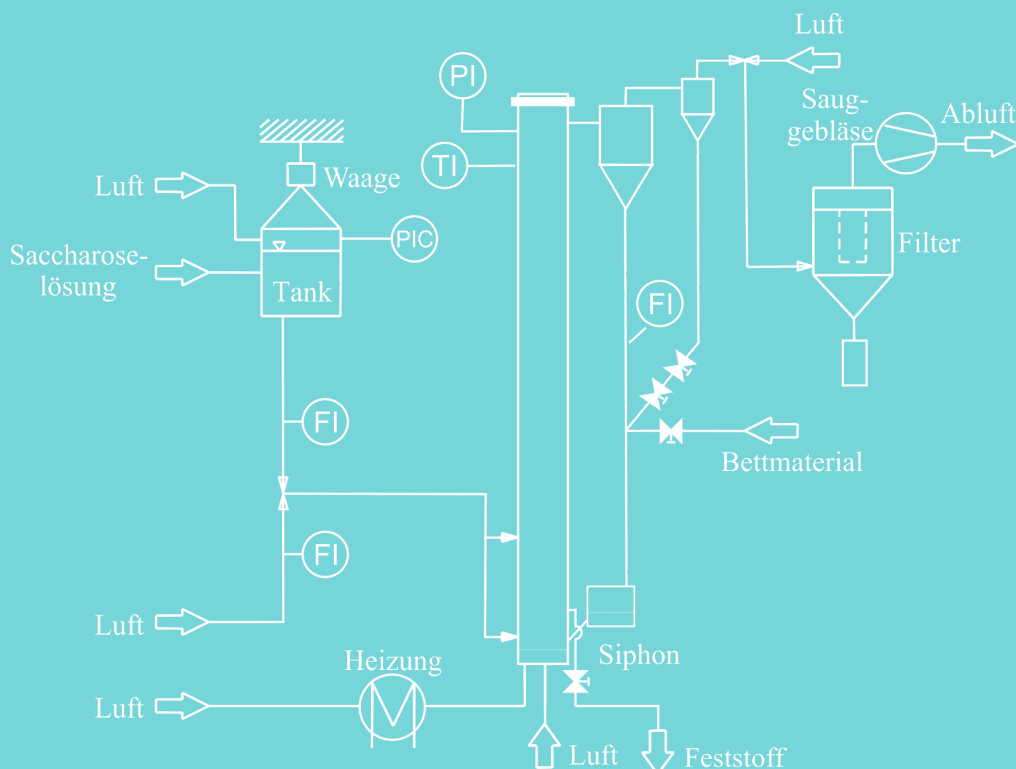


Björn Stiller

Sprühgranulation in der zirkulierenden Wirbelschicht





Sprühgranulation in der zirkulierenden Wirbelschicht





SPRÜHGRANULATION IN DER ZIRKULIERENDEN WIRBELSCHICHT

Vom Promotionsausschuss der
Technischen Universität Hamburg-Harburg
zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor-Ingenieur (Dr.-Ing.)

genehmigte Dissertation

von
Björn Stiller
aus
Hamburg

2016



Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek

Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

1. Aufl. - Göttingen: Cuvillier, 2016

Zugl.: (TU) Hamburg-Harburg, Univ., Diss., 2016

Gutachter:

1. Gutachter: Prof. Dr.-Ing. Joachim Werther
2. Gutachter: Prof. Dr.-Ing. Michael Schlüter

Tag der mündlichen Prüfung:

10.06.2016

© CUVILLIER VERLAG, Göttingen 2016

Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen

Telefon: 0551-54724-0

Telefax: 0551-54724-21

www.cuvillier.de

Alle Rechte vorbehalten. Ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages ist es nicht gestattet, das Buch oder Teile daraus auf fotomechanischem Weg (Fotokopie, Mikrokopie) zu vervielfältigen.

1. Auflage, 2016

Gedruckt auf umweltfreundlichem, säurefreiem Papier aus nachhaltiger Forstwirtschaft.

ISBN 978-3-7369-9357-0

eISBN 978-3-7369-8357-1



Vorwort

Diese Arbeit entstand inhaltlich während meiner Zeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Feststoffverfahrenstechnik und Partikeltechnologie der Technischen Universität Hamburg-Harburg, auch wenn die Zeit bis zur finalen Ausformulierung sich dann noch länger als üblich, über diesen Zeitraum hinaus, hingezogen hat.

An dieser Stelle möchte ich mich insbesondere bei meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr.-Ing. Joachim Werther bedanken, der mir diese Arbeit ermöglicht hat. Dies bezieht sich sowohl auf die wissenschaftliche Betreuung, die Diskussionen mit kritischen Anmerkungen und hilfreichen Ideen, als auch auf die anhaltende Ermunterung die Arbeit erfolgreich abzuschließen.

Herrn Prof. Dr.-Ing. Michael Schlüter danke ich für die Übernahme des Koreferats und Herrn Prof. Dr. rer. nat. Raimund Horn für die Übernahme des Vorsitzes des Prüfungsausschusses.

Mein Dank gilt ebenfalls Herrn Prof. Dr.-Ing. Stefan Heinrich, der während meiner Promotionszeit die Leitung des Instituts für Feststoffverfahrenstechnik und Partikeltechnologie von Herrn Werther übernommen hat und mich mit seiner offenen und freundlichen Art sowie seiner Erfahrung auf dem Fachgebiet der Granulation unterstützt hat.

Des Weiteren möchte ich mich bei Herrn Dr.-Ing. Ernst-Ulrich Hartge für seine Unterstützung durch wertvolles Feedback und zahlreiche fachliche Diskussionen bedanken.

Ein besonderer Dank gilt den langjährigen Mitarbeitern des Instituts für Feststoffverfahrenstechnik und Partikeltechnologie, meinem Bürokollegen Frank Rimoschat sowie Bernhard Schult und Heiko Rohde für ihre schnelle und engagierte Unterstützung im praktische Teil meiner Arbeit, insbesondere die Versuche im Technikum wären ohne sie nicht möglich gewesen.

Ich bedanke mich bei meinen Kollegen am Instituts für Feststoffverfahrenstechnik und Partikeltechnologie für die immer sehr angenehme, freundschaftliche Arbeitsatmosphäre, vor allem bei Kai Redemann, Lars Ratschow, Rainer Wischnewski, Jan Margraf, Carsten Janke und Anja Püttmann.

Schließlich gilt mein ganz besonderer Dank all meinen Studenten, die mich als wissenschaftliche Hilfskräfte oder im Rahmen ihrer studentischen Arbeiten durch engagierte und selbständige Arbeit unterstützt haben und einen wesentlichen Beitrag zum Gelingen meiner Arbeit geleistet haben, insbesondere bei Luisa Sengstake, Gesche Dierks, Erkan Yager Firat, Tom Kalda, Andreas Buck und Jan Brummund.

Nicht zuletzt möchte ich auch bei meinen Eltern für ihre stete Unterstützung bedanken.

Mannheim, Juni 2016

Björn Stiller





1 Inhaltsverzeichnis

1	Inhaltsverzeichnis	1
2	Einleitung	5
3	Stand des Wissens und der Technik	10
3.1	Einführung	10
3.2	Wirbelschichtsprühgranulation	11
3.2.1	Mechanismen des Granulataufbaus	15
3.2.2	Trocknungsverlauf am Einzelpartikel	17
3.2.3	Handhabung von Geldart C-Materialien	19
3.2.4	Granulation feiner Partikel	20
3.2.5	Granulation von temperaturempfindlichen Materialien	21
3.2.6	Sprühgranulation in der zirkulierenden Wirbelschicht	22
3.3	Zirkulierende Wirbelschichten (ZWS)	24
3.3.1	Grundlagen	24
3.3.2	Kornzerkleinernde Mechanismen	26
3.3.3	Bruch und Abrieb in der (zirkulierenden) Wirbelschicht	28
3.4	Populationsbilanzen	29
3.4.1	Korngrößenverändernde Mechanismen	29
3.4.2	Formulierung der Populationsbilanzen	31
3.4.3	Lösung der Populationsbilanzen	39
4	Modellierung des ZWS-Granulators	42
4.1	Modellzonen	42
4.2	Abschätzung der Strömungsmechanik im ZWS-Riser	43
4.2.1	Ein prädiktives hydrodynamisches Modell für zirkulierende Wirbelschichten	44
4.2.2	Freie Weglänge bis zum Tropfen-Partikel-Kontakt	47
4.2.3	Verdunstung des Wasseranteils am Tropfen	51
4.2.4	Abschätzung der Sprühzonen, Granulationszonen	53
4.3	Numerische Simulation / Populationsbilanzmodell	55
4.3.1	Populationsbilanzmodell zur Granulation in der ZWS	55
4.3.2	Simulation der Versuche / Numerik	58
5	Material und Methoden	61
5.1	Phänomenologische Untersuchung zur Granulation in der zirkulierenden Wirbelschicht	61



5.1.1	Experimenteller Aufbau zur Granulation / Agglomeration in der ZWS	61
5.1.2	Material	66
5.1.3	Versuchsdurchführung	69
5.2	Analytische Methoden.	69
5.2.1	Siebung	69
5.2.2	Partikelgrößenbestimmung mittels Laserbeugung	69
5.2.3	Rasterelektronenmikroskopische Untersuchungen (REM)	73
5.2.4	Bestimmung der Feststoffzirkulationsrate G_s	73
5.3	Kornzerkleinerung - Abrieb und Bruch	77
5.3.1	Material	77
5.3.2	Versuchsdurchführung	80
6	Ergebnisse	88
6.1	Granulation / Agglomeration in der ZWS	88
6.1.1	Temperatur	88
6.1.2	Druckmessungen	92
6.1.3	Partikelgröße	97
6.1.4	Morphologie	108
6.1.5	Zusammenfassung der ZWS-Versuche	114
6.2	Abrieb und Bruch in der ZWS	116
6.2.1	Optische Auswertung des Abriebs- und Bruchverhaltens	116
6.2.2	Bruch	119
6.2.3	Abrieb	127
6.2.4	Modellentwicklung Abrieb und Bruch	134
6.2.5	Zusammenfassung Abrieb und Bruch	142
6.3	Numerische Simulation / Populationsbilanzen	143
6.3.1	Entwicklung der Korngrößenverteilung - Modellgüte	145
6.3.2	Einfluss von Prozessparametern auf den Agglomerationskernel	155
6.3.3	Zusammenfassung der numerischen Simulation	167
7	Zusammenfassung	169
8	Formelzeichen	174
9	Literaturverzeichnis	180
10	Appendix A: Modellierung der Strömungsmechanik des Risers	187
10.1	Strömungsmechanikmodell	187
10.1.1	Basis Sub-Modelle	187
10.1.2	Dichte Bodenzone	188
10.1.3	Dünne obere Zone der ZWS	190



1	Inhaltsverzeichnis	3
10.1.4	Kopplung und Randbedingungen	196
10.1.5	Numerische Lösung des Modells	196
10.1.6	Ausgewählte Ergebnisse	198
10.2	Verdunstung des Wasseranteils am Tropfen	200
11	Appendix B: Abrieb in Wirbelschichten	205
12	Appendix C: Lösung der Populationsbilanzen	209
12.1	Diskretisierung der Populationsbilanzen	209
13	Appendix D: Ergänzungen zum Versuchsaufbau und ausgewählte Ergebnisse der ZWS-Versuche	215
13.1	ZWS-Granulatorsetup 100 mm	215
13.2	Tropfengrößenverteilungen Saccharoselösung	216



2 Einleitung

Unter Sprühgranulation in der Wirbelschicht versteht man im Allgemeinen ein Wirbelschichtverfahren zur Herstellung von festen Partikeln aus einer flüssigen Phase. Das Verfahren ist dadurch gekennzeichnet, dass die Tropfen des versprühten flüssigen Edukts mit einem partikelbeladenen Trocknungs- oder Kühlgasstrom interagieren und so schließlich neue feste Partikel bilden.

Der Prozess ist durch eine dichte Gas-Feststoffströmung in der Wirbelschicht charakterisiert. Diese Strömung prägt die Granulatbildung sowie die Eigenschaften der gebildeten Granulate. Die Partikelbildung und das Partikelwachstum im Sprühgranulator sind wesentlich durch die Interaktion zwischen den flüssigen Tropfen, schon vorhandenen trockenen oder oberflächenfeuchten Partikeln, Granulaten, neu geformten feuchten Partikeln und Partikelagglomeraten gekennzeichnet.

Die Abgrenzung zur Sprühtrocknung, bei der einzelne Tropfen im Gasstrom trocknen und / oder erstarren, liegt in dieser komplexen Partikeln-Partikel-Interaktion. Die Abgrenzung zur Agglomeration in Trommel- oder Tellermischern liegt in der Tatsache, dass bei der Agglomeration in einem Mischer praktisch keine Gasströmung am Partikel vorliegt.

Die Sprühgranulation in der blasenbildenden Wirbelschicht oder in der Strahlschicht („spouted bed“) ist ein häufig in der Industrie eingesetzter Prozess, der ausführlich in der Literatur beschrieben ist (z.B. NIENOW [62], UHLEMANN & MOERL [97], BOEREFIJN & HOUNSLOW [9]). Im Vergleich zu den anderen etablierten Granulationsprozessen hat die Granulation in der blasenbildenden Wirbelschicht Vorteile hinsichtlich des Wärmetransports, der Prozesskontrolle und der Energieeffizienz (NIENOW [62]).

Die zirkulierende Wirbelschicht (ZWS) wird generell bei hohen Gasgeschwindigkeiten betrieben und ist für die Handhabung feiner Partikeln geeignet (KUNII & LEVENSPIEL [56]). Potentielle Vorteile des Einsatzes der ZWS zur Sprühgranulation sind:

- Die im Vergleich zur blasenbildenden Wirbelschicht höhere Gasgeschwindigkeit erlaubt entweder einen erhöhten Gasdurchsatz pro Querschnittsfläche oder die Reduzierung der Temperaturdifferenz Gas-Feststoff bei vorgegebenem Durchsatz. Insbesondere die zweite Option ist ein vielversprechender Ansatz zum schonenden Trocknen, („gentle drying“, XU ET AL. [112]).
- Im Vergleich zur blasenbildenden Wirbelschicht können feinere Partikelsysteme eingesetzt werden.
- Die höhere mechanische Belastung dürfte zu stabileren Granulaten führen.
- Die Möglichkeit zur Einstellung der Feststoffkonzentration in der Eindüsungszone durch Variation der Eindüsungshöhe über dem Verteilerboden stellt einen weiteren Freiheitsgrad der Prozessführung dar.

In der Literatur sind nur wenige Veröffentlichungen zur Granulation oder Agglomeration in der zirkulierenden Wirbelschicht dokumentiert.

KAGE ET AL. [39, 40, 41] beschreiben das „powder coating“ von feinen Partikeln. Glaskugeln mit einem mittleren Durchmesser von ca. 100 μm werden hierbei mit um zwei bis drei Größenordnungen kleineren Partikeln beschichtet, die in einer Suspension in das Wirbelschichtsystem eingebracht werden. Die Experimente wurden in einem zirkulierenden Wirbelschichtsystem mit einem inneren Durchmesser von 85 mm in der Riser-Sektion und einer Riser-Höhe von 1500 mm bei Gasgeschwindigkeiten zwischen 0,68 und 1,05 m/s durchgeführt. Die Gaseintrittstemperatur lag bei ca. 30 °C, die eingedüsten Suspensionsmengen waren im Vergleich zum vorgelegten Bettinventar klein. In dem untersuchten System konnten eine reduzierte Agglomerationsneigung und ähnliche Beschichtungseigenschaften wie in der blasenbildenden Wirbelschicht nachgewiesen werden.

TSUTSUMI ET AL. [95] untersuchten die Agglomerationseigenschaften von zwei monodispersen Partikelsystemen sowie Mischungen daraus in einem zirkulierenden Wirbelschichtsystem mit einem inneren Riser-Durchmesser von 80,2 mm und einer Höhe von 3525 mm bei Gasgeschwindigkeiten zwischen 2,9 und 5,2 m/s. Die Gaseintrittstemperatur lag hierbei bei ca. 180 °C. Das Bettmaterial bestand aus Glaskugeln mit einem mittleren Durchmesser von 84 μm oder 120 μm bei jeweils engen monodispersen Partikelgrößenverteilungen bzw. einer Mischung der beiden Fraktionen. Es konnte eine reduzierte Neigung zur „secondary granulation“ nachgewiesen werden. Die Partikelgrößenverteilung der Agglomerate war in erster Näherung über die Versuchsdauer konstant. Der Anteil von Agglomeraten lag für alle Versuche unter 10 Gew.-%. Während der Versuche wurde eine reduzierte Neigung zu Segregationseffekten aufgrund der Agglomeration/Granulation im Vergleich zur blasenbildenden Wirbelschicht beobachtet.

In der vorliegenden Arbeit wurde die Sprühgranulation in der zirkulierenden Wirbelschicht an einem Modellsystem aus Saccharose und Saccharoselösung sowie Luft als Trocknungsmedium untersucht. In Abgrenzung zu den zitierten Veröffentlichungen wurde das System aufbauend auf ersten Untersuchungen von XU ET AL. [112] so gewählt, dass wesentlich höhere Einsprühraten möglich waren, wodurch eine vollständige Materialzuführung über die Flüssigphase ermöglicht wurde. Die aufgezeigten potentiellen Vorteile der Handhabung feiner Partikelsysteme, der Generierung stabilerer Granulate und des Betriebs bei intrinsisch niedrigeren Temperaturen als in der blasenbildenden Wirbelschicht (bei vergleichbaren Durchsätzen) konnte erfolgreich nachgewiesen werden. Aufbauend auf den Ergebnissen der Experimente wurde ein Modell unter Berücksichtigung von lokalen Abriebs / Bruch- und Granulations / Agglomerations-Effekten in verschiedenen charakteristischen Zonen des Granulators zur physikalisch basierten Quantifizierung der wesentlichen Einflussgrößen abgeleitet.

Vom Inhalt her gliedert sich die vorliegende Arbeit in drei Teile. Im **ersten Teil** werden Experimente in einem ZWS-Granulator im Pilot-Maßstab betrachtet. Saccharose-Partikel und eine 60 Gew.-% wässrige Saccharoselösung dienen als Modellsystem. Neben der Erfassung der zeitlichen Entwicklung der Partikelgrößenverteilung als primärer Prozessparameter erfolgt eine einfache Abschätzung der Partikelverteilung im ZWS-Granulator, insbesondere im Riser und eine Abschätzung der Ausdehnung der Sprühzone.

Im Gegensatz zu den in der Literatur verfügbaren, oben beschriebenen Untersuchungen von KAGE ET AL. [39][40][41] sowie TSUTSUMI ET AL. [95] ist der hier untersuchte Prozess durch die Generierung neuer Partikel aus der eingedüsten Saccharoselösung und starkes Partikelwachstum dominiert. Es konnten verschieden Betriebsmodi nachgewiesen werden: Im Batchbetrieb wachsen vorgelegte feine Partikel auf und / oder agglomerieren, bis sie die gewünschte Partikelgröße erreicht haben. Im kontinuierlichen Betrieb wird kontinuierlich Saccharoselösung eingedüst und Partikel werden (quasi-) kontinuierlich aus dem System abgezogen. Die Partikelgrößenverteilung im Produkt erreicht einen stationären Zustand.

Es wird der Einfluss verschiedener Parameter, insbesondere der Gasgeschwindigkeit im Riser, der vorgelegten Bettmasse, der Eindüsungsposition im Riser, der Menge der eingedüsten Lösung sowie deren Tropfengrößenverteilung auf die verschiedenen Betriebszustände und die entstehenden Granulate / Agglomerate betrachtet. Bei der Eindüsung in die untere dichte Zone, erweist sich die Agglomeration als der dominante Wachstumsmechanismus. In diesem Fall wachsen die Partikel schnell zu Größen auf, die in den meisten Fällen zu groß für einen ZWS-Betrieb sind, d.h. das System geht in eine blasenbildende Wirbelschicht über. Der dominierende Mechanismus ist die Agglomeration, es bilden sich brombeerartige Agglomerate. Die Eindüsung in die dünne obere Zone erlaubt hingegen einen kontinuierlichen Betrieb. Im Gegensatz zur Eindüsung in die untere dichte Zone ist die Agglomeration hier nicht mehr der allein dominierende Mechanismus. Granulation (Schalenwachstum) wird dominierend. Die Granulate werden runder, Abriebs- und Brucheffekte an den Partikeln werden sichtbar.

Im **zweiten Teil** der Arbeit wird das Abriebs- und Bruchverhalten der Saccharosepartikel im ZWS-Granulator betrachtet. In Abgrenzung zur reinen Sprühtrocknung ist das Partikelwachstum bzw. die Partikelerzeugung in einem Wirbelschichtsprühgranulator durch die Interaktion zwischen flüssigen Tropfen (Spray), Partikelkeimen und / oder schon trockenen oder feuchten, teilbenetzten Granulaten / Agglomeraten gekennzeichnet. Der dominierende Effekt der intensiven Partikel-Partikel-, und ggf. Partikel-Wand-Kontakte ist in der ZWS wesentlich stärker ausgeprägt. Wie aus den Versuchen im ersten Teil der Arbeit hervorgeht, führt diese intensive mechanische Belastung zum Abrieb oder sogar zum Bruch der Partikeln. Um

das Partikelwachstum im ZWS-Granulator detaillierter zu verstehen und zu beschreiben, muss das lokale Abriebs- und Bruchverhalten im System charakterisiert und quantifiziert werden.

Hierfür wird der ZWS-Granulator in repräsentative Zonen mit unterschiedlicher mechanischer Belastung unterteilt. Die Unterteilung entspricht der in den Arbeiten von REPPENHAGEN [75], KLETT [46] und PÜTTMANN [73] eingeführten, nämlich: der unmittelbar vom Verteilerboden beeinflusste bodennahe Bereich der Wirbelschicht, die darüber befindliche dichte Wirbelschicht („dense zone“) und die daran anschließende Zone geringer Feststoffkonzentration („dilute zone“). Zusätzlich sind die dem Riser nachgeschalteten Zyklone als weitere Abriebsquellen zu berücksichtigen.

Die Effekte in den verschiedenen Zonen werden in zwei separaten Experimenten qualitativ und quantitativ untersucht. Das erste Experiment untersucht das Abriebs- und Bruchverhalten in der Wirbelschicht, das zweite Experiment das Abriebs- und Bruchverhalten in den Zyklonen. Hierfür wurden Granulate unter standardisierten Bedingungen im ZWS-Granulator hergestellt und in unterschiedliche für den Prozess repräsentative Partikelgrößenklassen aufgeteilt. In den Experimenten wurden charakteristische Betriebspunkte des ZWS-Granulators nachgestellt. Wesentliche Einflussparameter sind z.B. Gasgeschwindigkeiten und Feststoffbeladung der Strömung aber auch partikelspezifische Eigenschaften wie Partikelgröße und Produktionsbedingungen der Granulate. Die Ergebnisse der Versuche werden mit Standardmodellen für Abrieb und Bruch abgeglichen und der Einfluss wesentlicher Betriebsparameter auf Abriebs- und Bruchverhalten wird quantifiziert. Der Vergleich zwischen den in den verschiedenen Zonen der ZWS wirksamen Mechanismen zeigt, dass der Bruch im Zyklon der dominierende destruktive Effekt im ZWS-Granulator ist und einen wesentlichen Einfluss auf den Partikelgrößenhaushalt des Systems hat.

Im **dritten Teil** der Arbeit werden die Ergebnisse aus dem ersten und dem zweiten Teil zusammengeführt und es wird das lokale Granulations- / Agglomerationsverhalten in der Sprühzone modelliert. Da das Granulationsverhalten in der Sprühzone experimentell nicht direkt beobachtet werden kann, wird ein einfaches Populationsbilanzmodell für Abrieb, Granulation sowie Bruch und Agglomeration in den charakteristischen Zonen der ZWS eingeführt. Das lokale Agglomerationsverhalten in der Sprühzone des ZWS-Sprühgranulators wird nun über das Modell bestimmt. Da die dominierenden destruktiven Mechanismen mit dem zweiten Teil der Arbeit quantifiziert sind und das globale Granulationsverhalten aus dem ersten Teil der Arbeit bekannt ist, kann die Modellierung des Agglomerationsverhaltens in der Sprühzone durch Parametervariation angepasst werden und somit das Gesamtsystem abgebildet werden. Es wird gezeigt, dass das System ohne Berücksichtigung des Bruchs nicht hinreichend genau beschrieben werden kann.



Ausgewählte Ergebnisse wurden bereits in STILLER ET AL. [90][89] sowie XU ET AL. [112], veröffentlicht.

3 Stand des Wissens und der Technik

3.1 Einführung

Für die Herstellung von Partikeln mit genau definierten Eigenschaften haben sich eine Reihe von Verfahren etabliert. Die in Abb. 3.1 dargestellten Verfahren unterscheiden sich sowohl in der Form der vorliegenden Edukte, insbesondere deren Phasenzustand bzw. Flüssig / Fest als auch der Mechanismen der Kornerzeugung. Die dargestellten Prozesse beruhen auf physikalischen Vorgängen, Prozesse mit der Ausbildung von Partikeln aufgrund von chemischen Vorgängen sind nicht dargestellt (vgl. UHLEMANN [96], UHLEMANN & MOERL [97]).

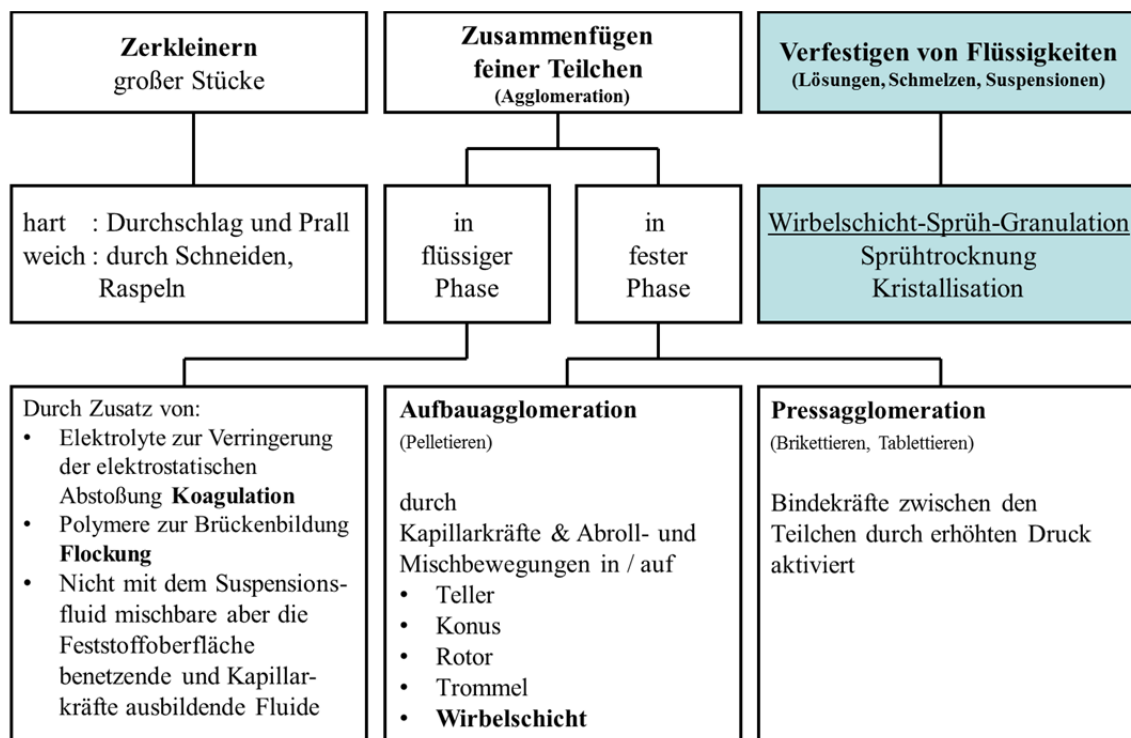


Abb. 3.1: Mögliche Mechanismen der Schüttgutherstellung (nach UHLEMANN [96])

Die resultierende Partikelgrößenverteilung und die Schüttgutmorphologie ist stark durch die im Prozess auftretenden partikelvergrößernden und partikelverkleinernden Mechanismen geprägt. Zum einen gibt es die destruktiven verkleinernden Mechanismen, die auf größere Partikel wirken, wie Abrieb und Bruch oder Schneiden. Andererseits gibt es Mechanismen, die die Partikel vergrößern oder verschiedene (Saat-) Partikel zu einem größeren Partikel kombinieren. Diese Mechanismen werden als Granulation bzw. Agglomeration bezeichnet. Nahezu alle Prozesse sind durch das Auftreten beider Effektklassen gekennzeichnet, wobei meist ein Effekt dominierend und damit charakteristisch ist.

Die Agglomeration kann in der Flüssigphase ablaufen wie im Falle der Koagulation oder Flockung oder in der Gasphase wie im Falle der Aufbauagglomeration oder der Pressagglomeration (UHLEMANN & MOERL [97]).

Schließlich gibt es die Möglichkeit, Partikel aus der flüssigen Phase herzustellen. Hierbei werden aus der Lösung, Suspension oder Schmelze auf verschiedene Arten Tropfen erzeugt. Diese Tropfen werden dann gekühlt oder getrocknet und verfestigen sich hierbei. Beispiele hierfür sind das Sprühtrocknen oder die Wirbelschicht-Sprühgranulation.

Die Auswahl des spezifischen Verfahrens richtete sich nach dem Ausgangszustand des Edukts sowie der gewünschten Struktur des fertigen Schüttguts. Insbesondere die Partikelstruktur lässt sich durch die Wahl eines geeigneten Prozesses beeinflussen. Die Auswahl eines geeigneten Prozesses erfordert in der Regel eine langwierige und kostenintensive Optimierung (UHLEMANN & MOERL [97]).

3.2 Wirbelschichtsprühgranulation

Die Wirbelschicht-Sprühgranulation ist ein Verfahren, bei dem Flüssigkeiten wie Lösungen, Suspensionen oder Schmelzen getrocknet und dabei gleichzeitig granuliert, körnige Feststoffe gebildet werden. In den am Markt erhältlichen Systemen wird dieser Prozess üblicherweise in der blasenbildenden Wirbelschicht, seltener in der Strahlschicht durchgeführt. Keime für die Granulate können vorgelegt werden (Fremdkeime) oder bilden sich durch Abrieb und Bruch (Eigenkeime). Die Flüssigkeit wird über eine Düse in den Granulator eingesprüht. Sie beschichtet und oder verbindet die Keime im Inneren der Wirbelschicht, wodurch ein Kornwachstum einsetzt. Die Eindüsung in die Wirbelschicht kann dabei sowohl von der Seite als auch aufwärts oder abwärts gerichtet erfolgen (vgl. Abb. 3.2). Die folgenden positiven Produkteigenschaften werden in der Regel mit Sprühgranulation in Verbindung gebracht:

- Staubfreiheit,
- runde Pellets,
- gutes Fließverhalten,
- gute Dosierbarkeit,
- gute Dispergierbarkeit,
- gute Löslichkeit,
- kompakte Struktur,
- hohe Schüttdichte,
- dichte Oberfläche,
- enge Korngrößenverteilung.

Neben den Vorteilen bei der Einstellung von verschiedenen Produkteigenschaften bietet die Sprühgranulation gegenüber anderen industriellen Granulationsverfahren auch Vorteile bei der Prozesssteuerung. Durch das flüssigkeitsähnliche Verhalten des Feststoffs während der Fluidisation wird die Feststoffförderung erleichtert, wodurch automatisierte Fließprozesse ermöglicht werden AUSTIN & LUCKIE [8].

Die Sprühtrocknung ist ein mit der Sprühgranulation verwandter Prozess. Bei der Sprühtrocknung wird mittels einer Düse (durch Flüssigkeitsdruck, Pressluft oder Inertgas betrieben) die Lösung / Suspension als Einzeltropfen in einen Heißgasstrom eingebracht, der diese zu einem feinen Pulver trocknet. Die Heißluft kann in Richtung mit dem Sprühstrahl oder gegen den Sprühstrahl strömen (Gleichstrom-, Gegenstromverfahren), je nach Bauart und Verwendungszweck. Die Sprühtrocknung zeichnet sich dadurch aus, dass die Tropfen als Einzelpartikel abtrocknen. Abb. 3.3 zeigt schematisch einen Gegenstromsprühtrockner.

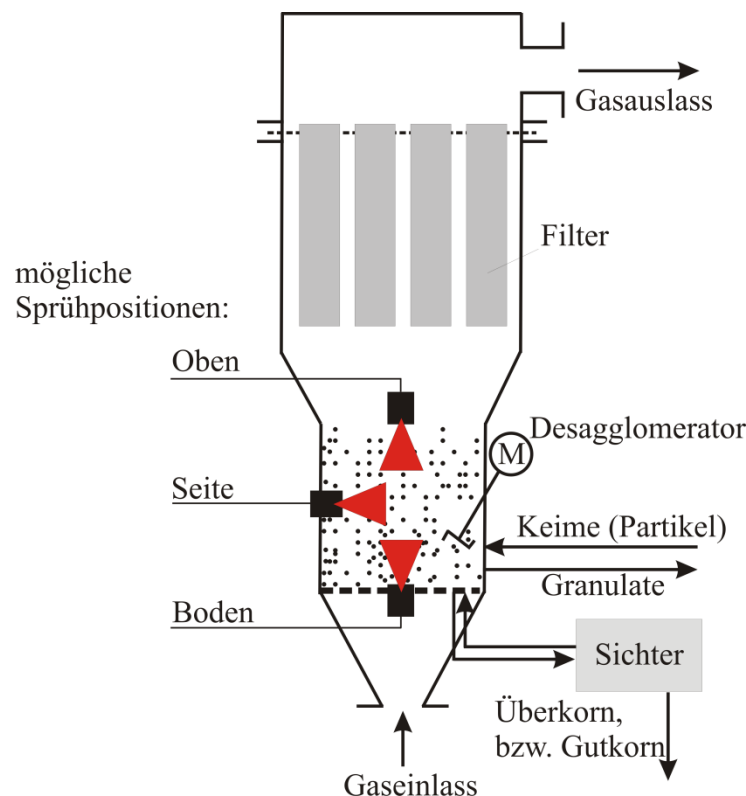


Abb. 3.2: Schematische Skizze eines Wirbelschichtsprühgranulators

Im Gegensatz zur Sprühtrocknung ist das Ziel der Sprühgranulation allerdings nicht nur die Umwandlung eines Produktes aus der gelösten Phase in den getrockneten Partikelzustand, sondern auch die gezielte Vergrößerung von Partikeln. Bei der Sprühgranulation kommt es neben dem reinen Trocknungsprozess zur Bildung von Granulaten bzw. Agglomeraten. Das entstehende Produkt der beiden Verfahren unterscheidet sich deutlich in seiner Morphologie. Bei der Sprühtrocknung ist das Produkt, bedingt durch den Trocknungsvorgang, tendenziell von innen hohl. Bei der Sprühgranulation hingegen weist das Material eine feste und kompakte Struktur auf. Ein Vorteil der Sprühgranulation ist, dass sehr einheitliche Agglomerate/Granulate produziert werden können. Dies ist auf die starke Rückvermischung und sehr homogenen Eigenschaften der Wirbelschicht zurückzuführen.

Ein Vergleich der schematischen Partikelstrukturen nach Sprühtrocknung bzw. Sprühgranulation ist in Abb. 3.4 entsprechend LUCKIE & AUSTIN [7] wiedergegeben. Im Originalartikel werden REM-Fotos von Partikeln verglichen, die aus Suspensionen mit gelösten Komponenten hergestellt wurden und sich durch das Herstellungsverfahren unterscheiden: Sprühtrocknung, Sprühgranulation und Sprühagglomeration.

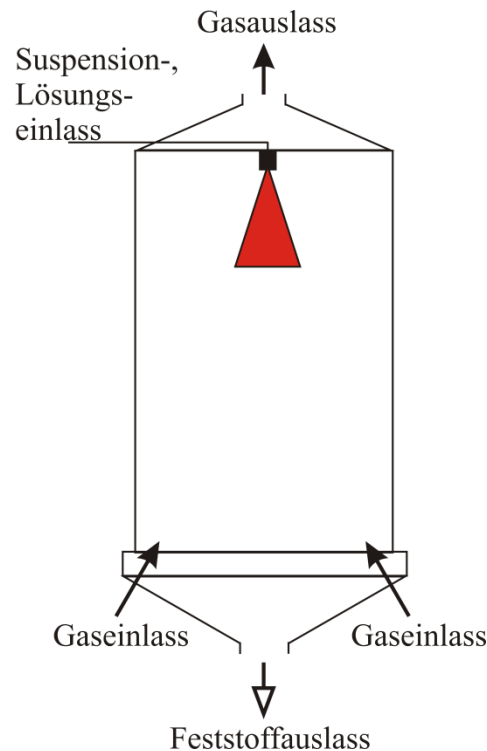


Abb. 3.3: Schematische Skizze eines Gegenstromstrom-Sprühtrockners

Hierbei liefert die Sprühtrocknung eine glatte, näherungsweise kugelförmige Oberfläche. Ein Schnitt durch die Partikel zeigt die Ausbildung einer Hohlkugelstruktur. Partikel aus der Sprühgranulation zeigen ebenfalls eine Kugelstruktur. Die Oberfläche ist aber wesentlich rauer und die Form weicht von der Kugelform ab. Ein Schnitt durch die Partikel zeigt keine Hohlräume im Inneren. Partikel aus der Sprühtrocknung mit integrierter Agglomeration zeigen eine unregelmäßige Struktur, die aus vielen Einzelkugeln aufgebaut ist, ein Schnitt durch diese Struktur zeigt Vollmaterial.

Die Sprühgranulation kann sowohl kontinuierlich als auch diskontinuierlich betrieben werden. Beim diskontinuierlichen Betrieb lässt sich die Größe der Partikeln über die Dauer des Sprühvorgangs steuern. Der kontinuierliche Betrieb hingegen ermöglicht große Durchsätze bei homogenen Partikeleigenschaften. Die Größe der Granulate lässt sich fortlaufend überprüfen. Wenn die gewünschte Partikelgröße erreicht ist, werden die Granulate der Wirbelschicht quasikontinuierlich oder über eine Klassiervorrichtung kontinuierlich entnommen. Ein weiterer Vorteil des kontinuierlichen Betriebs ist, dass die Granulate im stationären Zustand der Anlage stets bei optimalen Betriebsbedingungen entnommen werden können AUSTIN & LUCKIE [8].

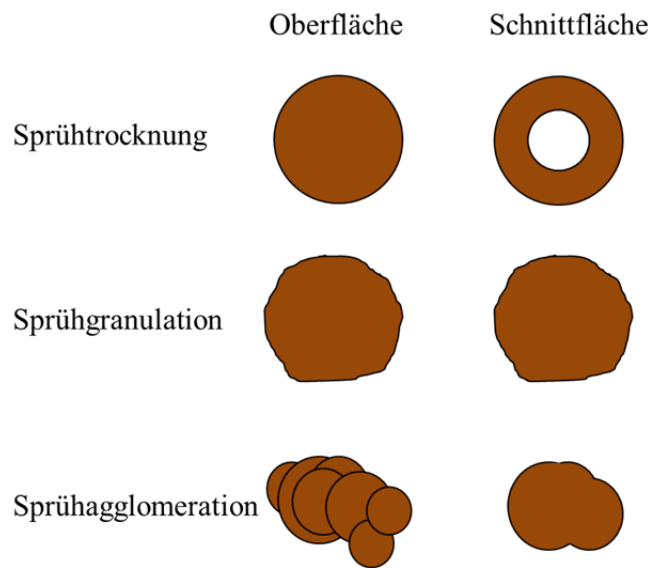


Abb. 3.4: Schematische Strukturunterschiede aufgrund des Herstellverfahrens nach LUCKIE & AUSTIN [7]

Eine Auswahl verschiedener sprühtrockneter / granulierter Produkte aus Lebensmittel- und Pharmaindustrie, Landwirtschaft, Keramikindustrie, Spezialchemie und Polymerindustrie ist in Tab. 3.1 wiedergegeben.

Tab. 3.1: Auswahl einiger sprühtrockneter Produkte (nach UHLEMANN & MOERL [97])

Lebensmittel-industrie	Pharma-industrie	Land-wirtschaft	Keramik-industrie	Spezial-chemikalien	Polymerindustrie
Maltodextrin	Antibiotika	Fungizide	Carbid Pulver	Katalysatoren	Polyacrylat
Lebensmittel-farben	Vitamine	Herbizide	Oxide (Al-, Be-, Fe-, Si-, U-, Zn-, Zr-)	Anorganische Chemikalien	Polyvinylchlorid (Emulsionen)
Instant Suppen	Plasma-substrate	Insektizide	Eisenpulver	Pigmente	Polyvinylacetat
Gewürzextrakt	Hefen	Schwefel	Silicate	Binder, Bindehilfsmittel	Harze auf Basis von Harnstoff, Melamin, Formaldehyd
Proteine	Enzyme	Düngemittel	Titanate	Papier-chemikalien	Polyacrylnitril
Instant Tees	Mikro-organismen		Titandioxid	Salze	Polycarbonat
Instant Kaffees				Wachse	Polystyrol
Kakaopulver				Zeolite	
Käsepulver					

3.2.1 Mechanismen des Granulataufbaus

Agglomerieren (lat.: anhäufen) beschreibt das Aneinanderbinden und Zusammenlagern von festen Primärpartikeln zu größeren Teilchenverbänden, den sogenannten Agglomeraten. Damit Primärpartikeln agglomerieren können, müssen sie möglichst viele Kontaktstellen zueinander haben, an denen Haftmechanismen wirken.

Nach RUMPF [81] und SCHUBERT [87] können zwischen Feststoffpartikeln verschiedene Mechanismen wirken:

- Stoffliche Verbindung
 - Sinterbrücken, Schmelzbrücken
 - Auskristallisierte Feststoffe
 - Aushärtende Bindemittel
- Flüssigkeitsbrücken
 - Adsorptionsschichten
 - Bewegliche Flüssigkeitsbrücken (Kapillarität)
- Anziehungskräfte
 - van-der-Waals-Kräfte (elektr. Leiter, elektr. Isolator)
 - elektrostatische Kräfte
- Formschlüssige Bindung

Bei der Wirbelschicht-Sprühgranulation sind die Festkörper- und die Flüssigkeitsbrücken die dominierenden Haftkräfte. In Abhängigkeit der verwendeten Verfahrensvariante und Technologie ergeben sich unterschiedliche innere Partikelstrukturen, die über die einfache Unterscheidung Sprühtrocknung, Sprühgranulation und Sprühagglomeration hinausgehen können.

Eine klare Unterscheidung der Prozesse bzw. der mit ihnen hergestellten Produkte ist nicht möglich, da verschiedene Anwender verschiedene Definitionen verwenden. Im Folgenden (siehe Abb. 3.5) sind die verschiedenen Mechanismen entsprechend des Weltmarktführers für Wirbelschichtgranulatoren GLATT GMBH [38] wiedergegeben, die sich hauptsächlich aus unterschiedlichen (Wirbelschicht-) Apparaten ableiten. Im Speziellen wird zwischen Agglomeration, Nassgranulation, Pelletierung, Sprühgranulation, Sprüh-Beschichtung und Pulver-Beschichtung unterschieden.

Die Unterschiede in den verschiedenen Prozessen liegen hauptsächlich in den Mechanismen des Partikelwachstums, der Intensität der (Partikel-Partikel) Interaktion, der verwendeten Verdichtungsenergien (z.B. kinetischen Energien) und Herstellungszeiten.

Erfolgt die Eindüsung als Spray feiner Tropfen, und trifft ein Tropfen des Sprays auf ein Partikel, so ergeben sich verschiedene Interaktionsmöglichkeiten mit dem Partikel. Im einfachsten Fall spreitet der Tropfen auf der Partikeloberfläche und hinterlässt nach vollständiger Trocknung / Erstarrung ein Schalensegment. Wiederholt sich dieser Vorgang, bildet sich schließlich ein sphärischer Granulataufbau aus. Ist die

Partikeloberfläche porös, kann der Tropfen nur bedingt spreiten, die Folge ist eine rauere, ungleichmäßige Granulatstruktur. Bei der Wirbelschicht-Sprühgranulation sorgt die allseitige Zugänglichkeit der Feststoffpartikeln in der Wirbelschicht idealerweise für ein zwiebelartiges und gleichmäßiges Wachstum (Layering) des Bettmaterials. Bei der Wirbelschicht-Sprühagglomeration kommt es zusätzlich zu den beschriebenen Effekten zu Partikel-Partikel-Kontakten, bevor das Fluid abgetrocknet / erstarrt ist. Bei diesen Kontakten können die oberflächenfeuchten Partikeln durch Oberflächenkräfte zusammengehalten werden und in dieser Form trocknen bzw. erstarren. Dies führt zur Ausbildung einer Brombeerartigen Partikelstruktur. Das beschriebene Wachstumsverhalten setzt ausreichend große Partikel sowie Tropfen, die deutlich kleiner sind als die Partikel, voraus. Diese Partikel können vorgelegt werden oder sie können sich durch Agglomeration kleinster Staubpartikel (Keime) bilden. Die benötigten Keime entstehen wiederum entweder im Prozess selbst als Eigenkeime oder müssen von außen zugeführt werden.

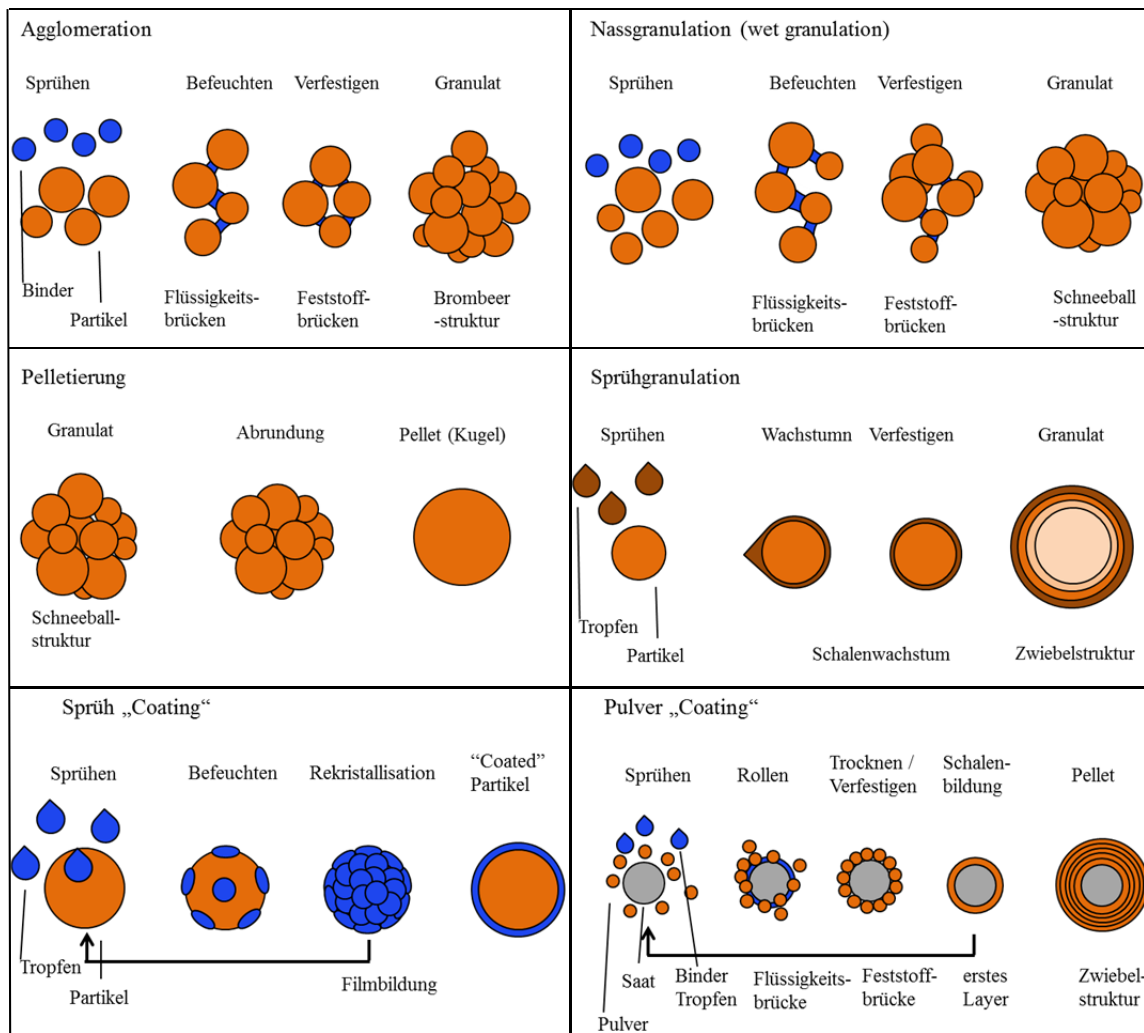


Abb. 3.5: Definition verschiedener möglicher Granulationsprozesse (nach GLATT GMBH [23])

Die Bildung von Eigenkeimen erfolgt entweder durch Abriebs- und Bruchprozesse im Granulator oder durch Trocknung / Erstarrung der eingedüsten Flüssigkeitstropfen als so genanntes Overspray. Nach MOERL [60] existieren verschiedene (vgl. Abb. 3.6) verschiedene Mechanismen, die zur Entstehung von Overspray führen. Beispielsweise trifft der Tropfen die Partikel nicht, reflektiert dieser an der Oberfläche als flüssiger oder verfestigter Tropfen oder generiert durch das Zerplatzen an der Oberfläche weitere feine Tropfen.

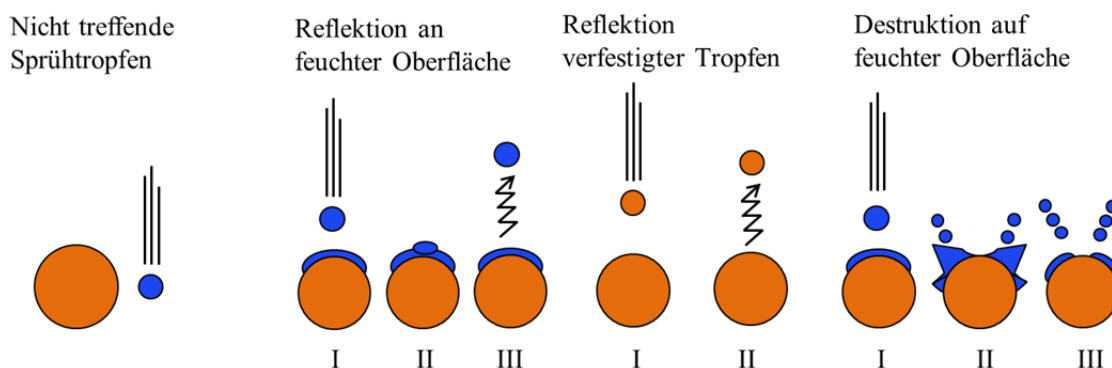


Abb. 3.6: Interaktionsmöglichkeiten des Tropfens mit dem Partikel, Bildung von Overspray (nach MOERL [60])

3.2.2 Trocknungsverlauf am Einzelpartikel

SEYDEL [88] hat die Sprühtrocknung am Einzeltropfen an den Modellsystemen Kochsalzlösung (NaCl) und Ammoniumsulfatlösung $((\text{NH}_4)_2\text{SO}_4)$, die ähnlich Saccharose kristallin ausfallen, untersucht, und ein detailliertes numerisches Modell entwickelt, das diesen Prozess näher beschreibt. Hier soll nur die vereinfachte allgemeine Beschreibung des Trocknungsvorgangs wiedergegeben werden. Prinzipiell ist das Modell auch auf die Beschreibung der Feststoffbildung aus Saccharoselösungen anpassbar.

Der trocknende Tropfen kann als poröser Körper betrachtet werden, sobald sich größere Mengen an Feststoffpartikeln im Tropfen gebildet haben. Im Unterschied zu den in der Trocknungstechnik beschriebenen Körpern ändert sich bei der Sprühtrocknung der Feststoffgehalt im Tropfen. Bei porösen Körpern stellt sich zunächst überall eine gleichmäßige konstante Temperatur ein, solange so viel Flüssigkeit durch Kapillarkräfte an die Körperoberfläche transportiert werden kann, wie an dieser verdunstet. Dieser Abschnitt konstanter Trocknungsgeschwindigkeit wird als erster Trocknungsabschnitt bezeichnet. Die Verdunstung ist nur von den Widerständen in der umgebenden Gasphase abhängig, weil die Verdunstung an der Körperoberfläche stattfindet. Während des ersten Trocknungsabschnitts ändert sich nur die Flüssigkeitsverteilung im Körper. Wenn nicht mehr genügend Flüssigkeit an die Oberfläche transportiert werden kann, bewegt sich der Trocknungsspiegel ins Innere des Trocknungsguts. Die Verdunstung findet nun im Inneren des Körpers statt, und der Dampf muss an die Oberfläche des Körpers diffundieren. Der Dampfmassenstrom wird also geringer, und somit

verlangsamt sich der Trocknungsprozess. Die zur Verdunstung notwendige Wärme muss hauptsächlich durch Leitung an den Trocknungsspiegel transportiert werden. Dieser Abschnitt wird als zweiter Trocknungsabschnitt bezeichnet. Bei hygroskopischen Stoffen beginnt der zweite Abschnitt, wenn der maximale hygroskopische Feuchtigkeitsgehalt an der Oberfläche unterschritten wird. Wenn im gesamten Körper der maximale hygroskopische Feuchtigkeitsgehalt erreicht wird, beginnt ein dritter Trocknungsabschnitt, bei dem die Trocknungsgeschwindigkeit dem Wert Null zustrebt, wenn die Gleichgewichtsfeuchte erreicht ist (KRISCHER & KAST [48]). Bei nichtporigen Körpern, in denen keine Dampfdiffusion möglich ist (z.B. Seife), findet die Trocknung ausschließlich an der Oberfläche statt, und der Trocknungsprozess lässt sich nicht in Abschnitte unterteilen (KRISCHER & KAST [48]).

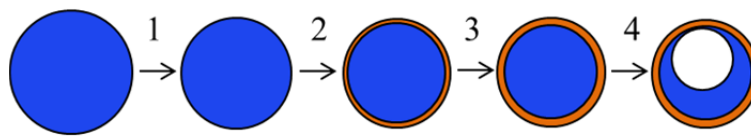


Abb. 3.7: *Physikalisches Modell des Trocknungsprozesses (nach KRISCHER & KAST [48], SEYDEL [88])*

Die Vorgänge bei der Trocknung eines Lösungs- bzw. Suspensionstropfens werden seit etwa 50 Jahren experimentell untersucht (CHARLESWORTH [15]). Zur Untersuchung werden Tropfen entweder am Draht oder an einer Scheibe in einem Heißgasstrom aufgehängt, oder es werden Tropfenketten in einem Fallturm getrocknet und aufgefangen. Auf Basis der Beobachtungen lässt sich der Trocknungsverlauf beschreiben (BÜTTIKER [12], CHARLESWORTH [15]). Im ersten Trocknungsabschnitt hat der Tropfen eine flüssige Oberfläche und nimmt die Kühlgrenztemperatur an (Schritt 1). Die Wärme- und Stofftransportwiderstände liegen ausschließlich in der Gasphase und werden aus Nusselt- und Sherwood-Zahl berechnet. Wegen der Verdunstung des Lösungsmittels konzentriert sich die gelöste Substanz vor allen Dingen am Tropfenrand auf. Sobald die Sättigungskonzentration überschritten ist, beginnt der Kristallisationsprozess (Schritt 2). Aufgrund des radialen Konzentrationsverlaufs und der Bewegung der Phasengrenze, die die Partikel am Tropfenrand mit nach innen bewegt, konzentrieren sich die Partikel am Tropfenrand. Wenn die Zahl der Partikel zu gering ist oder der Trocknungsprozess sehr langsam ist, kann sich keine Hülle ausbilden. Es entstehen dann bevorzugt Vollpartikel, weil bei langsamer Verdunstung auch im Tropfeninneren Partikel aufgrund des Konzentrationsausgleichs der gelösten Substanz entstehen können. Sobald eine feste Hülle vorhanden ist, beginnt der 2. Trocknungsabschnitt (Schritt 3). Zu den Wärme- und Stofftransportwiderständen in der Gasphase kommen nun die Widerstände der festen Hülle hinzu. Die Temperatur im Tropfen kann aufgrund des zusätzlichen Stofftransportwiderstands in der Hülle die Kühlgrenztemperatur übersteigen. Im Inneren des Tropfens kann sich schließlich eine aus Trocknungsgas oder Lösungsmitteldampf bestehende Blase bilden (Schritt 4). Wird die Flüssigkeit durch Kapillarkräfte an die Oberfläche gesogen, so fällt der Druck im Tropfeninneren ab, und Lösungsmittel kann verdampfen. Durch das Eindringen von

Trocknungsgas durch trockenengefallene Kapillaren kann es jedoch auch wieder zu einem Druckausgleich kommen. Im Falle einer undurchlässigen Hülle verdampft das Lösungsmittel im Inneren, und das Partikel bläht sich auf und kollabiert am Ende des Trocknungsprozesses infolge der Kondensation des Lösungsmittels. Übersteigen die Druckkräfte im Tropfen die Festigkeit der Hülle, so kommt es zum Bruch. Am Ende des Prozesses steht entweder ein Hohlkörper mit einer festen porösen Hülle, ein Vollkörper oder ein deformierter und / oder geplatzter Tropfen (vgl. Abb. 3.8, KRISCHER & KAST [48], SEYDEL [88]).

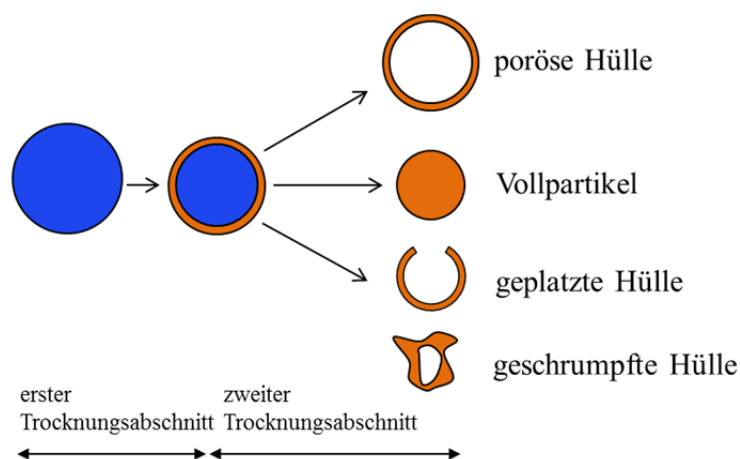


Abb. 3.8: Morphologie sprühgetrockneter / sprühgranulierter Einzel-Partikel (nach KRISCHER & KAST [48], SEYDEL [88])

3.2.3 Handhabung von Geldart C-Materialien

Geldart C Materialien (nach der Klassifikation von GELDART [22]) sind kohäsive, sehr feine Schüttgüter. Eine normale Fluidisation dieser Materialien ist extrem schwierig, da ihre interpartikulären Kräfte größer sind als die Kräfte durch Interaktion mit der Gasphase. Puderzucker, Mehl oder Stärke sind klassische Vertreter dieser Schüttgutklasse (KUNII & LEVENSPIEL [56]). In Wirbelbetten mit kleinem Durchmesser neigen diese Partikel dazu, als Feststoffpfropfen aufzusteigen. In Wirbelbetten mit großen Durchmessern bilden sich Kanäle vom Gasverteiler zur Bettoberfläche aus und der Feststoff ist in großen Bereichen nicht fluidisiert. Beispielhaft für ein solches Material ist in Abb. 3.9 eine Schüttung des in dieser Arbeit verwendeten Materials, Saccharose, dargestellt.

Im Übersichtsartikel von VAN OMMEN ET AL. [99] wird die Möglichkeit zur Fluidisation von solchen Partikeln am Beispiel von Nanopartikeln, die eine extreme Form dieses Verhaltens aufweisen, diskutiert. Hier kommt noch hinzu, dass sich aus den primären Nanopartikeln Agglomerate bilden, die im Bereich von 10-500 μm liegen und dann klassisches Geldart C-Verhalten zeigen. Als mögliche Ansätze zur Fluidisation dieser Partikelsysteme werden mechanisches Rühren, Schallwellen, pulsierende Begasung, Fluidisation im Zentrifugalfeld, Fluidisation im elektrischen Feld, und (sekundäre) Begasung mit „Microjets“ aufgeführt.



Abb. 3.9: Saccharose, Puderzucker Dr. Oetker Spezialkörnung, Rohmaterial

Als weitere Option geben KUNII & LEVENSPIEL [56] die Zugabe von größeren Partikeln an, um eine Fluidisation zu ermöglichen. Alternativ kann der Gas-Feststoffkontakt auch im Riser hergestellt werden. Hier verhindern die hohen Gasgeschwindigkeiten ein Ausbilden nicht fluidisierter Bereiche.

Die meisten dieser Ansätze eignen sich nur bedingt für eine gezielte Granulation zur Einstellung einer gewünschten Korngröße bzw. gewünschter Partikeleigenschaften. Das Zuführen grober Partikel hat z.B. wesentlichen Einfluss auf den Partikelgrößenhaushalt und das Zuführen einer fluiden Phase mit Tropfengrößen im Bereich der Partikelgröße bildet meist übergroße Agglomerate aus, die wieder zerstört werden müssen.

3.2.4 Granulation feiner Partikel

WATANO ET AL. [84] [83] berichten, dass verschiedene der in 3.2.3 diskutierten Methoden zwar die Fließfähigkeit und Fluidisationsfähigkeit von Geldart C-Partikeln wesentlich verbessern, dass es aber immer noch extrem schwierig ist, entsprechende Partikelsysteme zu beschichten oder aufzugranulieren. Neben den von ihnen entwickelten Verfahren zur Granulation in der Zentrifugal Wirbelschicht verweisen sie auf die Granulation in der Strahlschicht, die erfolgreich von ICHIKAWA ET AL. [37] durchgeführt wurde.

ICHIKAWA ET AL. beschreiben in einer Reihe von Veröffentlichungen ein Verfahren, das zum Beschichten von Lactose mit einem mittleren Durchmesser von 58 μm und von Stärke mit einem mittleren Durchmesser von 12 μm geeignet ist. Die verwendete Stärke wurde zur Vorbereitung der Fluidisationsversuche mit Natriumsulfonat für 10 h in einer Kugelmühle behandelt. Der Anteil Natriumsulfonat betrug hierbei 15 Gew.-%. Nach der Behandlung erfolgte eine Siebung bei 20 μm . Als Antiadherent kam Siliziumdioxid (Aerosil 200) bei der Nachbehandlung der Partikel und als (Trenn-) Hilfsmittel bei der Siebung zum Einsatz. Zur Beschichtung wurde eine Latexsuspension mit Latexpartikeln mit einem mittleren Durchmesser von 129 nm bis 148 nm eingesetzt. Die Beschichtung erfolgte in einem Wirbelschicht-Coater mit Zentralrohr nach Art des Wurster-Coaters (NQ-GM, Fuji Paudal Co. Ltd. $d_i = 3$ inch). Die Gaseintrittstemperatur war 65 °C. Die vorgelegte Bettmasse betrug 300 g. 150 g Latex in Wasser (insg. 750 ml) wurden eingedüst. Der Gasvolumenstrom betrug 40 l/min und die Sprühdrate 2,9 ml/min. Die Ergebnisse zeigen praktisch reine Granulation. Der Anteil an Granulaten liegt unterhalb von zwei Gew.-%. Partikel größer 32 μm wurden nicht generiert. Der mittlere Durchmesser der beschichteten Granulate betrug 16 μm .

Das von WATANOA ET AL. [83] beschriebene Verfahren erfolgt in einem rotierenden Wirbelbett aus Stärkepartikeln mit einem mittleren Durchmesser von 15 μm und Hydroxypropylcellulose (HPC-L) als Beschichtungsmaterial. Zum Einsatz kam eine neuartige rotierende Wirbelschicht (SATORU [84]). In einer Kammer zur Gasverteilung rotiert ein zylindrischer Gasverteiler aus Stahl-Gewebe mit einem Innendurchmesser von 400 mm und einer Breite von 50 mm. Der Zylinder rotiert um seine Achse, in der ein Filter zur Gasabführung installiert ist. Das Gas fließt so radial durch den Gasverteiler zum Filter, wo es das System verlässt. Auf der Filterachse ist eine Zweistoffdüse montiert die Tropfen mit einem mittleren Durchmesser von 7 μm generiert. Der Gasverteiler rotiert mit 7,8 U/min, was einer lokalen Beschleunigung am Gasverteiler von 50 g entspricht. Die Gasgeschwindigkeit betrug bei den Versuchen 0,805 m/s entsprechend 2,5 u_{mf} . Die Eintrittstemperatur lag je nach Versuch bei 60 bis 80 °C. Die eingedüste Menge an HPC-L-Lösung (5 Gew.-%) lag bei 0,75 g/min. Es wurden 3, 5 und 9 Gew.-% HPC-L bezogen auf die anfängliche Bettmasse eingedüst. Zu Beginn der Granulation ließ sich die Ausbildung von Agglomeraten aus Feinstpartikeln im Bett nachweisen, nach diesem Starteffekt war praktisch reine Granulation zu beobachten. Der mittlere Durchmesser der Granulate wuchs auf 22,8 μm für den Fall der Granulation mit 9 Gew.-% HPC-L an. Durch Variation der Betriebsbedingungen wurde in SATORU ET AL. [84] gezeigt, dass auch Mikroagglomerate von ca. 50 μm hergestellt werden konnten.

3.2.5 Granulation von temperaturempfindlichen Materialien

Die meisten Trocknungsprozesse, insbesondere für temperaturempfindliche Materialien wie Nahrungsmittel, Bioprodukte und Pharmazeutika leiden durch die Trocknung an Qualitätsverlusten in den Bereichen Farbgebung, Nährstoffgehalt, Wirkstoffgehalt,

Geschmack oder Textur. Dementsprechend werden häufig Trocknungsmechanismen im Niedrigtemperaturbereich wie Gefriertrocknen eingesetzt, um die Qualitätsverluste zu minimieren. Der Energieverbrauch derartiger Prozesse ist im Allgemeinen sehr hoch (MUJUMDAR ET AL. [33]). Bei klassischen Verfahren wie der Wirbelschichttrocknung (oder der Sprühtrocknung) ist häufig die Migrationsrate der Feuchtigkeit durch den Feststoff hin zur Verdunstungsfront der geschwindigkeitsbestimmende Schritt der Trocknung. Dementsprechend führen hohe Energie- und Stofftransportraten an der Oberfläche nur zu lokalen Überhitzungen oder Übertrocknungen (CHOU ET AL. [17]). In einem Wirbelschichttrockner bestimmt der gewünschte Fluidisationszustand die einzustellende Gasgeschwindigkeit. In der Praxis ist dieser Wert ein Vielfaches der minimalen Fluidisationsgeschwindigkeit und bestimmt den Gas-Feststoffkontakt. Mit abnehmender Trocknungsgeschwindigkeit zeigen die meisten Stoffsysteme einen höheren externen Energie- und Massentransportkoeffizienten als zum Abtransport der an die Oberfläche diffundierenden Feuchtigkeit nötig ist. In einem solchen Fall gibt es Strategien, wie die Fluidisation teilweise zu unterbrechen oder die Trocknungsgastemperatur herunterzusetzen. Zahlreiche klassische Trocknungsprozesse, die als kontinuierlich angesehen werden, zeigen dennoch ein stark zeitabhängiges Verhalten, hierzu gehören beispielsweise das Gefriertrocknen, das Rotationstrocknen im Mischer und das Trocknen in der Strahlschicht (CHOU ET AL. [17]).

Um dem entgegen zu wirken gibt es verschiedene Ansätze wie eine dynamische Anpassung der Trocknungsparameter, z.B. der Trocknungstemperatur oder des Druckes durch zeitliche Variation in Batchprozessen oder durch räumliche Aufteilung z.B. in einem kaskadierten Wirbelschichttrockner mit unterschiedlichen Zonen (CHOU & CHUA [16], CHOU ET AL. [17], MUJUMDAR ET AL. [33]).

Die gleichen Mechanismen gelten selbstverständlich auch bei der Wirbelschichtsprühgranulation, wobei das zu trocknende Material hierbei als Fluid eingebracht wird und die Granulationsgeschwindigkeit als zusätzlicher Parameter hinzukommt. Insbesondere lässt sich die Betttemperatur durch Erhöhung des Trocknungsgasstroms bei niedrigerer Eintrittstemperatur senken. Dies führt bei dem Erreichen von hohen Gasgeschwindigkeiten in der zirkulierenden Wirbelschicht zu signifikanten Temperaturabsenkungen. Auch lässt sich in der zirkulierenden Wirbelschicht eine räumliche Aufteilung längs des Riser realisieren, die aufgrund des Plugflow-Anteils der Feststoffströmung einen weiteren Freiheitsgrad zulässt.

3.2.6 Sprühgranulation in der zirkulierenden Wirbelschicht

In der Literatur finden sich nur wenige Untersuchungen zur Granulation in der zirkulierenden Wirbelschicht. Die Untersuchungen von KAGE ET AL. [39, 40, 41] und TSUTSUMI ET AL. [95] befassen sich hauptsächlich mit dem Beschichten von Primärpartikeln und der primären Agglomeration von Partikeln, also der Bildung von Agglomeraten aus zwei Primärpartikeln. Die Bildung größerer Agglomerate wurde nicht explizit untersucht.

Beide Gruppen verwendeten Glaskugeln mit annähernd gleicher Partikeldichte von 2500 bis 2600 kg/m² als Bettmaterial. Als Beschichtung bzw. Bindemittel wurden Polyvinylalkohole in einer wässrigen Lösung eingesetzt. In den Untersuchungen von KAGE ET AL. [39, 40, 41] wurde diese mit feinen Siliziumpartikeln versetzt, sodass es sich dort um ein Suspensionssystem handelt.

KAGE ET AL. [39, 40, 41] untersuchten das “powder coating” an einer engen Fraktion Glaskugeln mit einem mittleren Durchmesser von ca. 100µm. Diese Glaskugeln wurden mit Siliziumpartikeln, die zwei bis drei Größenordnungen kleiner waren und als Suspension in das System eingebracht wurden, beschichtet. Die Experimente wurden in einem ZWS-Riser mit einem inneren Durchmesser von 85 mm und einer Höhe von 1500 mm bei Gasgeschwindigkeiten zwischen 0,68 und 1,05 m/s durchgeführt. Die Gaseintrittstemperaturen lagen bei ca. 30 °C, die eingebrachte Suspensionsmenge war in Relation zur Bettmasse gering. In den Versuchen konnte eine verminderte Neigung zur Agglomeratbildung der Primärpartikel im Vergleich zur blasenbildenden Wirbelschicht beobachtet werden.

TSUTSUMI ET AL. [95] untersuchten das Agglomerationsverhalten in einem ZWS-Riser mit einem inneren Durchmesser von 80,2 mm und einer Höhe von 3525 mm bei Gasgeschwindigkeiten zwischen 2,9 und 5,2 m/s. Die Gaseintrittstemperatur lag bei ca. 180 °C. Das Bettmaterial bestand aus monodispersen oder bidispersen Glaskugelfraktionen mit einem Durchmesser von 84 µm und 120 µm.

Die Ergebnisse zeigen eine Reduzierung der sekundären Granulationsneigung bzw. der Bildung von Granulaten mit mehr als zwei Primärpartikeln. Die Partikelgrößenverteilung der Agglomerate ist über die gesamte Versuchsdauer näherungsweise konstant. Der Anteil an Agglomeraten an der Gesamtheit des Feststoffinventars lag immer unter 10 Gew.-%. Im Vergleich zur blasenbildenden Wirbelschicht konnte eine reduzierte Neigung zur Segregation beobachtet werden.

In den Versuchen von KAGE ET AL. und TSUTSUMI ET AL. dominiert Granulation (Schalenwachstum, Beschichtung) den Wachstumsprozess. Die Bettmasse im Riser ist jeweils gering, hieraus resultiert eine niedrige Feststoffvolumenkonzentration und eine niedrige Wahrscheinlichkeit für Partikel-Partikel-Kontakte. Die hohe Gastemperatur in Kombination mit dem niedrigen Verhältnis von Sprütrate zu Risergasvolumenstrom ermöglicht ein schnelles Verfestigen der Lösung und unterbindet in Kombination mit den wenigen Partikel-Partikel-Kontakten das Ausbilden größerer Agglomerate. In den Versuchen von TSUTSUMI ET AL. tritt sogar nur isolierte primäre Agglomeration auf, sekundäre Agglomeration kann vernachlässigt werden.

Die wenigen Veröffentlichungen deuten darauf hin, dass die Mechanismen des Partikelwachstums, bzw. die resultierende Partikelmorphologie in einem ZWS-System mit denen einer blasenbildenden Wirbelschicht vergleichbar sind. Allerdings sind die bisher untersuchten Systeme und Versuchsbedingungen (vgl. Tab. 3.2) nicht repräsentativ für klassische Agglomerationsprozesse oder Granulationsprozesse.

Tab. 3.2: Sprühgranulation in der zirkulierenden Wirbelschicht, Versuchsbedingungen in der Literatur

	$\bar{c}_{v,max}$	Sprührate/Bett- masse [g/(kg min)]	Sprührate/Gasvolumen- strom [g/m ³]	Gaseintritts- temperatur [°C]
TSUTSUMI ET AL. [95]	0,028	0,75	12,4	180
KAGE ET AL. [39, 40, 41]	0,00095	1,66 – 18	2,16 - 7,48	30 - 70

3.3 Zirkulierende Wirbelschichten (ZWS)

Die aus der Literatur bekannten Veröffentlichungen zum Thema Granulation in der Wirbelschicht behandeln in der Regel Prozesse in der blasenbildenden Wirbelschicht oder in der Strahlschicht, Ausnahmen sind in Kapitel 3.2.6 beschrieben. In dieser Arbeit wird demgegenüber die Granulation in der zirkulierenden Wirbelschicht untersucht.

3.3.1 Grundlagen

Die Strömungsverhältnisse in der zirkulierenden Wirbelschicht sind ausführlich in der Fachliteratur beschrieben. Eine Übersicht verschiedener phänomenologischer Beschreibungen mit abgeleiteten meist empirischen Modellzusammenhängen ist z.B. zusammengefasst in WERTHER [105], KUNII & LEVENSPIEL [56] oder GRACE ET AL. [26] wiedergegeben.

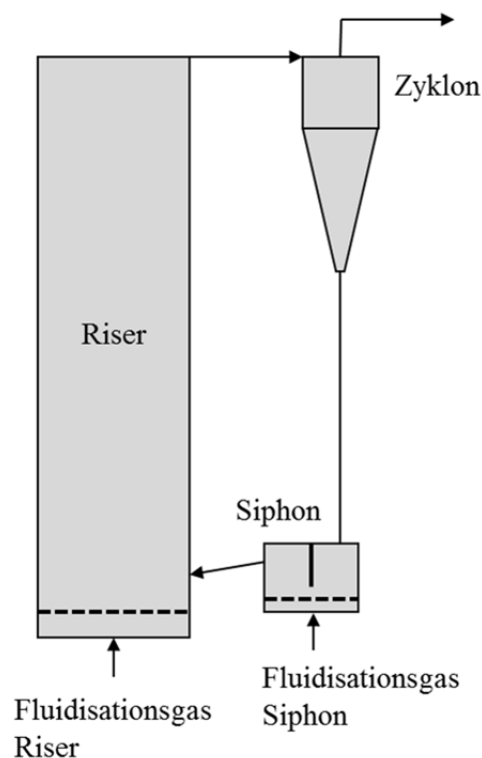


Abb. 3.10: Schematische Darstellung einer zirkulierenden Wirbelschicht

Prinzipiell besteht das ZWS-System aus dem Riser und einem nachgeschalteten Abscheideorgan (in der Regel einem Zyklon, oder einer Zyklonkaskade), an das sich ein Fallrohr mit einer Feststoffrückführung anschließt, die einen Druckverschluss für die Gasphase darstellt und eine Kurzschlussströmung des Fluidisiergases aus dem Riser in den Zyklon unterbindet. In Abb. 3.10 ein entsprechendes System wiedergegeben, bei dem die Feststoffrückführung als Siphon ausgeführt ist.

In Abhängigkeit der vorherrschenden Strömungsverhältnisse wurden verschiedene Fluidisationsregime im Riser beschrieben. Hier soll exemplarisch die Beschreibung nach BI ET AL. [8] referenziert werden, die verschiedene Betriebsmodi nach dem Verhältnis von Leerrohrgeschwindigkeit u zur Einzelpartikelsinkgeschwindigkeit u_t und nach dem Verhältnis der Feststoffzirkulationsrate G_s zur Partikeldichte ρ_p charakterisiert haben. Sie unterscheiden „Fast Fluidisation“, „Core-Annular-Flow“ und „Homogeneous Dilute Phase Flow“. Die Fast Fluidisation stellt dabei den Bereich bei Gasgeschwindigkeiten oberhalb der turbulenten Fluidisation in einem strähnendominierten Regime dar. Eine weitere Erhöhung der Gasgeschwindigkeit führt zur Ausbildung einer Kern-Ringströmung die schließlich bei weiterer Erhöhung der Gasgeschwindigkeit in den homogenen Transport in einer dünnen Gasfeststoffströmung übergeht.

Hier soll nur der Bereich der Kern-Ringströmung weiter betrachtet werden, da dieser alle Betriebspunkte der in dieser Arbeit durchgeführten Versuche abbildet.

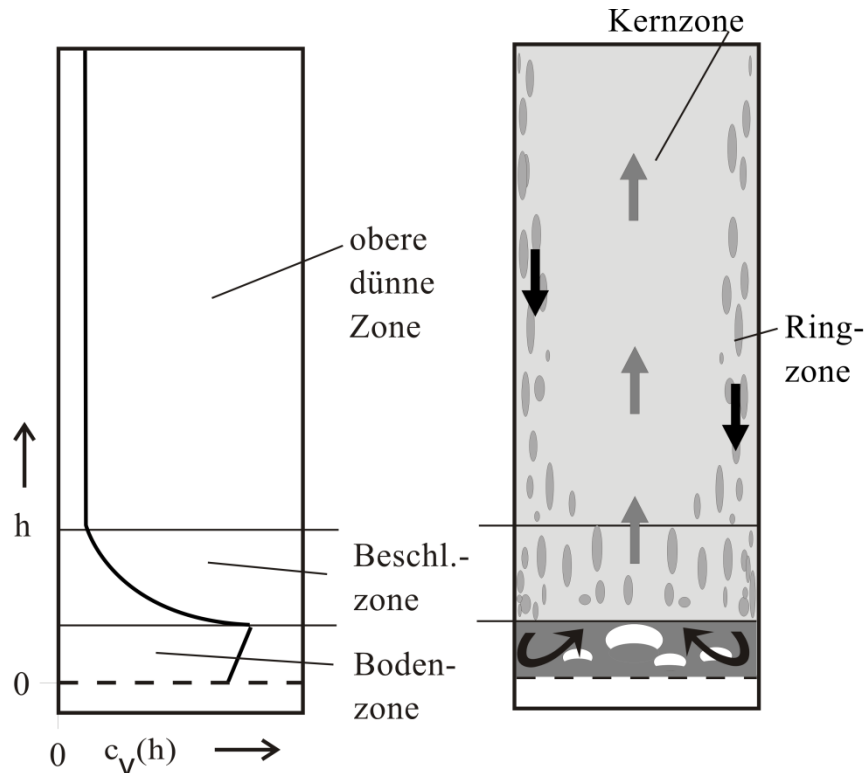


Abb. 3.11: Strömungsprofil, Druckverlustprofil (Konzentrationsprofil) und charakteristische Zonen im Riser einer zirkulierenden Wirbelschicht (nach WERTHER [105])

Dieser Betriebsbereich ist durch eine dichte Bodenzone mit einer Struktur ähnlich einer blasenbildenden Wirbelschicht charakterisiert ($c_{v,center} \approx 0,15$; $c_{v,wall} \approx 0,4$; WERTHER [105]), oberhalb der Bodenzone folgt eine Beschleunigungszone, in der die Feststoffgeschwindigkeit zunimmt und die Feststoffvolumenkonzentration exponentiell mit zunehmender Höhe abnimmt und schließlich in eine dünne obere Zone übergeht. Diese weist nur noch eine Feststoffvolumenkonzentrationen von wenigen Prozent auf. Dem gesamten System ist die namensgebende Kern-Ringstruktur überlagert, die durch einen Bereich höherer Feststoffvolumenkonzentration in Wandnähe (Ring) und eine Zone niedrigerer Feststoffvolumenkonzentrationen im Zentrum (Kern) charakterisiert ist. Die relativen Verhältnisse der Feststoffvolumenkonzentrationen zwischen Kern und Ring sind hierbei in der dünnen oberen Zone deutlich stärker ausgeprägt als in der dichten unteren Zone. Beschleunigungszone und dünne obere Zone sind durch Strahlenstrukturen charakterisiert, die zentrisch aufsteigen und im Ringbereich absinken. Abb. 3.11 zeigt den beschriebenen Verlauf der Feststoffvolumenkonzentration über der Riserhöhe, sowie die Kern-Ringstruktur. Ein detailliertes empirisches Modell der Strömungsmechanik im Riser ist im Appendix A Kap. 10.1 wiedergegeben.

3.3.2 Kornzerkleinernde Mechanismen

Verschiedene Veröffentlichungen von SCHUBERT [86], KELLY & SPOTTISWOOD [45], ANTONYUK [3], UNLAND [98] sowie PÜTTMANN [66] schlagen eine Kategorisierung von Bruchereignissen entsprechend ihrer makroskopisch zu beobachtenden Effekte vor (vgl. Abb. 3.12).

Bruch ist charakterisiert durch die Ausbreitung von Rissen auf der submikroskopischen über die mikroskopische auf die makroskopische Größenordnung. SCHUBERT [86] unterscheidet hierbei duktilen Bruch und Spröbruch. Welche Bruchform auftritt, hängt von Materialeigenschaften und Belastungsbedingungen der Partikel ab.

- **Duktiler Bruch**
zeichnet sich durch eine kontinuierliche Rissausbreitung mit konstanter externer Energiezuführung aus. Eine plastische Verformung im Bereich des Bruchs ist erkennbar. Es bilden sich zwei Fragmente. Die entstehende Korngrößenverteilung enthält kein Feingut.
- **Spröder Bruch (Fragmentierung)**
ist das Ergebnis einer instabilen Rissausbreitung mit Geschwindigkeiten oberhalb von 1000 m/s. Für die Bildung der neuen Partikeloberflächen wird elastisch im Partikel gespeicherte Stoßenergie eingesetzt. Die plastische Deformation im Bruchbereich ist vergleichsweise gering. Es bilden sich einige größere Partikel und viele feinsten Partikel.

- **Absplittern, Abplatzen**
Ecken und Kanten brechen ab, so dass ein größeres Partikel und wenige feine Fragmente entstehen
- **Abrieb**
Viele kleinste Partikel werden generiert, während das Ausgangspartikel weitestgehend seine Größe und Form behält.

Welche Kategorie von Kornzerkleinerung vorliegt, hängt vom Belastungsfall und den Partikeleigenschaften wie Partikelgröße und Partikelform, Belastungshistorie und Homogenität der Partikel, Partikeloberflächenvergrößerung, Bruchresistenz und Partikelgrößenverteilung der Fragmente ab.

Eine Zuordnung eines Bruchereignisses zu einem der vier Bruchmechanismen ist nur für den Bruch einzelner Partikel möglich und kann in entsprechenden Versuchen z.B. mit einer Luftkanone (vgl. ANTONYUK [3]) gewonnen werden.

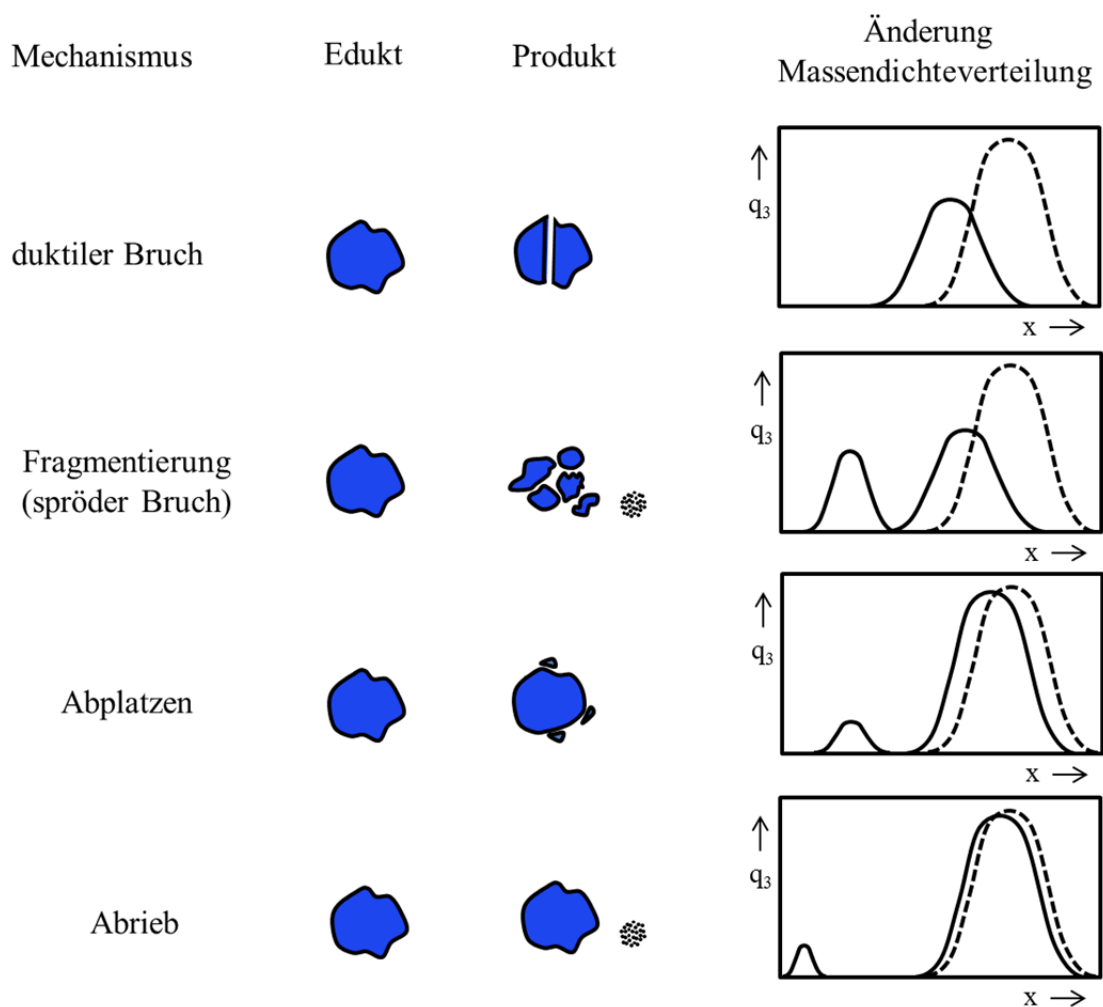


Abb. 3.12: Kornzerkleinernde Mechanismen, makroskopisch Effekt nach PÜTTMANN [66] (gestrichelte Verteilungen vor der Zerkleinerung, durchgezogene danach)

Aus der Messung der Partikelgrößenverteilung nach einem kornzerkleinernden Ereignis an einem Partikelkollektiv lassen sich die unterschiedlichen Bruchmechanismen in der dargestellten Detailtiefe nur mit erheblichen Versuchsaufwand auseinanderhalten, da die Bruchstücke sich nicht mehr den einzelnen Ausgangspartikeln zuweisen lassen. Praktisch lassen sich die aufgeführten Mechanismen dann in **Abrieb** (feinste Partikel) und **Bruch** (größere Fragmente) zusammenfassen.

An der Massendichteverteilung einer Materialprobe lässt sich Bruch dadurch identifizieren, dass der Modalwert vor der Beanspruchung sich mit der Zeit nach links verschiebt und ein zweiter Modalwert vor dem anfänglichen entsteht. Im Falle des Abriebs ist die Modalwertverschiebung sehr klein und es wird ein zweiter Modalwert bei kleinen Partikelgrößen ($< 10 \mu\text{m}$) generiert. Brechen die Partikeln nicht uniform oder nicht binär, so können sich auch mehrere Modalwerte vor dem ursprünglichen ausbilden.

3.3.3 Bruch und Abrieb in der (zirkulierenden) Wirbelschicht

REPPENHAGEN [75], KLETT [46] und REDEMANN [73] untersuchten den Abrieb in Systemen mit zirkulierenden Wirbelschichten und definierten den Abrieb als Partikel kleiner ca. 10-20 μm . Bruch kam in den untersuchten Partikelsystemen (FCC-Katalysator, Sande und Aschen) unter den gewählten Betriebsbedingungen praktisch nicht vor.

In den Untersuchungen von PÜTTMANN [66] wurde Bruch in zirkulierenden Wirbelschichten am Beispiel von Eisenerzen untersucht. Hierbei wurden generierte Partikel $< 10\mu\text{m}$ zwar als Abriebsmassenstrom erfasst, der Anteil an der Gesamtmasse war aber so klein, dass er keinen signifikanten Einfluss auf die entstehende Korngrößenverteilung und Charakterisierung des Bruchverhaltens hatte. Die Ergebnisse der Bruchversuche wurden durch binäre Bruchvorgänge und Bruchvorgänge mit mehr als zwei Fragmenten angenähert.

WERTHER & REPPENHAGEN [107] geben einen ausführlichen Überblick über das Abriebsverhalten in Wirbelschichten. Abrieb und Fragmentierung werden zusammengefasst und als unerwünschte Schädigung der Partikel im Wirbelschichtsystem charakterisiert. Der Fokus liegt hierbei auf Abrieb. Als Schlussfolgerung ergibt sich, dass die Kornverkleinerung unter zwei Gesichtspunkten betrachtet werden muss:

- unterschiedliches Abriebsverhalten in unterschiedlichen Zonen des Wirbelschichtsystems
- unterschiedliche Abriebsmechanismen in Abhängigkeit der eingetragenen Energie

Die ersten Untersuchungen, die in unterschiedlichen Zonen einer Wirbelschicht eine Partikelschädigung durch unterschiedliche Abriebsmechanismen nachgewiesen haben wurden von ZENZ [114] veröffentlicht. In anschließenden Untersuchungen von ZENZ & KELLEHER [115] wurde vorgeschlagen, die verschiedenen Abriebsquellen gesondert zu untersuchen. Sie schlugen den Bereich um den Gasverteiler, den blasenbildenden Bereich der Wirbelschicht, die Zyklone, die Feststoffrückführung und die Feststoffdosierung als Abriebsquellen vor.

WERTHER & XI [110] [111] veröffentlichten Untersuchungen zum Abrieb in der Blasenzone und in der gasverteiler-nahen Zone der Wirbelschicht. Diese Arbeiten wurden durch REPPENHAGEN [75] vertieft und um Abrieb in Zyklonen erweitert. Eine Zusammenfassung der dieser Arbeit zugrundeliegenden liegenden theoretischen Zusammenhänge des Abriebs findet sich in Appendix B, Kap. 11.

3.4 Populationsbilanzen

3.4.1 Korngrößenverändernde Mechanismen

Die in technischen Apparaten ablaufende Stoffwandlung wird als Makroprozess bezeichnet. Unter einem Mikroprozess sind die Einwirkungen und damit verbundenen Zustandsänderungen in den für einen technischen Makroprozess charakteristischen kleinsten Substanzgebieten zu verstehen.

Im Falle des Partikelaufbaus oder der Partikelzerkleinerung beinhaltet dieses kleinste Volumenelement ein oder einige wenige Partikel, die miteinander interagieren (SCHUBERT [87]). Populationsbilanzen setzen in der Regel auf der Ebene der Makroprozesse auf.

In Abb. 3.13 a-g sind die einzelnen Makro(teil)prozesse entsprechend dem Vorschlag von SASTRY & FUERSTENAU [10] wiedergegeben. Dies sind: Keimbildung (a), Auflösung (b), Granulation (c), Abrieb (d), Agglomeration (e), Bruch (f), und Reallokierung von Partikelmasse (g). Hinzu kommt die Verfestigung / Trocknung (h) von Suspensions- und Lösungstropfen.

Eine Zusammenfassung der Vorgänge in Anlehnung an MÖRL ET AL. [60], die in einem Granulationsprozess in der Wirbelschicht auftreten, ist in Abb. 3.14 dargestellt.

