenschaften, Leipzig, 1933
- SCHLICHTER, B.: *Entwicklung und Untersuchung eines neuartigen Wasseraufbereitungsverfahrens bestehend aus Wasserozonung und Mikro-/Ultrafiltration*, Dissertation Universität des Saarlandes, Mensch & Buch, Berlin, 2003
- SCHMID, N.A.: *Verbesserung der filtrationstechnischen Eigenschaften von Filterhilfsmitteln durch ein thermisches Verfahren*, Dissertation, TU München, 2002

- SCHMIDT, V.M.: *Elektrochemische Verfahrenstechnik, Grundlagen, Reaktionstechnik, Prozessoptimierung*, Wiley-VCH-Verlag, Weinheim, 2003
- SCHRAMM, L.L.: *Emulsions, Foams and Suspensions*, Wiley-VCH-Verlag, Weinheim, 2005
- SCHRÖDER, C.: *Beitrag zur Optimierung der Klärschlammwässerung mittels online-Flockenanalyse*, Dissertation, TU Clausthal, Cutec-Schriftenreihe Nr. 54, 2001
- SCHUBERT, H.: *Handbuch der mechanischen Verfahrenstechnik*, Wiley-VCH-Verlag, Weinheim, 2003
- SCHWARZ, M.: *Mikrobielle Kolmation von abwasserdurchsickerten Bodenkörpern: Nucleinsäure zum Nachweis von Biomasse und Bioaktivität*, Dissertation TH Karlsruhe, 2003
- SEGRÉ, G.; SILBERBERG, A.: *Behaviour of macroscopic rigid spheres in Poiseuille flow Part 1*, Journal of Fluid Mechanics, 14, 1962, S. 115-135
- SMOLUCHOWSKI, M. v.: *Elektrische Endosmose und Strömungsströme*, in: GRAETZ, L. (Hrsg.): *Handbuch der Elektrizität und des Magnetismus*, Band II, Verlag von Johann Ambrosius Barth, 1921
- SPECKNER, J.; KIENINGER, H.: *Cellulose als Filterhilfsmittel – Praxisversuche und –erfahrungen bei der Bierfiltration*, Brauwelt, 46, 1984, S. 2068 - 2066
- SPIELMAN, L. A.; FRIEDLANDER, S.K.: *Role of the Electrical Double Layer in Particle Deposition by Convective Diffusion*, Journal of Colloid and Interface Science, 46, 1/1974, S. 22-31
- STERN, O.: *Zur Theorie der elektrolytischen Doppelschicht*, Zeitschrift für Elektrochemie und angewandte physikalische Chemie, 30, 508-516, 1924
- STEPHAN, E.A.; CHASE, G.G.: *Development of Volume-Average Theory for Deep-Bed Filtration*, AIChE Journal, 46, 10/2000, S. 1918-1926
- STEPHAN, E.A.; CHASE, G.G.: *A preliminary examination of zeta potential and deep bed filtration activity*, Separation and Purification Technology, 21, 2001, S. 219-226
- STICHLMAIR, J.: *Kennzahlen und Ähnlichkeitsgesetze im Ingenieurwesen*, Altos-Verlag, Essen, 1990
- STIEß, M.: *Mechanische Verfahrenstechnik*, Springer Lehrbuch, Berlin, 2. Auflage, 1995

- STOCKINGER, H.: *Removal of Biorefractory Pollutants in Wastewater by Combined Ozonation-Biotreatment*, Dissertation ETH Zürich, 1995
- STORHAS, W.: *Bioverfahrensentwicklung*, Wiley-VCH-Verlag, Weinheim, 2003
- STRATHERN, J.N.; JONES, E.W.; BROACH, J.R.: *The molecular biology of the yeast saccharomyces - Metabolism and gene expression*, Cold Spring Harbor Laboratory, New York, 1982
- SZYMCZYK, A.; FIEVET, P.; MULLET, M. ET.AL.: *Comparison of two electrokinetic methods - electroosmosis and streaming potential - to determine the zeta-potential of plane ceramic membranes*, Journal of Membrane Science, 143, 1998, S. 189-195
- THONART, PH.; CUSTINNE, M.; PAQUOT, M.: *Zeta Potential of yeast cells: application in cell immobilization*, Enzyme Microbiology and Technology, 4/1982, S. 191-194
- TUITE, M.F.; OLIVER, S.G.: *Saccharomyces*, Biotechnology Handbooks 4, Plenum Press, New York, 1991
- VERWEY, E. J. W.; OVERBEEK, J. TH. G.: *Theory of the stability of lyophobic colloids - The interactions of sol particles having an electric double layer*, Elsevier, Amsterdam, New York, 1948
- VDI GESELLSCHAFT VERFAHRENSTECHNIK UND CHEMIEINGENIEURWESEN (GVC) (Hrsg.): *VDI-Wärmeatlas*, Springer Verlag, Berlin, 10. Auflage, 2006
- VILMORIN DE, H.; CADOT, Y.: *Cross Flow Filtration Organic Membranes Application on Wine*, 10th Aachen Membrane Colloquium, March 16.-17. 2005 RWTH Aachen, Preprints, Aachen, 2005, S. 31-40
- WANG, Z.: *Effects of zeta potentials of suspended particles on deep bed filtration for water and wastewater treatment*, Annual Conference of the Canadian Society for Civil Engineering, Halifax, 1998, S. 31- 42
- WEDLER, G.: *Lehrbuch der physikalischen Chemie*, Wiley-VCH-Verlag, Weinheim, 5. Auflage, 2004
- WEIGL, B.: *Trennkraft zwischen Mikroorganismen, Partikeln und Oberflächen*, Dissertation, TU München, 2004

WESER, C.: *Die Messung der Grenz- und Oberflächenflächenspannung von Flüssigkeiten - Eine Gesamtdarstellung für den Praktiker*,

GIT Fachzeitschrift für das Laboratorium, Sonderdruck, 24, 1980, S. 642-648 und 734-742

WIELAND, G.: *Wasserchemie*, Steinmüller-Taschenbuch,

Vulkan-Verlag, Essen, 12. Auflage, 1999

WIESE, T.: *Bierabsatz in leichtem Plus*, Lebensmitteltechnik, 8, 3/2005, S.8

ZIEREP, J.: *Ähnlichkeitsgesetze und Modellregeln der Strömungslehre*,

Wissenschaft + Technik, Karlsruhe, 3. Auflage, 1991

ZETA-METER INC.: *Zeta potential: A complete Course in 5 Minutes*, Informationsmaterial der Unternehmung Zeta-Meter Inc., Staunton, 2005