

Beitrag zur Modellbildung von eigenschaftsverteiltern dispersen Systemen am Beispiel der Wirbelschicht-Sprühagglomeration

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

Doktoringenieur
Dr.-Ing.

von Dipl.-Wirtsch.-Ing. Mirko Peglow
geb. am 13.11.1974 in Magdeburg

genehmigt durch die Fakultät für Verfahrens- und Systemtechnik
der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg

Gutachter: Prof. Dr.-Ing. habil. Dr. h.c. Lothar Mörl

Prof. Dr.-Ing. habil. Evangelos Tsotsas

Prof. Dr. rer. nat. habil. Gerald Warnecke

Promotionskolloquium am 24. Januar 2005

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter in der Zeit von Oktober 2001 bis Oktober 2004 am Lehrstuhl Chemischer Apparatebau des Instituts für Apparate- und Umwelttechnik der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg.

Für die Möglichkeit der Bearbeitung des Themas, die vielen Anregungen, die fachlichen Unterstützungen und den eingeräumten Freiraum zum eigenverantwortlichen Handeln möchte ich mich besonders bei dem Leiter des Lehrstuhls für Chemischen Apparatebau Herrn Prof. Dr.-Ing. habil. Dr. h. c. Lothar Mörl bedanken.

Ich danke dem Leiter des Fachbereiches Pharmazeutische Technologie und Qualitätssicherung der Fachhochschule Magdeburg-Stendal Herrn Prof. Dr. rer. nat. habil. Bertram Wolf, der mir die Nutzung des Versuchsstandes ermöglichte und mit seinen Mitarbeitern die Versuchsdurchführung begleitete.

Mein Dank gilt auch Herrn Prof. Dr. rer. nat. habil. Gerald Warnecke, Lehrstuhlleiter für Numerische Mathematik der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, der mir als Gutachter hilfreiche Anregungen bezüglich der mathematischen Modellierung gegeben hat. Ebenso danke ich Herrn Prof. Dr.-Ing. habil. Evangelos Tsotsas, Lehrstuhlinhaber für Thermische Verfahrenstechnik der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, für die Übernahme eines Gutachtens und die zahlreichen Diskussionen während meiner Tätigkeit an der Universität Magdeburg.

Recht herzlich möchte ich mich bei Herrn M.Sc. Jitendra Kumar bedanken, der durch seine Mitarbeit, seine ständige Diskussionsbereitschaft sowie seine Ideen und Anregungen einen sehr großen Anteil der Arbeit hat.

Allen Mitarbeitern des Instituts für Apparate- und Umwelttechnik möchte ich meinen Dank zum Ausdruck bringen. Besonders denke ich dabei an Herrn Doz. Dr.-Ing. Gerhard Krüger, Herrn PD Dr.-Ing. habil. Rüdiger Sontag, Herrn Jun.-Prof. Dr.-Ing. Stefan Heinrich, Herrn Dr.-Ing. Matthias Ihlow, Frau Dipl.-Ing. Desislava Ahchieva, Herrn Dipl.-Ing. Jörg Drechsler, Herrn Dipl.-Ing. Markus Henneberg und Frau Dipl.-Ing. Plamena Tomova, die jederzeit durch ihre ständige Bereitschaft zu fachlichen Gesprächen und ihre Hilfsbereitschaft zu dieser Arbeit beitrugen.

Ebenso gilt mein Dank dem Werkstattmeister Herrn Lutz Herbst, seinem Mitarbeiter Herrn Steven Herbst sowie Frau Chem.-Ing. Sabine Schlüsselburg für ihre Hilfsbereitschaft bei der Durchführung der notwendigen Arbeiten.

Den Studenten Gerald Brüch, Robert Hampel und Franka Kretschmer, die im Rahmen ihrer Studien- und Diplomarbeiten am Thema mitwirkten, sei gedankt.

Von ganzem Herzen möchte ich mich bei meiner Freundin Aline, meiner Familie und meinen Freunden für ihre Geduld und Unterstützung bedanken.

Inhaltsverzeichnis

Vorwort	I
Inhaltsverzeichnis	IV
Nomenklatur	V
1 Einleitung	1
1.1 Allgemeines	1
1.2 Stand des Wissens	2
1.2.1 Einflussparameter auf den Agglomerationsprozess	2
1.2.2 Agglomerationsmechanismen	4
1.3 Motivation und Zielstellung	8
2 Populationsbilanzen	10
2.1 Die kontinuierliche Populationsbilanz für Aggregation	10
2.1.1 Entstehungsrate der Aggregation	11
2.1.2 Schwundrate der Aggregation	12
2.2 Erweiterung der Eigenschaftskordinaten	13
2.3 Analytische Lösungen für Populationsbilanzen	16
2.3.1 Analytische Lösungen für Dichtefunktionen	16
2.3.2 Analytische Lösungen für Momentenverlauf	18
2.4 Numerische Methoden zur Lösung von Populationsbilanzen	19
2.4.1 Die diskrete Populationsbilanz	19
2.4.2 Diskrete Modelle für Aggregation	22
2.4.3 Diskretes Modell für Wachstum	28
2.5 Diskretisierung der erweiterten Eigenschaftskordinaten	34
2.5.1 DTMD Hounslows	34
2.5.2 Neues Modell zur Berechnung der DTMD	36
2.5.3 Vergleich der DTMD-Modelle	40
2.6 Inverses Problem	47
2.6.1 Methoden zur Bestimmung der Kinetiken	47
2.6.2 Bestimmung der Kinetiken bei monodisperser Keimbildung	48
2.6.3 Neues Modell zur Bestimmung der Kinetiken bei polydisperser Keimbildung	48

3	Wirbelschicht-Sprühagglomeration	60
3.1	Das Wirbelschichtmodell	60
3.1.1	Bilanzgleichungen der Gasphase	62
3.1.2	Bilanzgleichungen der Partikel	62
3.1.3	Bilanzgleichungen der Wand	63
3.2	Die Kinetiken	63
3.2.1	Stoff- und Wärmeübergang zwischen Partikeln und Suspensionsgas	63
3.2.2	Stoff- und Wärmeübergang zwischen Suspensions- und Bypassgas	64
3.2.3	Stoff- und Wärmeübergang zwischen Gas und Wand sowie Partikeln und Wand	65
3.2.4	Wärmeübergang zwischen Wand und Umgebung	65
3.2.5	Stoffübergang zwischen Düse und Partikeln	66
3.2.6	Agglomerationskinetik	66
3.3	Strömungsverhalten der Wirbelschicht	66
3.3.1	Das Expansionsverhalten	66
3.3.2	Der Bypassanteil	67
3.4	Simulationsergebnisse	68
3.4.1	Numerisches Lösungsverfahren	69
3.4.2	Simulationsparameter	69
3.4.3	Simulation der Trocknung	70
3.4.4	Simulation der Eindüsung	74
3.4.5	Simulation der Agglomeration	74
3.4.6	Simulation des vollständigen Prozesses	76
4	Experimentelle Untersuchungen	83
4.1	Versuchsanlage	83
4.2	Labormesstechnik	86
4.2.1	Feuchtigkeitsanalysator	86
4.2.2	Partikelgrößenanalysator	86
4.2.3	Adsorptionswaage	87
4.3	Versuchsbeschreibung	88
4.3.1	Versuchsgut	88
4.3.2	Versuchsdurchführung	92
4.3.3	Versuchsparameter	94
4.4	Versuchsergebnisse	94
4.4.1	Messunsicherheiten	97
4.4.2	Vergleich Messung Modell	97
5	Zusammenfassung	117
A	Mathematischer Anhang	120
A.1	Die Dirac-Delta-Verteilung	120
A.2	Herleitung der diskreten Terme für DPBE	121
A.3	Momentenerhaltung für Aggregation	122
A.4	Momentenerhaltung für Wachstum	123
A.5	Herleitung der Momentenerhaltung für Tracer	124