Der Aufbau von Partikeln, insbesondere Agglomeration und Granulation, findet vornehmlich in Nähe der Eindüsestelle statt, wohingegen Partikelzerkleinerung, insbesondere Abrieb und Bruch, an verschiedenen exponierten Stellen in der gesamten Anlage auftreten kann.

Aus dem eingedüsten Material können sich durch Overspray Feinstpartikel bilden, die zusammen mit Partikeln aus dem Abrieb als Basis für eine Keimbildung fungieren. Größere instabile Partikel und Agglomerate können unter Umständen auch wieder zu Feinstpartikeln zerfallen (Fragmentierung). Dem Granulationsprozess können bei Bedarf Feinstpartikel oder größere Partikel zugegeben werden und über einen Zyklon bzw. einen selektiven Abzug können diese aus dem System abgeführt werden.

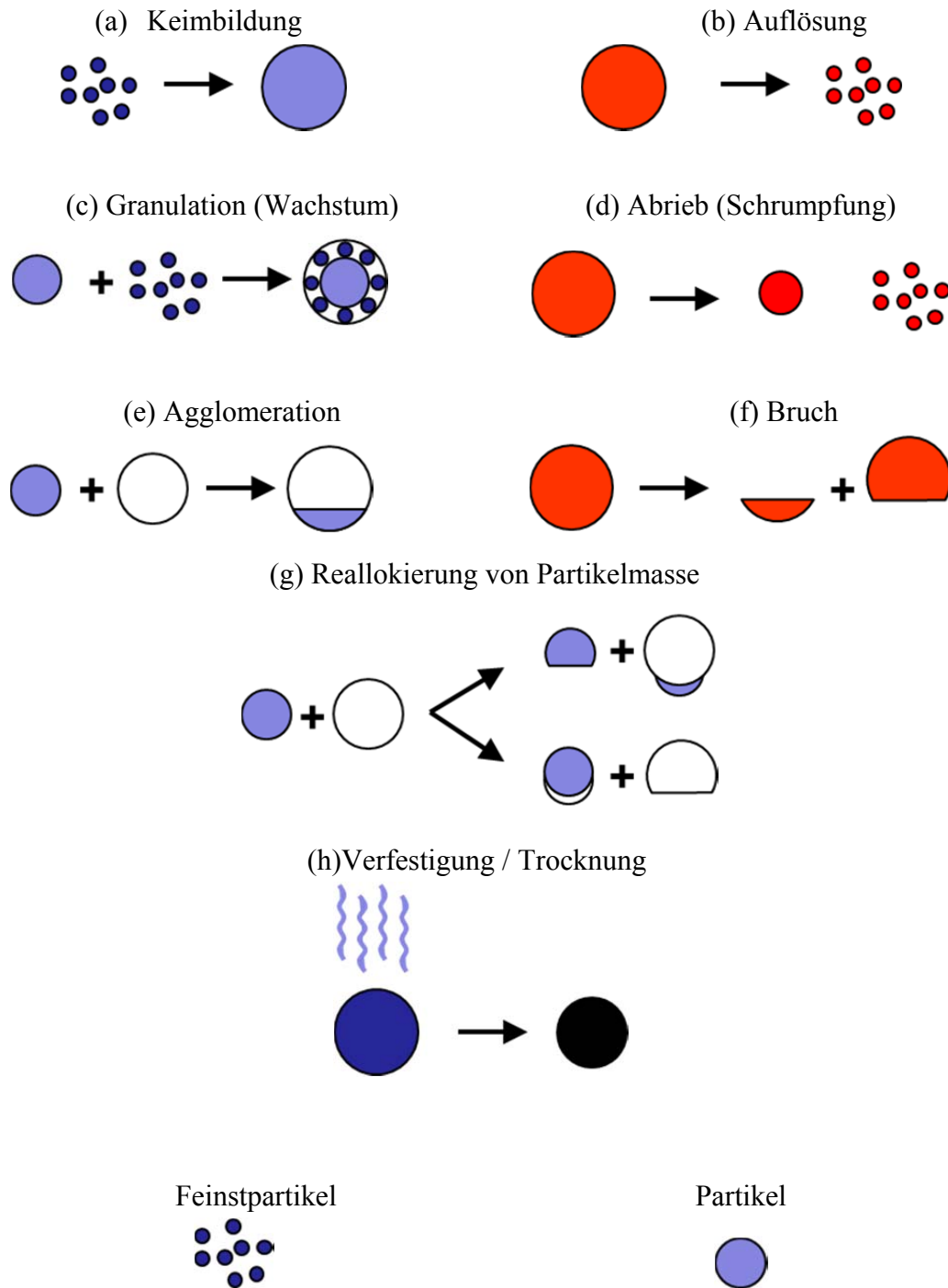


Abb. 3.13: Kornvergrößernde und Kornverkleinernde Einzelmechanismen in der Populationsbilanz nach SASTRY & FUERSTENAU [10]

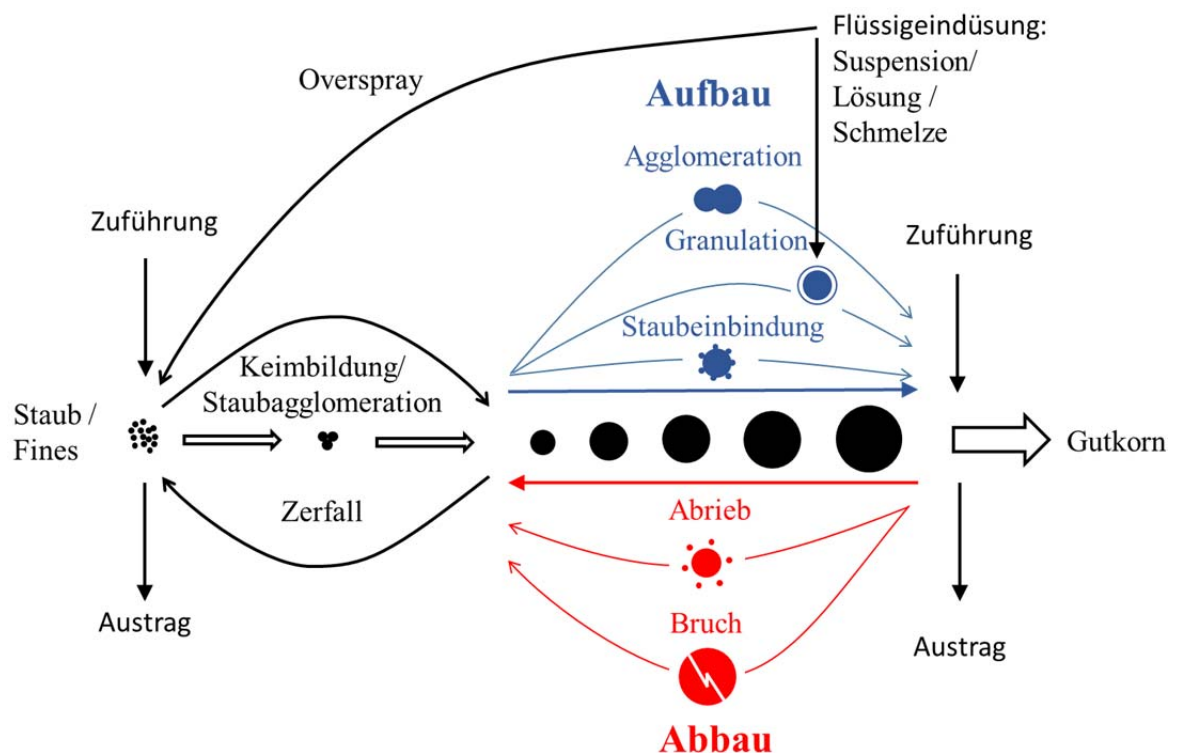


Abb. 3.14: Hauptmechanismen der Granulation in Anlehnung an MOERL [60]

3.4.2 Formulierung der Populationsbilanzen

Die mathematische Beschreibung von Fragmentierungsprozessen und Partikel aufbauenden Prozessen erfolgte erstmals in den 1950er und 1960er Jahren. Kornzerkleinernde Effekte wurden zuerst von HULBURT & KATZ [36], RANDOLPH [71] und HIMMELBLAU [32] behandelt, Kornaufbauende Effekte erstmals von SASTRY & FUERSTENAU [82][43]. Die am meisten verbreitete Methode ist hierbei die Populationsbilanz. Das Populationsbilanzmodell beschreibt die Entwicklung der Partikelgrößenverteilung (und weiterer verteilter Größen) mit der Zeit (BERNOTAT & SCHÖNERT [6]).

RAMKRISHNA [69][70] gibt einen umfassenden Überblick über die Grundlagen und verschiedene Anwendungen. Insbesondere disperse Multiphasensysteme, bei denen partikelzerkleinernde Effekte und partikelvergrößernde Effekte die Einzelpartikel kontinuierlich verändern, werden als Beispiel angeführt. RAMKRISHNA [69] weist darauf hin, dass die konventionellen Erhaltungsgleichungen für Masse, Energie und Momente bei solchen Systemen auf mikroskopischer Ebene in der Regel nicht vollständig beschreibbar sind. Dementsprechend sind die Populationsbilanzen in der Verfahrenstechnik meist auf der makroskopischen Ebene angesiedelt (HIMMELBLAU [32]).

Populationsbilanzen wurden in der Verfahrenstechnik erstmals von HULBERT & KATZ [36] eingesetzt. Ihr Ziel war die mathematische Beschreibung eines Prozesses mit einer nicht homogen angenommenen Partikelphase.

Die Differentialgleichungsansätze und Bilanzen wurden aus der statistischen Mechanik übernommen. HULBERT UND KATZ [36] definierten einen Phasenraum (x, r) , der einen Vektor von Koordinaten darstellt, der den Ort der Partikel und deren Anzahl abbildet.

Entsprechend der VON HULBERT & KATZ [36], eingeführten Terminologie werden die räumlichen Koordinaten als externe Koordinaten r bezeichnet und die Anzahlkoordinaten als interne Koordinaten x . Es wird davon ausgegangen, dass die Partikel klein sind, sodass ihre Umgebung durch einen lokalen Wert des Umgebungszustandsvektors $Y(r, t)$ zum Zeitpunkt t auf der Zeitkoordinate abgebildet werden kann (RAMKRISHNA [69] [70]). Die Anzahldichte der Partikel im Phasenraum definiert die Verteilung über die internen Koordinaten mit den externen Koordinaten als Parameter (HULBERT & KATZ [36]). Der Populationsbilanzansatz erlaubt eine Kombination verschiedener verteilter externer Koordinaten.

Die folgende Zusammenfassung basiert auf den Veröffentlichungen von RAMKRISHNA [69][70] sowie KUMAR ET AL. [50][52][51] und PÜTTMANN [66], in denen die Zusammenhänge ausführlich hergeleitet werden. Hier wird auf eine dezidierte Herleitung verzichtet und auf die entsprechenden Werke verwiesen. Im Folgenden wird eine Nomenklatur in Anlehnung an KUMAR [50] verwendet.

Wenn die Partikelgröße x die verteilte Eigenschaft ist, dann ist die Anzahlverteilung der Partikelgrößen durch $n(t, x)$ gegeben. Hieraus folgt, dass die Anzahl der Partikel N in einer Größenklasse (z.B. Volumen oder einer anderen Basis) im Größenbereich $[X_{i-1/2}, X_{i+1/2}]$ durch (3.1) gegeben ist.

$$N_i = \int_{x_{i-1/2}}^{x_{i+1/2}} n(t, \varepsilon) d\varepsilon \quad (3.1)$$

HULBERT & KATZ [36] haben nachgewiesen, dass diese Herangehensweise auf Systeme mit mehreren verteilten Partikeleigenschaften übertragbar ist. Praktisch gilt für ein kleines Volumenelement im Raum (beschrieben durch interne und externe Koordinaten), dass die Änderungsrate der Anzahldichte durch die Divergenz des Partikelflusses sowie Quellen- und Senkenterme (im Folgenden als „birth“-Term B und „death“-Term D bezeichnet) abgebildet wird. Der Fluss ergibt sich aus dem Produkt der lokalen Geschwindigkeit V mit der Anzahldichte $n(t,x)$, wobei die lokale Geschwindigkeit durch (3.7) definiert wird. x kann das Volumen oder eine andere Basis sein.

$$V = \frac{dx}{dt} \quad (3.2)$$

Die Geschwindigkeitskomponenten bezüglich der externen Koordinate ergeben die konventionellen Geschwindigkeiten, während die Geschwindigkeitskomponenten

bezüglich der internen Koordinate die Beschreibung der Änderungsrate von zum Beispiel der Partikelgröße wiedergeben. Hiermit ergibt sich die Populationsbilanz zu:

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \nabla(V \cdot f) = B(t, x) - D(t, x) \quad (3.3)$$

f beschreibt hier eine multidimensionale Verteilungsfunktion. Um die Populationsbilanz berechnen zu können, ist es notwendig dass die Geschwindigkeiten als Funktion der Position im Phasenraum bekannt sind und dass funktionale Zusammenhänge für den „birth“-Term und den „death“-Term gefunden werden. Die „birth“- und „death“-Terme in (3.3) sind die Raten, mit denen Partikel an einer Position im Phasenraum erscheinen oder verschwinden. Die Terme gehen auf verschiedene diskrete Ereignisse zurück, die Partikel an beliebigen Stellen im Phasenraum hinzufügen oder entfernen. Beispiele für diese „birth“- und „death“-Terme sind: Bruch, bei dem ein „death“ Ereignis zu zwei oder mehr „birth“ Ereignissen führt; Agglomeration, bei der ein „birth“ Ereignis zu zwei oder mehr „death“ Ereignissen führt sowie Keimbildung, die in einem einzigen „birth“ Ereignis resultiert.

Die „birth“ und „death“ Terme beinhalten in der Regel integrale Zusammenhänge, die die Lösung der Populationsbilanz erschweren. Schrumpfung (Abrieb) und Wachstum (Granulation) führen auch zu „birth“- und „death“-Ereignissen, wenn die Partikel in eine benachbarte Größenklasse übertreten.

Gleichung (3.3) basiert auf einer Betrachtung der Populationsbilanz auf einer mikroskopischen Ebene, sie beschreibt einzelne Punkte im Phasenraum. In vielen Fällen ist diese Form der Populationsbilanz unnötig detailliert. Unter der Annahme einer vollständigen Durchmischung der Partikel auf der externen Koordinate kann die Populationsbilanz über alle Punkte im Phasenraum integrierte werden. Hieraus ergibt sich eine eindimensionale Populationsbilanz für vollständig durchmischte Systeme entsprechend KUMAR [50].

$$\begin{aligned} \frac{\partial n(t, x)}{\partial t} = & \frac{\dot{Q}_{in}}{\tilde{V}} n_{in}(x) - \frac{\dot{Q}_{out}}{\tilde{V}} n_{out}(x) - \frac{\partial^2(K(t, x) \cdot n(t, x))}{\partial x^2} - \frac{\partial(G(t, x) \cdot n(t, x))}{\partial x} \\ & + B_{nuc}(t, x) + B_{agg}(t, x) - D_{agg}(t, x) + B_{break}(t, x) - D_{break}(t, x) \end{aligned} \quad (3.4)$$

Hierbei repräsentiert der Parameter x die Größe der Partikel. Die ersten beiden Terme auf der rechten Seite der Gleichung repräsentieren den kontinuierlichen Fluss in das und aus dem System. \dot{Q}_{in} und \dot{Q}_{out} sind hierbei die Ströme. \tilde{V} ist ein Element der externen Koordinate. Massenumverteilung bei einem Stoßereignis wird durch $K(t, x)$ beschrieben. Keimbildung und das Wachstum beziehungsweise die Schrumpfung werden durch $B_{nuc}(t, x)$ bzw. $K(t, x)$ abgebildet.

Die Terme für Keimbildung, Agglomeration und Bruch sind hierbei verkürzt dargestellt. Im Falle eines Batchprozesses gibt es keine Zuführung oder Abführung von Partikeln über die Systemgrenzen. Dementsprechend können die ersten beiden Terme der rechten Seite von Gleichung (3.4) vernachlässigt werden.

In der Literatur ist es üblich, Momente von Partikelgrößenverteilungen über der Zeit zu betrachten. Das j-te Moment einer Partikelgrößenverteilung $n(t,x)$ ist definiert als

$$\mu_j(t) = \int_0^{\infty} x^j n(t,x) dx \quad (3.5)$$

Die ersten beiden Momente repräsentieren wichtige Eigenschaften der Verteilung: Das nullte Moment ist proportional zur absoluten Anzahl an Partikeln im System. Das erste Moment ist proportional der totalen Masse der Partikel im System, wenn x das Partikelvolumen ist. Bei Batchprozessen kann somit die Genauigkeit der Lösung durch Verfolgung des Momentenverlaufs beurteilt werden.

Agglomeration

Das Phänomen der Agglomeration tritt in einer Vielzahl von Anwendungen auf, beispielsweise in der Physik (Zusammenhaften von Partikeln), der Meteorologie (Koaleszenz von Tropfen in atmosphärischen Wolken, Aerosoltransport) und der Chemie (Polymerisation, Rußbildung, Pharmazeutika, Düngemittel). Die zeitliche Änderung der Partikeldichte in einem räumlich homogenen System wird üblicherweise in der durch HULBURT & KATZ [36] hergeleiteten Form beschrieben.

$$\frac{\partial n(t,x)}{\partial t} = \frac{1}{2} \cdot \int_0^x \beta(t,x-\varepsilon,\varepsilon) \cdot n(t,x-\varepsilon,\varepsilon) \cdot n(t,\varepsilon) d\varepsilon - n(t,x) \int_0^x \beta(t,x,\varepsilon) \cdot n(t,\varepsilon) d\varepsilon \quad (3.6)$$

Hierbei gilt $t > 0$. Im Folgenden wird davon ausgegangen, dass die repräsentative Größe x das Partikelvolumen ist. Der erste Term auf der rechten Seite präsentiert dann die Entstehung von Partikeln der Größe x als Ergebnis der Koagulation von Partikeln der Größen $(x-\varepsilon)$ und ε . Die Eigenschaften der Gleichung (3.6) werden maßgeblich durch die Wahl des Agglomerationskerns $\beta(t,(x-\varepsilon),\varepsilon)$ beeinflusst. Der Agglomerationskern ist per Definition nicht negativ und erfüllt die Symmetriebedingung

$\beta(t,x,\varepsilon) = \beta(t,\varepsilon,x)$. Die analytische Lösung der Populationsbilanzen für Agglomeration ist nur für einige einfache Fälle möglich. In der Regel werden spezielle numerische Techniken zur Lösung benötigt.

Agglomerationskern

In Abhängigkeit verschiedener untersuchter Systeme wurden von verschiedenen Gruppen verschiedene Agglomerationskern vorgeschlagen. Tab. 3.3 zeigt eine Auflistung verschiedener Ansätze. Die in der Liste aufgeführten Agglomerationskern sind bis auf den Kern nach GOLDSCHMIDT & KUIPERS in HOUNSLOW ET AL. [92], der sich aus physikalischen Grundlagen der kinetischen Stoßtheorie ableitet, alle empirischen Ursprungs.

Tab. 3.3: Zusammenstellung verschiedener Agglomerationskernel (mit w, w' als Partikelvolumen und x, x' als Partikeldurchmesser oder Partikelvolumen, β_0, C als Konstanten und der Zeit t . In TAN ET AL. [92] nach GOLDSCHMIDT [24] sind l_1, l_2 Partikeldurchmesser, und β_0 im einfachsten Fall eine Konstante, die sich theoretisch aus dem „success factor for aggregation“ ψ , der „radial distribution function for mixture“ $g_{i,j}$, der „mixture granular temperature“ θ_s und der Dichte ρ entsprechend TAN ET AL. [91] herleitet)

Kernel	Referenzquelle
$\beta = \beta_0$	KAPUR UND FÜRSTENAU in KAPUR [43]
$\beta = \beta_0 \frac{(x + x')^2}{(x \cdot x')^3}$	KAPUR [43]
$\beta = \beta_0 \frac{\left(x^{\frac{2}{3}} + x'^{\frac{2}{3}}\right)^2}{\left(\frac{1}{x} + \frac{1}{x'}\right)^3}$	SASTRY [82]
$\beta = \beta_0 x + x'$	GOLOVIN [25]
$\beta = \beta_0 \frac{(x - x')^2}{(x + x')}$	GOLOVIN [25]
$\beta(t < t_1) = \beta_0$ $\beta(t > t_1) = C \cdot (x + x')$	ADETAYO [2]
$\beta(w < w_1) = \beta_0$ $\beta(w > w_1) = 0$ $w = \frac{(x \cdot x')^2}{(x + x')^3}$	ADETAYO & ENNIS [1]
$\beta(t, l_1, l_2) = \beta_0(t) \cdot (l_1 \cdot l_2)^2 \cdot \sqrt{\frac{1}{l_1^3} + \frac{1}{l_2^3}}$ $\beta_0(t) = \psi \cdot g_{i,j} \cdot \sqrt{\frac{3 \cdot \theta_s}{\rho}}$	TAN ET AL. [92] nach dem Modell von GOLDSCHMIDT [24]

Bruch

Populationsbilanzen für Bruch sind in den Bereichen der Gratulation, Kristallisation, Mahlung und Engineeringbereichen mit Bezug zu diskreten Partikelsystemen weit verbreitet. Die allgemeine Form der Populationsbilanzen für Bruch ergibt sich entsprechend ZIFF [116] zu

$$\frac{\partial n(t, x)}{\partial t} = \int_0^x b(x, \varepsilon) \cdot S(\varepsilon) \cdot n(t, \varepsilon) d\varepsilon - S(x) \cdot n(t, x) \quad (3.7)$$

Die Bruchfunktion $b(x, \varepsilon)$ ist die Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion für die Bildung von Partikeln der Größe x aus Partikeln der Größe ε . Die „Selection Rate“-Funktion $S(x)$ beschreibt die Wahrscheinlichkeit, mit der die Partikel brechen. Die Bruchfunktion hat hierbei die folgenden Eigenschaften

$$\int_0^x b(\varepsilon, x) d\varepsilon = \bar{N}(x) \quad (3.8)$$

$$\int_0^x x \cdot b(\varepsilon, x) d\varepsilon = x \quad (3.9)$$

Die Funktion $\bar{N}(x)$ repräsentiert die Anzahl an Partikeln, die aus Bruch von Partikeln der Größe x hervorgegangen sind. Es ist üblich die Gleichung (3.7) für binären Bruch umzuschreiben (siehe z.B. ZIFF & MCGRADY [117]) zu

$$\frac{\partial n(t, x)}{\partial t} = 2 \int_0^\infty \tilde{B}(x, \varepsilon - x) \cdot n(t, \varepsilon) d\varepsilon - n(t, x) \cdot \int_0^x \tilde{B}(\varepsilon, x - \varepsilon) d\varepsilon \quad (3.10)$$

Hierbei gibt $\tilde{B}(x, y) = \tilde{B}(y, x)$, die Wahrscheinlichkeit an, dass ein Partikel der Größe $(x+y)$ in zwei Partikel genau der Größe x und y bricht. Die Beziehung zwischen b und \tilde{B} kann aus Gleichung (3.7) und (3.10) abgeleitet werden.

$$S(x) = \int_0^x \tilde{B}(\varepsilon, x - \varepsilon) d\varepsilon \quad \text{und} \quad b(x, \varepsilon) = \frac{2\tilde{B}(\varepsilon, x - \varepsilon)}{S(\varepsilon)} \quad (3.11)$$

Die Populationsbilanzgleichung (3.7) kann nur für sehr einfache Formen der Bruchfunktion und der „Selection Rate“-Funktion analytisch gelöst werden.

Bruchwahrscheinlichkeit

Die „Breakage Selection Rate“ beschreibt, wie groß die Wahrscheinlichkeit ist, dass ein Partikel bricht. In Tab. 3.4 sind verschiedene „Breakage Selection Rate“-Funktionen wiedergegeben. Die verschiedenen Ansätze sollen hier nicht vertieft diskutiert werden. Neben den angegebenen Quellen gibt PÜTTMANN [66] einen jeweils kurzen Überblick über die Herleitungen.

Tab. 3.4: Zusammenstellung verschiedener Breakage Selection Rate Funktionen (S_0 , α sind Konstanten, $\hat{d}_{p,i}$ ist die repräsentative Partikelgröße im Intervall i geteilt durch die repräsentative Partikelgröße des Intervalls 1, v_i ist das mittlere Partikelvolumen im Intervall i , $d_{p,0}$ ist eine Standardlänge von 1 mm, μ und Λ sind Parameter, σ , σ_S sind Kräfte bzw. Spannungen, c eine Anzahl an Belastungen, m das Weibull-Modul, W_m ist eine massenspezifische Energie, f_{Mat} ist der massenbasierte Widerstand gegen die externe Belastung $W_{m,kin}$ und $W_{m,min}$ die Treshold-Energie eines Partikels mit dem Durchmesser d_p , k ist eine Anzahl an Belastungen, S_{min} die Bruchwahrscheinlichkeit zu Beginn, u_p eine Auftreffgeschwindigkeit und $u_{p,50}$ die Auftreffgeschwindigkeit mit 50% Bruchwahrscheinlichkeit)

Selection Rate	Referenzquelle
$S_i = S_0 \hat{d}_{p,i}^\alpha$ mit $S_1 = 0$	AUSTIN & BHATIA [7], AUSTIN & LUCKIE [4]
$S_i = S_0 \bar{v}_i^\alpha$ mit $S_1 = 0$	HILL & NG [29]
$S_i = S_0 \frac{d_{p,i}}{d_{p,0}^\alpha} \frac{1}{1 + \left(\frac{d_{p,i}}{\mu}\right)^\Lambda}$	KLIMPEL & AUSTIN [47], AUSTIN & TRASS [5]
$S = 1 - \exp\left[-c \cdot \left(\frac{\sigma}{\sigma_S}\right)^m\right]$	VOGEL & PEUKERT [101]
$S = 1 - \exp\left[-c \cdot d_p^2 \cdot W_m^z\right]$	WEICHERT [102]
$S_i = 1 - \exp\left[-f_{Mat} \cdot d_p \cdot k \cdot (W_{m,kin} - W_{m,min})\right]$	VOGEL & PEUKERT [101]
$S_i = S_{max} + \frac{S_{min} - S_{max}}{1 + \left(\frac{u_p}{u_{p,50}}\right)^F}$	PETUKHOV & KALMAN [65]

Es ist grundsätzlich festzustellen dass die Ansätze von AUSTIN & BHATIA [7], AUSTIN & LUCKIE [4], HILL & NG [29] sowie KLIMPEL & AUSTIN [47], AUSTIN & TRASS [5] weitestgehend empirische Ansätze sind. Der erste Ansatz von VOGEL & PEUKERT [101] und der Ansatz von WEICHERT [102] basieren auf einer Bruchstatistik nach Weibull. Der Zweite Ansatz von VOGEL & PEUKERT [101] sowie der von PETUKHOV & KALMAN [65] basieren auf der eingebrachten Stoßenergie bzw. auf Stoßgeschwindigkeiten.

Bei den veröffentlichten Funktionen lassen sich prinzipiell drei Typen unterscheiden:

- S-förmige Funktion
- Potentialfunktion
- Exponentialfunktion

Granulation & Abrieb

Granulation und Abrieb lassen sich durch den gleichen Modellansatz beschreiben. Die Populationsbilanzgleichung für reines Wachstum ist in (3.12) wiedergegeben. Im Falle des Abriebs ist die Funktion $G(x)$ negativ.

$$\frac{\partial n(t, x)}{\partial t} = \frac{\partial (G(x)n(t, x))}{\partial x} \quad (3.12)$$

Bei dieser Differenzialgleichung handelt es sich um einen hyperbolischen Gleichungstyp. Hieraus ergeben sich verschiedene numerische Schwierigkeiten. Ein detaillierter Überblick über verschiedene einfache numerische Schemata zur Lösung dieser Gleichung ist in KUMAR [50] wiedergegeben.

Die Anzahl an Partikeln bleibt beim Vorgang der Granulation (und des Abriebs) konstant, da die eingebrachten Feinstpartikel oder die eingedüστε Lösung nicht als Partikel definiert werden. Die Gesamtmasse im System hingegen nimmt entsprechend des eingedüsten Massenstroms zu bzw. entsprechend des Abriebsmassenstroms ab.

Unter der Annahme von Schalenwachstum ist bei der Wirbelschichtsprühgranulation die Wachstumsgeschwindigkeit G direkt proportional zum Feststoffmassenstrom \dot{m}_s und umgekehrt proportional zur angebotenen Partikeloberfläche A_{ges} . Die zugrunde liegende Modellvorstellung ist in Abb. 3.15 skizziert. Nach HEINRICH [28] gilt für das auf den Partikeldurchmesser bezogene Wachstum:

$$G_d(t, d_p) = \frac{dd_p}{dt} = \frac{2 \cdot \dot{m}_s}{\rho_s \cdot A_{ges}(t)} \quad (3.13)$$

mit dem Partikeldurchmesser d_p und A_{ges} als Oberfläche aller Partikel zum Zeitpunkt t .

Für das auf das Volumen bezogene Wachstum gilt:

$$G_v(t, v_p) = \frac{dv_p}{dt} = \frac{A_p(v_p)}{A_{ges}(t)} \cdot \frac{\dot{m}_s}{\rho_s} \quad (3.14)$$

mit dem Partikelvolumen v_p und der Oberfläche A_p aller Partikel mit dem Partikeldurchmesser d_p zum Zeitpunkt t .

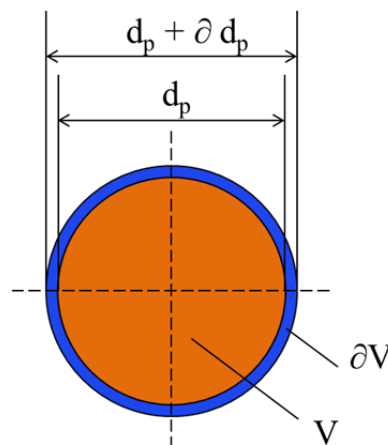


Abb. 3.15: Modellvorstellung des Granulatwachstums als ideale Kugel nach HEINRICH [28]

3.4.3 Lösung der Populationsbilanzen

Zur Lösung der Populationsbilanzgleichungen stehen in der Literatur verschiedene numerische Techniken zur Verfügung. Diese Techniken beinhalten die Methode der “successive approximation”, die “method of moments”, die “finite elements method”, “finite volume schemes” und “Monte Carlo simulation” (KUMAR [50]).

Neben der Berechnung der Verteilung einer bestimmten Partikeleigenschaft wird in der Regel die exakte Berechnung weiterer Größen wie der totalen Anzahl an Partikeln oder der gesamten Partikelmasse gefordert. Diese Anforderungen führen zu einer Wahl einer geeigneten Diskretisierungsmethode. Die Diskretisierungsmethoden nähern die Größenverteilung durch eine endliche Anzahl von Intervallen an. Ein System gewöhnlicher Differenzialgleichungen beschreibt die Änderung der Partikelanzahl in jedem Größenintervall. Zum Lösen solcher Systeme werden üblicherweise Integratoren höherer Ordnung zum Integrieren über die Zeit verwendet. Die numerische Stabilität und Genauigkeit der Lösung hängt stark von der Wahl geeigneter Stützstellen in Kombination mit dem jeweiligen Integrator ab.

NOPENS ET AL. [63] gruppieren die Diskretisierungsmethoden für Populationsbilanzen in:

- Hounslow Methode
- Fixed Pivot Methode
- Moving Pivot Methode

Zeitlich nach dieser Einordnung schlugen KUMAR ET AL. [53] die

- Cell Average Methode

als weitere Methode vor.

HOUNSLOW ET AL. [35] und HOUNSLOW [34] waren die Ersten, die eine Methode zur Lösung einer diskretisierten Populationsbilanz für die Agglomeration vorschlugen, die das nullte bis dritte Moment der diskretisierten Größe, also die Momente bezüglich der Partikelanzahl, der Länge (Partikeldurchmesser), der Oberfläche der Partikel und des Feststoffvolumens bzw. der -masse fehlerfrei berechnen konnte. Die Originalmethode und alle auf ihr aufsetzenden Erweiterungen werden prinzipiell als **Hounslow-Methode** bezeichnet. Dies gilt sowohl für die geschlossene Methode für Batchprozesse (HOUNSLOW ET AL. [35]) als auch für die offene Methode für kontinuierliche Systeme (HOUNSLOW [34]) jeweils mit Keimbildung, Granulation und Agglomeration aber ohne Bruch.

Die Hounslow-Methode ist auf eine Diskretisierung der verteilten Größe auf Intervalle in der Form einer geometrischen Reihe der Form $v_{i+1} = 2v_i$ mit dem repräsentativen Partikelvolumen v_i im Größenintervall i .

Die ursprüngliche Methode wurde durch LITSTER ET AL. [58] erweitert, so dass nun eine anpassbare Diskretisierung in Form einer geometrischen Reihe mit $v_{i+1} = v_i \cdot 2^{1/q}$ für

ganzzahlige q möglich war. Wie sich später herausstellte war diese Methode nur für die Fälle $q \leq 4$ fehlerfrei. WYNN [109] veröffentlichte schließlich eine korrigierte Version die für alle ganzzahligen q gültig ist.

Die prinzipiell gleiche Vorgehensweise bei der Herleitung einer geeigneten Diskretisierung wurde durch HILL & NG [29] [30] für die Brucheffekte durchgeführt. Auch hier hat die Diskretisierung die Form einer geometrischen Reihe mit $v_{i+1} = v_i \cdot 2^{1/q}$.

Die **Fixed Pivot-Methode** wurde von KUMAR & RAMKRISHNA [54] als Verallgemeinerung der Hounslow-Methode entwickelt. Zu Grunde liegt die Idee, dass für viele praktische Anwendungen nur bestimmte Eigenschaften der Partikelverteilung von Relevanz sind. Anstatt die gesamte Anzahldichteverteilung zu berechnen, ist die Diskretisierung so gewählt, dass nur zwei gewählte Eigenschaften, „pivots“, abgebildet werden. Diese Eigenschaften sind in der Regel spezifische Momente der Verteilung. Die Eigenschaft Ψ der Verteilung kann aus den Eigenschaften ψ der einzelnen Partikel mit dem Volumen v entsprechend (3.15) berechnet werden.

$$\Psi_i(t) = \int_0^{\infty} \psi_i(v) \cdot n(t, v) dv \quad i = 1, 2 \quad (3.15)$$

Die Änderungen der Eigenschaften über der Zeit bleiben erhalten. Durch die Konzentration auf die exakte Berechnung der Änderung der relevanten Größen unter Vernachlässigung der Exaktheit der Veränderungen weniger relevanter Größen erhöht die Fixed Pivot-Methode die Effektivität der Diskretisierung. Auf diese Weise kann die Genauigkeit der Berechnung in bestimmten Bereichen erhöht werden.

Die **Moving Pivot-Methode** wurde ebenfalls von KUMAR & RAMKRISHNA [55] entwickelt. Sie erhöht die Vorhersagegenauigkeit der Rechnung durch eine Variation der Anzahldichteverteilung innerhalb jedes Partikelgrößenintervalls. Die Moving Pivot-Methode erlaubt eine nicht gleichmäßige Definition der Größenverteilung in jedem Größenintervall. Dies erfolgt durch die Lokalisierung eines „moving pivot“, wodurch die gesamte Population des betrachteten Größenbereichs repräsentiert wird. Die Effizienz der Methode wird erhöht, so dass gröbere Gitter verwendet werden können, ohne an Genauigkeit zu verlieren.

NOPENS ET AL. [63] vergleichen die drei Diskretisierungsmethoden für die Fälle der reinen Agglomeration, des rein binären Bruchs in gleich große Bruchstücke und einer Kombination aus Bruch und Agglomeration in Hinsicht auf Vorhersagegenauigkeit und Geschwindigkeit. Sie kommen zu dem Ergebnis, dass die Hounslow-Methode am einfachsten zu implementieren ist und am schnellsten rechnet. Die Moving Pivot-Methode ist hingegen am genauesten. Binärer Bruch wurde nicht mit einer Hounslow Methode berechnet. Obwohl diese Diskretisierungsmethode nach HILL & NG [29] den Hounslow-Methoden zuzurechnen ist wurde sie von NOPENS ET AL. [63] nicht angewendet.

Die **Cell Average-Methode** wurde als neueste Methode von KUMAR ET AL. [53] für eindimensionale Populationsbilanzen zur Agglomeration eingeführt. Als Begründung wird angeführt, dass die „Fixed Pivot“ Methode die Partikelgrößenentwicklung auf groben geometrischen Gittern oft nicht hinreichend genau vorhersagt. Wenn die Anzahldichte steil abfällt, werden die Größenverteilungen konstant überschätzt, wenn die Anzahldichte steil steigt, werden die Größenverteilungen konstant unterschätzt. Dies lässt sich mit der Annahme einer gleichmäßig über jedes Größenintervall verteilten Anzahldichteverteilung erklären.

Für die Anwendung der Cell Average-Methode wird die gesamte betrachtete Eigenschaft diskretisiert. Die Intervallgrenzen können hierbei frei gewählt werden. Jedes Intervall erhält einen repräsentativen Knoten, an dem alle Partikel des Intervalls konzentriert sind. Die Lösung erfolgt in zwei Schritten. Zuerst werden Mittelwerte der betrachteten Größe aller neu generierten Partikel in jedem Größenintervall berechnet. Dann werden die neu generierten Partikel in einem zweiten Schritt so auf die benachbarten Knoten verteilt, dass die ausgewählten Größen der Verteilung exakt erhalten werden. Die Methode wurde auch auf multidimensionale Populationsbilanzen übertragen.

4 Modellierung des ZWS-Granulators

4.1 Modellzonen

Der ZWS-Granulator besteht aus dem Riser mit der Eindüsungszone und dem Zyklonsystem zur Rückführung des Feststoffs. Wie im Kapitel 3.3.1, beschrieben, bildet sich im Riser die klassische Feststoffverteilung mit dichter Bodenzone, Beschleunigungszone sowie dünner obere Zone mit der typischen Kern-Ring-Struktur aus. Aus den Arbeiten von REPPENHAGEN [75] und KLETT [46] geht hervor, dass für ein solches System als dominierende partikelzerstörende Mechanismen die von den Gasverteilerdüsen ausgehenden Gasstrahlen, die mechanische Belastung durch Partikel-Partikel-Kontakt im Riser und der Zyklon in Frage kommen. Im Falle des ZWS-Granulators kommt noch der Treibstrahl der Düse hinzu. Als Partikel aufbauende Mechanismen kommt nur die durch Eindüsung und Trocknung induzierte Granulation / Agglomeration in Frage. Ein entsprechendes System ist in Abb. 4.1 skizziert. Für die Modellentwicklung muss qualitativ und quantitativ abgeklärt werden, wie stark der Einfluss der unterschiedlichen Mechanismen auf den Korngrößenhaushalt des Granulators ist.

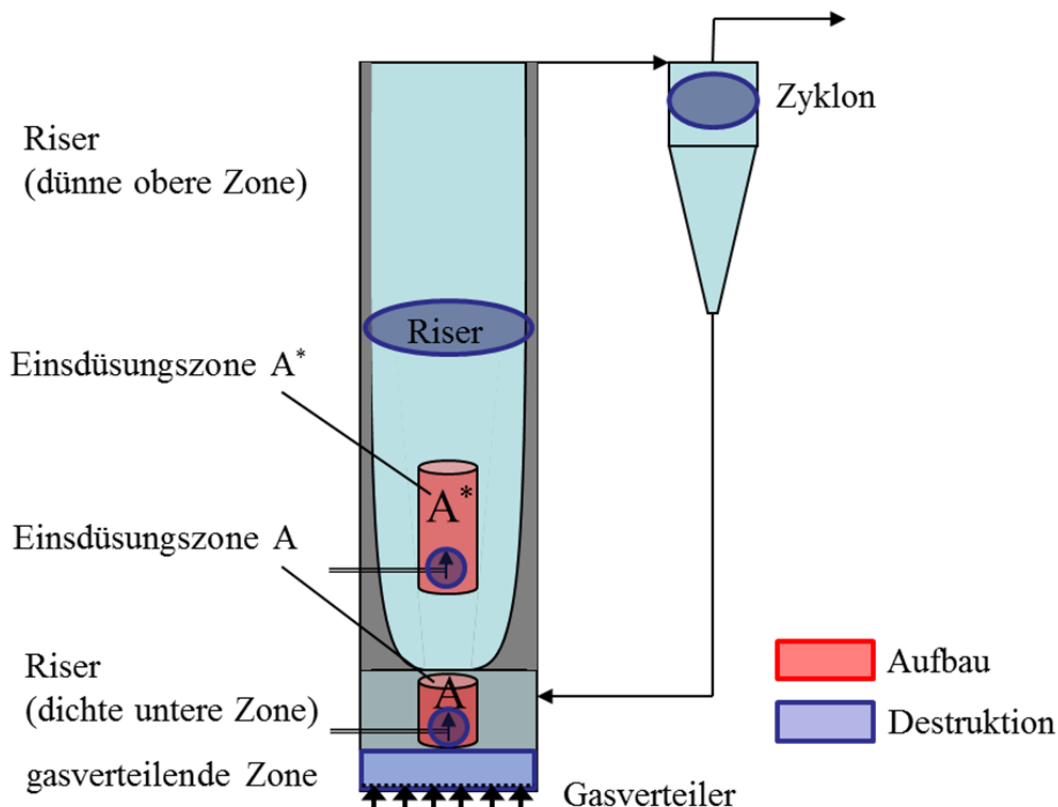


Abb. 4.1: Modellzonen kornvergrößernder und kornverkleinernder Mechanismen im ZWS-Granulator

Die Modellskizze zeigt die beiden Zonen mit dominierender Partikelvergrößerung in der Nähe der Eindüsepositionen: A in der dichten unteren Zone bzw. A* in der dünnen oberen Zone in rot markiert. Die Zonen mit kornverkleinernden Mechanismen sind in blau dargestellt und bestehen aus der gasverteilenden Zone, dem Rest des ZWS-Risers und dem Zyklon.

4.2 Abschätzung der Strömungsmechanik im ZWS-Riser

Um detailliertere Aussagen über den Granulationsprozess zu ermöglichen, ist es notwendig, die Zone im Riser zu charakterisieren, in der lokal die Granulation auftritt. Hierfür muss die Strömungsmechanik der ZWS mit der Tropfenverdampfung sowie der Partikelbildung und dem Trocknen der Partikel gekoppelt werden. Das Ergebnis ist eine Abschätzung der Eindringtiefe der Tropfen bzw. der oberflächenfeuchten Partikeln längs der vertikalen Achse des Risers in die Gas-Feststoffströmung.

Es wird davon ausgegangen, dass eine Agglomeration/Granulation nur bei oberflächenfeuchten Partikeln auftreten kann.

Eine wesentlich genauere Berechnung des Eindringverhaltens könnte bei hinreichender Stoffdatenlage durch eine Simulation mittels gekoppelter CFD- / DPM-Software für ein dreiphasiges System erfolgen. Praktisch, insbesondere in Bezug auf die Rechenzeit wäre eine Umsetzung mittels CFPD-Code (CFPD Software LLC, Barracuda®), gekoppelt mit den Ergebnissen des Trocknungsverhaltens von einzelnen Zuckerlösungstropfen (*Seydel* [88]) sinnvoll. Diese Simulation ist aufwändig und allein aufgrund der Strömungsmechanik sehr rechenzeitintensiv. Die Populationsbilanz müsste als räumlich aufgelöste Interaktion einzelner Partikeln implementiert werden. Notwendige Interaktionsparameter sind aber nicht vorhanden bzw. nicht ohne weiteres zu bestimmen. Die Lösung eines entsprechenden Systems läuft in die Limitierung aktueller Rechner.

Die Problemstellung vereinfacht sich, wenn sichergestellt werden kann, dass die Partikeln bei entsprechender Eindüsungsposition in der jeweiligen Zone entweder in der dichten unteren Zone oder in der dünnen oberen Zone abtrocknen und nicht oberflächenfeucht die Zone wechseln oder in den Zyklon eintreten.

Deshalb soll das hier verwendete hydrodynamische Modell nur zur Abschätzung der Grenzen der Granulationszonen genutzt werden. Die Granulation kann dann als eindimensionale Populationsbilanz implementiert werden. Die Abschätzung der Feststoffvolumenkonzentration im Bereich der Eindüsungsstelle erfolgt anhand eines pseudo 2D-Modells mit einer horizontal homogenen Bodenzone und einer Kern-Ringströmung in der dünnen oberen Zone, die der Tatsache Rechnung trägt, dass bei zentrisch aufwärtsgerichteter Eindüsung die Feststoffvolumenkonzentration vor der Düse niedriger ist als in der Ringzone in Wandnähe. Das Modell basiert auf einer Kopplung des Modells nach WERTHER & WEIN [108] für die dichte Bodenzone mit dem Modell nach PUGSLEY [67] für die dünne obere Zone.

4.2.1 Ein prädiktives hydrodynamisches Modell für zirkulierende Wirbelschichten

Entsprechend der gemessenen Druckverluste bzw. Feststoffvolumenkonzentrationsprofile während der Experimente in der ZWS-Technikumsanlage hat sich gezeigt, dass ein entsprechendes Modell eine dichte Bodenzone, eine Übergangszone und eine voll ausgebildete obere dünne Zone abbilden muss.

Komplexe empirische Modelle für 3-D Berechnungen wurden zum Beispiel von LÜCKE [57] implementiert. Diese Modelle zeichnen sich durch ein von der blasenbildenden Wirbelschicht abgeleitetes Modell für die untere Dichtezone und ein Austragsmodell für die dünne obere Zone aus, die über eine 3D Massenbilanz gekoppelt werden.

Einfachere eindimensionale Modelle wurde zum Beispiel von KLETT [46] oder REDEMANN [73] implementiert. Hierbei erfolgte die Kopplung des Modells nach WERTHER & WEIN [108] für eine dichte Bodenzone mit dem Austragsmodell nach KUNII & LEVENSPIEL [56].

Das hier verwendete Modell stellt somit eine Erweiterung der o.g. Modelle dar, da in der dünnen oberen Zone Feststoffkonzentrationen und Geschwindigkeiten in Kern- und Wandzone unterschieden werden. Hierfür wird das Modell nach WERTHER & WEIN [108] für die Bodenzone mit dem Modell nach PUGSLEY [67] [68] für die dünne obere Zone gekoppelt.

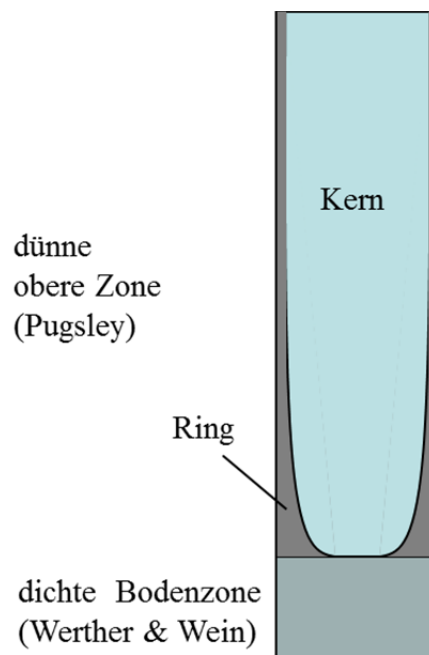


Abb. 4.2: Zonen entsprechend dem vorgeschlagenen Strömungsmechanikmodell

Die Eindringtiefe berechnet sich nach einfachen geometrischen Überlegungen aufgrund der vorliegenden Feststoffvolumenkonzentration und vernachlässigt den Impulseintrag durch die Düse. Die Trocknung geht vereinfacht von der Verdunstung des Wassers im

Granulat an der Oberfläche der Tropfen entsprechend ihrem Wasseranteil aus. Dies vernachlässigt zwar die tatsächlich vorliegenden verschiedenen Trocknungsabschnitte, sollte aber durch das Spreiten der Tropfen auf der wesentlich größeren Partikeloberfläche kompensiert werden.

Das vollständige Modell der Strömungsmechanik befindet sich in Appendix A, Kap. 10.1. Eine schematische Skizze der verschiedenen Zonen ohne Eindüsung befindet sich in Abb. 4.2. Das Modell besteht aus einer dichten unteren Zone mit über der Höhe variablem Feststoffvolumenanteil entsprechend WERTHER & WEIN [108] und einer Kern-Ringströmung nach PUGSLEY [67].

4.2.1.1 Validierung

Um das Modell zu validieren, wurden Messdaten der Feststoffvolumenkonzentration entlang der Riser-Achse für charakteristische Betriebszustände des ZWS-Granulators aus gemessenen Druckverlustprofilen berechnet und mit den aus dem Modell berechneten Werten abgeglichen.

Die entsprechenden Versuchsbedingungen sind Tab. 4.1 wiedergegeben. Der Vergleich von Simulation und Experiment ist in Abb. 4.3 wiedergegeben.

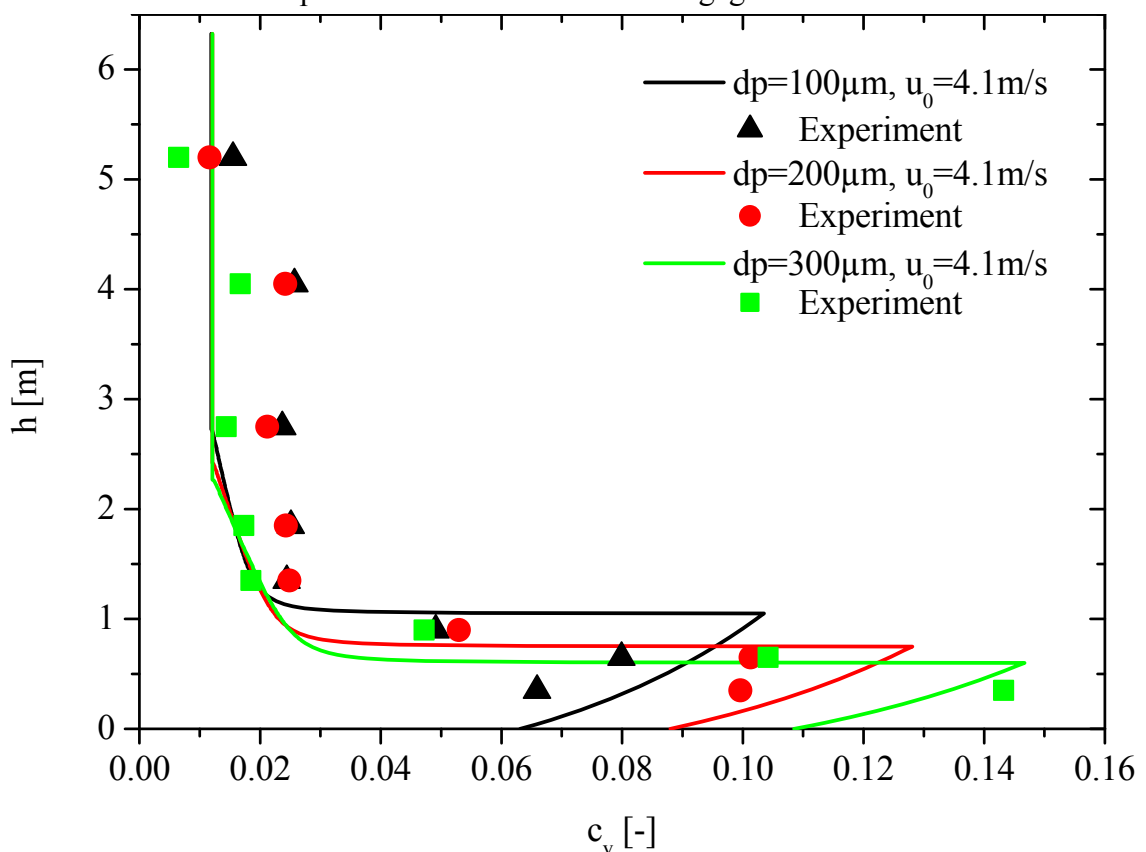


Abb. 4.3: Simulierte und experimentelle Feststoffvolumenkonzentrationsprofile (h Höhe über dem Gasverteilerboden, c_v mittlere Feststoffvolumenkonzentration über dem Rohrquerschnitt, berechnet aus den axialen Druckprofilen ohne Berücksichtigung von Beschleunigungseffekten. Die grüne, schwarze und rote Kurve liegen in der oberen dünnen Zone übereinander, da das Pugsleymodell hier korngößenunabhängig die Feststoffvolumenkonzentration vorhersagt.)

Das Modell tendiert zu einer Unterschätzung der Feststoffvolumenkonzentration in der oberen dünnen Zone und zu einer entsprechenden Überschätzung der Feststoffvolumenkonzentration in der unteren dichten Zone. Trotzdem lässt sich die Feststoffvolumenkonzentration in Höhe der jeweiligen Eindüsenstelle hiermit recht gut abschätzen. Neben der Feststoffvolumenkonzentration liefert das Modell Werte für die vertikalen Gas- und Feststoffgeschwindigkeiten. Entsprechende rotationssymmetrische 2D Felder sind beispielhaft in Appendix A, Kap. 10.1 wiedergegeben (Abb. 10.3).

Tab. 4.1: Versuchsbedingungen und Parameter für die Simulation

T	80	[°C]
ρ_{air}	1,2	[kg/m ³]
ν_{air}	$1,5 \cdot 10^{-5}$	[Pa s]
G_s	25	[kg/(m ² s)]
u_0	4,1 – 6,3	[m/s]
d_t	0,15	[m]
r_t	$D_t/2$;	[m]
h_t	6,325	[m]
d_p	$100 \cdot 10^{-6} - 300 \cdot 10^{-6}$	[m]
ρ_s	1586	[kg/m ³]
m_{bed}	4,5	[kg]

Die Eindüseposition befindet sich für alle betrachteten Betriebsfälle entsprechend den Experimentaldaten und den abgeleiteten Simulationsdaten jeweils eindeutig in der dichten unteren Zone A bzw. der oberen dünnen Zone A*.

Ausgewählte Resultate für die vorliegende Feststoffvolumenkonzentration c_v in der Bodenzone (0,6m über dem Verteilerboden) sowie in der Kernzone der oberen dünnen Zone (1,6m über dem Verteilerboden) sowie die dazugehörigen Gasgeschwindigkeiten und Schlupfgeschwindigkeiten des Feststoffs sind in Tab. 4.2 bzw. Tab. 4.3 wiedergegeben.

Tab. 4.2: Feststoffvolumenkonzentrationen c_v sowie Gas- und Feststoffschlupfgeschwindigkeiten für ausgewählte Betriebszustände 0,6m über dem Verteilerboden (Bodenzone)

u_0 [m/s]	d_p [μm]	v_g h=0,6m [m/s]	v_{sl} h=0,6m [m/s]	c_v h=0,6m [-]
4,1	100	4,5	0,48	0,091
4,1	200	4,7	0,62	0,122
4,1	300	4,8	0,69	0,147
5,2	100	5,6	0,51	0,074
5,2	200	5,8	0,68	0,100
5,2	300	5,9	0,77	0,121
6,4	100	6,8	0,54	0,061
6,4	200	7,0	0,73	0,083
6,4	300	7,1	0,84	0,101

Tab. 4.3: Feststoffvolumenkonzentrationen c_v sowie Gas- und Feststoffschlupfgeschwindigkeiten für ausgewählte Betriebszustände in der Kernzone 1,6m über dem Verteilerboden in der Rohrmitte

u_o [m/s]	d_p [μm]	v_g h=1,6m [m/s]	v_{sl} h=1,6m [m/s]	c_v h=1,6m [-]
4,1	100	4,7	1,9	0,017
4,1	200	4,7	1,9	0,017
4,1	300	4,7	2,0	0,017
5,2	100	5,9	3,2	0,018
5,2	200	5,9	2,7	0,018
5,2	300	5,9	2,7	0,018
6,4	100	7,3	5,8	0,024
6,4	200	7,3	3,9	0,024
6,4	300	7,3	3,7	0,024

4.2.2 Freie Weglänge bis zum Tropfen-Partikel-Kontakt

Die Eindringtiefe bis zum Tropfen-Partikel-Kontakt ist eine Zufallsgröße. Zur Ableitung des ZWS Granulations-Modells ist es relevant, den Bereich zu erfassen, in dem nahezu alle Tropfen Kontakt mit einem Partikel hatten. Diese maximale Eindringtiefe sei definiert als der Bereich nach der Eindüsungsstelle, in dem 99% der Tropfen Partikelkontakt gehabt haben ($w_n = 0,99$). Um diese Zone des Tropfenpartikelkontakts bzw. den Anteil abgetrockneter Tropfen vor dem Partikelkontakt zu charakterisieren, kann die Tropfeneindringtiefe in die Suspensionsphase abgeschätzt werden.

Im Folgenden wird hierfür der Ansatz nach RENSNER [74] verwendet, um die Wahrscheinlichkeit einer bestimmten Eindringtiefe in ein stationäres Wirbelbett abzuschätzen.

Es wird angenommen, dass die Partikel äquidistant kubisch angeordnet sind (siehe Abb. 4.4).

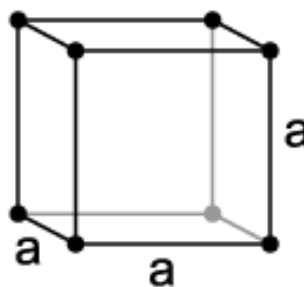


Abb. 4.4: Kubisch im Abstand a voneinander angeordnete Partikel

Aus der kubischen Anordnung ergibt sich mit dem Partikelvolumen

$$V_p = \frac{1}{6} \pi \cdot d_p^3 \quad (4.16)$$

und dem Würfelvolumen

$$V_c = a^3 \quad (4.17)$$

die Feststoffvolumenkonzentration

$$c_v = \frac{V_p}{V_c} = \frac{\pi \cdot d_p^3}{6 \cdot a^3} \quad (4.18)$$

Für den Gitterabstand a gilt dann mit dem Partikeldurchmesser d_p und der Feststoffvolumenkonzentration c_v :

$$a = \sqrt[3]{\frac{\pi}{6 \cdot c_v}} \cdot d_p \quad (4.19)$$

Bei der Sprühgranulation kann man davon ausgehen, dass der Partikeldurchmesser d_p signifikant größer als der Tropfendurchmesser d_d ist. Die Wahrscheinlichkeit des Partikel-Tropfen-Kontaktes in einer Schnittebene ergibt sich aus den projizierten Flächenanteilen entsprechend Abb. 4.5 zu:

$$w = \frac{\frac{\pi}{4} \cdot (d_p + 2d_d)^2}{a^2} \quad (4.20)$$

Befindet sich ein Tropfen in den hellblauen Bereichen mit einem Durchmesser von $(d_p + 2d_d)$ des Quadrats, so kommt es zumindest zu einer teilweisen Überschneidung von Partikel und Tropfen und damit zum Kontakt.

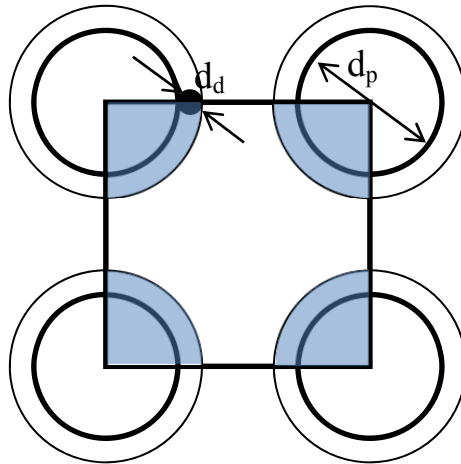


Abb. 4.5: Partikel- und Tropfenprojektionsflächen einer Ebene.

Die Wahrscheinlichkeit, dass der Tropfen eine Partikellage ungestört passiert, ist dementsprechend $(1-w)$.

Die Wahrscheinlichkeit \bar{w}_n dass ein Tropfen n Lagen ungestört passiert, also nicht trifft, ergibt sich aus der Multiplikation dieser Wahrscheinlichkeiten. Da jede Lage die gleiche Wahrscheinlichkeit hat, ergibt sich:

$$\bar{w}_n = (1 - w)^n \quad (4.21)$$

Eine weitere Negation des Ereignisses führt zu dem gewünschten Ergebnis, der Wahrscheinlichkeit w_n für den Tropfen-Partikel-Kontakt bis einschließlich n Lagen

$$w_n = 1 - (1 - w)^n \quad (4.22)$$

Einsetzen von (4.19) und (4.20) in (4.22) ergibt:

$$w_n = 1 - \left(1 - \frac{\frac{\pi \cdot (d_p + 2d_d)^2}{4}}{\left(\sqrt[3]{\frac{\pi}{6 \cdot c_v}} \cdot d_p \right)^2} \right)^n \quad (4.23)$$

Die maximale Eindringtiefe l ist definiert als die zu $w_n = 0,99$ gehörenden Anzahl an Partikelabständen n_{99} . Durch Auflösen von (4.23) nach n und Multiplikation mit a ergibt sich:

$$l = a \cdot n_{99} = \sqrt[3]{\frac{\pi}{6 \cdot c_v}} \cdot d_p \cdot \frac{\ln(1 - w_n)}{\ln \left(1 - \frac{\frac{\pi \cdot (d_p + 2d_d)^2}{4}}{\left(\sqrt[3]{\frac{\pi}{6 \cdot c_v}} \cdot d_p \right)^2} \right)} \quad (4.24)$$

mit $w_n = 0,99$.

Die Effekte von variierender Feststoffvolumenkonzentration, Partikelgröße und Tropfengröße im für den ZWS-Granulator relevanten Größenbereich sind im Folgenden dargestellt. In Abb. 4.6 sind Wahrscheinlichkeitsverläufe in Abhängigkeit der Eindringtiefe für Partikel mit 200 μm Durchmesser bei einer Feststoffvolumenkonzentration von 5 %, sowie einem variierenden Tropfendurchmesser von 10-50 μm wiedergegeben. Die maximale Eindringtiefe variiert zwischen 4mm und 8mm, wobei kleine Tropfen später Kontakt mit Bettpartikeln haben und dadurch tiefer ins Wirbelbett eindringen. Eine entsprechende Variation der Partikelgröße von 100-400 μm bei konstanter Tropfengröße von 20 μm und Feststoffvolumenkonzentration von 5 % ist in Abb. 4.7 wiedergegeben. Die maximale Eindringtiefe variiert zwischen 2 und 20 mm wobei gröbere Partikel ein tieferes Eindringen in das Wirbelbett erlauben. Die Variation der Feststoffvolumenkonzentration von 2-15 % bei konstanter Tropfengröße von 20 μm und einem Partikeldurchmesser von 200 μm ist in Abb. 4.8 wiedergegeben. Die maximale Eindringtiefe variiert zwischen 2 mm und 23 mm wobei eine höhere Feststoffvolumenkonzentration zu kürzeren Eindringtiefen führt.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass im ZWS-Granulator mit maximalen Eindringtiefen von wenigen Zentimetern zu rechnen ist.

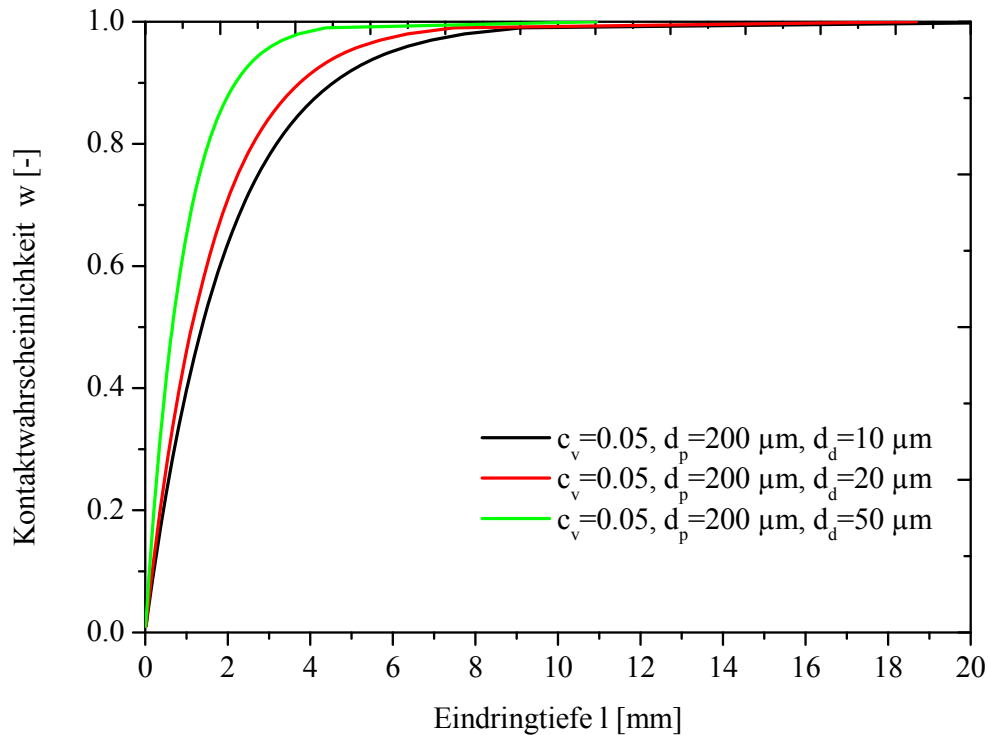


Abb. 4.6: Wahrscheinlichkeit eines Partikel-Tropfenkontakts in Abhängigkeit von der Entfernung l von der Düsenmündung für ein ruhendes Partikelsystem mit $c_v = 5 \%$, $d_p = 200 \mu\text{m}$, $d_d = 10\text{-}50 \mu\text{m}$

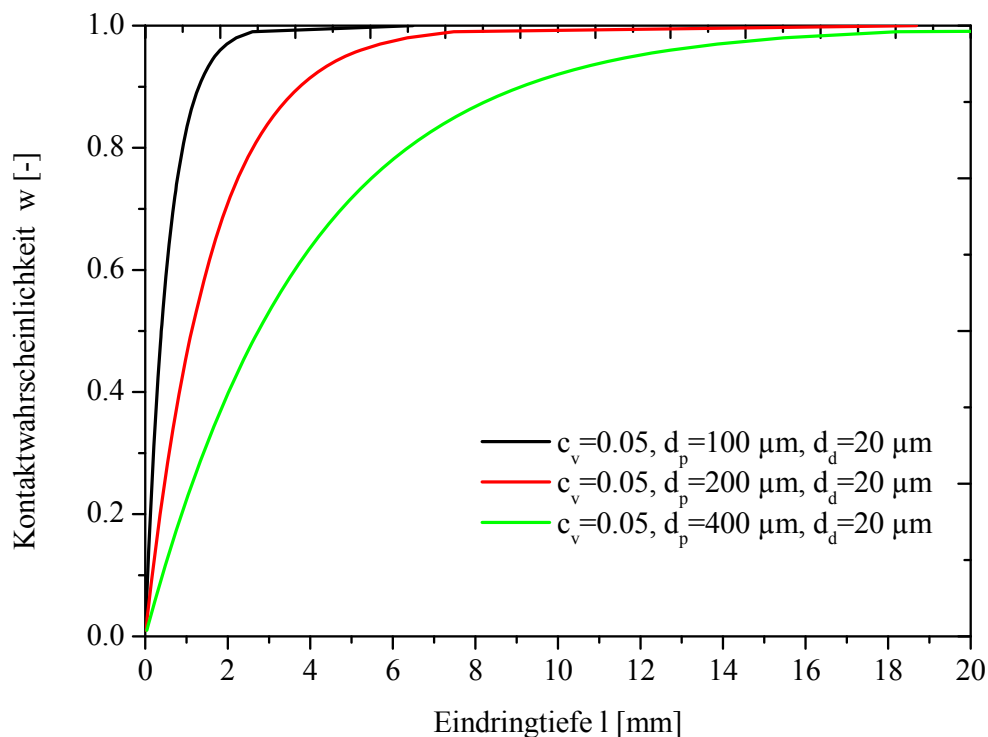


Abb. 4.7: Wahrscheinlichkeit eines Partikel-Tropfenkontakts in Abhängigkeit von der Entfernung l von der Düsenmündung für ein ruhendes Partikelsystem mit $c_v = 5 \%$, $d_p = 100\text{-}400 \mu\text{m}$, $d_d = 20 \mu\text{m}$

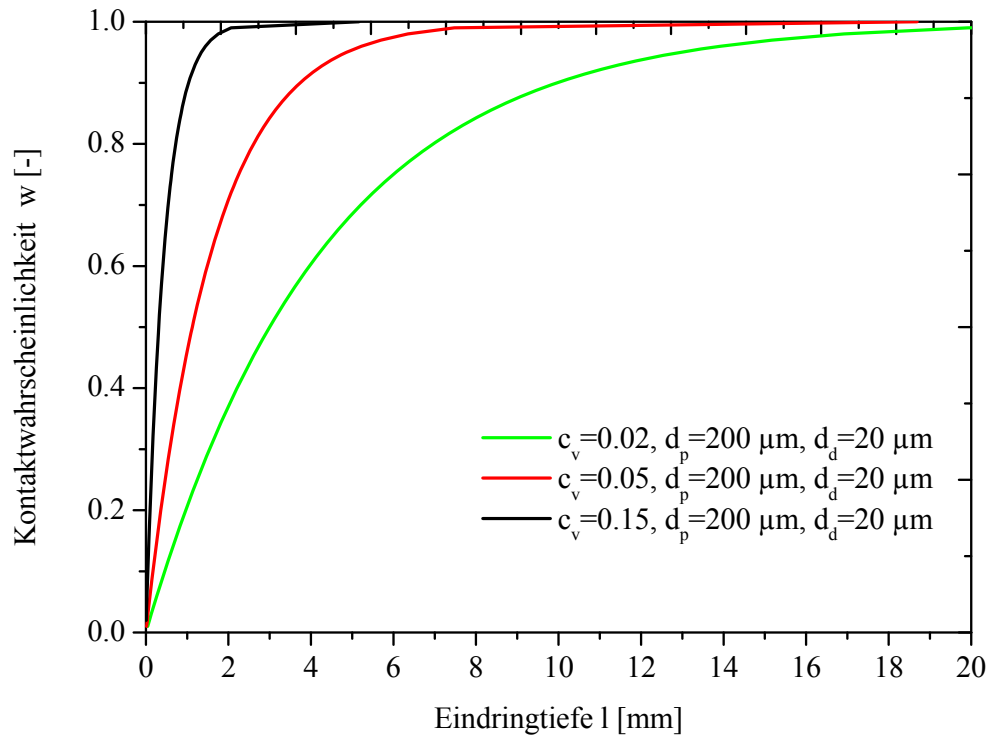


Abb. 4.8: Wahrscheinlichkeit eines Partikel-Tropfenkontakts in Abhängigkeit von der Entfernung l von der Düsenmündung für ein ruhendes Partikelsystem mit $c_v = 2-15\%$, $d_p = 200\ \mu\text{m}$, $d_d = 20\ \mu\text{m}$

4.2.3 Verdunstung des Wasseranteils am Tropfen

Wenn während ihres Weges im Inneren des Risers des ZWS-Granulators kein Tropfen-Partikel-Kontakt stattfindet, verdunstet der Wasseranteil der Saccharoselösung der Tropfen, und es bilden sich Granulate. Die Restfeuchte am Ende des Granulationsvorgangs ist niedrig ($< 1\%$), so dass von trockenem Material ausgegangen werden kann. Dieser Prozess ist komplex. Eine vollständige Beschreibung der Verfestigung und Trocknung eines Einzeltropfens über verschiedene Trocknungsabschnitte aus einer wässrigen Lösung kann in SEYDEL [88] gefunden werden.

Hier soll ein wesentlich einfacherer Ansatz verfolgt werden, der die Stofftransportvorgänge im Tropfen vernachlässigt und nur eine grobe Abschätzung bis zur Entstehung eines oberflächentrockenen Partikels gibt. Es wird davon ausgegangen, dass ein Einzeltropfen im Gasstrom abtrocknet und dass der Tropfen getrocknet ist, wenn er bei einer vertikal aufwärts gerichteten Eindüsung bei der zugrunde gelegten 60 Gew.-prozentigen Saccharoselösung 40 % seiner Masse als Wasser verloren hat.

Einerseits ist davon auszugehen, dass der Tropfen vorher oberflächentrocken ist, andererseits verzögert der letzte Trocknungsabschnitt in der Realität das Entweichen des Wassers deutlich. Dennoch sollte dieser Wert eine hinreichend genaue Abschätzung der Größenordnung der Trocknungsgeschwindigkeit ermöglichen.

Es kann davon ausgegangen werden, dass die Temperaturen am Tropfen deutlich unter der Siedetemperatur liegen, es also nur Verdunstung vorliegt und der Stofftransport gegenüber dem Wärmetransport der limitierende Mechanismus ist.

KRISCHER & KAST [48] haben gezeigt, dass die reale Oberflächentemperatur nur leicht von der Temperatur im Tropfen abweicht, wenn sich die Temperatur unterhalb der Siedetemperatur befindet. Entsprechend wird der Tropfen mit einer homogenen Temperatur angenommen. Das vollständige Modell mit allen Annahmen findet sich in Appendix A, Kap. 10.2.

Das Modell erlaubt einen Vergleich der zurückgelegten Wegstrecke im Riser des ZWS-Granulators mit der Wegstrecke, nach der es zu einem Tropfen Partikel-Kontakt kommt und damit eine Abschätzung, ob oberflächentrockene Tropfen („Overspray“) entstehen. Unter der Annahme, dass ein Partikel Tropfen-Kontakt zu einem Spreiten des Tropfens auf dem Partikel führt, kann davon ausgegangen werden dass dies Partikel schneller als ein einzelner Tropfen abtrocknet. Dies ist der Fall, da der Partikeldurchmesser im Schnitt um mehr als eine Größenordnung größer ist und dementsprechend auch die angebotene Oberfläche für den notwendigen Stofftransport. Es lässt sich somit abschätzen, ob dieser Tropfen die dichte untere bzw. dünne obere Zone des Risers des ZWS-Granulators oberflächenfeucht verlässt.

In Abb. 4.9 sind die Ergebnisse für Wirbelgasgeschwindigkeiten von 4,1 m/s und 6,4 m/s sowie Tropfengrößen von 20 μm und 50 μm wiedergegeben. Die Simulation geht von Tropfen-Eintrittsgeschwindigkeiten von ca. 200 m/s in die feststofffrei angenommene Gasströmung aus. Dort werden die Tropfen auf ihre Endgeschwindigkeit kurz unterhalb der Riser-Gasgeschwindigkeit abgebremst. Hierbei verlieren die Saccharoselösungstropfen Wasser und schrumpfen, bis sie den Wasseranteil von 40 % der Ausgangsmasse verloren haben. Aufgetragen ist der Durchmesser über der in der Strömung zurückgelegten Wegstrecke. Zusätzlich sind die Eindringtiefe in die Suspensionsphase nach dem Modell aus Kapitel 4.2.2 für die dünne obere und die dichte untere Zone des ZWS-Risers eingetragen. Es ist deutlich zu erkennen, dass die 50 μm -Tropfen in dem betrachteten Gasgeschwindigkeitsbereich von 4,1 bis 6,4 m/s auf einer Wegstrecke zwischen 0,7 und 1,1 m abtrocknen. Die maximalen Eindringtiefen bis zum Kontakt mit dem ersten Partikel sind jeweils für die dichte untere Zone und die dünne obere Zone eingezeichnet. Es ist ebenfalls ersichtlich, dass in allen betrachteten Fällen der oberflächenfeuchte Tropfen auf Partikel trifft.

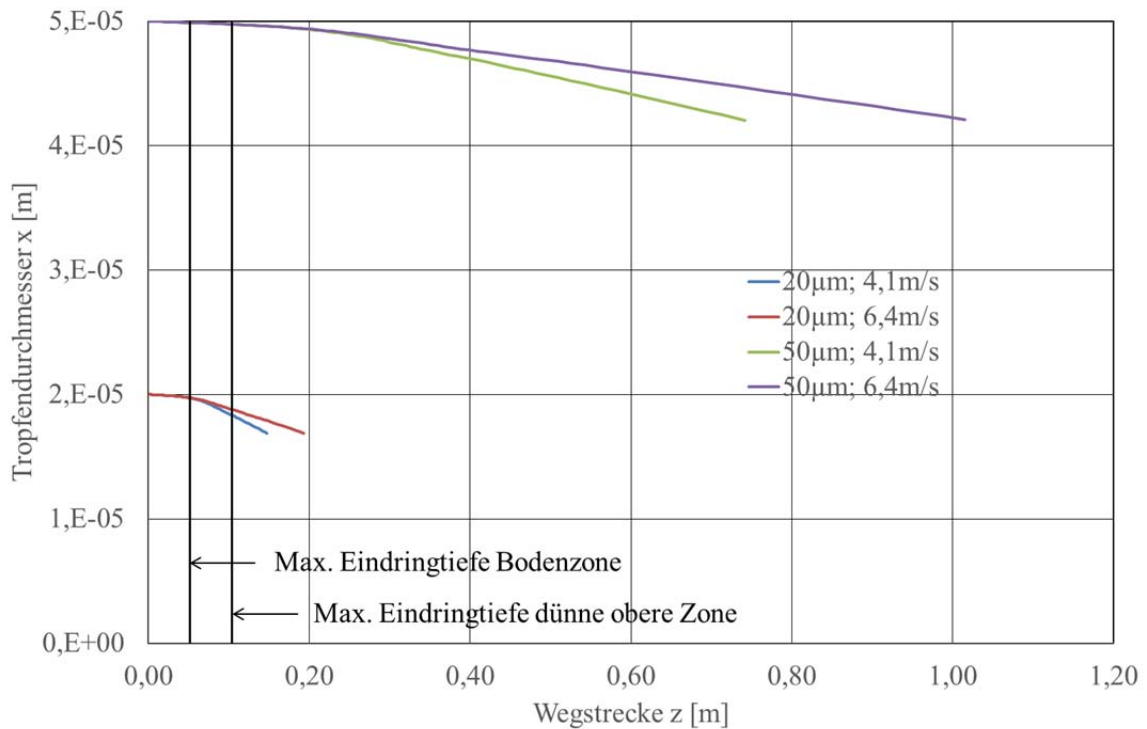


Abb. 4.9: Entwicklung des Tropfendurchmessers bis zur vollständigen Verdunstung des Wasseranteils (40 % der anfänglichen Tropfenmasse) auf dem Weg entlang der Längsachse des Risers für verschiedene Wirbelgasgeschwindigkeiten und Tropfendurchmesser.

4.2.4 Abschätzung der Sprühzonen, Granulationszonen

Ein Vergleich der Ergebnisse der Kapitel 4.2.1 und 4.2.2 zeigt, dass praktisch alle Tropfen bei ihrem ersten Feststoffkontakt noch oberflächenfeucht sind (vgl. Abb. 4.9) und der Kontakt innerhalb weniger Millimeter in der dichten Bodenzone bzw. innerhalb weniger Zentimeter innerhalb der dünnen oberen Zone erfolgt. Außerdem wurde gezeigt, dass alle Tropfen bzw. alle Partikeln innerhalb von max. 1-2 m also vor dem Erreichen des oberen Endes des Risers abgetrocknet sind. Diese Abschätzung gilt für den gesamten untersuchten Betriebsbereich des ZWS-Granulators mit Partikelgrößen von 100-300 µm und Sprühdichten von 40-110 g/min 60 Gew.-% wässriger Saccharoselösung, Dispergiertgasströmen von 1-4 Nm³/h, die zu Tropfengrößen von bis max. 50 µm führen, sowie Gasgeschwindigkeiten von 4,1 bis 6,4 m/s und Eindüsungspositionen auf 0,6 m bzw. 1,6 m oberhalb des Verteilerbodens. Eine Skizze der verschiedenen Sprühzonen, Trocknungszonen bzw. Granulationszonen ist in Abb. 4.10 wiedergegeben.

Je nach Eindüsungsposition kann eine Populationsbilanz entweder für die dichte untere Zone oder die dünne obere Zone aufgestellt werden, die jeweils repräsentativ für das vorherrschende Granulationsverhalten in der entsprechenden Zone ist. Insbesondere lassen sich somit die lokalen Feststoffvolumenkonzentrationen dem Granulationsverhalten zuordnen.

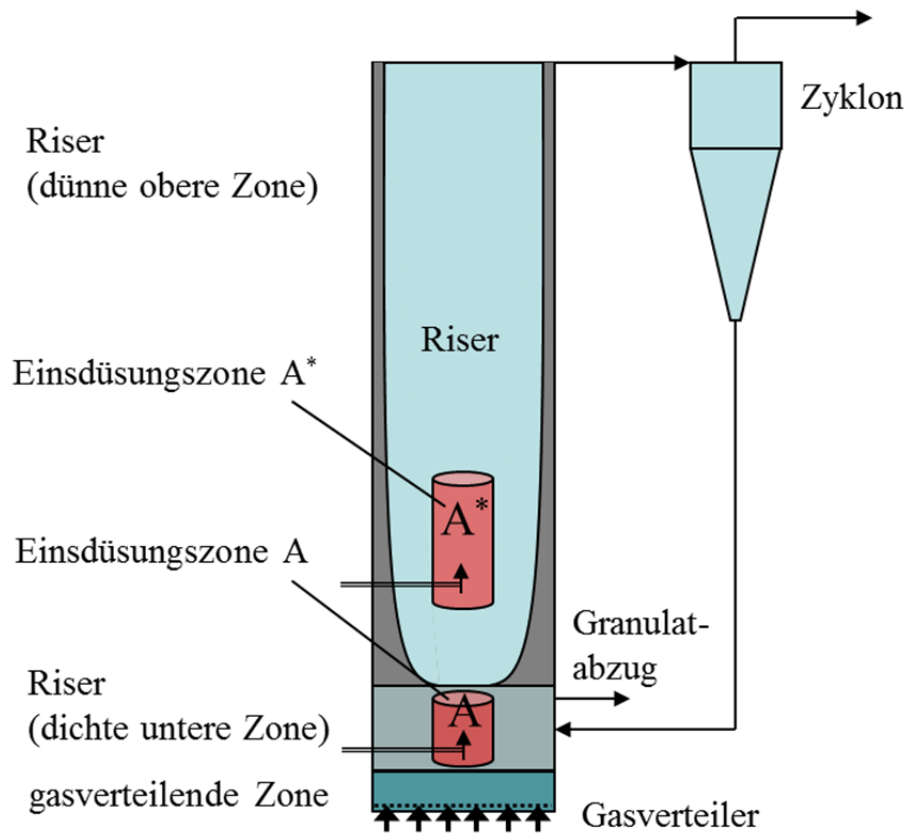


Abb. 4.10: Sprühzonen, Granulationszonen im Riser der ZWS

4.3 Numerische Simulation / Populationsbilanzmodell

Da das Granulationsverhalten in der Sprühzone experimentell nicht direkt beobachtet werden kann, wird ein einfaches Populationsbilanzmodell für Abrieb, Granulation sowie Bruch und Agglomeration in den charakteristischen Zonen der ZWS formuliert, das auf dem Hounslow-Ansatz (vgl. Kapitel 3.4) basiert und in Anlehnung an z. B. HOUNSLOW ET AL. [92] aufgebaut ist.

Das lokale Agglomerationsverhalten in der Sprühzone des ZWS-Sprühgranulators wird nun über das Modell bestimmt. Da die dominierenden destruktiven Mechanismen mit dem zweiten Teil der Arbeit quantifiziert sind und das globale Granulationsverhalten aus dem ersten Teil der Arbeit bekannt ist, kann das Agglomerationsverhalten in der Sprühzone durch Parametervariation angepasst werden und somit das Gesamtsystem abgebildet werden.

4.3.1 Populationsbilanzmodell zur Granulation in der ZWS

Das zu simulierende System ist eine zirkulierende Wirbelschicht bestehend aus einem Riser mit einer Sprühzone und einem Zyklonsystem, über das der abgeschiedene Feststoff über ein Fallrohr und einen Siphon in die Bodenzone des Risers rezirkuliert wird. Als relevante, den Korngrößenhaushalt beeinflussende Systemelemente wurden die Sprühzone, der Riser, das Zyklonsystem sowie der Materialabzug identifiziert (vgl. Abb. 4.10).

In der Populationsbilanz gilt für die Anzahldichteverteilung $n(v_p)$ der Partikelvolumina v_p :

$$\begin{aligned} \frac{\partial n(t, v_p)}{\partial t} = & \\ & \frac{\partial (G(t, v_p) \cdot n(t, v_p))}{\partial v_p} \\ & + \dot{B}_{Agg}(t, v_p) \\ & - \dot{D}_{Agg}(t, v_p) \\ & + \dot{B}_{Break}(t, v_p) \\ & - \dot{D}_{Break}(t, v_p) \\ & + \dot{Q}(t, v_p) \cdot n(t, v_p) \end{aligned} \quad (4.25)$$

Hierbei repräsentiert der Term auf der linken Seite die kumulierte Anzahl an Partikeln die im Zeitintervall ∂t im Intervall $(v_p, v_p + \partial v_p)$ erscheinen oder dieses verlassen.

Der erste Term auf der rechten Seite beschreibt die Anzahl an Partikeln, die in das Intervall $(v_p, v_p + \partial v_p)$ aufgrund von Schalenwachstum oder Abrieb eintreten bzw. dieses verlassen.

Der zweite Term auf der rechten Seite, ein „birth term“ beschreibt das Eintreten von Partikeln in das Intervall $(v_p, v_p + \partial v_p)$ aufgrund von Agglomeration. Der dritte Term auf der rechten Seite, ein „death term“, beschreibt das Verlassen von Partikeln des Intervalls $(v_p, v_p + \partial v_p)$ aufgrund von Agglomeration.

Analog beschreibt der vierte Term auf der rechten Seite das Eintreten von Partikeln in das Intervall $(v_p, v_p + \partial v_p)$ aufgrund von Bruch. Der fünfte Term auf der rechten Seite beschreibt entsprechend das Verlassen von Partikeln des Intervalls $(v_p, v_p + \partial v_p)$ aufgrund von Bruch.

Der sechste Term auf der rechten Seite ist ein allgemeiner Quellen- oder Senkenterm, in dem Effekte wie das Abführen von Partikeln aufgrund eines Partikelabzugs oder der Partikelaustrag über den Zyklonoberlauf aus dem Intervall $(v_p, v_p + \partial v_p)$ abgebildet werden. Alternativ kann die Partikelentstehung im Intervall $(v_p, v_p + \partial v_p)$ durch Keimzugabe oder „Overspray“ abgebildet werden.

(Saccharose-) Masse wird über die Zweistoffdüse in die Sprühzone im Riser eingebracht. In Kapitel 4.2 wurde durch Abschätzung des Strömungszustandes und Abschätzung der Verdampfung des Wasseranteils abgeleitet, dass die Einbringung der Saccharosemasse bzw. das Abtrocknen des Wasseranteils jeweils in der dichten unteren Zone oder der dünnen oberen Zone abgeschlossen ist und dass praktisch jeder Tropfen auf ein Partikel trifft und auf diesem spreitet. „Overspray“ wird praktisch nicht generiert und ließ sich auch in den jeweiligen Proben aus dem Versuchen nicht nachweisen. Demnach kann die Massenzunahme in der Populationsbilanz durch einen Wachstumsterm G nach z.B. HEINRICH [28] entsprechend (4.26) mit dem Massenanteil $\zeta = 0$ abgebildet werden.

$$G_v = \frac{\dot{m} \cdot (1 - \zeta)}{\rho_p} \frac{A_p(t, v_p)}{\int_0^\infty A_p(t, v_p) dn(t, v_p)} \quad (4.26)$$

Ein entsprechender Quellterm aufgrund von Keimbildung durch Overspray entsprechend (4.27) entfällt:

$$\dot{B}_{i,Nuc} = \zeta \cdot \dot{m} \cdot \frac{\Delta Q_{3,Nuc,i}}{\rho_p \cdot \bar{v}_{p,i}} \equiv 0 \quad (4.27)$$

In der Granulationszone tritt als zusätzlicher Effekt Agglomeration auf, der über den entsprechenden Birth- und Death-Term (4.28)(4.29) in der Populationsbilanz abgebildet wird.

$$\dot{B}_{Agg}(t, v_p) = \frac{1}{2} \cdot \int_{u_p=0}^{v_p} \beta(t, v_p - u_p, u_p) \cdot n(t, v_p - u_p) \cdot n(t, u_p) du_p \quad (4.28)$$

$$\dot{D}_{Agg}(t, v_p) = n(t, v_p) \cdot \int_{u_p=0}^{\infty} \beta(t, v_p, u_p) \cdot n(t, u_p) du_p \quad (4.29)$$

In Anlehnung an GOLDSCHMIDT [24] wird ein auf der „equipartition of kinetic energy“ basierender Agglomerationskernel, der in ähnlicher Form auch in HOUNSLOW ET AL. [92] Anwendung findet, eingesetzt:

$$\beta(t, v_p, u_p) = \beta_0 \left(\sqrt[3]{v_p} + \sqrt[3]{u_p} \right)^2 \cdot \sqrt{\frac{1}{v_p} + \frac{1}{u_p}} \quad (4.30)$$

Durch die Zweistoffdüse wird kontinuierlich (Saccharose-) Masse zugeführt. Die gleiche Masse wird dem System entzogen. In Experiment geschieht dies quasikontinuierlich durch die Probennahme in der Bodenzone des ZWS-Risers. Im Modell wird dies durch eine kontinuierliche, nicht klassierende Senke der Form

$$N_{out,i} = \dot{m} \cdot \frac{\Delta Q_{3,i}(t)}{\rho_p \cdot \bar{v}_{p,i}} \quad (4.31)$$

angenähert.

Die Experimente zum Bruch und Abrieb in Kapitel 6.2 zeigen, dass Bruch im Riser im Vergleich zu Bruch im Zyklon vernachlässigt werden kann.

Die Abriebsraten in Zyklon und Riser bewegen sich in der gleichen Größenordnung und zeigen in der Tendenz das gleiche Verhalten bei einer Änderung der Betriebsparameter des ZWS-Granulators, sodass sie zusammengefasst werden können. Ein Vergleich der so gemessenen Abriebsraten mit den Wachstumsraten aufgrund der Eindüsung zeigt, dass die Größenänderung aufgrund von Abrieb klein gegenüber der Größenänderung aufgrund der Eindüsung ist.

Durch den Abrieb werden Feinstpartikel erzeugt, die allerdings durch den Effekt der Strähnenabscheidung im primären Zyklon für viele Zyklondurchläufe im System gehalten werden. Nach jedem Durchlauf durch den Zyklon passiert das abgeschiedene Material die Sprühzone im Riser. Es kann nun angenommen werden, dass die Feinstpartikel beim erneuten Passieren der Sprühzone durch oberflächenfeuchte Partikel „eingefangen“ werden. Die abgeriebene Masse wird also wieder im Schalenwachstum aufgefangen. Diese Modellannahme ist gerechtfertigt, da die abgeriebenen Feinstpartikel nicht als individuelle Partikel sondern als Schrumpfung der Mutterpartikel entsprechend einem negativen Massenstrom in (4.26) abgebildet sind.

Im Zyklon treten einerseits Bruch und Abriebeffekte auf, andererseits wird Feingut in geringem Umfang ausgetragen. Die Experimente am Zyklonteststand haben Bruch als

den dominanten Mechanismus zur Kornzerkleinerung sowohl im Zyklon als auch im gesamten ZWS-System identifiziert. Bruch in anderen Bereichen des ZWS-Granulators kann vernachlässigt werden. Der Bruch wird über die entsprechenden Birth- und Death-Terme (4.32) und (4.33) in der Populationsbilanz abgebildet. Hierbei wird in erster Näherung binärer Bruch angenommen. Die Beschreibung der Breakage Selection Rate erfolgt in Kapitel 6.2.4.

$$\dot{B}_{Break}(t, v_p) = \int_{u_p=v_p}^{\infty} b(v_p, u_p) \cdot S(t, u_p) \cdot n(t, u_p) du_p \quad (4.32)$$

$$\dot{D}_{Break}(t, v_p) = S(t, v_p) \cdot n(t, v_p) \quad (4.33)$$

Der Verlust von Feinstpartikeln über das zweistufige Zyklonsystem könnte über ein entsprechendes Austragsmodell abgeschätzt werden. In erster Näherung wird der Abscheidegrad des Zyklonsystems aber mit 1 angesetzt. Dies ist insoweit als akzeptable Vereinfachung anzunehmen, als die ausgetragenen Partikel nach den Zyklonmodellen von MUSCHELKNAUTZ [61] mit Modifikation nach REDEMANN [73] Austrag nur in Korngrößen <10µm vorhersagen. Diese Partikel werden im Modell nicht als Einzelpartikel sondern als Massenstrom abgebildet. Wird dieser Massenstrom jetzt über die Zyklone ausgetragen und nicht über Schalenwachstum über den Parameter G eingebunden, so ergibt dies nur einen vernachlässigbar kleinen Einfluss auf die Korngrößenentwicklung, da die Verlustströme sehr viel kleiner als die Abriebsströme sind und die Abriebsströme (wie in Kapitel 6.2 dargestellt) nur geringen Einfluss auf die Entwicklung der Korngrößenverteilung haben.