A.6	Massenerhaltung für neues DTMD-Modell	125
B	Stoffwerte und Stoffkonstanten	127
B.1	Konstanten	127
B.2	Stoffwerte reiner Komponenten	127
B.2.1	Stoffwerte der trockenen Luft	127
B.2.2	Stoffwerte von Wasser	129
B.2.3	Stoffwerte von Wasserdampf	130
C	Stoff- und Wärmeübergangskoeffizienten	133
C.1	Stoff- und Wärmeübergang in der Wirbelschicht	133
C.1.1	Stoff- und Wärmeübergang zwischen Partikeln und Suspensionsgas	133
C.1.2	Wärmeübergang zwischen Partikeln und Wand	134
C.1.3	Wärmeübergang zwischen Wand und Umgebung	134
C.1.4	Wärmeübergang zwischen Gas und Wand	134
D	Durchflussmessung mittels Blende	136
E	Normierte Partikelgrößencharakterisierung	137
E.1	Normierte Summen- und Dichteverteilung	137
E.2	Momentenbegriff	138
F	Ermittlung des Messfehlers	140
G	Messwerte und Simulationsergebnisse	142
G.1	Messwerte Partikelgrößenverteilung	142
G.2	Messwerte Partikelfeuchtemessung	163
G.3	Vergleich Messung - Simulation	168
G.3.1	Validierung des Agglomerationsmodells	168
G.3.2	Validierung des Wärme- und Stofftransportmodells	185
	Literaturverzeichnis	202
	Lebenslauf	209

Nomenklatur

Lateinische Symbole

a	Koeffizient im Aggregationskern	–
a	Koeffizient in gaussähnlicher Verteilung	–
a	Oberflächendichte	m^2/m^3
A	Oberfläche	m^2
b	Koeffizient im Aggregationskern	–
B	Entstehungsrate	$1/s$
B_0	Keimbildungsrate	$1/s$
c	Koeffizient in BET-Gleichung	–
c	Mengenkonzentration je Partikel	Menge/[–]
c	Spezifische Wärmekapazität	$J/(kg K)$
d	Durchmesser	m
D	Schwundrate	$1/s$
\vec{e}	Externe Eigenschaftskordinate	m
e	Partikelstoßkoeffizient	–
F	Querschnittsfläche	m^2
g	Erdbeschleunigung	m/s^2
G	Wachstumsrate	m/s bzw. m^3/s
G_0	Größenunabhängiger Teil der Wachstumsrate	m/s bzw. m^3/s
h	Enthalpiedichte	J/m^3
h	Spezifische Enthalpie	J/kg
Δh_s	Spezifische Sorptionsenthalpie	J/kg
Δh_v	Spezifische Verdampfungsenthalpie	J/kg
H	Enthalpie	J
H	Höhe	m
i	Index	–
\vec{i}	Interne Eigenschaftskordinate	i
I	Anzahl der Partikelklassen	–
I	Rate	–
j	Index	–
k	Wärmedurchgangskoeffizient	$W/(m^2 K)$

k	Volumenkorrekturfaktor	—
K	Korrekturfaktor in DTMD	—
L	Länge	m
m	Massendichte	kg/m^3
m	Mengendichte	Menge/ m^3
m_r	Unnormiertes Moment	m^r
M	Masse	kg
$M_{j,r}$	j-tes Moment einer Index r Verteilung	—
n	Exponent in Expansionsgleichung	—
n	Anzahldichte	$1/m^3$
N	Anzahl	—
N	Koeffizient in BET-Gleichung, Anzahl der Bedeckungen	—
N_0	Gesamte Partikelanzahl der Anfangsverteilung	—
p	Druck	Pa
q	Skalierungsfaktor für geometrisches Gitter	—
q_r	Normierte Dichteverteilung Index r	—
Q	Wärme	J
Q_r	Normierte Summenverteilung Index r	—
r	Aggregationsrate	$1/s$
r	Radius	m
R	Spezifische Gaskonstante	$J/(mol\ kg)$
RE	Relativer Fehler	—
\tilde{R}	Allgemeine Gaskonstante	$J/(mol\ K)$
s	Flüssigkeitsfilmdicke	m
s_p	Dicke der Oberflächenrauigkeit	m
S	Porensättigung	—
t	Zeit	s
T	Dimensionslose Zeit	—
u	Geschwindigkeit	m/s
u	Variable der Integration, Volumen	m^3
v	Partikelvolumen	m^3
v_0	Mittleres Volumen der Anfangsverteilung	m^3
v_2	Koeffizient in gaussähnlicher Verteilung	m^3
v_r	Dimensionsloser sichtbarer Blasenstrom	—
V	Volumen	m^3
x	Normiertes Partikelvolumen v/v_0	—
x	Pivotelement	m^3
X	Partikelfeuchtebeladung bezogen auf trockene Partikelmasse	—
X_1	Koeffizient in BET-Gleichung, Monomolekulare Beladung	—
Y	Gasfeuchtebeladung bezogen auf trockene Gasmasse	—
z	Höhenkoordinate	m

Griechische Symbole

α	Wärmeübergangskoeffizient	$W/(m^2 K)$
β	Stoffübergangskoeffizient	m/s
β	Agglomerationsrate	$1/s$
β_0	Größenunabhängiger Teil der Agglomerationsrate	$1/s$
Γ	Gammafunktion	—
δ	Randwinkel	$^\circ$
δ	Diffusionskoeffizient	m^2/s
$\delta(x)$	Delta-Dirac-Verteilung	—
δ_{ij}	Kronecker Delta	—
Δ	Differenz	—
ζ	Studentfaktor	—
η	Dynamische Viskosität	$kg/(m s)$
η	Normierte Partikelfeuchte	—
ϑ	Temperatur	$^\circ C$
λ	Wärmeleitfähigkeit	$W/(m K)$
μ_r	Unnormiertes r -tes Moment	$m^{3 \cdot r}$
ν	Kinematische Viskosität	—
ν	Exponent in gaussähnlicher Verteilung	—
$\dot{\nu}$	Normierte Trocknungsgeschwindigkeit	—
ξ	Parameter für Bestimmung der kinetischen Parameter	—
ϱ	Dichte	kg/m^3
σ	Oberflächenspannung	N/m
σ	Standartabweichung	—
σ_d	Dynamische Fließspannung	N/m^2
σ_m	Mittlerer statistischer Fehler	—
ς	Dicke der Oberflächenrauigkeit	m
τ	Verweilzeit	s
ϕ	Relative Feuchte	—
ψ	Bettporosität, Porosität	—
Ω	Eigenschaftsraum	—

Tiefgestellte Indices

0	Leerrohr
I	Erster Trocknungsabschnitt
ad	Adsorption
agg	Aggregat
b	Blasen, Bypass
bed	Bett

<i>break</i>	Bruch
<i>c</i>	kritisch
<i>ch</i>	charakteristisch
<i>e</i>	extern
<i>e</i>	Umgebung
<i>elu</i>	Austrag
<i>eq</i>	Gleichgewicht
<i>g</i>	Gas
<i>G</i>	Wachstum
<i>hyg</i>	hygroskopisch
<i>i</i>	intern
<i>i</i>	Ganzzahliger Index ≥ 1
<i>in</i>	Eintritt
<i>iso</i>	Isolierung
<i>l</i>	Flüssigkeit
<i>max</i>	Maximum
<i>mf</i>	Minimalfluidisation
<i>min</i>	Minimum
<i>n</i>	Düse
<i>nuc</i>	Keim
<i>out</i>	Austritt
<i>p</i>	Partikel
<i>ran</i>	zufällig
<i>s</i>	Suspensionsgas
<i>sat</i>	Sättigung
<i>sys</i>	systematisch
<i>tot</i>	total
<i>v</i>	viskos
<i>w</i>	Wand
<i>w, g</i>	Gasförmiges Wasser
<i>w, l</i>	Flüssiges Wasser

Hochgestellte Indices

-	Mittelwert	
~	Partikellänge bezogen	
·	Rate / Strom	1/s
→	Vector	
0	Standartzustand	
<i>exp</i>	erwartet	
<i>Exp</i>	Experiment	
<i>ext</i>	ermittelt	
<i>Sim</i>	Simulation	

T Tracer

Kennzahlen

$$Ar = \frac{gd_p^3 \rho_p - \rho_g}{\nu_g^2 \rho_g} \quad \text{Archimedes-Zahl}$$

$$Bi = \frac{\alpha d_p}{\lambda_p} \quad \text{Biot-Zahl}$$

$$Gr = \frac{\beta_g g L_{ch}^3 (T_w - T_e)}{\nu_g^2} \quad \text{Grashof-Zahl}$$

$$Le = \frac{\lambda_g}{c_g \rho_g \delta_g} \quad \text{Lewis-Zahl}$$

$$NTU = \frac{\rho_g \beta A}{M_g} \quad \text{Anzahl der Übertragungseinheiten}$$

$$Nu = \frac{\alpha L_{ch}}{\lambda_g} \quad \text{Nusselt-Zahl}$$

$$Pr = \frac{\nu_g c_g \rho_g}{\lambda_g} \quad \text{Prandtl-Zahl}$$

$$Ra = Gr Pr \quad \text{Rayleigh-Zahl}$$

$$Re = \frac{u L_{ch}}{\nu_g} \quad \text{Reynolds-Zahl}$$

$$Sc = \frac{\nu_g}{\delta_g} \quad \text{Schmidt-Zahl}$$

$$Sh = \frac{\beta L_{ch}}{\delta_g} \quad \text{Sherwood-Zahl}$$

Abkürzungen

$DPBE$ Discrete Population Balance Equation
(Diskrete Populationsbilanzgleichung)

$DTMD$ Discrete Tracer Mass Distribution
(Diskrete Tracermassenverteilung)

Kapitel 1

Einleitung

1.1 Allgemeines

Die Wirbelschicht-Sprühgranulationstrocknung ist unbestritten eines der wichtigsten Verfahren zur Produktgestaltung frei fließender, staubarmer, körniger Feststoffe und gewinnt ständig an Bedeutung. Gründe hierfür sind einerseits die Verbindung der unterschiedlichen Prozesse Formgebung und Trocknung in einem Verfahren sowie die Möglichkeit der Kopplung weiterer Vorgänge wie Klassierung und Homogenisierung zu einem komplexen Gesamtprozess, andererseits können durch die Erweiterung des Wissens über die verschiedenen Einzelvorgänge Teilprozesse optimiert werden, um somit den ständig steigenden Anforderungen an die Produktqualität gerecht werden zu können. Als Ursprung der Wirbelschichttechnologie wird das Jahr 1922 gesehen, in dem von Winkler (1926) ein Verfahren zur Kohlevergasung beschrieben wird, welches eine Schüttung feinkörnigen Stoffes durch einen aufwärtsgerichteten Gasstrom in einen flüssigkeitsähnlichen Wirbelzustand versetzen lässt.

Neben dem Prozess der reinen Granulation, welcher durch vielfaches Aufsprühen, Spreiten und Verfestigen von Flüssigkeit das Partikel zwiebelartig anwachsen lässt, besitzt die Agglomeration eine große Bedeutung. Die Agglomeration kann als Prozess der Verbindung feinkörniger Primärpartikel zu einer großen porösen Struktur beschrieben werden. Dieser Verfahrensschritt wird häufig in der feststoffverarbeitenden Industrie angewendet. Durch die Agglomeration der kleinen Partikel werden die Transporteigenschaften, beispielsweise die Fließfähigkeit, entscheidend verbessert. Weiterhin wird die Neigung zur Staubbildung erheblich reduziert. Gerade letzterer Punkt ist von äußerster Wichtigkeit, wenn es sich um einen toxischen Stoff handelt oder das Risiko von Staubexplosionen besteht. Außerdem kann durch die Agglomeration die Löslichkeit verbessert werden, da die Agglomerate bei der Auflösung weniger zu Verklumpungen neigen. Feine Partikel neigen bei Lösungsvorgängen unter Umständen dazu, auf dem Lösungsmittel zu schwimmen.

Die Feuchttagglomeration kann in Wirbelschichten, in Drehtrommeln oder in Mischern durchgeführt werden. Auf Grund der in den verschiedenen Apparaten auftretenden Kräfte können die Verbindungen bzw. Brücken zwischen den Partikeln aufgebrochen werden. In diesem Fall hängt die Agglomerationsneigung von der Brückenbildung und -zerstörung ab. Da diese Kräfte wiederum eine apparatespezifische Größe darstellen, hat der Apparat somit einen direkten Einfluss auf die Agglomerationsrate sowie auf die sich einstellenden Eigenschaften der Partikel. Wird ein Agglomerat in einem Mischer erzeugt, in dem durch entsprechende Einbauten hohe Kräfte

auf die Partikel wirken, weist es eine wesentlich höhere Dichte auf, als jene Agglomerate, die in einer Wirbelschicht hergestellt wurden. Somit hängt die Wahl des Apparates auch von den gewünschten Produkteigenschaften ab.

Obwohl die Wirbelschicht-Agglomeration eine sehr weite Verbreitung gefunden hat, stellen neue unbekannte Materialien stets eine neue Herausforderung dar. Grund hierfür sind die Einflüsse der unterschiedlichen stofflichen Eigenschaften auf das Agglomerationsergebnis. Somit sind Mechanismen, die mit der Partikelvergrößerung verbunden sind, sowohl durch apparative als auch durch materialspezifische Parameter definiert.

Bei der absatzweisen Agglomeration ist es notwendig, möglichst gleiche Agglomerat- bzw. Produkteigenschaften zu erreichen. Dies ist gerade in der pharmazeutischen Industrie von besonderer Wichtigkeit. Die Qualität der Produkte muss zu jeder Zeit erreicht werden und zeitlich invariant sein. Für eine gute Prozessbeherrschung ist ein umfassendes Verständnis der Prozesse notwendig, welche die Agglomeration beeinflussen. Dennoch verwiesen Iveson u. Litster (1998) darauf, dass der gesamte Prozess der Partikelvergrößerung noch immer mehr als Kunst als eine Wissenschaft aufgefasst wird.

1.2 Stand des Wissens

1.2.1 Einflussparameter auf den Agglomerationsprozess

In der Arbeit von Schaafsma (2000) wird eine Übersicht der wesentlichen Einflussgrößen auf den Agglomerationsprozess gegeben. Hierbei wird eine Unterscheidung in apparate-, prozess- und produktspezifische Faktoren vorgenommen.

Zu den Einflussgrößen der apparativen Ausstattung zählen der Anströmboden, Düsenart und -anordnung sowie Einbauten in die Schicht wie beispielsweise mechanische Zerschläger. Der Anströmboden ist für eine gleichmäßige Verteilung des Fluidisierungsgases innerhalb des Wirbelbettes verantwortlich. Um diese Vergleichmäßigung zu gewährleisten, muss der Boden einen hinreichend großen Druckverlust aufweisen. In den Arbeiten von Ormos u. a. (1973) wird gezeigt, dass der Anströmboden einige Eigenschaften der Granulate, wie zum Beispiel die Größenverteilung oder die Porosität, beeinflussen kann. Eine konische Form der Wirbelkammer mit einem Verhältnis von 1 : 2 bis 1 : 2.5 zwischen dem Durchmesser der Kammer am Anströmboden und dem Durchmesser am Kammeraustritt hat sich als vorteilhaft herausgestellt. Durch diese Maßnahme muss die Gasgeschwindigkeit um mehr als die Hälfte absinken, wodurch zum einen der Austrag kleiner Partikel und zum anderen die Segregation großer Partikel minimiert wird. Der Typ und die Anordnung der Düsen wurden in zahlreichen Arbeiten ausführlich untersucht. Die Düse dient dazu, die Flüssigkeit auf die fluidisierten Partikel zu verteilen. In der Regel kommen außenmischende Düsen zum Einsatz, da bei diesem Typ die Tropfenverteilung unabhängig vom Flüssigkeitsdurchsatz variiert werden kann. Weiterhin neigen diese Düsen weniger zum Verstopfen. Die Düse selbst kann oberhalb oder direkt im Bett positioniert werden. Bei der letzteren Variante sind weiterhin Eindüsung von der Seite, von oben oder von unten möglich. Nachteilig können sich in die Schicht eingetauchte Düsen auf den Abrieb auswirken, da die Agglomerate höheren Belastungen auf Grund der Verdüsungsluft in der Düsennähe ausgesetzt sind. Einbauten wie mechanische Zerschläger wurden ursprünglich dort eingesetzt, wo es auf Grund der kohäsiver Eigenschaften der Partikel zu einer mangelhaften Fluidisation bzw. Kanalbildung kam. Eine weitere Funktion des Zerschlägers ist die Zerkleinerung von Partikeln, sodass ein Gleichgewicht zwischen Agglomeration und Bruch eingestellt wird.