4.3.2 Simulation der Versuche / Numerik

In Gleichung (4.25) sind die Parameter \dot{B}_{Nuc} , $(\dot{B}_{Break,i} - \dot{D}_{Break,i})$ und $n_{out}(v_p)$ aus den Abriebsmessungen, den Bruchmessungen sowie den Betriebsparametern des ZWS-Granulators bekannt. Nur der Agglomerationskernel aus (4.30) als repräsentative Größe für das lokale Agglomerationsverhalten in der Sprühzone ist unbekannt.

Dieser wird durch Parametervariation beim Fitting der Simulation an die Messdaten aus den Versuchen im ZWS-Granulator (Kapitel 6.1) bestimmt.

Das Fitting an die Messdaten erfolgte durch Minimierung der Fehlernorm (4.34) aus den gemessenen und simulierten mittleren Durchmessern x_{50} der entsprechenden Partikelgrößenverteilungen,

$$\left(x_{50,exp}(t_i) - x_{50,sim}(t_i) \right)^2 = \min \quad (4.34)$$

Das Modell wurde in Matlab implementiert, die Programmstruktur ist in Abb. 4.11 wiedergegeben. Die entsprechenden Diskretisierungsschemata befinden sich in Appendix C Kap. 12.1.

Die rechte Seite der Differentialgleichung (4.25) wurde nach dem von HOUNSLOW und HILL (siehe Kapitel 3.4) vorgeschlagenen Schema auf einem logarithmischen Gitter mit Stützstellen für Partikelgrößen zwischen $10\mu\text{m}$ und $1000\mu\text{m}$ auf Volumenbasis diskretisiert mit:

$$v_{p,i+1} = 2^{1/q} v_{p,i} \text{ und } q = 2 \quad (4.35)$$

Die rechte Seite wird mit einem Lösungsalgorithmus für steife Probleme (Matlab ode15s()) integriert, hierbei ist die Option, negative Werte für $n(t)$ zu unterbinden, für alle Größenklassen aktiviert. Die Optimierung bzw. Minimierung der Norm (4.34) wird mittels des Simplex Algorithmus (Matlab fminsearch()) durchgeführt. Die Diskretisierung der einzelnen Terme der rechten Seite ist in Appendix C Kap. 12.1 wiedergegeben.

Gleichung (4.25) gilt für die Anzahldichteverteilung $n(t, v_p)$ der Partikelvolumina v_p bzw. der Partikelmassen. Gemessen und in den Ergebnissen dargestellt wird jeweils die Massendichteverteilung $q_3(t, d_p)$ der Partikeldurchmesser d_p .

Die Überführung der Verteilungen erfolgt jeweils durch Überführung der diskretisierten ΔQ_3 Verteilung im Intervall d_i bis d_{i+1} in die diskretisierte Anzahlverteilung ΔN_i auf dem Intervall $v_{p,i} = \frac{\pi}{6} d_i^3$ bis $v_{p,i+1} = \frac{\pi}{6} d_{i+1}^3$ mit dem mittleren Volumen \bar{v}_{pi} im Intervall entsprechend

$$N_i = \frac{\Delta Q_{3,i} \cdot V_{ges}}{\bar{v}_{p,i}} \quad (4.36)$$

Analog erfolgt die Rücktransformation nach der Populationsbilanzberechnung.

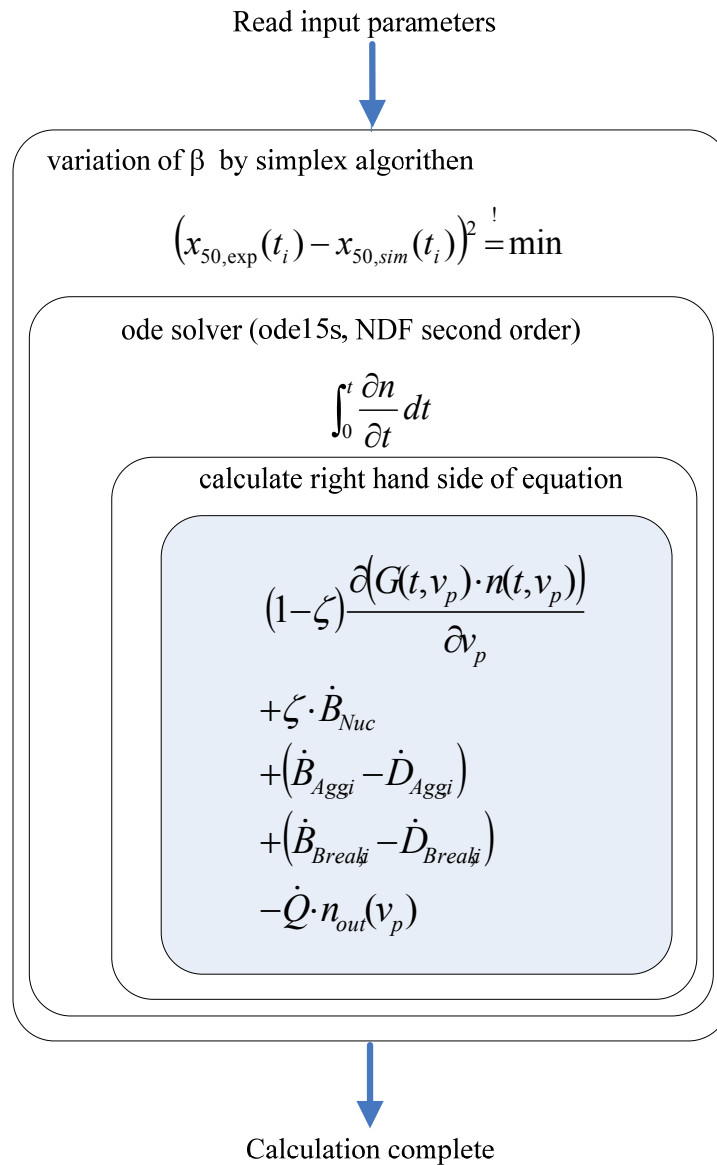


Abb. 4.11: Schematische Skizze des Programmablaufs

5 Material und Methoden

5.1 Phänomenologische Untersuchung zur Granulation in der zirkulierenden Wirbelschicht

In diesem Teil der Arbeit werden Experimente in einem ZWS-Granulator im Technikumsmaßstab betrachtet. Saccharose-Partikel und eine 60 Gew.-% wässrige Saccharoselösung werden als Modellsystem verwendet. Es wird der Einfluss verschiedener Parameter, insbesondere der Gasgeschwindigkeit im Riser, der vorgelegten Bettmasse, der Eindüsungsposition im Riser, des Massenstroms der eingedüsten Lösung sowie deren Tropfengrößenverteilung auf die verschiedenen Betriebszustände und die entstehenden Granulate bzw. Agglomerate betrachtet.

5.1.1 Experimenteller Aufbau zur Granulation / Agglomeration in der ZWS

Die Experimente zum Granulations- bzw. Agglomerationsverhalten in der Zirkulierenden Wirbelschicht wurden im Technikumsmaßstab durchgeführt. Eine schematische Skizze des Versuchsaufbaus ist in Abb. 5.1 dargestellt.

Die Anlage besteht aus einem 6,3 m hohen Riser mit einem Innendurchmesser von 150 mm, der über einen Auslauf in T-Geometrie verfügt, an den sich eine zweistufige Zyklonabscheidung anschließt. Der Unterlauf des Primärzyklons geht in ein Fallrohr von 100 mm Innendurchmesser über, das in einem Siphon endet. Über den Siphon wird der Feststoff kontinuierlich in die Bodenzone des Risers rezirkuliert.

Ca. 1000 mm unterhalb des Primärzyklons befindet sich ein durch Wellschlauch entkoppeltes 800 mm langes Rohrsegment, das auf einer Wägezelle gelagert ist. Das Rohrsegment kann über eine Klappe an seinem unteren Ende manuell geschlossen werden. Die Vorrichtung wird zur Bestimmung der Massenumlaufzeit G_s benutzt, indem die Klappe im laufenden Betrieb geschlossen wird und die Gewichtszunahme der entkoppelten Sektion über die Kraftaufnehmer aufgezeichnet wird. Alternativ zur Wägeeinheit kann ein einfaches Rohrsegment ohne Klappe eingebaut werden. In dieser Konfiguration wird die Neigung zum Aufbau von Feststoffbrücken über der Klappe, insbesondere bei nicht vollständig getrockneten Partikeln vermieden.

Der Unterlauf des Sekundärzyklons ist in 80 mm Innendurchmesser ausgeführt. Das sich anschließende Fallrohr mit ebenfalls 80 mm Innendurchmesser geht in ein transparentes Schlauchsegment über, an das sich ein Schleusensystem, bestehend aus zwei Kugelhähnen mit einem Innendurchmesser von 100 mm in einem Abstand von 200 mm, anschließt. Über diese Schleuse kann der Feststoff diskontinuierlich auf einer Höhe von ca. 3000 mm unterhalb des Unterlaufs des Primärzyklons in das Fallrohr des Primärzyklons zurückgeführt werden. Die transparente Ausführung des Fallrohrs des Sekundärzyklons ermöglicht über eine angebrachte Skalierung das Ablesen des Volumens der absatzweise rezirkulierten Feststoffmasse. Zum Befüllen der Anlage

kann das Schleusensystem direkt am Fallrohr des Primärzyklons getrennt werden und Feststoff über den offenen Flansch in das System eingebracht werden. 100 mm oberhalb des Gasverteilerbodens der Risersektion befindet sich ein Feststoffabzug, der als Stutzen mit 15 mm Innendurchmesser ausgeführt ist.

Eine Detailzeichnung des vollständigen Feststoff-Kreislaufs ist in Abb. 5.2 wiedergegeben, ein vergrößerter Ausschnitt der unteren Risersektion in Abb. 5.3.

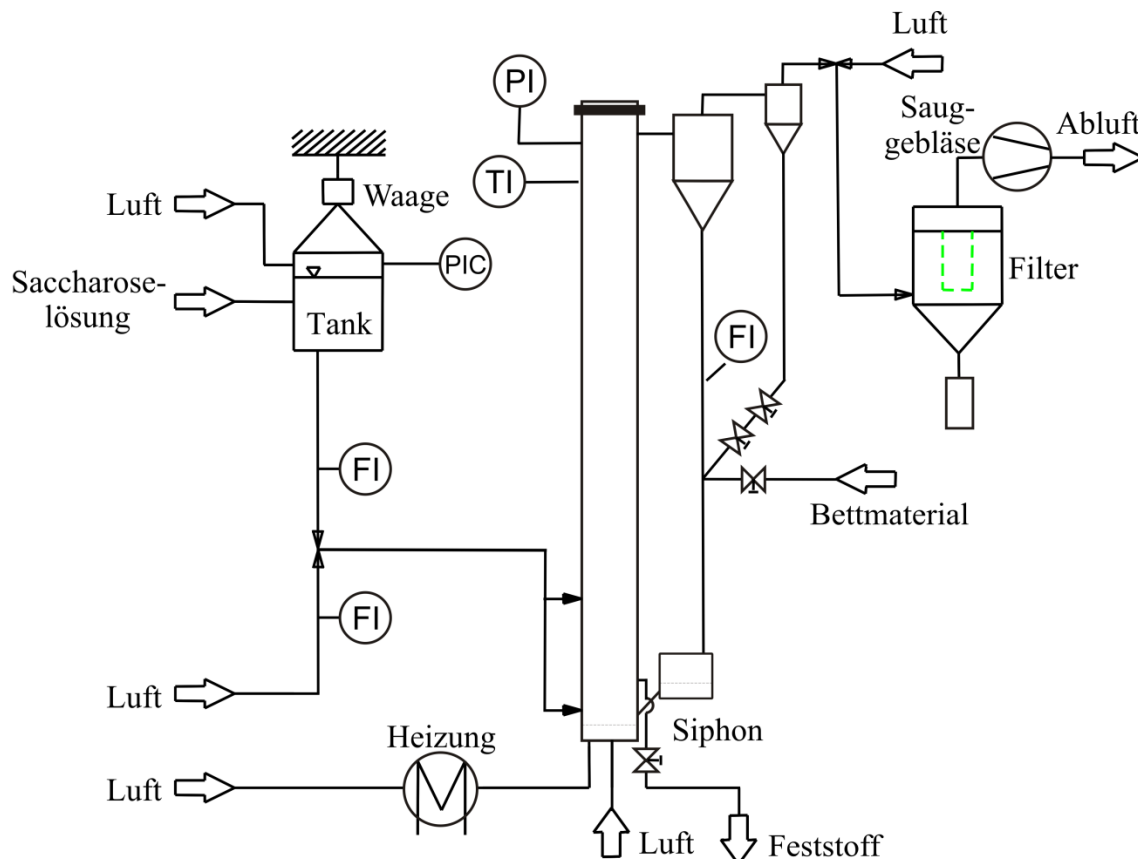


Abb. 5.1: Schematische Skizze des Versuchsaufbaus zur Granulation in der ZWS

Als Wirbelgas für den Riser wird Umgebungsluft eingesetzt, deren Temperatur direkt vor dem Risereintritt mit einem Lufterhitzer eingestellt wird. Für die Begasung des Siphons wurde entfeuchtete Luft mit Raumtemperatur als Fluidisationsgas verwendet. Nach dem Sekundärzyklon folgt das Abgassystem, bestehend aus einem Filter und einem nachgeschalteten Sauggebläse. Dem Abgasstrom wurde direkt hinter dem Sekundärzyklon Umgebungsluft mit Umgebungstemperatur zugegeben, um die Taupunkttemperatur herabzusetzen und damit eine Kondensation von Wasserdampf in den Filtern zu vermeiden. Durch das Sauggebläse ist ein Betrieb der Anlage unter leichtem Unterdruck möglich, sodass der Druck oberhalb des Gasverteilers des Risers durch Variation der Gebläsedrehzahl auf Umgebungsdruck eingestellt werden kann.

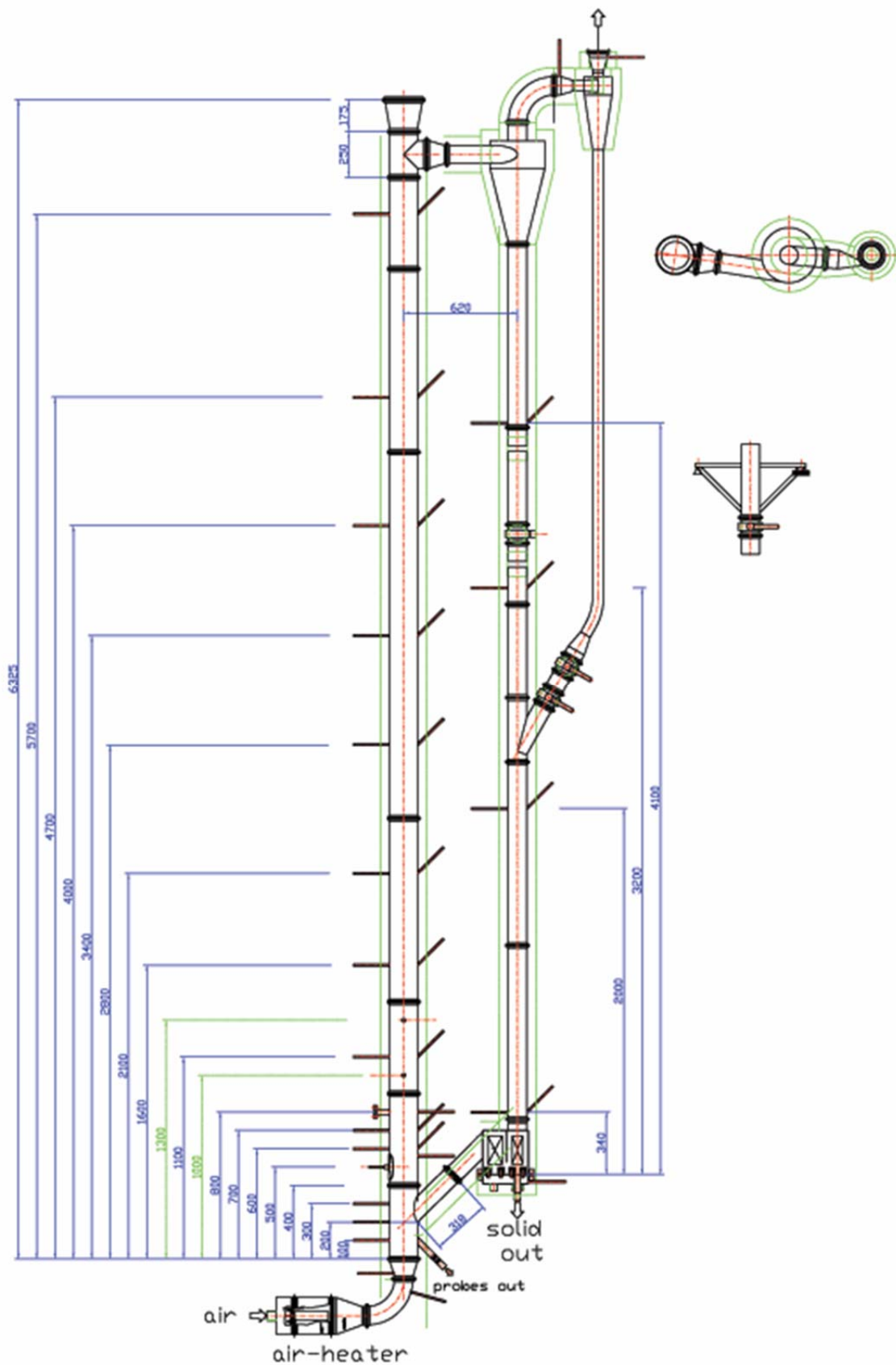


Abb. 5.2: Aufstellungszeichnung des Feststoff-Kreislaufs mit 150 mm Riser

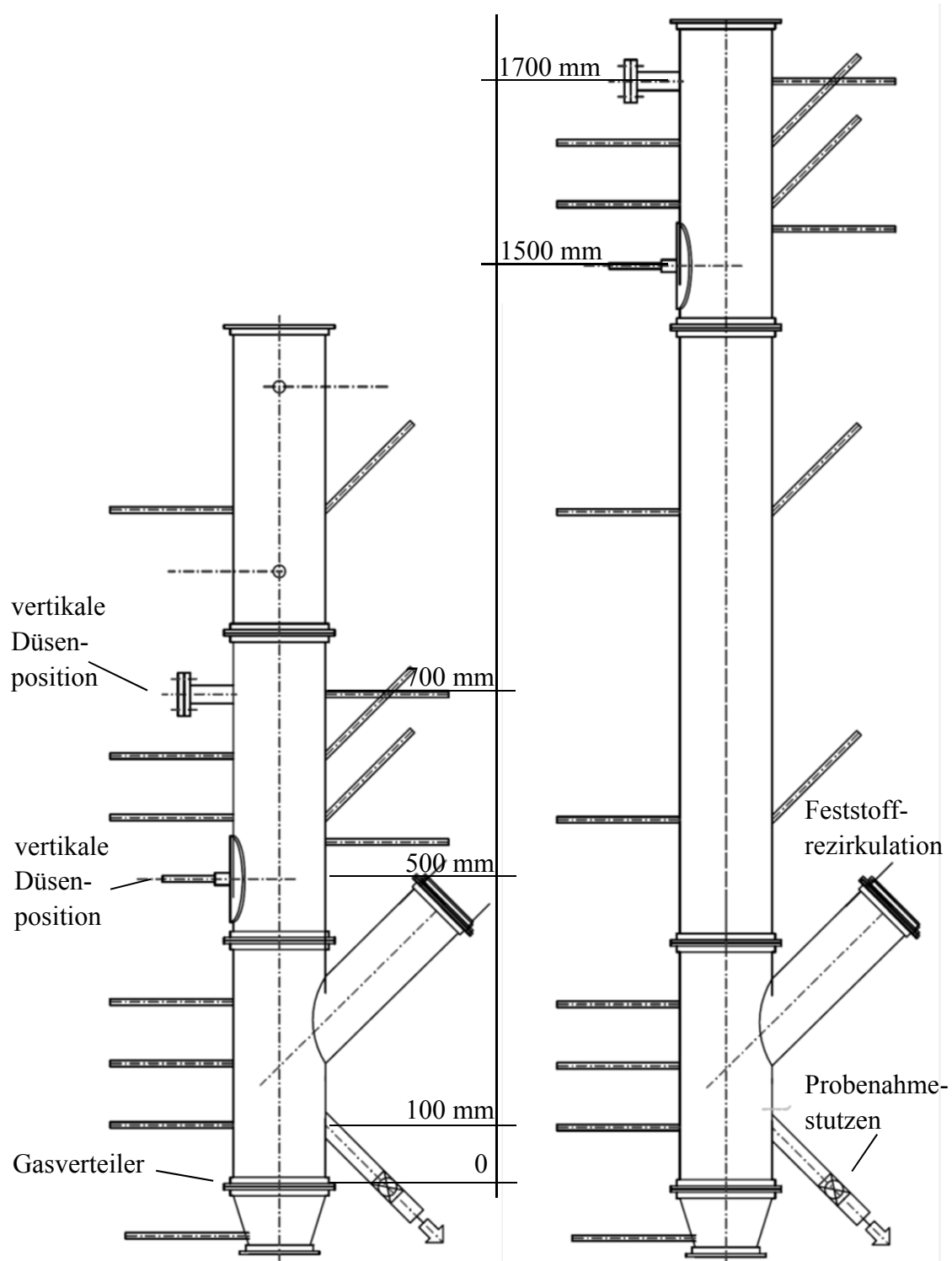


Abb. 5.3: Darstellung der Riser-Bodensektion, links die untere Sprühposition, rechts die obere Sprühposition

In einem alternativen Aufbau war die gleiche Versuchsanlage mit einem Riser von 100 mm Innendurchmesser aufgebaut. Die entsprechende Aufstellungszeichnung des Feststoffkreislaufs befindet sich in Appendix D, Kap. 13. In diesem letzterem Aufbau wurde die prinzipielle Funktionalität des ZWS-Granulators nachgewiesen (XU ET AL. [112]).

Der Aufbau ermöglicht die Eindüsung von Saccharoselösung sowohl horizontal als auch vertikal auf jeweils zwei unterschiedlichen Höhen über dem Verteilerboden.

Die Höhen für die seitliche horizontale Eindüsung liegen 700 mm bzw. 1700 mm über dem Verteilerboden, die Höhen für die zentral aufwärts oder abwärts gerichtete Eindüsung 500 und 1500 mm über dem Verteilerboden.

Im Falle der seitlichen Eindüsung schließt die Düse bündig mit der Wand ab. Im Falle der zentralen Eindüsung aufwärts oder abwärts ist die Düsenöffnung zentrisch auf der vertikalen Achse des Risers angeordnet. Die Düse verfügte in diesem Fall über einen Anströmkörper, der Verwirbelungen an der Düse minimiert. Eine Detailzeichnung der beiden Düsenanordnungen ist in Abb. 5.4 wiedergegeben.

Die eigentliche Düse ist eine außen mischende Zweistoffdüse von Spraying Systems, (Typ SU2A) mit einer inneren Bohrung von 0,4 mm und einem Ringspalt von 2 mm Außendurchmesser. Der Luftspalt beträgt 0,365 mm. Der Aufweitungswinkel wird vom Hersteller mit 13° angegeben.

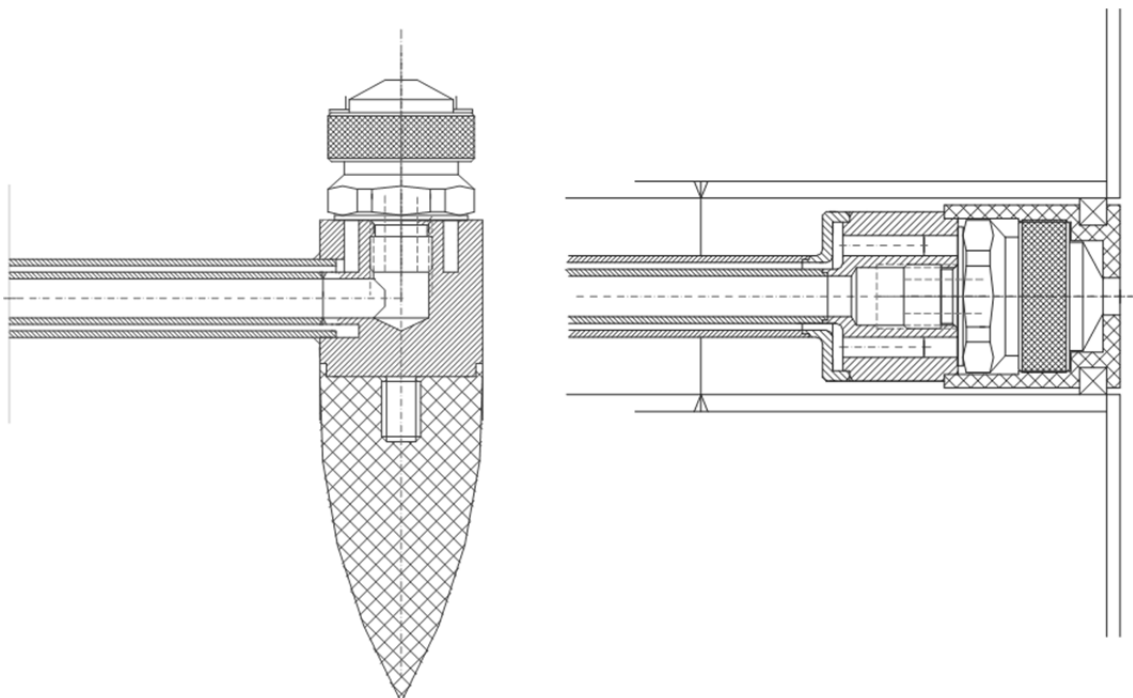


Abb. 5.4: Details der Sprühlanzen mit Düsenkopf a) zentrische Eindüsung b) seitliche Eindüsung

Die versprühte Flüssigkeit ist eine 60 Gew.-% wässrige Saccharoselösung. Die Lösung wird in einem temperierten, druckbeaufschlagten Tank bei 3 bar(ü) vorgehalten. Die Leitung zur Düse besteht aus einem ca. 2 m langen Heizschlauch, der auf ca. 60°C

beheizt wird. Als Zerstäubungsgas wird trockene Luft zwischen 1 und 4 bar(ü) bei Umgebungstemperatur verwendet. Beide Volumenströme werden über Volumenstromregler eingestellt.

5.1.2 Material

Als Bettmaterial wird Saccharose (Zucker-Raffinade, EG-Qualität, Spezialkörnung, Dr. Oetker) eingesetzt. Die Partikelgrößenverteilung variiert und ist durch die in Tab. 5.1 wiedergegebenen Fraktionsanteile charakterisiert.

Tab. 5.1: Partikelgrößenverteilung der Saccharose

Fraktionsanteile Ausgangsmaterial	< 100 μm	~40 Gew.-%
	100-200 μm	max. 35 Gew.-%
	> 200 μm	max. 25 Gew.-%

Um ein standardisiertes Ausgangsmaterial für die Versuche zu generieren und mögliche Chargenunterschiede des Rohmaterials zu minimieren, durchläuft die Saccharose zur Aufbereitung eine immer gleiche Trocknungs- und Sichtungszprozedur. Es werden jeweils 16 kg des Rohmaterials bei konstanten Betriebsbedingungen (Wirbelgasgeschwindigkeit 4,1 m/s, Wirbelschichttemperatur 80 °C) eine Stunde im ZWS-Granulator gewirbelt, ohne den Unterlauf des Sekundärzyklons zu rezirkulieren. Hierbei erfolgt eine definierte Entfeuchtung auf eine Restfeuchte weit unterhalb von 1 Gew.-%, eine Zerstörung instabiler Granulate sowie die Abtrennung der Feinfraktion. Während der Aufbereitung reduziert sich die Ausgangsmasse um ungefähr 35 Gew.-%. Die Feinfraktion aus dem Einsatzmaterial, die nicht durch den Primärzyklon im Kreislauf gehalten wird, wird verworfen bzw. zur Lösungsherstellung eingesetzt. Die Korngrößenverteilung verschiebt sich entsprechend zu größeren Partikelgrößen. Als charakteristische Korngröße ergibt sich für das konditionierte Material ein mittlerer Durchmesser $x_{50,3}$ von etwa 140 μm bzw. ein Sauterdurchmesser x_s von etwa 100 μm . Die genauen Werte und weitere relevante Stoffdaten sind Tab. 5.2 zu entnehmen.

Tab. 5.2: Materialeigenschaften von Saccharose: Ausgangsmaterial und konditionierte Saccharose

Eigenschaften	Ausgangsmaterial	Konditioniert
Partikeldichte ρ_s [kg/m^3]	1586,2	1586,2
Schüttdichte ρ_b [kg/m^3]	670	906
Porosität ε (Festbett) [-]	0,58	0,43
Mittlerer Partikeldurchmesser $x_{50,3}$ [μm]	97	140
Sauterdurchmesser x_s [μm]	52	97
Schmelz-/Zersetzungstemperatur T_s [°C]	160-180	160-180
Wärmekapazität c_p [J/kgK]	1243,9	1243,9

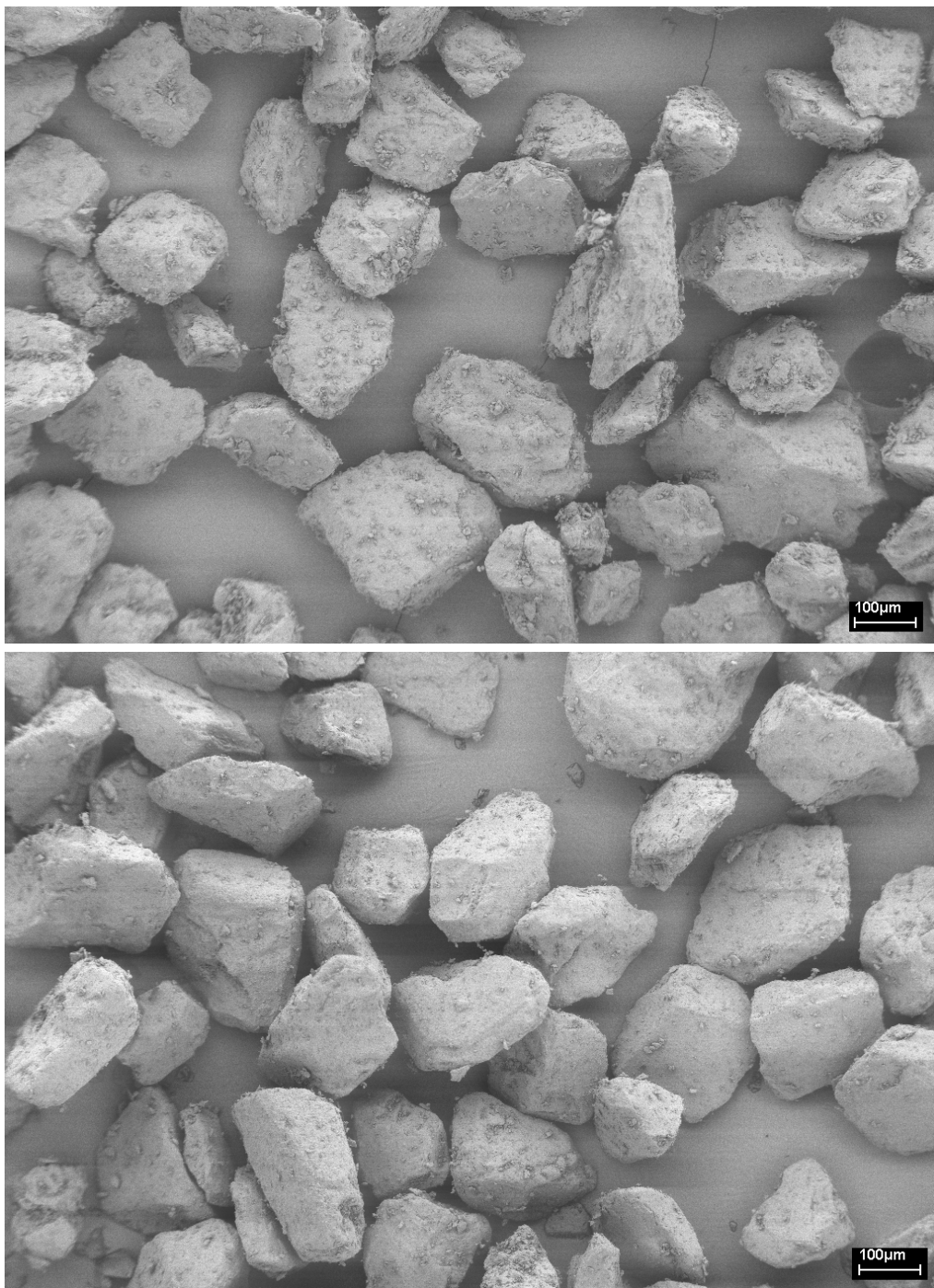


Abb. 5.5: REM-Fotos: Bettmaterial vor Konditionierung (oben), nach 60 min Fluidisation mit trockener Luft bei 80°C (unten)

Die Konditionierung hat keinen Einfluss auf die Partikelform, was auch im REM-Fotovergleich in Abb. 5.5 erkennbar ist.

In allen Versuchen wurde eine wässrige Zuckerlösung mit einem Gewichtsanteil von 60 Gew.-% Saccharose in die Anlage eingedüst. Diese wurde durch Auflösen von Saccharose in 30-40 °C warmem Wasser hergestellt. Aus den leicht voneinander abweichenden Phasendiagrammen in Abb. 5.6 geht jeweils hervor, dass das System bei

Temperaturen oberhalb von 20 °C stabil als ungesättigte Lösung vorliegt. Die mittlere spezifische Wärmekapazität der Saccharoselösung liegt bei 2,4 kJ/kgK. Ausgewählte thermische Stoffdaten sind in Tab. 5.2 sowie Tab. 5.3 wiedergegeben. Zur Qualitätssicherung wurde die Saccharosekonzentration regelmäßig durch Refraktometrie (60 brix) überprüft.

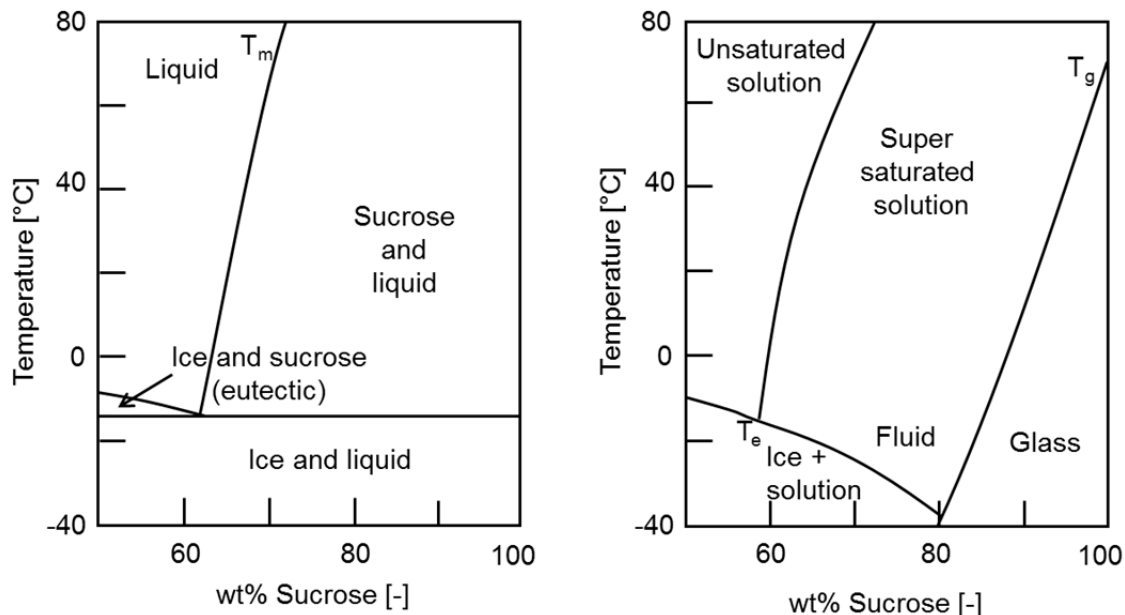


Abb. 5.6: Phasendiagramm Saccharose Wasser (Skizze des relevanten Bereichs, nach links CAMEBRIDGE [14], rechts FRANKS [21])

Das linke Phasendiagramm des Wasser-Saccharose-Systems zeigt das System im Gleichgewichtszustand. Dieser Zustand wird praktisch nicht immer erreicht, da die Kristallbildung von Zuckerkristallen durch die Struktur des Moleküls und die notwendige sterische Ausrichtung komplex ist. Bei hohen Saccharosekonzentrationen geht das System in einen glasartigen Zustand über (CAMEBRIDGE [14]) entsprechend ist das Phasendiagramm rechts in der Praxis relevanter.

Tab. 5.3: Thermische Eigenschaften von Saccharose und Wasser

1bar 25°C	Saccharose	Wasser
Δh_v	-	2440 kJ/kg
Δh_{cr}	17,7 kJ/kg	-
c_{p, H_2O}	-	4,15 kJ/(kg·K)
$c_{p, suc}$	1,24 kJ/(kg·K)	-

5.1.3 Versuchsdurchführung

Die für das jeweilige Experiment benötigte Menge konditionierter Saccharose wird in den ZWS-Granulator gefüllt. Der Versuch startet dann mit dem Aufheizen des Systems. Bei Erreichen einer Betttemperatur von 70 °C wird mit der Eindüsung der Saccharoselösung begonnen. Um das zeitabhängige Partikelwachstum zu verfolgen, werden in Intervallen von 30 Minuten Proben am Probenahmestutzen (100 mm über dem Gasverteilerboden des Risers) gezogen. Die Probengröße wird so gewählt, dass der Druckverlust über die volle Länge des Risers im zeitlichen Mittel konstant bleibt. Im Allgemeinen entspricht diese Menge der der eingedüsten Masse an Saccharose abzüglich kleiner Materialverluste über das Zyklonsystem. Alle 15 Minuten wird der Feinanteil, der sich im Unterlauf und Fallrohr des Sekundärzyklons gesammelt hat, in das Fallrohr des Primärzyklons überführt. Die Probennahme erfolgt in der Regel in der Mitte des Zeitintervalls zwischen zwei Rückführungen aus dem Sekundärzyklon.

Die Leerrohr-Gasgeschwindigkeit wurde zwischen 4,1 und 6,4 m/s variiert und erlaubt einen Betrieb als typische ZWS. Als weitere Parameter wurden die Masse des Partikelinventars des ZWS-Systems zwischen 8,5 kg und 12,5 kg variiert, die Sprühdose 60 Gew.-% wässriger Saccharoselösung zwischen 44 g/min und 144 g/min, der Dispergiergasstrom zwischen 1 Nm³/h und 4 Nm³/h Luft (resultierend in mittleren Tropfengrößen zwischen 70 µm und 14 µm (vgl. Kapitel 5.2.2.2), sowie die Sprühposition in unterschiedlicher Höhe über dem Verteilerboden und die Strahlorientierung.

5.2 Analytische Methoden.

5.2.1 Siebung

Die Proben wurden über einen Probenteiler bis auf eine Masse der Einzelprobe von ca. 500 g geteilt. Dann wurden die Gobbfraktionen mittels eines Siebturms bestehend aus Sieben der Maschenweite 1400, 2000 und 3000 µm abgesiebt. Die verwendete Siebmaschine war eine Analysensiebmaschine EML 200 von Haver & Boecker. Die Amplitude betrug Stufe 9, die Siebzeit 4 Minuten. Die anfallende Siebfraktion kleiner 1400 µm wurde mittels Laserbeugung detailliert vermessen.

5.2.2 Partikelgrößenbestimmung mittels Laserbeugung

5.2.2.1 Granulate

Die Partikelgrößenverteilung der Partikel unterhalb von 1400 µm wurde mittels Laserbeugung in Flüssigkeit bestimmt. Zum Einsatz kam ein 'Beckman Coulter LS 13320' mit 'universal liquid module'. Da Wasser als Standarddispergiermittel aufgrund der Löslichkeit von Saccharose in Wasser nicht in Frage kommt wurde 2-Propanol (BASF, 99,95%) als Dispergiermittel eingesetzt.

Das zur Rohdatenverarbeitung verwendete mathematische Modell zur Laserbeugung ist das Fraunhofermodell. Die Benutzung dieses Modells setzt verschiedene Annahmen über die zu vermessenden Partikel voraus. Da das Modell nur Beugung betrachtet und andere Effekte wie Absorption oder Brechung vernachlässigt, ergeben sich hieraus die folgenden Einschränkungen / Annahmen:

- Der Partikeldurchmesser muss wesentlich größer sein als die Wellenlänge des verwendeten Lasers
- Die Partikel sind lichtundurchlässig
- Der mittlere Partikelabstand in Dispergiermedium entspricht mindestens dem 3- bis 5-fachen Durchmesser der Partikel

Das Fraunhofermodell limitiert die kleinstmögliche zu detektierende Partikelgröße bei ca. 1 μm . Sobald die Partikelgröße in die Größenordnung der Wellenlänge des zur Vermessung verwendeten Lichts kommt, müssen optische Eigenschaften der Partikel und des Fluids berücksichtigt werden. Dies gilt insbesondere für Absorptions- und Brechungseffekte.

Die MIE-Theorie berücksichtigt diese Effekte, benötigt aber den Brechungs- und Absorptionsindex der zu vermessenden Stoffe bzw. Stoffpaarungen. Da die Saccharosepartikel zu unterschiedlichen Anteilen teilkristallin sind, ist die MIE-Theorie nicht sinnvoll anzuwenden. In den Proben sind auch keine signifikanten Mengen von Partikeln kleiner 1 μm zu erwarten, da diese über die Zyklone aus dem ZWS-System ausgetragen werden.

Von jeder in den Experimenten gezogenen und über die Siebung vorbereiteten Probe wurden zwei repräsentative Sub-Proben gezogen und jeweils dreifach mittels Laserbeugung vermessen. Die in dieser Arbeit präsentierten Partikelgrößenverteilungen basieren auf den gemittelten Werten dieser 6 Messungen.

In einem letzten Schritt wurde die aus der oben beschriebenen Laservermessung gewonnene Verteilung mit der aus der Siebung gewonnenen Verteilung der Partikel größer 1400 μm zusammengefügt.

5.2.2.2 Tropfen

Die Tropfengrößenverteilung der verwendeten Zweistoffdüse wurde auf einem gesonderten Messstand (siehe Abb. 5.7) ebenfalls durch Laserbeugung vermessen. Es wurden verschiedene für den ZWS-Betrieb charakteristische Dispergiergasströme und Saccharoselösungsströme vermessen. Hierfür wurde der Dispergiergasstrom von 1 bis 4 Nm^3/h und der Saccharoselösungsstrom (60 Gew.% wässrige Saccharoselösung) von 40 bis 140 g/min variiert. Abb. 5.7 zeigt den verwendeten Versuchsaufbau.

Das Messgerät ist ein 'Malvern 2006 Droplet and Particle Sizer'. Die Düse wurde in einem Abstand von 250 mm zum Detektorlinsensystem und ca. 150 mm oberhalb des Laserstrahls positioniert. Die Sprühhichtung war abwärts. Der Abstand zum Laserstrahl wurde so gewählt, dass der Düsenstrahl voll ausgebildet ist. Eine weitere Vergrößerung

des Abstandes zwischen Düsenaustritt und Laserstrahl brachte keine Veränderung der gemessenen Partikelgrößenverteilung.

Der Düsenstrahl war durch ein Rohrsegment mit einem inneren Durchmesser von 100 mm gegen die Umgebung abgeschirmt. Zwei 30 mm Bohrungen erlaubten dem Laser ohne zusätzlichen optischen Eingriff durch das Rohrsegment den Düsenstrahl zu vermessen. Am Boden des Rohrsegmentes war eine Verjüngung und ein Übergang auf eine Absaugung bestehend aus einem Nasssauger montiert. Das System unterband ein Rückströmen von Tropfen in das Messvolumen und führte die Saccharoselösung ohne Kontamination der Umgebung ab. Das verwendete Eindüsungssystem war dasselbe das in den Experimenten im ZWS-Granulator verwendet wurde (siehe Abb. 5.4).

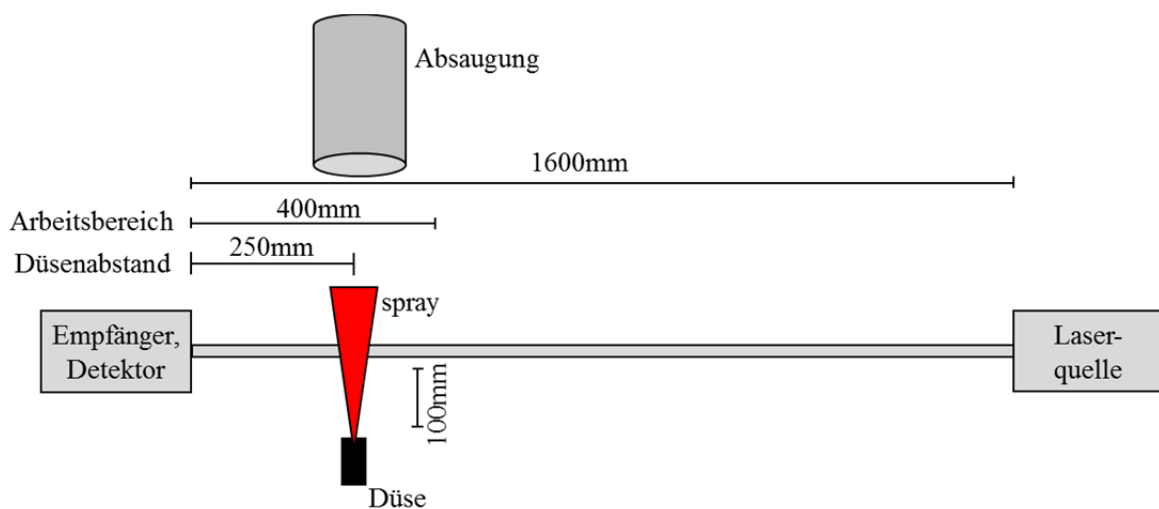


Abb. 5.7: Experimenteller Aufbau der Tropfengrößenmessung (Aufsicht)

Der Flüssigkeits- und Gasmassenstrom wurde über Volumenstrommesser (Fa. Fischer Porter) eingestellt. Gas und Flüssigkeit wurden über einen vorgeschalteten Lufterhitzer bzw. einen ca. 2 m langen Heizschlauch auf 80 °C temperiert. Die Messung der Tropfengrößenverteilung wurde gestartet, wenn die eingestellten Volumenströme stationär waren.

Die Tropfengrößenverteilung wurde mit der ‘liquid droplet spray’ (LDS) Methode berechnet, die auf dem Fraunhofer-Modell basiert. Jede Messung wurde zweifach durchgeführt. Die her präsentierten Messergebnisse wurden durch die Bildung des Mittelwertes generiert. Abb. 5.8 zeigt exemplarisch die verschiedenen q_3 -Verteilungen für den Fall der Eindüsung von 97 g/min Saccharoselösung mit Variation des Dispergiertgasstroms von 1-4 Nm³/h.

Die Form der Tropfengrößenverteilung entspricht für den Fall von Dispergiertgasströmen zwischen 2 und 4 Nm³/h näherungsweise einer Normalverteilung es gibt nur eine geringe Tendenzen zum Auftreten von multimodalen Verteilungen. Die gezeigte Form der Tropfengrößenverteilung ist für alle untersuchten Betriebszustände repräsentativ.

Da die Tropfenverdampfung und der Trocknungsprozess durch den Wärme und Stofftransport an der Tropfenoberfläche dominiert werden, wird der Sauterdurchmesser als charakteristische Tropfengröße angegeben. Abb. 5.9 zeigt den Verlauf des Sauterdurchmessers in Abhängigkeit des Dispergiergasstroms für den gesamten untersuchten Betriebsbereich des ZWS-Granulators. Die Verteilungen für weitere relevante Sprühdichten befinden sich in Appendix D, Kap. 13.1.

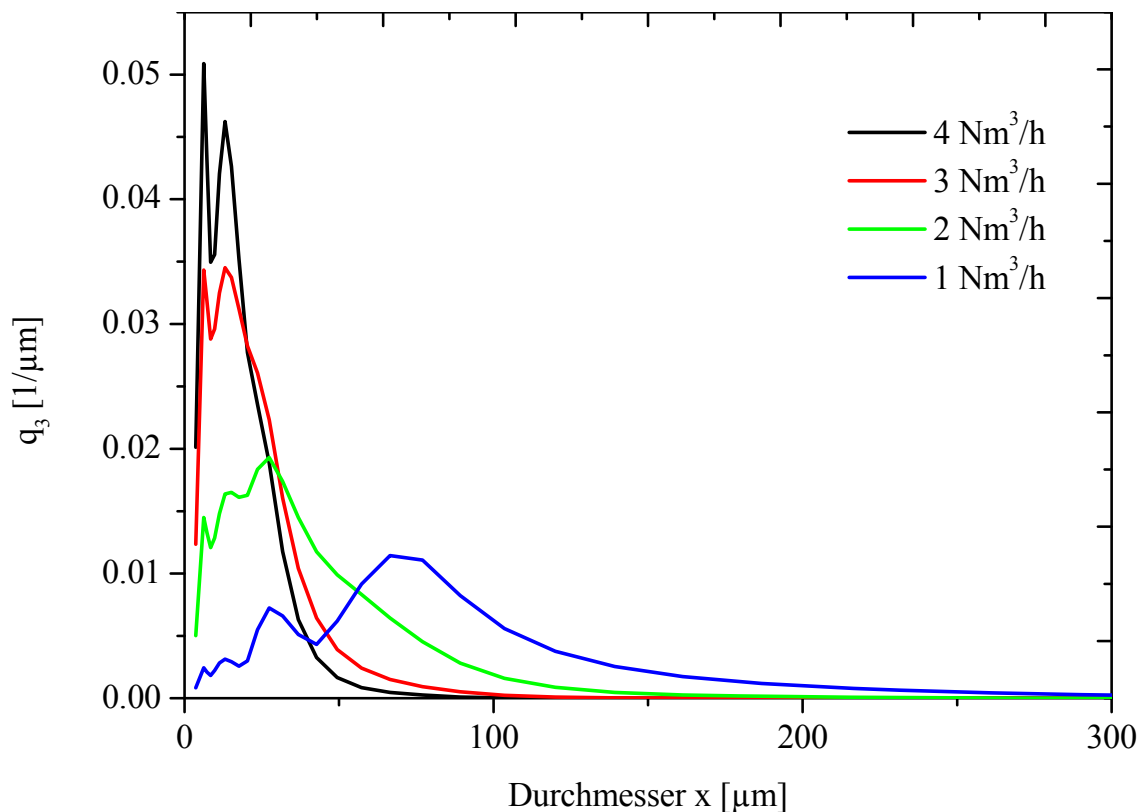


Abb. 5.8: Massendichteverteilung q_3 der verdüsten 60 Gew.-% wässrigen Saccharoselösung (80 °C, 94 g/min) bei einem flüssigkeitsseitigen Vordruck von 2,5 bar(i) im Vorlagebehälter und verschiedenen Zerstäubungsgasströmen

Entsprechend Abb. 5.9 kann der Sauterdurchmesser im Bereich von 10-80 μm durch geeignete Wahl der Sprühparameter eingestellt werden.

Mit der Ausnahme für den Fall von 1 Nm^3/h Dispergiergasstrom sind praktisch alle Tropfen kleiner 100 μm , für die meisten Fälle sogar mindestens eine Größenordnung kleiner als das im ZWS-Granulator eingesetzte Bettmaterial.

In Übereinstimmung mit KUFFERATH [22] zeigt der Tropfendurchmesser einen exponentiellen Anstieg mit dem Fluidmassenstrom bzw. dem Saccharoselösungsmassenstrom. Ein kleinerer Saccharoseanteil in der Lösung bzw. ein Saccharoseanteil von 30 Gew.-% resultiert, wie zu erwarten, in kleineren Tropfendurchmessern. Die entsprechenden Messergebnisse sind in BUCK [13] hinterlegt.

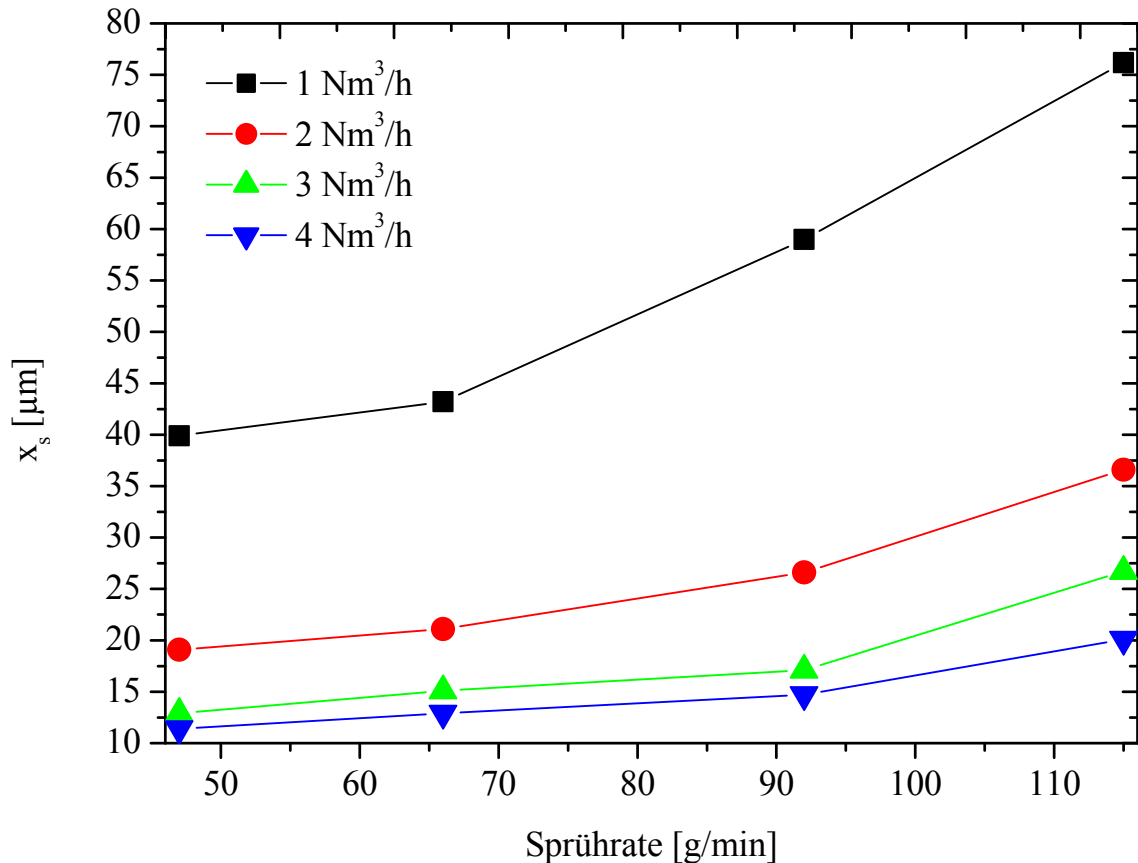


Abb. 5.9: Sauter-Durchmesser x_s der Tropfen (60 Gew.-% Saccharose) in Abhängigkeit vom Massenstrom der Saccharoselösung und vom Zerstäubungsgasstrom

5.2.3 Rasterelektronenmikroskopische Untersuchungen (REM)

Ausgewählte Proben wurden nach der Probenahme zur Laserbeugungsbestimmung wie in 2.2.2.1 beschrieben zusätzlich durch Siebung in Korngrößenfraktionen von 0-63 μm , 63-140 μm , 140-250 μm und 250-400 μm fraktioniert und auf Aluminiumprobenträger (Durchmesser 14mm) aufgebracht. Diese Probenträger wurden nochmals für 24 h bei 60 °C getrocknet und anschließend mit Gold gesputtert. Die Goldschichtdicke wurde auf 15 nm eingestellt. Anschließend wurden die Proben mittels REM (GEOL 840) mit 3 keV unter Verwendung des sekundären Detektors gescannt, um die Granulatomorphologie abzubilden.

5.2.4 Bestimmung der Feststoffzirkulationsrate G_s

Die Feststoffzirkulationsrate G_s im Riser des ZWS-Granulators ist wesentlicher Parameter der Strömungsmechanik des ZWS-Granulators und findet unter anderem Eingang in das verwendete Strömungsmechanikmodell des Risers und die Populationsbilanzen. Eine direkte Messung während der Granulationsversuche erwies sich als nicht praktikabel, da Unterbrechungen bzw. Reduzierungen des rezirkulierten Massenstroms in den Riser, wie sie während der Messung auftraten, zu verändertem Granulationsverhalten und / oder zu Verbackungen im Bereich der Eindüsungsstelle

führen. Dementsprechend wurde die Feststoffzirkulationsrate G_s in separaten Versuchen ermittelt.

Die Messung der Feststoffzirkulationsrate erfolgte über das ca. 1000 mm unterhalb des Zyklons befindliche, mechanisch durch Wellenschlauch entkoppelte, 800 mm lange Rohrsegment, das auf einer Wägezelle gelagert ist und das über eine Klappe an seinem unteren Ende verfügt (Abb. 5.10). Über die Wägezelle wurde im Prozessleitsystem kontinuierlich das Gewicht des Rohrsegments mitgeschrieben. Wurde nun die Klappe (händisch) geschlossen, sammelte sich der zirkulierte Feststoff in dem Rohrsegment und die Massenzunahme über der Zeit wurde aufgezeichnet.

Die akkumulierte Masse in der Wägesektion muss klein gegenüber der Masse im Gesamtsystem des ZWS-Granulators sein, um sicherzustellen, dass die Strömungsmechanik im Riser nicht wesentlich beeinflusst wird.



Abb. 5.10: Klappensystem zur Bestimmung des durchschnittlichen Feststoffmassenstroms G_s

Das beschriebene Verhalten erklärt die Messung in gesonderten Experimenten. Einerseits wird die Strömungsmechanik durch den Eingriff im Fallrohr signifikant

gestört, andererseits neigt das in der Wägesektion ausgebildete Festbett zur Brückenbildung. Insbesondere nach dem Wiederöffnen der Klappe dauert es relativ lang, bis sich der stationäre Zustand des Systems wieder eingestellt hat. In den Granulationsexperimenten ist die Ausbildung eines Festbetts im laufenden Betrieb zu vermeiden.

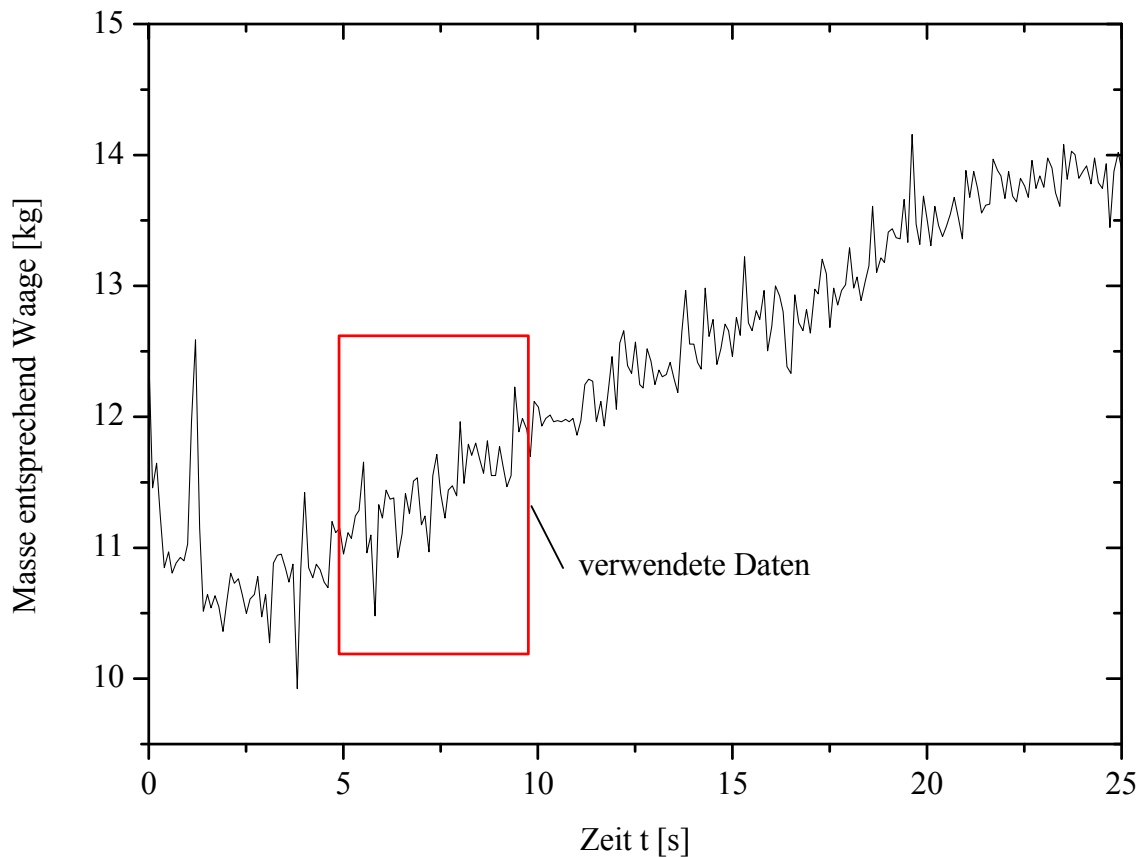


Abb. 5.11: Feststoffmasse über der Zeit (Feststoffinventar 12,5 kg Granulat, Gasgeschwindigkeit 4,1 m/s)

Ein exemplarischer Verlauf der Kraftaufnahme der Wägesektion ist in Abb. 5.11 wiedergegeben. Das Schließen der Klappe resultiert in einer Spitze der Kraftaufnahme, danach ist der Verlauf linear. Nach 15-20 Sekunden nimmt die Steigung des Graphen ab. Dies ist auf die Änderung der Fluidmechanik im Riser durch Abnahme der rezirkulierten Masse zurückzuführen. Für die Auswertung der Feststoffzirkulationsraten wurde dementsprechend nur der jeweils erste lineare Teil des Verlaufs des Kraftsignals herangezogen. In Tab. 5.4 und Tab. 5.5 sind die Feststoffzirkulationsraten für Ausgangsmaterial mit einem mittleren Durchmesser $x_{50} \approx 125 \mu\text{m}$ und einer Siebfraktion von Granulaten mit $x_{50} \approx 300 \mu\text{m}$ wiedergegeben. Für exemplarische Betriebsbedingungen des Granulators mit 5,2 m/s Gasgeschwindigkeit und 12,5 kg Partikelinventar resultiert dies in einer Feststoffzirkulationsrate von $G_s = 24 \text{ kg}/(\text{m}^2\text{s})$ für beide Korngrößenfraktionen. Die vollständigen Messwerte für den relevanten Betriebsbereich sind in BUCK [13] wiedergegeben.

Tab. 5.4: G_s -Werte [$\text{kg}/\text{m}^2\text{s}$] für getrocknetes Ausgangsmaterial; $x_{50} \approx 125 \mu\text{m}$; Temperatur: $80 \text{ }^\circ\text{C}$

Saccharose [kg] \ v_{Gas} [m/s]	10	12,5	15	17,5	20
2,5	8,80	13,58	12,96	10,14	14,58
3,4	15,90	17,18	19,34	20,36	26,23
4,1	16,24	18,45	-	23,05	29,72
5,2	23,48	22,77	32,18	31,97	33,95
6,4	25,87	32,07	36,94	32,10	40,74

Tab. 5.5: G_s -Werte [$\text{kg}/\text{m}^2\text{s}$] für getrocknetes Ausgangsmaterial; $x_{50} \approx 300 \mu\text{m}$; Temperatur: $80 \text{ }^\circ\text{C}$

Saccharose [kg] \ v_{Gas} [m/s]	10	12,5	15	17,5	20
2,5	-	-	-	-	-
3,4	4,69	3,71	4,13	4,82	5,48
4,1	8,36	9,33	10,60	10,85	13,72
5,2	14,35	24,23	26,59	32,53	36,50
6,4	20,85	33,30	34,88	37,04	43,21

5.3 Kornzerkleinerung - Abrieb und Bruch

In diesem Teil der vorliegenden Arbeit wird das Abriebs- und Bruchverhalten der Saccharosepartikel im ZWS-Granulator betrachtet. Hierfür wird der ZWS-Granulator in repräsentative Zonen mit unterschiedlicher mechanischer Belastung unterteilt. Die Effekte in den verschiedenen Zonen werden in zwei separaten Experimenten qualitativ und quantitativ untersucht. Das erste Experiment untersucht das Abriebs- und Bruchverhalten in der Wirbelschicht, das zweite Experiment untersucht das Abriebs- und Bruchverhalten in den Zyklonen. In den Experimenten wurden charakteristische Betriebspunkte des ZWS-Granulators nachgestellt. Wesentliche Einflussparameter sind z.B. Gasgeschwindigkeit und Feststoffbeladung der Strömung, aber auch partikelspezifische Eigenschaften wie Partikelgröße und Produktionsbedingungen der Granulate.

5.3.1 Material

Als Versuchsmaterial für alle Abriebs- und Bruch-Untersuchungen im Zyklonteststand sowie in der blasenbildenden Wirbelschicht wurden Saccharose-Granulate eingesetzt, die unter definierten Bedingungen in dem im Kapitel 5.1.1 beschriebenen ZWS-Granulator hergestellt worden waren. Das gesamte in den Versuchen eingesetzte Material wurde absatzweise im Granulator hergestellt und aufgearbeitet, bevor es in den Testständen zum Einsatz kam.

Als Ausgangsmaterial für die Herstellung der Saccharosegranulate diente Saccharose (Zucker-Raffinade, EG-Qualität, Spezialkörnung, Dr. Oetker). 14 kg des Rohmaterials wurden bei einem konstanten Volumenstrom von 225 Nm³/h (4,1 m/s Gaseintrittsgeschwindigkeit, bezogen auf die Riserquerschnittsfläche) und einer Gaseintrittstemperatur von 80°C für eine Stunde getrocknet. Nach der Konditionierung betrug der mittlere Durchmesser des getrockneten Ausgangsmaterials x_{50} ca. 140 μm und der Sauterdurchmesser x_s ca. 100 μm . Ein Stoffdatensatz des Ausgangsmaterials und des konditionierten Materials ist in Tab. 5.2 wiedergegeben, Ein vollständiger Satz der zur Herstellung der Granulate verwendeten Betriebsbedingungen ist in Tab. 5.6 wiedergegeben.

Tab. 5.6: Betriebsparameter während der Granulation (Produktion des Standardmaterials)

Versuch	Sprühposition [mm]	Bettmasse [kg]	u_{Gas} [m/s]	T_{Gas} [°C]	$\dot{V}_{\text{Gas, Düse}}$ [m ³ /h]	\dot{m}_{spray} [g/min]	Tropfengröße x_s [μm]
1,2	500	12,5	4,06	80	3	86	16,3
3,4,5	1500	12,5	4,06	80	3	86	16,3

Die Herstellung der Granulate erfolgte nach dem in Kapitel 5.1.3 beschriebenen standardisierten Verfahren. Es wurde eine auf 60 °C vorgeheizte Saccharoselösung mit 60 Gew.-% Saccharoseanteil in den Riser zentrisch aufwärts eingedüst.

Während der Granulation wurde quasikontinuierlich, wie in Kapitel 5.1.3 beschrieben, Material abgezogen. Die in den ersten 120 Minuten des Produktions-Versuchs abgezogenen Granulate wurden verworfen, um zu gewährleisten, dass die gewonnenen Granulate nicht durch das Startmaterial bzw. durch Anfahreffekte der Granulation dominiert werden. Ab 120 Minuten wurden die quasikontinuierlich abgezogenen Granulate gesammelt. Am Ende des Experiments wurde das gesamte verbleibende ZWS-Inventar zu den gesammelten Granulaten hinzugefügt und vermischt. Das entsprechende Material stellt das Ergebnis eines Produktions-Versuchs dar.

Die so gewonnenen Saccharosegranulate wurden unter zwei unterschiedlichen Betriebsbedingungen hergestellt, die repräsentativ zum Einen für den Batchbetrieb des Granulators mit der Ausbildung brombeerartiger Granulate sowie zum Anderen für den kontinuierlichen Betrieb des Granulators mit Ausbildung abgerundeter Granulate sind.

Der Unterschied der beiden Betriebsmodi liegt in der Positionierung der Düse. Im Falle der Sprühposition 1 (500 mm über dem Verteilerboden, zentrisch-aufwärts), entsprechend einer Eindüsung in die untere dichte Zone der ZWS, wachsen die Granulate stark auf. Dieser Betriebsmodus ist repräsentativ für den Batchbetrieb. Im Falle der Sprühposition 2 (1500 mm über dem Verteilerboden, zentrisch-aufwärts) entsprechend einer Eindüsung in die obere dünne Zone der Wirbelschicht, wachsen die Granulate nur mäßig auf und es stellt sich nach ca. zwei Stunden eine stationäre Korngrößenverteilung ein. Dieser Betriebsmode ist repräsentativ für den kontinuierlichen Betrieb.

Insgesamt wurden fünf Produktions-Versuche durchgeführt. Die ersten beiden Versuche mit einer Sprühdrate von 86 g/min wässriger Saccharoselösung (60 Gew.-% Saccharose) bei Sprühposition 1 mit 3 Nm³/h Dispergiergasstrom, 4,1 m/s Leerrohrgasgeschwindigkeit sowie 80 °C Betttemperatur und 12,5 kg ZWS-Inventar. Die Produktions-Versuche 2-5 wurden unter identischen Betriebsbedingungen, aber mit Eindüsung auf Sprühposition 2 durchgeführt. Die Betriebsbedingungen sind in Tab. 5.6 zusammengefasst.

Die so produzierten Granulate aus den Versuchen 1 und 2, sowie die Granulate der Versuche 3 bis 5 wurden jeweils vermischt und dann der weiteren Aufarbeitung für die Versuche zugeführt.

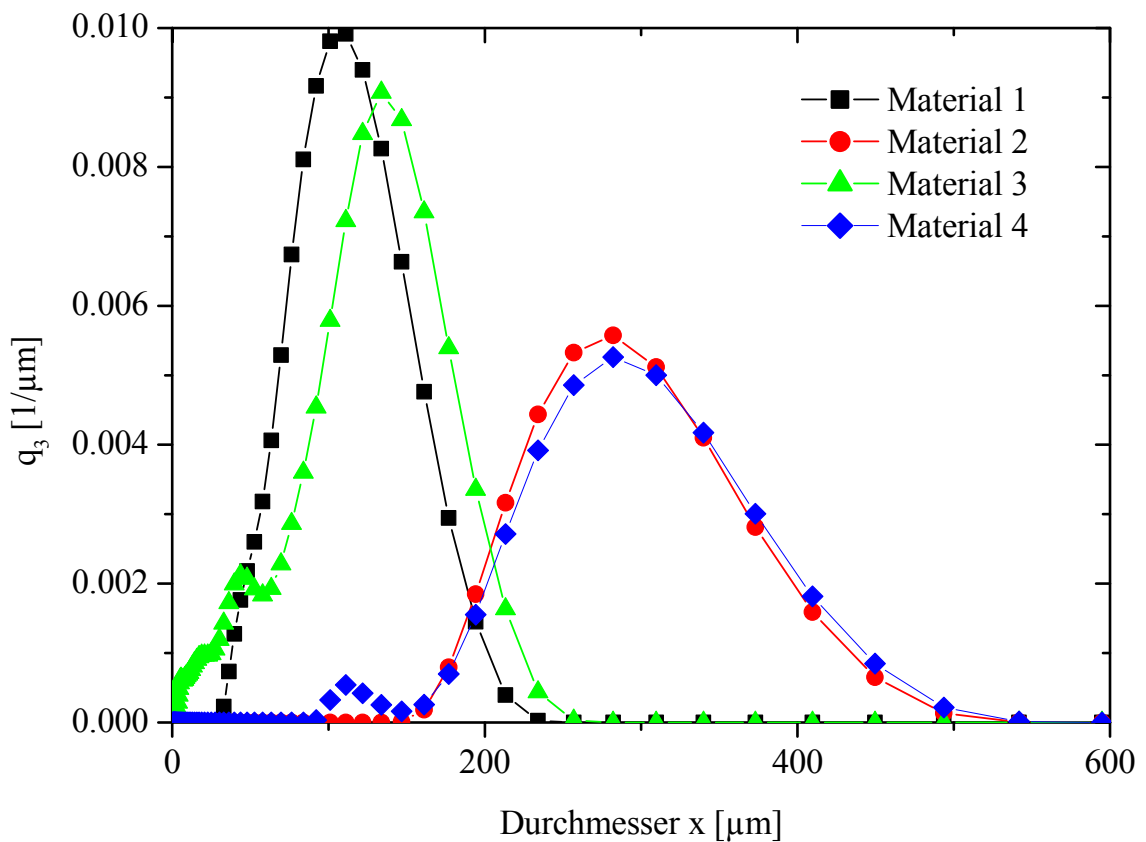
Als Aufarbeitung wurden verschiedene Klassen aus den jeweiligen Chargen ausgesiebt. Dies waren Siebschnitte bei 100-180 µm sowie 250-355 µm, wobei im Falle des Materials der Sprühposition 1 keine Masse in der Fraktion 100-180 µm im Material vorhanden war. Zusätzlich wurde getrocknetes Ausgangsmaterial (monokristallin, 100-160 µm) als Basis für die Bruchversuche verwendet.

Als Ergebnis der Siebungen wurden 4 charakteristische Materialfraktionen hergestellt, die in Tab. 5.7 wiedergegeben sind.

Tab. 5.7: Standardmaterial für die Abriebs- und Bruchversuche

Material	Herstellung	Größenklasse x [μm]	Minimalfluidisationsgeschw. u_{mf} [m/s]
1	Getrocknetes Ausgangsmaterial	100-160	0,0061
2	Saccharose Granulate Sprühposition 1	250-355	0,036
3	Saccharose Granulate Sprühposition 2	100-180	0,0065
4	Saccharose Granulate Sprühposition 2	250-355	0,036

Die minimale Fluidisationsgeschwindigkeiten der Fraktionen wurden gemessen und können ebenfalls Tab. 5.7 entnommen werden. Sie sind in guter Übereinstimmung mit den theoretisch nach WEN & YU [103] berechneten minimalen Fluidisationsgeschwindigkeiten für den jeweiligen mittleren Durchmesser x_{50} der entsprechenden Fraktion ($u_{mf,140\mu\text{m}} = 0,0065 \text{ m/s}$; $u_{mf,300\mu\text{m}} = 0,036 \text{ m/s}$). Die entsprechenden Partikelgrößenverteilungen sind in Abb. 5.12 wiedergegeben.

Abb. 5.12: Massendichteverteilungen $q_3(d_i)$ der Standardmaterialien für die Abriebs- und Bruchversuche

5.3.2 Versuchsdurchführung

Die Abriebs- und Brucheffekte in den verschiedenen Zonen des ZWS-Granulators wurden in zwei getrennten Versuchsständen untersucht. Das erste Experiment untersucht Abrieb und Bruch im Zyklon, das zweite Experiment Abrieb und Bruch in der blasenbildenden Wirbelschicht (BWS). Die Ergebnisse des BWS-Experiments werden dann auf Riser-Bedingungen extrapoliert.

5.3.2.1 Zyklon-Teststand

Dieser Versuchsaufbau zur Messung des Abriebs- und Bruchverhaltens wurde schon in den Arbeiten von REPPENHAGEN [75] und KLETT [46] verwendet und hinreichend validiert. In dieser Arbeit wurde er leicht modifiziert verwendet. Die schematische Skizze des Teststandes ist in Abb. 5.13 wiedergegeben.

Der zentrale Teil des Aufbaus besteht aus einem im Saugmodus betriebenen Zyklon. Die Saccharosepartikel, die in einem Bunker 1 vorgelegt sind, werden über eine Schüttelrinne in die Einlaufstrecke des Zyklons aufgegeben. Die Einlaufstrecke hat eine rechteckige Querschnittsfläche von 37 mm in der Höhe und 13 mm in der Breite und besteht aus Glas. Sie hat eine Länge von 250 mm und endet im Zykloneinlauf des aus Edelstahl gefertigten Zyklons. Die exakte Geometrie kann Abb. 5.14 entnommen werden.

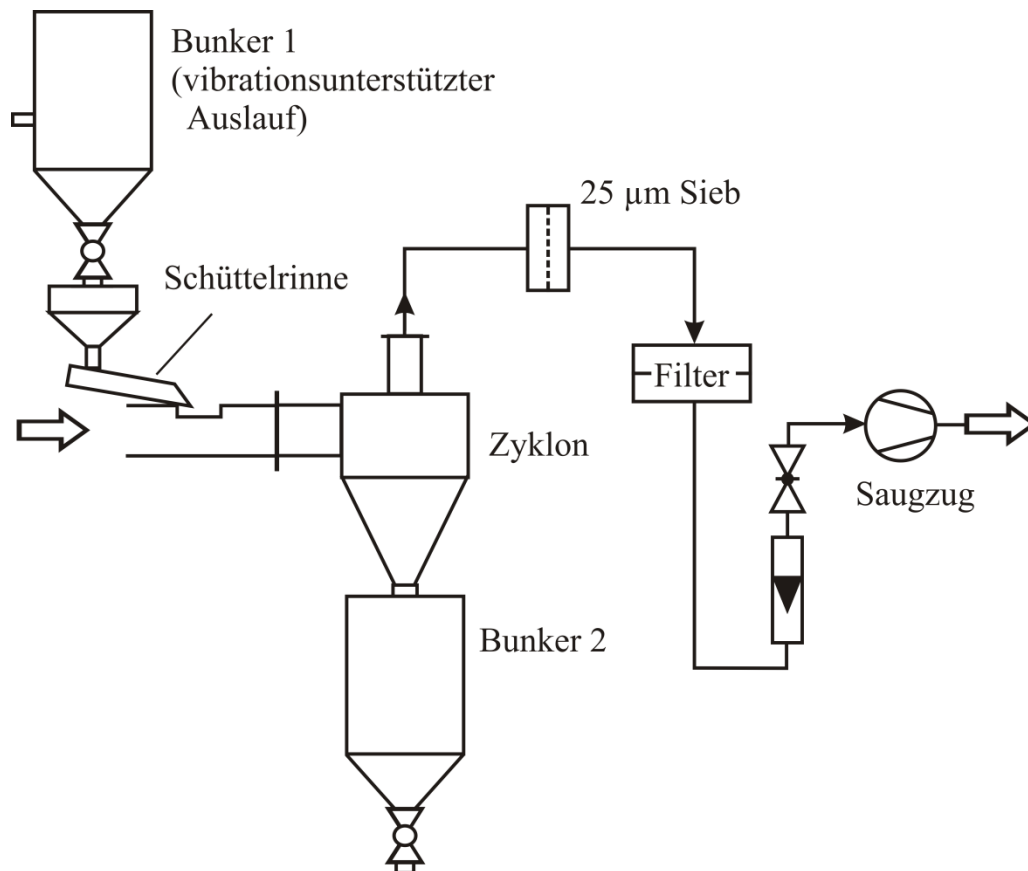


Abb. 5.13: Skizze des Versuchsaufbaus zum Abrieb und Bruch in Zyklonen

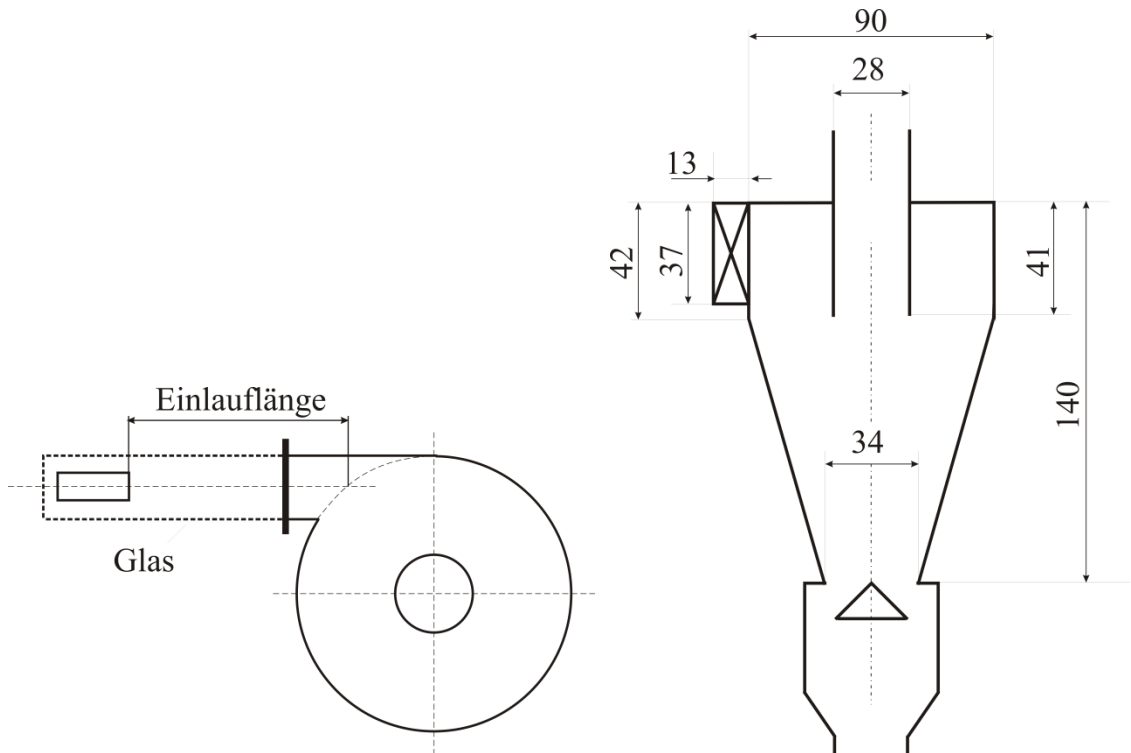


Abb. 5.14: Zyklon und Zykloneinlaufgeometrie

Im Zyklon erfolgt die Abscheidung der Partikel aus dem Gasstrom. Der Hauptstrom an Partikeln wird über den Unterlauf in einen Bunker 2 abgeschieden. Die Feinfraktion wird über den Zyklonoberlauf mit dem Gasstrom ausgetragen. Der Abgasstrom wird über ein 25 μm -Sieb und über ein 5 μm -Filter (Filterblatt 200 mm Dmr. auf porösem Kunststoffträgermaterial) geführt. Die Partikel größer 25 μm werden am Sieb abgeschieden. Es wird davon ausgegangen, dass diese Partikel „Spritzkorn“ sind, d.h. Partikel, die aufgrund von Abpralleffekten in den Zyklonoberlauf gelangt sind. Partikel kleiner 25 μm werden im Filter abgeschieden. Es wird angenommen, dass sie primär durch Abrieb entstanden sind.

Das eingesetzte Gas ist Umgebungsluft, die über die Einlaufstrecke, den Zykloneinlauf, den Zyklon, Zyklonoberlauf, Sieb und Filter einen Volumenstrommesser einschließlich Regelorgan (Kugelhahn) durch ein Seitenkanalgebläse angesaugt wird. Nach dem Seitenkanalgebläse erfolgt die Abgabe in die Umgebung (vgl. Abb. 5.13).

Der Aufbau erlaubt eine in weiten Bereichen unabhängige Einstellung der Feststoffbeladung in der Einlaufstrecke. Die Gasgeschwindigkeit kann über Androsseln des Seitenkanalgebläses sowie die Gebläsedrehzahl eingestellt werden. Die Einstellung des Feststoffmassenstroms erfolgt über die Schüttelrinne.

Entlang des Gasweges ist ein Druckmesssystem installiert, das über ein Prozessleitsystem kontinuierlich ausgelesen wird. Mittels des Prozessleitsystems lassen sich die Volumenströme bzw. Gasgeschwindigkeiten entlang des Gasweges durch das System praktisch in Echtzeit berechnen. Hierzu muss nur die Umgebungstemperatur

und der Wert des Volumenstrommessers hinter dem Filter in das System eingelesen werden.

Versuchsdurchführung:

Die Durchführung der Versuche erfolgte diskontinuierlich, als Reihe einzelner Zyklondurchläufe. Für jeden Zyklondurchlauf wird der Vorlagebehälter 1 (vgl. Abb. 5.13) mit einer definierten Menge an Saccharose befüllt, der Gasstrom entsprechend den geplanten Versuchsbedingungen eingestellt und schließlich die Schüttelrinne gestartet. Hierbei wird die Einstellung der Schüttelrinne in Vorversuchen durch Auswiegen des transportierten Feststoffstroms ermittelt.

Während der Versuche bildet sich ein Filterkuchen auf dem Filter. Dies führt zu einem Ansteigen des Druckverlusts über den Filter mit fortschreitender Versuchsdauer. Um die Gaseintrittsgeschwindigkeit in den Zyklon konstant zu halten, muss der Gasmassenstrom konstant gehalten werden. Hierfür müssen die durch das Prozessleitsystem ermittelten Geschwindigkeiten durch Anpassung der Volumenströmeinstellungen am Regelorgan konstant gehalten werden.

Vor und nach jedem Zyklondurchlauf wird Bunker 2 gewogen, so dass die Masse der abgeschiedenen Partikel berechnet werden kann. Zusätzlich wird die Partikelmasse auf dem Sieb und dem Filter durch Auswiegen bestimmt. Vor dem nächsten Zyklondurchlauf werden die Partikel wieder in Bunker 1 überführt.

Innerhalb einer Versuchsreihe werden bis zu 25 Einzelversuche (Zyklondurchläufe) durchgeführt.

Versuchsbedingungen

Das Ziel der Zyklonversuche ist es, die Betriebsbedingungen im Primärzyklon des ZWS-Granulators abzubilden. Hierzu wurden die in Kapitel 5.3.1 beschriebenen Saccharosegranulatfraktionen (Material 1, 2, 3, 4), die als repräsentativ für die im Granulator hergestellten Granulate angenommen werden, bei gleichen Gaseintrittsgeschwindigkeiten und gleichen Feststoffbeladungen wie im ZWS-Granulator eingesetzt. Die gewählten Betriebsbedingungen repräsentieren die äußeren Grenzen des untersuchten Betriebsbereichs des ZWS-Granulators. Die Gas- und Feststoffmassenströme wurden über die Kontinuumsgleichung und die Zykloneinlaufsquerschnittsflächen an die kleinere Zyklongeometrie des Versuchsaufbaus angepasst.

Die Versuchsdauer wurde auf 120 Sekunden festgelegt. Anfahr- und Abfahrvorgänge können hierbei vernachlässigt werden, da sie relativ zur gewählten Versuchsdauer kurz sind. Die acht getesteten Parametersets sind Tab. 5.8 und Tab. 5.9 zusammengefasst.

Tab. 5.8: Versuchsbedingungen bei den Abriebs- und Bruchversuchen im Zyklon (Experimente 1-4)

	Exp. 1	Exp. 2	Exp. 3	Exp. 4
Material	1	1	2	2
Partikelgröße x [μm]	100-160	100-160	250-355	250-355
Äquivalenter Gasvolumen- strom in der ZWS \dot{V}_{Gas} [Nm^3/h]	225	325	225	325
Äquivalente Gasgeschw. im Riser $u_{\text{Gas,riser}}$ [m/s]	4,1	6,4	4,1	6,4
Gaseintrittsgeschw. Zyklon $u_{\text{Gas,in}}$ [m/s]	9,3	14,4	9,3	14,4
Feststoffbeladung μ [kg/kg]	4,5	5,0	2,3	5,1
Saccharosemasse $m_{\text{solid,in}}$ [kg]	2,4	4,2	1,2	4,3

Tab. 5.9: Versuchsbedingungen bei den Abriebs- und Bruchversuchen im Zyklon (Experimente 5-8)

	Exp. 5	Exp. 6	Exp. 7	Exp. 8
Material	4	4	3	3
Partikelgröße x [μm]	250-355	250-355	100-180	100-180
Äquivalenter Gasvolumen- strom in der ZWS \dot{V}_{Gas} [Nm^3/h]	225	325	225	325
Äquivalente Gasgeschw. im Riser $u_{\text{Gas,riser}}$ [m/s]	4,1	6,4	4,1	6,4
Gaseintrittsgeschw. Zyklon $u_{\text{Gas,in}}$ [m/s]	9,3	14,4	9,3	14,4
Feststoffbeladung μ [kg/kg]	2,3	5,1	4,5	5,0
Saccharosemasse $m_{\text{solid,in}}$ [kg]	1,2	4,3	2,4	4,2

Quantifizierung des Abriebs

Es wird angenommen, dass Partikel kleiner $25 \mu\text{m}$ ausschließlich durch Abrieb erzeugt werden. Dementsprechend kann die Masse dieser Partikel durch Wiegen der

Filterblätter vor und nach jedem Zyklondurchlauf bestimmt werden. Die Abriebsrate r_z ergibt sich dann aus dem Quotienten der Masse, die durch Abrieb erzeugt wurde und der gesamten eingesetzten Partikelmasse.

$$r_z = \frac{\Delta m_{\text{filter}}}{m_{\text{cyclone,in}}} \quad (5.1)$$

Unter normalen Umgebungsbedingungen wird das Filtergewicht in signifikantem Maße durch die vorliegende Luftfeuchtigkeit beeinflusst. Die Saccharose selbst sowie das Filtermaterial (glasfaserbasiert) sind stark hygroskopisch. Um die Messfehler durch Feuchte auszuschließen, werden die Filter nach einem standardisierten Verfahren unter reproduzierbaren Bedingungen gewogen.

Die Filterblätter werden für mindestens 24 h in einem Trockenschrank über einem Bett aus Silikagel bei 90 °C getrocknet. Für den Transport zur Waage wird ein mit Silikagel befüllter Exsikkator verwendet. Die Waage befindet sich in einer mit Silikagel ausgestatteten Glovebox. Die Glovebox wird nach Überführung der Filter für mindestens 12 h geschlossen gehalten, bevor die Wägung erfolgt. Die Wägung selber erfolgt mit einer Digitalwaage mit einer Genauigkeit von 1 Mikrogramm. Ebenso wie die mit Partikeln belegten Filterblätter werden die unbenutzten Filterblätter nach der gleichen Prozedur individuell verwogen, um Fehler durch Gewichtsschwankungen der Filterblätter zu vermeiden.

Quantifizierung der Brucheffekte

Während der Durchführung der Versuchsreihen wurde nach jedem Zyklondurchgang eine Probe der Partikeln aus der Zykloneinlaufstrecke gezogen. 30 Sekunden nach Start der Schüttelrinne wurde die Probe mit einem kleinen Probennahmegefäß direkt aus dem Partikelstrom am Ende der Schüttelrinne entnommen. Während dieser Zeit wurde der Partikelstrom im Zyklon für kurze Zeit (1-2 sec) unterbrochen. Die Probenmasse betrug jeweils ca. 5 g, sodass durch den Eingriff kein signifikanter Effekt auf das Versuchsergebnis zu erwarten ist. Die Proben wurden für mindestens 24 h bei 80 °C im Trockenschrank getrocknet und mittels Laserbeugung in Isopropanol dispergiert vermessen.

5.3.2.2 Teststand mit blasenbildender Wirbelschicht

Eine schematische Skizze des Versuchsaufbaus ist in Abb. 5.15 dargestellt. Die Kernkomponente des Aufbaus ist ein Wirbelschichtgefäß mit einem inneren Durchmesser von 50 mm und einer Länge von 1000 mm, das in einen Schwerkraftabscheider mit einem Durchmesser von 150 mm übergeht. Ein Probenahmestutzen mit einem Innendurchmesser von 8 mm befindet sich 100 mm über dem aus einer Sintermetallfritte bestehenden Gasverteilerboden.

Es wird trockene Luft als Fluidisationsgas eingesetzt, die über einen Volumenstromregler eingestellt werden kann. Hinter dem Schwerkraftabscheider folgt eine Filtersektion mit zwei im Betrieb wechselbaren Filtern. In die Filtereinheit kann während des Betriebs der jeweils anderen Einheit ein glasfaserbasiertes Filterblatt mit 200 mm Durchmesser gewechselt werden.