Zu den Prozessparametern, die zur Regelung des Agglomerationsprozesses genutzt werden können, zählen der Fluidisierungsluftmassenstrom, die Gaseintrittstemperatur, die Luftfeuchte sowie die Betriebsparameter der Düse. Der Arbeitsbereich des Gasmassenstroms wird durch die Austragsgeschwindigkeit der kleinsten Partikel sowie durch die Geschwindigkeit der Minimalfluidisation der größten Partikel definiert. Gore u. a. (1985) zeigen, dass eine höhere Fluidisationsgeschwindigkeit durch die höhere Verdampfungsrate und den größeren Abrieb zu kleineren Agglomeraten führt. Eine höhere Eintrittstemperatur des Gases erzeugt dichtere und kleinere Partikel. Die Feuchte im Bett kann ebenfalls als Kontrollparameter genutzt werden wie Watano u. a. (1996) zeigten. Prinzipiell haben diese Parameter Einfluss auf die Flüssigkeitskonzentration im Wirbelbett. Diese Konzentration wiederum hat einen direkten Einfluss auf die Haftkräfte zwischen den Partikeln und somit auf die Agglomeration. In den Arbeiten von Watano u. a. (1996) wurde dargestellt, dass die relative Luftfeuchte, welche von der Betttemperatur abhängt und über das Adsorptionsverhalten die Partikelfeuchte bestimmt, die erzielbare Granulatgröße beeinflusst. Eine höhere Feuchte führt zu größeren Partikeln, während aus geringeren relativen Luftfeuchten kleinere Agglomerate resultieren. Die Eindüsungsrate ist ein weiterer wichtiger Prozessparameter, um die Agglomeratgröße einzustellen. Bei einem Ungleichgewicht zwischen eingedüster Flüssigkeitsmasse und der den Trocknungsvorgang verdampfenden Masse kann es zu einer Überfeuchtung im Bett kommen. Zu geringe Eindüsungsmengen können zu sehr kleinen Sprühtropfen führen, die bereits trocknen, bevor sie auf dem Partikel abgeschieden werden. Ormos u. a. (1973) stellten in ihren Arbeiten Ergebnisse vor, die einen linearen Zusammenhang zwischen dem Bindergehalt und der Partikelgröße wiedergeben. Durch die Bauform und Betriebsweise der Düse werden neben der Sprühtropfenverteilung auch die Tropfengeschwindigkeit und die Sprühform determiniert. Da die Düse nahezu unabhängig vom Agglomerationsvorgang charakterisiert werden kann, bietet sie einen guten Ansatzpunkt, den Prozess zu steuern. Henneberg (2004) untersuchte den Einfluss der Düsenbauform und Anordnung auf die Prozessbedingungen. Bedingt durch die Düsenart und den Betriebsparametern der Eindüsung bildeten sich starke Temperaturfelder aus. Besonders in der Düsennähe konnte ein deutlicher Abfall der Temperatur nachgewiesen werden. Systematische Untersuchungen der wesentlichen Einflussparameter auf das Trocknungs- und Adsorptionsverhalten in flüssigkeitsbedühten Wirbelschichten wurden von Ihlow (2003) und Ihlow u. a. (2002) durchgeführt. Kern dieser Arbeiten war die Beschreibung der Abgasreinigung, wobei ein wesentlicher Punkt in der Bestimmung der in der Schicht enthaltenen Flüssigkeit war. Es wurde nachgewiesen, durch welche Prozessparameter die Flüssigkeitsmenge im Wirbelbett beeinflusst wird und somit der Adsorptionsprozess kontrolliert werden kann.

Produktspezifische Faktoren beeinflussen den Agglomerationsprozess ebenfalls in großem Umfang. Hauptsächlich sind hierbei die Fluidisierungseigenschaften des Materials, die Benetzbarkeit, der Bindertyp und die Binderkonzentration zu nennen. Da die Scherkräfte in der Wirbelschicht im Vergleich zu einem Highshear-Mischer viel geringer sind, nimmt die Bedeutung der Produkteigenschaften wie Benetzbarkeit stark zu. Bedingt durch ein sehr feines Ausgangsmaterial sind die Fluidisierungseigenschaften bei der Agglomeration zunächst sehr schlecht. Durch konstruktive Maßnahmen, wie beispielsweise eine Schwingung des gesamten Apparates, kann die schlechte Fluidisierung verbessert werden. Wie erwähnt, ist die Benetzbarkeit ein weiterer prozessbeeinflussender Faktor. Aus einer schlechten Benetzbarkeit resultieren kleinere Partikel. Diese Art von Materialien müssen durch eine höhere Sprühdichte leicht überfeuchtet werden. Die Art des Binders hängt von den geforderten Produkteigenschaften sowie Prozessschritten wie beispielsweise der Tablettierung ab. Die Festigkeit der Agglomerate kann über die Menge und

den Typ des Binders kontrolliert werden. Wie Gore u. a. (1985) zeigten, führt eine Erhöhung der Binderkonzentration zu einer Verringerung des Feinkornanteils der Agglomerate und einer Erhöhung der mittleren Agglomeratgröße. Die Viskosität des Binders beeinflusst die Tropfenverteilung und somit die Größe der Granulate.

1.2.2 Agglomerationsmechanismen

Für eine erfolgreiche Agglomeration ist es notwendig, dass es zu einer dauerhaften Verbindung zwischen den Primärpartikeln kommt, welche das Agglomerat bilden. Die Primärpartikel müssen durch feste stoffliche Verbindungen, sogenannte Feststoffbrücken, zusammengehalten werden. Diese Brücken bilden sich durch Verfestigung feststoffhaltiger Flüssigkeitslamellen an den Kontaktstellen zwischen den Primärpartikeln. Derartige Flüssigkeitslamellen entstehen durch einen engen Kontakt zwischen den Partikeln und eine in die Schicht einzubringende Flüssigkeitsmenge. Der enge Kontakt ist die Folge von Kollisionen zwischen den Partikeln in der Wirbelschicht. Des Weiteren können Haftkräfte den beschriebenen Vorgang unterstützen. Die auf Rumpf (1959); Rumpf u. Hermann (1970); Rumpf (1974) zurückgehenden Untersuchungen über statische Bindungsmechanismen während der Agglomeration sind in Abbildung 1.1 zusammengefasst. Inzwischen gibt es hierzu ein umfangreiches Schrifttum, beispielsweise von Schubert (1973, 1979, 1990, 1982). In neuerer Zeit sind Arbeiten von Ennis u. a. (1991, 1990) erschienen, die es erlauben, die Agglomerationsvorgänge bei der Wirbelschicht-Sprühgranulation dynamisch zu analysieren.

Bei der Wirbelschicht-Sprühgranulation bestehen die Partikel aus dem arteigenen Feststoff. Hauptsächlich entstehen kohäsiven Bindungen ohne Brücken zwischen den Partikeln durch kohäsive Wechselwirkungen der Wassersorptionshüllen. Derartig fest gebundene und unbeweglichen Wassersorptionshüllen können als gemeinsame Sorptionsschicht den Zusammenhalt von Partikeln bewirken. Für die Agglomeration ist dieser Bindungsmechanismus nach Uhlemann u. Mörl (2000) nicht von Bedeutung. Erst bei dickeren Wasserschichten bilden sich zwischen den Partikeln Flüssigkeitsbrücken, die für den kurzzeitigen Zusammenhalt der Primärpartikel während des Agglomerationsprozesses die wichtigste Bindungsart darstellen. Durch den Trocknungsprozess bildet der in der Flüssigkeitsschicht gelöste Feststoff aus der Flüssigkeitslamelle eine Feststoffbrücke, welche den dauerhaften Zusammenhalt der Partikel gewährleistet.