Ablagerungen bestehend aus Feinstpartikeln (Abrieb), die sich an der Wand des Wirbelbetts und des Schwerkraftabscheiders anlagern, werden kontinuierlich durch pneumatische Rüttler und Klopfer abgereinigt.

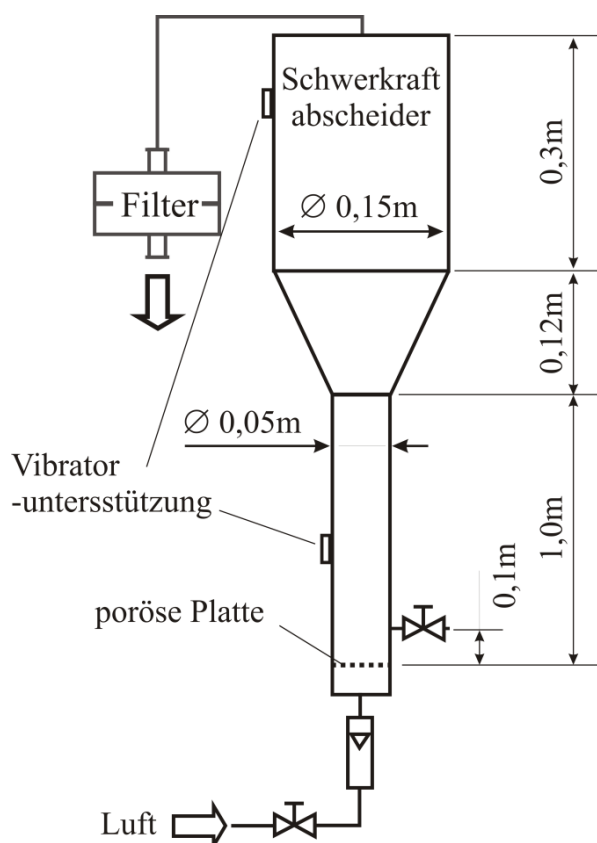


Abb. 5.15: Skizze des Versuchsaufbaus zum Abrieb und Bruch in der blasenbildenden Wirbelschicht

Für jeden Versuch wurden 250 g Saccharosepartikel in die Wirbelschicht gefüllt. Hierfür wurde der Flansch zwischen Wirbelschichtsektion und Schwerkraftabscheider geöffnet. Nach dem Start der Fluidisation wurden Proben über den Probenahmestutzen nach 0,25 h, 1 h, 2 h, 4 h, 6 h, 8 h, 16 h sowie 24 h genommen. Zusätzlich wurde das Filterblatt nach 0,25 h, 1 h, 2 h und dann nach jeweils weiteren 2 h bis zum Ende des Experiments gewechselt. Jedes Experiment dauerte 24 h.

Versuchsbedingungen

Die Versuchsbedingungen sind in Tab. 5.10 zusammengefasst. Die Versuche wurden mit den Materialien Nr. 3 und Nr. 4 durchgeführt, die als repräsentativ für das

durchgeführte Versuchsspektrum im ZWS-Granulator erachtet werden. Alle Versuche wurden im blasenbildenden Regime durchgeführt.

Tab. 5.10: Versuchsbedingungen bei den Abriebs- und Bruchversuchen in der blasenbildenden Wirbelschicht (Experimente 9-13)

	Exp. 9	Exp. 10	Exp. 11	Exp. 12	Exp. 13
Material	4	4	3	3	4
Partikelgröße x [μm]	250-355	250-355	100-180	100-180	250-355
Gasgeschw. u_{in} [m/s]	1,08	0,11	0,27	0,02	0,6
Rel. Gasgeschw. $u_{\text{in}}/u_{\text{mf}}$ [-]	30	3	41	3	17
Gasvolumenstrom \dot{V}_{in} [NI/min]	127,2	12,72	31,8	2,23	70,7

Die eingestellten Gasgeschwindigkeiten waren die Austragsgeschwindigkeiten der feinsten Partikel der jeweiligen Siebfraction und die dreifache gemessene Minimalfluidisationsgeschwindigkeit. In Versuch 13 wurde nur Abrieb vermessen, d.h. kein Bruch.

Die Gasgeschwindigkeiten während der Versuche im blasenbildenden Regime waren dementsprechend bis zu über eine Größenordnung kleiner als im ZWS-Granulator. Entsprechend den abgeleiteten Korrelationen für den gemessenen Abrieb wurden diese Werte auf relevante Geschwindigkeiten des ZWS-Granulators extrapoliert.

Quantifizierung von Bruch

Während der Versuche wurden die Proben über den Probennahmestutzen genommen. Das Totvolumen des Stutzens ist während der Versuche nicht fluidisiert und es findet kein Materialaustausch mit dem Wirbelbett statt. Dementsprechend erfolgte die Probenahme durch das Entnehmen von zwei Einzelproben hintereinander, von denen die erste verworfen wurde. Die Proben wurden für 24h im Trockenschrank bei 90°C über einem Silicagel-Bett getrocknet. Die Partikelgrößenbestimmung erfolgte dispergiert in Isopropanol mittels Laserbeugung.

Quantifizierung von Abrieb

Die durch Abrieb generierte Masse an Feinstpartikeln wurde durch die Wägung der Filterblätter vor und nach dem Einsatz im Versuch bestimmt. Die Wiegeprozedur erfolgte analog der für die Zyklonversuche in 5.3.2.1 beschriebenen. Die Abriebsrate in der blasenbildenden Wirbelschicht ergibt sich analog zu der im Zyklon zu:

$$r_b = \frac{\Delta m_{filter}}{m_{bed} \cdot \Delta t} \quad (5.2)$$

In Abgrenzung zu den Zyklonversuchen ist die Abriebsrate hier auf eine Zeitbasis bezogen. Mit der Annahme, dass Partikel im Filter in der Anfahrphase des Versuchs durch Austrag von Feingut und durch Abrieb generiert wurden, wird die jeweils erste Messung verworfen.

6 Ergebnisse

6.1 Granulation / Agglomeration in der ZWS

In diesem Teil der Arbeit werden Versuche in einem ZWS-Granulator im Technikumsmaßstab betrachtet. Saccharose-Partikel und eine 60 Gew.-% wässrige Saccharoselösung werden als Modellsystem verwendet. Es wird der Einfluss verschiedener Parameter, insbesondere der Wirbelgasgeschwindigkeit, der vorgelegten Bettmasse, der Eindüseposition im Riser und der Menge der eingedüsten Lösung sowie deren Tropfengrößenverteilung auf die verschiedenen Betriebszustände und die entstehenden Granulate / Agglomerate betrachtet. Die hier präsentierten Messdaten wurden insbesondere im Rahmen der Bachelorarbeit von Yager FIRAT [113] sowie den Diplomarbeiten von Tom KALDA [42] und Andreas BUCK [13] gewonnen.

6.1.1 Temperatur

Die Temperatur entlang des Risers (gemessen auf der Rotationsachse) war für alle Versuche annähernd konstant. Nur unterhalb der jeweiligen Eindüsungsstelle war die Temperatur ca. 2-3 °C höher und in den ersten ca. 500 mm oberhalb der jeweiligen Eindüsungsstelle ca. 3-4 °C niedriger als im restlichen Verlauf des Risers.

Exemplarisch ist die zeitliche Entwicklung der Temperaturprofile im Riser nach dem Start der Eindüsung für zwei Versuche mit einer Gasgeschwindigkeit von 4,1 m/s, einer Gastemperatur am Eintritt von 85 °C und einem ZWS-Inventar von 12,5 kg sowie einer Sprühdosis von 88 g/min 60 Gew.-% Saccharoselösung in Abb. 6.1 wiedergegeben. Die Eindüsung erfolgte zentrisch aufwärts. Die Eindüsung beginnt kurz vor Erreichen der Zieltemperatur zwischen 60 und 65 °C.

Die Versuche unterscheiden sich nur in der unterschiedlichen Position der Düse. Die obere Abbildung zeigt die zeitliche Entwicklung für die Sprühposition 500 mm, die untere Abbildung zeigt die zeitliche Entwicklung für die Sprühposition 1500 mm über dem Verteilerboden. In beiden Fällen ist die leicht erhöhte Temperatur unterhalb der jeweiligen Eindüsungsstelle zu beobachten, die damit erklärt werden kann, dass hier noch keine Feuchtigkeit im System ist, die die Temperatur durch Verdunstung herabsetzt. Nach Eindüsung der Saccharoselösung sinkt die Temperatur innerhalb von 1 bis 3 m nach der Eindüsungsstelle auf einen konstanten Wert, der sich bis zum Ende des Risers nicht mehr verändert. Kurz oberhalb der Eindüsungsstelle sind die Temperatursensoren wandbündig positioniert, um eine Verbackung mit oberflächenfeuchten Partikeln zu unterbinden. An allen anderen Stellen sind sie ca. 20 mm den Riser eingetaucht. In Untersuchungen in einem 100 mm Riser konnte gezeigt werden, dass die Temperaturen in Zentrum um ca. 1-2 °C über den Temperaturen an der Wand liegen (XU ET AL. [112], eine Zeichnung der entsprechende Risergeometrie befindet sich in Appendix D, Kap. 13.1).

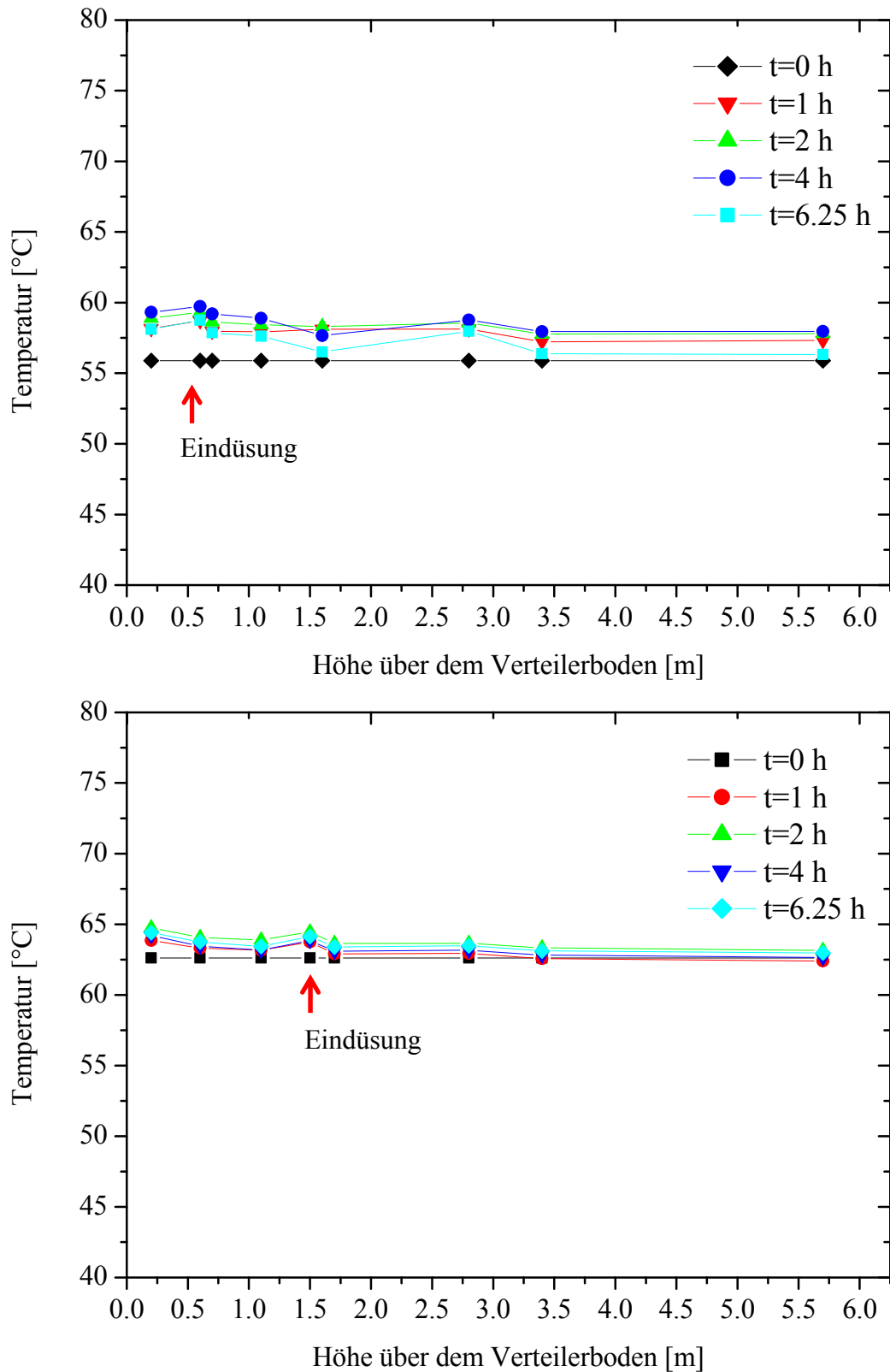


Abb. 6.1: Zeitliche Entwicklung der Temperaturprofile im Riser nach dem Start der Eindüsung, Gasgeschw.: 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C; ZWS-Inventar (Start): 12,5 kg; Sprütrate: 88 g/min 60 Gew.-% Saccharose; oben: Sprühposition 500 mm über dem Gasverteilerboden, unten: Sprühposition 1500 mm über dem Gasverteilerboden

Um einen möglichen Einfluss verschiedener Eindüsungsmengen zu charakterisieren, sind in Abb. 6.2 die Temperaturverläufe im Riser über der Zeit für die Eindüsung bei Sprühdosen von 44 g/min bzw. 110 g/min wiedergegeben. Die Eindüsungposition war in beiden Fällen 500 mm zentral aufwärts.

Die Gaseintrittstemperatur wurde für alle Versuche konstant auf ca. 80 °C gesetzt. Hieraus resultierte je nach eingedüster Saccharoselösungsmenge, bzw. zu verdampfenden Wasseranteil eine leicht erniedrigte Gasaustrittstemperatur.

Die Temperaturen des Risers zu Beginn des Eindüsevorgangs variieren, so ist die Anlage im Fall der Eindüsung von 44 g/min Saccharoselösung auf ca. 60 °C aufgeheizt während die Anlage im Fall der Eindüsung von 110 g/min Saccharoselösung auf ca. 75 °C aufgeheizt ist. Die Temperatur nimmt im Fall der Eindüsung mit 44 g/min (Abb. 6.2 oben) mit dem Versuchsverlauf zu und erreicht einen stationären Zustand bei Werten von 60-65 °C. Im Falle der Eindüsung mit 110 g/min (Abb. 6.2 unten) fällt die Temperatur auf Werte um 50-55 °C. Die letzte Messung $t=8,25$ h erfolgte jeweils ca. 10-15 min nach Beendigung des Eindüsungsvorganges und zeigt die Temperatur zum Zeitpunkt der Materialausschleusung aus dem System. In beiden Fällen ist diese Temperatur wieder dicht an den Startwerten zu Beginn der Eindüsung.

Im unteren Bereich des Risers sind die Temperatursensoren wandbündig und somit die angezeigten Temperaturen ca. 2-3 °C niedriger als die der im oberen Bereich zentrisch angeordneten Sensoren. Der Verlauf der Temperaturprofile längs der Rotationsachse zu einem Zeitpunkt t zeigen keinen wesentlichen Einfluss der Sprühdose. Insbesondere im Vergleich mit Abb. 6.1. sind die Unterschiede in den Temperaturgradienten an der Eindüsstelle im Rahmen der Messgenauigkeit des Temperaturmesssystems vergleichbar.

Wie aus Abb. 6.1 und Abb. 6.2 zu ersehen ist, bewegen sich die Schwankungen der sich einstellenden Gasaustrittstemperaturen im stationären Zustand jeweils im Bereich der Messgenauigkeit. Eine grobe Abschätzung der Temperaturerniedrigung trockener Luft aufgrund der Verdampfung des Wasseranteils der Saccharoselösung für den Betriebsbereich des ZWS-Granulators befindet sich in Tab. 6.1.

Tab. 6.1: Rechnerischer Temperaturabfall trockener Fluidisierluft durch Verdunstung und Aufheizung

Gasgeschwindigkeit Luft trocken 80°C [m/s]	Massenstrom Luft trocken 80°C [kg/s]	Sprühdose Saccharoselösung [g/min]	rechnerischer Temperaturabfall [K]
4,1	0,07	44	9,3
4,1	0,07	88	18,5
4,1	0,07	110	23,0
6,3	0,11	44	6,1
6,3	0,11	88	12,1
6,3	0,11	110	15,1

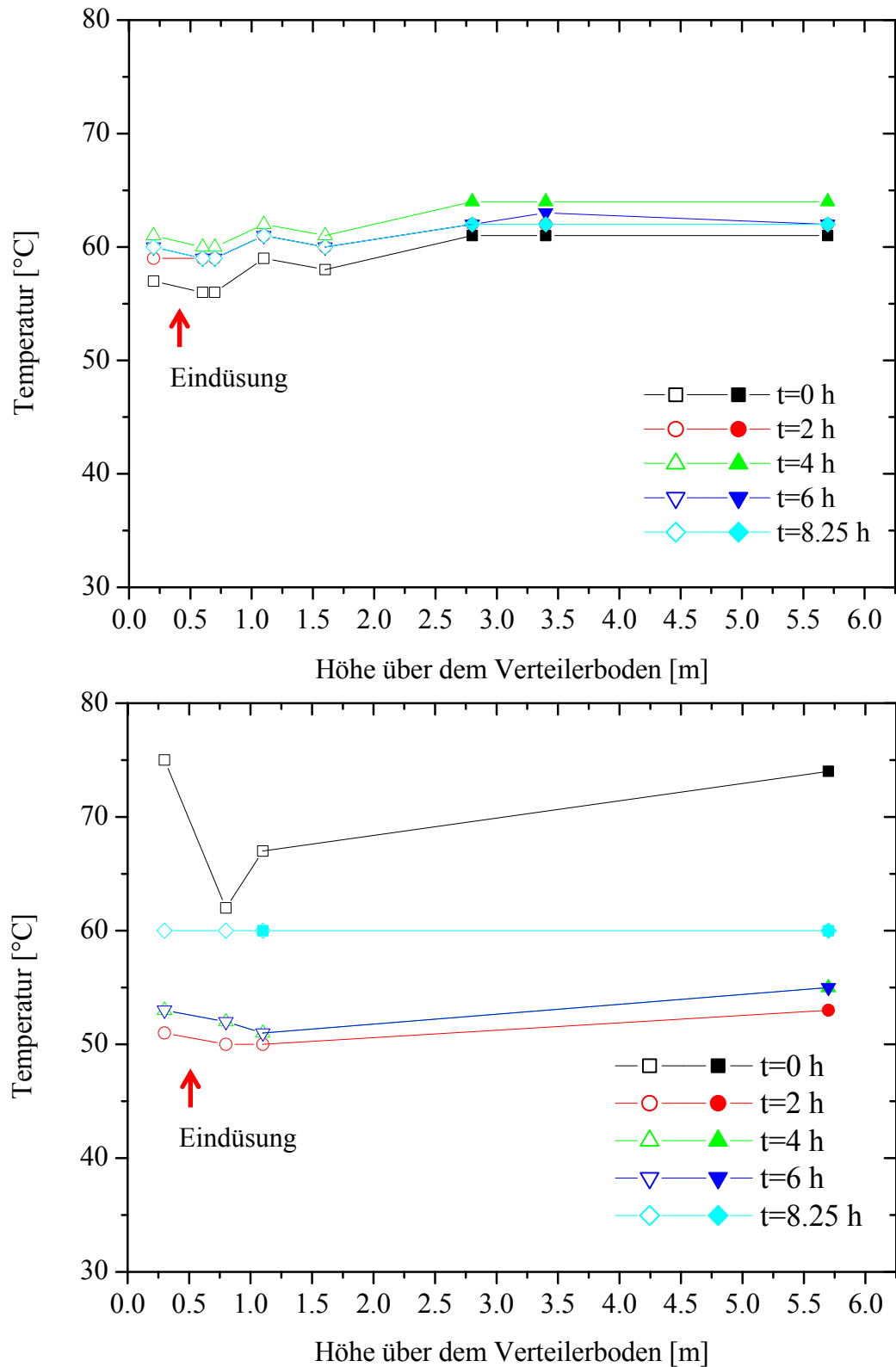


Abb. 6.2: Zeitliche Entwicklung der Temperaturprofile im Riser nach dem Start der Eindüsung, Gasgeschw.: 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C; ZWS-Inventar (Start): 12,5 kg; Sprühposition 500mm über dem Verteilerboden; oben: Sprühdosis: 44 g/min 60 Gew.-%, unten: Sprühdosis: 110 g/min 60 Gew.-%

Hierbei ist zu beachten, dass für die Versuche (teil-) feuchte Umgebungsluft verwendet wurde und die realen Temperaturerniedrigungen unterschiedlich stark von den berechneten Werten abweichen können.

Ein Vergleich der Versuche in Abb. 6.2 mit 44g/min bzw. 110 g/min Eindüsungsrate zeigt Gasaustrittstemperaturen von ca. 64 °C bzw. 53 °C. Der Temperaturunterschied der Gasaustrittstemperaturen im nicht adiabaten System beträgt damit ca. 11 °C und zeigt eine gute Übereinstimmung mit dem entsprechenden theoretischen Wert von 13,7 °C für ein ideales adiabates System (vgl. Tab. 6.1).

Für alle Versuche erreichten die Temperaturen nach 60 bis 90 Minuten einen stationären Zustand. Es erfolgten keine Temperaturänderungen mit der Zeit, bis die Eindüsung beendet wurde. Nach Beendigung der Eindüsung, d.h. in den letzten 15 Minuten, in denen das Material nur noch getrocknet wird, steigt die Temperatur wieder auf die Eintrittstemperatur an. Das Temperaturprofil im Riser homogenisiert sich wieder. Es zeigt sich, dass die Wärmekapazität des Feststoffes in allen Versuchen die lokale Abkühlung in der Eindüsungszone bzw. die lokale Aufheizung am Gasverteilerboden deutlich herabsetzt und Temperaturspitzen vermeidet.

6.1.2 Druckmessungen

Für alle Versuche im ZWS-Granulator ist der zeitliche Verlauf des Druckverlustes über den Riser entsprechend dem sägezahnähnlichen Profil in Abb. 6.3 charakteristisch. Exemplarisch soll dies an Versuchen mit der Gasgeschwindigkeit von 4,2 m/s, der Gaseintrittstemperatur von 85 °C sowie einem Bettinventar von 12,5 kg zum Start der Versuche dargestellt werden. Die Sprührate beträgt in beiden Fällen 88 g/min 60 Gew.-% Saccharoselösung, wobei die Eindüsung in Abb. 6.3 oben auf der Sprühposition 500 mm sowie unten auf der Sprühposition 1500mm erfolgt (vgl. Temperaturprofile in Abb. 6.1). Der Druckverlust ist hierbei proportional zur Bettmasse im Riser, die Eindüsung erfolgt kontinuierlich, die Ausschleusung von Bettmaterial in Zyklen von 30 Minuten. Dementsprechend steigt der Druckverlust mit der eingedüsten Saccharosemasse an. Innerhalb der 30 Minuten werden ca. 1,58 kg Saccharose eingedüst, was einem theoretischen Druckverlustanstieg von 8,8 mbar entsprechen würde, wenn sich das gesamte zusätzliche Material im Riser befinden würde. Praktisch fungieren Riser und Downcomer als kommunizierende Röhren mit einem Flächenverhältnis von ca. 7:3. Mit der entsprechenden Aufteilung der zusätzlichen Masse ergibt sich rechnerisch ein Druckanstieg von 6,15 mbar im Riser was im Rahmen der Messgenauigkeit durch die Druckmessungen bestätigt wird.

In Abb. 6.4 sind die beiden Druckprofilverläufe aus Abb. 6.3 über die Z-Achse des Risers dargestellt. Sie zeigen die zeitliche Entwicklung des Druckgradientenprofils der Risersektion des ZWS-Versuchsstands bzw. der entsprechenden Feststoffvolumenkonzentration c_v . Die beiden dargestellten Versuche unterscheiden sich nur in der Eindüsungsposition und einer damit einhergehenden unterschiedlichen Partikelgrößenentwicklung.

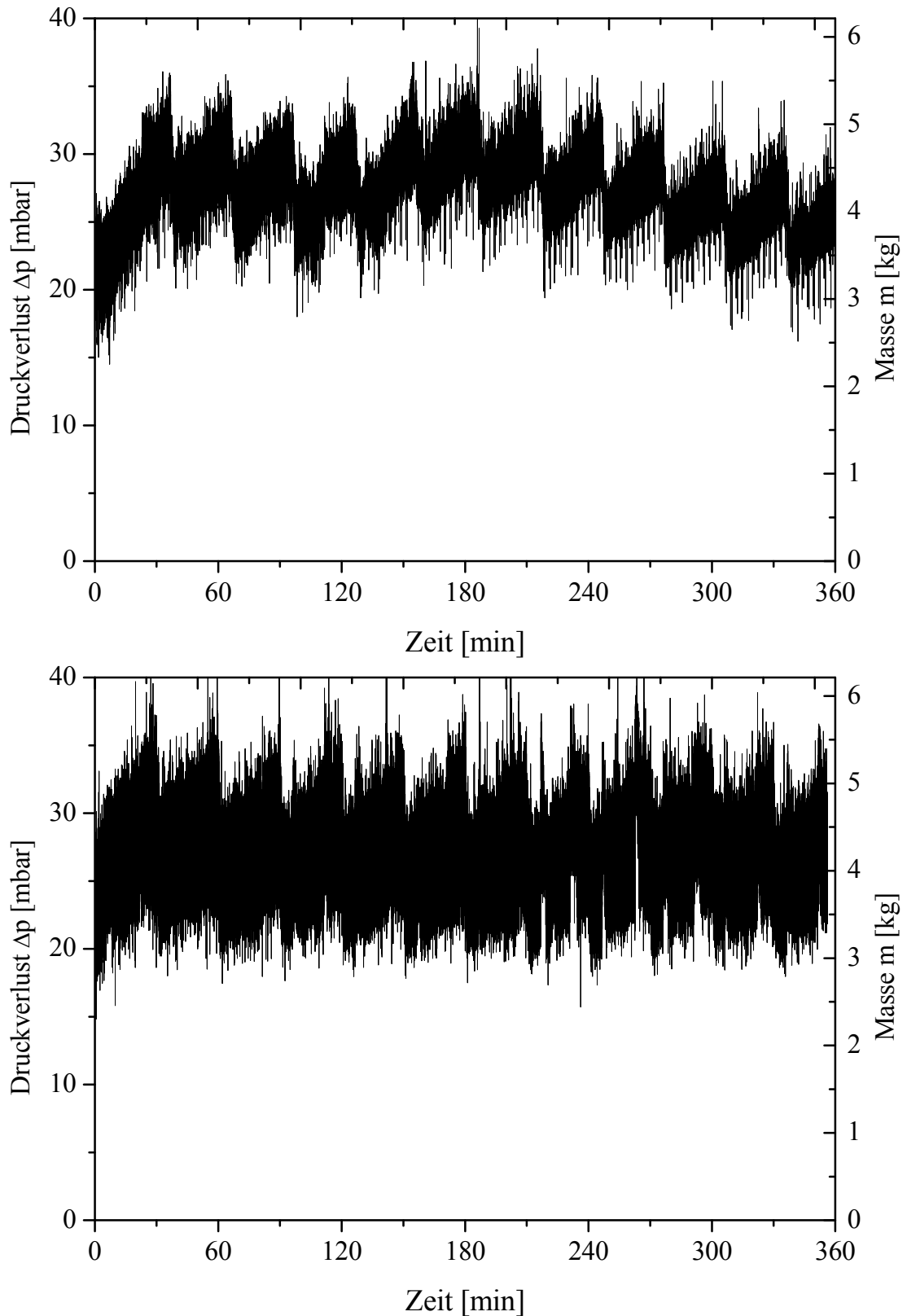


Abb. 6.3: Zeitabhängiger Druckverlustverlauf im Riser bzw. zeitliche Entwicklung der entsprechenden Bettmasse nach dem Start der Eindüsung: Gasgeschw.: 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C; ZWS-Inventar (Start): 12,5 kg; Sprütrate: 88 g/min 60 Gew.-%; oben: Sprühposition 500 mm; unten: Sprühposition 1500 mm.

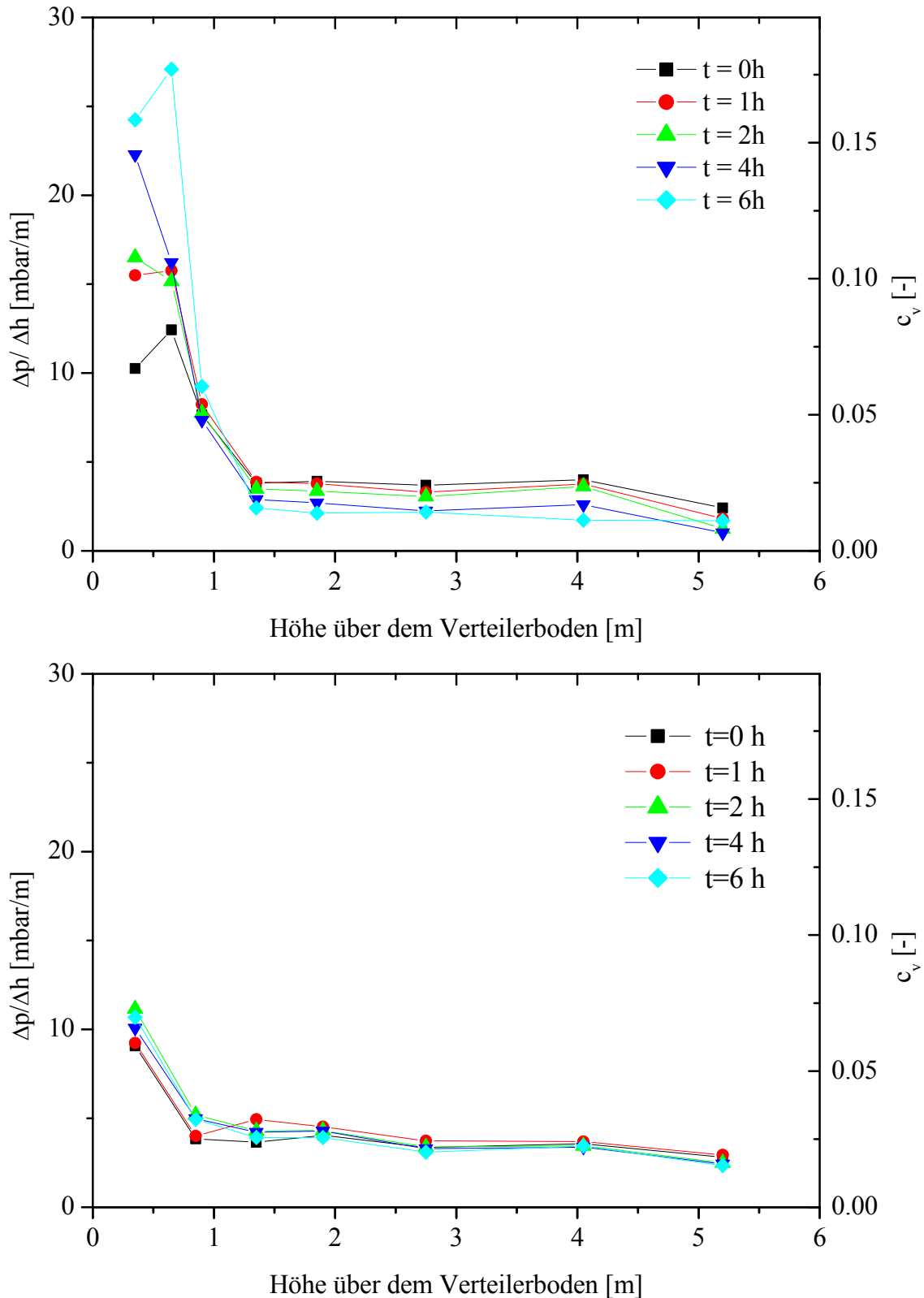


Abb. 6.4: Zeitliche Entwicklung des Druckgradientenprofils des Risers bzw. der entsprechenden Feststoffvolumenkonzentration c_v nach dem Start der Eindüsung, Gasgeschw.: 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C; ZWS-Inventar (Start): 12,5 kg, Sprührate: 88 g/min 60 Gew.-%; oben: Sprühposition 500 mm, unten: Sprühposition 1500 mm

Die Gasgeschwindigkeit beträgt für beide Versuche 4,2 m/s, die Eintrittsgastemperatur 80 °C, das ZWS-Inventar 12,5 kg und die Sprührate 88 g/min 60 Gew.-% Saccharoselösung.

Im Falle der Sprühposition 500 mm über dem Verteilerboden (Abb. 6.4 oben) wachsen die Granulate von ca. 110 µm auf ca. 350 µm auf, im Falle der Sprühposition 1500 mm über dem Verteilerboden (Abb. 6.4 unten) von ca. 110 auf 150µm. Während sich die Druckgradientenprofile im letzteren Fall faktisch nicht verändern, weil die Korngrößenverteilung sich nicht oder nur unwesentlich verändert, kommt es bei der Sprühposition 500 µm zu einem deutlichen Partikelwachstum und dadurch zu einer verstärkten Ausbildung der dichten Bodenzone und gleichzeitiger Ausdünnung der dünnen oberen Zone bei konstantem Gesamtdruckverlust des Risers.

In Abb. 6.5 sind zwei Druckprofilverläufe über der Höhe über dem Verteilerboden dargestellt, die bei wesentlich unterschiedlichen Eindüsungsraten gemessen wurden. Sie zeigen ebenfalls die zeitliche Entwicklung des Druckgradientenprofils im Riser bzw. die zeitliche Entwicklung der entsprechenden Feststoffvolumenkonzentration c_v .

Die beiden dargestellten Versuche unterscheiden sich im Eindüsungsmassenstrom und einer damit einhergehenden unterschiedlichen Partikelgrößenentwicklung, wobei die Unterschiede in der Partikelgrößenentwicklung noch ausgeprägter sind als im vorangegangenen Fall. Die Gasgeschwindigkeit beträgt für beide Versuche 4,2 m/s, die Eintrittsgastemperatur 80 °C, das ZWS-Inventar 12,5 kg und die Sprührate 44 g/min bzw. 110 g/min 60 Gew.-% Saccharoselösung bei einer zentrisch aufwärtsgerichteten Eindüsung 1500 mm über dem Verteilerboden (vergl. Temperaturprofile Abb. 6.2).

Im Falle der Eindüsung mit 44 g/min wachsen die Granulate nicht auf, sondern verbleiben bei einer mittleren Korngröße von ca. 110 µm. Im Falle der Eindüsung mit 110 g/min dagegen wachsen die Granulate von ca. 110µm auf über 650µm auf. Während sich die Druckgradientenprofile im ersten Fall erwartungsgemäß nicht verändern, kommt es bei dem verstärkten Partikelwachstum zu einer verstärkten Ausbildung der dichten Bodenzone und gleichzeitig einer Ausdünnung der dünnen oberen Zone bei gleichem Gesamtdruckverlust des Risers.

Diese Effekte decken sich gut mit den Vorhersagen des Strömungsmechanikmodells aus Kapitel 4.2.1. Sie entsprechen den erwarteten Veränderungen der Strömungsmechanik und sind auf einen Segregationseffekt der großen Partikel zurückzuführen. Wachsen die Granulate weiter, geht das Bett in einen Zustand der turbulenten Fluidisation über, gleichzeitig sinken die Feststoffzirkulationsraten. Schließlich geht das Bett in ein blasenbildendes Regime über. Es erfolgt keine Feststoffzirkulation mehr und ein Teil des ZWS-Inventars, das sich nicht im Riser befindet, nimmt nicht mehr an der Granulation teil.

Die Versuche wurden spätestens zu dem Zeitpunkt beendet, an dem keine wesentliche Feststoffzirkulation mehr zu beobachten war. Als Indikator diente die visuelle Beurteilung der Zirkulation über das Sichtfenster am oberen Ende des Risers.

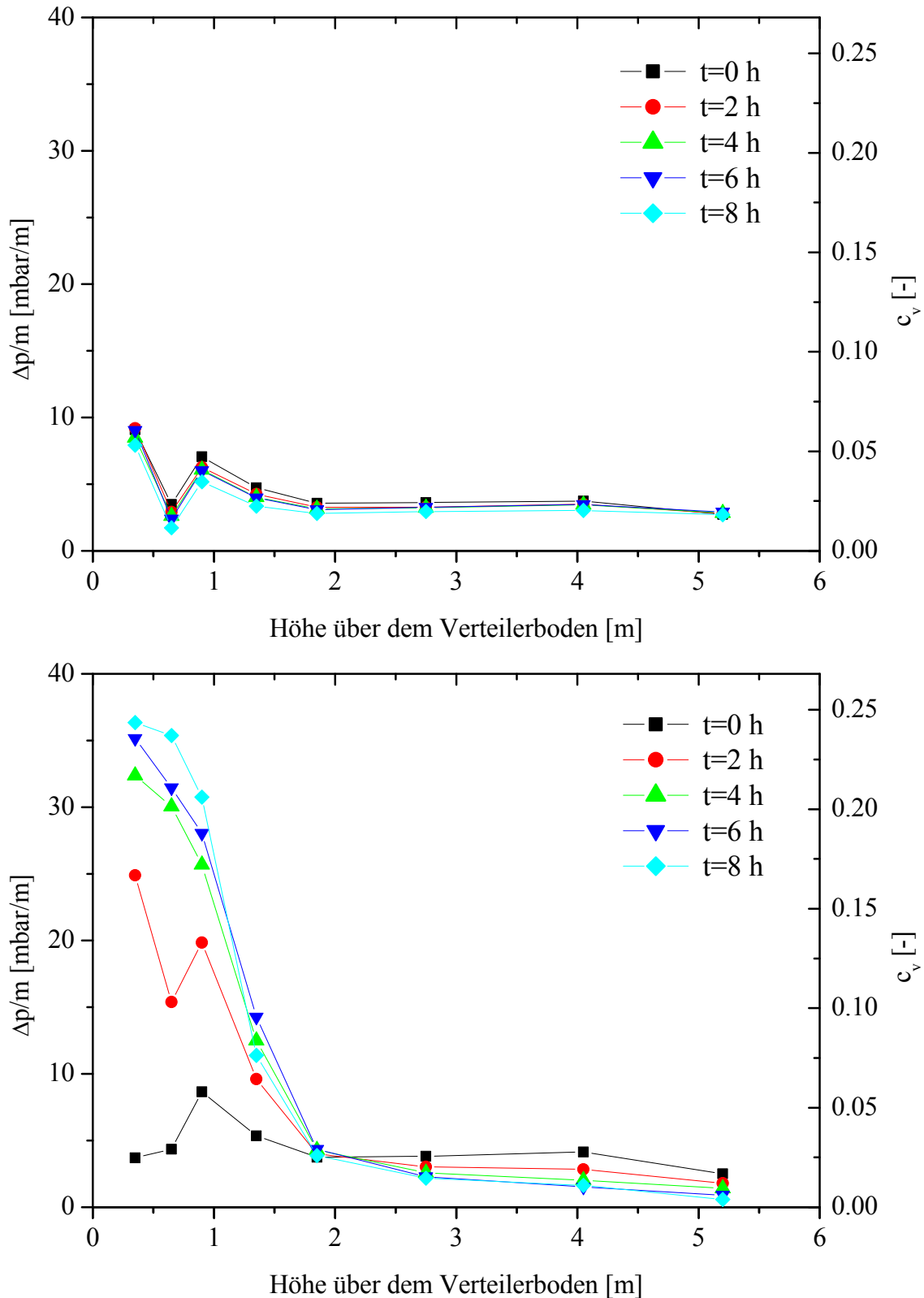


Abb. 6.5: Zeitliche Entwicklung des Druckgradientenprofils des Risers bzw. der entsprechenden Feststoffvolumenkonzentration c_v nach dem Start der Eindüsung, Gasgeschw.: 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C; ZWS-Inventar (Start): 12,5 kg, Sprühposition 500 mm; oben: Sprühhöhe 44 g/min 60 Gew.-%, unten: Sprühhöhe 110 g/min 60 Gew.-%

6.1.3 Partikelgröße

Abb. 6.6 zeigt die zu Abb. 6.4 gehörige Entwicklung der Partikelgrößenverteilung, Abb. 6.7 zeigt die entsprechende zu Abb. 6.5 gehörige Entwicklung der Partikelgrößenverteilung. Beide Abbildungspaare zeigen die sich verändernde Partikelgrößenverteilung im Granulator über der Zeit. Während im ersten Fall eine unterschiedliche Eindüsungsposition 500 mm bzw. 1500 mm über dem Verteilerboden (zentrisch aufwärts), ursächlich für die unterschiedlichen Entwicklungen der Partikelgrößenverteilung ist, sind dies im zweiten Fall unterschiedliche Eindüsungsraten von 44 g/min und 110 g/min auf 500 mm über dem Verteilerboden. Die Form der jeweiligen Partikelgrößenentwicklungen sind unabhängig vom variierten Parameter vergleichbar und die Entwicklung charakteristisch für kontinuierliche Prozesse (jeweils untere Abb.) und Batchprozesse (jeweils obere Abb.) und sollen am Beispiel von Abb. 6.7 diskutiert werden.

Aufgetragen ist die q_3 -Verteilung alle zwei Stunden ab Beginn des Sprühvorgangs. Die Versuche wurden mit einer Leerrohr Gasgeschwindigkeit von 4,2 m/s und einem Bettinventar von 12,5 kg betrieben. Im Falle der Sprütrate von 44 g/min (Abb. 6.7 unten) stellt sich nach ungefähr einer Stunde eine stationäre q_3 -Verteilung ein, so dass ein kontinuierlicher Betrieb möglich ist. Im Gegensatz hierzu wachsen die Partikel bei einer Sprütrate von 110 g/min kontinuierlich weiter, bis die Partikelzirkulation über die Zyklone zusammenbricht. Ein vergleichbarer Effekt ist in Abb. 6.6 dargestellt. Hier ist der ursächliche Unterschied die unterschiedliche Eindüseposition. Die Eindüsung in die dichte untere Zone (Abb. 6.6 oben) führt zu einem kontinuierlichen Wachsen der Partikel, die Eindüsung in die obere dünne Zone zu einem Übergang zu einer stationären, sich nicht wesentlich mit der Zeit ändernden Partikelgrößenverteilung.

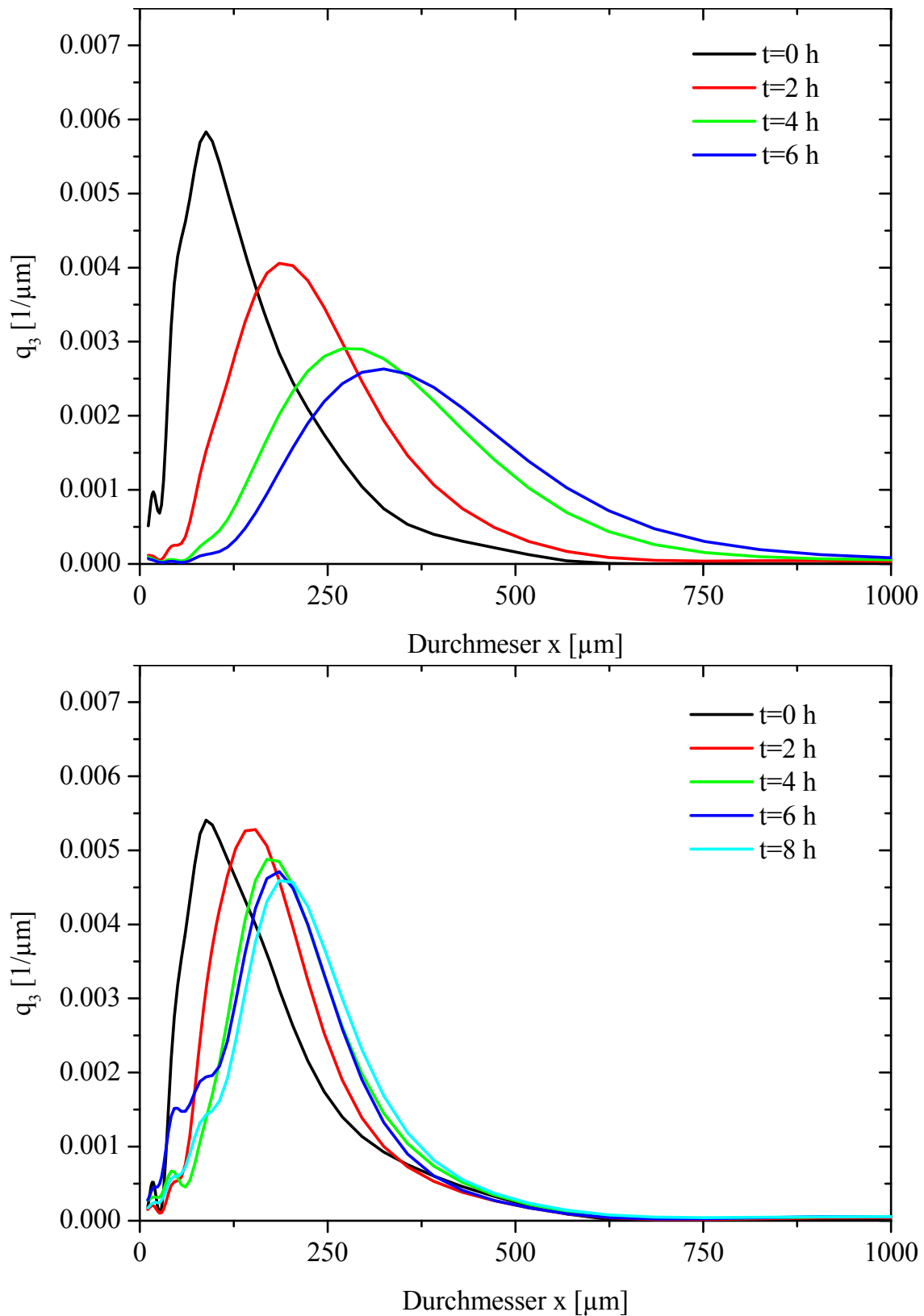


Abb. 6.6: Zeitliche Entwicklung der Massendichteverteilung $q_3(x_i)$ der Granulate in der ZWS nach dem Start der Eindüsung, Gasgeschw.: 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C, ZWS-Inventar (Start): 12,5 kg, Sprühdichte: 88 g/min 60 Gew.-%; oben: Sprühposition 500 mm, unten: Sprühposition 1500 mm

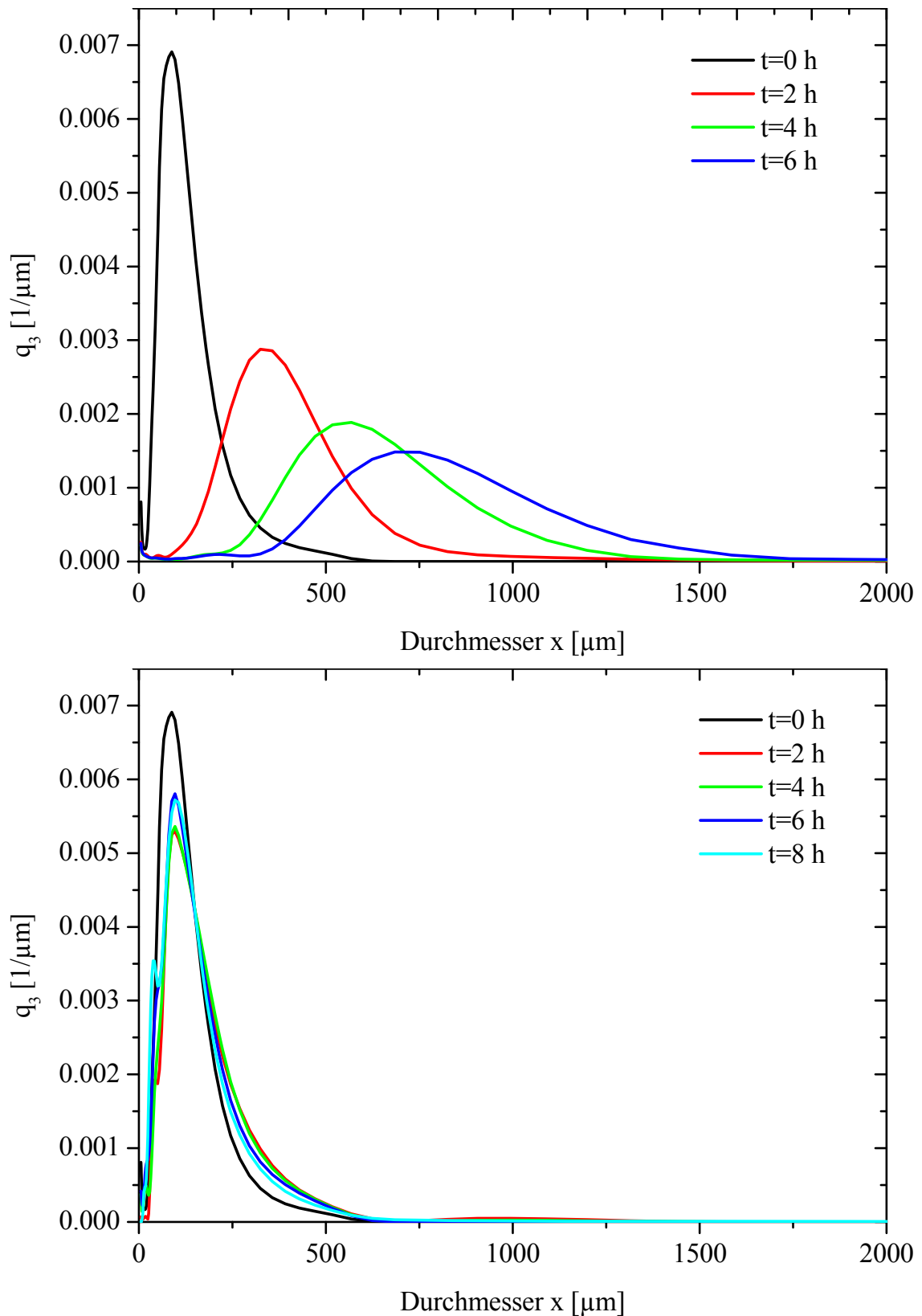


Abb. 6.7: Zeitliche Entwicklung der Massendichteverteilung $q_3(x_i)$ der Granulate in der ZWS nach dem Start der Eindüsung, Gasgeschw.: 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C, ZWS-Inventar (Start): 12,5 kg, Sprühposition 500 mm; oben: Sprühdichte 110 g/min 60 Gew.-% unten: Sprühdichte 44 g/min 60 Gew.-%

Da die Scharen an q_3 -Verteilungen beim Vergleichen verschiedener Versuche mit unterschiedlichen Betriebsparametern unübersichtlich sind, wird im Folgenden der mittlere Durchmesser x_{50} als repräsentativ für die Korngrößenverteilung angenommen.

Dies ist insoweit zulässig, da die Verteilungen weitestgehend monomodal sind. Dementsprechend sind sie gut mit Normalverteilungen anzunähern. Die Darstellung der Entwicklung der Partikelgrößen aus Abb. 6.6 (oben) mit Hilfe des mittleren Durchmessers x_{50} und des Sauterdurchmessers x_s ist exemplarisch in Abb. 6.8 wiedergegeben.

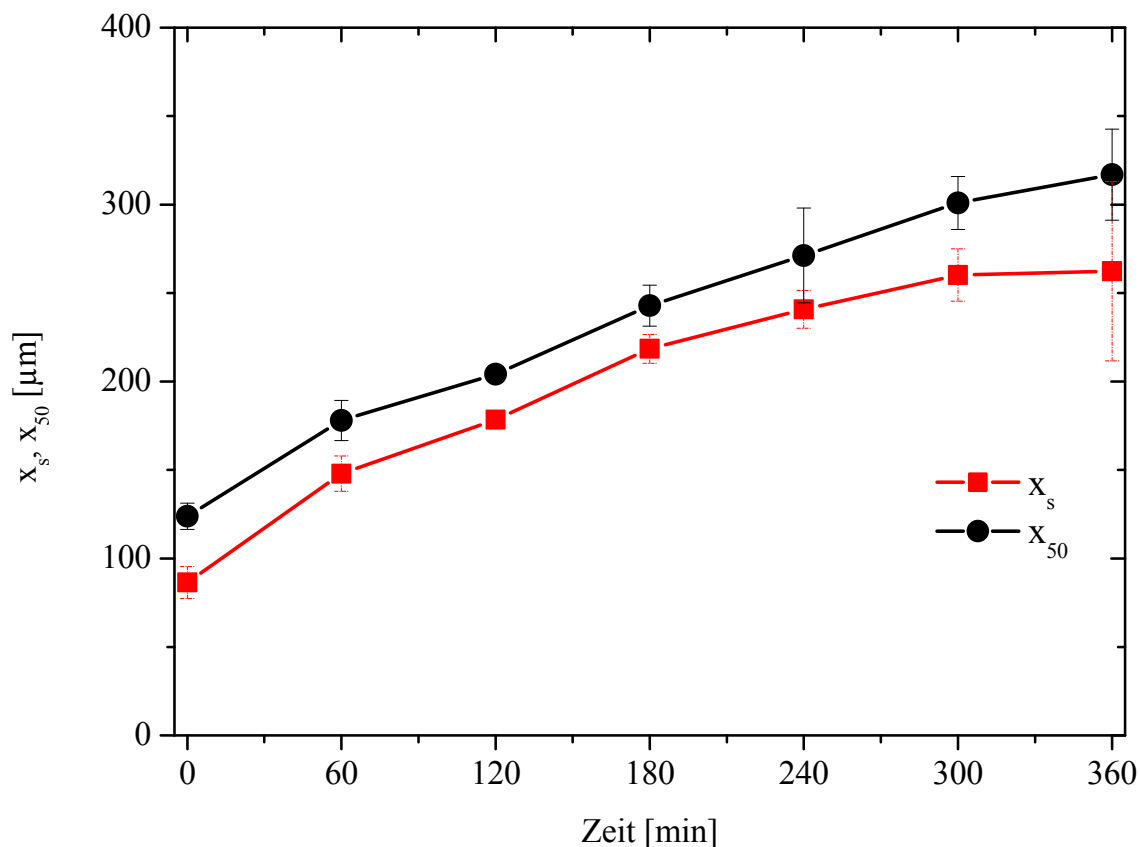


Abb. 6.8: Zeitliche Entwicklung des mittleren Durchmessers x_{50} und des Sauterdurchmessers x_s , Gasgeschw.: 4.2 m/s, Gastemp.: 85 °C, ZWS-Inventar (Start): 12.5 kg, Sprühdichte: 88 g/min 60 Gew.-%, Sprühposition 500 mm zentrisch aufwärts

Die folgenden Abb. 6.9 bis Abb. 6.13 zeigen die Entwicklung des mittleren Durchmessers x_{50} über der eingebrachten Masse m an Saccharose bzw. in Abhängigkeit des Massenstroms an eingedüster Saccharose, wobei beide Parameter einfach ineinander zu überführen sind:

$$m = t \cdot \dot{m} \quad (6.1)$$

Abb. 6.9 oben zeigt drei x_{50} -Verläufe über der eingedüster Saccharosemasse für Versuche mit einer Leerrohrgeschwindigkeit von 4,1 m/s, Gaseintrittstemperatur von 80 °C und Bettinventar von 12,5 kg. Die Sprühposition war 500 mm oberhalb des Gasverteilerbodens und die Eindüsungsrichtung zentrisch aufwärts. Variiert wurde die

Sprührate. Im Fall einer Sprührate von 44 g/min kam es praktisch zu keinem Partikelwachstum, das System war nach der ersten Stunde Eindüsung (1,58 kg Saccharose) in einem näherungsweise stationären Zustand, tendenziell sinkt der mittlere Durchmesser x_{50} sogar leicht mit der eingedüsten Menge Saccharose. Dies lässt sich teilweise durch destruktive Mechanismen wie Abrieb oder Bruch erklären.

Im Falle einer Sprührate von 88 g/min und 110 g/min wächst der mittlere Durchmesser x_{50} über die gesamte Versuchsdauer an, bis das Experiment gestoppt wird. Ein stationärer Zustand wird nicht erreicht werden. Eine größere Sprührate führt zu einem stärkeren Wachstum der Partikeln.

In Abb. 6.9 unten ist die Partikelgrößenentwicklung für die gleichen Betriebsbedingungen, aber mit seitlicher Eindüsung, auf 700 mm über dem Verteilerboden wiedergegeben. Alle drei Partikelgrößenentwicklungen zeigen ein stärkeres Partikelwachstum als die entsprechenden Versuche mit zentraler Eindüsung. Im Falle 88 g/min seitlich ergibt sich eine leicht erhöhte Wachstumsrate gegenüber dem Fall der 110 g/min seitlich. Insbesondere das Ergebnis im Fall der 110 g/min Eindüsung von der Seite ist kritisch zu hinterfragen und ggf. aus der Bewertung der Ergebnisse zu streichen, da sich einzelne übergroße Partikel im ausgebauten Bettmaterial befanden. Es ist davon auszugehen, dass das System an der Grenze eines stabilen Betriebsbereichs betrieben wurde.

Die Ursache für die größeren Wachstumsraten im Falle der seitlichen Eindüsung im Vergleich zur zentrischen Eindüsung liegt in der Strömungsstruktur im Riser des ZWS-Granulators. Charakteristisch für die horizontale Feststoffverteilung im Riser ist eine Kern-Ringströmung mit hoher Feststoffvolumenkonzentration in der Ringströmung und deutlich niedrigerer Feststoffvolumenkonzentration in der Kernströmung. Obwohl dieser Effekt in der dichten Bodenzone weniger stark ausgeprägt ist als in der dünnen oberen Zone, kann von der Existenz dieser strukturellen Unterscheide ausgegangen werden.

Bei der seitlichen Eindüsung in eine direkt vor der Düse dichtere Zone als bei der zentralen Eindüsung (in eine dünnere Zone) mit lokal mehr Partikeln pro Volumenelement und dementsprechend einer höheren Kollisionswahrscheinlichkeit ergibt sich auch eine erhöhte Kollisionswahrscheinlichkeit der oberflächenfeuchten Partikeln und es kann eine verstärkte Neigung zur Agglomeration abgeleitet werden.

Diese Annahme ist nur dann richtig wenn die Tropfen vollständig auf den Partikeln abgeschieden werden und nicht die gegenüberliegende Wand erreichen. Dies ist für den Fall der Eindüsung in die untere dichte Zone der Fall, nicht jedoch im Fall der Eindüsung in die obere dünne Zone. Es wurden keine Verbackungen im Riser gefunden, allerdings Überkorn im Fall der 110 g/min Eindüsung. Dies kann als Hinweis auf das Überschreiten der maximalen Eindüsungsmenge für einen stabilen Betrieb gedeutet werden.

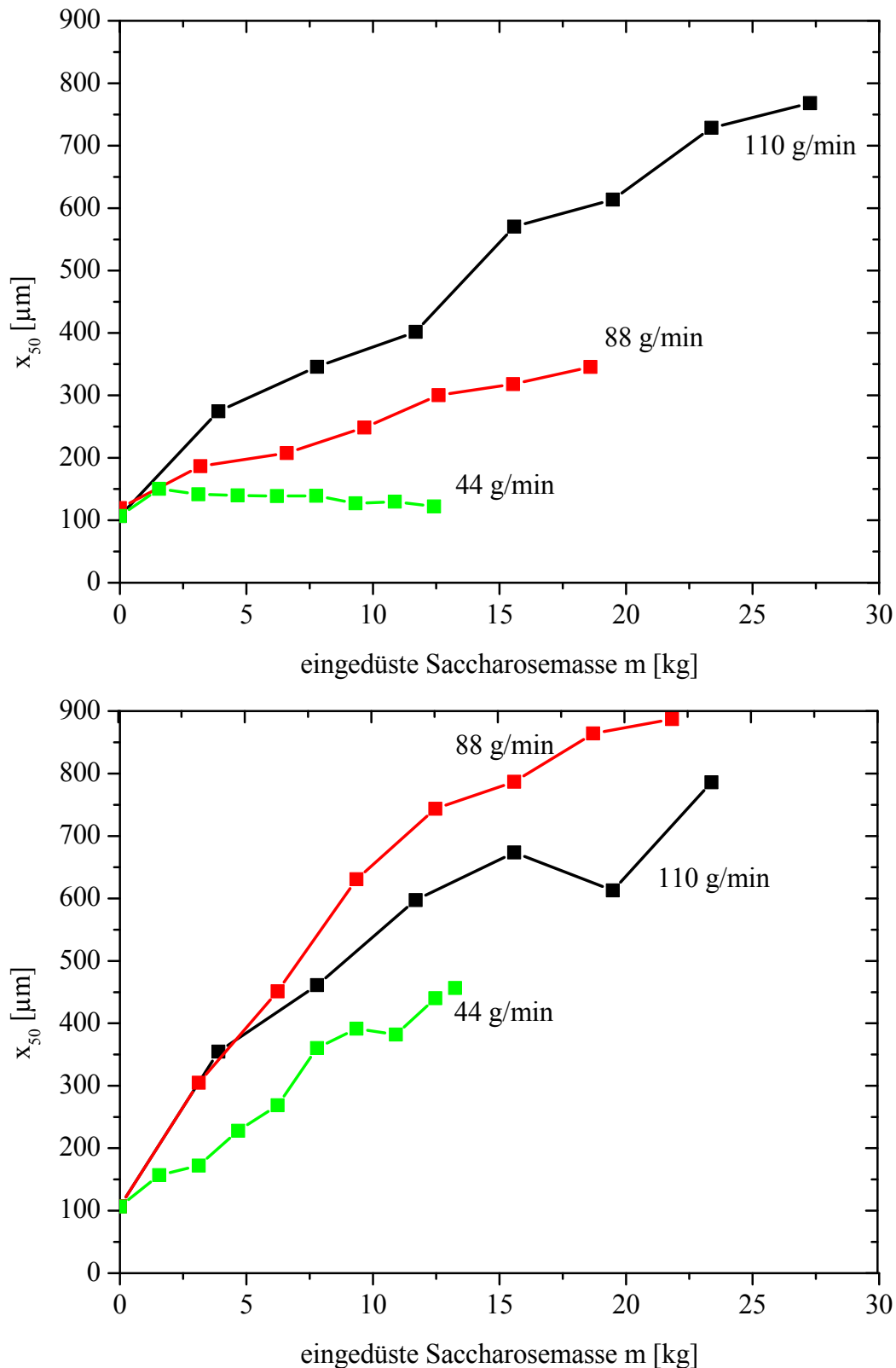


Abb. 6.9: Entwicklung des mittleren Durchmessers x_{50} in Abhängigkeit der Zeit bzw. des eingedüsten Massenstroms Saccharoselösung. Gasgeschw.: 4,1 m/s, Gastemp.: 80 °C, Inventar (Start): 12,5 kg; oben: Sprühposition: 500 mm zentral, unten: Sprühposition: 700 mm seitlich

Bei Versuchen mit seitlicher Eindüsung in die obere dünne Zone kam es in allen Fällen zum Ausfall des Systems innerhalb der ersten Stunde. Ein schnelles Aufwachsen von Verbackungen an der Wand gegenüber der Eindüsestelle erzwang den Abbruch der entsprechenden Versuche.

Als weiterer Parameter wurde die Tropfengröße bzw. der Dispergiergasstrom variiert. Der entsprechende Einfluss auf das Granulationsverhalten kann in Abb. 6.10 betrachtet werden. Die Experimente wurden mit einer Leerrohrgasgeschwindigkeit von 4,1 m/s, bei 80 °C Gaseintrittstemperatur und einem Bettinventar von 12,5 kg durchgeführt. Die Sprütrate betrug 88 g/min, die Eindüsungsposition war für die obere Abb. zentrisch aufwärts, 500 mm oberhalb des Gasverteilerbodens, also in der unteren dichten Zone des Risers. Die Variation des Dispergiergasstroms zwischen 4 und 1 Nm³/h entsprechend einer Variation des Tropfensauterdurchmessers zwischen 14 und 53 µm resultierte in einer Zunahme des Partikelwachstums mit steigendem Tropfendurchmesser. Für keinen der betrachteten Fälle wurde bei der Eindüsung in die untere dichte Zone ein stationärer Betrieb der Anlage erreicht. Die Partikel wuchsen jeweils bis zum Abbruch des Experiments. Wie in Kapitel 5.1.2 beschrieben, sind die Tropfen in allen Fällen kleiner als das Bettmaterial, demnach scheiden sie sich bei Kontakt mit diesen auf der Partikeloberfläche ab und spreiten. Die teilweise oberflächenfeuchten Partikel agglomerieren dann je nach Stoßbedingungen bei Partikelkontakt. Der Effekt, dass bei größeren Tropfen aufgrund größerer lokaler oberflächenfeuchter Partikeloberflächenanteile verstärkt Agglomeration auftritt, ist in Übereinstimmung mit dem Granulationsverhalten in blasenbildenden Wirbelschichten (vgl. UHLEMANN & MOERL [97], HEINRICH [28]).

Bei der Eindüsung in die obere verdünnte Zone, 1500 mm über dem Gasverteilerboden (Abb. 6.10 unten), existiert eine deutliche Abhängigkeit des Granulationsverhaltens von der Tropfengröße: bei 14 µm wird ein stationärer Zustand bei einem mittleren Partikeldurchmesser von ca. 130 µm erreicht, bei 16 µm wird ebenfalls ein stationärer Zustand erreicht diesmal jedoch bei einem mittleren Partikeldurchmesser von ca. 170 µm. Bei 24 µm Tropfengröße bleibt die mittlere Partikelgröße über die Versuchsdauer konstant bei etwa 125µm.

Der Einfluss der Gasgeschwindigkeit im Riser ist in Abb. 6.11 wiedergegeben. Die Versuche in der oberen Abb. wurden mit einem ZWS-Inventar von 12,5 kg, Sprühposition 500 mm zentral aufwärts über dem Verteilerboden, einer Sprütrate von 88 g/min und einem mittleren Tropfendurchmesser von 24 µm (entsprechend 3 Nm³/h Dispergiergasstrom) durchgeführt. Bei diesen Versuchen wurde die Gaseintrittstemperatur zwischen 73 und 80 °C angepasst um jeweils eine Betttemperatur von 65 °C zu erreichen. Die untere Kurvenschar gehört zur entsprechenden Eindüsung auf 1500 µm.

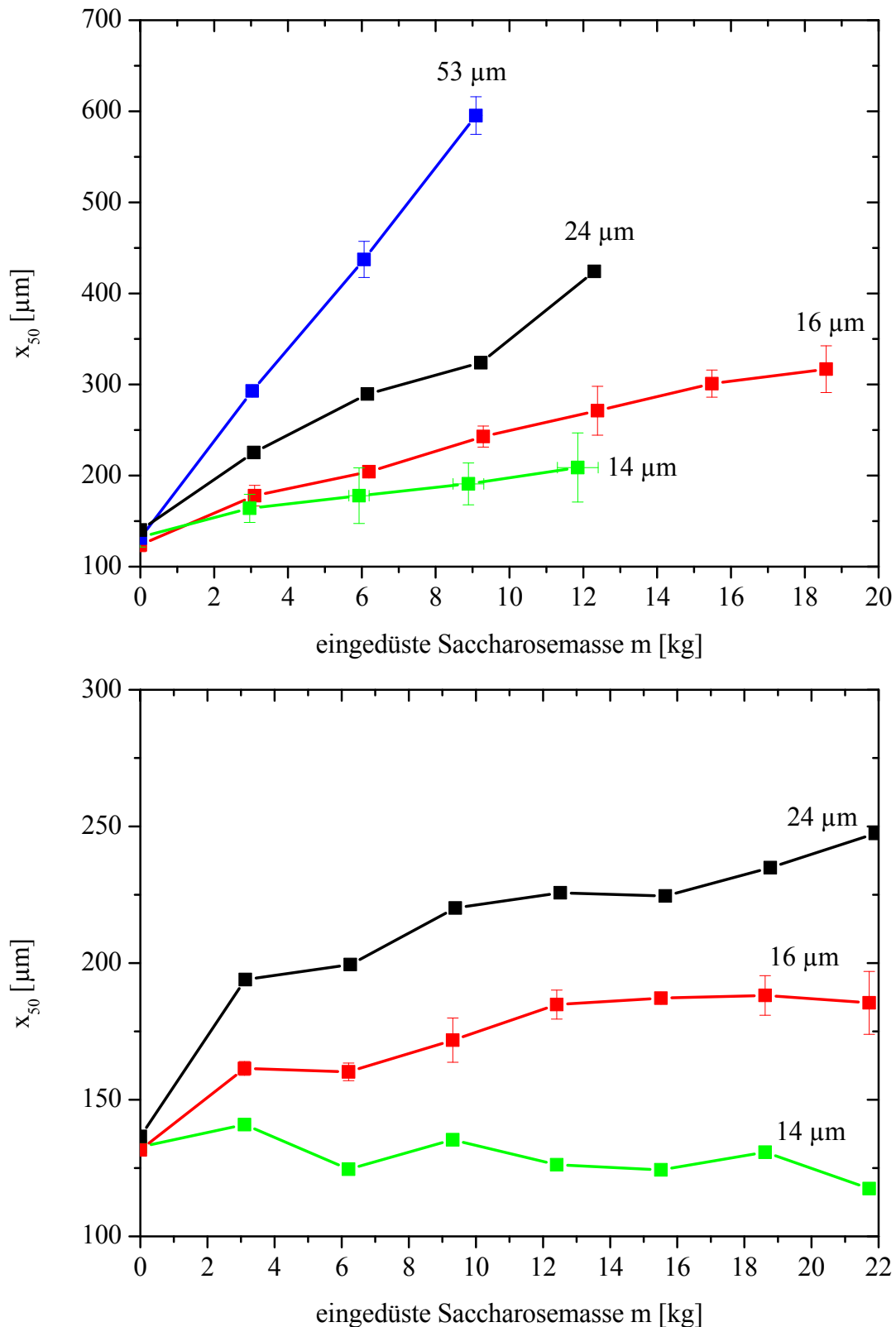


Abb. 6.10: Entwicklung des mittleren Durchmessers x_{50} in Abhängigkeit der Zeit bzw. des einge düsteten Massenstroms Saccharoselösung. Einfluss des mittleren Tropfendurchmessers x_{50} bzw. des Dispersionsgasstroms. Gasgeschw.: 4,1 m/s, Gastemp.: 80 °C, ZWS-Inventar (Start): 12,5 kg, Sprührate: 88 g/min; oben: Sprühposition 500 mm zentral, unten: Sprühposition 1500 mm zentral

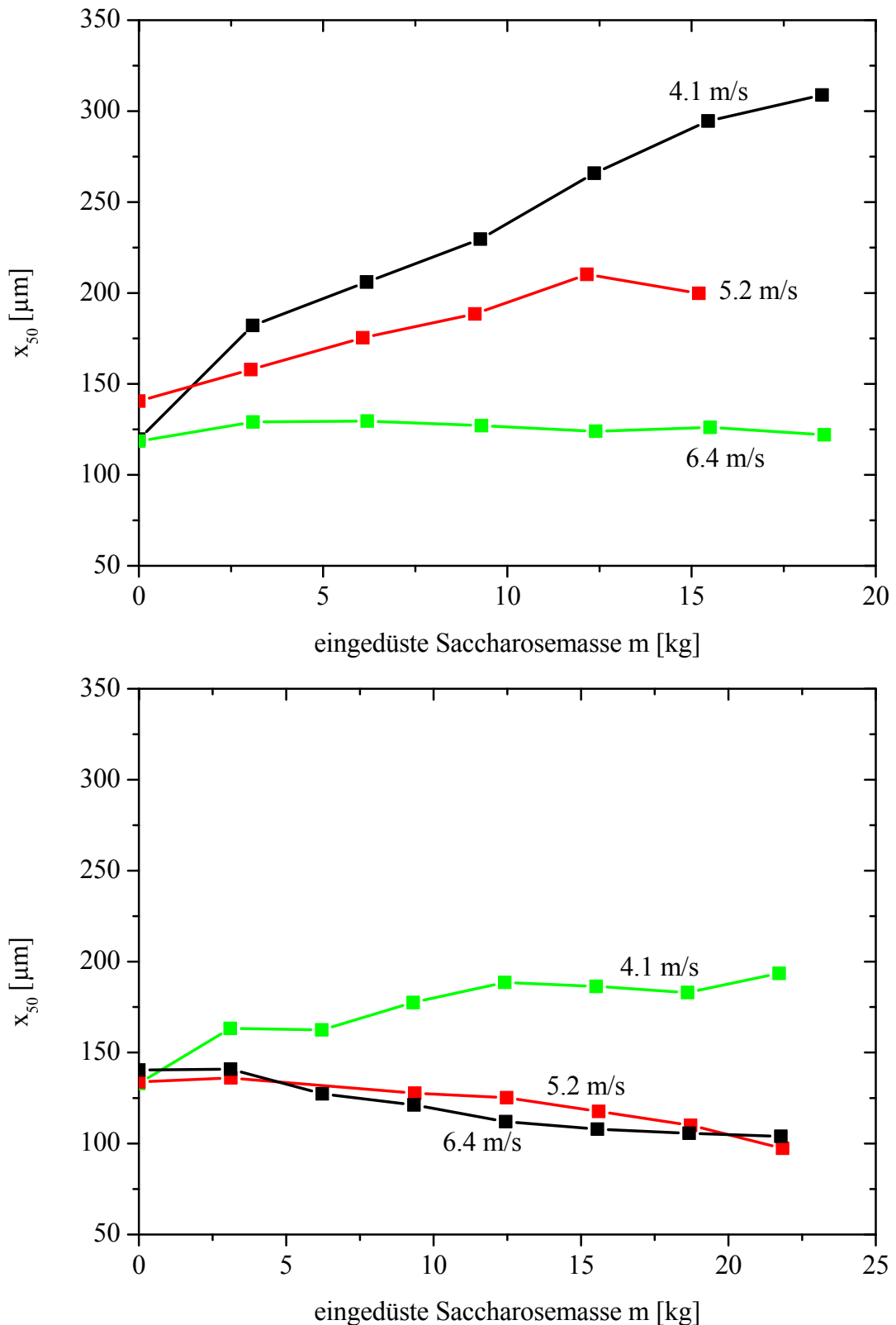


Abb. 6.11: Entwicklung des mittleren Durchmessers x_{50} in Abhängigkeit der Zeit bzw. des eingedüsten Massenstroms Saccharoselösung. Einfluss der Gasgeschwindigkeit. Gastemp.: 80 °C, ZWS-Inventar (Start): 12,5 kg, Sprührate: 88 g/min; oben: Sprühposition 500 mm zentral, unten: Sprühposition 1500 mm zentral

Dieser Effekt lässt sich durch verschiedene Mechanismen erklären. Einerseits steigt die mechanische Belastung aufgrund von Partikel-Partikel Stößen und insbesondere der Partikel-Wand Stöße mit zunehmender Gasgeschwindigkeit. Die höhere mechanische Belastung kann zu einem Brechen bestehender oder zu einem Wiederaufbrechen der neu geformten Granulate führen. Gleichzeitig verändert die Variation der Geschwindigkeit die Partikelverteilung im Riser. Die höheren Gasgeschwindigkeiten führen zu einer niedrigeren Partikelkonzentration in der dichten Bodenzone, was zu weniger Partikel-Partikel-Kontakten führt. Gleichzeitig steigt die Feststoffkonzentration in der oberen dünnen Zone leicht an sodass hier mit mehr Partikelpartikelstößen bei steigender Gasgeschwindigkeit gerechnet werden muss. Eine höhere Wirbelgeschwindigkeit bedeutet auch höhere Gasgeschwindigkeiten am Eintritt und im inneren des Zyklons, was ebenfalls zu vermehrten Bruchereignissen führt.

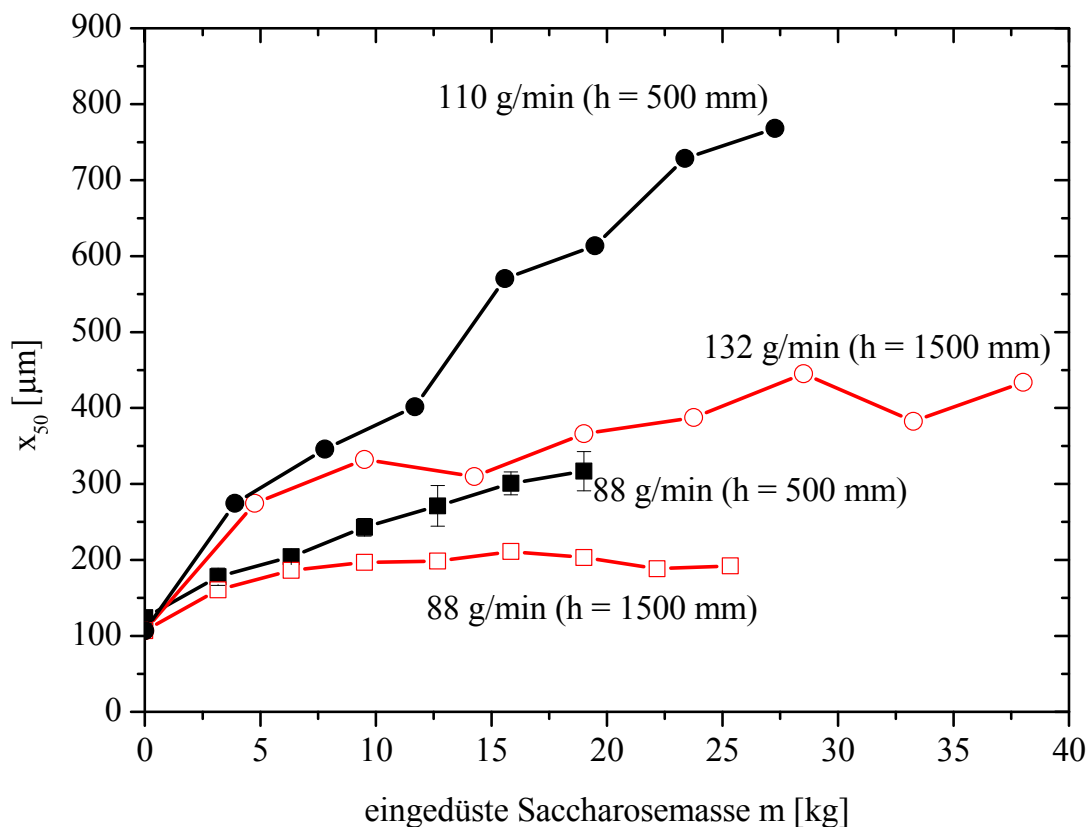


Abb. 6.12: Entwicklung des mittleren Durchmessers x_{50} in Abhängigkeit der Zeit bzw. des eingedüsten Massenstroms Saccharoselösung. Einfluss der Sprühposition. Gasgeschw. 4,1 m/s, Gastemp.: 80 °C, Sprütrate: 88-132 g/min, Sprühpositionen 500 mm und 1500 mm zentral

Der Vergleich der Eindüsung in die dichte untere Zone und die dünne obere Zone bei jeweils gleichen Bettmassen, Gasgeschwindigkeiten, Sprürraten und Dispergiertgasströmen in Abb. 6.12 zeigt, dass die lokale Feststoffvolumenkonzentration ein wesentlicher Parameter für das Granulationsverhalten ist.

Ein stationärer Zustand der Korngrößenverteilung bei einem mittleren Durchmesser von ca. 450 μm wird in der oberen Eindüsungsposition sogar bei einer Sprührate von 132 g/min erreicht, während das Wachstum bei der niedrigeren Sprührate von 110 g/min in der unteren Eindüsungsposition bis zum Versuchsende anhält und der mittlere Durchmesser auf über 750 μm anwächst. Ein Vergleich der Entwicklung des mittleren Durchmessers für niedrigere Sprühraten von 88 g/min zeigt ebenfalls den Übergang in einen stationären Zustand bei ca. 200 μm im Fall der Eindüsung in die dünne obere Zone und ein kontinuierliches Aufwachsen auf 300 μm bei der Eindüsung in die untere dichte Zone. Eine lokal niedrigere Feststoffvolumenkonzentration in der Sprühzone mit entsprechend niedrigeren Wahrscheinlichkeiten für Partikel-Partikel-Kontakte führt demnach wie zu erwarten zu einem schwächeren Partikelwachstum.

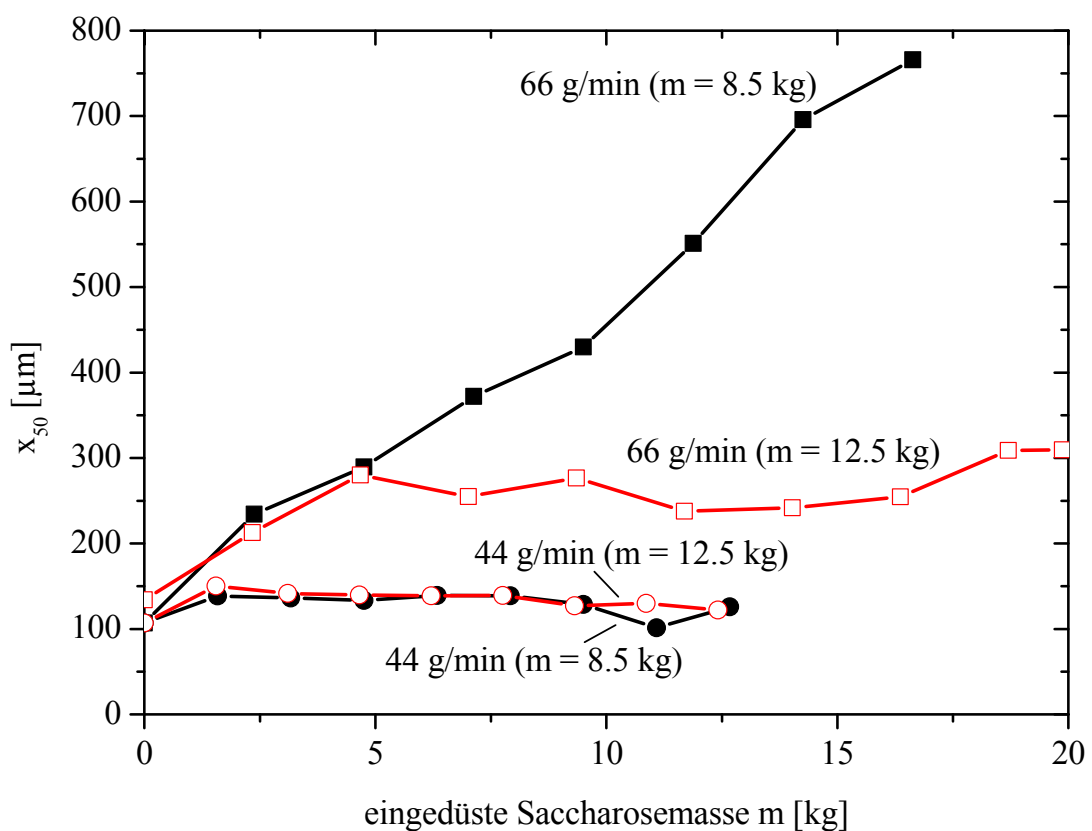


Abb. 6.13: Entwicklung des mittleren Durchmessers x_{50} in Abhängigkeit der Zeit bzw. des eingedüster Massenstroms Saccharoselösung. Einfluss des Feststoffinventars, Gasgeschw. 4,1 m/s, Gastemp.: 80 °C, Sprührate: 88 g/min, Sprühposition 500 mm zentral aufwärts

Abb. 6.13 zeigt den Effekt eines reduzierten Bettinventars. Die Versuche wurden mit einer Gasgeschwindigkeit von 4,1 m/s und der Eindüsungsposition 500 mm über dem Verteilerboden zentral aufwärts durchgeführt. Es wurden Versuche mit einer Eindüsungsrate von 44 g/min und 66 g/min 60 Gew.-% Saccharoselösung durchgeführt. Die Saccharosemasse im ZWS-Loop betrug entweder 12,5 kg oder 8,5 kg.

Die Reduktion des Bettinventars zeigte im Fall der Eindüsung mit 44 g/min keinen Effekt auf das Partikelwachstum. Die Partikelgröße blieb mit ungefähr 100 µm jeweils über die gesamte Versuchsdauer konstant. Im Fall der Eindüsung mit 66 g/min und einem Bettinventar von 12,5 kg stellte sich nach ungefähr 2 Stunden ein stationärer mittlerer Partikeldurchmesser von 250-300 µm ein. Im Falle der Eindüsung mit 66 g/min und reduziertem Inventar von 8,5 kg erfolgte ein kontinuierliches Wachstum bis über 750 µm.

Dies lässt sich durch zwei gegenläufige Effekte erklären. Einerseits führt das reduzierte Feststoffinventar zu niedrigeren Feststoffvolumenkonzentrationen in der Sprühzone. Entsprechend sinkt die Wahrscheinlichkeit für Partikel-Partikel-Kontakte. Andererseits steigt die Menge eingedüster Lösung pro Partikelmasse, dementsprechend sollte lokal ein größerer Flächenanteil der Partikeloberfläche oberflächenfeucht sein und damit Agglomeration begünstigen. Im Fall der Eindüsung mit 44 g/min scheinen sich beide Effekte kompensieren. Im Falle der Eindüsung mit 66 g/min scheint der Effekt der oberflächenfeuchten Flächenanteile zu dominieren.

6.1.4 Morphologie

Im Folgenden sind REM-Aufnahmen dargestellt, die Saccharosepartikel zeigen, die als repräsentativ für die jeweiligen Versuchsbedingungen angenommen werden.

Abb. 6.14 zeigt den zeitlichen Verlauf der sich verändernden Granulatmorphologie für einen Versuch mit einer Gasgeschwindigkeit von 4,1 m/s, Gastemperatur von 80 °C, ZWS-Inventar (Start): 12,5 kg sowie Sprühposition 500 mm zentral mit einer Sprührate von 88 g/min. Das Ausgangsmaterial entspricht hierbei morphologisch dem Material aus Abb. 5.5 unten.

Der Versuch ist charakteristisch für kontinuierliches Partikelwachstum, die Entwicklung der Massendichteverteilung ist in Abb. 6.15 wiedergegeben. In den Fotos sind die Partikelgrößenklassen 0-63 µm, 63-140 µm, 140-250 µm und 250-400 µm, jeweils 30 min, 60 min und 300 min nach Start der Eindüsung dargestellt. In den Fotos der ersten Probe (0,5 h) finden sich jeweils noch Partikel des Ausgangsmaterials. Mit zunehmender Größenklasse finden sich brombeerartige Strukturen, die noch eindeutig als Agglomerate der Ausgangspartikel zu identifizieren sind. Die Strukturen der Agglomerate weisen noch Ecken auf.

In der Probe 1 h nach Eindüsbeginn hat sich die Klasse 0-63 µm nicht wesentlich verändert. In den anderen Klassen hat sich der Anteil an Agglomeraten erhöht. Die Struktur der Agglomerate hat sich verändert. Die brombeerartige Struktur wirkt runder. Die Partikel scheinen abgeschliffener, die Vertiefungen zwischen Primärpartikeln sind aufgefüllter als zu Versuchsbeginn. Hieraus lässt sich ein Beitrag von Granulation / Layering ableiten. Nach 5 h haben sich alle Partikelklassen wesentlich verändert.

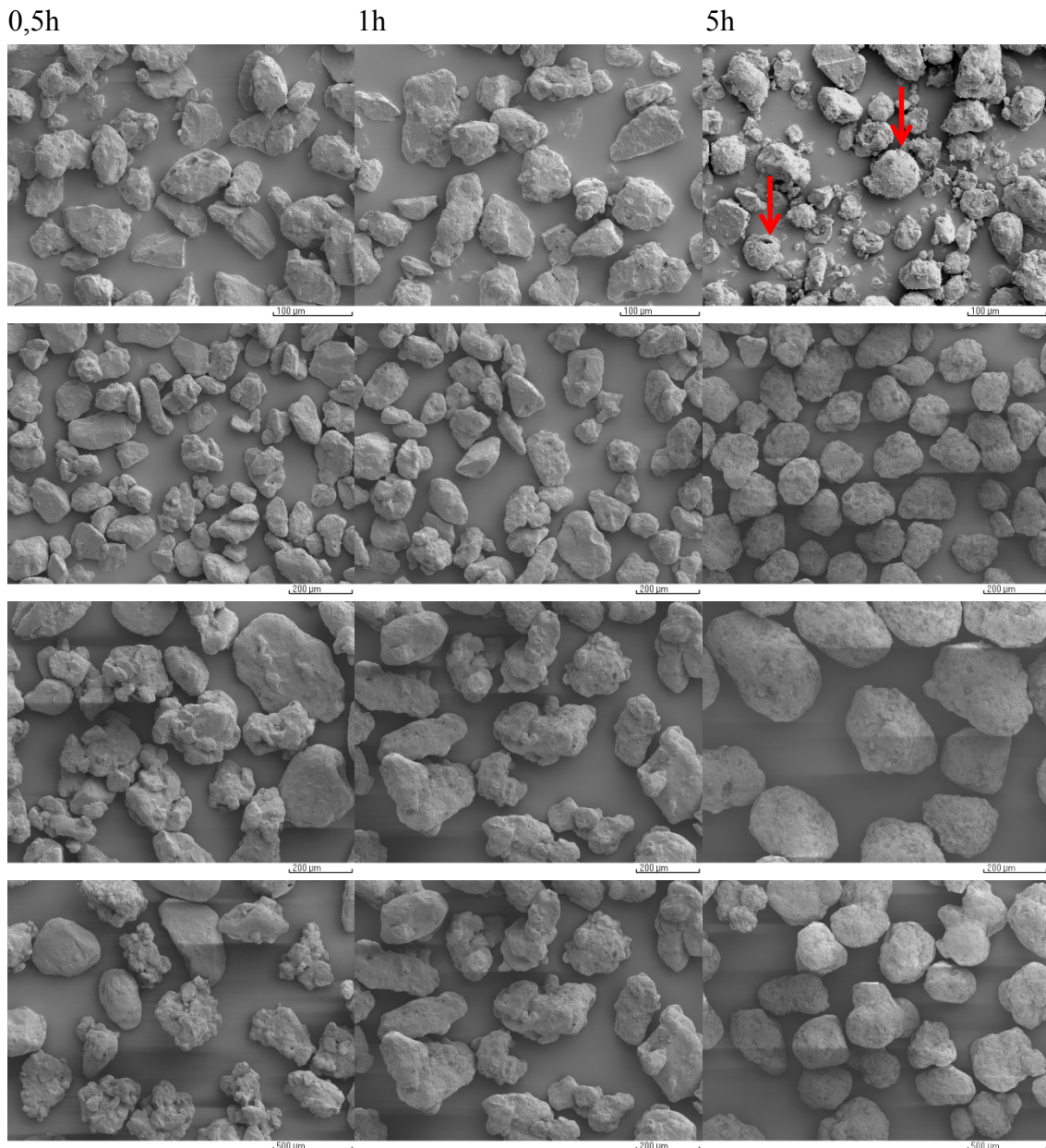


Abb. 6.14: REM-Fotos repräsentativer Granulate: Gasgeschw.: 4,1 m/s, Gastemp.: 80 °C, ZWS-Inventar (Start): 12,5 kg, Sprühposition 500 mm zentral, Sprühdrate: 88 g/min; Größenklassen (von oben) 0-63 µm, 63-140 µm, 140-250 µm und 250-400 µm, jeweils (von links nach rechts) 30 min, 60 min und 300 min nach Start der Eindüsung

Abb. 6.15 zeigt dass der Anteil der Klasse 0-63 µm an der Gesamtmasse verschwindend gering geworden ist. In ihr finden sich immer noch eckige Partikel, der Anteil an kleineren Partikeln hat zugenommen. Dies lässt auf Bruch zurückschließen, da es sehr unwahrscheinlich ist, dass diese Partikel noch aus dem Ausgangsmaterial stammen. Zusätzlich sind vereinzelt runde Partikel zu finden (Pfeile in Abb. 6.14) die als Overspray identifiziert werden können. Die Partikelklassen 63-140 µm und 140-250 µm sind durchgängig rund. Ihre Oberfläche weist keine Brombeerstruktur mehr auf. Es kann davon ausgegangen werden, dass Abrieb und Granulation ausschlaggebend für diese Formgebung sind. Die Klasse 250-400 µm weist neben solch runden Partikeln

Partikel auf, die aus einem oder mehreren 50-100 μm -Partikeln aufgebaut scheinen. Auch hier sind die Strukturen abgerundet. Dies lässt auf Agglomeration / Granulation sowie Abrieb als Bildungsmechanismus schließen. Die Oberfläche aller größeren Partikel wirken angeraut, was als Zeichen für Abrieb oder Bruch oder Einbindung von Feinstpartikeln während der Granulation interpretiert werden kann.