Bei den Feststoffbrücken wird zwischen Bindemittelbrücken und den sogenannten Sinterbrücken unterschieden. Bindemittelbrücken werden gebildet, wenn die eingedüste Flüssigkeit eine Suspension aus primären Partikeln in einer Bindemittellösung ist. Während der Trocknung nimmt die Viskosität der Flüssigkeitsbrücken ständig zu, bis diese zu einer festen Masse erstarrt. Hohe Bindungsfestigkeiten entstehen besonders dann, wenn das Bindemittel ein Polymer ist, welches sich in amorpher Form verfestigt. Laut Uhlemann u. Mörl (2000) bleibt die Individualität der verbundenen Partikel bei Feststoffbrücken aus Bindemitteln erhalten. Auf diese Weise gebildete Agglomerate zerfallen bei ihrer Auflösung in die ursprünglichen Partikel. Sinterbrücken hingegen sind Feststoffbrücken, bei denen die ursprünglichen Partikel miteinander derart verwachsen, dass bei ihrer Auflösung ihre Individualität verloren geht. Diese Art von Brücken werden aus einer Lösung gebildet. Voraussetzung hierfür ist, dass die Partikel teilweise löslich sind. Durch den Trocknungsprozess treten Verkrustungen aus rekristallisiertem Material auf, die zu einer festen Verbindung der Partikel führen.

Die Agglomerationswahrscheinlichkeit wird als Produkt der Wahrscheinlichkeiten von drei Ereignissen verstanden, welche in der Tabelle 1.1 zusammengefasst sind. Zunächst müssen die Partikel durch die vom Gasstrom hervorgerufene Bewegung kollidieren. Dieser Vorgang wird

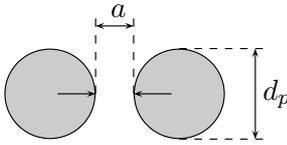
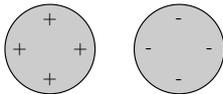
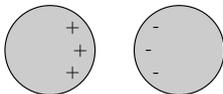
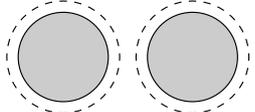
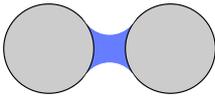
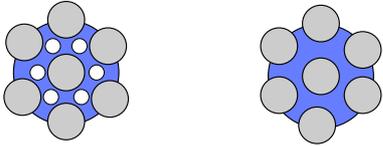
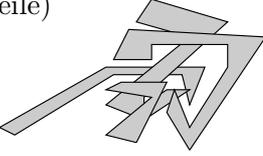
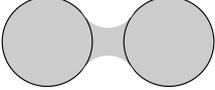
Nichtstoffliche Bindung	Stoffliche Bindung
<p><u>Van der Waals-Kräfte</u></p> $F_H \sim \frac{d_p}{a^2}$  <p><u>Elektrostatische Kräfte</u> bei elektrisch <u>leitenden</u> Stoffen</p> $F_H \sim \frac{d_p}{a}$  <p>bei elektrisch <u>isolierenden</u> Stoffen</p> $F_H \sim \frac{d_p^2}{1 + \frac{a}{2d_p}}$ 	<p><u>Flüssigkeitsbrücken</u> Wassersorptionshüllen (kohäsive Wirkung bei gleichartigen Stoffen, sonst adhäsiv)</p>  <p>kapillare Zwickelflüssigkeit (bewegliche Flüssigkeit)</p> <p><u>Zwei Partikel</u></p>  <p><u>Haufwerke</u> ungesättigte Poren gesättigte Poren</p> 
<p><u>Formschluss</u> (durch Verhaken unregelmäßig geformter Teile)</p> 	<p><u>Feststoffbrücke</u> (durch Kristallisation gelöster Anteile Erhärten von gelösten Polymeren etc.)</p> 

Abbildung 1.1: Statische Haftung zwischen Partikeln nach Uhlemann u. Mörl (2000)

Tabelle 1.1: Bewertung der Bedingungen für einen Agglomerationserfolg nach Bauer u. a. (1993)

	Wahrscheinlichkeit bzw. Effizienz	
	minimal bzw. gering	maximal bzw. hoch
<i>Kollisionswahrscheinlichkeit</i>		
Schichthöhe	klein	groß
Fluidisationszahl	gering	groß
<i>Haftwahrscheinlichkeit</i>		
Partikelgröße	groß	klein
Befeuchtung	lokal	vollständig
Trocknungsgeschwindigkeit	groß	klein
kapillare Haftkraft	klein	groß
<i>Kollisionseffizienz</i>		
Partikelgröße	klein	groß
scherende Strömungskräfte	groß	klein
Feststoffgehalt	klein	hoch
Trocknungsgeschwindigkeit	gering	hoch

durch die Kollisionswahrscheinlichkeit erfasst. Die Haftwahrscheinlichkeit drückt die Verbindung von Partikeln durch nichtstoffliche Kräfte, welche nach Hinzutreten von Flüssigkeit durch eine Flüssigkeitsbrücke zusammengehalten werden. Die Flüssigkeitsbrücke muss dabei ausreichend große Kräfte liefern, um die Partikel zusammenzuhalten. Letztlich muss sich die Flüssigkeitsbrücke zu einer dauerhaften Feststoffbrücke verfestigen, wofür zur Beschreibung die Kollisionseffizienz als Maß genutzt werden kann. Bereits hier ist zu erkennen, dass eine vollständige physikalisch-begründete Modellierung des Agglomerationsvorganges äußerst schwierig ist. Die drei Wahrscheinlichkeiten, welche einen maßgeblichen Einfluss auf das Agglomerationsergebnis haben, unterliegen wiederum selbst einer Reihe von Einflussgrößen, die in ihrer Gesamtheit nur sehr schwer zu erfassen sind. Dennoch geben eine Reihe von Autoren einige Korrelationen an, die eine erste Abschätzung der erzielbaren Agglomeratgröße zulassen.

Uhlemann u. Mörl (2000) verweisen darauf, dass bei kugelförmigen Agglomeraten, bei denen der Flüssigkeitstropfen die Hohlräume zwischen den Partikeln ausfüllt, der Lückengrad für die dichteste Packung der Primärpartikel in einem Agglomerat vom Verhältnis der Durchmesser Primärpartikel zum Agglomerat abhängt. Die Partikelanzahl verringert sich relativ mit fallendem Agglomeratdurchmesser. Demzufolge steigt der Lückengrad mit abnehmenden Agglomeratdurchmesser. Uhlemann u. Mörl (2000) geben für das Verhältnis aus Agglomeratdurchmesser d_p und Durchmesser des Sprühtropfens d_T einen Wert von $d_p/d_T = 1.32 \dots 1.45$ an.

In den experimentellen Untersuchungen von Thurn (1970) zur Agglomeration von Lactose mit Gelatine als Bindemittel wurde keine gesetzmäßige Abhängigkeit von der Tropfengröße festgestellt. Dennoch konnte gezeigt werden, dass der Tropfendurchmesser einen entscheidenden Einfluss auf die Größe der entstehenden Agglomerate hat. Mit steigender Tropfengröße wuchs auch die Agglomeratgröße.

Durch Untersuchungen in Drehtrommeln konnten Gluba u. Antkowiak (1988) Ergebnisse erzielen, welche diese Beobachtungen bestätigen. Sie zeigten, dass eine aufgetropfte Binderflüssig-

keit im Vergleich zur aufgespritzten Lösung wesentlich gröbere, weniger abriebfeste Granulate liefert. Durch das feine Aufsprühen der Flüssigkeit kommt es zu einer besseren Verteilung im Partikel, wodurch kleine Flüssigkeitsbrücken gebildet werden. Durch das Auftropfen hingegen entsteht ein Bereich hoher Sättigung im Partikel, an den sich weitere Partikel anlagern können.