Alle Partikel außerhalb der kleinsten Partikelklasse zeigen am Ende der Versuche eine multikristalline Struktur, die sich deutlich von den monokristallinen Partikeln des Ausgangsmaterials unterscheidet. Dies indiziert eindeutig, dass die Partikel während des Granulationsprozesses neu aufgebaut wurden.

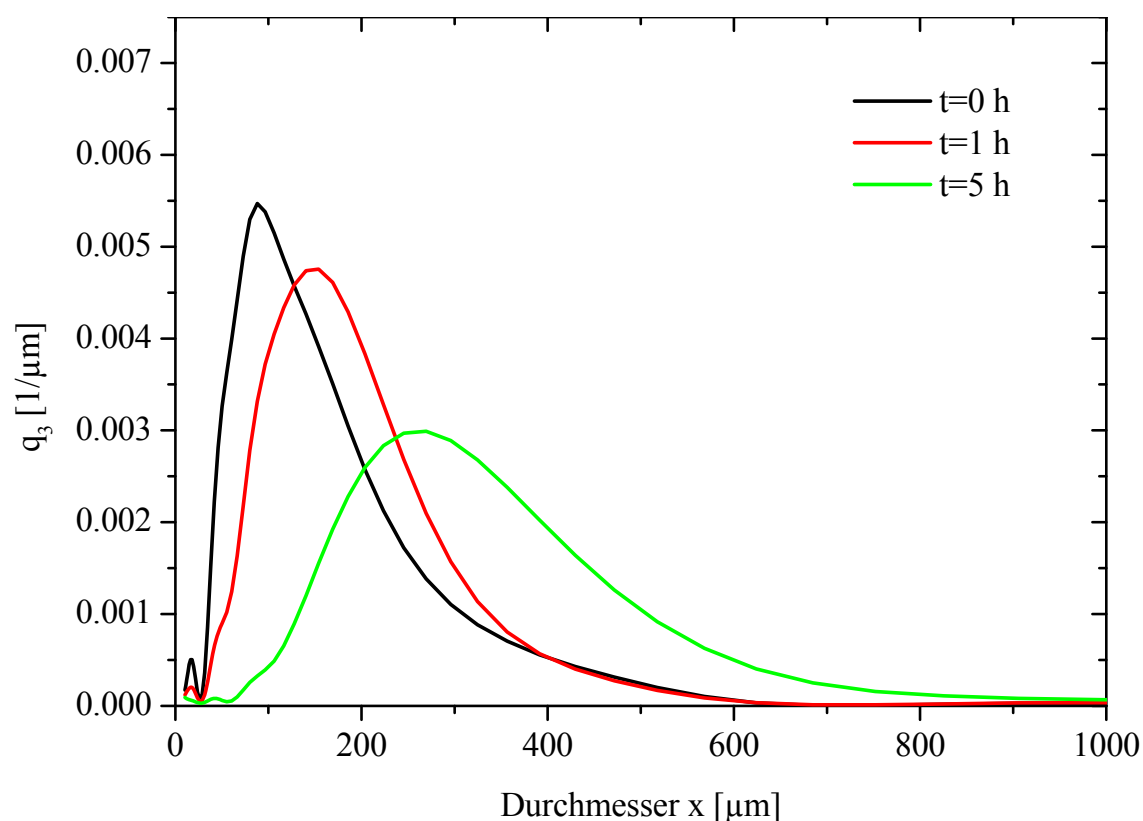


Abb. 6.15: Massendichteverteilung $q_3(x_i)$ zur Fotoreihe Abb. 6.14

Abb. 6.16 vergleicht die Granulate des vorhergegangenen Versuchs mit denen eines Versuches mit gleichen Betriebsparametern, aber Eindüsung in die obere dünne Zone, 1500 mm über dem Verteilerboden, zentrisch aufwärts jeweils zum Ende der Versuche. Dieser letztere Versuch ist repräsentativ für das Erreichen eines stationären Betriebszustandes während bei der Eindüsung in 500 mm Höhe sich ein unlimitiertes Partikelwachstum einstellt. Abb. 6.17 zeigt die entsprechenden Massendichteverteilungen beider Versuche zu Versuchsende.

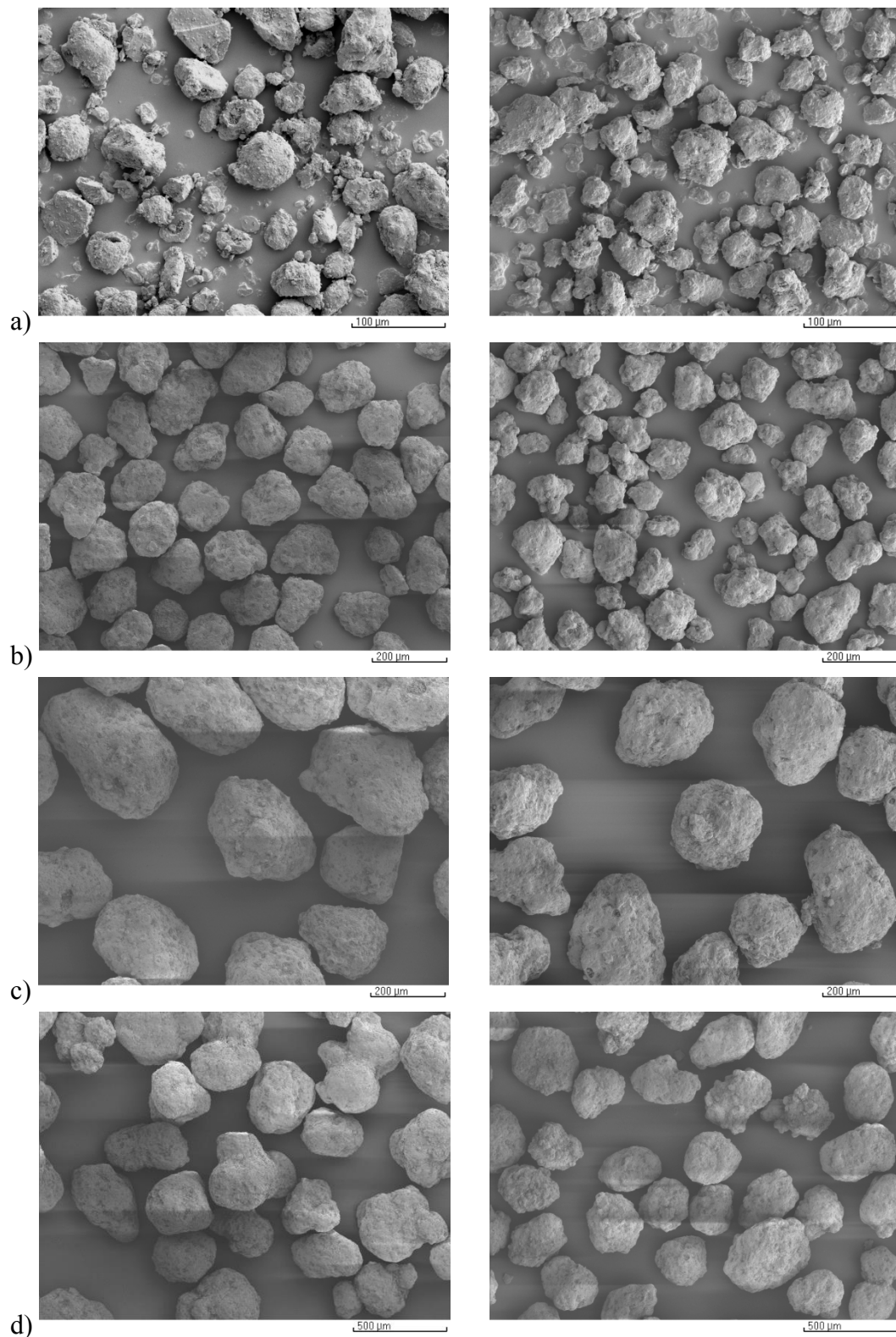


Abb. 6.16: REM-Fotos repräsentativer Granulate: Gasgeschw.: 4,1 m/s, Gastemp.: 80 °C, ZWS-Inventar (Start): 12,5 kg, Sprühposition 1500 mm zentral(rechts), 500 mm zentral(links), Sprühdauer: 88 g/min; Größenklassen 0-63 µm, 63-140 µm, 140-250 µm und 250-400 µm, 360 min nach Beginn der Eindüsung

Die Struktur der Partikel scheint prinzipiell für beide Proben gleich. Unterschiede lassen sich allerdings in der kleinsten Klasse ausmachen. Im Fall der Eindüsung in die dünne Zone (1500 mm über dem Gasverteilerboden) macht diese Klasse einen deutlich größeren Massenanteil aus. Die Partikel weisen keine monokristalline Struktur auf sondern scheinen multikristallin. Dies indiziert eindeutig, dass die Partikel während des Granulationsprozesses neu aufgebaut wurden. Overspray bzw. runde Partikel sind nicht zu identifizieren. In der größten Klasse 250-400 μm wirken die Partikel aus dem kontinuierlichen Prozess runder, was auf verstärkte Granulation ohne Ausbildung großer Agglomerate schließen lässt.

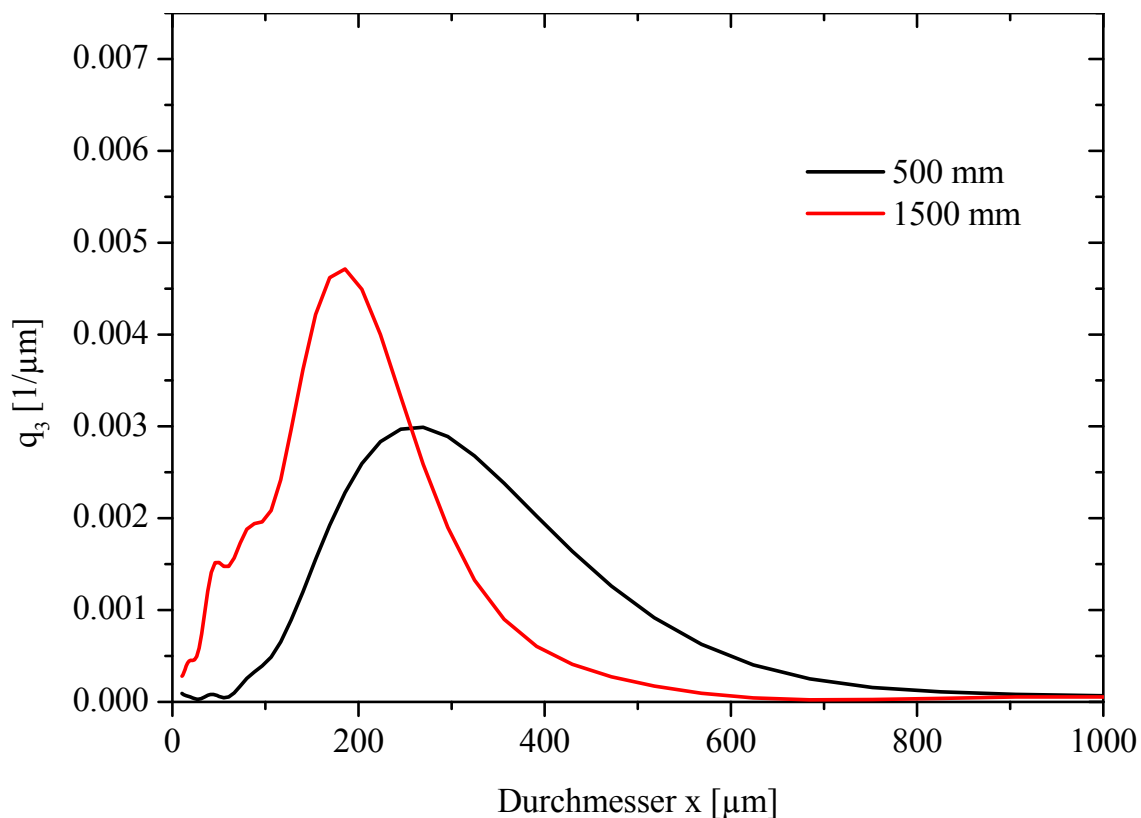
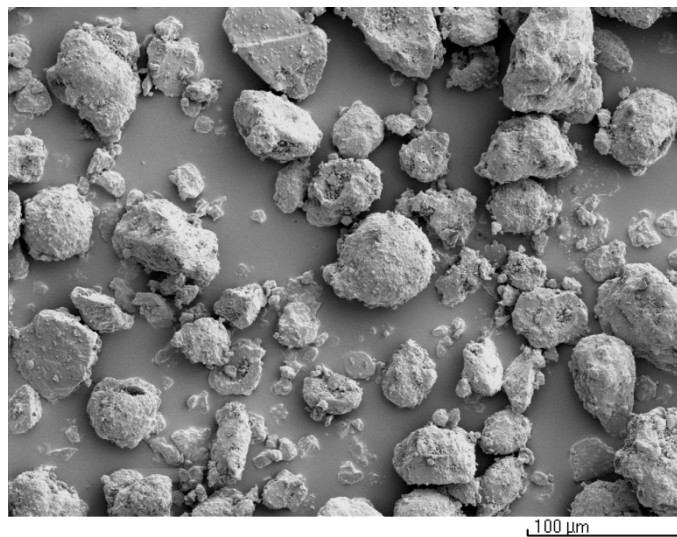


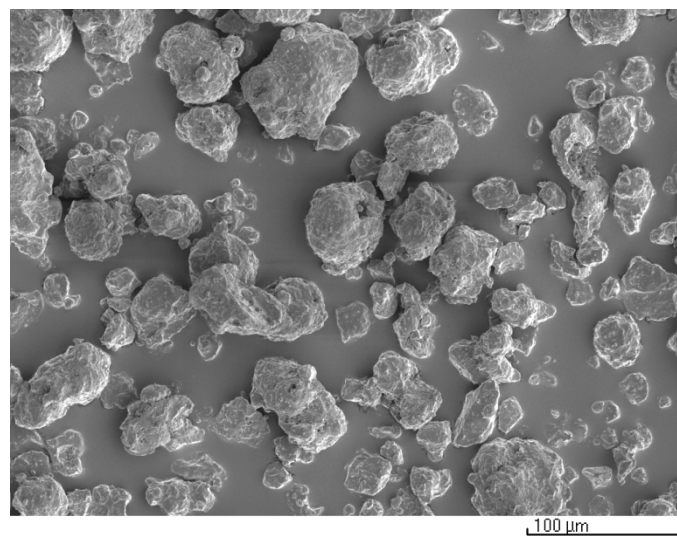
Abb. 6.17: Massendichteverteilung $q_3(x_i)$ zur Fotoreihe Abb. 6.16

Grundsätzlich scheinen alle größeren Partikel durch Agglomeration kleinerer Partikel entstanden zu sein, wobei paralleles Schichtwachstum und / oder Abrieb bzw. Bruch hinzukommen. Bei den großen Partikeln scheinen Agglomeration und Bruch durch die anderen beiden Effekte, Abrieb und Granulation (ggf. mit der Einbindung von Feinstpartikeln), so stark überlagert zu sein, dass sie als solche nicht erkennbar sind.

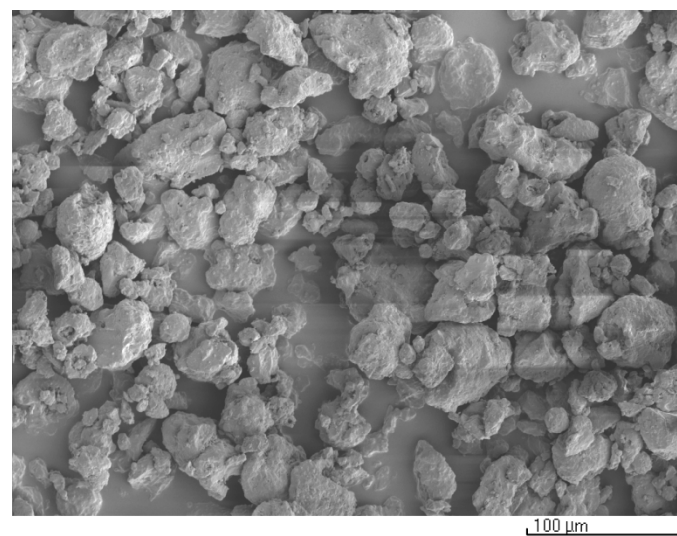
Abb. 6.18 zeigt eine REM-Fotoserie der Partikelklasse 0-63 μm 360 min nach Beginn der Eindüsung für Versuche mit unterschiedlichen Gasgeschwindigkeiten sowie einer Gastemperatur von 80 °C, ZWS-Inventar (Start) von 12,5 kg, Sprühposition 500 mm zentral, und einer Sprührate von 88 g/min. Die entsprechenden Massendichteverteilungen sind Abb. 6.19 wiedergegeben.



$u = 4,1 \text{ m/s}$



$u = 5,2 \text{ m/s}$



$u = 6,4 \text{ m/s}$

*Abb. 6.18: REM-Fotos repräsentativer Granulate: Einfluss der Gasgeschwindigkeit
Gastemp.: 80 °C, ZWS-Inventar (Start): 12,5 kg, Sprühposition 500 mm zentral, Sprühdauer: 88
g/min; Größenklasse 0-63 µm, 360 min nach Beginn der Eindüsung*

Aus der Fotoserie lässt sich erkennen, dass die Partikel in der kleinsten Klasse mit zunehmender Gasgeschwindigkeit kleiner und eckiger werden. Aus den Dichteverteilungen geht hervor, dass ihr Massenanteil signifikant steigt. Da die Partikel abweichend vom Ausgangsmaterial multikristallin sind, müssen sie neu gebildet worden sein. Hierfür kommt primär Bruch in Frage, da Overspray runde Partikel generieren würde. Es ist davon auszugehen, dass Bruch ein wesentlicher Effekt im ZWS-Granulator ist.

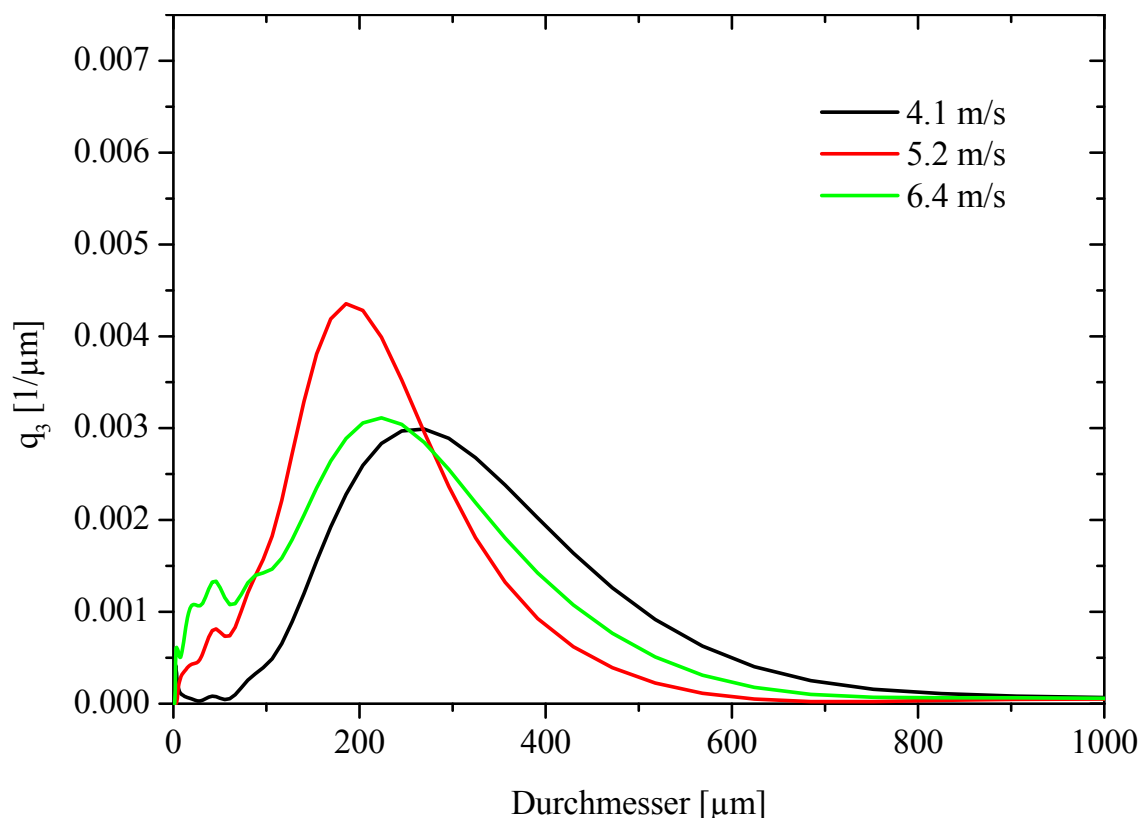


Abb. 6.19: Massendichteverteilung $q_3(x_i)$ zur Fotoreihe Abb. 6.18

6.1.5 Zusammenfassung der ZWS-Versuche

Für den Betrieb des ZWS-Granulators existieren zwei verschiedene Betriebsmodi: Im Batchbetrieb wachsen vorgelegte feine Partikel auf und / oder agglomerieren, bis sie die gewünschte Partikelgröße erreichen. Im kontinuierlichen Betrieb wird kontinuierlich Saccharoselösung eingedüst und es werden Partikel (quasi-)kontinuierlich aus dem System abgezogen. Die Partikelgrößenverteilung im Produkt erreicht einen stationären Zustand.

Die Versuche wurden bei Leerrohrgeschwindigkeit zwischen 4,1 und 6,4 m/s sowie Gaseintrittstemperaturen von 80 °C in einem 150 mm Riser durchgeführt.

Aufgrund der hohen Gaseintrittsgeschwindigkeiten wird die vertikale Segregation unterschiedlich großer Partikel weitestgehend unterdrückt. Die relativ zur Blasen-Wirbelschicht niedrige Partikelkonzentration der Suspensionsphase und eine kurze,

definierte Interaktionszeit zwischen Spray-Tropfen und Bettpartikeln führen zu einem einfach zu kontrollierenden Gratulationsprozess. Das beschriebene Strömungsprofil ermöglicht niedrige Gaseintrittstemperaturen bzw. geringe Differenzen zwischen Gaseintritts- und Betttemperatur. Als Konsequenz hieraus ergibt sich ein homogenes Temperaturprofil entlang des Risers ohne Ausbildung von Temperaturspitzen. Damit ist das System zur Behandlung temperatursensitiver Stoffsysteme geeignet („Gentle Drying“).

Es wurde der Einfluss verschiedener Parameter, insbesondere der Wirbelgasgeschwindigkeit, der Eindüseposition im Riser, der Menge der eingedüsten Lösung sowie deren Tropfengrößenverteilung und der der vorgelegten Bettmasse auf die verschiedenen Betriebsmodi und die entstehenden Granulate / Agglomerate untersucht.

Mechanismen, die die Korngröße des Produktes bestimmen, sind die Agglomeration und der Bruch in Kombination mit mehr oder weniger stark ausgeprägter Granulation und Abrieb, so dass die gebildeten Agglomerate eine brombeerartige Grundstruktur aufweisen:

Bei der Eindüsung in die untere dichte Zone ist die Agglomeration der dominante Wachstumsmechanismus. In diesem Fall wachsen die Partikel schnell zu Größen auf, die in den meisten Fällen zu groß für einen ZWS-Betrieb sind. Das System geht dann in eine blasenbildende Wirbelschicht über. Es bilden sich brombeerartige Agglomerate.

Die Eindüsung in die dünne obere Zone erlaubt hingegen einen kontinuierlichen Betrieb. Im Gegensatz zur Eindüsung in die untere dichte Zone ist die Agglomeration nicht mehr der allein dominierende Mechanismus. Granulation (Schalenwachstum) wird dominierend. Die Form der Granulate wird runder, Abriebs- und Brucheffekte an den Partikeln werden sichtbar.

Die Eindüsung von der Seite resultiert in schnellerem Partikelwachstum, das durch die Eindüsung in die Ringzone mit erhöhter Feststoffvolumenkonzentration erklärt werden kann. Im Falle der zentral aufwärtsgerichteten Eindüsung dagegen erfolgt der Tropfen-Partikel-Kontakt hauptsächlich in der Kernzone, in der eine niedrigere Partikelkonzentration vorliegt.

Mit zunehmender Masse eingedüsten Materials wird die Agglomeration gegenüber der Granulation dominierender. Für einen kontinuierlichen Betrieb ist in diesem Betriebszustand die kontinuierliche Zuführung von Keimen und der Abzug von groben Granulaten vorzusehen.

Größere Tropfen führen zu einer verstärkten Agglomerationsneigung und beschleunigen dementsprechend das Kornwachstum.

Die Erhöhung der Gasgeschwindigkeit führt zu einem verlangsamten Wachstum der Partikeln. Der Betrieb in einem stationären Zustand ist hierdurch auch noch bei höheren Eindüsungsraten möglich.

Eine Reduzierung des Bettinventars resultiert in einem schnelleren Partikelwachstum aufgrund eines größeren Verhältnisses von Eindüsungsstrom zu Bettmasse. Dieser

Effekt wird teilweise durch die intrinsisch reduzierte Partikelkonzentration im Riser und die daraus resultierende niedrigere Frequenz der Partikelkollisionen kompensiert.

Während die beobachteten Tendenzen des Einflusses der verschiedenen Betriebsparameter dem zu erwartenden Verhalten in einer blasenbildenden Wirbelschicht entsprechen, besitzt die ZWS einen zusätzlichen Freiheitsgrad durch die Wahl der Sprühposition.

Es war nicht möglich, einen stabilen kontinuierlichen Betriebspunkt zu erreichen, wenn Agglomeration auf Basis einer hohen Feststoffvolumenkonzentration im Eindüsbereich der dominante Kornvergrößerungsmechanismus war. Um das Partikelwachstum in solch einem Fall zu limitieren, können entweder feine Partikel in das System eingebracht werden oder es kann ein klassierender Abzug von Bettmaterial installiert werden und eine Grobfraction abgezogen werden. Überkorn kann ggf. extern aufgemahlen und in das System zurückgeführt werden.

Mit zunehmender Gasgeschwindigkeit verlangsamt sich der Partikelaufbau im betrachteten Betriebsfenster der ZWS signifikant.

6.2 Abrieb und Bruch in der ZWS

Im Folgenden wird zwischen Bruch und Abrieb durch die Betrachtung der Partikelgröße der neu generierten Partikel unterschieden. In Übereinstimmung mit KLETT [46] wird angenommen, dass alle Partikel kleiner 25 μm durch Abrieb generiert wurden. Diese Partikel gehen hauptsächlich aus einem Abtragen von Oberflächenrauigkeiten hervor.

Im Gegensatz hierzu wird angenommen, dass Partikel größer 25 μm durch Bruch generiert werden. Beim Bruch werden hierbei die Partikel in zwei oder mehr Fragmente ähnlicher Größenordnung zerbrochen.

Betrachtet man die Massendichteverteilung während der Experimente, d.h. das in der blasenbildenden Wirbelschicht verbleibende Material oder das für die nächsten Zyklondurchlauf verwendete Material, so wird die Form der gemessenen Verteilung durch Abrieb nicht beeinflusst, es erfolgt lediglich eine leichte Verschiebung zu kleineren Partikelgrößen. Im Gegensatz hierzu resultiert Partikelbruch in einer Veränderung der Verteilungsform. Ursprünglich monomodale Verteilungen gehen in bi- oder multi- modale Verteilungen über.

Diese Differenzierung zwischen Abrieb und Bruch wird hauptsächlich aufgrund unterschiedlicher Modellansätze zur Beschreibung der beiden Effekte in der relevanten Literatur sowie in der klassischen Populationsbilanz vorgenommen.

Die präsentierten Messdaten wurden insbesondere im Rahmen der Bachelor-Arbeit von Jan BRUMMUND [11] gewonnen.

6.2.1 Optische Auswertung des Abriebs- und Bruchverhaltens

Es wurden verschiedene REM-Aufnahmen der Versuchsmaterialien aus Versuch 4 und aus Versuch 8 (vgl. Tab. 5.8 bzw. Tab. 6.3) nach jeweils 25 Zyklondurchläufen

angefertigt. Beim Vergleich der Fotos kann zum Teil eine Veränderung der morphologischen Struktur der Partikel festgestellt werden. Insgesamt wurden mehrere hundert Aufnahmen angefertigt. Die Fotos zeigen die verschiedenen beobachteten Effekte. Es wird angenommen, dass die Auswahl an Aufnahmen repräsentativ für die untersuchten Proben ist.

Abb. 6.20 zeigt das Material aus dem Zyklonversuch 4 (Fraktion 255-455 μm). Größere Partikelfragmente (oberes Foto) und größere Partikeln mit kleineren Defekten (untere Fotos) konnten nachgewiesen werden. Die Oberfläche der Fragmente und der Defekte sind auf den Fotos als glänzende Flächen mit scharfen Kanten abgebildet. Diese Form von Partikeln bzw. Partikeldefekten konnte in Aufnahmen des gleichen Materials vor dem Versuch nicht nachgewiesen werden. Es wird davon ausgegangen, dass die präsentierten Defekte in den Aufnahmen durch Bruch generiert wurden. Dies ist in guter Übereinstimmung mit den quantitativen Ergebnissen aus Kapitel 6.2.2.1 und 6.2.3.1, die signifikanten Bruch und Abrieb für diese Korngrößenfraktion nachweisen.

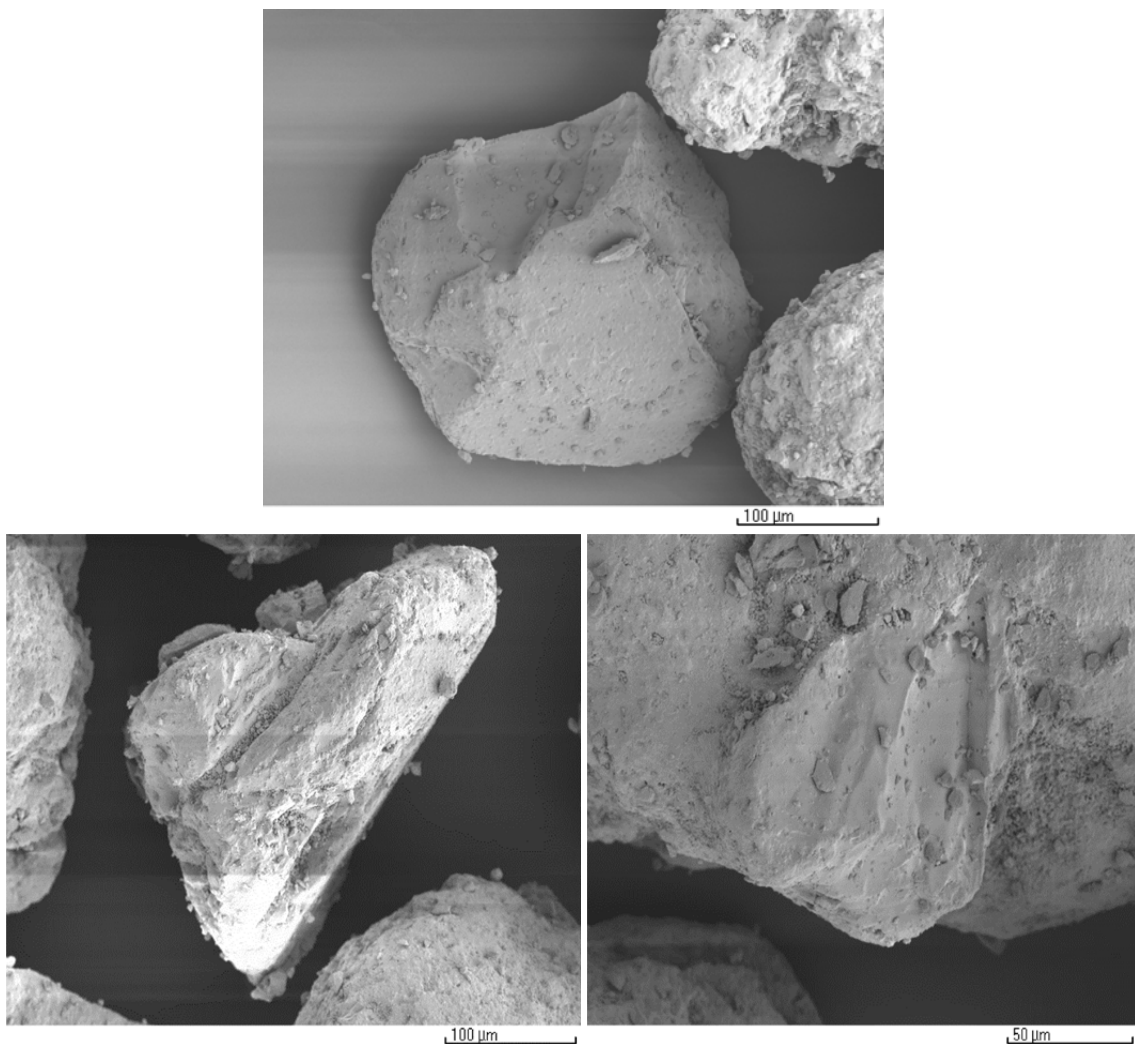


Abb. 6.20: REM-Fotos der Granulate nach Zyklonversuch 4 ($d_p = 250\text{-}355 \mu\text{m}$) nach 25 Zyklonpassagen

Abb. 6.21 zeigt Probenmaterial aus Zyklonversuch 8 (Fraktion 100-180 μm) nach 25 Zyklon Durchläufen. Bei den untersuchten Proben konnten keine größeren Defekte wie im Fall von Versuch 4 nachgewiesen werden. Das Material ist auf den Aufnahmen optisch nicht von dem Ausgangsmaterial vor den Zyklonversuchen zu unterscheiden. Die Fotos indizieren, dass kein Bruch aufgetreten ist. Auch dieses Ergebnis ist in Übereinstimmung mit den quantitativen Ergebnissen in Kapitel 6.2.2.1 und Kapitel 6.2.3.1, die für diese Fraktion signifikanten Abrieb aber keinen Bruch nachweisen.

REM-Aufnahmen der Partikelproben aus den Versuchen in der blasenbildenden Wirbelschicht werden hier nicht gezeigt, da keine Veränderungen durch die Versuche zu beobachten waren. Die Aufnahmen der groben und feinen Fraktionen sind mit denen aus Zyklonversuch 8 (vgl. Tab. 5.9 bzw. Abb. 6.21) vergleichbar.

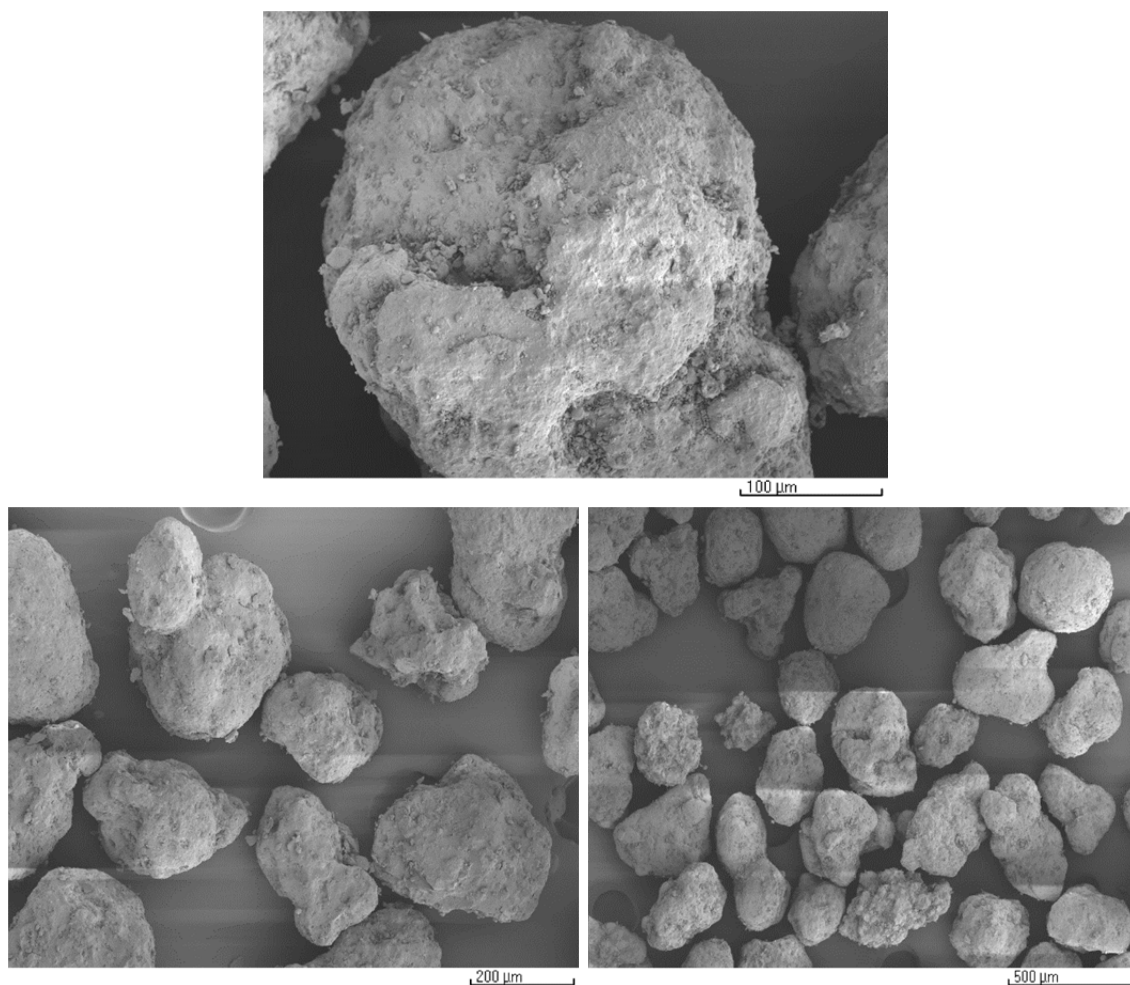


Abb. 6.21: REM-Fotos der Granulate nach Zyklonversuch 8 ($d_p=100-180\mu\text{m}$) nach 25 Zyklonpassagen

Basierend auf den Aufnahmen scheint es unter den gegebenen Betriebsbedingungen des Zyklons, d.h. unter der entsprechenden mechanischen Belastung, eine Partikelgröße zwischen den beiden betrachteten Größenfraktionen 100-180 μm sowie 255-450 μm zu geben, ab der Bruch auftritt. Ein Einfluss der unterschiedlichen Eindüsungsposition bzw. Batch- oder kontinuierlicher Betrieb des ZWS-Granulators konnte innerhalb der

Versuchsreihe auf den REM-Fotos nicht nachgewiesen werden. Es ist ausschließlich erkennbar, dass grobe Partikel brechen, feine aber nicht.

6.2.2 Bruch

6.2.2.1 Zyklon

Die Ergebnisse der Bruchversuche im Zyklon mit den kleinen Partikelgrößen, in den Versuchen 1, 2 (Ausgangsmaterial vgl. Tab. 5.8) und 7, 8 (Granulate vgl. Tab. 5.9), sind in Abb. 6.22 bzw. Abb. 6.23 wiedergegeben.

Sowohl für die niedrige (jeweils oben) als auch für die hohe Gasgeschwindigkeit (jeweils unten) zeigt das Ausgangsmaterial in Abb. 6.22 kein Bruchverhalten. Die Massendichteverteilung q_3 verschiebt sich jeweils leicht. Sie zeigt im Rahmen der Messgenauigkeit keine Änderungen ihrer Form. Das Ausgangsmaterial (Versuch 1 und 2) bricht nicht.

Im Gegensatz zu der Entwicklung der Massendichteverteilungen des Ausgangsmaterials zeigt die Kurvenschar der Granulate in Abb. 6.23 stärkere Fluktuationen. Dieser Effekt kann durch den höheren Anteil an Feinstpartikeln und deren Einfluss auf die Genauigkeit der Laserbeugungsmessung erklärt werden. Die Veränderung der Form der Verteilung zeigt mit der Zahl der Zyklondurchläufe keinen eindeutigen Trend. Es lässt sich nur eine leichte Tendenz zu größeren Modalwerten mit zunehmender Anzahl an Zyklondurchläufen beobachten. Dies ist jedoch kein Indikator für Bruch, da in diesem Fall eine Abnahme erwartet werden würde und sich der kleine Modalwert bei 50 μm signifikant erhöhen müsste.

Unabhängig von ihrer Herstellungsprozedur zeigt keines der Materialien mit einer Korngröße von 100-180 μm Bruchverhalten.

Im Gegensatz hierzu zeigen alle großen Partikelgrößen (Fraktion 255-350 μm) unabhängig von ihrer Herstellungsart ein stark abweichendes Verhalten. Um die Übersichtlichkeit in den folgenden Abbildungen zu erhöhen, werden nur ausgewählte Partikeldichteverteilungen aus den jeweiligen Versuchsreihen gezeigt.

Abb. 6.24 und Abb. 6.25 zeigen die Massendichteverteilung für das diskontinuierlich hergestellte Material für die niedrige Einlaufgeschwindigkeit (Versuch 3) bzw. die hohe Einlaufgeschwindigkeit (Versuch 4).

In beiden Fällen kann die Generierung von Partikeln im Größenbereich von 110 μm beobachtet werden. Mit zunehmender Anzahl an Zyklondurchläufen steigt der entsprechende Modalwert. Gleichzeitig sinkt der globale Modalwert zwischen 250 μm und 300 μm mit zunehmender Anzahl an Zyklondurchläufen ab. Partikel der entsprechenden Größe werden zerstört. Die Gasgeschwindigkeit scheint im betrachteten Variationsbereich keinen wesentlichen Einfluss auf die Entwicklung der Partikelgrößenverteilung zu haben, obwohl eine verstärkte Bruchneigung theoretisch durch den höheren kinetischen Energieeintrag mit zunehmender Gasgeschwindigkeit zu erwarten wäre.

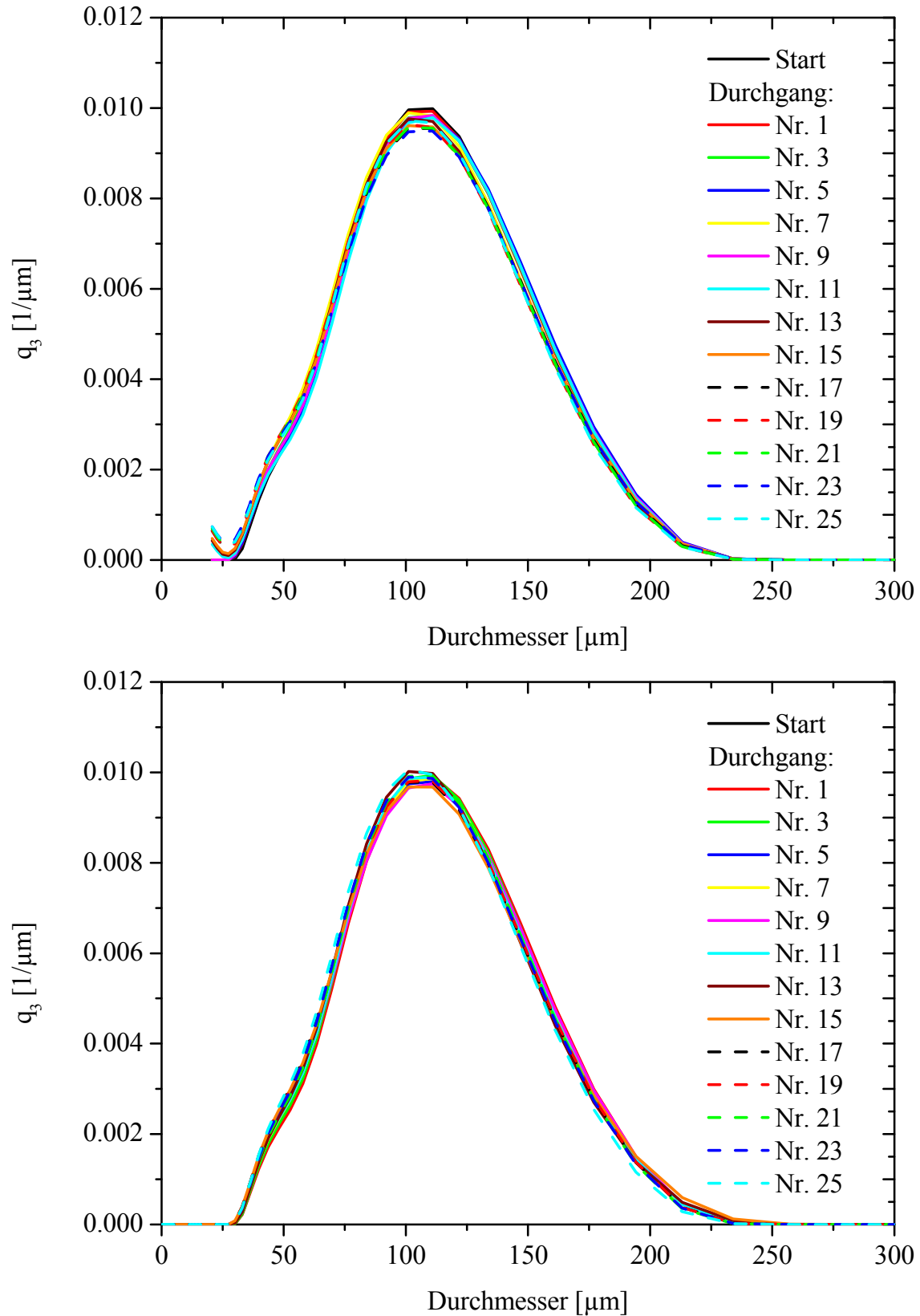


Abb. 6.22: Partikelgrößenentwicklung im Zyklonversuch, Massendichteverteilung $q_3(x_i)$, oben Versuch 1: $d_p = 100-160 \mu\text{m}$, $u_{\text{Gas,ein}} = 9,3 \text{ m/s}$, $\mu = 4,5 \text{ kg/kg}$, unten Versuch 2: $d_p = 100-160 \mu\text{m}$, $u_{\text{Gas,ein}} = 14,4 \text{ m/s}$, $\mu = 5,0 \text{ kg/kg}$

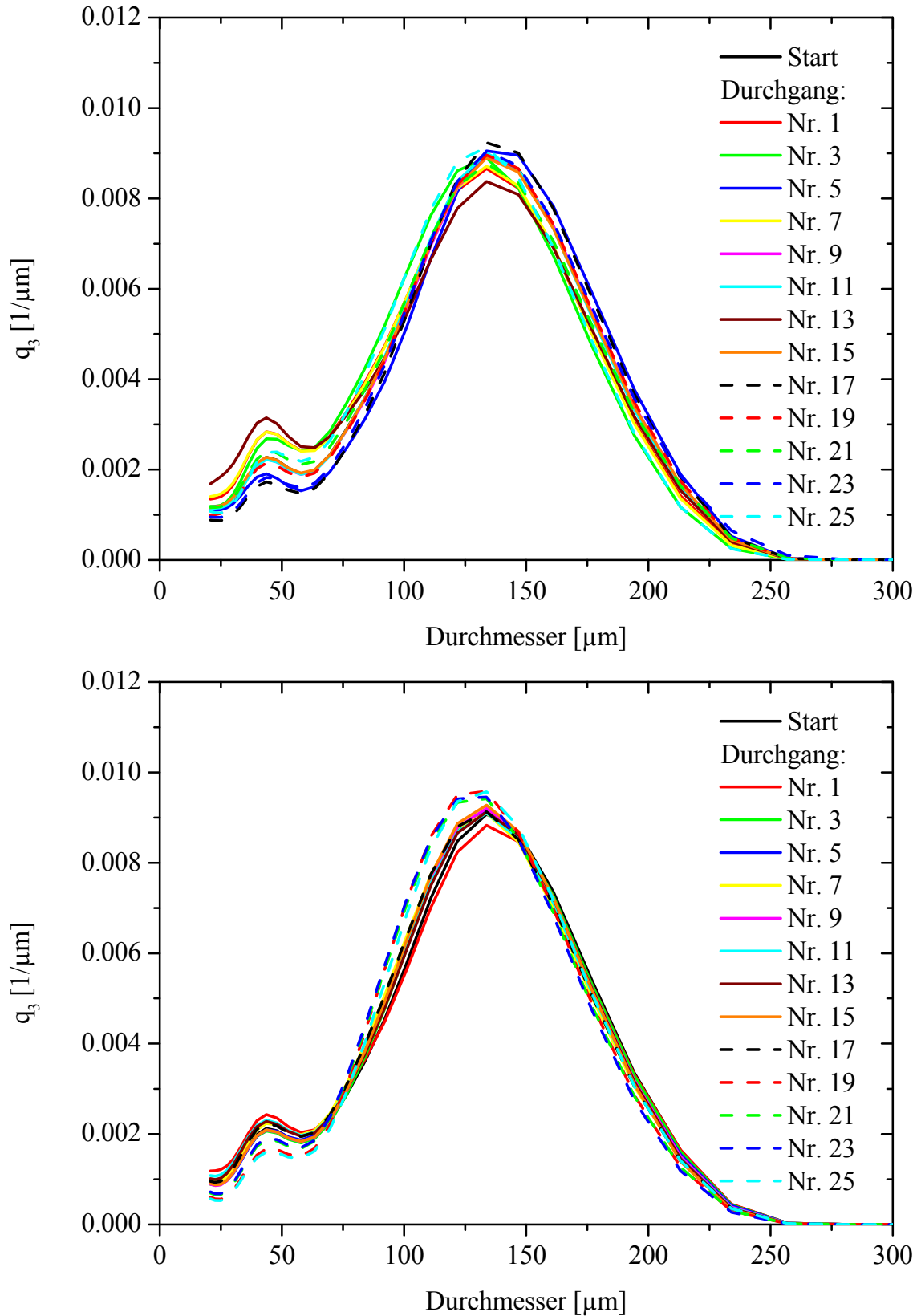


Abb. 6.23: Partikelgrößenentwicklung im Zyklonversuch, Massendichteverteilung $q_3(x_i)$, oben Versuch 7: $d_p = 100-180 \mu\text{m}$, $u_{\text{Gas, ein}} = 9,3 \text{ m/s}$, $\mu = 4,5 \text{ kg/kg}$, unten Versuch 8: $d_p = 100-180 \mu\text{m}$, $u_{\text{Gas, ein}} = 14,4 \text{ m/s}$, $\mu = 5,0 \text{ kg/kg}$

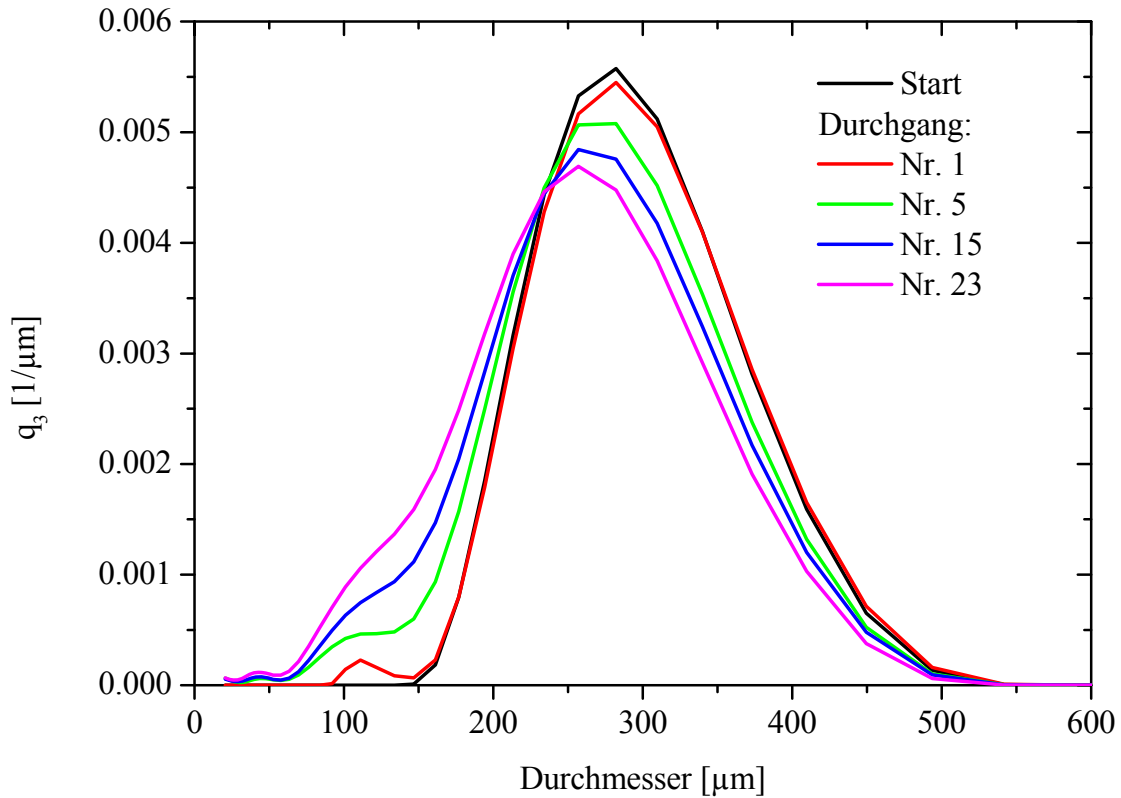


Abb. 6.24: Partikelgrößenentwicklung im Zyklonversuch 3, Massendichteverteilung $q_3(x_i)$, Versuch 3: $d_p = 250-355 \mu\text{m}$, $u_{\text{Gas, ein}} = 9,3 \text{ m/s}$, $\mu = 2,3 \text{ kg/kg}$

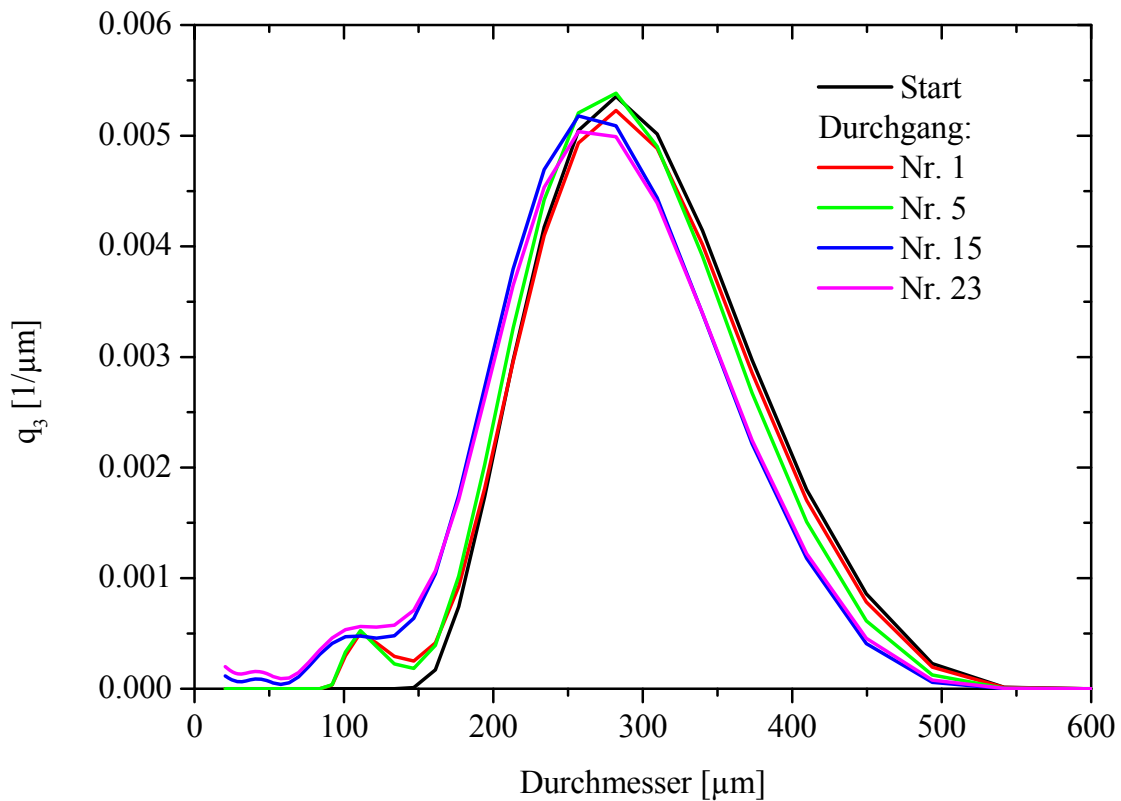


Abb. 6.25: Partikelgrößenentwicklung im Zyklonversuch, Massendichteverteilung $q_3(x_i)$, Versuch 4: $d_p = 250-355 \mu\text{m}$, $u_{\text{Gas, ein}} = 14,4 \text{ m/s}$, $\mu = 5,1 \text{ kg/kg}$

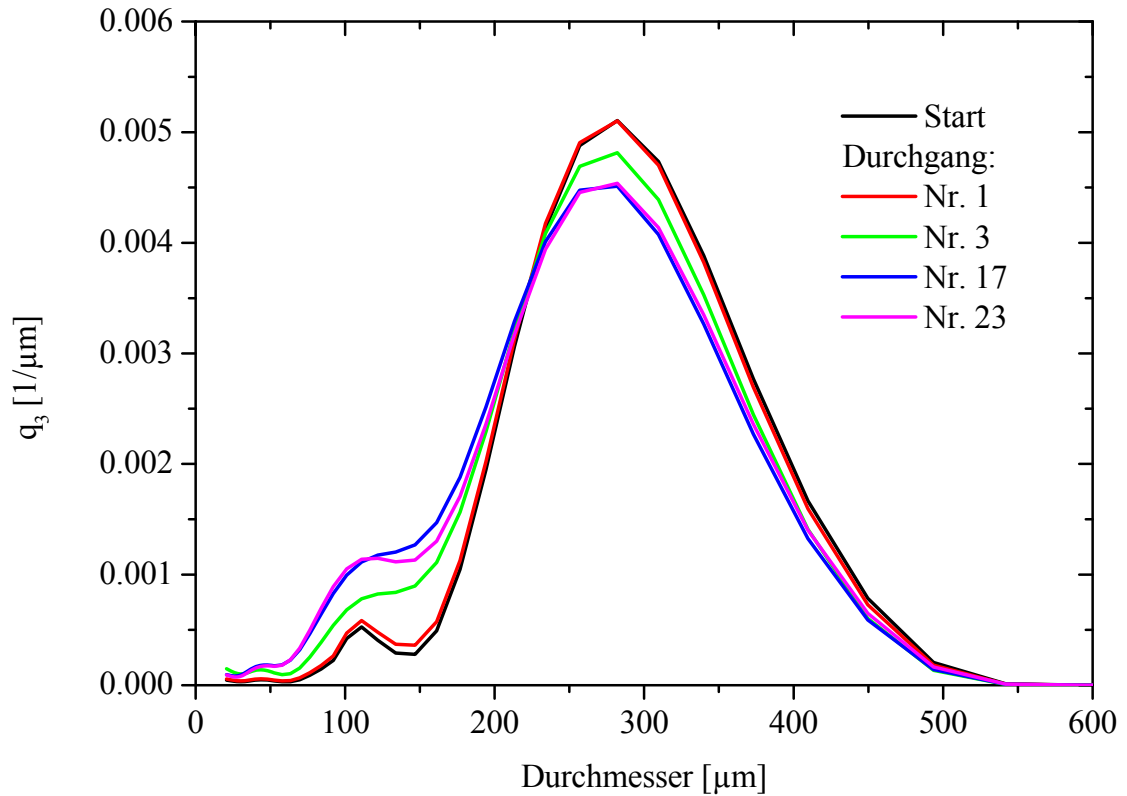


Abb. 6.26: Partikelgrößenentwicklung im Zyklonversuch, Massendichteverteilung $q_3(x_i)$, Versuch 5: $d_p = 250\text{-}355 \mu\text{m}$, $u_{\text{Gas,ein}} = 9,3 \text{ m/s}$, $\mu = 2,3 \text{ kg/kg}$

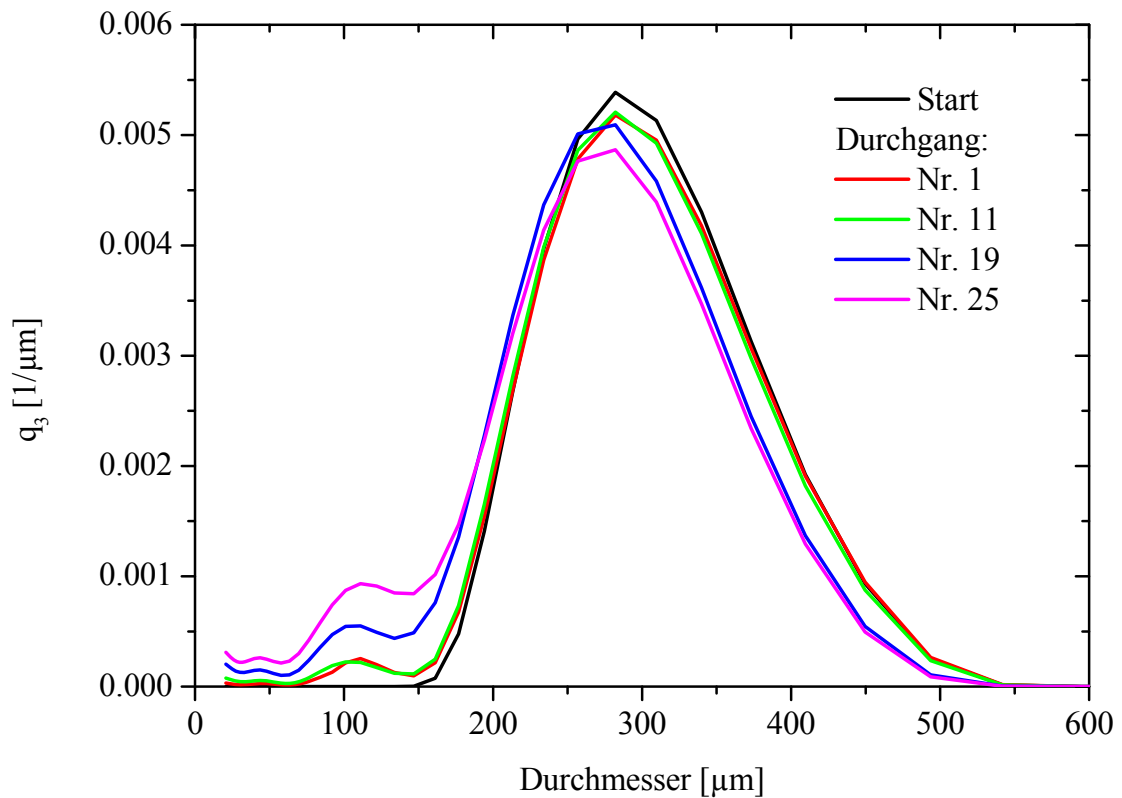


Abb. 6.27: Partikelgrößenentwicklung im Zyklonversuch, Massendichteverteilung $q_3(x_i)$, Versuch 6: $d_p = 250\text{-}355 \mu\text{m}$, $u_{\text{Gas,ein}} = 14,4 \text{ m/s}$, $\mu = 5,1 \text{ kg/kg}$

Abb. 6.26 und Abb. 6.27 zeigen die Entwicklung der Massendichteverteilungen mit der Anzahl an Zyklondurchläufen für kontinuierlich hergestellte Partikel für die niedrige Einlaufgeschwindigkeit (Versuch 5) und für die hohe Einlaufgeschwindigkeit (Versuch 6). Die Versuche wurden unter den gleichen Bedingungen wie im Falle des absatzweise hergestellten Materials durchgeführt. Die beobachtete Entwicklung der Partikelgrößenverteilungen ist mit denen des kontinuierlich hergestellten Materials gleicher Partikelgröße vergleichbar. Der globale Modalwert im Partikelgrößenbereich zwischen 250-300 μm sinkt mit zunehmender Anzahl an Zyklondurchläufen und ein zweiter Modalwert bildet sich im Bereich 100-150 μm aus.

Demnach haben der Herstellungsmodus der Partikel sowie die Einlaufgeschwindigkeiten in den Zyklon bei den betrachteten Betriebsbedingungen keinen messbaren Einfluss auf das Bruchverhalten, dieses wird primär durch die Partikelgröße bestimmt.

Es ist leicht zu erkennen, dass die neu generierten Partikel ungefähr den halben Partikeldurchmesser der zerstörten Partikel haben. Dementsprechend lässt sich für die Modellierung ein durch binären Bruch dominierter Bruchmechanismus ableiten.

6.2.2.2 Blasenbildende Wirbelschicht

Die Ergebnisse der Versuche in der blasenbildenden Wirbelschicht sind in Abb. 6.28 für die grobe Fraktion (255-350 μm) oben bei einer Gasgeschwindigkeit von 1,08 m/s sowie unten bei einer Gasgeschwindigkeit von 0,11 m/s wiedergegeben. Für die feine Fraktion (100-180 μm) sind die Ergebnisse in Abb. 6.29 oben bei einer Gasgeschwindigkeit von 0,27 m/s sowie unten bei einer Gasgeschwindigkeit von 0,02 m/s wiedergegeben.

Die Schwankungen der Massendichteverteilungen sind stärker ausgeprägt als in den Zyklonversuchen. Es kann keine eindeutige Tendenz für die zeitliche Entwicklung des Modalwertes über die Versuchsdauer beobachtet werden. Die größeren Schwankungen im Bereich kleiner 50 μm können von nicht idealer Rückführung von Feinstpartikeln aus dem Schwerkraftabscheider herrühren. Es scheint, dass dieser Effekt nicht kontinuierlich sondern in Zyklen erfolgt. Dies kann durch die Annahme eines Aufbaus dünner Partikelschichten an der Behälterwand, insbesondere im Bereich der Aufweitung des Schwerkraftabscheiders, erklärt werden, die erst bei Erreichen signifikanter Dicken durch die Abreinigung zum Abrutschen und Zurückfallen ins Wirbelbett gebracht werden.

Dementsprechend kann der Anteil dieser Feinstpartikeln in den über den Probennahmestutzen gezogenen Proben zeitabhängig variieren. Als zweites Phänomen kann insbesondere in Versuch 11, aber auch in abgeschwächter Ausprägung in den Versuchen 9 und 10 ein Ansteigen des globalen Modalwerts mit voranschreitender Versuchsdauer beobachtet werden. Diese Beobachtung lässt sich durch den Austrag von Feinstpartikeln erklären.

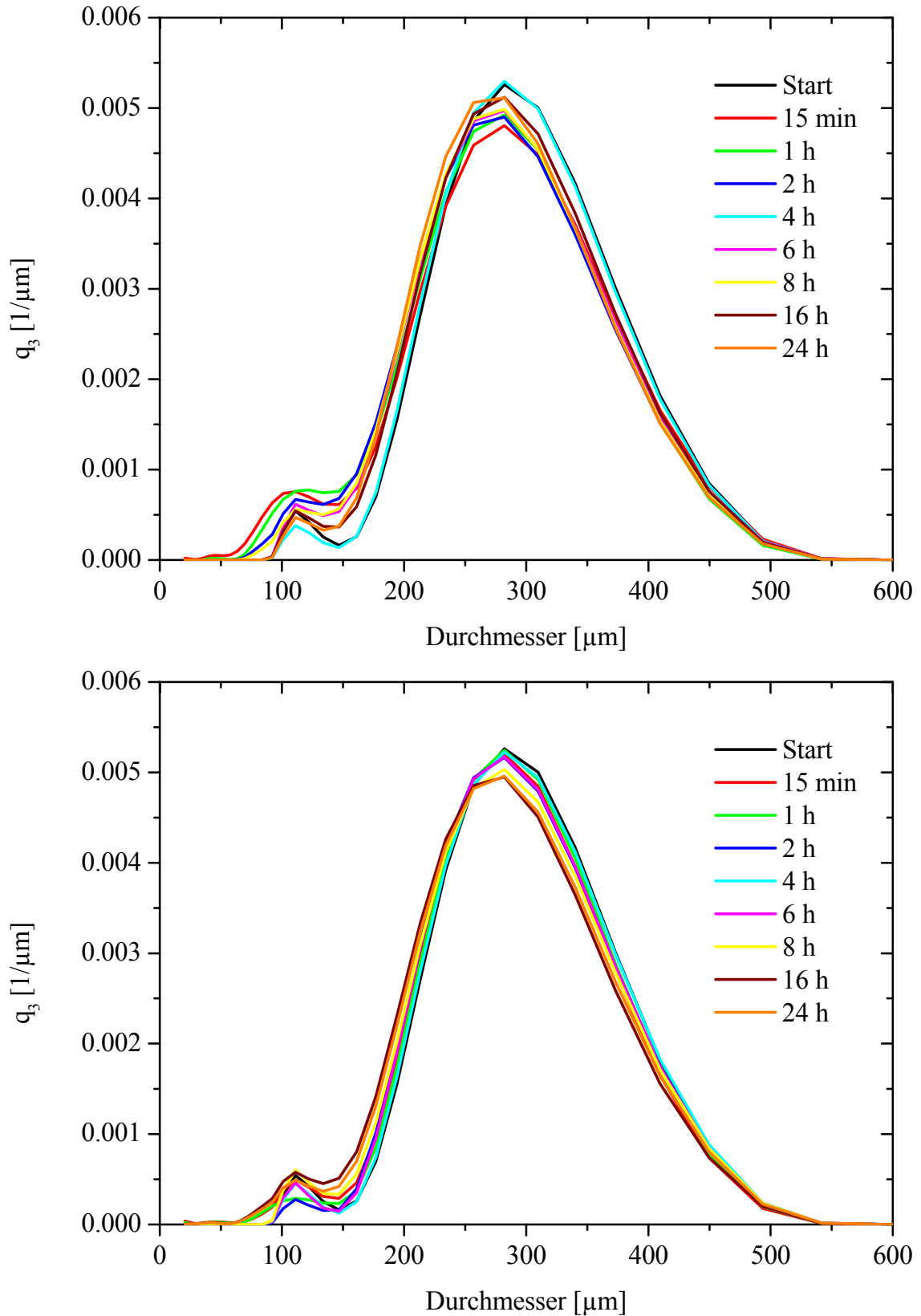


Abb. 6.28: Zeitliche Partikelgrößenentwicklung in der Wirbelschicht, Massendichteverteilung $q_3(x_i)$, oben Versuch 9: $d_p = 250\text{-}355 \mu\text{m}$, $u_{\text{Gas}} = 1,08 \text{ m/s}$, unten Versuch 10: $d_p = 250\text{-}355 \mu\text{m}$, $u_{\text{Gas}} = 0,11 \text{ m/s}$

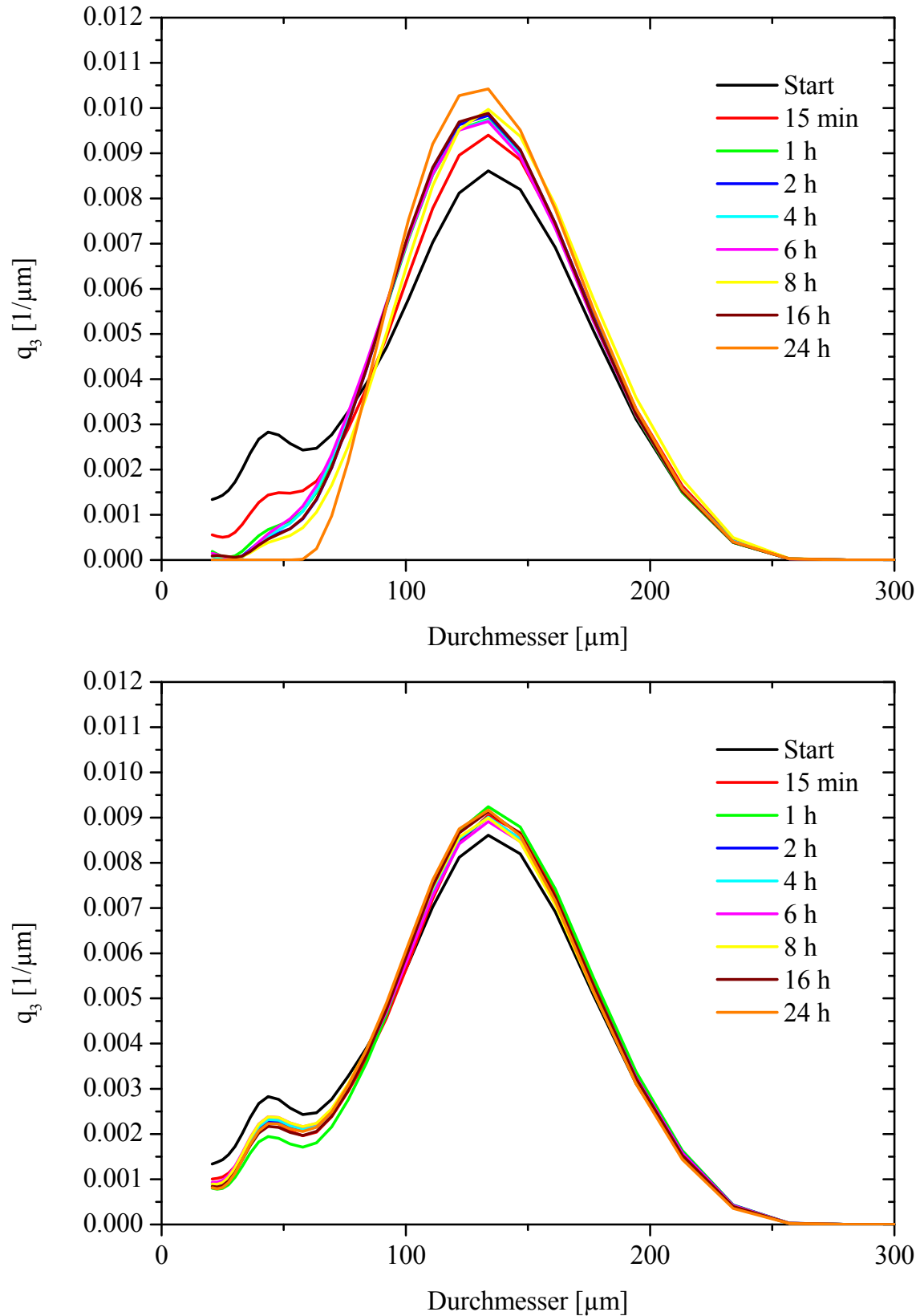


Abb. 6.29: Zeitliche Partikelgrößenentwicklung in der Wirbelschicht, Massendichteverteilung $q_3(x_i)$, oben Versuch 11: $d_p = 100\text{-}180 \mu\text{m}$, $u_{\text{Gas}} = 0,27 \text{ m/s}$, unten Versuch 12: $d_p = 100\text{-}180 \mu\text{m}$, $u_{\text{Gas}} = 0,02 \text{ m/s}$

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass in den Versuchen in der blasenbildenden Wirbelschicht kein signifikanter Bruch nachgewiesen wurde. Diese Beobachtung ist unabhängig von der Herstellungsmethode der verwendeten Saccharosegranulate und ihrer Partikelgröße. Die mechanische Belastung bzw. die durch die in der Wirbelschicht auftretenden Partikel-Partikel-Kollisionen eingebrachte kinetische Energie ist nicht groß genug, um die Partikel zu brechen. Die kornverkleinernden Effekte in der blasenbildenden Wirbelschicht sind durch Abrieb dominiert, der im nächsten Abschnitt behandelt wird.

6.2.3 Abrieb

6.2.3.1 Zyklon

Abb. 6.30 und Abb. 6.31 zeigen die Ergebnisse der Abriebsmessungen am Zyklonversuchsstand. Die zugehörigen Betriebsbedingungen sind in Tab. 6.2 bzw. Tab. 6.3 aufgeführt.

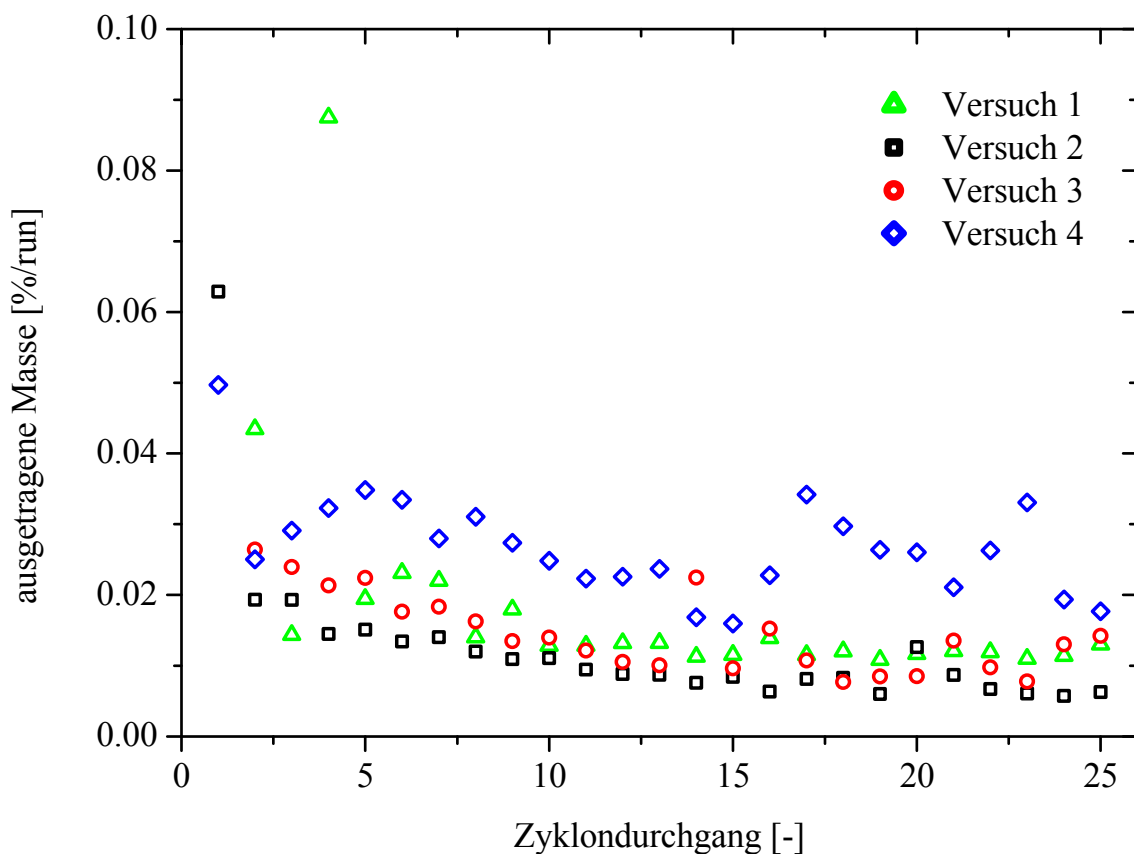


Abb. 6.30: Entwicklung der Abriebsrate im Zyklonversuch, Versuche 1-4, Parametersatz siehe Tab. 6.2

Tab. 6.2: Parameter Abriebsversuche 1-4 (Zyklon)

Versuch Nr.	1	2	3	4
Material	1	1	2	2
Partikelgröße x [μm]	100-160	100-160	250-355	250-355
Gaseintrittsgeschw. Zyklon $u_{\text{gas,in}}$ [m/s]	9,3	14,4	9,3	14,4
Feststoffbeladung μ [kg/kg]	4,5	5,0	2,3	5,1
Abriebsrate (stationär) r_z [Gew.-%/Durchlauf]	0,012	0,008	0,011	0,025

Zu Beginn aller Versuchsreihen, im Allgemeinen beim ersten, zum Teil auch noch beim zweiten Zyklondurchgang des zu testenden Materials wird ein (relativ) hoher Austrag von Feinstpartikeln beobachtet. Die gemessenen Werte sind offensichtlich auf zwei sich überlagernde Effekte zurückzuführen. Die Massendichteverteilungen q_3 der Materialien vor dem Start der Versuche zeigt einen zum Teil noch signifikanten Anteil an Partikeln in der dem Austrag entsprechenden Größenklasse. Diese Partikel werden über den Zyklonoberlauf ausgetragen und in der Bilanzierung als „Abrieb“ mitgezählt.

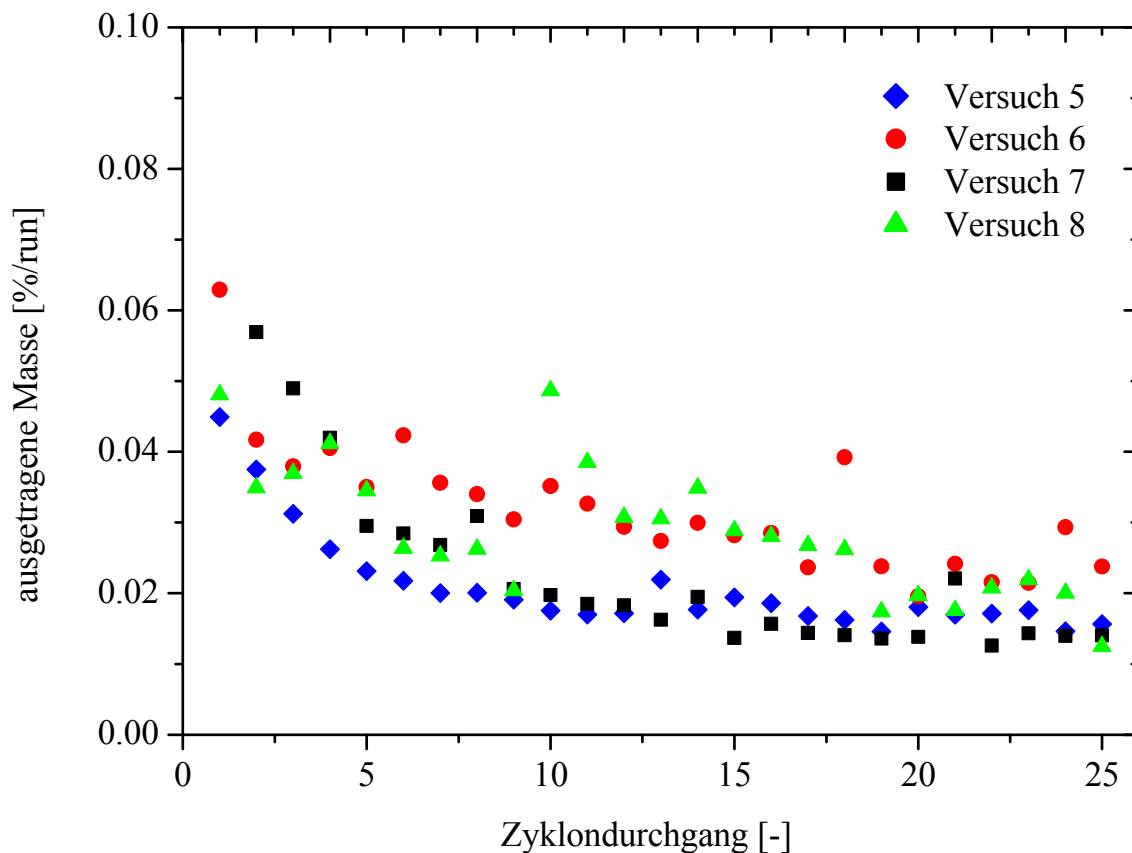


Abb. 6.31: Entwicklung der Abriebsrate im Zyklonversuch, Versuche 5-8, Parametersatz siehe Tab. 6.3

Tab. 6.3: Parameter Abriebsversuche 5-8 (Zyklon)

Versuch Nr.	5	6	7	8
Material	4	4	3	3
Partikelgröße x [μm]	250-355	250-355	100-180	100-180
Gaseintrittsgeschw. Zyklon $u_{\text{gas,in}}$ [m/s]	9,3	14,4	9,3	14,4
Feststoffbeladung μ [kg/kg]	2,3	5,1	4,5	5,0
Abriebsrate (stationär) r_z [Gew.-%/Durchlauf]	0,017	0,026	0,015	0,022

Der zweite Effekt besteht darin, dass zum Start jeder Serie ein größerer Anteil an Feinstpartikeln durch Abrieb erzeugt wird. Die Partikeloberflächen sind relativ rau, so dass Oberflächenrauigkeiten zuerst abbrechen und sich die Oberfläche glättet. Mit zunehmender Anzahl an Zyklondurchläufen werden die Partikel glatter und runder und die Abriebsraten gehen auf einen niedrigeren, stationären Wert zurück, die stationäre Abriebsrate.

Aus den Messergebnissen lässt sich ablesen, dass dieser Wert für alle Versuche nach 10-15 Zyklondurchläufen erreicht ist. Stärkere Schwankungen in der ausgetragenen Partikelmasse können zu Beginn der Serien beobachtet werden. Sie lassen sich durch die im Ausgangsmaterial befindlichen Feinstpartikel erklären.

Die stationäre Abriebsrate wird aus dem Mittelwert der Zyklondurchläufe 15-25 jeder Serie gebildet und ist in Tab. 6.2 bzw. Tab. 6.3 wiedergegeben.

In Abhängigkeit der Versuchsparameter ergeben sich stationäre Abriebsraten zwischen 0,08 und 0,026 Gew.-% pro Zyklondurchgang. Für alle Versuche mit Granulaten, bzw. einer polykristallinen Partikelstruktur (Versuche 3-8) ist die stationäre Abriebsrate im Falle der höheren Gaseintrittsgeschwindigkeit in den Zyklon und der hohen Feststoffbeladung größer als für den Fall mit niedriger Gaseintrittsgeschwindigkeit und niedrigerer Feststoffbeladung.

Eine starke Abhängigkeit von der Partikelgröße wird nicht beobachtet. Die mittlere stationäre Abriebsrate für Versuche mit niedriger Gasgeschwindigkeit ergibt sich zu $r_z = 0,014$ Gew.-%/Durchgang, die für die hohe Gasgeschwindigkeit zu $r_z = 0,024$ Gew.-%/Durchgang.

Im Falle der Versuche 1 und 2 mit (mono-)kristallinen Partikeln zeigte sich für den Fall der niedrigen Gaseintrittsgeschwindigkeit (Versuch 1) von 9,3 m/s eine vergleichbare Abriebsrate zu den Granulaten gleicher Größe. Bei der hohen Gaseintrittsgeschwindigkeit von 14,4 m/s (und leicht erhöhter Feststoffbeladung) (Versuch 2) ist die Abriebsrate deutlich kleiner als bei Granulaten gleicher Größe.

Von REPPENHAGEN & WERTHER [76] wurde abgeleitet, dass die stationäre Abriebsrate proportional zur zweiten Potenz der Einlaufgeschwindigkeit und umgekehrt proportional zur Feststoffbeladung ist,

$$r_z = \frac{K_z}{\mu} \cdot u_z^2 \quad (6.2)$$

Da sich in den vorliegenden Versuchen die Abriebsrate jeweils bei steigender Zykloneintrittsgeschwindigkeit (von 9,3 auf 14,4 m/s) und gekoppelter steigender Feststoffbeladung (von 2,3 auf 5,1 kg/kg bzw. von 4,5 auf 5,0 kg/kg) erhöht, lässt sich ableiten, dass die Gaseintrittsgeschwindigkeit in den Zyklon den signifikant größeren Einfluss auf den Abrieb der Saccharosegranulate hat.

Die Anpassung der experimentellen Ergebnisse an Gleichung (6.2) erfolgte getrennt für die verschiedenen Materialien, die sich hinsichtlich Herstellungsmethode und Partikelgröße unterscheiden. Versuche mit gleichem Material aber unterschiedlicher Einlaufgeschwindigkeit wurden jeweils zur Anpassung herangezogen und ergeben die materialspezifischen Konstanten K_z mit den in Tab. 6.4 präsentierten Werten. Der Einfluss der Herstellungsmethode auf die materialspezifischen Konstanten K_z ist klein. Der Mittelwert über alle Versuche, der unabhängig von der Herstellungsmethode der Granulate ist, ergibt sich zu $5,2 \cdot 10^{-6} \text{ s}^2/\text{m}^2$.

Tab. 6.4: Parameter nach Anpassung an Gleichung (6.2)

	Material 1	Material 2	Material 3	Material 4
Herstellungsmethode	Ausgangsmat. (getrocknet)	Sprühgranulat	Sprühgranulat	Sprühgranulat
Sprühposition	-	500 mm	1500 mm	1500 mm
Partikelgröße x [μm]	100-180	250-355	100-180	250-355
Versuch	1&2	3&4	7&8	5&6
$K_z \left[\frac{\text{s}^2}{\text{m}^2} \right]$	$4,1 \cdot 10^{-6}$	$4,5 \cdot 10^{-6}$	$6,5 \cdot 10^{-6}$	$5,5 \cdot 10^{-6}$

6.2.3.2 Wirbelschicht

Abb. 6.32 zeigt die Ergebnisse der Versuche 9-12 in der blasenbildenden Wirbelschicht. Aufgetragen ist die Abriebsrate über der Zeit.

Die gemessenen Werte werden durch die Überlagerung zweier Effekte dominiert. In der Ausgangsverteilung vorhandene Feinstpartikel werden ausgelesen und als Abrieb mitgezählt, dieser Effekt ist insbesondere bei Versuchen mit hohen Gasgeschwindigkeiten und einem großen Trennkornmesser dominant. Als zweiter Effekt kommt es zu Beginn der Versuche zu einem höheren Abrieb, da Oberflächenrauigkeiten abgetragen werden. Mit zunehmender Versuchsdauer werden die Partikel glatter und runder, so dass die Abriebsrate zurückgeht, bis sie schließlich in einen stationären Wert, die stationäre Abriebsrate, übergeht.

Die stationären Abriebsraten r_b ergeben sich aus dem Mittelwert der Messwerte nach Erreichen des stationären Zustandes. Es ergibt sich für Versuch 9 $r_b = 0,11 \text{ Gew.-%/h}$, für Versuch 11 $r_b = 0,12 \text{ Gew.-%/h}$ sowie für Versuch 10 und 12 $r_b = 0,0 \text{ Gew.-%/h}$.

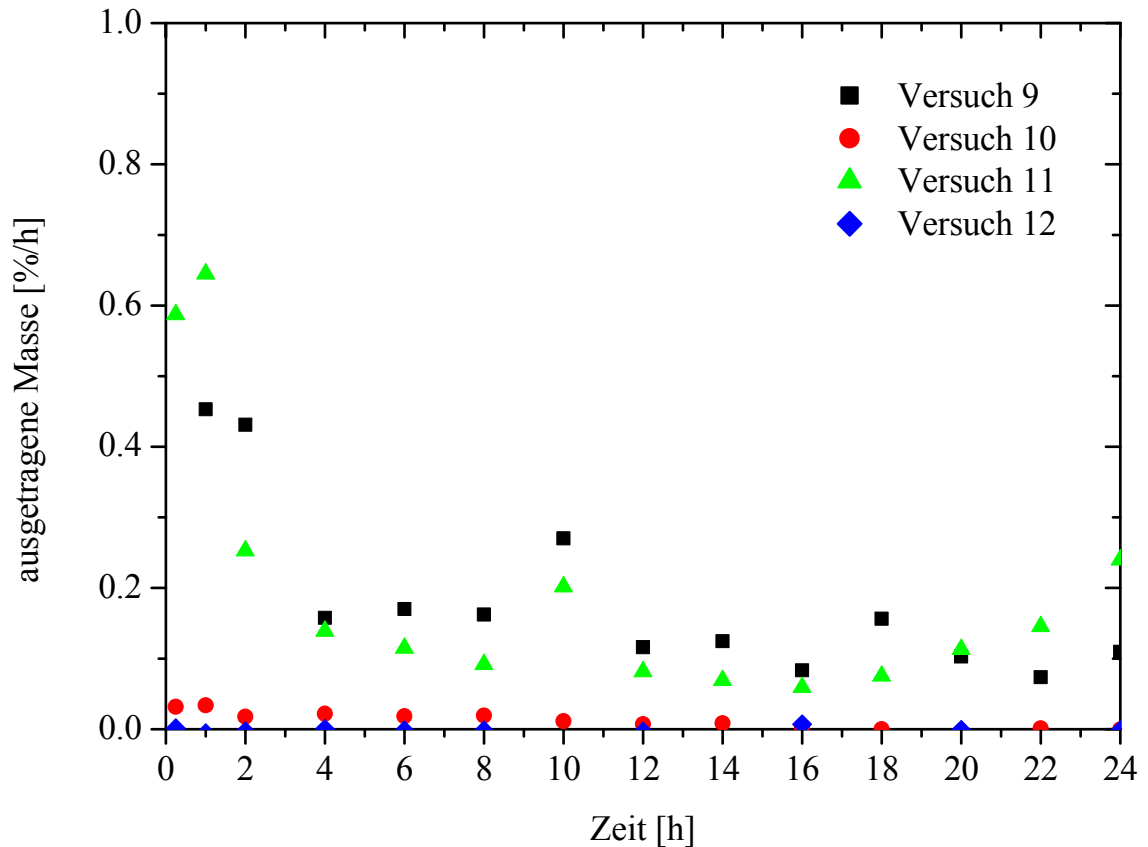


Abb. 6.32: Zeitliche Entwicklung der Abriebrate in der Wirbelschicht, Versuche 9-12, Parametersatz siehe Tab. 6.5

Die Ergebnisse zeigen, dass bei einer Fluidisationsgeschwindigkeit von $3 u_{mf}$ kein blaseninduzierter Abrieb an den Saccharosegranulaten auftritt. Ein zusätzlicher Versuch 13 mit der Partikelfraktion 255-350 μm wurde bei $17 u_{mf}$ als Fluidisationsgeschwindigkeit durchgeführt, um eine zusätzliche Stützstelle für die Parameteranpassung zu generieren. Die stationäre Abriebrate ergibt sich zu $r_b = 0,06$ Gew.-%/h. Die Ergebnisse sind in Tab. 6.5 zusammengefasst.