Von Waldie (1991) stammen Untersuchungen zum Einfluss der Tropfengröße auf die Agglomeratbildung von Lactose und Glas-Partikeln mit einer 5%-igen wässrigen PVP-Lösung als Sprühflüssigkeit. Die Fluidisationszahl war mit 1.2 gering. Es wurden gleichgroße Einzeltropfen verwendet und die Tropfengröße zwischen $150 - 5000 \mu m$ variiert. Die Messungen zeigten, dass $d_p/d_T \approx 1.5 \dots 3.5$ gilt und alle Ergebnisse mit $d_p \sim d_T^f$ korrelieren. Die Potenz f ist für Lactose mit $f = 0.8$ und für Glas mit $f = 0.85$ angegeben.

Mit Ausnahme der elektrisch isolierenden Stoffe nimmt die Haftung mit wachsendem Partikeldurchmesser für alle statischen Bindungsarten ab ($\sigma \sim 1/d_p$). Bei einer Bewegung im Fluidstrom treten Strömungs- und Scherkräfte auf. Ennis u. a. (1991, 1990) verweisen darauf, dass diese dynamischen Effekte bei den Gleichgewichtsbetrachtungen an statischen Haftkräften nicht erfasst werden. In den Arbeiten von Ennis u. a. (1991) wird ein dynamisches Modell vorgestellt, welches die Kollision von zwei Partikeln aufzeigt, wobei jedes Partikel mit einem Flüssigkeitsfilm der Dicke s bedeckt ist. Die Strecke von $2 \cdot s$ stellt jenen Weg dar, der bei einer Kollision der Partikel für das Abbremsen auf die Relativgeschwindigkeit zur Verfügung steht. Die viskose Flüssigkeit, welche die Partikel umgibt, muss bei dieser Annäherung verdrängt werden. Wird für diesen Vorgang die kinetische Energie der Partikel verbraucht, so ist der Zusammenprall auf jeden Fall erfolgreich und die Partikel bleiben aneinander haften. Übersteigt die kinetische Energie die viskose Dissipation, so werden kapillare Kräfte zusammen mit viskosen Kräften den Rückprall dämpfen. Nach Ennis u. a. (1991) übersteigen diese dynamischen Kräfte die statischen bei Weitem. Zur Beurteilung einer erfolgreichen Kollision in dem dynamischen Modell von Ennis u. a. (1991) werden die viskose Stokes-Zahl

$$St_v = \frac{4\rho_p d_p u_p}{9\eta_l} \quad ,$$

wobei u_p die relative Kollisionsgeschwindigkeit der Partikel und η_l die dynamische Viskosität der Flüssigkeit darstellt, und die kritische viskose Stokes-Zahl

$$St_c = \left(1 + \frac{1}{e}\right) \ln\left(\frac{s}{\varsigma}\right)$$

angegeben. Hierbei repräsentiert e den Partikelstoßkoeffizienten und ς die Dicke der Oberflächenrauigkeiten. Ist St_c kleiner als St_v , so ist die viskose Dissipation der Flüssigkeitsfilme ausreichend, um die Partikel aneinander haften zu lassen.

Die Arbeiten von Ennis u. a. (1991, 1990) zielen darauf ab, die Agglomeration von nicht-deformierbaren, elastischen Partikeln zu erläutern. Einen weiteren Ansatz zur Beschreibung der Partikelvergrößerung unter Berücksichtigung einer plastischen Deformation geben Iveson u. Litter (1998). Sie entwickelten das in der Abbildung 1.2 dargestellte Schema. Es stellt verschiedene Gebiete für die Partikelvergrößerung in Abhängigkeit von lediglich zwei Parametern dar. Dies ist zum einen die maximale Porensättigung S_{max}

$$S_{max} = \frac{\rho_p}{\rho_l} \cdot \frac{X(1 - \psi_{min})}{\psi_{min}} \quad ,$$

zum anderen die Stokes-Zahl für die Verformung St_{def}

$$St_{def} = \frac{\rho_p u_p^2}{2\sigma_d} .$$

Hierbei sind X das Verhältnis aus Flüssigkeits- und Feststoffmenge, ψ_{min} die minimale Porosität der Partikel unter den entsprechenden Betriebsbedingungen und σ_d die dynamische Fließspannung. Der Parameter St_{def} stellt das Verhältnis aus der kinetischen Energie beim Zusammenstoß zweier Partikel und der plastischen Verformung dar. Somit werden in diesem Wert prozess- und produktspezifische Größen miteinander verknüpft. Die Art des Wachstums hängt nun von den Werten S_{max} und St_{def} ab. Eine grobe Unterteilung kann zunächst zwischen dem gleichmäßigen Wachstum, bei dem die Partikelgröße linear mit der Zeit ansteigt, sowie dem induzierten Wachstum, bei welchem die Partikelvergrößerung verzögert auftritt, vorgenommen werden. Das gleichmäßige Wachstum tritt in Systemen auf, in denen die Partikel stark verformbar sind. Iveson u. Litster (1998) postulierten, dass diese Art von Wachstum bei groben Partikeln mit einer engen Partikelgrößenverteilung und geringen Binderviskositäten auftritt. Das induzierte Wachstum hingegen wurde bei festen Partikeln beobachtet. Ohne die Anwesenheit von Flüssigkeit ist die Deformation der Partikel infolge der Kollisionen nicht groß genug, um zu einer Agglomeration zu führen. Zu Beginn der Befeuchtung kommt es nur zu einem ganz geringen Wachstum. Erst wenn die Partikel genug Flüssigkeit aufgenommen haben, sodass diese bei den Kollisionen an die Partikeloberfläche gedrückt wird, bleiben die Partikel aneinander haften. Das Wachstum setzt schlagartig ein, bis die Partikel eine kritische Agglomeratgröße erreicht haben. Induziertes Wachstum tritt bei Systemen mit feinem Ausgangsmaterial und einer breiten Partikelgrößenverteilung sowie hohen Binderviskositäten auf. Diese Art von Wachstum wurde bisher nicht in der Wirbelschicht-Sprühagglomeration beobachtet. Der Grund hierfür liegt in den geringen Kollisionskräften bei der reinen Fluidisation. Iveson u. Litster (1998) verwiesen darauf, dass die Grenzen zwischen den einzelnen Bereichen stark von den verwendeten Materialien und den Prozessbedingungen abhängen. Das von ihnen entwickelte Schema besitzt einen ausschließlich beschreibenden Charakter. Es ist nicht möglich, dass Wachstumsverhalten mit diesem Ansatz allgemeingültig vorherzusagen.

1.3 Motivation und Zielstellung

Die Beschreibung von Agglomerationsvorgängen unter praxisnahen Bedingungen ist auf Grund der Vielzahl von Einflussgrößen bisher nicht möglich gewesen. In einigen Veröffentlichungen (Tan u. a. (2004)) werden Lösungsansätze zur Beschreibung der Populationsdynamik bei Agglomerationsprozessen vorgestellt, welche in der Regel die Abhängigkeit der Agglomerationskerne von bestimmten ausgewählten Prozessparametern wiedergeben. Nur wenige Arbeiten zielen darauf ab, die makroskopischen Vorgänge, wie zum Beispiel die Fluidisation von Partikeln in einer Wirbelschicht oder die Trocknungsvorgänge, vollständig mit einem geeigneten Populationsbilanzmodell zu verknüpfen.