Tab. 6.5: Parameter Abriebsversuche 9-13 (BWS)

Versuch Nr.	9	10	11	12	13
Material	4	4	3	3	4
Partikelgröße x [μm]	250-355	250-355	100-180	100-180	250-355
Gasgeschw. u_{in} [m/s]	1,08	0,11	0,27	0,02	0,6
Rel. Gasgeschw. u_{in}/u_{mf} [-]	30	3	41	3	17
Abriebrate (stationär) r_z [%/h]	0,11	0	0,12	0	0,06

Die Verwendung eines linearen massenbasierten Ansatzes (6.3) (vergleichbar REPPENHAGEN [75]) zum Anpassen der Messwerte der Partikelfraktion 255-350 μm

zeigt dass Abrieb erst ab ungefähr $u_{g,\min} = 3 u_{mf}$ generiert wird. Dieser Wert wird auch für die Fraktion 100-180 μm angenommen.

$$r_b \left[\frac{\text{kg}}{\text{kg} \cdot \text{s}} \right] = K_b \cdot (u_g - u_{g,\min}) \quad (6.3)$$

$$r_{b,\text{coarse}} = 3,11 \cdot 10^{-7} \frac{1}{\text{m}} (u_g - 0,11 \frac{\text{m}}{\text{s}}) \quad (6.4)$$

$$r_{b,\text{fine}} = 1,33 \cdot 10^{-6} \frac{1}{\text{m}} (u_g - 0,02 \frac{\text{m}}{\text{s}}) \quad (6.5)$$

Der Kurvenverlauf der Anpassungen sowie die zu Grunde liegenden Messwerte sind in Abb. 6.33 wiedergegeben. Für das grobe Material ergibt sich $K_{b,\text{coarse}} = 3,11 \cdot 10^{-7} \text{ m}^{-1}$ für das feine Material $K_{b,\text{fine}} = 1,33 \cdot 10^{-7} \text{ m}^{-1}$.

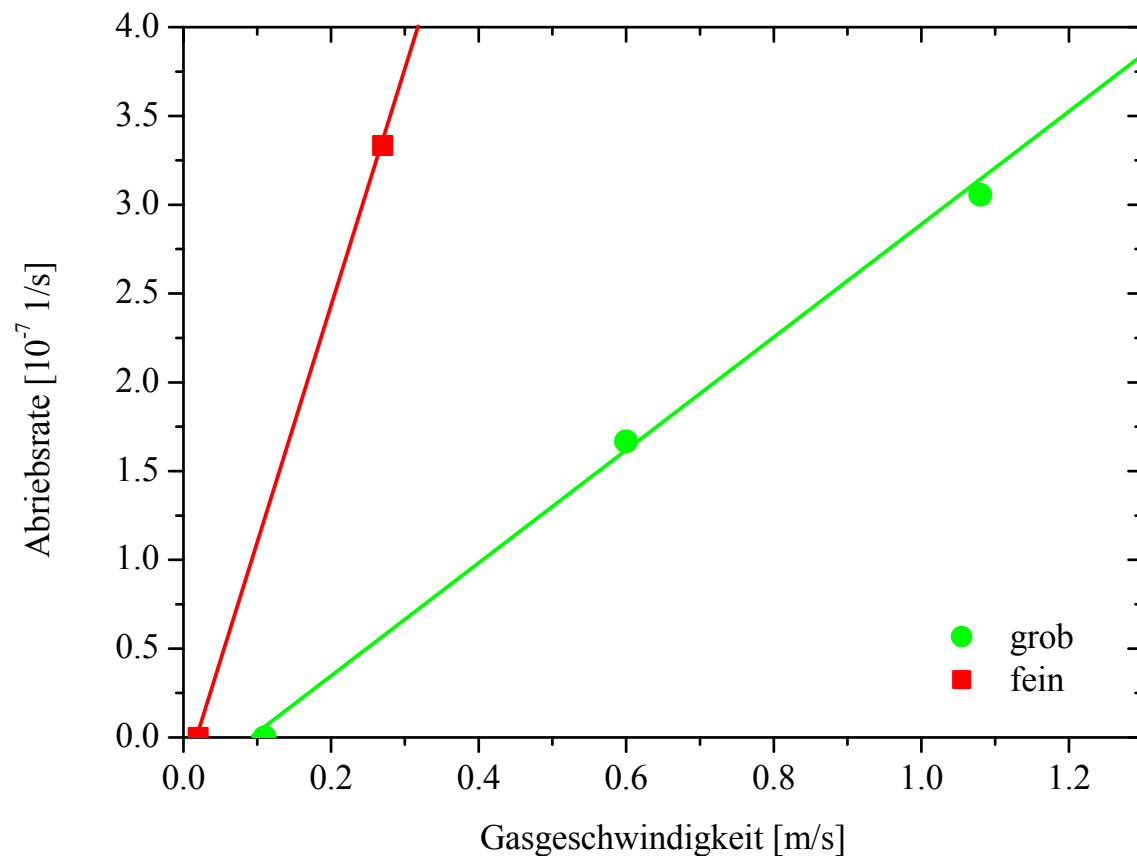


Abb. 6.33: Stationäre Abriebsraten [1/s] in Abhängigkeit der Gaseintrittsgeschwindigkeit, für grobes und feines Material

Als Alternative wird hier ein partikeloberflächenabhängiger Ansatz vorgeschlagen, um den Abrieb zu beschreiben,

$$r_b \left[\frac{\text{kg}}{\text{m}^2 \cdot \text{s}} \right] = \frac{\dot{m}}{A} = K_b^* \cdot (u_g - u_{g,\min}) \quad (6.6)$$

Hierbei wird die Partikeloberfläche A vereinfacht als die Oberfläche der Partikel vor dem Einbringen in den Versuchsstand angenommen. Die Oberfläche wird dann über den Sauterdurchmesser der entsprechenden Partikelfraktion berechnet.

Die so berechneten, oberflächenbezogenen Abriebsraten r_b sind in Abb. 6.34 in Abhängigkeit von der Wirbelgeschwindigkeit aufgetragen. Im Rahmen der Versuchsgenauigkeit erscheint es zulässig, die Messergebnisse durch einen einheitlichen linearen Zusammenhang zu beschreiben,

$$r_b = 3,1 \cdot 10^{-8} \frac{\text{kg}}{\text{m}^3} \left(u_g - 0,652 \frac{\text{m}}{\text{s}} \right) \quad (6.7)$$

Die Anpassung an alle Messwerte resultiert in $K_b^* = 3,1 \cdot 10^{-8} \text{ kg/m}^3$.

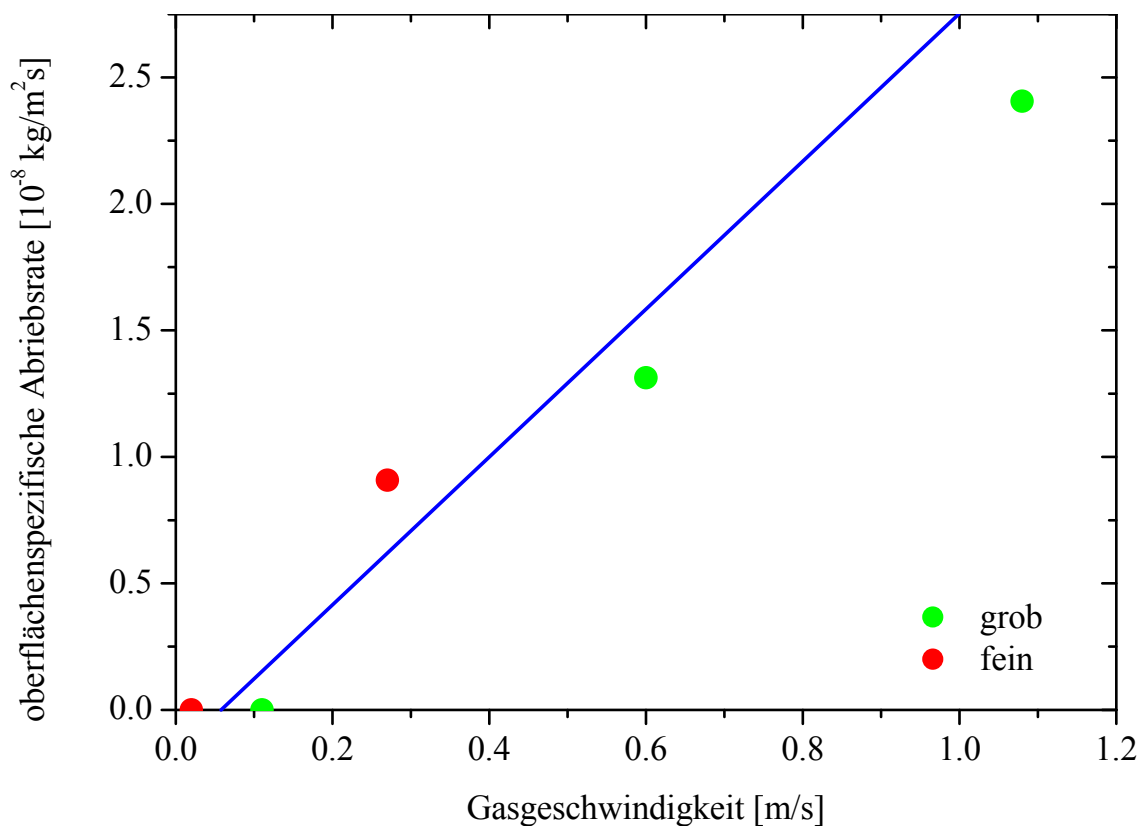


Abb. 6.34: Stationäre Abriebsraten [$\text{kg/m}^2 \text{ s}$] in Abhängigkeit der Gaseintrittsgeschwindigkeit für grobes und feines Material

Offensichtlich bildet der partikeloberflächenabhängige Ansatz das Modellsystem Saccharose unter den betrachteten Betriebsbedingungen besser ab. Unter Verwendung der Gleichung (6.7) wird das Abriebsverhalten im Folgenden auf technisch relevante Fluidisationsgeschwindigkeiten im ZWS-Riser von einigen m/s extrapoliert. Die Zulässigkeit einer solchen Extrapolation wurde für FCC-Katalysatorträger von KLETT [46] nachgewiesen.

Für die weitere Diskussion und die Modellentwicklung wird das partikeloberflächenbasierte Modell verwendet.

6.2.4 Modellentwicklung Abrieb und Bruch

In diesem Kapitel werden die an den Testständen gemessenen Abriebs- und Bruchparameter auf das Abriebs- und Bruchverhalten im ZWS-Granulator übertragen.

Hierfür wird das Abriebs- und Bruchverhalten auf Betriebsbedingungen im Riser extrapoliert sowie ein Populationsbilanzmodell entwickelt und an die gemessenen Daten angepasst. Das Modell ermöglicht die Beschreibung von Abrieb und Bruch im Riser und Zyklon des ZWS-Granulators während der Granulationsversuche.

6.2.4.1 Abrieb

Zyklon

In den ZWS-Granulator-Versuchen ergaben sich für die Leerrohrgeschwindigkeit von 4,1 m/s und die gemessenen Feststoffzirkulationsraten (vergleiche Kapitel 5.1.1) 47-94 Zyklonpassagen des Granulatorinventars pro Stunde. Für die Versuche mit einer Leerrohrgeschwindigkeit von 6,4 m/s ergaben sich 164-175 Zyklonpassagen des Granulatorinventars pro Stunde. Die Übertragung der pro Zyklondurchlauf gemessenen stationären Abriebsraten im Zyklon r_z auf eine Abriebsrate pro Zeit $r_{z,t}$ ergibt sich zu

$$r_{z,t} [\text{kg}/(\text{kgs})] = n \cdot r_z \quad (6.8)$$

mit der Anzahl n der Zyklondurchläufe pro Zeiteinheit.

Die Abriebsrate pro Zyklondurchlauf ist entsprechend Kapitel 6.2.3.1 mit der Einlaufgeschwindigkeit in den Zyklon u_z und der Feststoffbeladung μ am Zykloneintritt definiert als:

$$r_z [\text{kg}/(\text{kg})] = K_z u_z^2 / \mu \quad (6.9)$$

Der Massenstrom an abgeriebenem Material \dot{m}_a , der während des Zyklondurchlaufs erzeugt wird, ist

$$\dot{m}_a = r_z \cdot m_b / t_z \quad (6.10)$$

mit der Batchmasse m_b die in jedem Zyklondurchgang innerhalb der Versuchszeit t_z durch den Zyklon geführt wird.

Im kontinuierlichen ZWS-Betrieb mit dem Feststoffinventar m_b und der Annahme eines vollständigen Partikelaustrags ergibt sich t_z als mittlere Zyklusverweilzeit der Partikel

$$t_z = m_b / \dot{m}_s \quad (6.11)$$

mit dem Partikelmassenstrom

$$\dot{m}_s = G_s \cdot A_r \quad (6.12)$$

wobei A_r die Riserquerschnittsfläche und G_s die Feststoffzirkulationsrate ist. Der Massenstrom abgeriebenen Materials (Feinstpartikel), die im Zyklon erzeugt werden, ergibt sich zu

$$\dot{m}_a = r_{z,t} \cdot G_s \cdot A_r \quad (6.13)$$

womit $r_{z,t}$ sich aus

$$r_{z,t} = \frac{G_s \cdot A_r}{m_b} \cdot r_z \quad (6.14)$$

berechnet.

Die von den Versuchen im Zyklonteststand (Gew.-%/Durchgang) auf eine Zeitbasis (Gew.-%/h) umgerechneten Abriebsraten $r_{z,t}$ für verschiedene Betriebsbedingungen des ZWS-Granulators sind in Tab. 6.6 wiedergegeben. Hier sind auch die Abriebsraten für charakteristische Betriebszustände des ZWS-Granulators wiedergegeben.

Tab. 6.6: Zyklonabrieb, Übertragung der Messwerte aus dem Zyklonversuch auf zeitbezogene Abriebsraten im ZWS-Granulatorbetrieb

Experiment	Material	Partikelgröße d_p [μm]	Riser-Gasgeschw. u_{gas} [m/s]	Zyklon-durchläufe [1/h]	Abriebsrate r_z [%/run]	Abriebsrate $r_{z,t}$ [%/h]
1	1	100-160	4,1	94	0,012	1,12
2	1	100-160	6,4	164	0,008	1,23
3	2	250-355	4,1	47	0,011	0,51
4	2	250-355	6,4	175	0,025	4,24
5	4	250-355	4,1	47	0,017	0,79
6	4	250-355	6,4	175	0,025	4,4
7	3	100-180	4,1	94	0,015	1,37
8	3	100-180	6,4	164	0,022	3,49

Wirbelschicht (Riser)

Die Extrapolation der in der Blasen-Wirbelschicht gemessenen Abriebsraten durch Erhöhung der Gasgeschwindigkeit entsprechend Gl. (6.7) führt zu den in Tab. 6.7 wiedergegebenen Abriebsraten pro Stunde.

Tab. 6.7: Abrieb im ZWS-Riser. Extrapolation der Messwerte auf zeitbezogene Abriebsraten im ZWS-Granulatorbetrieb

	Feine Granulate (Material 3)		Grobe Granulate (Material 4)	
Partikelgröße x [μm]	100-180		250-355	
Riser Gasgeschw. u_{gas} [m/s]	4,1	6,4	4,1	6,4
Abriebsrate [%/h]	1,95	3,05	0,45	0,70

Diese Werte werden in Tab. 6.8 den entsprechenden Abriebsraten im Zyklon des ZWS-Granulators gegenübergestellt.

Tab. 6.8: Vergleich von Zyklonabrieb und Abrieb im Riser des ZWS-Granulators (Inventar 12,5 kg, Feststoff im Riser ca. 8 kg)

Versuch	Risergas- geschw. u_g [m/s]	Feststoff- zirkulations- rate G_s [kg/m ² s]	Partikel- fraktion [-]	Abriebsmassenstrom generiert		
				durch Zyklon \dot{m}_c [kg/h]	durch Riser \dot{m}_{fb} [kg/h]	durch Zyklon + Riser [kg/h]
1	4,1	18,5	fine	0,14	0,21	0,35
2	6,4	32,2	fine	0,15	0,32	0,47
3	4,1	9,2	coarse	0,06	0,07	0,13
4	6,4	34,4	coarse	0,53	0,11	0,64
5	4,1	9,2	coarse	0,10	0,07	0,17
6	6,4	34,4	coarse	0,55	0,11	0,66
7	4,1	18,5	fine	0,17	0,21	0,38
8	6,4	32,2	fine	0,44	0,32	0,76

Aus den extrapolierten Ergebnissen für Zyklon und Riser kann abgelesen werden, dass die Abriebsraten im Riser von gleicher Größenordnung sind wie die im Zyklon des ZWS-Granulators erzeugten Abriebsmassenströme. Prinzipiell lassen sie sich zusammenfassen, da sie beide von oberflächenspezifischem Abrieb ausgehen.

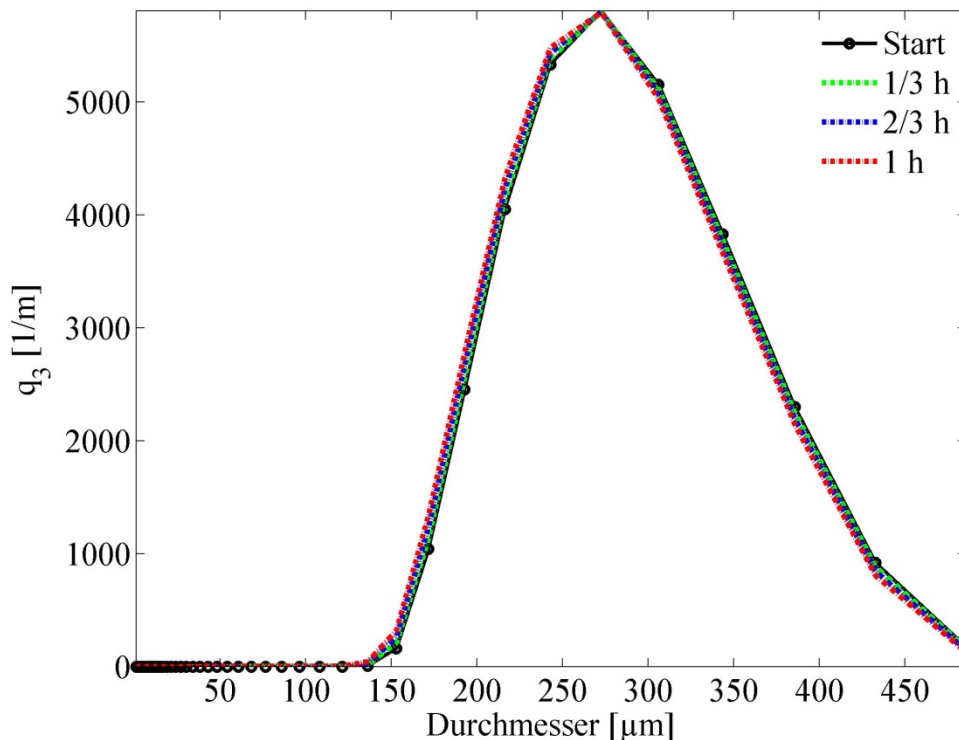


Abb. 6.35: Zeitliche Partikelgrößenentwicklung, Simulation der ausschließlich durch Abrieb verursachten Änderung der Partikelgrößenverteilung innerhalb einer Stunde, $r_{ges} = 6,5$ Gew.-%/h

Das Abriebsverhalten kann durch das in Kapitel 4.3 hergeleitete Populationsbilanzmodell abgebildet werden, wenn in der rechten Seite der Differentialgleichung (5.3) alle Terme bis auf den Granulationsterm zu Null gesetzt

werden und der Massenstrom im Granulationsterm zu $\dot{m} = -r_{ges} \cdot m_{bed}$ gesetzt wird, worin $r_{ges} = r_{z,t} + r_b$ ist.

Unter der Annahme des größtmöglichen Abriebs, d.h. Kombination der größten Abriebsraten in Zyklon und Riser ergibt sich eine maximale Abriebsrate r_{ges} von 6,5 Gew.-%/h. Die theoretische Entwicklung der Massendichteverteilung q_3 innerhalb einer Stunde im Vergleich zur Ausgangsverteilung, für eine Typische Ausgangsverteilung (Zyklonversuch 4), ist in Abb. 6.35 dargestellt. Wie erwartet, ist keine Veränderung der Form der Verteilung zu erkennen, es erfolgt lediglich eine schwache Verschiebung nach links hin zu feineren Partikeln. Am Ende der Rechnung hat die Partikelmasse des Systems um 6,5 % abgenommen.

6.2.4.2 Bruch (binärer Modellansatz)

Bruch trat in den Versuchen nur in den Zyklonversuchen 3-6 mit der groben Kornfraktion (255-350 μm) auf. In allen anderen Zyklonversuchen sowie in den Versuchen in der blasenbildenden Wirbelschicht konnte kein Bruch nachgewiesen werden. Dementsprechend wird angenommen, dass auch unter ZWS-Betriebsbedingungen Bruch nur im Zyklon auftritt und Partikel unterhalb einer Größe im Bereich von 100-180 μm überhaupt nicht brechen.

Das Bruchverhalten kann mit einem Populationsbilanzmodell nach HILL UND NG [29] [30] wie in Kapitel 4.3 beschrieben werden. In diesem Modell sind verschiedene funktionale Zusammenhänge für die Selection Rate S denkbar. Ein Potenzansatz (6.15), ein logarithmischer Ansatz (6.16) und ein exponentieller Ansatz (6.17) wurden zum Beispiel in PÜTTMANN [66] diskutiert.

$$S(v_i) = S_0 \cdot v_i^\alpha \quad (6.15)$$

$$S(v_i) = 1 - \frac{1}{1 + \left(\frac{v_i}{S_0}\right)^\alpha} \quad (6.16)$$

$$S(v_i) = 1 - \exp(-S_0 \cdot v_i^\alpha) \quad (6.17)$$

worin v_i das Volumen der i -ten Partikelklasse ist.

Für den Potenzansatz (Gl. (6.15)) wurde eine Variation des α zwischen 0 und 2 und eine anschließende Anpassung des S_0 an die Messwerte der 4 Versuchsreihen im Zyklon, in denen Bruch auftrat, durchgeführt.

Die Simulation der Versuche 3-6 mit dem beschriebenen Modell ergibt die in Tab. 6.9 wiedergegebenen Ergebnisse für α und S_0 sowie den resultierenden Fehler. Der Fehler ist dabei definiert als die Summe der quadratischen Abweichungen zwischen Messung und Rechnung der ΔQ_3 -Verteilungen nach 24 Zyklondurchgängen.

$$\sum_i (\Delta Q_{3, \text{mess}, i} - \Delta Q_{3, \text{calc}, i})^2 \quad (6.18)$$

Es zeigt sich, dass mit ansteigendem α die Generierung von Feinstpartikeln schlechter abgebildet wird. Dies ist in Abb. 6.36 und Abb. 6.37 deutlich dargestellt. Beide Abbildungen zeigen die berechnete Korngrößenverteilung für Versuch 4, die erste Abbildung mit $\alpha = 0$, die zweite mit $\alpha = 2$. Eine Annäherung an die Versuchsdaten ist nur für den Fall mit $\alpha = 0$ möglich.

Die Annäherung an die Versuchsdaten ist für alle Fällen mit $\alpha = 0$ möglich, auch weitere hinreichend kleine Werte von α führen zu einem vergleichbaren Ergebnis. Größere Werte von α führen bei der Anpassung der Selection-Rate-Konstanten S_0 (Tab. 6.9 Spalte 3) zu starken Abweichungen und ggf. zu physikalisch nicht sinnvollen Werten von S größer eins, wobei die Werte von S partikelgrößenabhängig sind (vgl. Tab. 6.9 Spalte 4 exemplarisch für Partikel der Größe $d_p = 1000 \mu\text{m}$).

Tab. 6.9: Variation und Anpassung der Bruchparameter in Gl. (6.15) für die Versuche 3-6

Experiment	Bruch Exponent α	Bruch Selection Rate Konst. S_0 [1/run]	1000 μm Partikel Selection Rate S [1/run]	Fehler
3	0	$1,8 \cdot 10^{-2}$	$1,8 \cdot 10^{-2}$	0,0002
3	0,25	9,0	$4,3 \cdot 10^{-2}$	0,0001
3	0,5	$4,2 \cdot 10^2$	$9,7 \cdot 10^{-2}$	0,0010
3	1	$7,5 \cdot 10^{13}$	$3,9 \cdot 10^{-1}$	0,0023
3	2	$6,7 \cdot 10^{23}$	1,8	0,0037
4	0	$3,8 \cdot 10^{-2}$	$3,8 \cdot 10^{-2}$	0,0005
4	0,25	20,0	$9,6 \cdot 10^{-2}$	0,001
4	0,5	$1,0 \cdot 10^4$	$2,3 \cdot 10^{-1}$	0,0010
4	1	$2,2 \cdot 10^9$	1,2	0,0041
4	2	$6,1 \cdot 10^{19}$	17	0,0111
5	0	$1,1 \cdot 10^{-2}$	$1,1 \cdot 10^{-2}$	0,0000
5	0,25	5,5	$2,6 \cdot 10^{-2}$	0,0001
5	0,5	$2,6 \cdot 10^3$	$6,0 \cdot 10^{-2}$	0,0002
5	1	$4,8 \cdot 10^8$	$2,5 \cdot 10^{-1}$	0,0005
5	2	$7,5 \cdot 10^{18}$	2,1	0,0011
6	0	$2,2 \cdot 10^{-2}$	$2,2 \cdot 10^{-2}$	0,0006
6	0,25	10,0	$4,8 \cdot 10^{-2}$	0,0010
6	0,5	$5,2 \cdot 10^3$	$1,2 \cdot 10^{-1}$	0,0015
6	1	$9,7 \cdot 10^8$	$5,1 \cdot 10^{-1}$	0,0030
6	2	$1,7 \cdot 10^{19}$	4,7	0,0052

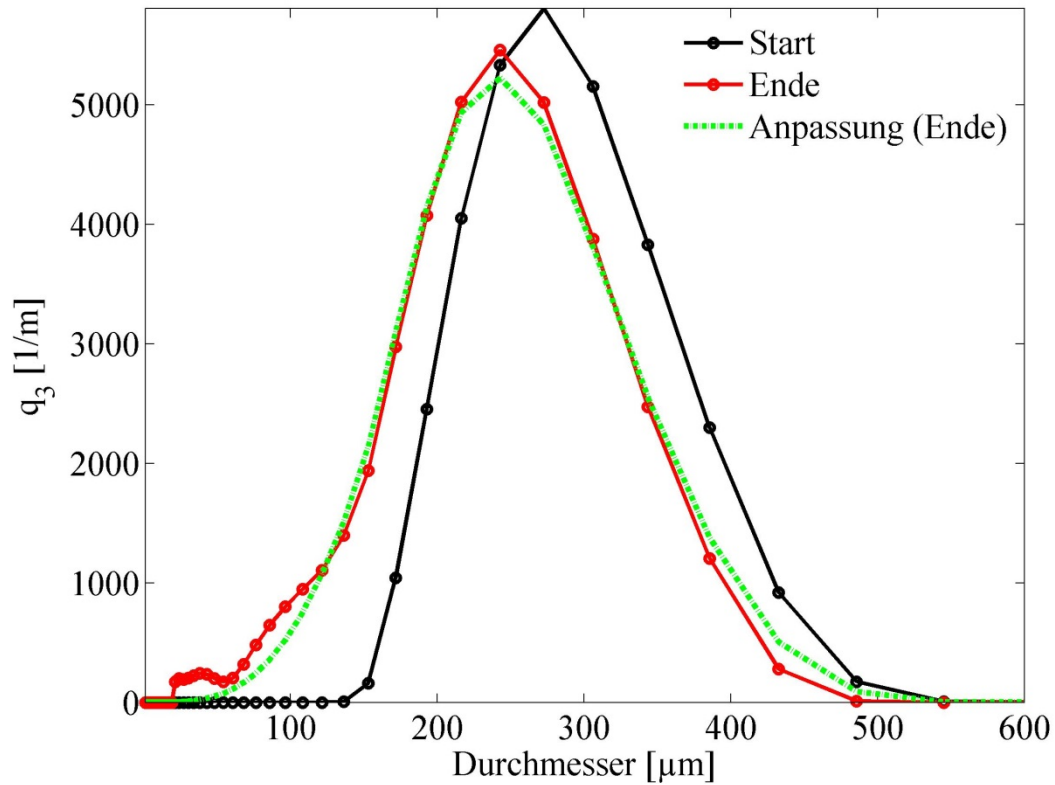


Abb. 6.36: Massendichteverteilung $q_3(x_i)$ mit $\alpha = 0$ in Gl. (6.15), beste Anpassung $S_0 = 3,8 \cdot 10^{-2}$, Versuch 4, keine Größenlimitierung des Partikelbruchs

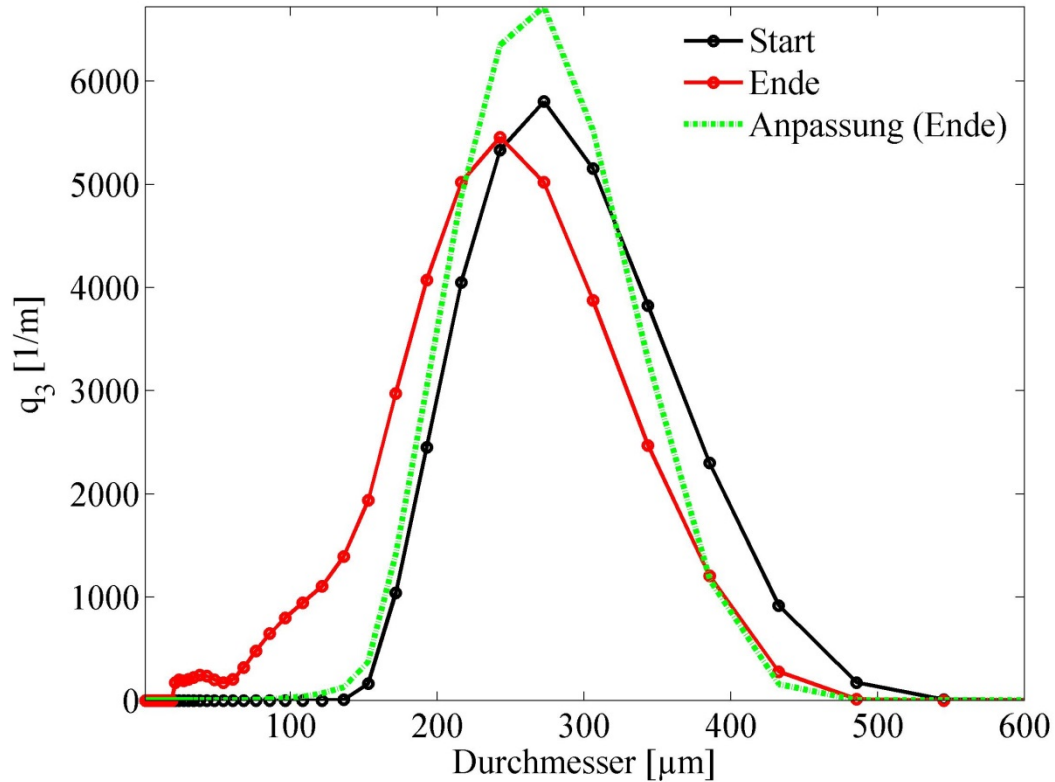


Abb. 6.37: Massendichteverteilung $q_3(x_i)$ mit $\alpha = 2$ in Gl. (6.15), beste Anpassung $S_0 = 6,1 \cdot 10^{19}$, Versuch 4, keine Größenlimitierung des Partikelbruchs

Die grobe Form der Partikelgrößenverteilung wird, wie für alle Versuche bei denen Bruch auftrat, gut mit $\alpha = 0$ in Gl. (6.15) abgebildet. Dies bedeutet $S=S_0=\text{const.}$, d.h. die Bruchwahrscheinlichkeit ist Korngrößenunabhängig.

Alle simulierten Massendichteverteilungen für die Versuche 3-6 zeigen ein ähnliches Verhalten und eine vergleichbare Selection Rate-Konstante S_0 , deren Mittelwert sich zu $S_0 = 2,2 \cdot 10^{-2}$ bei $\alpha = 0$ ergibt. Dieser Wert ergibt für die 4 betrachteten Versuche eine hinreichend gute Übereinstimmung der Simulation mit den Messwerten.

Gleichzeitig zeigen die Versuche 1-2 und 7-8 keinen Bruch, folglich ist die Selection-Rate-Konstante in diesem Korngrößenbereich unterhalb von $180 \mu\text{m}$ für die Versuche $S_0 = 0$. Es ist anzunehmen, dass die Selection Rate-Funktion im Bereich zwischen $50\text{-}200 \mu\text{m}$ einen scharfen Anstieg von $S_0 = 0$ auf den in den Versuchen 3-6 gefundenen Wert $S_0 = 2,2 \cdot 10^{-2}$ macht. Mangels ausreichender Daten für eine detaillierte Anpassung, wie sie z.B. in PÜTTMANN [66] beschrieben wird, wurde dies hier mit einer Sprungfunktion mit Sprung bei $100 \mu\text{m}$ realisiert.

Abb. 6.38 zeigt den Einfluss der Sprungfunktion mit dem Sprung bei $100 \mu\text{m}$ auf die Simulationsergebnisse für (Zyklon-)Versuch 4. Es ist erkennbar, dass der gemessene zweite kleinere Modalwert bei $100 \mu\text{m}$ deutlich besser getroffen wird als in Abb. 6.36.

Das beste Ergebnis für alle Versuche mit Bruch (Versuche 3-6) wurde mit einer reinen Sprungfunktion bei $100 \mu\text{m}$ erreicht.

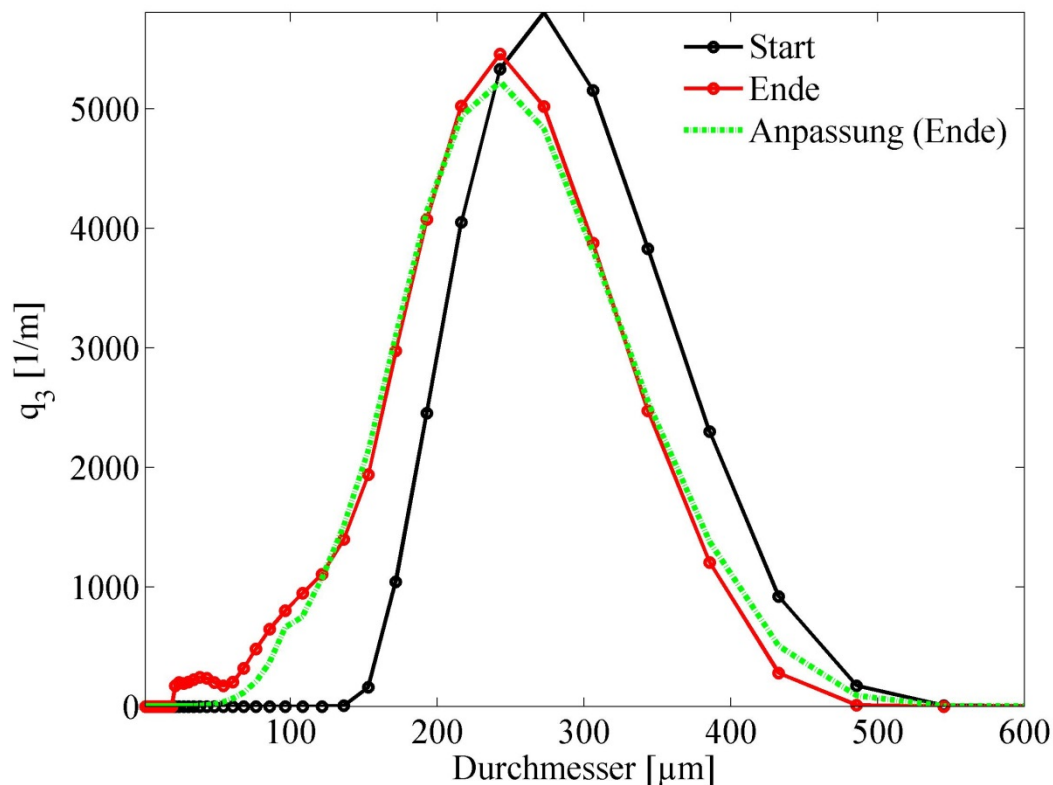


Abb. 6.38: Massendichteverteilung $q_3(d_i)$ mit $\alpha = 0$ in Gl. (6.15), beste Anpassung mit $S_0 = 3,8 \cdot 10^{-2}$, Versuch 4, kein Partikelbruch unterhalb $100 \mu\text{m}$

Der Fokus dieser Arbeit liegt in der Beschreibung des gesamten ZWS-Granulators. Dementsprechend wird ein grobes und einfaches Bruchmodell als ausreichend zur Beschreibung der Vorgänge im Granulator erachtet. Im Weiteren wird deshalb das vorgeschlagene binäre Bruchmodell mit einer Selection Rate in Form der Sprungfunktion mit Sprung bei $100\ \mu\text{m}$ als Kompromiss zur Beschreibung des Bruchverhaltens des feinen und des groben Materials verwendet.

$$S(d_p) = \begin{cases} 0 & 0 \leq d_p \leq 100\ \mu\text{m} \\ S_0(u_g, G_s) & d_p > 100\ \mu\text{m} \end{cases} \quad (6.19)$$

Die Überführung der Ergebnisse aus der Simulation mit Zyklondurchläufen als Ordinate ergibt für die hohen Gasgeschwindigkeit von $6,4\ \text{m/s}$ im ZWS-Riser (175 Zyklondurchläufe/h) eine mittlere Selection Rate von $1,1 \cdot 10^{-3}\ \text{1/s}$ und für die niedrige Gasgeschwindigkeit von $4,1\ \text{m/s}$ (47 Zyklondurchläufe/h) eine mittlere Selection Rate von $2,9 \cdot 10^{-4}\ \text{1/s}$ (vgl. Tab. 6.10 in Kap. 6.2.2).

Schließlich wird der Einfluss des Bruchs im ZWS-Granulator auf die Partikelgrößenverteilung anhand einer charakteristischen Fraktion (Zyklonversuch 4) von $150\text{-}400\ \mu\text{m}$ visualisiert. Die Simulationen in Abb. 6.39 und Abb. 6.40 stellen zwei hypothetische Versuche ohne Eindüsung (und somit Granulation) mit $4,1\ \text{m/s}$ bzw. $6,4\ \text{m/s}$ und $12,5\ \text{kg}$ ZWS-Bettinventar nach. Der Abrieb stellt keinen wesentlichen Einfluss auf die Entwicklung der Massendichteverteilung des Bettinventars dar und wird daher vernachlässigt.

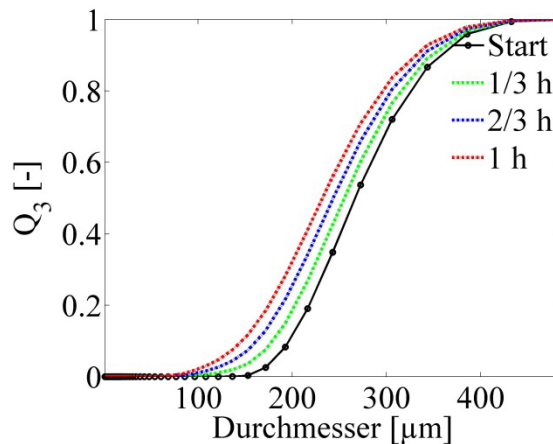


Abb. 6.39: Partikelgrößenentwicklung über eine Stunde für die Fraktion $150\text{-}400\ \mu\text{m}$, Simulation der durch Bruch im Zyklon hervorgerufenen Entwicklung, Riser Gasgeschwindigkeit $4,1\ \text{m/s}$, Rechnung ohne Limitierung des Bruchs.

Abb. 6.39 zeigt sowohl die Ergebnisse für reinen Partikelbruch bei $4,1\ \text{m/s}$ Gasgeschwindigkeit im Riser ohne Begrenzung des Bruchs. Aufgetragen sind die Startverteilung sowie die Simulationsergebnisse nach 20 min, 40 min, und 60 min. Die zusätzliche Rechnung mit Limitierung des Bruchs bei $100\ \mu\text{m}$ liefert kein unterscheidbar anderes Simulationsergebnis, da keine signifikante Anzahl an Partikeln kleiner $100\ \mu\text{m}$ im betrachteten Simulationszeitraum auftreten.

Abb. 6.40 zeigt die Rechnungen für den Fall einer Gasgeschwindigkeit im Riser von 6,4 m/s.

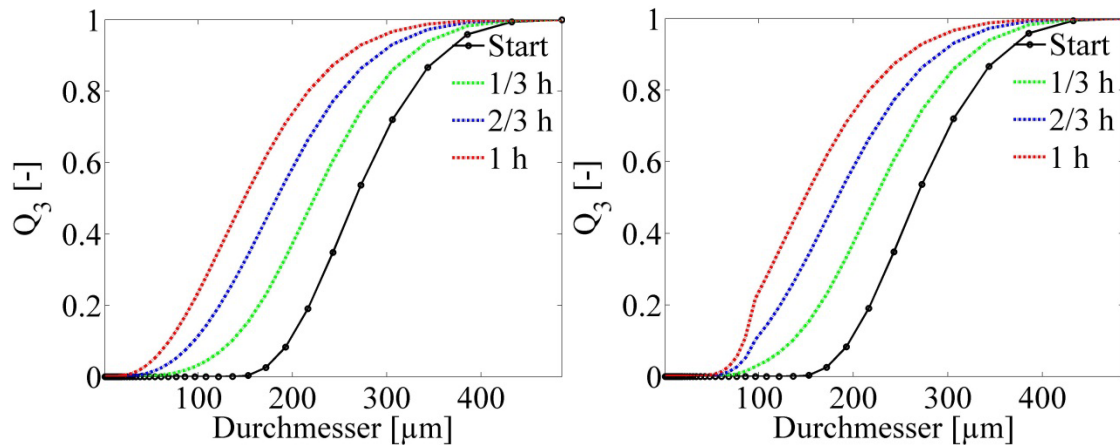


Abb. 6.40: Partikelgrößenentwicklung über eine Stunde für die Fraktion 150-400 μm , Simulation der durch Bruch im Zyklon hervorgerufenen Entwicklung, Riser-Gasgeschwindigkeit 6,4 m/s, links: keine Limitierung des Partikelbruchs, rechts: Limitierung des Partikelbruchs bei 100 μm

Die Anwendung der abgeleiteten Bruchcharakteristik im Zyklon über jeweils eine Stunde zeigt, dass die Bruchvorgänge im Granulator für eine Beschreibung des Granulationsverhaltens nicht vernachlässigt werden dürfen. Ohne Limitierung des Bruchs ab einer definierten Korngröße wird vor allem im Fall hoher Gasgeschwindigkeiten das Material beliebig fein gemahlen, was nicht der Realität entspricht.

6.2.5 Zusammenfassung Abrieb und Bruch

Das Abriebs- und Bruchverhalten der Saccharosepartikeln wurde an zwei separaten Versuchständen, einem Zyklonteststand und einer blasenbildenden Wirbelschicht untersucht. Hierzu wurden die in der ZWS auftretenden Bedingungen in den Testständen soweit möglich nachgestellt.

In der blasenbildenden Wirbelschicht wurden die für den Abrieb gewonnenen Werte zur Anpassung der Parameter eines gasgeschwindigkeitsabhängigen Abriebsmodells verwendet. Es konnte gezeigt werden, dass der Abrieb proportional zur Oberfläche der Partikeln ist, dementsprechend wurde das Modell modifiziert. Mittels dieses Modells wurde das Abriebsverhalten auf ZWS-Betriebsbedingungen extrapoliert.

In den Zyklonversuchen wurden Abriebsraten unter relevanten Betriebsbedingungen des ZWS-Granulators ermittelt. Diese wurden dann von einer Basis pro Zyklondurchlauf auf eine Basis pro Zeiteinheit im ZWS-Granulator transformiert.

Die von beiden Abriebsquellen herrührenden Abriebsmassenströme lagen in der gleichen Größenordnung und zeigten die gleichen Abhängigkeiten, sodass sie zusammengefasst werden konnten.

Das Abriebsverhalten wurde durch ein einfaches Populationsbilanzmodell mit negativem oberflächenproportionalem Wachstum abgebildet.

In den Versuchen in der blasenbildenden Wirbelschicht konnte kein Bruch nachgewiesen werden. Es ist sehr wahrscheinlich, dass auch unter ZWS-Bedingungen im Riser kein nennenswerter Bruch auftritt. In den Zyklonversuchen dagegen war Bruch deutlich erkennbar. Es konnte im Experiment nachgewiesen werden, dass feine Partikel ($< 180\mu\text{m}$) im Gegensatz zu großen Partikeln ($> 255\mu\text{m}$) nicht brechen. Aufgrund der Entwicklung der Partikelgrößenverteilungen kann davon ausgegangen werden, dass ein binäres Bruchmodell das System abbilden kann.

Die im Test gewonnenen Daten wurden zur Anpassung eines entsprechenden Populationsbilanzmodells für binären Bruch verwendet. Hierfür wurde eine Breakage-Selection-Rate-Funktion in Form einer Sprungfunktion eingeführt, bei der die Bruchwahrscheinlichkeit für Partikel $< 100\mu\text{m}$ auf null gesetzt wurde.

6.3 Numerische Simulation / Populationsbilanzen

Ausgewählte Versuche wurden mit dem in Kapitel 4.3 beschriebenen Modell simuliert. Der Agglomerationskernel mit β_0 als variablem Parameter wurde zum Anpassen der Simulation an die entsprechenden Messwerte verwendet. Die Anpassung erfolgte in der Weise, dass der mittlere Durchmesser x_{50} der Massendichteverteilungen nach 6 bzw. 8 Stunden Versuchszeit getroffen wurde. Zum Vergleich wurde ein nur auf Agglomeration / Granulation basierendes Modell verwendet. In diesem Fall wurde der zugehörige Bruchterm (Gl. (4.32) und (4.33)) im Populationsbilanzmodell zu null gesetzt.

Das Modell ohne Bruchterm kann keine kornverkleinernden Mechanismen abbilden. Für Versuche mit abnehmender Korngröße wurde deshalb keine Simulation der Versuche durchgeführt.

Die Werte der angepassten Kernels für das Modell ohne Bruch sowie das Modell mit Bruch sind in den letzten beiden Spalten Tab. 6.10 wiedergegeben.

In Tab. 6.10 sind die Versuchsbedingungen für ausgewählte Versuche im ZWS-Granulator aus Kapitel 6.1 ebenso wiedergegeben, wie die in Kapitel 6.2.4 abgeleiteten Parameter für Abrieb und Bruch für die Populationsbilanzmodellierung.

Tab. 6.10: Simulierte Versuche, Simulationsbedingungen und angepasste Koaleszenzkernel

simulation Nr.	simulated experimental time [h]	nozzle position (always upward) [mm]	v_{gas} [m/s]	initial inventory [kg]	V_{nozzle} [m^3/h]	\dot{m}_{spray} [g/h]	attrition rate fluidized bed [%wt/h]	attrition rate cyclone [%wt/h]	selection rate S_0 [%wt/h]	EKE-Kernel simulation with breakage eq.(4.32)&(4.33) [$\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$]	EKE-Kernel simulation without breakage eq.(4.30) [$\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$]
I	6	500,00	4,06	12,50	3,00	88,00	1,20	1,00	2,9,10-4	2,5E-12	7,0E-13
II	8	500,00	4,06	12,50	1,00	88,00	1,20	1,00	2,9,10-4	1,0E-11	3,0E-12
III	8	500,00	4,06	12,50	2,00	88,00	1,20	1,00	2,9,10-4	5,0E-12	1,1E-12
IV	8	500,00	4,06	12,50	4,00	88,00	1,20	1,00	2,9,10-4	1,4E-12	3,0E-13
V	8	500,00	6,31	12,50	3,00	88,00	1,88	2,20	1,1,10-3	3,5E-11	2,0E-13
VI	8	1500,00	4,06	12,50	3,00	88,00	1,20	1,00	2,9,10-4	8,0E-13	1,0E-13
VII	8	1500,00	4,06	12,50	4,00	88,00	1,20	1,00	2,9,10-4	2,0E-13	-
VIII	8	1500,00	4,06	12,50	2,00	88,00	1,20	1,00	2,9,10-4	1,2E-12	2,1E-13
IX	8	1500,00	6,31	12,50	3,00	88,00	1,88	2,20	1,1,10-3	5,0E-13	-
X	8	1500,00	4,06	12,50	3,00	66,00	1,20	1,00	2,9,10-4	1,0E-13	-
XI	6	1500,00	4,06	12,50	3,00	110,00	1,20	1,00	2,9,10-4	1,7E-12	2,0E-13
XII	6	500,00	4,06	12,50	3,00	100,00	1,20	1,00	2,9,10-4	1,3E-11	4,3E-12
XIII	8	500,00	4,06	12,50	3,00	40,00	1,20	1,00	2,9,10-4	3,0E-13	1,5E-14

6.3.1 Entwicklung der Korngrößenverteilung - Modellgüte

Abb. 6.42 zeigt den Verlauf der simulierten Massendichteverteilungen q_3 für Versuch I im ZWS-Granulator (entsprechend der Nummerierung aus Tab. 6.10) ohne Berücksichtigung von Bruch. Die Riser-Gasgeschwindigkeit beträgt 4,2 m/s, die Gaseintrittstemperatur 85 °C und das Saccharose-Inventar 12,5 kg. Die Einsprührate beträgt 88 g/min mit 60 Gew.-% Saccharoselösung auf der Sprühposition 500 mm über dem Gasverteiler Boden zentrisch aufwärts.

Die farbigen Kurvenverläufe repräsentieren die simulierten Daten an ausgewählten Zeitpunkten (60, 120, 240, 360 min), die entsprechenden farbigen Punkte zeigen die experimentellen Daten zum jeweils gleichen Zeitpunkt im Experiment. Die Anpassung der Simulation erfolgt durch Variation des Parameters β_0 im Agglomerationskernel an den mittleren Partikeldurchmesser x_{50} der Partikelmassenverteilung, die sich am Versuchsende, hier 360 min nach dem Start der Eindüsung, einstellte. Eine weitergehende Anpassung, etwa an die Form der Massenverteilung am Versuchsende, fand nicht statt.

Zusätzlich ist die Entwicklung des mittleren Durchmessers x_{50} über der Zeit in Abb. 6.41 dargestellt. Auch hier repräsentiert die Linie die Simulation und die Punkte die gemessenen Daten des entsprechenden Experiments.

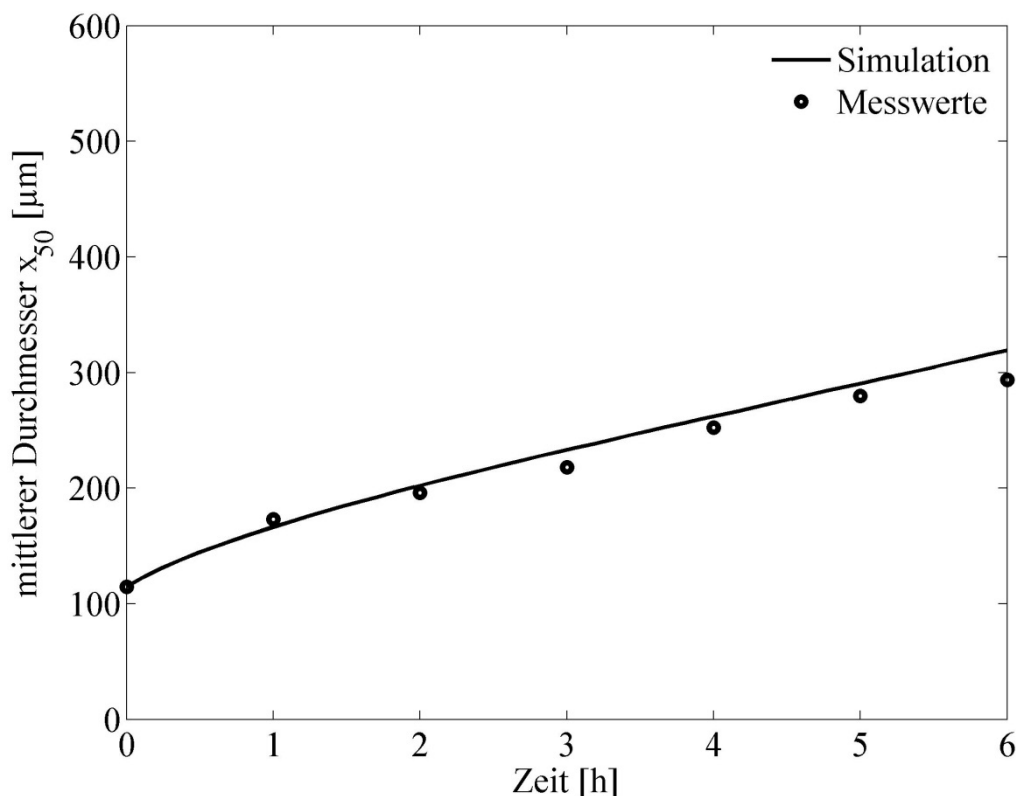


Abb. 6.41: Simulation ohne Berücksichtigung von Bruch, Partikelgrößenentwicklung der Granulate, x_{50} : Gasgeschw.: 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C, Saccharoseinventar (Start): 12,5 kg, Sprührate: 88 g/min 60 Gew.-%, Sprühposition 500 mm zentral aufwärts, Versuch I

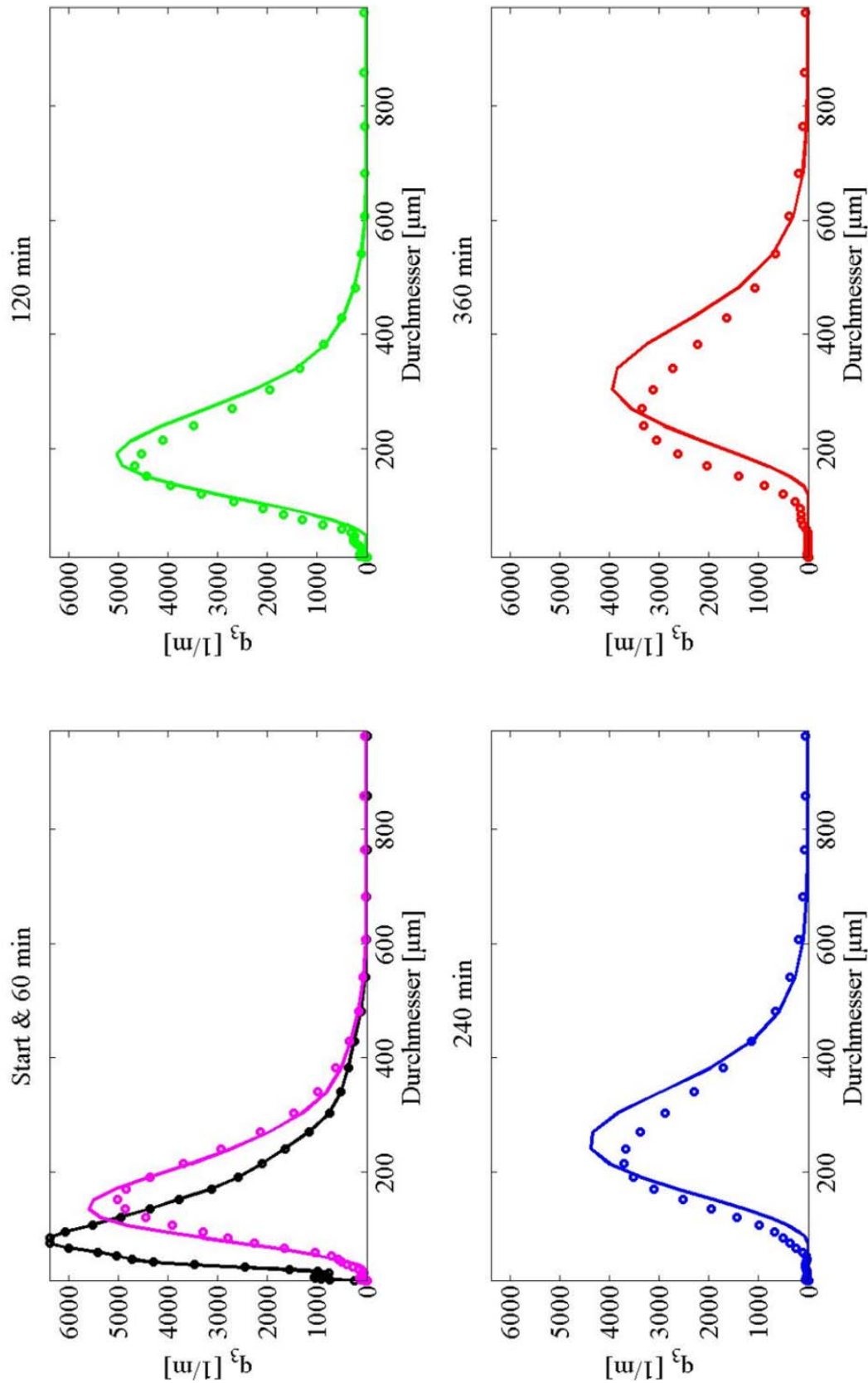


Abb. 6.42: Simulation ohne Berücksichtigung von Bruch, Partikelgrößenentwicklung der Granulate, Massendichteverteilung $q_3(x_i)$: Gasgeschw.: 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C, Saccharoseinventar (Start): 12,5 kg, Sprühdichte: 88 g/min 60 Gew.-%, Sprühposition 500 mm zentral aufwärts, Versuch I

Aus dem Vergleich der Entwicklung der Simulation des mittleren Durchmessers x_{50} mit den Messwerten kann eine sehr gute Übereinstimmung festgestellt werden. Im Gegensatz hierzu zeigt die Entwicklung der simulierten Massendichteverteilungen deutliche Abweichungen von den Messungen. Insbesondere werden mit Voranschreiten der Simulation die kleinen Partikelklassen unterschätzt und die großen Partikelklassen überschätzt. Diese Effekte lassen sich mit den getroffenen Modellannahme erklären: Während der Simulation werden keine neuen kleinen Partikel durch Bruch generiert, und insbesondere große Partikel mit einer in der Realität hohen Bruchwahrscheinlichkeit brechen nicht. Der angepasste EKE-Kernel ergibt sich zu $\beta_0 = 7 \cdot 10^{-13} \text{m}^3 \text{s}^{-1}$.

Derselbe Versuch wurde mit dem um den Partikelbruch erweiterten Modell entsprechen Kapitel 4.3 simuliert. Entsprechend den Betriebsbedingungen im ZWS-Granulators wird die Selection Rate S_0 mit $2,9 \cdot 10^{-4} \text{ 1/s}$ abgeschätzt. Die Ergebnisse der Simulation sind in Abb. 6.43 und Abb. 6.44 wiedergegeben.

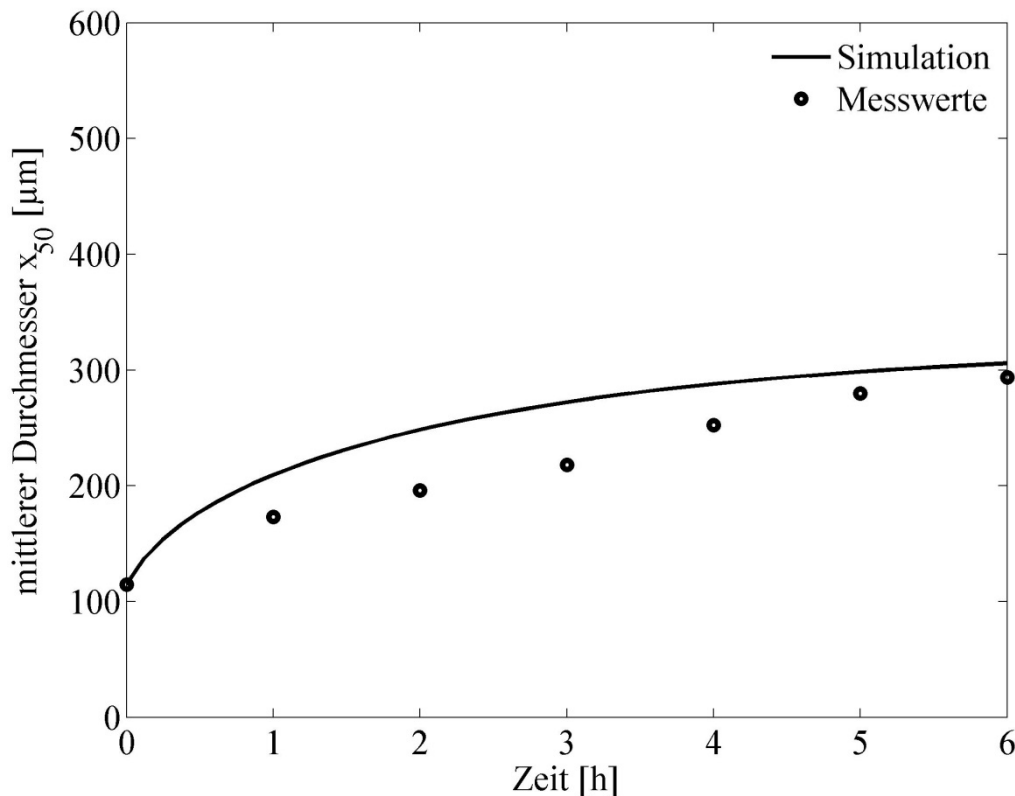


Abb. 6.43: Simulation mit Berücksichtigung von Bruch, Partikelgrößenentwicklung der Granulate, x_{50} : Gasgeschw.: 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C, Saccharoseinventar (Start): 12,5 kg, Sprühdichte: 88 g/min 60 Gew.-%, Sprühposition 500 mm zentral aufwärts, Versuch I

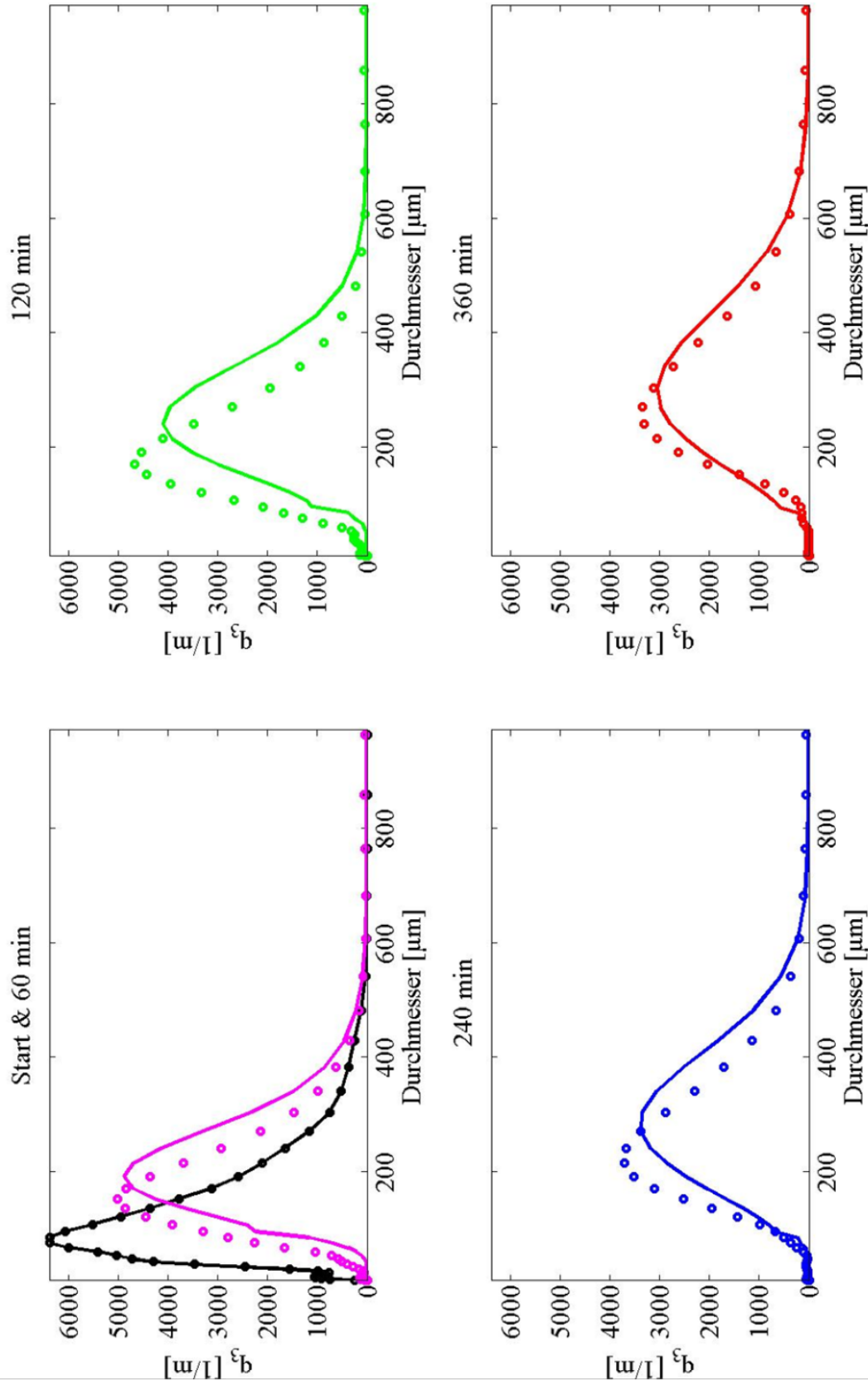


Abb. 6.44: Simulation mit Berücksichtigung von Bruch, Partikelgrößenentwicklung der Granulate, Massendichteverteilung $q_3(x_i)$: Gasgeschw.: 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C, Saccharoseinventar (Start): 12,5 kg, Sprühdichte: 88 g/min 60 Gew.-%, Sprühposition 500 mm zentral aufwärts, Versuch I

Aus der Entwicklung der Form der Massendichteverteilungen kann abgeleitet werden, dass das Modell mit Bruch die realen Effekte deutlich besser abbildet. Der EKE-Kernel ergibt sich zu $\beta_0 = 2,5 \cdot 10^{-12} \text{m}^3 \text{s}^{-1}$. Durch die sehr grobe Beschreibung der Brucheffekte durch die Sprungfunktion bei $100 \mu\text{m}$ lässt sich in der Entwicklung der simulierten Verteilungen das Entstehen eines zweiten Modalwerts bei eben dieser Größe beobachten. Wie schon in der Entwicklung des Modells andiskutiert, ließe sich dieser Effekt durch einen gleitenden Übergang zwischen Nicht-Bruch und Bruch (siehe Kapitel 6.2.4.2) minimieren.

Im Vergleich zur Simulation ohne Bruch lässt sich eine stärkere Abweichung des mittleren Durchmessers x_{50} zu Beginn der Simulation feststellen. Hierbei ist festzuhalten, dass der Versuch I ein Beispiel für eine Batch-Granulation des ZWS-Granulators ist und keinen stationären Betriebszustand erreicht.

Ein Vergleich der Agglomerationskernel von $\beta_0 = 7 \cdot 10^{-13} \text{m}^3 \text{s}^{-1}$ für das Modell ohne Bruch und $\beta_0 = 2,5 \cdot 10^{-12} \text{m}^3 \text{s}^{-1}$ für das Modell mit Bruch zeigt dass die lokal in der Granulationszone auftretenden Agglomerationseffekte um eine Größenordnung größer sind als die global im Versuch beobachteten Effekte (abgebildet durch das Modell ohne Brucheffekte). Dies ist auch für alle folgenden Simulationen charakteristisch.

Als zweites Beispiel wird Versuch VI gewählt. Er ist repräsentativ für alle Versuche, die in einen stationären Endzustand übergehen.

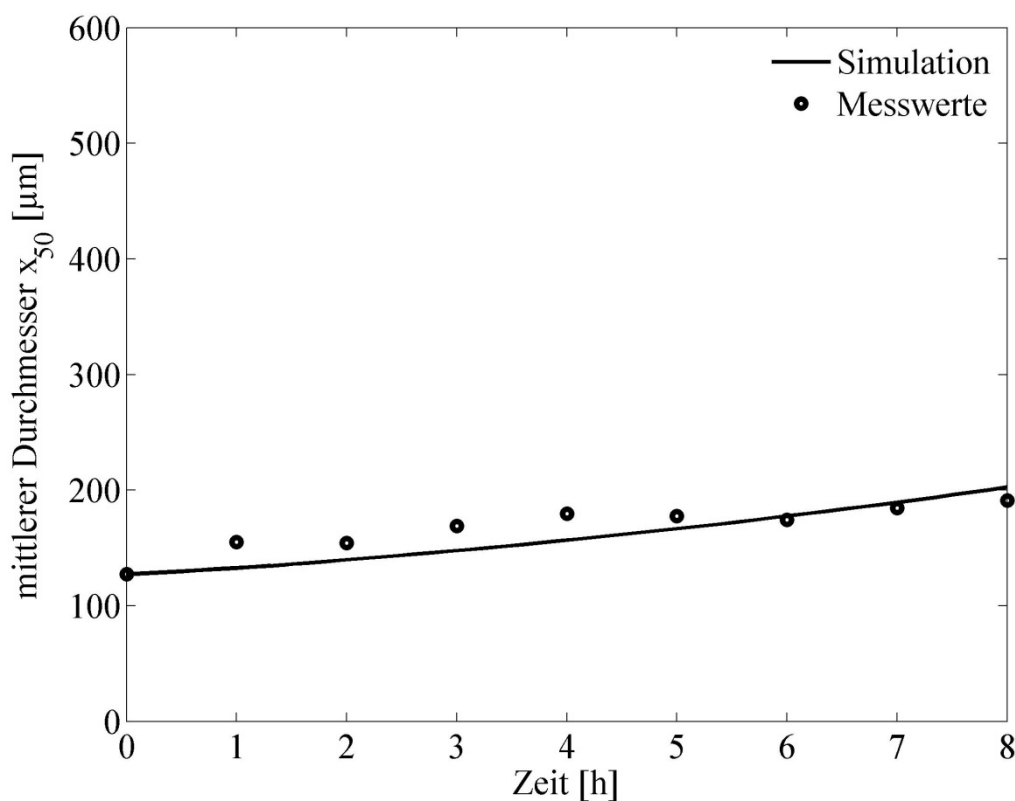


Abb. 6.45: Simulation ohne Berücksichtigung von Bruch, Partikelgrößenentwicklung der Granulate, x_{50} : Gasgeschw.: 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C, Saccharoseinventar (Start): 12,5 kg, Sprühdrate: 88 g/min 60 Gew.-%, Sprühposition 1500 mm zentral aufwärts, Versuch VI

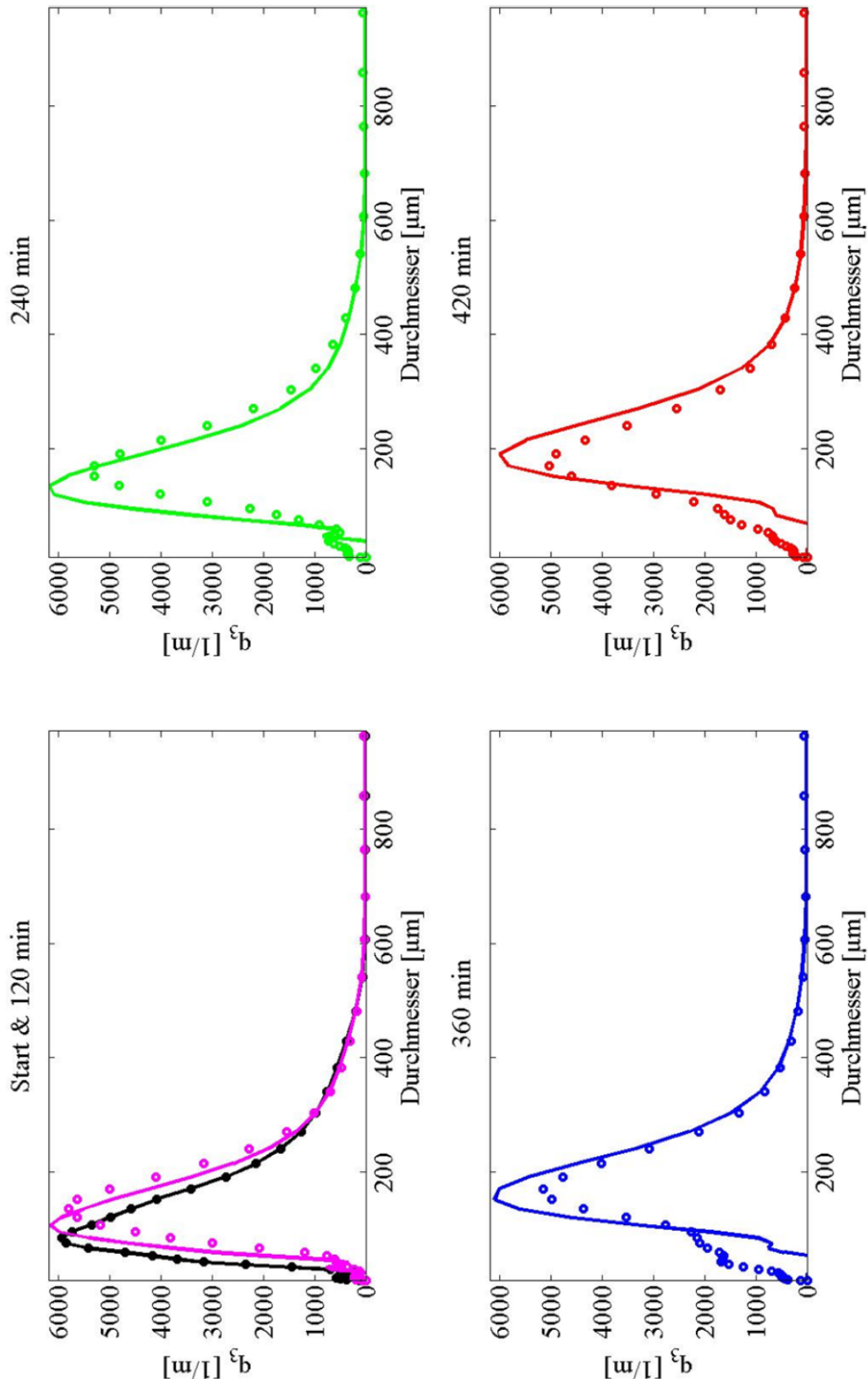


Abb. 6.46: Simulation ohne Berücksichtigung von Bruch, Partikelgrößenentwicklung der Granulate, Massendichteverteilung $q_3(x_i)$: Gasgeschw.: 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C, Saccharoseinventar (Start): 12,5 kg, Sprühdichte: 88 g/min 60 Gew.-%, Sprühposition 1500 mm zentral aufwärts, Versuch VI

Die Betriebsbedingungen sind bis auf die Position der Düse bei 1500mm über dem Verteilerboden zentrisch aufwärts mit denen aus Versuch I identisch. Die simulierte Zeit beträgt 8 Stunden. Abb. 6.46 zeigt die Entwicklung der Massendichteverteilung q_3 über der Zeit für das Modell ohne Bruch. Abb. 6.48 zeigt die Entwicklung der Massendichteverteilung q_3 über der Zeit für das Modell mit Bruch. Ein stationärer Zustand des gemessenen mittleren Partikeldurchmessers x_{50} wird nach ungefähr 4 Stunden erreicht (vgl. Abb. 6.45 bzw. Abb. 6.47).

Dieser Effekt kann nur mit dem Agglomerationsmodell inklusive Bruch beschrieben werden. Der entsprechende Verlauf ist in Abb. 6.47 dargestellt. Im Fall des Modells ohne Bruch wird ein stationärer Zustand des mittleren Durchmessers x_{50} nicht erreicht wie in Abb. 6.45 ersichtlich ist. In der Simulation ohne Bruch sind die kleinen Partikelgrößen wie auch in der Simulation des Versuches I unterrepräsentiert und die großen Partikelgrößen überrepräsentiert, da keine kleinen Partikel generiert und große Partikel nicht zerstört werden.

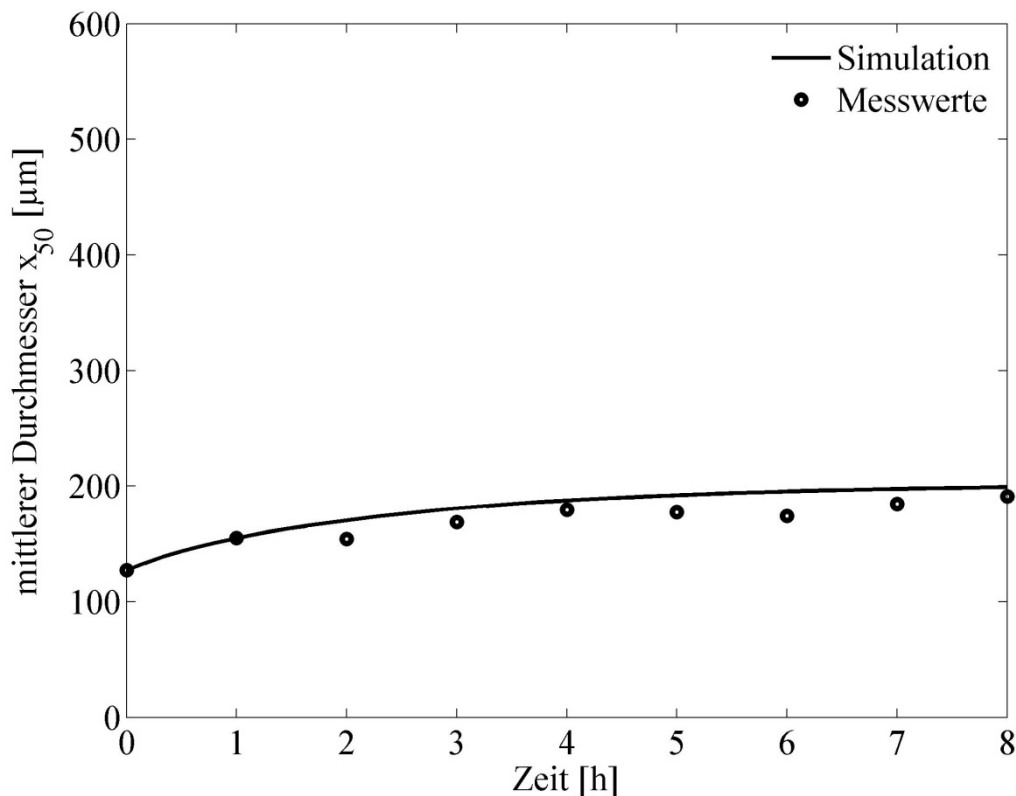


Abb. 6.47: Simulation mit Berücksichtigung von Bruch, Partikelgrößenentwicklung der Granulate, x_{50} : Gasgeschw.: 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C, Saccharoseinventar (Start): 12,5 kg, Sprühdichte: 88 g/min 60 Gew.-%, Sprühposition 1500 mm zentral aufwärts, Versuch VI

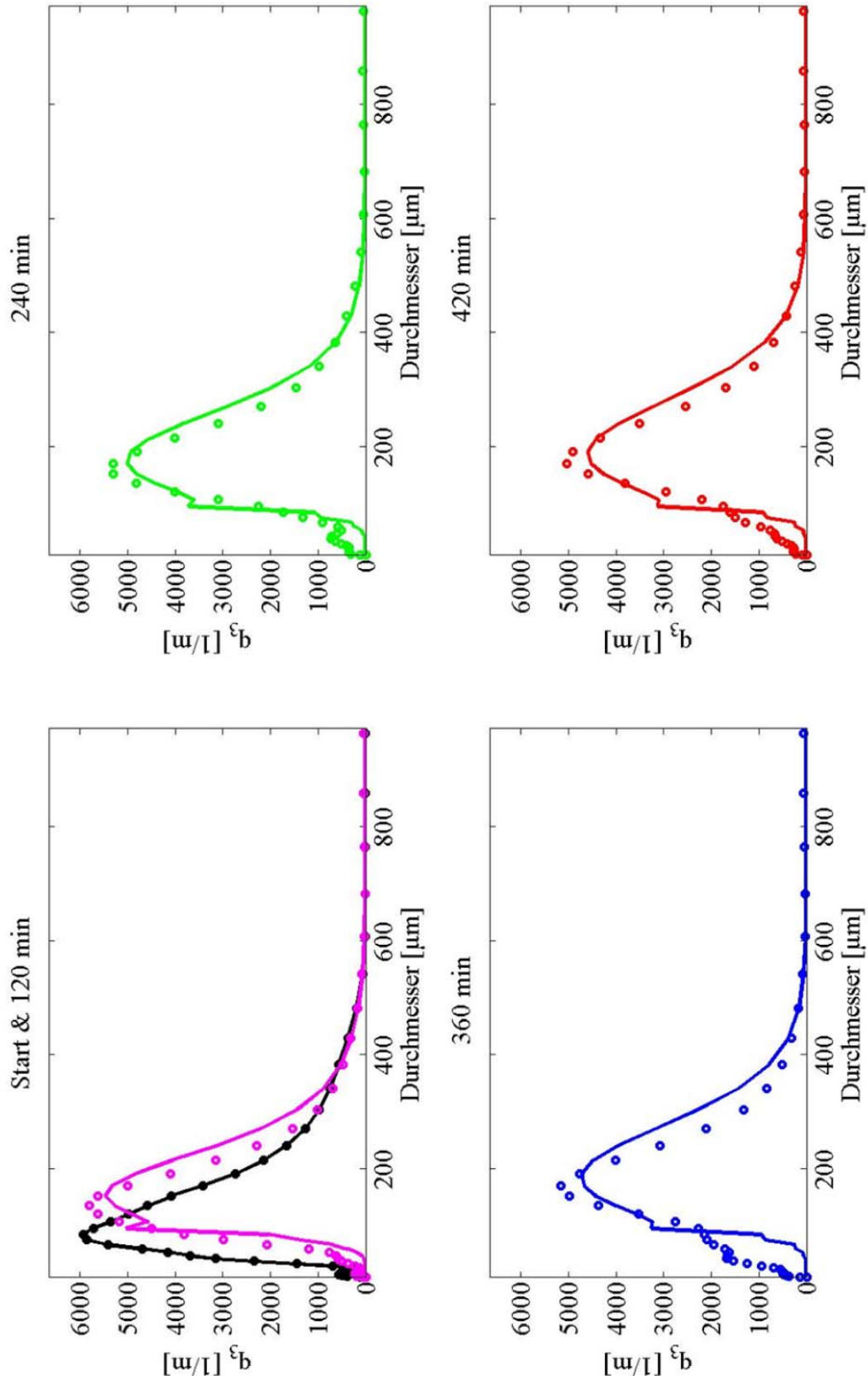


Abb. 6.48: Simulation mit Berücksichtigung von Bruch, Partikelgrößenentwicklung der Granulate, Massendichteverteilung $q_3(x_j)$: Gasgeschw.: 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C, Saccharoseinventar (Start): 12,5 kg, Sprührate: 88 g/min 60 Gew.-%, Sprühposition 1500 mm zentral aufwärts, Versuch VI

Im Fall des Modells mit Bruch deckt sich die Entwicklung des mittleren Durchmessers x_{50} sehr gut mit den Messwerten. Auch die Massendichteverteilung q_3 nach sechs bzw. 8 Stunden simulierter Zeit haben weitestgehend die gleiche Form wie die entsprechenden Messwerte. Auch in dieser Simulation wird aufgrund der Rechnung mit einer Selection Rate in Form einer Sprungfunktion ein schwach ausgeprägter sekundärer Modalwert bei $100 \mu\text{m}$ generiert, der in dieser Form nicht der Realität entspricht. Die Selection Rate ist auch in dieser Simulation $2,9 \cdot 10^{-4} \text{ 1/s}$ für alle Partikel größer $100 \mu\text{m}$. Im Falle von Versuch VI bildet das Modell mit Bruch sowohl den Verlauf des mittleren Durchmessers x_{50} als auch die Entwicklung der Massendichteverteilung q_3 deutlich besser als das Modell ohne Bruch ab.

Der angepasste EKE-Kernel hat einen Wert von $1 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ im Fall des Modells ohne Bruch sowie einen Wert von $8 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ im Fall des Modells mit Bruch.

Als drittes Beispiel für einen charakteristischen Simulationsverlauf wird Versuch IX ausgewählt. Dieser Versuch hat die fast gleichen Betriebsbedingungen wie Versuch VI, er unterscheidet sich lediglich in einer höheren Gasgeschwindigkeit, die wiederum im Modell mit einer höheren Breakage Selection Rate von $1,1 \cdot 10^{-3} \text{ 1/s}$ für alle Partikel größer $100 \mu\text{m}$ abgebildet wird.

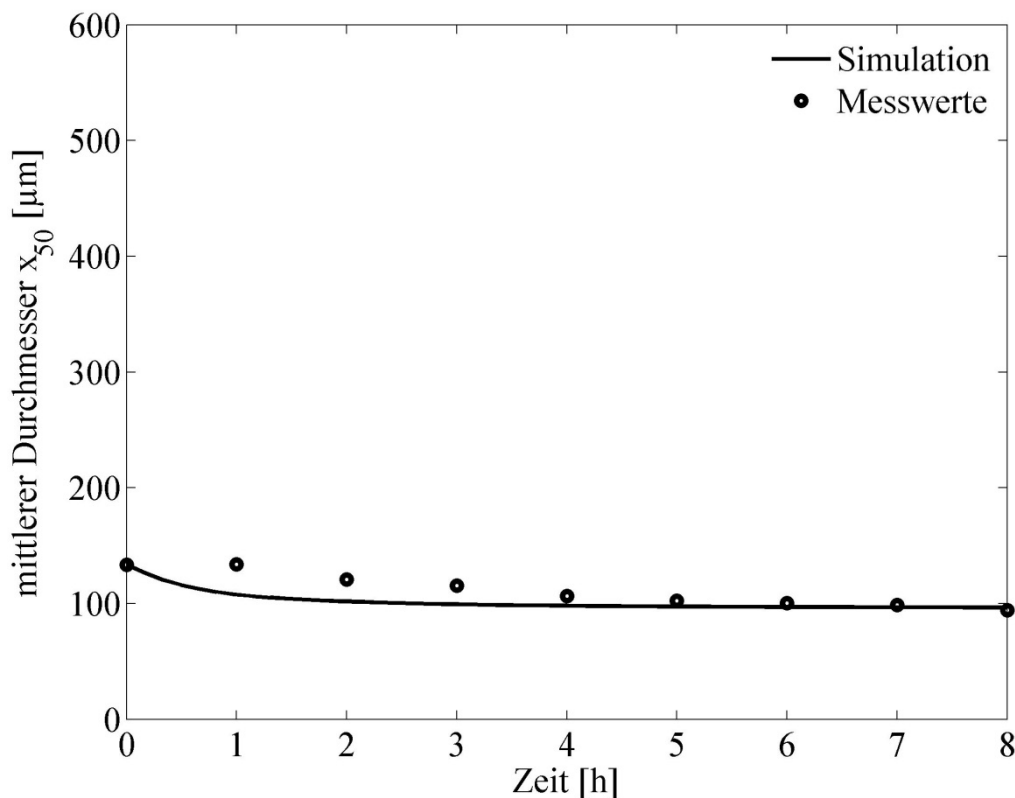


Abb. 6.49: Simulation mit Berücksichtigung von Bruch, Partikelgrößenentwicklung der Granulate, x_{50} : Gasgeschw.: $6,3 \text{ m/s}$, Gastemp.: $85 \text{ }^\circ\text{C}$; Saccharoseinventar (Start): $12,5 \text{ kg}$; Sprühdichte: 88 g/min 60 Gew.-% ; Sprühposition 1500 mm zentral, Versuch IX

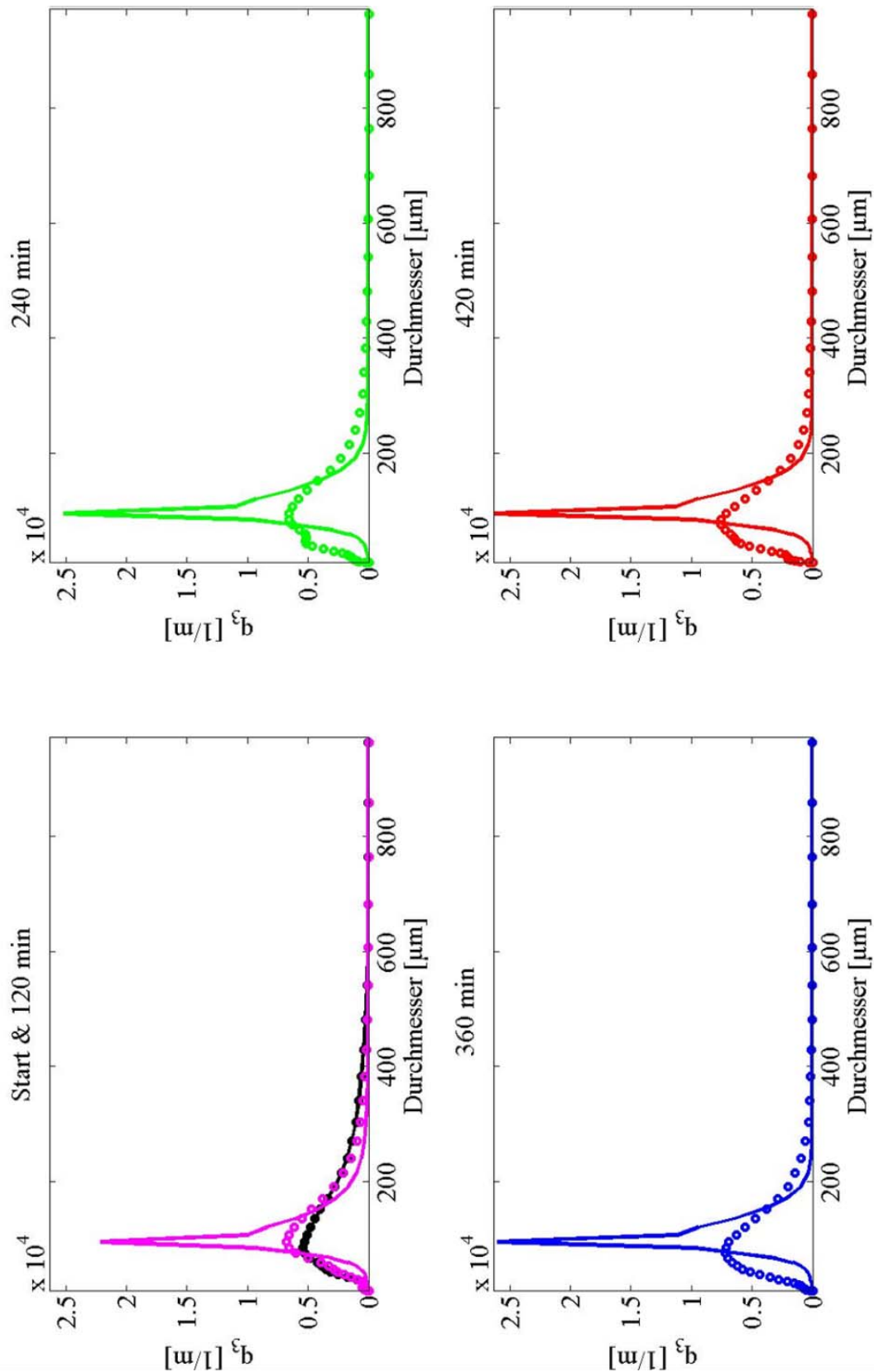


Abb. 6.50: Simulation mit Berücksichtigung von Bruch, Partikelgrößenentwicklung der Granulate, Massendichteverteilung $q_3(x_j)$: Gasgeschw.: 6,3 m/s, Gastemp.: 85 °C; Saccharoseinventar (Start): 12,5 kg; Sprühdrate: 88 g/min 60 Gew.-%; Sprühposition 1500 mm zentral, Versuch IX

Die höhere mechanische Belastung während des Versuchs führt zu einer leichten Abnahme des mittleren Durchmessers x_{50} innerhalb der ersten 4 Stunden. Hiernach wird ein stationärer Zustand erreicht. Die Simulationsergebnisse für den Fall mit Bruch sind in Abb. 6.49 und Abb. 6.50 wiedergegeben. Dieses Verhalten kann mit dem Modell ohne Bruch nicht wiedergegeben werden, da hier keine kornverkleinernden Mechanismen berücksichtigt werden.

Die Form der Massendichteverteilung q_3 zeigt eine gewisse Unterrepräsentation von kleinen Partikeln. Als Mechanismen, die eine Partikelentstehung im Bereich kleiner Partikelgrößen ermöglichen, wären die Erzeugung von Overspray - Tröpfchen trocken vor dem Kontakt mit Bettpartikeln - oder Bruchvorgänge, die nicht zu zwei Bruchstücken führen - wie hier im Modell angenommen - sondern eine Größenverteilung von Bruchstücken liefern, zu nennen.

Mit den aufgeführten drei Beispielen sind die in den Versuchen beobachteten drei möglichen Entwicklungen der Partikelgrößenverteilungen, „unbeschränktes Wachstum“, „Wachstum bis zum Erreichen eines stationären Zustandes“ und Partikelgrößenabnahme bis zum Erreichen eines stationären Zustandes“ abgebildet. Das hierdurch beschriebene Verhalten der Partikelgrößenentwicklung ist repräsentativ für alle durchgeführten Versuche. Nur das Populationsbilanzmodell mit Berücksichtigung von Partikelbruch ist in der Lage, alle 3 Fälle abzubilden.

6.3.2 Einfluss von Prozessparametern auf den Agglomerationskernel

Im Folgenden wird nur noch die Entwicklung des mittleren Partikeldurchmessers x_{50} über der Zeit sowie der entsprechende EKE-Kernel jeweils für das Modell mit Bruch und das Modell ohne Bruch in Abhängigkeit verschiedener Betriebsparameter des ZWS-Granulators betrachtet.

Abb. 6.51 zeigt die Entwicklung des mittleren Durchmessers x_{50} ohne Berücksichtigung von Bruch über der Zeit für Experimente mit verschiedenen Gasgeschwindigkeiten von 4,2 m/s (225 Nm³/h) und 6,3 m/s (325 Nm³/h) und verschiedenen Sprühpositionen von 500 mm (untere) und 1500 mm (obere) über dem Gasverteilerboden. Die Entwicklung des mittleren Durchmessers mit der Zeit weicht in allen Fällen außer der Simulation mit 225 Nm³/h untere Sprühposition signifikant von den Messwerten ab.

Insbesondere ist das Modell ist nicht in der Lage, den Fall 325 Nm³/h, obere Sprühposition mit einem mit der Zeit abnehmenden mittleren Durchmesser abzubilden. Dies geht nicht ohne Berücksichtigung eines kornverkleinernden Mechanismus.

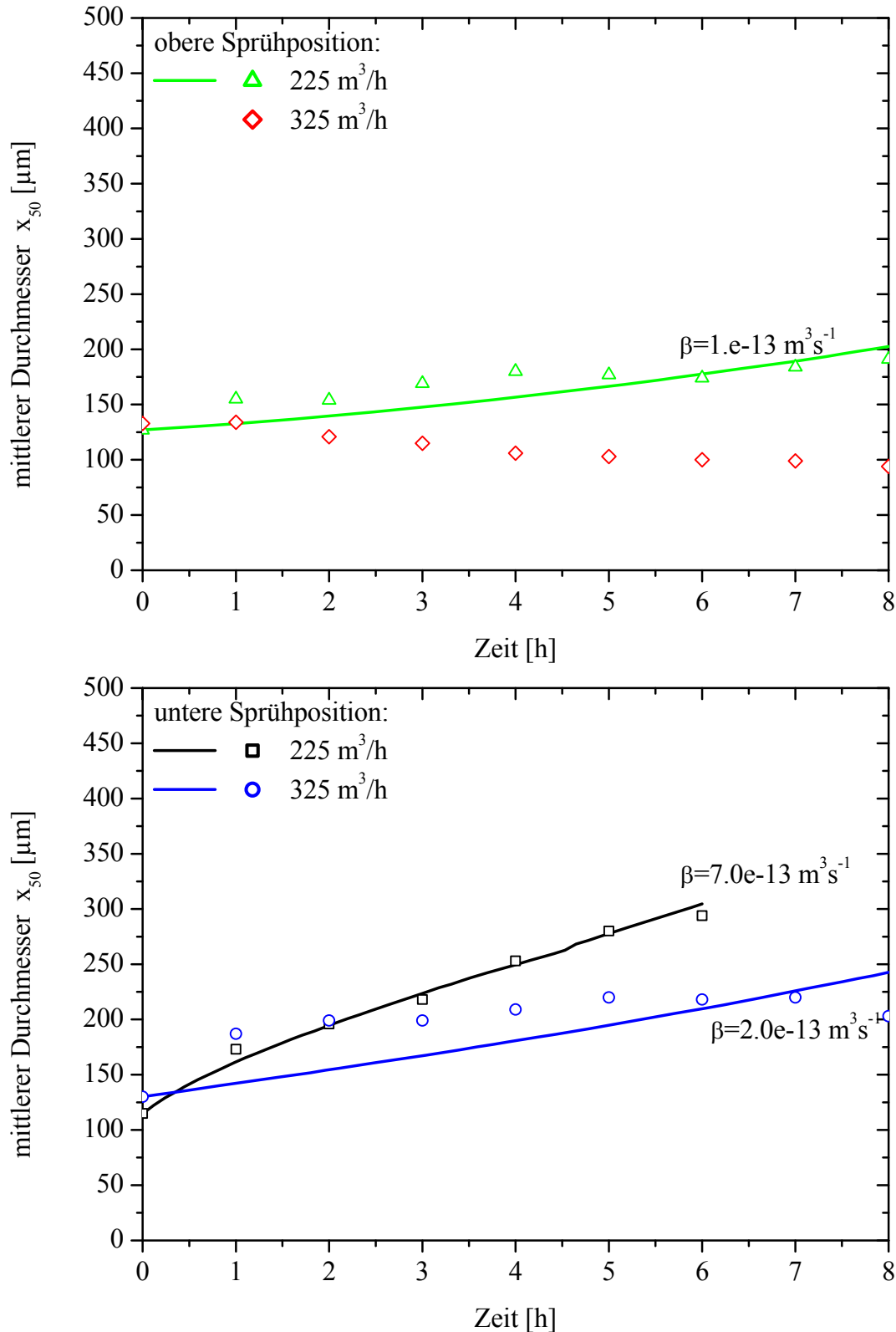


Abb. 6.51: Simulation ohne Berücksichtigung von Bruch, Partikelgrößenentwicklung der Granulate mit der Zeit, Variation der Gasgeschwindigkeit und der Sprühposition: Gastemp.: 85 °C, Saccharoseinventar (Start): 12,5 kg, Sprühdrate: 88 g/min 60 Gew.-%, Sprühpositionen 500 mm und 1500 mm zentral aufwärts, Dispergiertgasstrom 3 Nm³/h

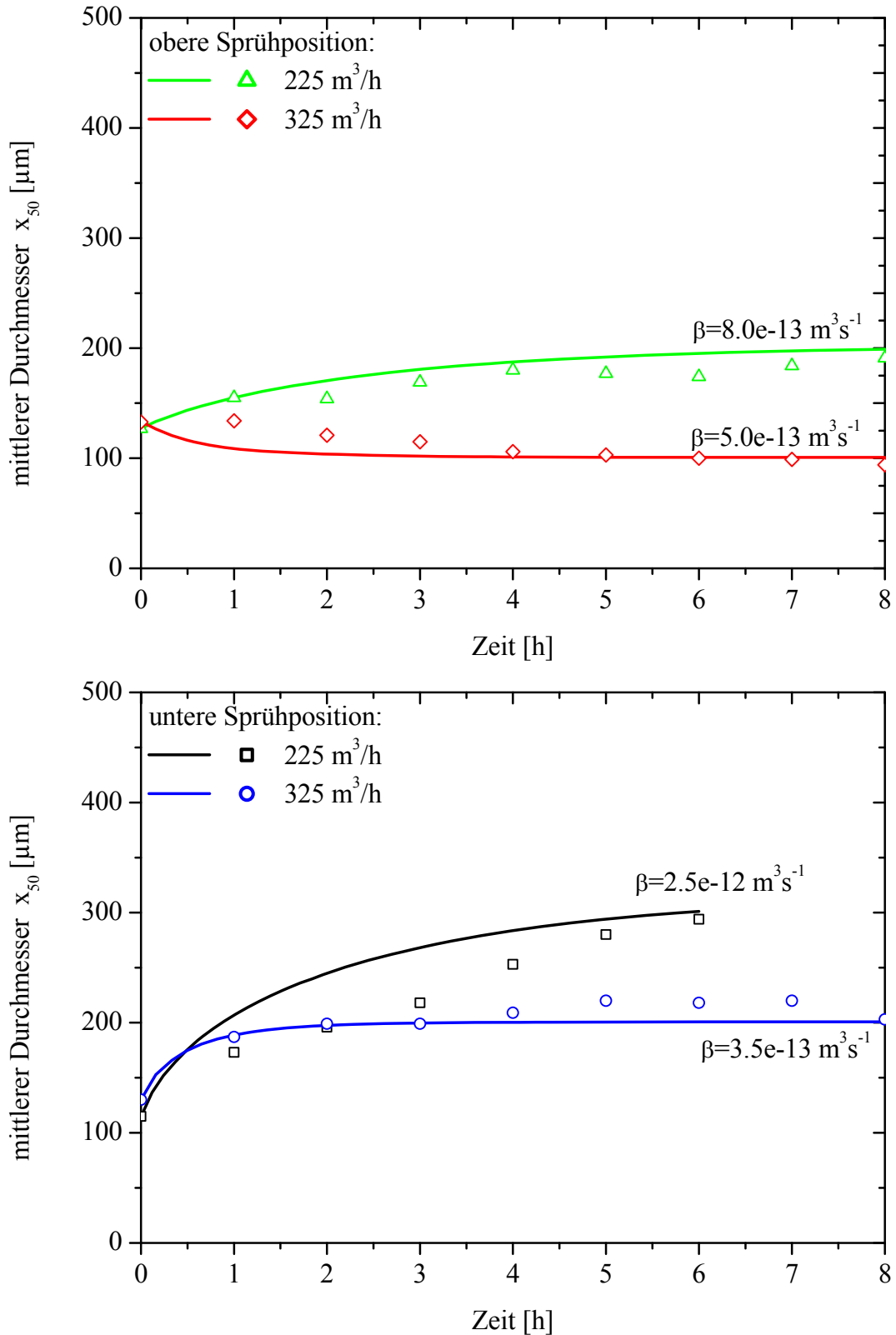


Abb. 6.52: Simulation mit Berücksichtigung von Bruch, Partikelgrößenentwicklung der Granulate mit der Zeit, Variation der Gasgeschwindigkeit und Sprühposition: Gastemp.: 85 °C, Saccharoseinventar (Start): 12,5 kg, Sprühdrate: 88 g/min 60 Gew.-%, Sprühpositionen 500 mm und 1500 mm zentral aufwärts, Dispergiertgasstrom 3 Nm³/h

Wird das Modell mit Berücksichtigung von Bruchvorgängen und einer Breakage Selection Rate von $2,9 \cdot 10^{-4}$ 1/s für den Fall mit niedriger Gasgeschwindigkeiten und von $1,1 \cdot 10^{-3}$ 1/s für den Fall hoher Gasgeschwindigkeiten in Form einer Sprungfunktion mit keinem Bruch für Partikel $< 100 \mu\text{m}$ angewendet, so ergeben sich für die gleichen simulierten Versuche die in Abb. 6.52 dargestellten Ergebnisse. Die Übereinstimmung der Entwicklung des mittleren Durchmessers x_{50} über der Zeit ist deutlich besser als im Fall des Modells ohne Bruch. Ausnahme ist hier die Simulation für $225 \text{ m}^3/\text{h}$ ($4,2 \text{ m/s}$), untere Sprühposition.

Die Simulation mit einer Gasgeschwindigkeit von $6,3 \text{ m/s}$ in der oberen Sprühposition mit einer Feststoffvolumenkonzentration von $0,024$ resultiert in einem Agglomerations-Kernel von $5 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$. Mit der niedrigeren Gasgeschwindigkeit von $4,2 \text{ m/s}$ und einer Feststoffvolumenkonzentration in der oberen Zone von $0,017$ ergibt sich der Agglomerations-Kernel zu $8 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$. Für die untere Sprühposition bei einer Gasgeschwindigkeit von $6,3 \text{ m/s}$ ergibt sich der Agglomerations-Kernel zu $3,5 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ bei einer Feststoffvolumenkonzentration von $0,08$. Ein Absenken der Gasgeschwindigkeit auf $4,2 \text{ m/s}$ führt zu einer Feststoffvolumenkonzentration von $0,12$ und einem Agglomerations-Kernel von $2,5 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$.

Aus den Simulationsergebnissen ist ersichtlich, dass der Agglomerations-Kernel abhängig von der Feststoffvolumenkonzentration in der Sprühzone ist. In Abb. 6.53 sind die in der Simulation erhaltenen Zahlenwerte des EKE-Kernels in Abhängigkeit von der Feststoffvolumenkonzentration in der Sprühzone aufgetragen.

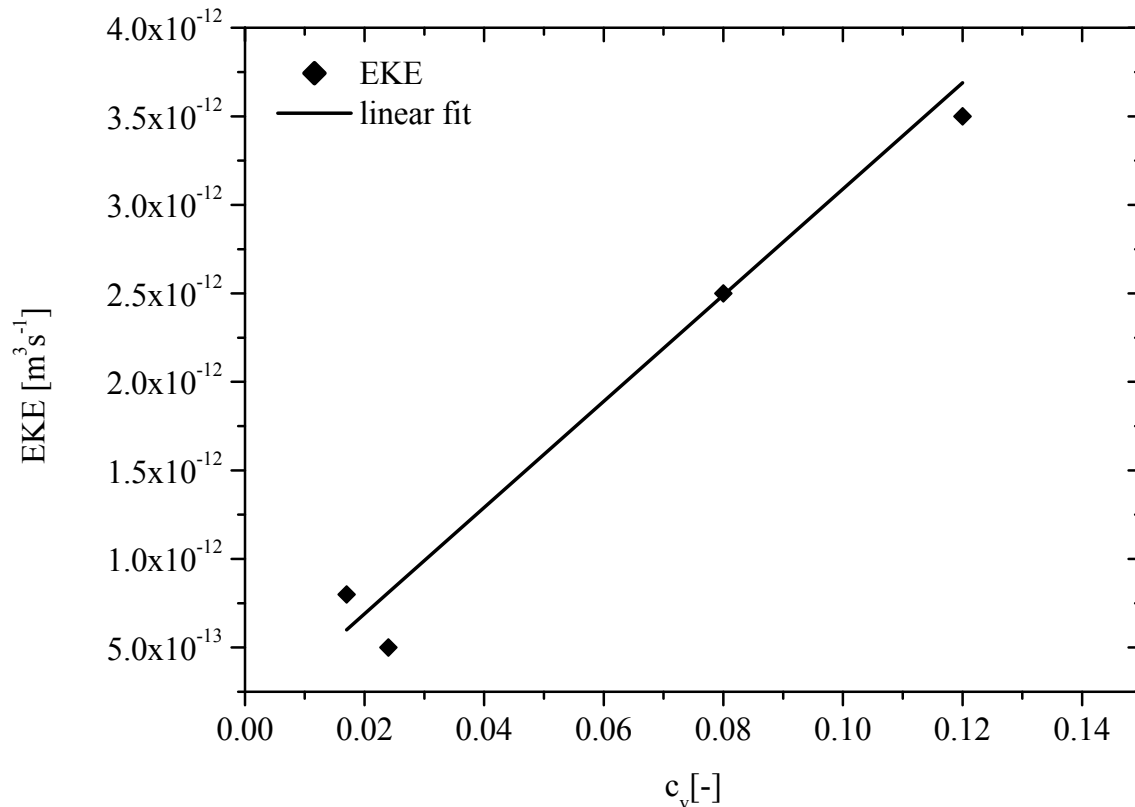


Abb. 6.53: Zahlenwerte des EKE-Kernels in Abhängigkeit der Feststoffvolumenkonzentration in der Sprühzone, Modell mit Berücksichtigung von Bruch

Die wenigen Messpunkte sind mit einer linearen Korrelation beschreibbar:

$$EKE \left[\text{m}^3 \text{s}^{-1} \right] = 3 \cdot 10^{-11} \cdot c_v + 9 \cdot 10^{-14} \quad \text{mit } c_v \text{ in } [-] \quad (6.20)$$

Abb. 6.54 zeigt die Entwicklung des mittleren Durchmessers x_{50} über der Zeit für Versuche, und Simulation mit unterschiedlichen Sprühdichten. Das verwendete Modell ist das Modell ohne Berücksichtigung von Bruch. Die durchgezogenen Linien repräsentieren die Simulationsergebnisse.

Wie in den vorangegangenen diskutierten Versuchsverläufen hat das Modell Probleme, Versuche die in einen stationären Zustand münden, abzubilden. Dies wird besonders am Beispiel der Eindüsung mit 110 g/min in die obere dünne Zone deutlich. Andererseits bietet das Modell offenbar Vorteile bei der Beschreibung von Versuchen, die keinen stationären Zustand erreichen. Dies ist beispielsweise bei dem Versuch mit einer Eindüsung von 100 g/min in die untere dichte Zone der Fall. In der Simulation ergibt sich der Agglomerationskernel im ersten Fall zu $2,5 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3 \text{s}^{-1}$ und im zweiten Fall zu $4,3 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3 \text{s}^{-1}$. Das Modell kann die Korngrößenabnahme im Falle der Eindüsung mit 66 g/min in die obere dünne Zone nicht abbilden.

Werden die gleichen Versuche unter Berücksichtigung von Bruchvorgängen simuliert, ergeben sich die Verläufe der mittleren Durchmesser in Abb. 6.55. In diesem Fall zeigt die Mehrzahl der Simulationen eine bessere Übereinstimmung mit den Versuchen. Schlechtere Übereinstimmung mit der Messung ergeben sich bei der Eindüsung in die untere dichte Zone (insbesondere bei den Versuchen mit 88 g/min und 100 g/min, die nicht in einen stationären Zustand enden.) Für die Versuche in der oberen dünne Zone steigt der Agglomerations-Kernel von $1 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3 \text{s}^{-1}$ im Falle der Eindüsung mit 66 g/min über $8 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3 \text{s}^{-1}$ bei 88 g/min bis zu $1,7 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3 \text{s}^{-1}$ für eine Eindüsung von 110 g/min. Die simulierten Korngrößenverläufe zeigen eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten, sowohl für die Abnahme der Korngröße im Falle einer Eindüsung von 66 g/min sowie für die moderate Zunahme der Korngröße in Falle der Eindüsung von 110 g/min.

Bei der Eindüsung in die untere dichte Zone ergibt sich nur für den Fall der Eindüsung von 44 g/min mit einem Kernel von $1,5 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3 \text{s}^{-1}$ eine gute Übereinstimmung den Messdaten. Bei größeren Eindüsungsraten von 88 g/min und 100 g/min mit Kernen von $2,5 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3 \text{s}^{-1}$ bzw. $1,3 \cdot 10^{-11} \text{ m}^3 \text{s}^{-1}$ ergeben sich in der Anfangsphase größere Abweichungen. Beide Versuche sind dadurch charakterisiert, dass sie tendenziell keinen stationären Betriebszustand erreichen.

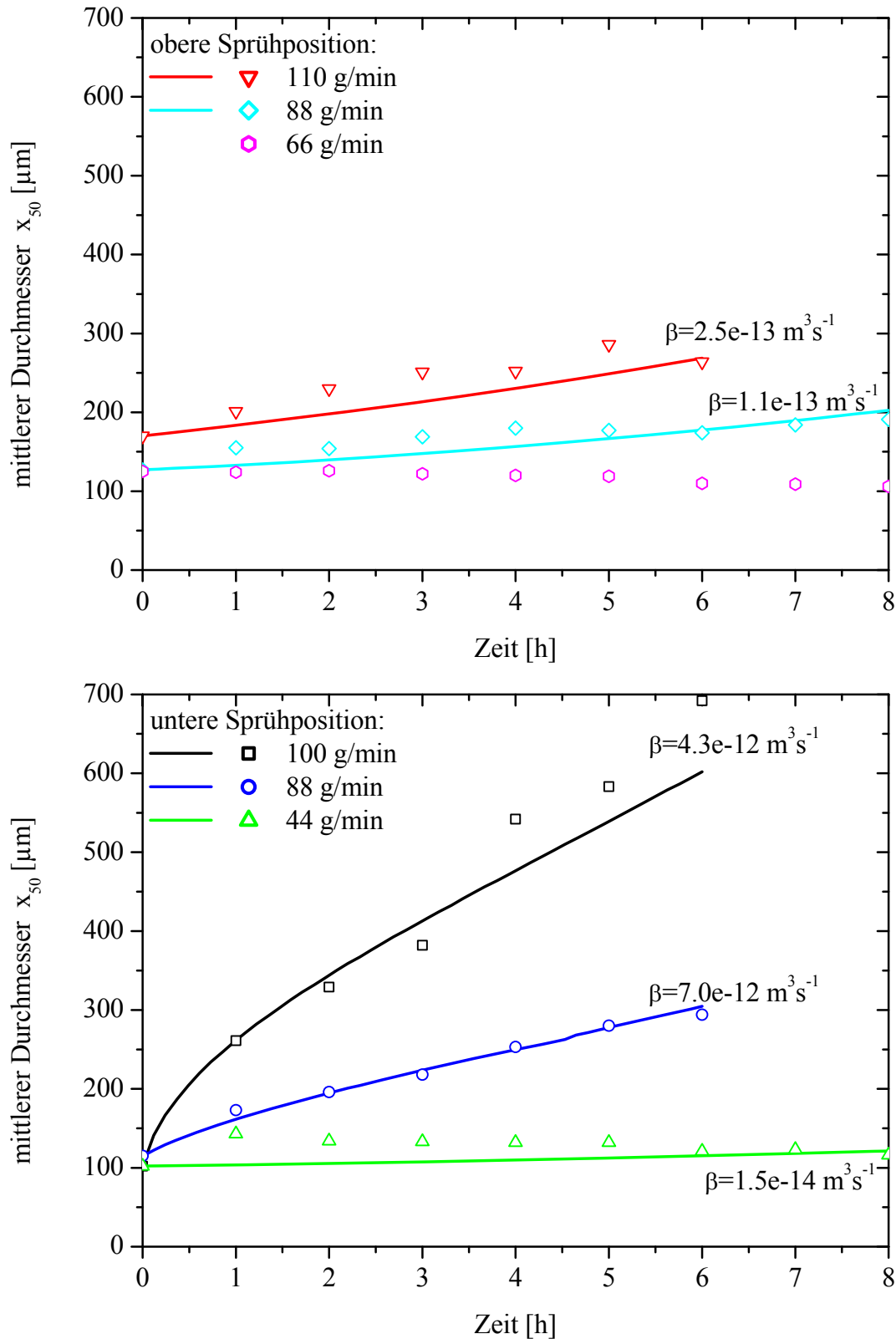


Abb. 6.54: Simulation ohne Berücksichtigung von Bruch, Partikelgrößenentwicklung der Granulate mit der Zeit, Variation der Sprühdose und Sprühposition: Gasgeschw. 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C, Saccharoseinventar (Start): 12,5 kg, Sprühdose: 88 g/min 60 Gew.-%, Sprühpositionen 500 mm und 1500 mm zentral aufwärts, Dispergiertgasstrom 3 Nm³/h

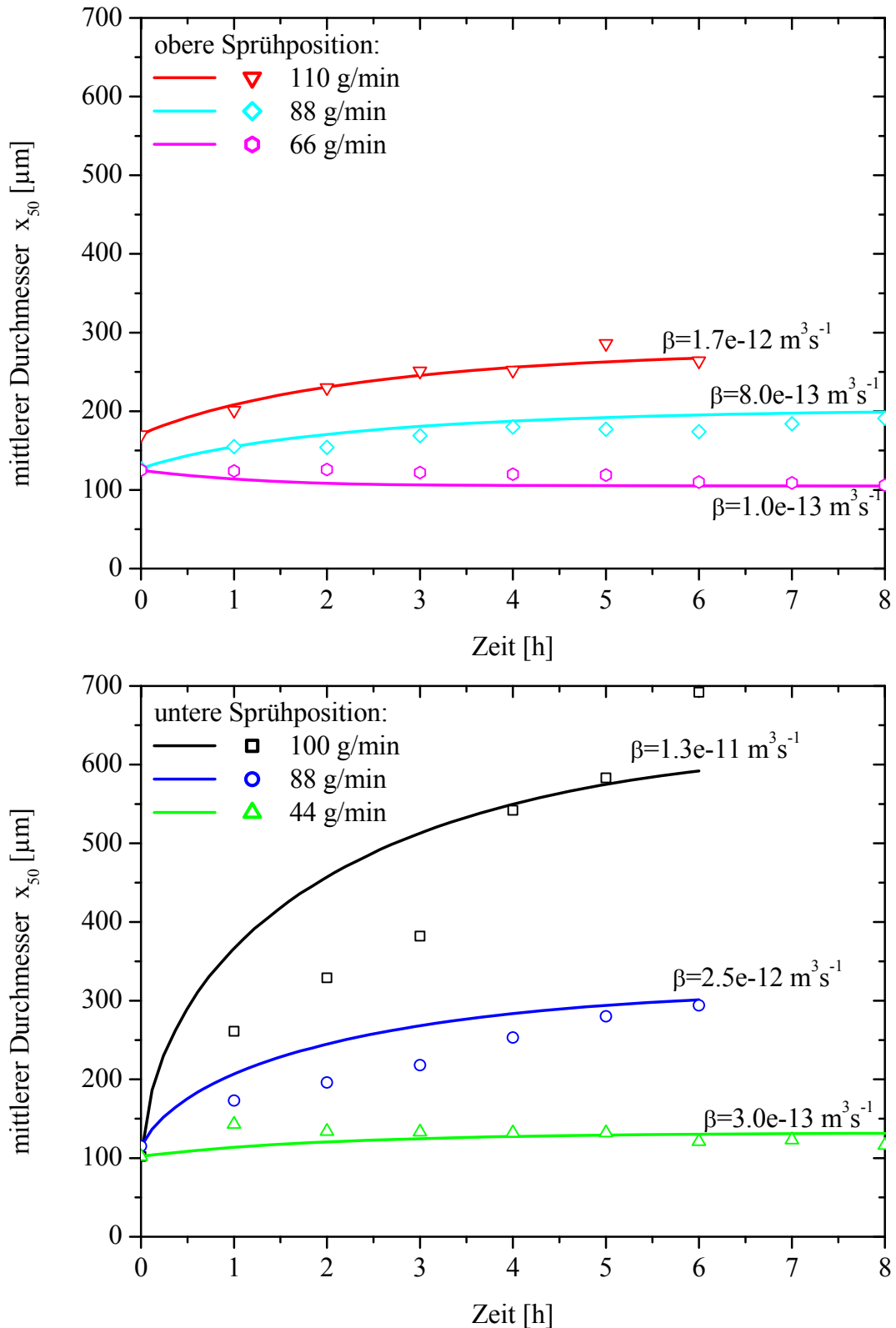


Abb. 6.55: Simulation mit Berücksichtigung von Bruch, Partikelgrößenentwicklung der Granulate mit der Zeit, Variation der Sprühdichte und Sprühposition: Gasgeschw. 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C, Saccharoseinventar (Start): 12,5 kg, Sprühdichte: 88 g/min 60 Gew.-%, Sprühpositionen 500 mm und 1500 mm zentral aufwärts, Dispergiertgasstrom 3 Nm³/h

Mit der Änderung der Eindüsungsrate gekoppelt variieren verschiedene Parameter im Granulator, die im Folgenden in ihren Einflüssen auf die Granulation bzw. Agglomeration diskutiert werden sollen.

Die Veränderung der Eindüsungsraten im betrachteten Betriebsbereich von 44 g/min bis 110 g/min Saccharoselösung resultiert bei jeweils konstantem Dispergiergasstrom in kleinen Änderungen in der Massendichteverteilung der generierten Tropfen (vgl. Abb. 5.9). Die Änderung des mittleren Partikeldurchmessers x_{50} und des Sauterdurchmessers x_s bei den hauptsächlich eingesetzten Sprühdichten von 40-100 g/min (und 3 Nm³/h Dispergiergasstrom) beträgt ca. 20%. Es wird angenommen, dass die hieraus entstehenden Effekte vernachlässigt werden können, da sie klein gegenüber denen der Variation des Dispergiergasstromes sind. Der Effekt eines unterschiedlichen Dispergiergasstroms von 1 Nm³/h bis 4 Nm³/h resultiert in Änderungen der charakteristischen Tropfendurchmesser von über 400% (unabhängig von den Eindüsungsraten zwischen 44 g/min und 110 g/min).

Die Abhängigkeit des EKE-Kerns von der Sprühdichte eingedüster Saccharoselösung ist in Abb. 6.56 wiedergegeben. In Abhängigkeit der jeweiligen Eindüseposition d.h. der lokalen Feststoffvolumenkonzentration steigt der Zahlenwert des Agglomerationskerns mit dem eingedüsten Massenstrom an, Im Fall der Eindüsung in die verdünnte Zone lassen sich die gefundenen Kernel durch eine lineare Funktion annähern:

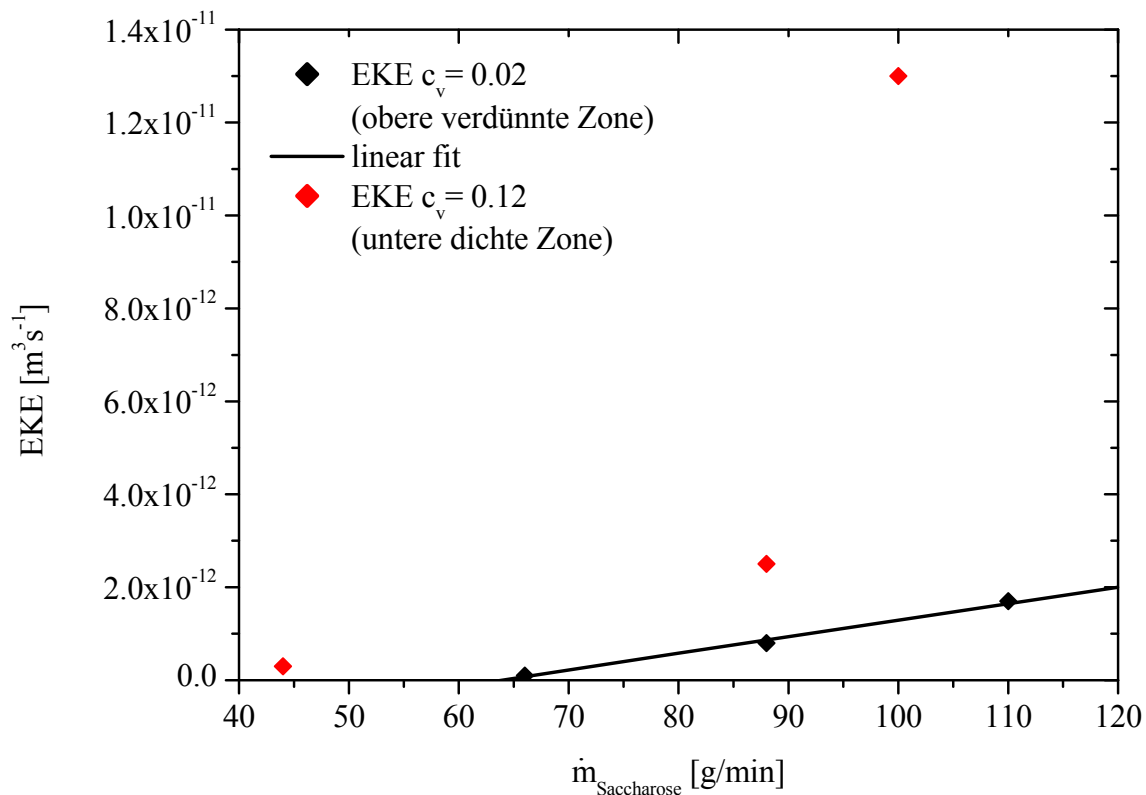


Abb. 6.56: Zahlenwerte des EKE-Kerns in Abhängigkeit der Sprühdichte an Saccharoselösung in den verschiedenen Zonen, Modell mit Bruch

$$EKE \left[\text{m}^3 \text{s}^{-1} \right] = 3,6 \cdot 10^{-13} \cdot \dot{m} + 2,3 \cdot 10^{-12} \quad \text{mit } \dot{m} \text{ in kg/s} \quad (6.21)$$

Im Fall der Eindüsung in die untere, dichte Zone streuen die Zahlenwerte des Agglomerationskerns zu stark für eine quantitative Beschreibung.

Als letzter Parameter wird der Einfluss der Tropfengröße bzw. des Dispergiergasstroms betrachtet. Beide Parameter lassen sich prinzipbedingt nicht entkoppeln. Der Parameter "Tropfengröße" ist wesentlich komplexer als die Parameter, die bisher diskutiert wurden. So verändert sich die Tropfengröße in Abhängigkeit des Dispergiergasstroms. Mit abnehmender Tropfengröße erhöht sich die Wahrscheinlichkeit des Ausbildens von Overspray durch das Generieren von feinen Tropfen, die vor dem ersten Partikelkontakt getrocknet sind. Praktisch wurden keine signifikanten Mengen Overspray gefunden, nur vereinzelte Partikel im Falle der Eindüsung in die obere dünne Zone mit hohem Dispergiergasstrom von $4 \text{ Nm}^3/\text{h}$. Es kann nicht ausgeschlossen werden, dass generiertes Overspray durch die Zyklone ausgetragen wird (was allerdings in den Massenbilanzen auffallen würde) oder dass Overspray ähnlich dem Abrieb bei Rezyklierung durch die Sprühzone eingefangen wird, ohne in der Bilanz zu erscheinen.

Zusätzlich verändert der höhere Gasstrom die Strömungsmechanik in der Düsenregion. Es kann nicht ausgeschlossen werden, dass Bruch- oder Abriebeffekte ähnlich der in einer Strahlmühle auftreten. Solche Effekte wurden in dieser Arbeit nicht explizit untersucht. Es wären weitere Untersuchungen notwendig, um entsprechende Effekte zu quantifizieren.

Im Folgenden wird der Einfluss der Veränderung des mittleren Tropfendurchmessers auf die zeitliche Entwicklung der Massendichteverteilung der Granulate betrachtet. Abb. 6.57 zeigt die Ergebnisse der Simulation ohne Bruch im Vergleich zu den Messwerten.

Wie schon in der vorherigen Diskussion beschrieben, ist das Modell ohne Berücksichtigung von Bruchvorgängen nicht in der Lage, den Korngrößenverlauf bei stationären Betriebszuständen und insbesondere nicht bei schrumpfenden mittleren Durchmessern abzubilden.

Am stärksten wird dieser Effekt bei der Eindüsung mit $3 \text{ Nm}^3/\text{h}$ bzw. $4 \text{ Nm}^3/\text{h}$ Dispergiergasstrom bei der Eindüsung in die obere dünne Zone deutlich. In beiden Fällen ergeben sich Agglomerationskerns von $1 \cdot 10^{-14} \text{ m}^3 \text{s}^{-1}$ bzw. $1 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3 \text{s}^{-1}$, obwohl der mittlere Durchmesser leicht abnimmt, bevor er in einen stationären Zustand übergeht oder seine Größe überhaupt nicht ändert.

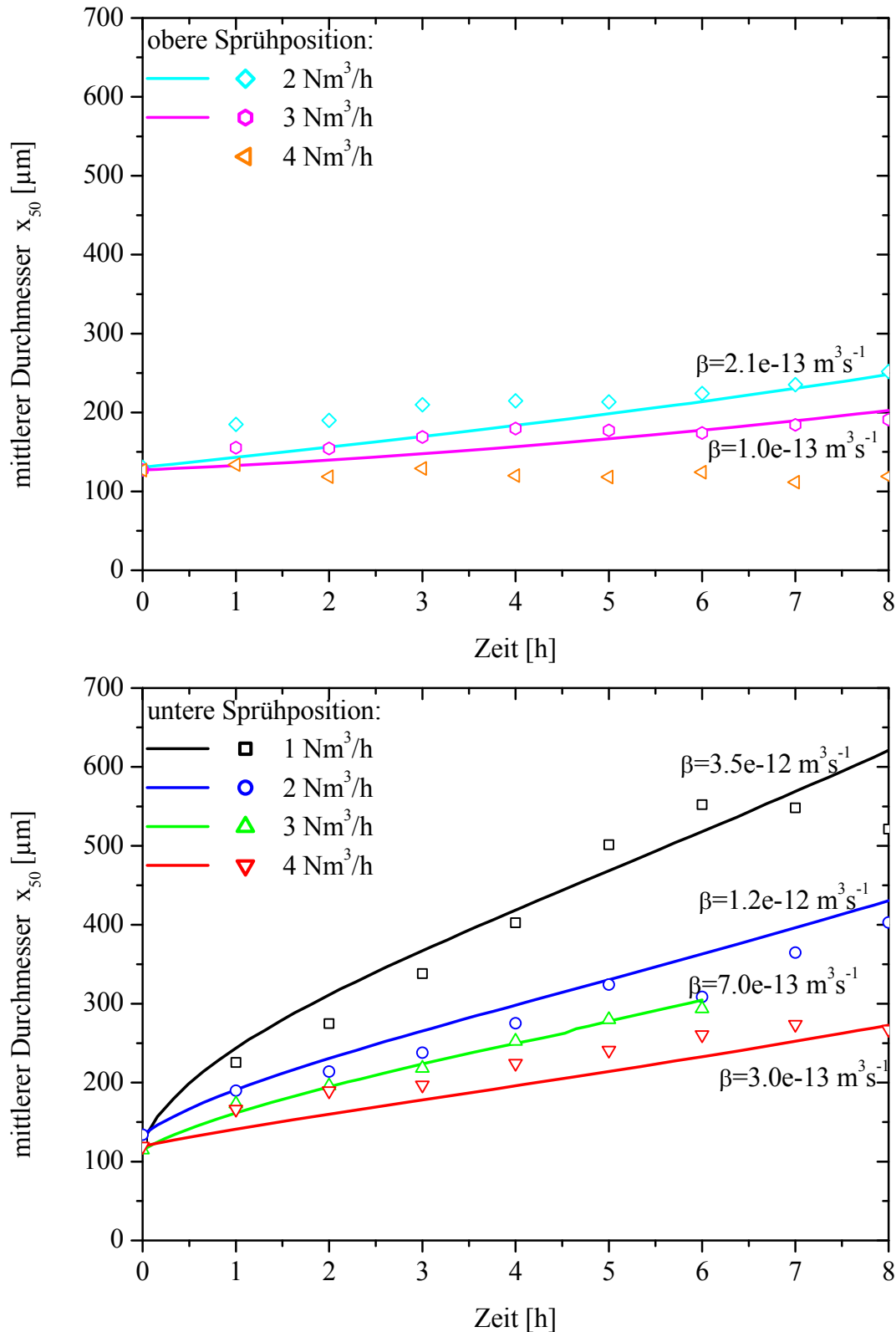


Abb. 6.57: Simulation ohne Berücksichtigung von Bruch, Partikelgrößenentwicklung der Granulate mit der Zeit, Variation der Tropfengröße (Dispersionsgasstrom) und Sprühposition: Gasgeschw. 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C, Saccharose Inventar (Start): 12,5 kg, Sprühdrate: 88 g/min 60 Gew.-%, Sprühpositionen 500 mm und 1500 mm zentral aufwärts

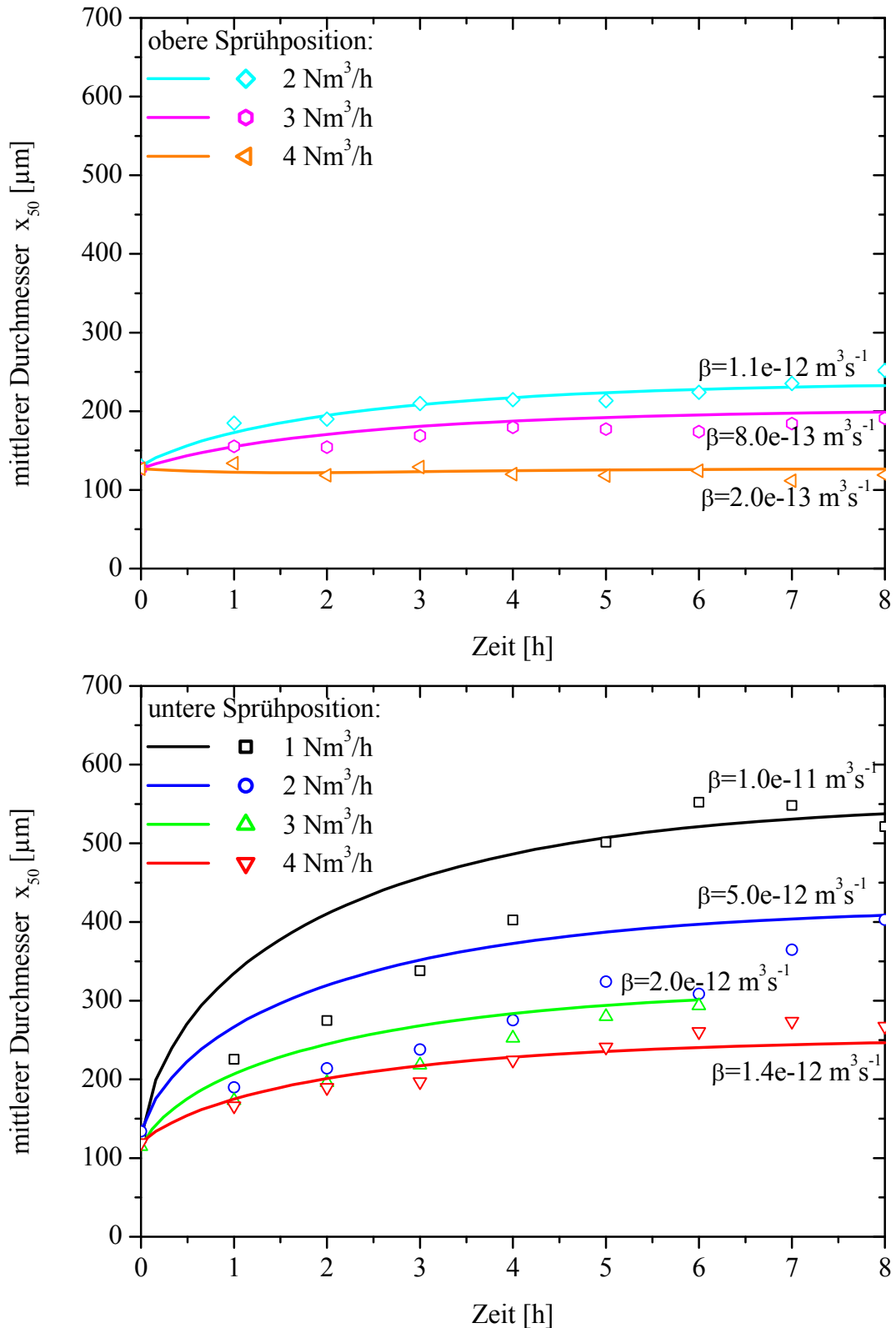


Abb. 6.58: Simulation mit Bruch, Partikelgrößenentwicklung der Granulate mit der Zeit, mittlerer Durchmesser x_{50} , Variation der Tropfengröße (Dispergiergasstrom) und Sprühposition: Gasgeschw. 4,2 m/s, Gastemp.: 85 °C, Saccharose Inventar (Start): 12,5 kg, Sprührate: 88 g/min 60 Gew.-%, Sprühposition 500 mm und 1500 mm zentral aufwärts

Aber auch bei der Eindüsung mit 4 Nm³/h Dispergiertgasstrom in die untere dichte Zone, resultierend in einem Agglomerationskernel von $3 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$, wird deutlich, dass die Effekte nicht hinreichend wiedergegeben werden und der zeitliche Verlauf der Größenentwicklung nicht getroffen wird. Andererseits zeigt das Modell eine recht gute Übereinstimmung für Verläufe, die nicht in einen stationären Zustand übergehen, wie das Experiment mit einem Dispergiertgasstrom 1 Nm³/h und Eindüsung in die untere dünne Zone, resultierend in einem Agglomerationskernel von $3 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$.

Im Allgemeinen wird der Effekt abnehmender Agglomerationskernel mit zunehmendem Dispergiertgasstrom wiedergegeben. Für den Fall der Eindüsung in die obere dünne Zone mit einer Feststoffvolumenkonzentration von ca. 0,02 variieren die Kernel zwischen $1 \cdot 10^{-14} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ und $2,1 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$. Für den Fall der unteren dichten Zone mit einer Feststoffvolumenkonzentration von ca. 0,12 ergeben sich Agglomerationskernel zwischen $3 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ und $3,5 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$.

Die Ergebnisse der Simulation mit Berücksichtigung von Bruchvorgängen sind für dieselben Versuche in Abb. 6.58 wiedergegeben. Das Modell hat Probleme, Versuche, die nicht den stationären Zustand erreichen, abzubilden wie z.B. 1 Nm³/h und 2 Nm³/h Dispergiertgasstrom bei Eindüsung in die untere dichte Zone, trifft dafür aber in den Fällen, in denen ein stationärer Zustand erreicht wird (z.B. Dispergiertgasstrom von 4 Nm³/h bei Eindüsung in die obere dünne Zone) gut.

Die Kernel ergeben sich zu $2 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ bis $1,1 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ im Falle der oberen dünnen Zone und $2 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ und $1 \cdot 10^{-11} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ im Falle der unteren dichten Zone. Die Abhängigkeit des EKE-Kernels in Abhängigkeit des Dispergiertgasstroms bzw. der Tropfengröße ist für den Fall der Simulation mit Bruch in Abb. 6.59 wiedergegeben.

Die Entwicklung kann in erster Näherung durch lineare Ausgleichsgeraden wiedergegeben werden. Für den Fall der Eindüsung in die dichte Bodenzone mit einer Feststoffvolumenkonzentration von 0,12 ergibt sich Gleichung (6.22). Für die Eindüsung in die obere dünne Zone mit einer Feststoffvolumenkonzentration von ca. 0,02 ergibt sich Gleichung (6.23).

$$EKE \left[\text{m}^3 \text{ s}^{-1} \right] = -2,9 \cdot 10^{-12} \cdot \dot{v}_{gas} + 1,2 \cdot 10^{-11} \quad \text{mit } \dot{v}_{gas} \text{ in Nm}^3/\text{h} \quad (6.22)$$

$$EKE \left[\text{m}^3 \text{ s}^{-1} \right] = -4,5 \cdot 10^{-13} \cdot \dot{v}_{gas} + 2,1 \cdot 10^{-12} \quad \text{mit } \dot{v}_{gas} \text{ in Nm}^3/\text{h} \quad (6.23)$$

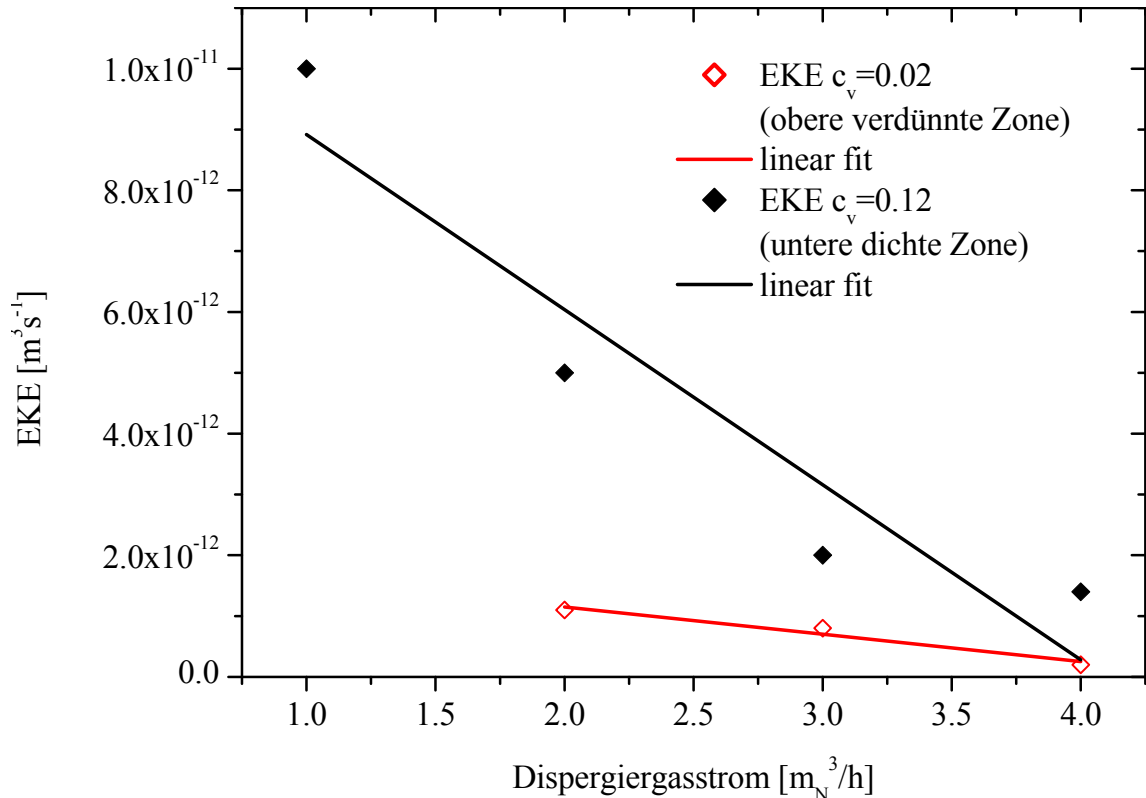


Abb. 6.59: Zahlenwerte des EKE-Kernels in Abhängigkeit der Zerstäubungsgasströme (bzw. Tropfendurchmesser) in den verschiedenen Zonen, Modell mit Bruch

6.3.3 Zusammenfassung der numerischen Simulation

Durch Variation des Agglomerationskernels wurde das Populationsbilanzmodell an die gemessenen x_{50} -Werte der Massenverteilungen der Granulate aus dem experimentellen Teil der Arbeit angepasst.

Ein Vergleich der Modelle mit und ohne Berücksichtigung von kornverkleinernden Mechanismen zeigt, dass nur das Modell mit Brucheffekten befähigt ist, alle Betriebszustände des ZWS-Granulators hinreichend abzubilden.

Es konnte gezeigt werden, dass der die Vorgänge in der Agglomerationszone lokal abbildende Agglomerationskernel, im Modell mit Berücksichtigung von Bruchvorgängen, um bis zu eine Größenordnung größer ist als der für den gesamten Granulator berechnete Kernel, im Modell ohne Berücksichtigung von Bruchvorgängen (bei dem nur eine Globale Agglomeration abgebildet wird, vgl. Tab. 6.10).

Es konnte validiert werden, dass Bruch einen wesentlichen Effekt auf das Agglomerationsverhalten im ZWS-Granulator hat. Die Effekte der Eindüsungsposition im ZWS-Riser konnten auf die lokale Feststoffvolumenkonzentration zurückgeführt werden. Die Abhängigkeit des Kernels von Feststoffvolumenkonzentration, Saccharosesprührate, Zerstäubungsgasmenge (bzw. Tropfengröße) und

Lehrrohrgasgeschwindigkeit wurde für das untersuchte Betriebsfenster quantifiziert und in einfachen empirischen Korrelationen abgebildet.

Die Grenzen des numerischen Modells wurden aufgezeigt und insbesondere die Notwendigkeit einer verbesserten Beschreibung des Bruchmodells, im Speziellen der Breakage Selection Rate hervorgehoben, was aber zusätzliche Versuche erfordern würde.

7 Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurde die Sprühgranulation in der zirkulierenden Wirbelschicht an einem Modellsystem aus Saccharose-Partikeln als Bettmaterial und der Eindüsung einer wässrigen Saccharoselösung mit 60 Gew.-% Saccharose sowie Luft als Trocknungsmedium untersucht.

Im Gegensatz zu den Untersuchungen anderer Autoren (KAGE ET AL. [39][40][41] TSUTSUMI ET AL. [95]) ist dieser Prozess durch die Generierung neuer Partikel aus der eingedüsten Saccharoselösung und starkes Partikelwachstum bei wesentlich höheren Einsprühraten dominiert. Dies ermöglicht eine vollständige Materialzuführung über die Flüssigphase.

Die Arbeit gliedert sich inhaltlich in drei Teile. Im ersten Teil werden die Experimente in einem ZWS-Granulator im Pilot-Maßstab betrachtet. Im zweiten Teil wird das Abriebs- und Bruchverhalten der Saccharosepartikel in separaten Versuchsständen betrachtet. Schließlich werden im dritten Teil die Ergebnisse aus beiden vorigen Teilen mittels Simulation von 1D-Populationsbilanzen zusammengeführt und das lokale Granulations- / Agglomerationsverhalten in der Sprühzone sowie die wesentlichen Einflussparameter abgeleitet.

Für den Betrieb des ZWS-Granulators existieren verschiedene Betriebsmodi. Im Batchbetrieb wachsen vorgelegte feine Partikel auf oder agglomerieren, bis sie die gewünschte Partikelgröße erreichen. Im kontinuierlichen Betrieb wird kontinuierlich Saccharoselösung eingedüst und es werden Partikel (quasi-)kontinuierlich aus dem System abgezogen. Die Partikelgrößenverteilung im Produkt erreicht einen stationären Zustand.

Die Versuche wurden bei Leerrohrgeschwindigkeiten zwischen 4,1 und 6,4 m/s sowie Gaseintrittstemperaturen von 80 °C in einem Riser von 150 mm Innendurchmesser durchgeführt.

Aufgrund der hohen Gasgeschwindigkeiten im Riser wird die vertikale Segregation unterschiedlich großer Partikel weitestgehend unterdrückt. Die relativ zur blasenbildenden Wirbelschicht niedrige Partikelkonzentration der Suspensionsphase und eine kurze, definierte Interaktionszeit zwischen den eingedüsten Tropfen und Bettpartikeln führen zu einem einfach zu kontrollierenden Granulationsprozess. Das beschriebene Strömungsprofil ermöglicht niedrige Gaseintrittstemperaturen bzw. Temperaturunterschiede zwischen Gas und Feststoff. Als Konsequenz hieraus ergibt sich ein homogenes Temperaturprofil entlang des Risers ohne Ausbildung von Temperaturspitzen. Damit ist das System zur Behandlung temperatursensitiver Stoffsysteme („Gentle Drying“) geeignet.

Es wurde der Einfluss verschiedener Parameter, insbesondere der Riser-gasgeschwindigkeit, der Eindüsungsposition im Riser, des Massenstroms der eingedüsten Lösung sowie deren Tropfengrößenverteilung und der vorgelegten Bettmasse auf die verschiedenen Betriebszustände und die entstehenden Granulate bzw. Agglomerate untersucht.

Der dominierende Kornvergrößernde Mechanismus ist die Agglomeration in Kombination mit mehr oder weniger stark ausgeprägter Granulation und Abrieb, so dass die gebildeten Agglomeraten eine brombeerartige Grundstruktur aufweisen. Zusätzlich erweisen sich die Bruchvorgänge als wesentlich für die Beschreibung stationärer Betriebszustände.

Bei der Eindüsung in die untere dichte Zone, ist die Agglomeration der dominante Wachstums-Mechanismus. In diesem Fall wachsen die Partikel schnell zu Größen auf, die in den meisten Fällen zu groß für einen ZWS-Betrieb sind, das System geht dann in eine blasenbildende Wirbelschicht über. Es bilden sich brombeerartige Agglomerate.

Die Eindüsung in die dünne obere Zone erlaubt hingegen einen kontinuierlichen Betrieb. Im Gegensatz zur Eindüsung in die untere dichte Zone ist die Agglomeration nicht mehr der allein dominierende Mechanismus. Granulation (Schalenwachstum) wird dominierend. Die Form der Granulate wird runder, Abriebs- und Brucheffekte an den Partikeln werden sichtbar.

Die Eindüsung von der Seite resultiert in schnellerem Partikelwachstum, was durch die Eindüsung in die Ringzone mit erhöhter Feststoffvolumenkonzentration erklärt werden kann. Im Falle der zentral aufwärts gerichteten Eindüsung erfolgt der Kontakt zwischen Tropfen und Bettpartikeln hauptsächlich in der Kernzone, in der eine niedrigere Partikelkonzentration vorliegt.

Mit zunehmendem Massenstrom eingedüsten Materials wird die Agglomeration gegenüber der Granulation dominierender. Für einen kontinuierlichen Betrieb ist in diesem Betriebszustand die kontinuierliche Zuführung von Keimen und der Abzug von groben Granulaten vorzusehen.

Größere Tropfen führen zu einer verstärkten Agglomerationsneigung und beschleunigen dementsprechend das Kornwachstum.

Die Erhöhung der Gasgeschwindigkeit führt zu einem verlangsamten Partikelwachstum. Der Betrieb in einem stationären Zustand ist hierdurch auch bei höheren Eindüsungsraten möglich.

Während die beobachteten Tendenzen des Einflusses der verschiedenen Betriebsparameter weitestgehend dem zu erwartenden Verhalten in einer blasenbildenden Wirbelschicht entsprechen, besitzt die ZWS einen zusätzlichen Freiheitsgrad durch die Wahl der Sprühposition. Hier war es nicht möglich, einen stabilen kontinuierlichen Betriebspunkt zu erreichen, wenn Agglomeration auf Basis einer hohen Feststoffvolumenkonzentration im Eindüsbereich der dominante

Kornvergrößerungsmechanismus war. Um das Partikelwachstum in solch einem Fall zu limitieren, können entweder feine Partikel in das System eingebracht werden oder es muss ein klassierender Abzug von Bettmaterial installiert werden.

Mit zunehmender Gasgeschwindigkeit verlangsamt sich der Partikelaufbau im betrachteten Betriebsfenster der ZWS signifikant. Kornzerkleinernde Mechanismen wie Abrieb und Bruch zeigen dann einen signifikanten Einfluss auf das Granulationssystem.

Im zweiten Teil der Arbeit wurde deshalb das Bruch- und Abriebsverhalten für repräsentative Betriebspunkte mit repräsentativen Saccharosepartikeln in zwei separaten Testständen untersucht.

Hierzu wurde der ZWS-Granulator in repräsentative Zonen mit unterschiedlicher mechanischer Belastung entsprechend den Arbeiten von REPPENHAGEN [75], KLETT [46] und PÜTTMANN [73] eingeteilt: verteilerbodennahe Zone, Wirbelschicht und Zyklone.

Die Effekte in den verschiedenen Zonen wurden in zwei separaten Versuchsreihen qualitativ und quantitativ untersucht. Die erste Versuchsreihe untersucht das Abriebs- und Bruchverhalten in der Wirbelschicht, die zweite Versuchsreihe untersucht das Abriebs- und Bruchverhalten in den Zyklonen. Hierfür wurden Granulate unter standardisierten Bedingungen im ZWS-Granulator hergestellt und in unterschiedliche, für den Prozess repräsentative Partikelgrößenklassen aufgeteilt. In den Experimenten wurden charakteristische Betriebspunkte des ZWS-Granulators nachgestellt. Wesentliche Einflussparameter sind z.B. Gasgeschwindigkeit und Feststoffbeladung der Strömung, aber auch partikelspezifische Eigenschaften wie Partikelgröße und Produktionsbedingungen der Granulate.

Bei den Versuchen in einem Zyklon-Teststand und Versuchen in der blasenbildenden Wirbelschicht konnte gezeigt werden, dass der Abrieb im Riser und im Zyklon des ZWS-Granulators in wesentlichen proportional zur Partikeloberfläche ist.

Es wurde ferner gezeigt, dass Bruch bei Partikeln mit Durchmessern unterhalb von 100 μm praktisch nicht auftritt. Für größere Partikeln ist der Bruch im Zyklon der dominierende destruktive Mechanismus, Bruch in der blasenbildenden Wirbelschicht wurde nicht beobachtet. Es ist davon auszugehen, dass auch im Riser keine wesentlichen Brucheffekte auftreten.

Die Ergebnisse der Versuche wurden mit Standardmodellen für Abrieb und Bruch abgeglichen und der Einfluss wesentlicher Betriebsparameter auf Abriebs- und Bruchverhalten quantifiziert. Der Vergleich zwischen den verschiedenen destruktiven Mechanismen in den verschiedenen Zonen der ZWS zeigt, dass der Bruch im Zyklon

der dominierende destruktive Effekt im ZWS-Granulator ist und einen wesentlichen Einfluss auf den Partikelgrößenhaushalt hat.

Aufgrund der Eigenschaft der ZWS, das gesamte Bettmaterial mehrmals pro Minute durch die Sprühzone zu führen, kann davon ausgegangen werden, dass der Abrieb dessen Partikeldurchmesser eine Größenordnung kleiner sind als die Tropfengröße, bei den Durchgängen von den Tropfen eingefangen wird und mit den Tropfen auf den Partikeln abgeschieden wird. Dementsprechend wird der Abrieb für eine Modellierung des Gesamtsystems vernachlässigt.

Aufbauend auf den Ergebnissen des ersten und zweitens Teils dieser Arbeit wurde dann ein einfaches Populationsbilanzmodell mit Termen für Bruch, Agglomeration und Granulation implementiert. Mit diesem Modell lässt sich das globale Granulationsverhalten auf Basis der gefundenen lokalen Granulations-, Agglomerations- und Brucheffekte beschreiben.

Zur Bestimmung der spezifischen Bruchparameter wurden die im zweiten Teil generierten Bruchdaten an ein einfaches binäres Bruchmodell angepasst. Es wurde gefunden, dass der Bruch in erster Näherung durch eine Breakage Selection Rate in Form einer Sprungfunktion abgebildet werden kann. Hierbei wird die Selection Rate für Partikeln kleiner $100\ \mu\text{m}$ zu Null gesetzt.

Der Granulationsterm ist durch den bekannten Massenstrom an eingedüster Saccharoselösung gegeben. Es wird von Wachstum proportional zur angebotenen Partikeloberfläche ausgegangen. Die Partikelgrößenänderung aufgrund von Abrieb wird aufgrund der obigen Überlegungen nicht berücksichtigt.

Hiermit sind alle Parameter bis auf die des Agglomerationsverhalten in der Populationsbilanz bekannt. Für das Agglomerationsverhalten wird von binärer Agglomeration und einem aus der Theorie zur „Equipartition of Kinetic Energy“ (EKE, TAN ET AL. [91] [92], GOLDSCHMIDT [24]) abgeleiteten Agglomerationskernel ausgegangen.

Durch Variation der Zahlenwerte des Kernelparameters β_0 wurde das Populationsbilanzmodell an die Messdaten aus dem ersten Teil der Arbeit angepasst.

Ein Vergleich des Modells mit und ohne Berücksichtigung kornverkleinernder Mechanismen zeigt, dass nur das Modell mit Brucheffekten befähigt ist, alle Betriebszustände des ZWS-Granulators hinreichend abzubilden

Es konnte gezeigt werden, dass der die Vorgänge in der Agglomerationszone lokal abbildende Agglomerationskernel, im Modell mit Berücksichtigung von Bruchvorgängen, um bis zu eine Größenordnung größer ist als der für den gesamten Granulator berechnete Kernel, im Modell ohne Berücksichtigung von Bruchvorgängen, (bei dem nur eine globale Agglomeration abgebildet wird).

Partikelbruch erwies sich als ein wesentlicher Parameter für das globale Agglomerationsverhalten im ZWS-Granulator. Der Effekt der Eindüsungposition im ZWS-Riser konnte auf die lokale Feststoffvolumenkonzentration zurückgeführt werden.

Die Abhängigkeit des Kerns von Feststoffvolumenkonzentration, Saccharosesprührate, Zerstäubungsgasmenge (bzw. Tropfengröße) und Leerrohrgasgeschwindigkeit wurde für das untersuchte Betriebsfenster quantifiziert und in einfachen empirischen Korrelationen abgebildet.

Zusammenfassend konnte in dieser Arbeit gezeigt werden, dass die ZWS-Sprühgranulation neben ihrer intrinsischen Eignung für feine Partikelsysteme bei Herabsetzung der Betttemperatur im Vergleich zur Sprühgranulation in der Blasen-Wirbelschicht durch intensive mechanische Belastung (schwache) Partikel aufbricht und dichtere rundere Agglomerate erzeugt, die entsprechend als stabiler anzunehmen sind.

Insgesamt hat die vorliegende Arbeit gezeigt, dass die ZWS-Sprühgranulation insbesondere für temperaturempfindliche Stoffe eine durchaus realistische Alternative gegenüber der Granulation in der blasenbildenden Wirbelschicht ist.



8 Formelzeichen

a	[kg/m ² s]	Beschleunigung
A	[m ²]	Fläche, Querschnittsfläche
Ar	[-]	Arrhenius-Zahl
\dot{B}	[1/s]	Birth-Term in Populationsbilanz
B	[1/s]	Birth-Term in Gl. (3.3)(3.4)
b	[1/m], [1/m ³]	Wahrscheinlichkeitsdichte in Populationsbilanz
\tilde{B}	[1/m], [1/m ³]	Wahrscheinlichkeitsdichte in Populationsbilanz in Gl. (3.10)(3.11)
C_j	[s/m ²]	Abriebskonstante Gl. (11.1)
c_p	[kJ/kgK]	spezifisch Wärmekapazität
c_v	[-]	Feststoffvolumenkonzentration
C_w	[-]	Widerstandsbeiwert
\dot{D}	[1/s]	Death-Term in Populationsbilanz
D	[1/s]	Death-Term in Gl. (3.10)(3.11)
	[m ² /s]	Dispersionskonstante
d	[m]	Durchmesser
d_{50}	[m]	mittlerer Durchmesser
d_b	[m]	Blasendurchmesser
d_i mit $i \in [1-100]$	[m]	Durchmesser mit $i\% < d$
d_s	[m]	Sauterdurchmesser
E	[J]	Energie
F	[N]	Kraft
f	[-]	Verteilungsfunktion in Gl. (3.3)
f_i	[-]	Blasiusreibung
Fr	[-]	Froudezahl
f_r	[-]	Wandreibung
g	[kg/m ² s]	Erdbeschleunigung

G	[m/s], [m ³ /s]	Wachstumsrate in Populationsbilanz
G_s	[kg/m ³ s]	Feststoffzirkulationsrate
H	[J]	Enthalpie
h	[m]	Höhe
	[J/kg], [J/mol]	spezifische Enthalpie
I, J	[Kg m ²]	Trägheitsmoment
K	[m ³ /s], [m ⁶ /s]	Dispersionsrate Gl. (3.4)
K_b	[1/m]	Abriebskonstante (Ws) Gl. (6.3)
K_b^*	[kg/m ³]	Abriebskonstante (Ws) Gl. (6.6)
K_C	[s ² m ^{-3/2} kg ^{-1/2}]	Abriebskonstante (Zyklon) Gl. (6.9)
L, l	[m]	Länge
\hat{M}	[kg/mol]	molare Masse
\dot{M}	[kg/s]	Massenstrom
m	[kg]	Masse
m_{att}	[kg]	Abriebsmasse
\dot{m}	[kg/m ² s]	(spezifischer) Massenstrom
\dot{m}_s	[kg/s], [g/min]	Sprührate Saccharose
N, n	[-]	Anzahl
n	[1/m], [1/m ³]	Anzahldichte in Populationsbilanzen (Durchmesser, Volumen)
n_{or}, n_{or}	[-]	Düsenanzahl
Nu	[-]	Nusselt-Zahl
p	[Pa]	Druck
Pr	[-]	Prandtl-Zahl
q	[-]	Parameter Gl. (4.35)
\dot{Q}	[1/s]	Quellenterm in Populationsbilanz
q_0	[1/m]	Anzahldichteverteilung
Q_0	[-]	Anzahlverteilung
q_3	[1/m]	Massendichteverteilung
Q_3	[-]	Massenverteilung

\hat{R}	[J/molK]	(allgemeine) Gaskonstante
r	[m], [m ³]	Externe Koordinate in der Populationsbilanz Gl. (3.3)(3.4)
	[m]	Radius
r_b	[1/s]	Abriebsrate Wirbelschicht Gl. (6.3)(6.6)
r_z	[-], [1/s]	Abriebsrate Zyklon Gl. (6.8)(6.14)
Re	[-]	Reynoldszahl
R_j	[kg/s]	Abriebmassenstrom Gl. (11.1)
s	[m]	Länge, Dicke
S	[-]	Selection Rate, Populationsbilanz
S_0	[verschiedene]	Selection Rate-Konstante
Sc	[-]	Schmidt-Zahl
Sh	[-]	Sherwood-Zahl
T	[°C], [°K]	Temperatur
t	[s]	Zeit
T_M	[°C],[°K]	Mittentemperatur
u	[m/s]	Leerrohrgeschwindigkeit
	[m ³]	Volumen (in Populationsbilanzen)
u_{sl}	[m/s]	Schlupfgeschwindigkeit
u_{mb}	[m/s]	minimale Geschwindigkeit der Blasenentstehung
u_{mf}	[m/s]	Minimalfluidisationsgeschwindigkeit
u_t	[m/s]	Einzelpartikelsinkgeschwindigkeit
V	[m/s], [m ³ /s]	Partikelfluss in der Populationsbilanz Gl. (3.3)
	[m ³]	Volumen
\dot{V}	[m ³ /s]	Volumenstrom
\dot{V}_b	[m ³ /s]	sichtbarer Blasenstrom
\dot{V}_0	[m ³ /s]	Volumenstrom durch Düse
v	[m/s]	Geschwindigkeit



	$[m^3]$	Volumen (in Populationsbilanzen)
\bar{v}	$[m^3]$	mittleres Volumen
v_g	$[m/s]$	Gasgeschwindigkeit
v_s	$[m/s]$	Feststoffgeschwindigkeit
w	$[-]$	Volumen (PB)
	$[m^3]$	Volumen (in Populationsbilanzen)
\bar{w}	$[-]$	mittlere Wahrscheinlichkeit
x	$[-]$,	Interne Koordinate in der Populationsbilanz Gl. (3.3)(3.4)
x_{50}	$[m]$	mittlerer Durchmesser
x_i mit $i \in [1-100]$	$[m]$	Durchmesser mit $i\% < x$
x_s	$[m]$	Sauterdurchmesser
z	$[m]$	Länge, Wegstrecke
griechische Buchstaben		
α	$[W/m^2K]$	Wärmeübergangskoeffizient
β	$[verschiedene]$	Agglomerationskernel
	$[m/s]$	Stofftransportkoeffizient Gl. (10.72)
β^*	$[-]$	Parameter in Gl. (12.14)(12.16)
β_0	$[verschiedene]$	Agglomerationskernelkonstante
γ	$[N/m]$	Oberflächenspannung
δ	$[N/m^2]$	Spannung
δ^*	$[-]$	Parameter in Gl. (12.14)(12.16)
ε	$[-]$	Hohlraumvolumenanteil
ε	$[m^3]$	Volumen (in Populationsbilanzen)
ε_s	$[-]$	Feststoffvolumenanteil
η	$[Pa s]$	dynamische Viskosität
λ	$[W/mK]$	Wärmeleitkoeffizient
	$[s]$	Mittlere Blasenlebenszeit Gl. (10.16)
μ	$[kg/m^3]$	Feststoffbeladung

μ_j	[-]	j-tes Moment der Populationsbilanz
ν, μ	[m ² /s]	kinematische Viskosität
φ	[-]	dimensionsloser Parameter
ϑ	[-]	dimensionsloser Parameter
ρ_f	[kg/m ³]	Fluidichte
ρ_g	[kg/m ³]	Gasdichte
ρ_s	[kg/m ³]	Feststoffdichte
Φ	[-]	Flächenverhältnis
Ψ	[-]	Schlupffaktor
ω	[m/s]	Geschwindigkeit
	[m ³]	Volumen (in Populationsbilanzen)
ζ	[-]	Masseanteil „Overspray“

Operatoren

∇	[-]	Divergenz
∂	[-]	Ableitung

Indizes

<i>agg</i>	Agglomeration
<i>att</i>	Abrieb
<i>b</i>	Blase, blaseninduziert, Bett
<i>break</i>	Bruch
<i>c</i>	Kern
<i>cr</i>	Kristallisation
<i>cyc</i>	Zyklon
<i>exp</i>	Versuch
<i>g</i>	Gas
<i>ges</i>	Gesamt
<i>in</i>	Einlauf, Quelle
<i>l</i>	Liquid
<i>mb</i>	minimal Blasenbildung



<i>mf</i>	minimal Fluidisation
<i>nuc</i>	Keimbildung
<i>or</i>	Düse
<i>out</i>	Auslauf, Senke
<i>p</i>	Partikel
<i>r</i>	Radial, Ring
<i>s</i>	Feststoff
<i>sim</i>	Simulation



9 Literaturverzeichnis

- [1] A. A. Adetayo and B. J. Ennis. Unifying approach to modeling coalescence mechanisms. *AIChE Journal*, 43(1):927–934, 1997.
- [2] A. A. Adetayo, J.D. Litster, S.E. Pratsinis, and B.J. Ennis. Population balance modelling of drum granulation of materials with wide size distribution. *Powder Technology*, 82:37–49, 1995.
- [3] S. Antonyuk. *Deformations- und Bruchverhalten von kugelförmigen Granulaten bei Druck- und Stoßbeanspruchung*. PhD thesis, Fakultät für Verfahrens- und Systemtechnik, Magdeburg, 2006.
- [4] L. G. Austin and P. T. Luckie. The estimation of non-normalized breakage distribution parameters from batch grinding tests. *Powder Technology*, 5:267– 271, 1972.
- [5] L. G. Austin and O. Trass. *Handbook of powder science & technology*, chapter Size reduction of solids: Crushing and grinding equipment., pages 586– 634. Chapman & Hall, New York, NY, 1997.
- [6] S. Bernotat and K. Schönert. *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry. Vol. B2 of Unit Operations I*, chapter Size reduction, pages 160–197. VCH, Weinheim/ Basel/ Cambridge/ New York, 2011.
- [7] V. K. Bhatia and L. G. Austin. Experimental methods for grinding studies in laboratory mills. *Powder Technology*, 5:261– 266, 1972.
- [8] H. T. Bi, J. Zouh, S.Z. Qin, and J.R. Grace. Annular wall layer thickness in circulating fluidized bed risers. *Can. J. Chem. Eng.*, 78:811–814, 1996.
- [9] R. Boerefijn and M.J. Hounslow. Studies of fluid bed granulation in an industrial r&d context. *Chemical Engineering Science*, 60:3879–3890, 2005.
- [10] H. Brauer. *Grundlagen der Einphasen- und Mehrphasenströmungen*. Sauerländer, Frankfurt a.M., 1971.
- [11] J. Brummund. Abriebs- und bruchverhalten bei der granulation in der zirkulierenden wirbelschicht. Master's thesis, Technische Universität Hamburg-Harburg, 2008.
- [12] R. Büttiker. Mechanisms of particlele formation durinparticd of free-falling drops containig solids. *Ger. Cem. Eng.*, 4:298–304, 1981.
- [13] A. Buck. Experimentelle untersuchung zur sprühgranulation in der zirkulierenden wirbelschicht. Master's thesis, Technische Universität Hamburg-Harburg, 2007.
- [14] University Camebridge, 2015. <http://www.doitpoms.ac.uk/tlplib/biocrystal/water-sucrose.php>.

- [15] D. H. Charlesworth and W. R. Marshall. Evaporation from drops containing dissolved solids. *AIChE Journal*, 6(1):9–23, 1960.
- [16] S. K. Chou and K.J. Chua. New hybrid drying technologies for heat sensitive foodstuffs. *Trends in Food Science & Technology*, 12:359–369, 2001.
- [17] K. J. Chua, Mujumdar A.S., and S.K.; Chou. Intermittent drying of bioproducts - an overview. *Bioresource Technology*, 90:285–295, 2003.
- [18] R. Clift and J. R. Grace. Bubble interaction in fluidized beds. *Chem. Eng. Progr. Symp Ser.*, 66(105):14–27, 1970.
- [19] R. Clift and J. R. Grace. Bubble coalescence in fluidized beds: comparison of two theories. *AIChE Journal*, 17(1):252 – 254, 1971.
- [20] J. F. Davidson and D. Harrison. *Fluidised particles*. Cambridge University Press, Cambridge, 1963.
- [21] F. Franks. Freeze-drying of bioproducts: putting principles into practice. *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, 45:221–229, 1998.
- [22] D. Geldart. Types of gas fluidization. *Powder Technology*, 7:285–292, 1973.
- [23] Glatt-GMBH, 2008. http://www.glatt.com/d/00_home/00.htm.
- [24] M. Goldschmidt. *Hydrodynamic Modelling of Fluidized Bed Spray Granulation*. PhD thesis, Twente University, 2001.
- [25] A. M. Golovin. The solution of the coagulation equation for raindrops, taking consideration into account. *Soviet Physics - Doklady*, 8 (2):191–193, 1963.
- [26] H. Grace, J.R. and Bi. *Handbook of Fluidization and Fluid-Particle Systems*. Marcel Dekker Inc., 2003.
- [27] J. E. Gwyn. On the particle size distribution function and the attrition of cracking catalysts. *AIChE Journal*, 15:35– 39, 1969.
- [28] S. Heinrich. *Modellierung des Wärme und Stoffübergangs sowie der Partikelpopulationen bei der Wirbelschicht-Sprühgranulation*. VDI Verlag Dr. Albert Bartens, 2001.
- [29] K. M. Hill, P. J.; Ng. New discretization procedure for the breakage equation. *AIChE Journal*, 41(5):1204–1216, 1995.
- [30] K. M. Hill, P. J.; Ng. Statistics of multiple particle breakage. *AIChE Journal*, 42(6):1600–1611, 1996.
- [31] K. Hillgardt and J. Werther. Influence of temperature and properties of solids on the size and growth of bubbles in gas fluidized beds. *Chem. Eng. & Technol.*, 10:272 – 280, 1987.
- [32] D. M. Himmelblau and K.B. Bischoff. *Process analysis and simulation deterministic systems*. John Wiley & Sons Inc., Austin, Tex., 1967.
- [33] J. C. Ho, S.K. Chou, A.S. Mujumdar, M.N.A. Hawlader, and K.J. Chua. An optimisation framework for drying of heat-sensitive products. *Applied Thermal Engineering*, 21 (17):1779–1798, 2001.

- [34] M. J. Hounslow. A discretized population balance for continuous systems at steady state. *AIChE Journal*, 36(1):106–116, 1990.
- [35] M. J. Hounslow, R.L. Ryall, and V.R. Marshall. A discretized population balance for nucleation, growth, and aggregation. *AIChE Journal*, 34:1821–1832, 1988.
- [36] H. M. Hulburt and S. Katz. Some problems in particle technology: A statistical mechanical formulation. *Chemical Engineering Science*, 19:555–574, 1964.
- [37] H. Ichikawa, H. Tokumitsu, T. Iono, K. and Fukuda, Y. Osako, and Y. Fukomori. Coating of pharmaceutical powders by fluidized bed process. vi: Microencapsulation using blend and composite latices of copoly (ethyl acrylate-methyl methacrylate-2-hydroxyethyl methacrylate). *Chem. Pharm. Bull.*, 42(6):1308–1314, 1994.
- [38] M. Jacob. *Granulation, Handbook of powder technology, Volume 11*. Elsevier, Amsterdam, Netherlands, 2007.
- [39] H. Kage, R. Abe, R. Hattanda, T. Zhou, H. Ogura, and Y. Matsuno. Effect of solid circulation rate on coating efficiency and agglomeration in circulating fluidized bed type coater. *Powder Technology*, 130:203–210, 2003.
- [40] H. Kage, M. Dohzaki, H. Ogura, and Y. Matsuno. Powder coating efficiency of small particles and their agglomeration in circulating fluidized bed. *Korean J. Chem. Eng.*, 16:630–634, 1999.
- [41] H. Kage, H. Nagasaki, and A. Nitta. Composition effects of atomized suspension on efficiency, agglomeration and solid circulation rate of circulating fluidized bed coater. In *Proceedings of the SCEJ symposium on fluidization*, volume 9, pages 108–115, 2003.
- [42] T. Kalda. Experimentelle untersuchung der agglomeration in der zirkulierenden wirbelschicht. Master's thesis, Technische Universität Hamburg-Harburg, 2007.
- [43] P. C. Kapur. Kinetics of granulation by non-random coalescence mechanism. *Chemical Engineering Science*, 27:1863–1869, 1972.
- [44] A. Kaskas. Berechnung der stationären und instationären bewegung von kugeln in ruhenden und strömenden medien. Master's thesis, Lehrstuhl für Thermodynamik und Verfahrenstechnik der TU Berlin, Berlin, 1964.
- [45] E. G. Kelly and D. J. Spottiswood. *Introduction to mineral processing*. Wiley, New York, 1982.
- [46] C. Klett. *Time-dependent behavior of the particle size distribution in fluidized bed systems with recirculation of solids*. PhD thesis, Technische Universität Hamburg-Harburg, 2005.
- [47] R. R. Klimpel and L. G. Austin. The back-calculation of specific rates of breakage from continuous mill data. *Powder Technology*, 38:77–91., 1984.
- [48] O. Krischer and W. Kast. *Trocknungstechnik Band 1 Die wissenschaftlichen Grundlagen der Trocknungstechnik*. Springer-Verlag, Berlin, 1978.

- [49] H. Kürten, J. Raasch, and H. Rumpf. Beschleunigung eines kugelförmigen feststoffteilchens im strömungsfeld konstanter geschwindigkeit. *Chem. Ing. Tech.*, 38(9):941–948, 1966.
- [50] J. Kumar. *Numerical approximations of population balance equations in particulate systems*. PhD thesis, Fakultät für Mathematik der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 2006.
- [51] J. Kumar, M. Peglow, G. Warnecke, and S. Heinrich. The cell average technique for solving multi-dimensional aggregation population balance equations. *Computers & Chemical Engineering*, 32:1810–1830, 2008.
- [52] J. Kumar, M. Peglow, G. Warnecke, and S. Heinrich. An efficient numerical technique for solving population balance equation involving aggregation, breakage, growth and nucleation. *Powder Technology*, 182:81–104, 2008.
- [53] J. Kumar, M. Peglow, G. Warnecke, S. Heinrich, and L. Moerl. Improved accuracy and convergence of discretized population balance for aggregation: The cell average technique. *Chemical Engineering Science*, 61:3327–3342, 2006.
- [54] S. Kumar and D. Ramkrishna. On the solution of population balance equations by discretization - i: A fixed pivot technique. *Chemical Engineering Science*, 51:1311–1332, 1996.
- [55] S. Kumar and D. Ramkrishna. On the solution of population balance equations by discretization - ii: A moving pivot technique. *Chemical Engineering Science*, 51:1333–1342, 1996.
- [56] D. Kunii and O. Levenspiel. *Fluidization Engineering (second edition)*. Butterworth-Heinemann, 1991.
- [57] K. Lücke. *On the influence of mixing on the performance of large-scale atmospheric circulating fluidized bed combustors*. Shaker Verlag, Aachen, 2003.
- [58] J. D. Lister, D. J. Smith, and M. J. Hounslow. Adjustable discretized population balance for growth and aggregation. *AIChE Journal*, 41(3):591–603, 1995.
- [59] J. M. Matsen. Some characteristics of large solids circulation systems. *Fluidization Technology*, pages 135–149, 1976.
- [60] L. Mörl, S. Heinrich, and M. Peglow. *Fluidized bed spray granulation, Granulation Band 11 aus Handbook of Powder Technology*, chapter The Macro Scale I: Processing for Granulation, pages 21–188. Elsevier Science, 2007.
- [61] E. Muschelknautz. *VDI Wärmeatlas*, chapter Gaszyklone. Springer, 2002.
- [62] A. W. Nienow. Fluidized bed granulation and coating: Applications to materials, agriculture and biotechnology. *Chem. Eng. Comm.*, 139:233–253, 1995.
- [63] I. Nopens, D. Beheydt, and P. A. Vanrolleghem. Comparison and pitfalls of different discretised solution methods for population balance models: a simulation study. *Computers & Chemical Engineering*, 29:367–377, 2005.
- [64] M. Pell and J. C. Williams. *Vol. 8 of Handbook of powder technology*, chapter Gas fluidization. Elsevier, Amsterdam, 1990.

- [65] Y. Petukhov and H. Kalman. Empirical breakage ratio of particles due to impact: Particle breakage. *Powder Technology*, 143-144:160–169, 2004.
- [66] A. Püttmann. *Comminution of brittle solid materials in fluidized bed processes*. PhD thesis, Technische Universität Hamburg-Harburg, 2010.
- [67] T. S. Pugsley. *The hydrodynamics of circulating fluidized beds*. PhD thesis, University of Calgary, 1995.
- [68] T. S. Pugsley and F. Berruti. *A core-annulus solids interchange model for circulating fluidized bed and FCC riser*. Engineering Foundation, Tours, France, 1995.
- [69] D. Ramkrishna. The status of population balances. *Reviews in chemical engineering*, 3:49–95, 1985.
- [70] D. Ramkrishna. *Population Balances: Theory and applications to particulate systems in engineering*. Academic Press, 2000.
- [71] A. D. Randolph. A population balance for countable entities. *The Canadian Journal of Engineering*, 42:280–281, 1964.
- [72] K. V. S Reddy and D. C. T Pei. Particle dynamics in solid-gas flow in a vertical pipe. *Ind. Eng. Chem. Fund*, 8(3):1969, 1969.
- [73] K. Redemann. *Ash Management in Circulating Fluidized Bed Combustors*. PhD thesis, Technische Universität Hamburg-Harburg, 2007.
- [74] D. Rennser. *Faseroptische Sensoren für feststoffbeladene Strömungen*. PhD thesis, Technische Universität Hamburg-Harburg, 1991.
- [75] J. Reppenhagen. *Catalyst attrition in fluidized bed systems*. PhD thesis, Technische Universität Hamburg-Harburg, 1999.
- [76] J. Reppenhagen and J. Werther. Catalyst attrition in cyclones. *Powder Technology*, 113:55–69, 2000.
- [77] M. J. Rhodes, X.S. Wang, H. Cheng, and T. Hirama. Similar profiles of solids flux in circulating fluidized bed risers. *Chem. Eng Sci.*, 47:1635–1643, 1992.
- [78] J. F. Richardson and W. N. Zaki. Sedimentation and fluidisation: Part i. *Trans. Instn Chem. Engrs.*, 32:35–53, 1954.
- [79] T. Richter. *Zerstäuben von Flüssigkeiten*. Expert Verlag, Renningen, 2004.
- [80] P. N. Rowe, K.T. Claxton, and Lewis J.B. Heat and mass transfer from a single sphere in extensive flowing fluid. *Trans. Inst. Chem. Eng.*, 34(14), 1965.
- [81] H. Rumpf. Die einzelkornzerkleinerung als grundlage einer technischen zerkleinerungswissenschaft. *Chemie Ingenieur Technik*, 37:187–202, 1965.
- [82] K. V. S. Sastry. Similarity size distribution of agglomerates during their growth by coalescence in granulation or green pelletization. *International Journal of Mineral Processing*, 2:178–203, 1975.
- [83] W. Satoru, Y. Imada, K. Hamada, Y. Wakamatsu, Y. Tanabe, R. N. Davec, and R. Pfeffer. Microgranulation of fine powders by a novel rotating fluidized bed granulator. *Powder Technology*, 131:250–255, 2003.

- [84] W. Satoru, H. Nakamura, K. Hamada, Y. Wakamatsu, Y. Tanabe, R. N. Davec, and R. Pfeffer. Fine particle coating by a novel rotating fluidized bed coater. *Powder Technology*, 141:172–176, 2004.
- [85] R. Schirmer. *Diffusionszahl von Wasserdampf-Luftgemischen und die Verdampfungsgeschwindigkeit*. VDI Beiheft Verfahrenstechnik 170, 1938.
- [86] H. Schubert. *Aufbereitung fester mineralischer Rohstoffe, 4th Edition*. Dt. Verlag für die Grundstoffindustrie, Leipzig, 1989.
- [87] R. Schubert. *Handbuch der mechanischen Verfahrenstechnik, 1st Edition*. Wiley-VCR, Weinheim, 2008.
- [88] P. Seydel. *Modellierung der Feststoffbildung in Einzeltröpfchen bei der Sprütrocknung*. PhD thesis, Ruhr-Universität Bochum, Bochum, 2005.
- [89] B. Stiller, E.-U. Hartge, S. Heinrich, and J. Werther. Spray granulation in a circulating fluidized bed system: The role of breakage and attrition. In *Circulating Fluidized Bed Technology XI*, 2014.
- [90] B. Stiller, E.-U. Hartge, and J. Werther. Spray granulation in the circulating fluidized bed: Experimental studies of granulation mechanisms in the dense and lean phase. In *Circulating Fluidized Bed Technology IX*. Science Press, 2008.
- [91] H.S. Tan, M.J.V. Goldschmidt, R. Boerefijn, M.J. Hounslow, A.D. Salman, and J. A. M. Kuipers. Building population balance model for fluidized bed melt granulation: lessons from kinetic theory of granular flow. *Powder Technology*, 142 (2-3):103–109, 2004.
- [92] H. S. Tan, A.D. Salman, and M.J. Hounslow. Kinetics of fluidised bed melt granulation iv: Selecting the breakage model. *Powder Technology*, 143-144:65–83, 2004.
- [93] A. Thon, A. Püttmann, E. U. Hartge, and J. Werther. Prediction of catalyst attrition in an industrial fluidized bed plant based on lab-scale attrition tests. In *Proceedings Fluidization XIII*, 2010.
- [94] H. A. Trosch. *Zerstäubung von Flüssigkeiten*. VDI Verlag, Düsseldorf, 1999.
- [95] A. Tsutsumi, H. Suzuki, Y. Saito, K. Yoshida, and Y. Yamazaki. Multi-component granulation in a fast fluidised bed. *Powder Technology*, 100:237–241, 1998.
- [96] H. Uhlemann. Kontinuierliche wirbelschichtsprühgranulation. *Chem.-Ing.-Techn.*, 62:822–834, 1990.
- [97] H. Uhlemann and L. Moerl. *Wirbelschicht-Sprühgranulation*. Springer, 2000.
- [98] G. Unland. *Particle breakage Vol. 12 of Handbook of powder technology*, chapter The principles of single-particle crushing, pages 117– 225. Elsevier, Amsterdam, 2007.
- [99] J. R. van Ommen, J. M. Valverde, and R. Pfeffer. Fluidization of nanopowders: a review. *J Nanopart Res*, 2012.
- [100] VDI. *VDI-Wärmeatlas Auflage 11*. Springer Vieweg, 2013.

- [101] L. Vogel and W. Peukert. Modelling of grinding in an air classifier mill based on a fundamental material function. *KONA*, 21:109–120, 2003.
- [102] R. Weichert. Anwendung von fehlstellenstatistik und bruchmechanik zur beschreibung von zerkleinerungsvorgangen. *Zement Kalk Gips*, 45:1– 8., 1992.
- [103] C. Y. Wen and Y. H. Yu. A generalized method for predicting the minimum fluidization velocity. *AiChE Journal*, 12:610–612, 1966.
- [104] J. Werther. Bubble growth in large diameter fluidized beds. In *Fluidization Technology*, pages 215–235, Washington, 1976. Hemisphere Publ.
- [105] J. Werther. *Ullmann's encyclopedia of industrial chemistry, Vol. B4*, chapter Fluidized-bed reactors, pages 319–366. VCH Publishers, 1992.
- [106] J. Werther and J. Reppenhagen. Catalyst attrition in fluidized-bed systems. *AIChE Journal*, 45:2001–2010, 1999.
- [107] J. Werther and J. Reppenhagen. *Handbook of fluidization and fluid-particle systems. Vol. 91 of Chemical Industries*, chapter 8 Attrition, pages 201–237. Dekker, New York, 2003.
- [108] J. Werther and J. Wein. Expansion behavior of gas fluidized beds in the turbulent regime. In *AiChE Symp. Ser.*, volume 90, 1994.
- [109] E. Wynn. Improved accuracy and convergence of discretized population balance of lister et al. *AIChE Journal*, 42:2084–2086, 1996.
- [110] W. Xi. *Katalysatorabrieb in Wirbelschichtreaktoren*. PhD thesis, Techn. Univ. Hamburg-Harburg, 1993.
- [111] W. Xi and J. Werther. Jet attrition of catalyst particles in gas fluidized beds. *Powder Technology*, 76 (1):39– 46, 1993.
- [112] G. Xu, B. Stiller, E.-U. Hartge, and J. Werther. Prospect demonstration of spray granulation in the fast fluidized bed. In *Circulating Fluidized Bed Technology VIII*. Science Press, 2005.
- [113] E. F. Yagar. Spray granulation of sucrose in the circulating fluidized bed. Master's thesis, Hamburg University of Technology, 2006.
- [114] F. A. Zenz. Find attrition in fluid beds. *Hydrocarbon Processing*, 50:103–105, 1971.
- [115] F. A. Zenz and G. H. Kelleher. Studies of attrition rates in fluid-particle systems via free fall, grid jets, and cyclone impact. *Journal of Powder and Bulk Solids Technology*, 4:13–20, 1980.
- [116] R. M. Ziff. New solution to the fragmentation equation. *Journal of Physics A: Mathematical and General*, 24:2821–2828, 1991.
- [117] R. M. Ziff and E. D. McGrady. The kinetics of cluster fragmentation and depolymerization. *Journal of Physics A: Mathematical and General*, 18:3027–3037, 1985.