Der ersten Teil der Arbeit gibt eine systematische Darstellung von Populationsbilanzmodellen zur Beschreibung von Aggregationsvorgängen und Wachstumsvorgängen. Ausgehend von dem fundamentalen Aggregationsmechanismus, bei dem sich zwei Partikel zu einem neuen Partikel vereinigen, werden die Ansätze dargestellt, aus welchen sich die kontinuierlichen Gleichungen und diskreten Modelle zur Beschreibung dieses Vorganges ergeben. Ziel ist es, sowohl die Vor- als auch

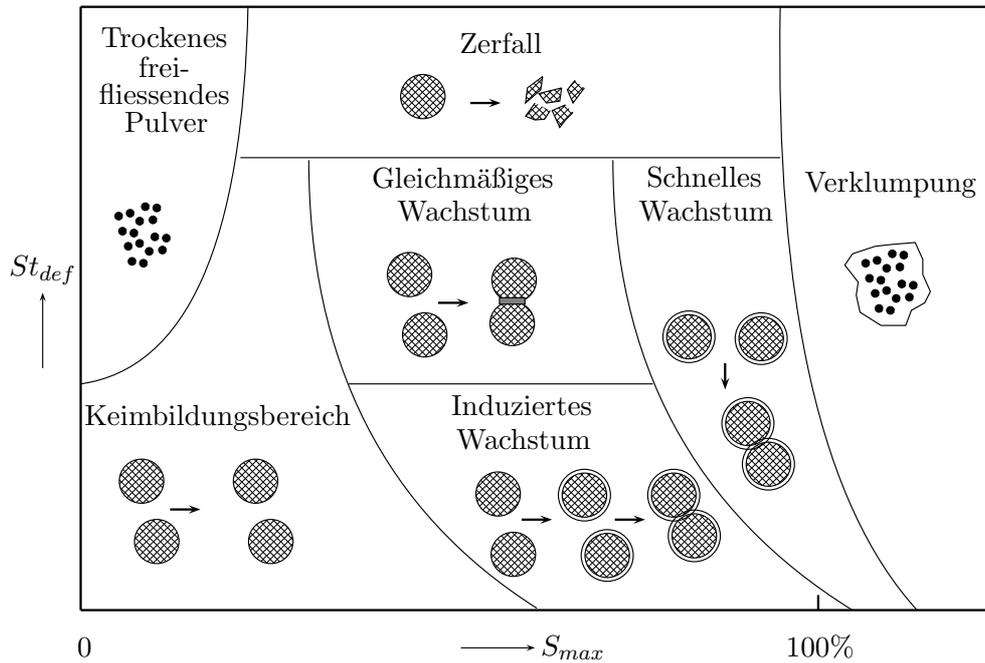


Abbildung 1.2: Bereich des Partikelwachstums nach Iveson u. Litster (1998)

die Nachteile der einzelnen Konzepte auf eine für den Ingenieur verständliche Art darzulegen. Weiterhin werden neue Lösungsvorschläge für die Modellierung populationsdynamischer Systeme erarbeitet, die es erlauben, die bisher vorhandenen Modelle zu verbessern oder zu ersetzen.

Der zweite Teil der Arbeit widmet sich dem Verfahren der Wirbelschicht-Sprühagglomeration. Für diese Thematik wird die Anwendbarkeit der diskutierten Populationsbilanzmodelle demonstriert und durch experimentelle Untersuchungen validiert. Ein wesentlicher Punkt ist die Entwicklung eines Modells, das es ermöglicht, den Agglomerationsvorgang der Partikel gekoppelt mit den Wärme- und Stoffübergangsmechanismen zu beschreiben. Weiterhin wird eine praxistaugliche Methode aufgezeigt, durch welche das Agglomerationsverhalten durch eine empirische Agglomerationskinetik wiedergegeben werden kann.

Kapitel 2

Populationsbilanzen

In einer Vielzahl von verfahrenstechnischen Prozessen spielen disperse Feststoffsysteme eine wichtige Rolle. Meist treten diese Systeme als Zweiphasensysteme auf, bei denen die disperse Phase in Form einer Population vorliegt. Die disperse Phase steht über eine Phasengrenze mit der kontinuierlichen Phase im Wärme-, Stoff- und Impulsaustausch. Der Ausdruck Population verdeutlicht, dass die disperse Phase über bestimmte Eigenschaften (Eigenschaftskordinaten) verteilt ist. Hier wird zwischen internen und externen Koordinaten unterschieden. Letztere werden zur Beschreibung der räumlichen Verteilung der Population genutzt. Interne Koordinaten sind Eigenschaften der dispersen Phase, wie beispielsweise das Volumen. Mit Hilfe dieser Eigenschaftskordinaten werden Verteilungsfunktionen definiert. Am gebräuchlichsten ist hierbei die Anzahldichtefunktion, welche die Anzahl von Individuen in einem bestimmten Bereich der Eigenschaftskordinate wiedergibt. Ein Individuum wird als ein einzelnes Element der Population verstanden.

Die Anzahldichtefunktion n soll die Zahl der Partikel beschreiben, die sich zu einem bestimmten Zeitpunkt in einem Teilvolumen des Zustandsraumes aufhalten. Der Zustandsraum wird durch die räumlichen Koordinaten \vec{e} (externe Koordinaten) und Eigenschaftskordinaten \vec{i} (interne Koordinaten) aufgespannt. Damit ergibt sich die Gesamtzahl aller Partikel innerhalb des geometrischen Raumes und des Eigenschaftsraumes aus der Integration über die Volumenelemente beider Räume

$$N(t) = \int_{\Omega_e} \int_{\Omega_i} n(\vec{e}, \vec{i}, t) dV_e dV_i \quad . \quad (2.1)$$

Für örtlich konzentrierte Systeme ist die Anzahldichtefunktion $n(\vec{i}, t)$ lediglich eine Funktion des Eigenschaftsraumes und der Zeit.

2.1 Die kontinuierliche Populationsbilanz für Aggregation

Allgemein lautet die Bilanzgleichung nach Randolph u. Larson (1971) für die zeitlich veränderliche Partikelanzahldichte eines offenen Systems mit dem Partikelvolumen als interne Eigenschaftskordinate

$$\frac{\partial n(t, v)}{\partial t} + \frac{\partial G(t, v)n(t, v)}{\partial v} = B_{agg} - D_{agg} + B_{break} - D_{break} + \dot{n}_{in} - \dot{n}_{out} \quad . \quad (2.2)$$

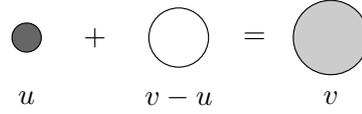


Abbildung 2.1: Binäre Aggregation unter Erhaltung des Volumens

In dieser Gleichung bezeichnet der Akkumulationsterm $\frac{\partial n(t,v)}{\partial t}$ die Veränderung der Anzahldichte der Partikel. Der konvektive Anteil $\frac{\partial G(t,v)n(t,v)}{\partial v}$ erfasst das Wachstum der Partikel, welches aus einer Änderung des Partikelvolumens v resultiert. Auf der rechten Seite der Gleichung befinden sich Quellen- (B) bzw. Senkenterme (D), welche die Aggregation (agg) bzw. den Bruch ($break$) von Partikeln erfassen. Die über die Systemgrenze ein- und austretenden Ströme, werden mit Hilfe der Anzahldichteströme \dot{n}_{in} und \dot{n}_{out} beschrieben.