10 Appendix A: Modellierung der Strömungsmechanik des Risers

10.1 Strömungsmechanikmodell

Die entsprechenden Gleichungssysteme des in Kapitel 4.3 beschriebenen Modells sind im Folgenden angegeben.

10.1.1 Basis Sub-Modelle

10.1.1.1 Minimale Fluidisationsgeschwindigkeit

In allen Zonen des Modells berechnet sich die minimale Fluidisationsgeschwindigkeit mit Gleichung (10.1) nach WEN & YU [103].

$$\text{Re}_{mf} = 33,7 \cdot \left(\sqrt{1 + 3,6 \cdot 10^{-5} \cdot Ar} - 1 \right) \quad (10.1)$$

$$Ar = g \cdot \frac{d_p^3}{\nu^2} \cdot \frac{(\rho_s - \rho_g)}{\rho_g} \quad (10.2)$$

$$\text{Re}_{mf} = \frac{u \cdot d_p}{\nu} \quad (10.3)$$

mit der auf den leeren Rohrquerschnitt bezogenen Wirbelgeschwindigkeit u

10.1.1.2 Austragsgeschwindigkeit

Die Austragsgeschwindigkeit für ein kugelförmiges Partikel mit dem Durchmesser d_i in Erdschwerefeld berechnet sich zu.

$$u_{t,i} = \sqrt{\frac{4}{3 \cdot c_w} \cdot \frac{\rho_s}{\rho_g} \cdot d_i \cdot \left(\frac{\rho_s - \rho_f}{\rho_s} \right) \cdot g} \quad (10.4)$$

Der Widerstandskoeffizient c_w für kugelförmige Partikel und Reynoldszahlen zwischen 0 und $2 \cdot 10^5$ ergibt sich zu (KASKAS [44] and BRAUER [10]).

$$c_w = \frac{24}{\text{Re}_t} + \frac{4}{\sqrt{\text{Re}_t}} + 0,4 \quad (10.5)$$

Die Gleichungen (10.4) bis (10.6) werden durch Fixpunkt-Iteration gelöst.

$$\text{Re}_i = \frac{u_{t,i} \cdot d_i}{\nu} \quad (10.6)$$

10.1.2 Dichte Bodenzone

10.1.2.1 Strömungsprofil nach Werther & Wein

Das eindimensionale Strömungsmodell von WERTHER & WEIN [108] wurde zur Berechnung des Vertikalverlaufs der Feststoffvolumenkonzentration in der dichten Bodenzone ausgewählt. In der dichten Bodenzone wird demnach eine blasenbildende Wirbelschicht angenommen. Die Strömung wird in Suspensionsphase und Blasenphase aufgeteilt. Blasengas und Suspensionsgas fließen aufwärts. Die von der Höhe über dem Verteilerboden abhängige Blasenauftiegeschwindigkeit, die Blasengröße, der Blasenvolumenanteil und die Feststoffvolumenkonzentration in der Suspensionsphase werden berechnet.

Nach WERTHER & WEIN [108] ist die Feststoffvolumenkonzentration in der Suspensionsphase proportional zur Feststoffvolumenkonzentration im Lockerungspunkt.

$$c_{v,d} = \left(1 - 0,14 \cdot \text{Re}_p^{0,4} \cdot \text{Ar}^{-0,13}\right) \cdot c_{v,mf} \quad (10.7)$$

$$\text{Re}_p = (u - u_{mf}) \cdot \frac{d_p}{\nu} \quad (10.8)$$

$$\varepsilon_b = \frac{\dot{V}_b}{u_b} \quad (10.9)$$

Der sichtbare Blasenvolumenstrom \dot{V}_b errechnet sich aus:

$$\dot{V}_b = \varphi \cdot (u - u_{mf}) \quad (10.10)$$

$$\varphi = 1,45 \cdot \text{Ar}^{-0,18} \quad 10^2 < \text{Ar} < 10^4 \quad (10.11)$$

Die mittlere Feststoffvolumenkonzentration in der Bodenzone ist:

$$c_v = (1 - \varepsilon_b) \cdot c_{v,d} \quad (10.12)$$

Die Blasenauftstiegsgeschwindigkeit u_b ergibt sich nach HILLIGARDT & WERTHER [31] zu:

$$u_b = \dot{V}_b + 0,71 \cdot \varrho \cdot \sqrt{g \cdot d_b} \quad (10.13)$$

mit

$$\varrho = \begin{cases} 0,63 & d_t < 0,1m \\ 2,0 \cdot \sqrt{d_t} & 0,1 \leq d_t \leq 1,0m \\ 2,0 & d_t > 1,0m \end{cases} \quad (10.14)$$

wobei der Durchmesser d_t des zylindrischen Wirbelschichtgefäßes in m einzusetzen ist.

Basierend auf früheren Arbeiten von CLIFT & GRACE [19, 18] über die Blasenkoaleszenz in Wirbelschichten entwickelte WERTHER [104] ein Modell für Blasenwachstum in blasenbildenden Wirbelschichten. In HILLIGARDT & WERTHER [31] wurde dies für kombiniertes Auftreten von Koaleszenz und Blasenzerfall („Splitting“) erweitert.

Der letzteren Arbeit folgend ist das Wachstum des Durchmessers der der Blase volumengleichen Kugel d_b mit der Höhe h für Geldart A und B Material in (10.15) wiedergegeben. Der erste Term beschreibt das Wachstum durch Koaleszenz, der zweite die Durchmesserabnahme durch Blasenzerfall.

$$\begin{aligned} \frac{d(d_b)}{dh} &= \left(\frac{2\varepsilon_b}{9\pi} \right)^{1/3} - \frac{d_b}{3 \cdot \lambda \cdot u_b} \\ &= \left(\frac{2}{9\pi} \cdot \frac{\dot{V}_b}{(\dot{V}_b + 0,71 \cdot \varrho \cdot \sqrt{g \cdot d_b})} \right)^{1/3} - \frac{d_b}{3 \cdot \lambda \cdot (\dot{V}_b + 0,71 \cdot \varrho \cdot \sqrt{g \cdot d_b})} \end{aligned} \quad (10.15)$$

Hierbei ist λ die mittlere Lebenszeit einer Blase mit Durchmesser d_b nach HILLIGARDT & WERTHER [31]

$$\lambda = 280 \cdot \frac{u_{mf}}{g} \quad (10.16)$$

Mit der Leerrohrgeschwindigkeit u ergibt sich der Volumenstrom \dot{V}_0 durch die Öffnung einer einzelnen Verteilerdüse des mit n_0 Öffnungen ausgestatteten Gasverteilers.

$$\dot{V}_0 = \frac{u \cdot A_t}{n_0} \quad (10.17)$$

Entsprechend DAVIDSON & HARRISON [20] führt dies zur Entstehung von Blasen mit einem Anfangsdurchmesser einer volumengleichen Kugel von:

$$d_{b,0} = d_b(h=0) = 1,3 \cdot \left(\frac{\dot{V}_0^2}{g} \right)^{0,2} \quad (10.18)$$

10.1.2.2 Schlupfgeschwindigkeit nach Richardson & Zaki

Die Schlupfgeschwindigkeit ist definiert als:

$$u_{sl} = v_g - v_s \quad (10.19)$$

Die Feststoffgeschwindigkeit bei stationärer Wirbelschicht ist Null. Damit ist die Schlupfgeschwindigkeit hier gleich der Zwischenkorngeschwindigkeit des Fluids:

$$u_{sl} = \frac{u}{\varepsilon} \quad (10.20)$$

Nach RICHARDSON-ZAKI [78] gilt:

$$\frac{u}{u_t} = \varepsilon^{4,65} \quad (10.21)$$

Damit folgt

$$u_{sl} = \frac{u_t \cdot \varepsilon^{4,65}}{\varepsilon} \quad (10.22)$$

bzw.

$$u_{sl} = u_t \cdot \varepsilon^{3,65} \quad (10.23)$$

10.1.3 Dünne obere Zone der ZWS

Das von PUGSLEY [67] entwickelte Modell für die obere dünne Zone nimmt einen Riser an, der axial aus zwei Zonen besteht, einer Beschleunigungszone und einer sich daran anschließenden voll ausgebildeten dünnen oberen Zone, die bis zum Ende des Risers reicht. Als Randbedingung wird unterhalb der Beschleunigungszone eine dichte Bodenzonzone ist die Höhe der dichten Zone mit Null angenommen, also nur als mathematische Randbedingung definiert. In der Beschleunigungszone werden die aus dem Fallrohr rezyklierten Partikel von unten eingespeist und bis zu einer konstanten vertikalen Geschwindigkeit beschleunigt. Die voll ausgebildete dünne obere Zone hat über die Höhe konstante Feststoff- und Gasgeschwindigkeit, Massenströme, Feststoffsuspensionsdichte und Leervolumenanteile. Das Modell überlagert diesen Mittelwerten eine Verteilung über den Radius, es generiert eine Kern-Ringströmung für die dünne obere Zone, bei der nur in der Kernzone ein aufwärtsgerichteter Nettogasstrom eingestellt wird. Die Gasgeschwindigkeit in der Ringströmung ist definitionsgemäß 0.

10.1.3.1 Die voll ausgebildete obere Zone

Der durch (10.24) definierte Schlupf-Faktor Ψ wird hier nach PUGSLEY [67] aus einer empirischen Korrelation von MATSEN [59] angenähert:

$$\Psi = 1 + \frac{5,6}{Fr^2} + 0,47 \cdot Fr_t^{0,41} \quad (10.24)$$

mit der Froude-Zahl:

$$Fr_t = \frac{u_0}{\sqrt{g \cdot d_t}} \quad (10.25)$$

und der Partikel-Froude-Zahl:

$$Fr = \frac{u_t}{\sqrt{g \cdot d_p}} \quad (10.26)$$

Mittlerer Leervolumenanteil entsprechend PERRY & GREEN [67]

$$\varepsilon = \frac{u_0 \cdot \rho_s}{G_s \cdot \Psi + u_0 \cdot \rho_s} \quad (10.27)$$

Querschnittsgemittelte Partikelgeschwindigkeit

$$v_p = \frac{G_s}{\rho_s \cdot (1 - \varepsilon)} \quad (10.28)$$

Leerrohrgeschwindigkeit in der Kernzone (Querschnittsfläche A_c , Radius r_c)

$$u_{g,c} = \frac{u_0}{\Phi} \quad \text{mit} \quad \Phi = \frac{A_c}{A_t} = \left(\frac{r_c}{r_t} \right)^2 \quad (10.29)$$

Über den Radius verteilte Größen

Der radial verteilte Feststofffluss ist nach ROHDES ET AL. [77] definiert als

$$G_r = G \cdot \left(a \cdot \left[1 - \left(\frac{r_c}{r_t} \right)^m \right] + 1 - \frac{m \cdot a}{m + 2} \right) \quad (10.30)$$

mit G_r als radial verteilten Feststofffluss, G als mittlerem Feststofffluss, r_t Riserradius und r_c „Core“-Zonen Radius. Mit $m = 5$ nach PUGSLEY [67] ergibt sich

$$G_r = G \cdot \left(a \cdot \left[\frac{2}{7} - \left(\frac{r_c}{r_t} \right)^5 \right] + 1 \right)$$

Parameter a ist gegeben durch

$$a = \left[\left(\frac{r_c}{r_t} \right)^m - \frac{2}{2 + m} \right]^{-1} \quad (10.31)$$

Mit $m = 5$ ergibt sich

$$a = \left[\left(\frac{r_c}{r_t} \right)^5 - \frac{2}{7} \right]^{-1}$$

Radial verteilter Leerraumanteil

$$\varepsilon_r = 1 - \frac{G_r}{\rho_s \cdot v_{p,r}} \quad (10.32)$$

Radial verteilte Partikelgeschwindigkeit

$$v_{p,r} = \frac{r^2}{4p} + v_{p,r@0} \quad (10.33)$$

Für die Partikelgeschwindigkeit gilt auf der Rotationsachse:

$$v_{p,r=0} = \frac{3}{2} \frac{u_{g,c}}{\varepsilon_c} - v_t \quad (10.34)$$

Vereinfachend wird nach PUGSLEY [67] $\varepsilon_c=1$ angenommen:

$$v_{p,r=0} = \frac{3}{2} u_{g,c} - v_t \quad (10.35)$$

Um den Parameter p in Gleichung (10.33) zu berechnen, müssen 2 Punkte des radialen Profils bekannt sein:

$$v_{p,r=0} = \frac{3}{2} u_{g,c} - v_t \quad (10.36)$$

$$v_{p,r=r_c} = 0 = \frac{r_c^2}{4p} + v_{p,r=0} \Rightarrow p = \frac{r_c^2}{4 \cdot v_{p,r=0}} = \frac{r_c^2}{4 \cdot \left(\frac{3}{2} u_{g,c} - v_t \right)} \quad (10.37)$$

Damit folgt schließlich für die radiale Abhängigkeit der lokalen Partikelgeschwindigkeit

$$v_{p,r} = \left(\frac{r}{r_c} \right)^2 \cdot \left(v_t - \frac{3}{2} u_{g,c} \right)_t + \left(\frac{3}{2} u_{g,c} - v_t \right) \quad (10.38)$$

Die Scherkräftebilanz am Radius r_c ergibt sich zu:

$$\frac{2 f_i \hat{U}_{g,c}^2}{\Phi_s^{\frac{5}{2}}} + \frac{2 f_w \hat{V}_{g,c}^2}{(1 - \Phi_s)^2} = (1 - \Phi_s) \quad \text{mit } \Phi_s = \Phi \quad (10.39)$$

mit:

$$\hat{U}_{g,c}^2 = \frac{\rho_s \varepsilon_c u_{g,c}^2}{(\rho_s - \rho_g) g d_t} \quad (10.40)$$

$$\hat{V}_{p,a}^2 = \frac{\rho_s (1 - \varepsilon_a) v_{p,a}^2}{(\rho_s - \rho_g) g d_t} \quad (10.41)$$

Für die Blasius-Reibung gilt

$$f_i = \frac{0,3164}{\text{Re}^{0,25}} \quad \text{mit } \text{Re} = \frac{2r_c u_{g,c}}{v_g} \quad (10.42)$$

sowie für die Wandreibung nach REDDY & PEI [72]

$$f_w = \frac{0,046}{v_{p,a}} \quad (10.43)$$

Mit (10.39) und (10.43) ergibt sich

$$\frac{\overbrace{2f_i \hat{U}_{g,c}^2}^{\text{Term 1}}}{\Phi_s^{\frac{5}{2}}} + \frac{\overbrace{2 \cdot 0,046 \cdot \rho_s (1 - \varepsilon_c)}^{\text{Term 2}}}{(1 - \Phi_s)^2 (\rho_s - \rho_g) g d_t} \cdot v_{p,a} = (1 - \Phi_s) \quad (10.44)$$

Integration der über den Radius verteilten Größen

Gemittelter Leerraumanteil in der Kernzone

$$\varepsilon_c = \frac{1}{\pi \cdot r_c^2} \int_0^{r_c} 2\pi r \varepsilon_r dr = \frac{2}{r_c^2} \int_0^{r_c} r \varepsilon_r dr \quad (10.45)$$

Gemittelter Leerraumanteil in der Ringzone

$$\varepsilon_a = \frac{\Phi_s \varepsilon_c - \varepsilon}{\Phi_s - 1} \quad (10.46)$$

Gemittelter Feststofffluss in der Kernzone

$$G_c = \frac{1}{\pi \cdot r_c^2} \int_0^{r_c} 2\pi r G_r dr = \frac{2}{r_c^2} \int_0^{r_c} r G_r dr \quad (10.47)$$

Gemittelte Feststoffgeschwindigkeit in der Kernzone

$$V_{p,c} = \frac{G_c}{\rho_s (1 - \varepsilon_c) \Phi_s} \quad (10.48)$$

Gemittelter Feststofffluss in der Ringzone

$$G_a = G_c - G_s \quad (10.49)$$

Gemittelte Feststoffgeschwindigkeit in der Ringzone

$$V_{p,a} = \frac{G_a}{\rho_s (1 - \varepsilon_a) (1 - \Phi_s)} \quad (10.50)$$

Um die Werte der voll ausgebildeten oberen dünnen Zone zu bestimmen, wird r_c mittels eines Bisektions-Algorithmus so lange variiert, bis v_{pa} aus Gleichung (10.44) und (10.50) gleich sind, dann erfolgt die Berechnung aller weiteren Größen.

10.1.3.2 Beschleunigungszone und Kopplung an die dünne obere Zone

Das hydrodynamische Modell der Beschleunigungszone geht davon aus, dass die Kern-Ring-Struktur mit dem Radius r_c aus der voll ausgebildeten dünnen Zone auch in der Beschleunigungszone existiert.

Die Partikel werden beschleunigt, bis sie die Geschwindigkeit der voll ausgebildeten dünnen Zone erreichen. Hierfür wird eine Kräftebilanz am einzelnen Partikel aufgestellt.

Kräftebilanz am einzelnen Partikel

$$\frac{dv'_{sl}}{dt} = \frac{3}{4} C_w \frac{\rho_g \cdot v'(t)_{sl}^2}{d_p \cdot \rho_s} + \frac{g(\rho_g - \rho_s)}{\rho_s} \quad (10.51)$$

$$v'_{sl}(t) = \frac{u_{g,c}}{\varepsilon'_c(t)} - v_{p,c}(t) \quad (10.52)$$

Mit dem Parameter K für die voll beschleunigte Zone

$$K = \frac{4 \cdot g \cdot (\rho_s - \rho_g) d_p \cdot \text{Re}_p^{0,6}}{3 \cdot \rho_g \cdot \left(\frac{u_c}{\varepsilon'_c} - v'_{p,c} \right)^2} \quad (10.53)$$

$$K = \frac{4}{3} \frac{g \cdot (\rho_s - \rho_g) d_p^{1,6}}{\rho_g^{1,6} \cdot \eta_g^{0,6} \cdot \left(\frac{u_c}{\varepsilon'_c} - v'_{p,c} \right)^{1,4}}$$

Leerraumvolumenanteil der Ringzone

$$\varepsilon'_a = \varepsilon'_a(z=0) + \left(\frac{\varepsilon'_a(z=L_{acc}) - \varepsilon'_a(z=0)}{L_{acc}} \right) \cdot z \quad (10.54)$$

$$\varepsilon'_a(z=0) = \varepsilon'_c(z=0) = \varepsilon_b$$

Abwärts gerichteter Partikelfluss in der Ringzone der Beschleunigungszone

$$G'_a = v'_{p,a} \cdot \rho_s \cdot (1 - \varepsilon'_a) \quad (10.55)$$

Aufwärts gerichteter Partikelfluss in der Kernzone der Beschleunigungszone

$$G'_c = v'_{p,c} \cdot \rho_s \cdot (1 - \varepsilon'_c) = \frac{G_s + G'_a \cdot (1 - \Phi_s)}{\Phi_s} \quad (10.56)$$

Mittlerer Leervolumenanteil in der Beschleunigungszone

$$\varepsilon' = (1 - \Phi_s) \cdot \varepsilon'_a + \Phi_s \cdot \varepsilon'_c \quad (10.57)$$

Axiale Position entsprechend der Verweilzeit

$$v'_{p,c} = \frac{dh}{dt} \quad \text{bzw.} \quad (10.58)$$

$$h = \int_0^t v'_{p,c} dt$$

Die Länge der Beschleunigungszone L_{acc} wird geschätzt (ohne bekannten Schätzwert wird mit $L_{acc}=0$ gestartet) und die Differentialgleichung (10.51) gelöst. Sind die Kernzonengeschwindigkeiten am Ende der Beschleunigungszone gleich der der voll entwickelten dünnen Zone wird die Berechnung gestoppt. Anderenfalls erfolgt eine Iteration mit verlängerter Beschleunigungszone (bis maximal zum Erreichen der Riserhöhe).

Das axiale Druckprofil über den Riser kann mit den Gleichungen (10.59) bis (10.63) berechnet werden.

Druckverlust über Riserhöhe

$$\left(\frac{dP}{dh} \right)_t = \left(\frac{dP}{dh} \right)_s + \left(\frac{dP}{dh} \right)_{acc} + \left(\frac{dP}{dh} \right)_{fs} + \left(\frac{dP}{dh} \right)_{fg} \quad (10.59)$$

Hydrostatik:

$$\left(\frac{dP}{dh} \right)_s = \rho_s \cdot g \cdot (1 - \varepsilon) \quad (10.60)$$

Beschleunigung

$$\left(\frac{dP}{dh} \right)_{acc} = \frac{\rho_s \cdot (1 - \varepsilon_c) \cdot \Delta v_{p,c}^2}{2\Delta h} \quad (10.61)$$

Feststoffreibung

$$\left(\frac{dP}{dh} \right)_{fs} = \frac{f_g \cdot \rho_g \cdot u_{g,c}^2}{d_t \cdot \varepsilon_c} \quad (10.62)$$

Gasreibung

$$\left(\frac{dP}{dh}\right)_{fg} = \frac{f_s \cdot \rho_s \cdot (1 - \varepsilon_c) \cdot v_{p,c}^2}{d_t} \quad (10.63)$$

10.1.4 Kopplung und Randbedingungen

Die Kopplung zwischen dichter Bodenzone und der Beschleunigungszone (als Bestandteil des Modells von Pugsley) erfolgt entsprechend der Randbedingungen (10.64). es gilt an der Stelle $h=h_B$

$$\begin{aligned} c_{v,bed} &= c_{v,freeboard} \\ v_{g,bed} &= v_{g,freeboard} \\ \varepsilon_{bed} &= \varepsilon_{freeboard} \end{aligned} \quad (10.64)$$

Als Eingangsparameter für das Modell gehen nur die Risergeometrie, Materialeigenschaften, Temperatur, Druck am Riserausgang, Leerrohrgeschwindigkeiten, Bettmasse im Riser und die Feststoffzirkulationsrate G_s in das System ein.

Die Höhe der dichten Bodenzone h_B wird mittels eines Standardbisektionsverfahrens iterativ berechnet. Nach einem geschätzten Startwert für h_B wird Gleichung (10.65) gelöst und iteriert, bis die Gleichung erfüllt ist.

$$m_s = \int_0^{h_B} \rho_s \cdot c_{v,bed}(h) A_t dh + \int_{h_B}^{h_t} \rho_s \cdot c_{v,freeboard}(h) A_t dh \quad (10.65)$$

worin m_s die gesamte Feststoffmasse im Riser bezeichnet. $C_{v,B}$ und $c_{v,freeboard}$ sind die höhenabhängigen, querschnittsgemittelten Feststoffvolumenkonzentrationen in der dichten Bodenzone und im Freeboard, wobei letztere aus der Beschleunigungszone und der dann anschließenden voll ausgebildeten dünnen oberen Zone besteht.

10.1.5 Numerische Lösung des Modells

Das Modell wurde entsprechend den vorgestellten Gleichungen in Matlab implementiert. Ein Ablaufdiagramm des Programmflusses ist in Abb. 10.1 wiedergegeben.

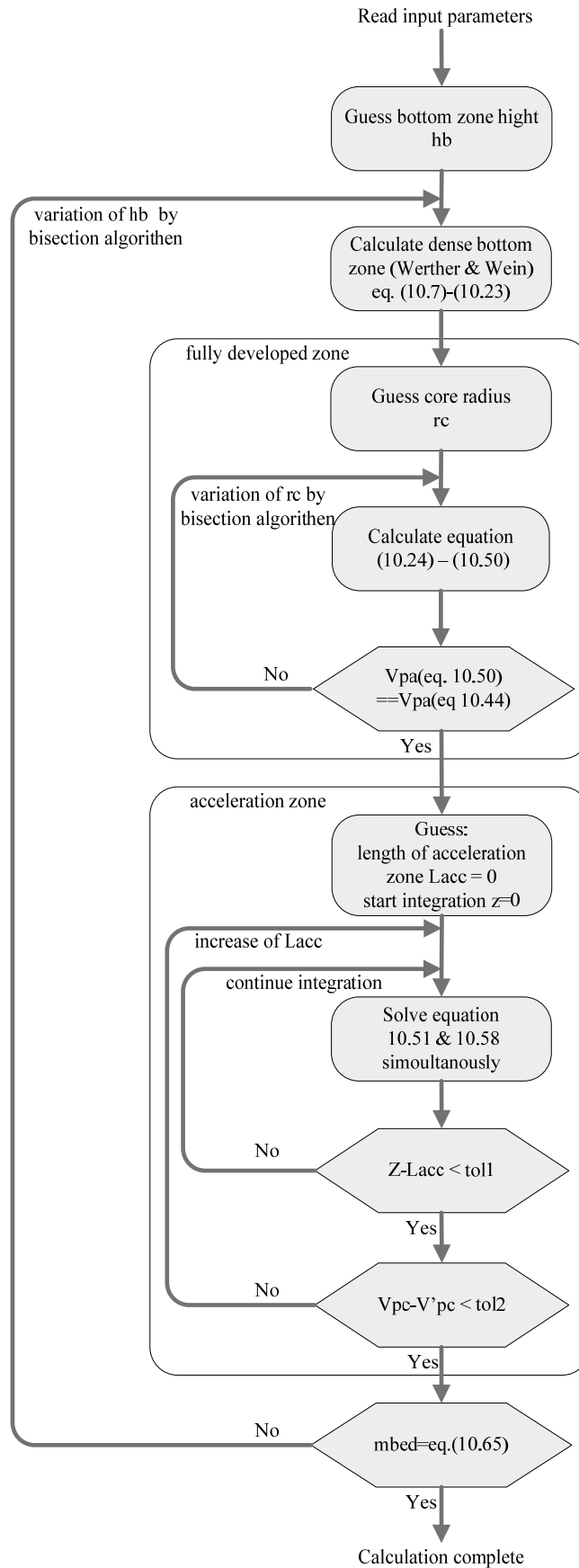


Abb. 10.1: Skizze des Lösungsalgorithmus des fluiddynamischen Modells

10.1.6 Ausgewählte Ergebnisse

Exemplarisch sind in Abb. 10.3 die zweidimensionalen Felder einer Lösung aus Kapitel 4.2.1 Abb. 4.3 für den Fall von $100\mu\text{m}$ Partikeln, $12,5\text{ kg}$ Anlageninventar ($4,5\text{ kg}$ im Riser, $G_s=32\text{ kg/m}^2\text{s}$), und einer Leerrohrgeschwindigkeit von $u_{\text{gas}}=4,1\text{ m/s}$ bei 80°C und 1 bar(a) wiedergegeben.

Das Modell berechnet in einem ersten Schritt die mittleren Größen in den verschiedenen Zonen entlang der Höhe h über dem Verteilerboden, die Berechnung erfolgt eindimensional. Hierbei besteht die Bodenzone aus einem Bilanzraum, die Übergangszone sowie die dünne obere Zone jeweils aus Kern- und Ringraum. Exemplarisch ist die mittlere Feststoffvolumenkonzentration über der Höhe in Abb. 10.2 aufgetragen. Dies entspricht den aus den Druckverlustmessungen gewonnenen Werten.

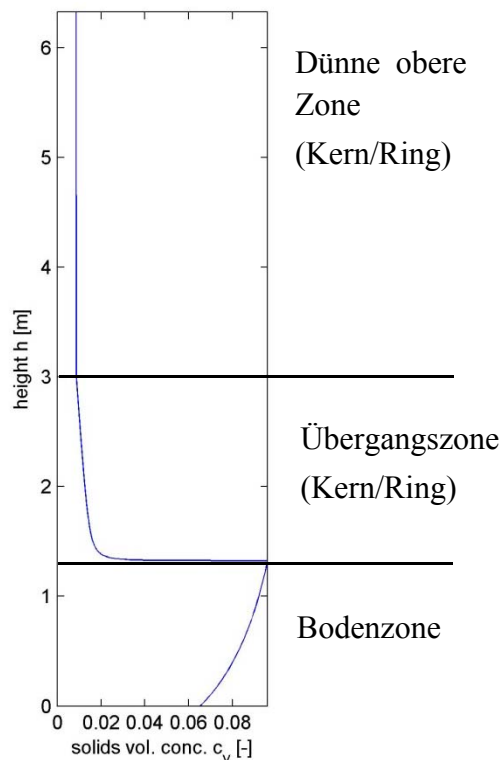


Abb. 10.2: Mittlere Feststoffvolumenkonzentration im ZWS-Granulator (Riser.) $d_p=300\mu\text{m}$, $12,5\text{ kg}$ Inventar ($4,5\text{ kg}$ in Riser), $u_{\text{gas}}=4,1\text{ m/s}$, 80°C 1 bar(a)

In einem zweiten Schritt erfolgt dann eine Berechnung der Größen entlang des Radius auf der jeweiligen Höhe in der oberen dünnen Zone, entsprechend eines parabolischen Ansatzes. Die Werte der Bodenzone werden als Mittelwert auf der jeweiligen Höhe über dem Verteilerboden dargestellt, die Werte in der Übergangszone werden als Mittelwert auf der jeweiligen Höhe für die Kernzone und die Ringzone dargestellt.

Die in Abb. 10.3 dargestellten Felder zeigen die entsprechenden Ergebnisse für Feststoffvolumenkonzentration sowie Feststoff- und Gasgeschwindigkeiten. Entsprechend des Modellansatzes ergeben sich Unstetigkeiten an den jeweiligen

Zonenübergängen in der Vertikalen. Die integralen Massenströme über die jeweilige Querschnittsfläche des Risers bleiben jedoch erhalten. Vernachlässigt man diesen Punkt des jeweiligen Zonenübergangs, so ist das Modell hinreichend genau, um das Strömungsprofil des Risers abzubilden. Insbesondere lassen sich die Größen in der jeweiligen Sprühzone sinnvoll abschätzen.

Das Modell bildet die Kernringströmung im Bereich der oberen dünnen Zone sowie der Beschleunigungszone ab. Die Gasgeschwindigkeiten in der Ringzone sind entsprechend des Modellansatzes auf Null herabgesetzt, die Feststoffgeschwindigkeiten negativ, sodass auch die interne Feststoffzirkulation im Riser abgebildet wird. Im Bereich der Bodenzone ergibt sich die Feststoffvolumenkonzentration zu ca.9% im Bereich der oberen dünnen Kernzone liegt sie unterhalb von 1%. Die Gas- und Feststoffgeschwindigkeiten erreichen hier lokal Werte von knapp über 6 m/s, wobei die mittlere Leerrohrgeschwindigkeit 4,1 m/s beträgt.

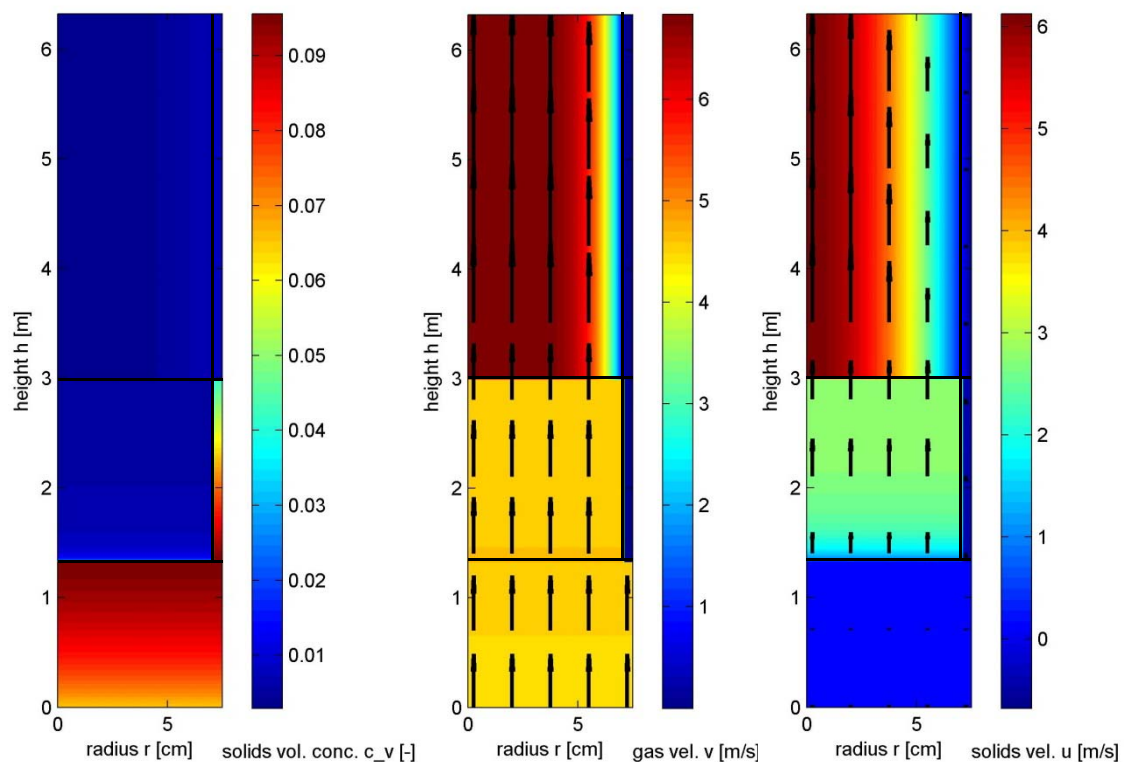


Abb. 10.3: Feststoffvolumenkonzentration, Gasgeschwindigkeit und Feststoffgeschwindigkeit im ZWS – Granulator (Riser) $d_p=100\mu\text{m}$, 12,5 kg Inventar, $u_{\text{gas}}=4.1$ m/s, 80°C 1 bar(a)



10.2 Verdunstung des Wasseranteils am Tropfen

Der temperatur- und druckabhängige Diffusionskoeffizient für Wasser in Luft berechnet sich wie folgt (SCHIRMER [85]):

$$\frac{D_G}{D_0} = \frac{p_0}{p} \cdot \left(\frac{T_M}{T_0} \right)^{1,81} \quad (10.66)$$

mit

$$D_0 = D_{H_2O/Luft} = 26 \cdot 10^{-6} \text{ [m}^2/\text{s]} \text{ für } T_0=0^\circ\text{C und } P_0=1\text{bar} \quad (10.67)$$

und der mittleren Grenzschichttemperatur T_M

$$T_M = \frac{1}{2} \cdot (T_G + T_{H_2O}) \quad (10.68)$$

Die dimensionslosen Kennzahlen für Wärme und Stofftransport berechnen sich zu:

Nusselt-Zahl

$$Nu = 2 + 0,6 \cdot Re^{0,5} \cdot Pr^{1/3} \quad Re < 10^6 \quad 0,7 < Pr < 1000 \quad (10.69)$$

Sherwood-Zahl nach ROWE [80]

$$Sh = 2 + 0,72 \cdot Re^{0,5} \cdot Sc^{1/3} \quad \text{mit } Sc = \frac{\nu_L}{D_L} \quad (10.70)$$

Mit den Definition für Nusselt-, Sherwood-, Prandtl- und Schmidt-Zahl (10.71)

$$Nu = \frac{\alpha \cdot d}{\lambda}; \quad Sh = \frac{\beta \cdot d}{D}; \quad Pr = \frac{\eta \cdot c}{\lambda}; \quad Sc = \frac{\eta}{\rho \cdot D} = \frac{\nu}{D} \quad (10.71)$$

ergibt sich für den Stofftransportkoeffizienten

$$\beta = \frac{D}{d} \left(2 + 0,72 \cdot Re^{0,5} \cdot Sc^{1/3} \right) \quad (10.72)$$

mit $Re = \omega d / \nu$ und dem Tropfendurchmesser d sowie der Anströmgeschwindigkeit ω .

Abb. 10.4 zeigt schematisch die Konzentrationsverläufe an der Phasengrenze unter den getroffenen Annahmen

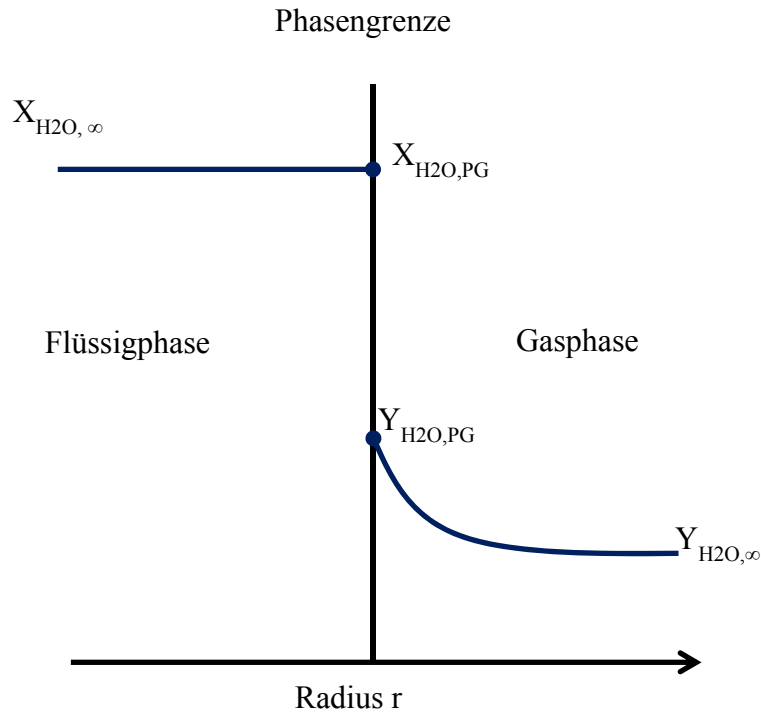


Abb. 10.4: Phasengrenze am Tropfen

Die Berechnung der Satttdampfdrücke erfolgt über die Antoine-Gleichung mit

$$p_o = 133,322 \cdot \exp\left(A - \frac{B}{(T + 273,15) + C}\right) \quad (10.73)$$

$$A = 18,3036; \quad B = 3816,44; \quad C = -46,13$$

Die Zahlenwerte für A, B und C sind dem VDI-WÄRMEATLAS [100] entnommen.

Der Wasserdampfmassenstrom für kleine Partialdruckgradienten ergibt sich zu

$$\dot{m}_{H_2O} = \beta \cdot \frac{\hat{M}_{H_2O}}{\hat{R}} \left(\frac{p_{H_2O,PG}}{T_{PG}} - \frac{p_{H_2O,\infty}}{T_{gH_2O,\infty}} \right)$$

mit den Partialdampfdrücken von Wasser p_{H_2O}

der Molmasse von Wasser \hat{M}_{H_2O}

der allgemeinen Gaskonstante \hat{R}

dem Stoffübergangskoeffizienten β

mit den Indices für die Phasengrenze PG bzw. das Kontinuum ∞

$$p_{H_2O,PG} = p_{H_2O}^0(T_{H_2O,\infty}) \quad p_{H_2O,gas} = \varphi_g \cdot p_{H_2O}^0(T_{g,\infty})$$

Der Massenstrom verdampfenden Wassers ist gleich der Abnahme der Topfenmasse

$$-\dot{M}_{ab} = \frac{\partial M}{\partial t} = \frac{\partial M}{\partial d} \frac{\partial d}{\partial t} \quad (10.75)$$

Mit der Oberfläche A des Tropfens ergibt sich

$$\dot{M}_{ab} = \dot{m} \cdot A = \dot{m} \cdot \pi \cdot d^2 \quad (10.76)$$

Und der Masse M des Tropfens

$$M = \frac{1}{6} \cdot d^3 \cdot \pi \cdot \rho_{H_2O} \quad (10.77)$$

Aus der Ableitung der Tropfenmasse nach dem Durchmesser ergibt sich

$$\frac{\partial M}{\partial d} = \frac{1}{6} \cdot 3 \cdot d^2 \cdot \pi \cdot \rho_{H_2O} \quad (10.78)$$

Und aus der Kombination von (10.76) und (10.78) mit (10.75)

$$\dot{m} \cdot \pi \cdot d^2 = -\frac{1}{2} \cdot d^2 \cdot \pi \cdot \rho_{H_2O,l} \frac{\partial d}{\partial t} \quad (10.79)$$

ergibt sich schließlich:

$$\frac{\partial d}{\partial t} = \frac{2\beta}{\rho_{H_2O,l}} \cdot \frac{\hat{M}_{H_2O}}{\hat{R}} \left(\frac{p_{H_2O,\infty}}{T_{H_2O,\infty}} - \frac{p_{H_2O,PG}}{T_{PG}} \right) \quad (10.80)$$

Die Austrittsgeschwindigkeiten von Gas und Flüssigkeit an der Düse können über die Düsengeometrie und die Gas- und Flüssigkeitsmassenströme berechnet werden. Unter Standardbetriebsbedingungen mit einem Saccharoselösungsstrom von $\dot{M} = 80 \text{ g/min} = 0,00133 \text{ kg/s}$ bei einer Dichte $\rho_{sucsol,60\%wt} = 1252 \text{ kg/m}^3$ sowie einem Dispergiertgasstrom von 3000Nl/h ergeben sich mit einem inneren Düsendurchmesser (Liquid) von $d_i = 0,4 \text{ mm}$ sowie einem Luftspalt mit innerem Durchmesser $d_i = 1,27 \text{ mm}$ und äußerem Durchmesser $d_a = 2,0 \text{ mm}$ Flüssigkeits- und Gas-Geschwindigkeiten von 8,5 bzw. 445 m/s.

$$A = \frac{\pi}{4} d_i^2 \quad A_2 = \frac{\pi}{4} (d_a - d_i) \quad (10.81)$$

$$v_{Nozzle,L} = \frac{\dot{M}}{\rho_{sucsol,60\%wt} \cdot A} = 8,47 \text{ m/s} \quad (10.82)$$

$$v_{Nozzle,G} = \frac{\dot{V}}{A_2} = \frac{3 \text{ m}^3 / \text{h}}{1,87482 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2} = 444 \text{ m/s} \quad (10.83)$$

Mit einer einfachen Impulsbilanz ergibt sich eine Austrittsgeschwindigkeit von ca. 200 m/s für die Tropfen.

$$v_{Nozzle,Drops} = \frac{v_{Nozzle,L} \cdot \dot{m}_{suc} + v_{Nozzle,G} \cdot \dot{m}_{air}}{\dot{m}_{suc} + \dot{m}_{air}} = 201 \text{ m/s} \quad (10.84)$$

Die benötigte Energie zur spezifischen Oberflächenvergrößerung bzw. zur Tropfengenerierung (10.85) kann nach TROESSCH [94] vernachlässigt werden. Der von ihm durchgeführte Vergleich mit der kinetischen Energie der Tropfen zeigt, dass die Energie zur Oberflächenvergrößerung ca. 10^4 mal kleiner als die kinetische Energie ist.

TROESCH hat für die Energie E_0 zur Tropfengenerierung abgeleitet:

$$\frac{E_0}{V_0} = \frac{O_0 \cdot \delta}{V_0} = \frac{\pi \cdot d_{\max}^2 \cdot \delta}{\frac{\pi}{6} \cdot d_{\max}^3} \cdot \left[\frac{Ei(-\tilde{\beta})}{e^{-\tilde{\beta}} + -\tilde{\beta} \cdot Ei(-\tilde{\beta})} \right] = \frac{6 \cdot \delta}{d_{\max}} \cdot \left[\frac{-Ei(-\tilde{\beta})}{e^{-\tilde{\beta}} + \tilde{\beta} \cdot Ei(-\tilde{\beta})} \right] = \frac{6\delta}{d_s} \quad (10.85)$$

mit:

$Ei(-\tilde{\beta})$ = Integraler Logarithmus von $\tilde{\beta}$

$\tilde{\beta}$ = Austauschparameter

E_0 = Energie

V_0 = Volumen des Tropfens

O_0 = Oberfläche des Tropfens

δ = Oberflächenspannung

d_s = Sauterdurchmesser der Tropfengrößenverteilung

d_{\max} = maximaler Tropfendurchmesser

Die Oberflächenspannung von Wasser bei 25 °C ist nach [79]:

$$\delta = 0,072 \text{ [N/m]} \quad (10.86)$$

Um die Beschleunigung bzw. die aktuelle Geschwindigkeit und die Position des Tropfens im ZWS-Riser zu berechnen, wird die Kräftebilanz am Einzeltropfen aufgestellt. Im Folgenden werden alle Kräfte und Geschwindigkeiten nach oben positiv angesetzt. Für die resultierende Kraft F ergibt sich mit der Gewichtskraft F_g , der Widerstandskraft F_w und der Auftriebskraft F_a :

$$F = F_w + F_g + F_a \quad (10.87)$$

Mit dem Tropfenvolumen V , dem Tropfendurchmesser d und der Anströmgeschwindigkeit u folgt:

$$F_g = \rho_l \cdot g \cdot V = \rho_l \cdot g \cdot \frac{\pi}{6} \cdot d^3 \quad (10.88)$$

$$F_a = \rho_g \cdot g \cdot V = -\rho_g \cdot g \cdot \frac{\pi}{6} \cdot d^3 \quad (10.89)$$

mit $g = -9,81 \text{ [m/s}^2\text{]}$

$$F_w = \frac{\pi}{4} \cdot d_p^2 \cdot c_w \cdot \frac{\rho_f}{2} (v - u_{gas}) \cdot |v - u_{gas}| \quad (10.90)$$

$$\text{mit: } c_w = \frac{21}{\text{Re}} + \frac{6}{\sqrt{\text{Re}}} + 0,28 \text{ nach KÜRTEEN ET AL. [49] und } \text{Re} = \frac{|v - u_{gas}| \cdot d}{\nu}$$

Für die Beschleunigung a des Partikels folgt

$$\begin{aligned} a &= \frac{du}{dt} = \frac{F}{M} = \frac{F}{\rho_{H_2O,L} \frac{\pi}{6} d^3} \\ &= \frac{-\frac{\pi}{4} \cdot d^2 \cdot c_w \cdot \frac{\rho_f}{2} (v - u_{gas}) \cdot |v - u_{gas}| + (\rho_l - \rho_g) \cdot g \cdot \frac{\pi}{6} \cdot d^3}{\rho_{H_2O,L} \frac{\pi}{6} d^3} \end{aligned} \quad (10.91)$$

Für die momentane Tropfengeschwindigkeit v zur Zeit T ergibt sich

$$\begin{aligned} v(t) &= \int_0^T a \, dt = \int_0^T \frac{F}{M} \, dt \\ &= \int_0^T -\frac{3}{4} c_w (\text{Re}(v - u_{gas}, t)) \cdot \frac{\rho_f}{\rho_l} \frac{1}{d(t)} (v(t) - u_{gas}) \cdot |v(t) - u_{gas}| + \frac{\rho_l - \rho_g}{\rho_l} \cdot g \, dt \end{aligned} \quad (10.92)$$

Die Gleichung (10.92) muss simultan mit Gleichung (10.80) gelöst werden. Der entsprechende Gleichungssatz wurde in Matlab implementiert und gelöst.

11 Appendix B: Abrieb in Wirbelschichten

Die hier dargestellten Ausführungen zum Abrieb in Wirbelschichten erfolgen in Anlehnung an PÜTTMANN [66].

PELL UND WILLIAMS [64] schlugen die Zyklone oder die Düsenstrahlen als dominierenden Effekt der Kornzerkleinerung in Wirbelschichtsystem vor. Sie argumentierten, dass die Gasgeschwindigkeiten in diesen Zonen wesentlich höher als die im Bereich der blasenbildenden Wirbelschicht sind. Als Referenzwerte für übliche technische Wirbelschichten wurden Gasgeschwindigkeiten von 1 m/s im Wirbelbett, 30 m/s in den Strahlen des Lochbodens und 20 m/s im Einlauf des Primärzyklons angegeben.

Die Gasstrahlen mit hohen Geschwindigkeiten an technischen Loch- bzw. Düsenböden beschleunigen die Partikel lokal auf ähnlich hohe Geschwindigkeiten. Diese Partikel stoßen mit langsameren Partikeln des blasenbildenden Bereichs in der Grenzschicht des Gasstrahls zusammen. Dies kann zu Abrieb oder Bruch führen.

Im blasenbildenden Bereich der Wirbelschicht erfolgen die Partikelpartikelstöße mit wesentlich niedrigeren Relativgeschwindigkeiten der Partikel zueinander. Die Blasenauftiegs geschwindigkeiten liegen hier im Bereich von 1 m/s. Aufgrund der niedrigen kinetischen Energien bei diesen Partikelstößen liegt hier üblicherweise ausschließlich Abrieb vor.

In Gaszyklonen dominieren Partikelwandkontakte die Kornzerkleinerung. REPPENHAGEN [75] untersuchte Erosionsspuren an Zyklonwänden. Er konnte zeigen, dass im Zyklon bei Betriebszuständen mit reinem Partikelabrieb Erosion nur im Übergangsbereich des Zykloneinlaufes zum runden Zyklonkörper auftritt. Im Gegensatz hierzu unterschieden sich die Erosionsmuster bei Betriebsbedingungen mit Partikelbruch deutlich. Für alle getesteten Zyklongeometrien zeigten sich Erosionsspuren gegenüber vom Einlauf, hinzu kamen weitere Erosionsstellen in Abhängigkeit der jeweils gewählten Zyklongeometrie und Betriebsbedingungen. Die Ergebnisse legen nahe dass die Partikel in diesen Fällen mehrfach auf die Zyklonwand prallen.

PÜTTMANN [66] untersuchte das Bruchverhalten an Gasverteilerböden und an Gaszyklonen. Sie konnte zeigen dass der Betrieb im blasenbildenden Bereich der Wirbelschicht unter Verwendung von porösen Gasverteilern ohne Geschwindigkeitsspitzen keinen Partikelbruch herbeiführt. Wurde ein Gasverteiler mit Gasstrahlencharakteristik eingesetzt, so konnte für den technisch relevanteren Bereich der Strahlaustrittsgeschwindigkeit von 50 m/s in Abhängigkeit des eingesetzten Materials teilweise Bruch nachgewiesen werden. Extrem stabile Katalysatorträger erwiesen sich unter diesen Bedingungen als nicht brechend. Erst bei höheren Gasaustrittsgeschwindigkeiten im Bereich von 100 m/s brachen auch diese Partikel.

Die gleichen Materialien wurden auch auf das Bruchverhalten im Zyklon untersucht. Bei technisch relevanten Gaseintrittsgeschwindigkeiten von 15 m/s konnte für alle Materialien Bruch nachgewiesen werden. Die Zyclone konnten für die betrachteten Partikelsysteme als der wesentliche Ort für Partikelbruch identifiziert werden. In allen Versuchen wurde zusätzlich Abrieb erzeugt.

Um die Mechanismen des Strahl- und Blasen induzierten Abriebs in der Wirbelschicht zu untersuchen, verwendeten WERTHER & XI [111] und WERTHER & REPPENHAGEN [107] sowie verschiedene Mitglieder der Gruppe um Werther eine Testapparatur die erstmals von GWYN [27] eingesetzt wurde. Später wurde die gleiche Apparatur auch von PÜTTMANN [66] zur Untersuchung des Bruchs eingesetzt. Der Apparat ist mit dem Fokus auf eine Vergleichbarkeit der Testbedingungen mit den Bedingungen in einer Großanlage ausgelegt. Das Setup entspricht im wesentlichen einer kleinen Wirbelschicht mit Schwerkraftabscheider und einem nachgelagerten Filter. Die Auslegung des Schwerkraftabscheiders erfolgt so, dass Feinstpartikel, die als Abrieb interpretiert werden, in den Filter ausgetragen werden. Eine vollständige Beschreibung des leicht modifizierten Setups und der entsprechenden Versuchsdurchführung ist in Kapitel 5.3 wiedergegeben.

Zur Unterscheidung von blaseninduzierten Abrieb und Strahlabrieb schlagen WERTHER & XI [111] die Verwendung von zwei unterschiedlichen Gasverteilerböden vor. Der erste Boden ist eine poröse Platte die eine homogene Gasverteilung ohne Geschwindigkeitsspitzen garantiert. Es wird davon ausgegangen, dass der gesamte Abrieb in diesem Fall durch die Blasen induzierte ist.

Zur Messung des strahlinduzierten Abriebs wird die gleiche poröse Platte mit einer zentrisch eingelassenen Düse verwendet. In diesem Fall wird davon ausgegangen dass der Abrieb durch den Strahl und die Blasen induziert ist. In beiden Fällen wird die Leerrohrgeschwindigkeit in der Wirbelschicht gleich gehalten, um das Grenzkorn der Schwerkraftabscheidung konstant zu halten. Der Strahlabrieb wird nun durch Subtraktion des Blasenabriebs vom kombinierten Blasen- und Strahlabrieb berechnet. Der Einfluss des Verhältnisses vom Begasungsstrom über die poröse Platte und über die Düse wird vernachlässigt. Diese Annahme ist zulässig wenn, der Düsengasstrom klein gegenüber dem Strom über die poröse Platte ist. Für den strahlinduzierten Abrieb leiten WERTHER & XI [111] den Zusammenhang

$$R_j = \frac{dm_{att}}{dt} = n_{or} \cdot C_j \cdot d_p \cdot \rho_g \cdot d_{or}^2 \cdot u_{or}^2 \quad (11.1)$$

her. Hierbei ist R_j der Abriebsmassenstrom durch Strahlabrieb, n_{or} die Anzahl an Öffnungen, von denen Gasstrahlen ausgehen, und C_j eine materialspezifische partikelgrößenunabhängige Abriebsratenkonstante unter stationären Bedingungen. d_{or} ist der Durchmesser der Düsenöffnung und u_{or} die Gasaustrittsgeschwindigkeit an der Düse, ρ_g die Dichte der Gasphase und d_p der mittlere Partikeldurchmesser der Partikel in der Wirbelschicht. Das Modell verbindet die neu geschaffene Oberfläche mit der zur Schaffung der Oberfläche benötigten kinetischen Energie.

Die Abriebsmechanismen des blaseninduzierten Abriebs sind bis heute noch nicht vollständig verstanden (REPPENHAGEN & WERTHER [107]). Verschiedene theoretische und empirische Ansätze werden z.B. in PÜTTMANN ET AL. [93] aufgeführt. Ein üblicher Ansatz ist in (11.3) wiedergegeben.

$$r_b = \frac{1}{m_b} \frac{dm_{att}}{dt} = K'_b \cdot (u_g - u_{g,min})^3 \quad (11.2)$$

Hierbei ist r_b die Abriebsrate, m_b die Bettmasse, m_{att} die durch Abrieb generierte Masse und K'_b die materialspezifische Abriebsratenkonstante unter stationären Bedingungen. u_g ist die Leerrohrgeschwindigkeit und $u_{g,min}$ die Geschwindigkeit ab der Blasen entstehen. WERTHER & XI [111] schlagen $u_{g,min} = u_{mf}$ als Approximation vor. Die Geschwindigkeit des Überschussgases entspricht dann nach WERTHER & WEIN [108] der Blasenauftiegschwindigkeit. Der Blasenauftieg liefert die benötigte Energie zur Generierung des Abriebs. Entsprechend haben WERTHER & REPPENHAGEN [106] einen entsprechenden linearen Ansatz für die Abhängigkeit der Abriebsrate vorgeschlagen.

$$r_b = \frac{1}{m_b} \frac{dm_{att}}{dt} = K'_b \cdot (u_g - u_{g,min}) \quad (11.3)$$

Zur Beschreibung des Abriebs in der zirkulierenden Wirbelschicht wird ein geeigneter Ansatz für die Abriebsrate auf technisch relevante Gasgeschwindigkeiten extrapoliert.

Auf dem Gebiet des Abriebs in Zyklonen haben führend zwei Gruppen veröffentlicht. Die Gruppe um Zenz (ZENZ [114], ZENZ & KELLEHER [115]) untersuchte die Veränderung der Korngröße von FCC-Katalysator in einstufigen Zyklonen mit 0,1 bis 0,76 m Durchmesser. Der Feststoff wurde aus einem Vorlagegefäß durch den Zyklon gesaugt und der abgeschiedene Feststoff am Zyklonunterlauf in einem zweiten Vorlagegefäß aufgefangen. Partikel im Zyklonoberlauf wurden über einen Schwerkraftabscheider und einem nachgeschalteten Filter abgeschieden. Nach jedem Versuchsdurchlauf wurde das aufgefangene Material aus Ober- und Unterlauf gemischt und wieder als Aufgabegut verwendet. Mit dieser Vorgehensweise konnten die Effekte aus Zyklonabscheidung und Abrieb getrennt werden. Die Gaseintrittsgeschwindigkeiten am Zykloneinlauf variierte zwischen 12 m/s und 37 m/s. Nach mehreren Durchläufen konnte eine Verschiebung der Korngrößenverteilung hin zu kleineren Partikelgrößen beobachtet werden.

Die zweite Gruppe um Werther verwendete einen von WERTHER & REPPENHAGEN [106] entwickelten Versuchsaufbau, der sich schematisch nur über den Zykloneinlauf mit Schüttelrinne zur unabhängigen Dosierung von Feststoff- und Gasstrom sowie den Ersatz des Schwerkraftabscheiders am Oberlauf des Zyklons durch ein Sieb mit 25µm vom Versuchsaufbau der Gruppe um Zenz unterscheidet. Die Zyklondurchmesser variierten zwischen 56 mm und 130 mm. Eine vollständige detaillierte Beschreibung

des Versuchsaufbaus ist in Kapitel 5.3 wiedergegeben. Insbesondere lässt sich in diesem Versuchsaufbau die Feststoffbeladung μ über weite Bereiche einstellen.

$$\mu = \frac{\dot{m}_s}{\rho_g \cdot u \cdot A} \quad (11.4)$$

Hierbei ist \dot{m}_s der Feststoffmassenstrom, ρ_g die Gasdichte, u die Gasgeschwindigkeit im Zykloneinlauf und A die Querschnittsfläche des Zykloneinlaufs.

Nach jedem Zyklondurchlauf wurde die aufgefangene Masse Feststoff im Filter ausgewogen. Im Gegensatz zu ZENZ & KELLEHER [115] wurde das Material des Zyklon-Oberlauf nicht dem Material des Zyklonunterlauf zugegeben, bevor es ein weiteres Mal durch den Versuchsaufbau geschleust wurde. REPPENHAGEN [75] konnte zeigen, dass die Abriebsrate durch den so genannten "cushioning effect", bei dem sich die feinen Partikel des Aufgabeguts überproportional an die Zyklonwand legen, sinkt. Somit überschätzen die Messungen den Abrieb leicht.

REPPENHAGEN & WERTHER [76] untersuchten frischen und benutzten FCC Katalysator mit einer mittleren Partikelgröße von ca. 100 μm . Für die Abriebsversuche wurden enge Fraktionen eingesetzt.

Die Feststoffbeladung wurde zwischen 0,5 kg/kg und 1,0 kg/kg sowie die Gaseintrittsgeschwindigkeit in den Zyklon zwischen 8 m/s und 24 m/s variiert. Unter den gegebenen Betriebsbedingungen kam es zu keinen Brucheffekten. Das abgeleitete Modell der Abriebsrate ergab sich zu.

$$r_c = \frac{1}{\dot{m}_s} \frac{dm}{dt} = K_c \cdot d_p \cdot u^2 \cdot \mu^{0,5} \quad (11.5)$$

Hierbei ist K_c die materialspezifische, partikelgrößenunabhängige Abriebsratenkonstante unter stationären Bedingungen, d_p der Partikeldurchmesser, u die Gaseintrittsgeschwindigkeit in den Zyklon und μ die Feststoffbeladung.

PÜTTMANN [66] untersuchte das Bruchverhalten an Gasverteilerböden und an Gaszyklonen an den gleichen Versuchsaufbauten der Gruppe um Werther. Ergänzend zu den Versuchen für den Abrieb wurden hier jeweils Proben nach jedem Zyklondurchlauf bzw. nach definierten Zeiten aus dem Wirbelbett entnommen. Die abgeleiteten bzw. angewendeten Bruchmodelle sind in Kapitel 4.3 wiedergegeben.

12 Appendix C: Lösung der Populationsbilanzen

12.1 Diskretisierung der Populationsbilanzen

In Kapitel 3.4.3 wurden die Diskretisierungsmethoden entsprechend NOPENS ET AL. [63] und KUMAR ET AL. [53] gegliedert in

- **Hounslow Methode**
- Fixed Pivot Methode
- Moving Pivot Methode
- Cell average Methode.

Es wurde festgestellt, dass die Hounslow-Methode Vorteile bei der Rechengeschwindigkeit bietet. Die später abgeleiteten komplexeren Methoden sind langsamer, bieten aber Vorteile bei Stabilität und Rechengenauigkeit sowie eine freie Wahl der Stützstellen.

In dieser Arbeit wurden zur Lösung die **Hounslow-Methode** verwendet, da sie aufgrund der niedrigeren Rechenzeit vorteilhaft für die Parameteranpassung ist und die relativ kleine Anzahl zu Grunde liegender Datensätze eine begrenzte Genauigkeit der numerischen Lösung als akzeptabel erscheinen lässt.

Im Folgenden soll die Diskretisierung nach HOUNSLOW ET AL. [35], HOUNSLOW [34] sowie LITSTER ET AL. [58], WYNN [109] für die Agglomeration und Granulation, sowie die Methode nach HILL UND NG [29][30] für Bruch zusammengefasst wiedergegeben werden.

Das Diskretisierungsschema, insbesondere die Nummerierung der Intervalle der diskretisierten Partikelgrößen, ist in Abb. 12 .5 wiedergegeben.

Die Anzahldichteverteilung $n(t,x)$ geht in die diskretisierte Anzahlverteilung $N_i(t)$ entsprechend (12.1)) über. Im Folgenden wird die Größe x der Stützstellen als Volumen v definiert.

$$N_i(t) = \int_{v_{i-1/2}}^{v_{i+1/2}} n(t, \varepsilon) d\varepsilon \quad (12.1)$$

Das mittlere Volumen im Intervall $[v_i, v_{i+1}]$ ergibt sich zu

$$\bar{v}_i(t) = \frac{v_i + v_{i-1}}{2} \quad (12.2)$$

Die Stützstellen sind entsprechend einer geometrischen Reihe nach LITSTER ET AL. [58] mit

$$\frac{v_{i+1}}{v_i} = 2^{\frac{1}{q}} \quad (12.3)$$

bzw. entsprechend der Nomenklatur nach HILL UND NG [29] mit $r = 2^{1/q}$ gewählt.

$$\frac{v_{i+1}}{v_i} = r \quad (12.4)$$

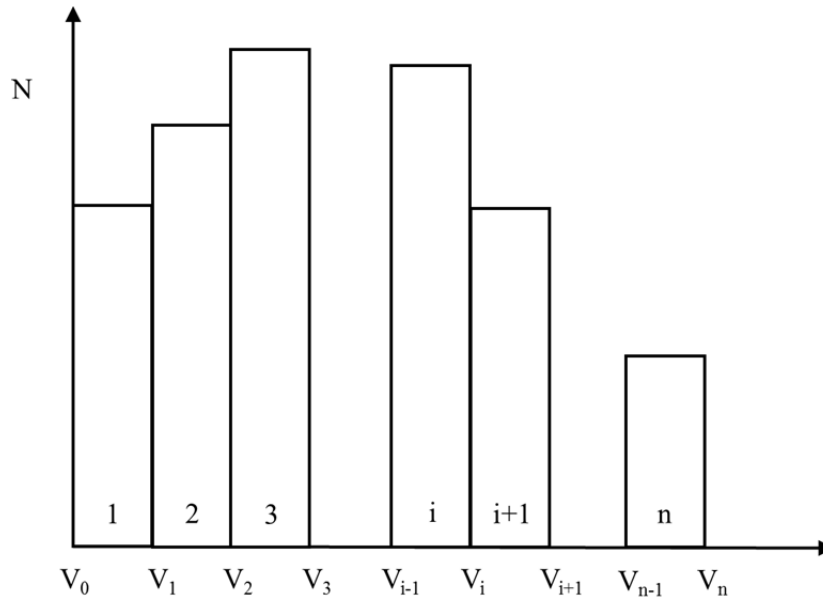


Abb. 12.5: Diskretisierungsschema nach Hounslow, Litster, Hill

Prinzipiell ist all diesen Diskretisierungsschemata gemeinsam, dass sie den verschiedenen Interaktionen von Partikeln aus verschiedenen Größenklassen (Zellen) für jede Größenklasse i verschiedene „Birth“ und „Death“ Ereignisse zuordnen. Aus der Zuordnung resultierende numerische Fehler, Verletzungen der Anzahl- oder Massenerhaltung bzw. die Verletzung der Erhaltung verschiedener Momente werden durch die Einführung verschiedener Korrekturfaktoren kompensiert.

Exemplarisch unterscheidet HOUNSLOW ET AL. [35] so 5 verschiedene Interaktionsmechanismen für die Agglomeration auf einer Diskretisierung in Form einer geometrischen Reihe mit $q=1$:

1. Es bilden sich Agglomerate aus Partikeln der $(i-1)$ -ten Zelle und Partikeln der ersten bis zur $(i-1)$ -ten Zelle. Einige dieser Interaktionen ergeben Partikel in der i -ten Zelle, einige Partikel ergeben Partikel in einer kleineren Größenklasse. In der i -ten Zelle ergibt sich

$$B_i^1 = \sum_{j=1}^{i-2} 2^{j-i+1} \beta_{i-1,j} N_{i-1} N_j \quad (12.5)$$

2. Es bilden sich Agglomerate aus zwei Partikeln der (i-1)-ten Zelle

$$B_i^2 = \frac{1}{2} \beta_{i-1,i-1} N_{i-1} N_{i-1} \quad (12.6)$$

3. Agglomerate durch Interaktion von Partikeln der i-ten Zelle mit kleineren Partikeln verlassen die Zelle i

$$D_i^1 = N_i \sum_{j=1}^{i-1} 2^{j-i} \beta_{i,j} N_j \quad (12.7)$$

4. Agglomerate durch Interaktion von Partikeln der i-ten Zelle mit größeren Partikeln verlassen die Zelle i

$$D_i^2 = N_i \sum_{j=i}^I 2^{j-i} \beta_{i,j} N_j \quad (12.8)$$

5. Einige Interaktionen von Partikeln der i-ten Zelle mit Partikeln kleiner der i-ten Zelle führen zu Partikeln, die immer noch der i-ten Zelle angehören. Die Anzahl in der Zelle i verändert sich nicht, wohl aber andere Momente, z.B. die Masse. HOUNSLOW ET AL. führt einen Volumenkorrekturfaktor ein, um die Massenerhaltung zu gewährleisten.

Durch Zusammenführung der Effekte 1-5 ergibt sich Gleichung (12.10).

Für komplexere Diskretisierungen und / oder für Bruchereignisse werden die abgeleiteten Zusammenhänge komplexer, mechanistisch bleibt das Vorgehen jedoch gleich. Es ergeben sich verschiedene Diskretisierungsschemata:

Agglomeration

$$\frac{\partial n(t, v)}{\partial t} = \frac{1}{2} \cdot \int_0^v \beta(t, v - \varepsilon, \varepsilon) \cdot n(t, v - \varepsilon, \varepsilon) n(t, v) d\varepsilon - n(t, v) \int_0^v \beta(t, v, \varepsilon) \cdot n(t, v) d\varepsilon \quad (12.9)$$

geht mit $q=1$ über in (HOUNSLOW ET AL. [35], HOUNSLOW [34])

$$\frac{\partial N_i}{\partial t} = \sum_{j=1}^{i-2} 2^{j-i+1} \beta_{i-1,j} N_{i-1} N_j + \frac{1}{2} \beta_{i-1,i-1} N_{i-1}^2 - N_i \sum_{j=1}^{i-1} 2^{j-i} \beta_{i,j} N_j - N_i \sum_{j=i}^I \beta_{i,j} N_j \quad (12.10)$$

mit: $i = 1, 2, \dots, I$

bzw. für $1 < q < 4$ nach LITSTER ET AL. [58]

$$\begin{aligned}
\frac{\partial N_i}{\partial t} = & \sum_{j=1}^{i-S(q)-1} \beta_{i-1,j} N_{i-1} N_j \frac{2^{(j-i+1)/q}}{2^{1/q} - 1} + \frac{1}{2} \beta_{i-q,i-q} N_{i-q}^2 \\
& + \sum_{k=2}^q \sum_{j=i-S(q-k+2)-k+1}^{i-S(q-k+1)-k} \beta_{i-k,j} N_{i-k} N_j \frac{2^{(j-i+1)/q} - 1 + 2^{-(k-1)/q}}{2^{1/q} - 1} \\
& + \sum_{k=2}^q \sum_{j=i-S(q-k+2)-k+2}^{i-S(q-k+1)-k+1} \beta_{i-k+1,j} N_{i-k+1} N_j \frac{-2^{(j-i)/q} + 2^{1/q} + 2^{-(k-1)/q}}{2^{1/q} - 1} \\
& - \sum_{j=1}^{i-S(q)} \beta_{i,j} N_i N_j \frac{2^{(j-i)/q}}{2^{1/q} - 1} - \sum_{j=i-S(q)+1}^I \beta_{i,j} N_i N_j
\end{aligned} \tag{12.11}$$

$$\text{mit: } i = 1, 2, \dots, I; \quad S(q) = \sum_{p=1}^q p$$

und für $q > 4$ nach WYNN [109]

$$\begin{aligned}
\frac{\partial N_i}{\partial t} = & \sum_{j=1}^{i-S_1} \beta_{i-1,j} N_{i-1} N_j \frac{2^{(j-i+1)/q}}{2^{1/q} - 1} \\
& + \sum_{p=2}^q \sum_{j=i-S_{p-1}}^{i-S_p} \beta_{i-p,j} N_{i-p} N_j \frac{2^{(j-i+1)/q} - 1 + 2^{-(p-1)/q}}{2^{1/q} - 1} \\
& + \frac{1}{2} \beta_{i-q,i-q} N_{i-q}^2 \\
& + \sum_{p=1}^{q-1} \sum_{j=i+1-S_p}^{i+1-S_{p+1}} \beta_{i-p,j} N_{i-p} N_j \frac{-2^{(j-i)/q} + 2^{1/q} + 2^{-p/q}}{2^{1/q} - 1} \\
& - \sum_{j=1}^{i-S_1} \beta_{i,j} N_i N_j \frac{2^{(j-i)/q}}{2^{1/q} - 1} \\
& - \sum_{j=i-S_1+2}^{\infty} \beta_{i,j} N_i N_j
\end{aligned} \tag{12.12}$$

$$\text{mit: } i = 1, 2, \dots, I; \quad S_p = S(p, q) = \text{Int} \left[1 - \frac{q \ln(1 - 2^{-(p/q)})}{\ln(2)} \right]$$

wobei $\text{Int}[\]$ der Integeranteil des Ausdrucks in der Klammer ist.

Bruch

$$\frac{\partial n(t, x)}{\partial t} = \int_0^x b(x, \varepsilon) \cdot S(\varepsilon) \cdot n(t, \varepsilon) d\varepsilon - S(x) \cdot n(t, x) \tag{12.13}$$

geht nach HILL UND NG [29] für binären Bruch über in

$$\frac{\partial N_i}{\partial t} = \sum_{j=i+1}^{\infty} \beta_j^* b_{i,j} S_j N_j - \delta_j^* S_i N_i \tag{12.14}$$

mit für binären Bruch, mit gleicher Wahrscheinlichkeit für alle Bruchereignisse

$$b(v, w) = \frac{2}{w} \quad \Rightarrow \quad b_{i,j} = 2 \frac{v_i - v_{i-1}}{v_{j-1}} \quad (12.15)$$

sowie der Bestimmung von β_i^* und δ_i aus

$$\delta^* = \beta^* \left(\frac{2}{r+1} \right); \quad \beta^* = \frac{r+1}{2r} \quad (12.16)$$

Im Speziellen ergibt sich für $r=2$

$$\frac{\partial N_i}{\partial t} = \frac{3}{4} \sum_{j=i+1}^{\infty} \left(2 \frac{v_i - v_{i-1}}{v_{j-1}} \right) b_{i,j} S_j N_j - \frac{1}{2} S_i N_i \quad (12.17)$$

Für binären Bruch mit einer parabolischen Verteilung der Wahrscheinlichkeit verschiedener Bruchereignisse schlagen HILL UND NG [29] vor (symmetrisch und erfüllt die Bedingungen für binären Bruch):

$$b(v, w) = \frac{24 \left(1 - \frac{hw}{2} \right) \left(v^2 - vw + \frac{w^2}{4} \right)}{3^3} + h \quad (12.18)$$

mit: $h \in [0, 3w]$

Hieraus ergibt sich die diskretisierte Form

$$b_{i,j} = \left(1 - \frac{hv_{j-1}}{2} \right) \left(\frac{8(v_i^3 - v_{i-1}^3)}{v_{j-1}^3} - \frac{12(v_i^2 - v_{i-1}^2)}{v_{j-1}^2} + \frac{6(v_i - v_{i-1})}{v_{j-1}} \right) + h(v_i - v_{i-1}) \quad (12.19)$$

mit

$$\beta_i^* = \frac{1}{\left(2 - \left(\frac{1}{\bar{v}_i} \right) \sum_{j=1}^{i-1} \bar{v}_i b_{j,i} \right)} \quad (12.20)$$

und

$$\delta_i^* = \frac{\frac{1}{\bar{v}_i} \sum_{j=1}^{i-1} \bar{v}_i b_{j,i}}{\left(2 - \left(\frac{1}{\bar{v}_i} \right) \sum_{j=1}^{i-1} \bar{v}_i b_{j,i} \right)} \quad (12.21)$$

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Berechnung mit dem Modell für binären Bruch und gleichverteilten Bruchwahrscheinlichkeiten durchgeführt.

Wachstum, Abrieb

$$\frac{\partial n(t, x)}{\partial t} = \frac{\partial (G(x)n(t, x))}{\partial x} \quad (12.22)$$

Entsprechend dem Ansatz von PARK UND ROGAK schlagen HOUNSLOW ET AL. [35] einen einfachen Ansatz zur Beschreibung des Wachstums vor, der die ersten drei Momente der Verteilung erhält.

$$\frac{\partial N_i}{\partial t} = \frac{1}{v_i} \left(\frac{r}{r^2 - 1} (G_{i-1} N_{i-1}) + G_i N_i - \frac{r}{r^2 - 1} G_{i+1} N_{i+1} \right) \quad (12.23)$$

mit: $r = \frac{v_{i+1}}{v_i}; \quad G_i = G(v_i)$

Alternativ können die ersten beiden Momente und die Steigung der Verteilung konstant gehalten werden [35].

$$\frac{\partial N_i}{\partial t} = \frac{\hat{a}_{i-1} G_{i-1} N_{i-1}}{v_{i-1}} + \frac{\hat{b}_i G_i N_i}{v_i} + \frac{\hat{c}_{i+1} G_{i+1} N_{i+1}}{v_{i+1}} \quad (12.24)$$

mit: $r = \frac{v_{i+1}}{v_i}; \quad G_i = G(v_i)$

sowie den Konstanten

$$\hat{b}_i = \begin{cases} -\frac{r}{r-1} \operatorname{erf} \left(\frac{1}{4} \frac{d \ln(N_i)}{d \ln(v_i)} \right), & \frac{d \ln(N_i)}{d \ln(v_i)} \leq 0, \\ -\frac{1}{r-1} \operatorname{erf} \left(\frac{1}{4} \frac{d \ln(N_i)}{d \ln(v_i)} \right), & \frac{d \ln(N_i)}{d \ln(v_i)} > 0, \end{cases} \quad (12.25)$$

$$\hat{a}_i = \frac{r - \hat{b}_i (r-1)}{r^2 - 1}$$

$$\hat{c}_i = -(\hat{a}_i + \hat{b}_i)$$

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Berechnung mit dem ersteren einfacheren Modell durchgeführt.

13 Appendix D: Ergänzungen zum Versuchsaufbau und ausgewählte Ergebnisse der ZWS-Versuche

13.1 ZWS-Granulatorsetup 100 mm

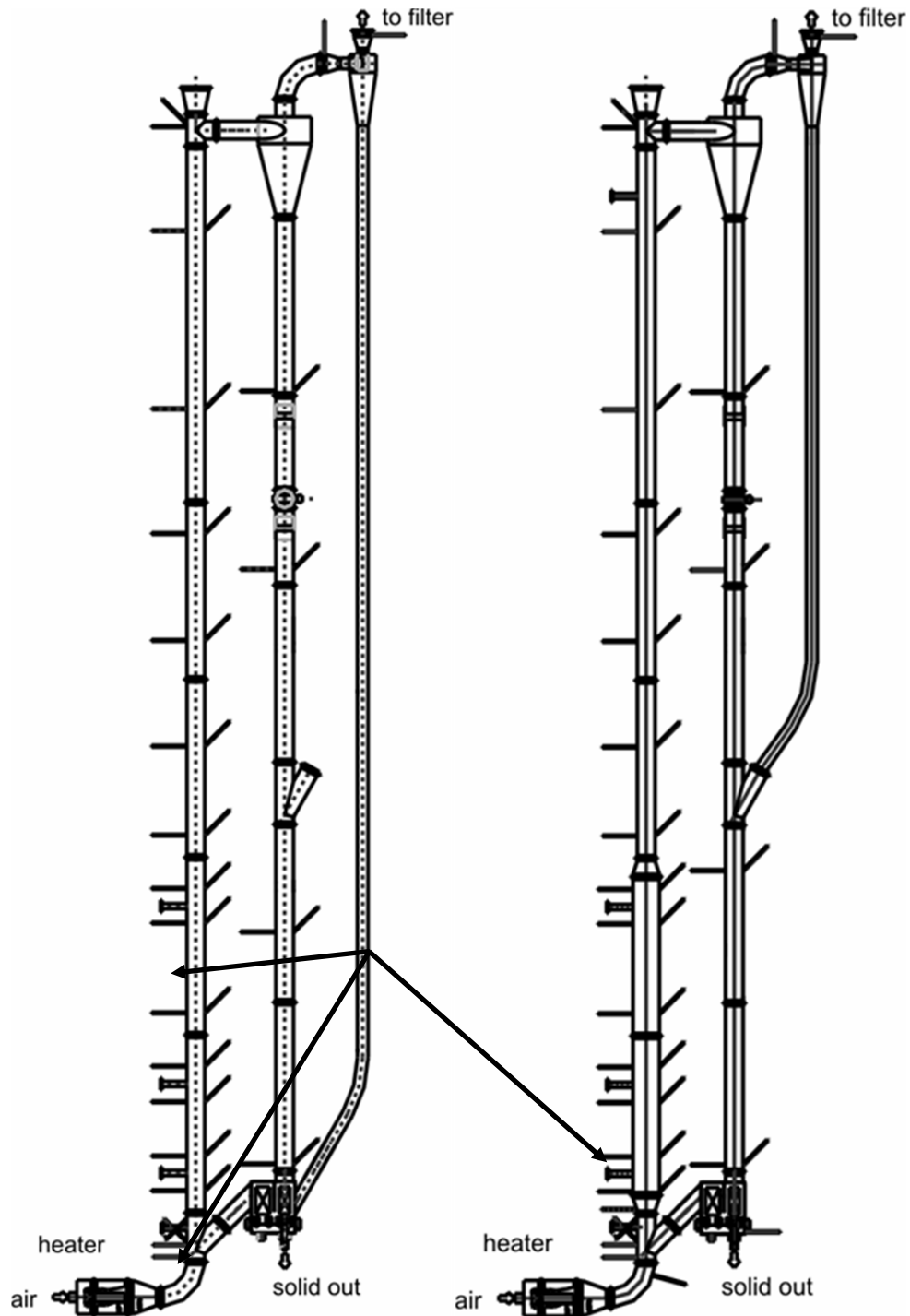


Abb. 13.1: Detailzeichnung des Feststoff-Kreislaufs links mit 100mm Riser rechts mit 100mm Riser und 150mm Aufweitung

13.2 Tropfengrößenverteilungen Saccharoselösung

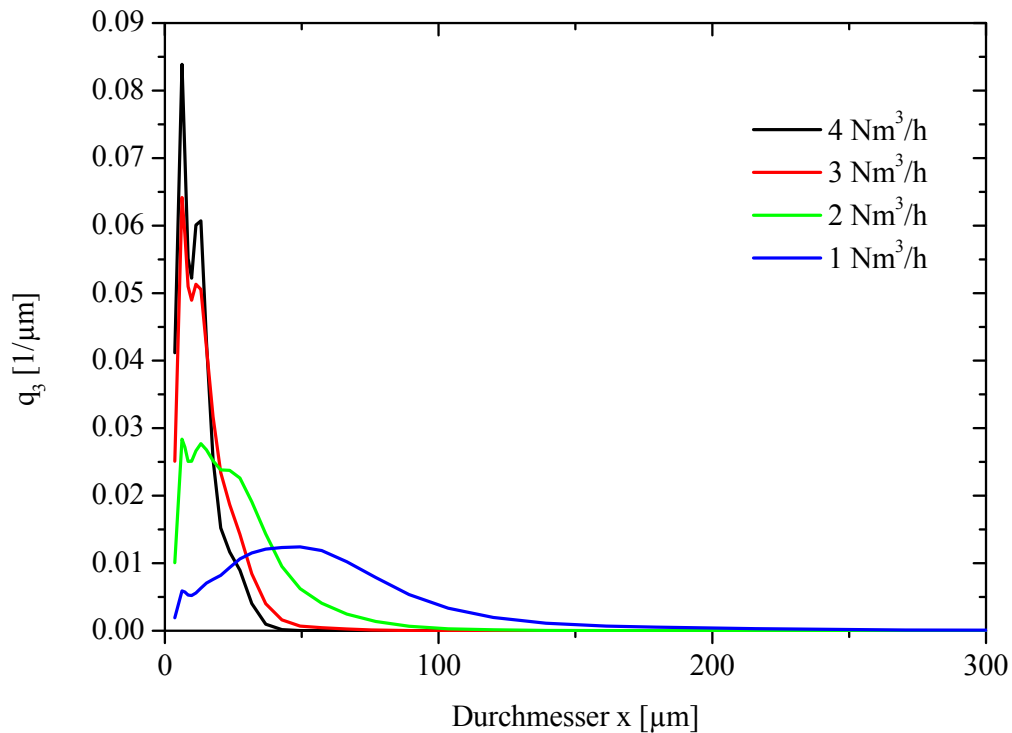


Abb. 13.2: Massendichteverteilung q_3 der verdünnten 60 Gew.-% wässrigen Saccharoselösung (80 °C, 47 g/min) bei einem flüssigkeitsseitigen Vordruck von 2,5 bar(ü) im Vorlagebehälter und verschiedenen Zerstäubungsgasströmen

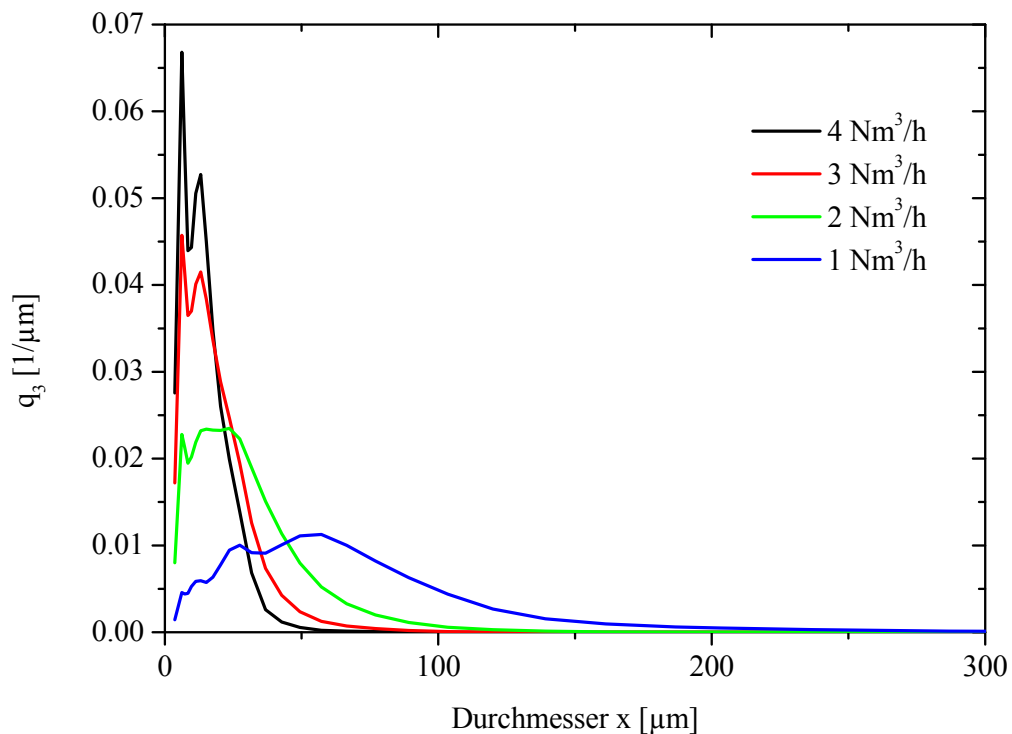


Abb. 13.3: Massendichteverteilung q_3 der verdünnten 60 Gew.-% wässrigen Saccharoselösung (80 °C, 66 g/min) bei einem flüssigkeitsseitigen Vordruck von 2,5 bar(ü) im Vorlagebehälter und verschiedenen Zerstäubungsgasströmen

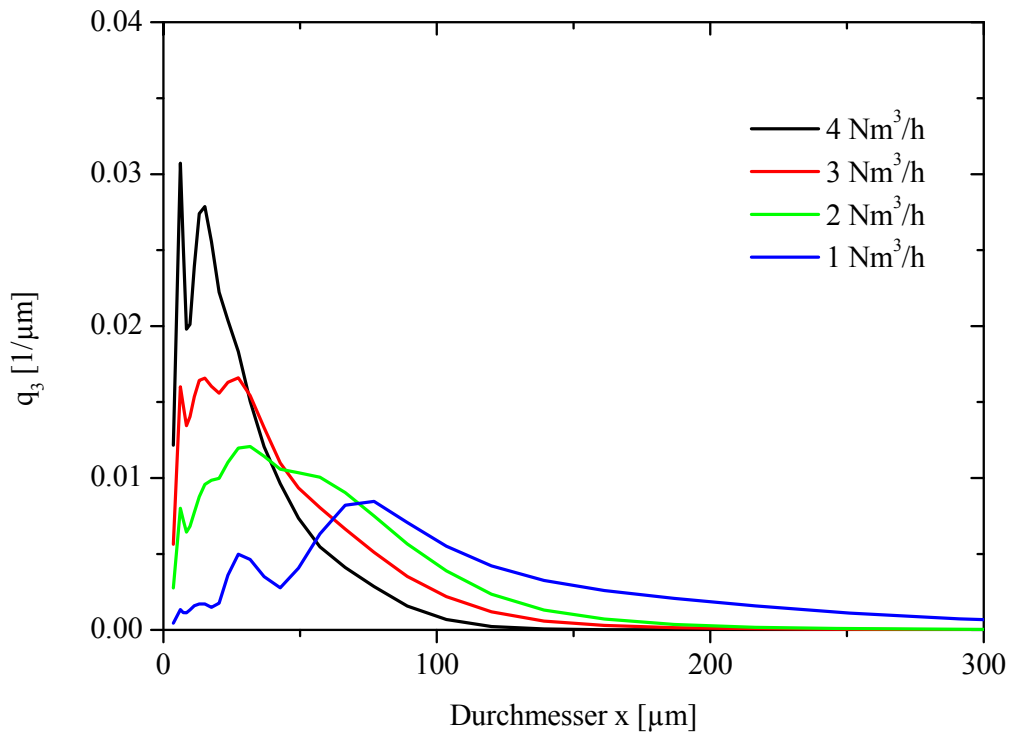


Abb. 13.4: Massendichteverteilung q_3 der verdüsten 60 Gew.-% wässrigen Saccharoselösung (80 °C, 115 g/min) bei einem flüssigkeitsseitigen Vordruck von 2,5 bar(i) im Vorlagebehälter und verschiedenen Zerstäubungsgasströmen

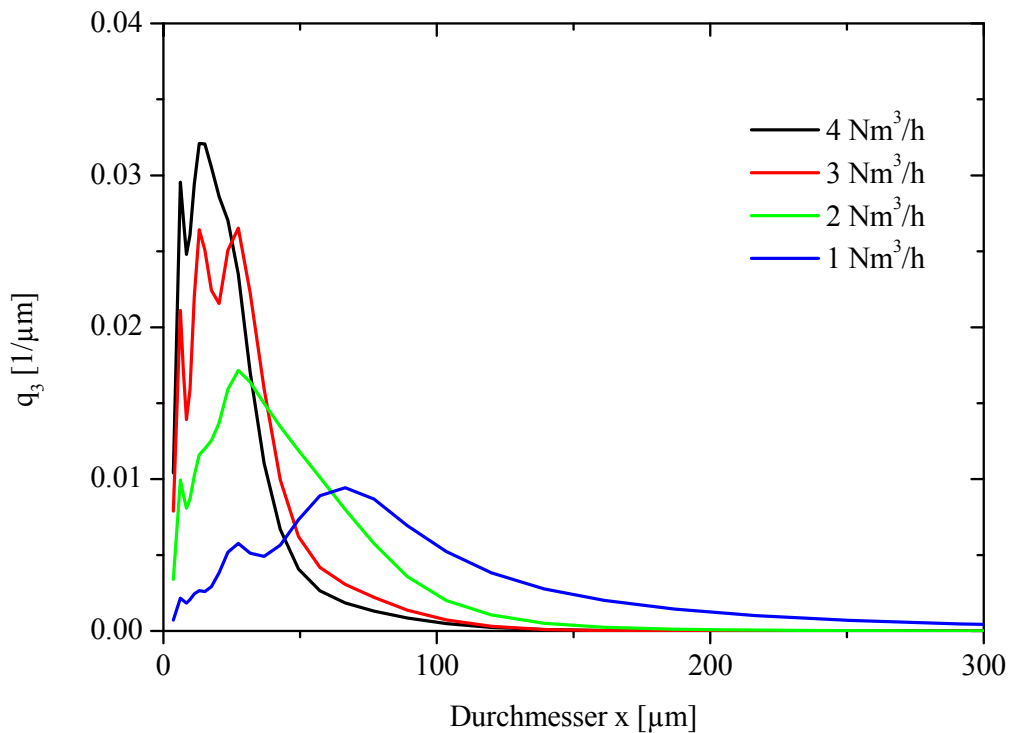


Abb. 13.5: Massendichteverteilung q_3 der verdüsten 60 Gew.-% wässrigen Saccharoselösung (80 °C, 135 g/min) bei einem flüssigkeitsseitigen Vordruck von 2,5 bar(i) im Vorlagebehälter und verschiedenen Zerstäubungsgasströmen





Lebenslauf

Björn Stiller

24/06/1977

Geboren in Hamburg, Deutschland

Beruf

10/2008 –

BASF SE

07/2004 – 07/2008

Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für
Feststoffverfahrenstechnik und Partikeltechnologie,
Technische Universität Hamburg-Harburg

04/2003 – 9/2003

Praktikum DaimlerChrysler AG

Ausbildung: Studium

04/2003 – 06/2004

Verfahrenstechnik
Technische Universität Hamburg- Harburg
Abschluss: Diplom-Ingenieur

10/1998 - 04/2003

Allgemeine Ingenieurwissenschaften
Technische Universität Hamburg-Harburg
Abschluss: Bachelor of Science

Zivildienst

07/1997 - 07/1998

Max-Brauer-Heim, Hamburg, Germany

Ausbildung: Schule

07/1988 – 06/1997

Gymnasium Grootmoor, Hamburg, Germany

07/1984 – 06/1988

Grundschule Karlshöhe, Hamburg, Germany