Im Rahmen dieser Arbeit werden Bruchereignisse nicht untersucht. Daher werden bei den weiteren Erläuterungen die entsprechenden Terme Null gesetzt. Zunächst sollen nur die den Aggregationsmechanismus beschreibenden Quellen- und Senkenterme genauer betrachtet werden. Um diesen Vorgang zu beschreiben, ist es zunächst notwendig, ein Aggregationsereignis näher zu definieren. Entsprechend der Abbildung 2.1 wird ein solcher Vorgang stets als binäre Koaleszenz von Partikeln verstanden, wobei die Bedingung der Erhaltung des Volumens gilt. Soll bei einer solchen Vereinigung ein Partikel mit dem Volumen v entstehen, so müssen zwei Partikel mit den Volumina u und $v - u$ miteinander aggregieren. Die Häufigkeit für das Auftreten solcher Ereignisse beschreibt der Aggregationskern $\beta(t, v, u)$, welcher eine Funktion der Zeit sowie der Partikelgrößen sein kann. In vielen Arbeiten (vgl. Sastry (1975), Hounslow u. a. (2001), Iveson (2002), Ding u. a. (2004), Tan u. a. (2004)) wird der Aggregationskern in eine zeitliche Komponente $\beta_0(t)$ und eine größenabhängige Komponente $\beta(v, u)$ zerlegt, sodass

$$\beta(t, u, v) = \beta_0(t) \cdot \beta(v, u) \quad (2.3)$$

gilt. Die Agglomerationsrate pro Zeiteinheit kann durch

$$r = \beta_0(t) \cdot \beta(u, v - u)n(t, u)n(t, v - u) \quad (2.4)$$

definiert werden. Hierbei stellt n die Anzahldichte dar, welche sich aus der Definition

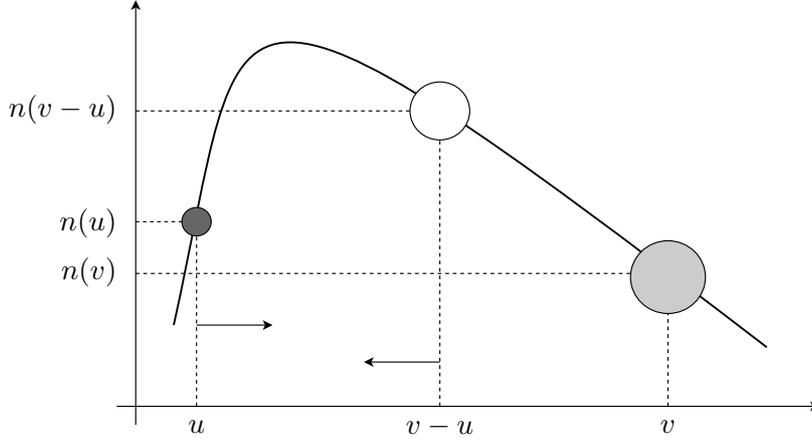
$$n = \frac{\partial N}{\partial v} \quad (2.5)$$

ergibt. Im Folgenden sei der Quellterm B_{agg} als Entstehungsrate und der Senkenterm D_{agg} als Schwundrate bezeichnet. Die Herleitung dieser Raten wird in den beiden folgenden Abschnitten behandelt.

2.1.1 Entstehungsrate der Aggregation

Gegeben sei eine beliebige Partikelverteilung zum Zeitpunkt t , wie sie in der Abbildung 2.2 dargestellt ist. Soll nun ein Partikel mit der Größe u , von welchem $n(u)$ vorhanden sind, ein Aggregat im Bereich der Größe v bilden, muss es mit einem Partikel der Größe $v - u$, von dem für diesen Prozess $n(v - u)$ zur Verfügung stehen, aggregieren. Somit gilt für die differentielle Entstehungsrate in v

$$\frac{\partial B_{agg(v)}}{\partial u} = \beta_0(t)\beta(u, v - u)n(u)n(v - u) \quad . \quad (2.6)$$

Abbildung 2.2: Modell für Berechnung der Entstehungsrate B_{agg}

Die Integration über alle möglichen Werte von u im Intervall $[0, v]$

$$B_{agg}(v) = \frac{1}{2} \int_0^v \beta_0(t) \frac{\partial B_{agg}}{\partial u} du = \frac{1}{2} \int_0^v \beta_0(t) \beta(u, v-u) n(u) n(v-u) du \quad (2.7)$$

ergibt sich die Entstehungsrate $B_{agg}(v)$. Da die Agglomerationsfrequenz symmetrisch ist, d.h. $\beta(u, v) = \beta(v, u)$ wird durch den Vorfaktor $1/2$ die Doppelzählung der Aggregation zwischen den Volumina $v-u$ und u berücksichtigt. Dies kann analog auch durch die Ersetzung der oberen Integrationsgrenze v durch $v/2$ erfolgen.

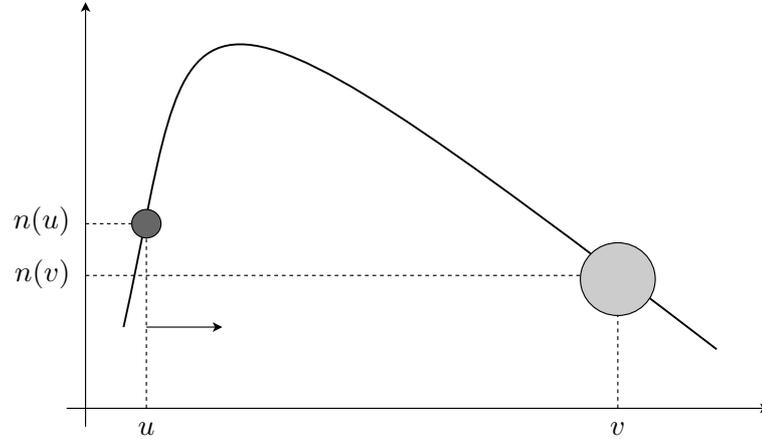
2.1.2 Schwundrate der Aggregation

Eine Aggregation zweier Partikel ist neben dem Entstehen eines neuen Partikels in v stets mit einem Schwund der beteiligten Partikel aus u und $v-u$ verbunden. Dieser Schwund wird durch den Senkenterm D_{agg} erfasst. Wiederum sei die Verteilung zu einem beliebigen Zeitpunkt gegeben (Abbildung 2.3). Soll aus dem Bereich v ein Partikel schwinden, so muss es mit einem Partikel einer beliebigen anderen Größe kollidieren. Die differentielle Schwundrate entspricht also dem folgenden Ausdruck

$$\frac{\partial D_{agg}(v)}{\partial u} = \beta_0(t) \beta(u, v) n(u) n(v) \quad (2.8)$$

Nach Integration über alle Werte von u im Intervall $[0, \infty]$

$$\int_0^\infty \frac{\partial D_{agg}(v)}{\partial u} du = \int_0^\infty \beta_0(t) \beta(u, v) n(u) n(v) du \quad (2.9)$$

Abbildung 2.3: Modell für Berechnung der Schwundrate D_{agg}

steht für die Schwundrate

$$D_{agg}(v) = n(v) \int_0^{\infty} \beta_0(t) \beta(u, v) n(u) du \quad . \quad (2.10)$$

Damit ergibt sich für die Populationsbilanz unter Verwendung des Partikelvolumens als Koordinate die folgende Gleichung zur Beschreibung der Partikelverteilung (vgl. Hulburt u. Katz (1964))

$$\frac{\partial n(v)}{\partial t} + \frac{\partial G(v)n(v)}{\partial v} = \frac{1}{2} \int_0^v \beta(u, v-u) n(u) n(v-u) du - n(v) \int_0^{\infty} \beta(u, v) n(u) du + \dot{n}_{in} - \dot{n}_{out} \quad . \quad (2.11)$$

Dieser Gleichungstyp wird auf Grund der enthaltenen Integralterme als partielle Integro-Differenzialgleichung bezeichnet. Hounslow (1990a) verweist darauf, dass keine allgemeingültige analytische Lösung dieser Gleichung existiert. Nur für eine Reihe von vereinfachenden Annahmen sind analytische Formulierungen verfügbar. Allgemein lässt sich dieser Gleichungstyp nur mit Hilfe geeigneter numerischer Methoden berechnen.

2.2 Erweiterung der Eigenschaftskordinaten

Bisher wurde davon ausgegangen, dass die bilanzierten Partikel als einzige Eigenschaftskordinate das Partikelvolumen v aufweisen. Demnach ist die Partikelanzahl neben der zeitlichen Abhängigkeit lediglich eine Funktion des Volumens. Bei einer Vielzahl von Problemstellungen sind jedoch weitere Eigenschaftskordinaten zu berücksichtigen. So kann beispielsweise durch das Vermischen verschiedener Stoffströme ein Zustand erzeugt werden, bei dem Partikel gleicher Größe Unterschiede, wie verschiedene Schadstoffbelastungen oder Enthalpien, aufweisen. Auch

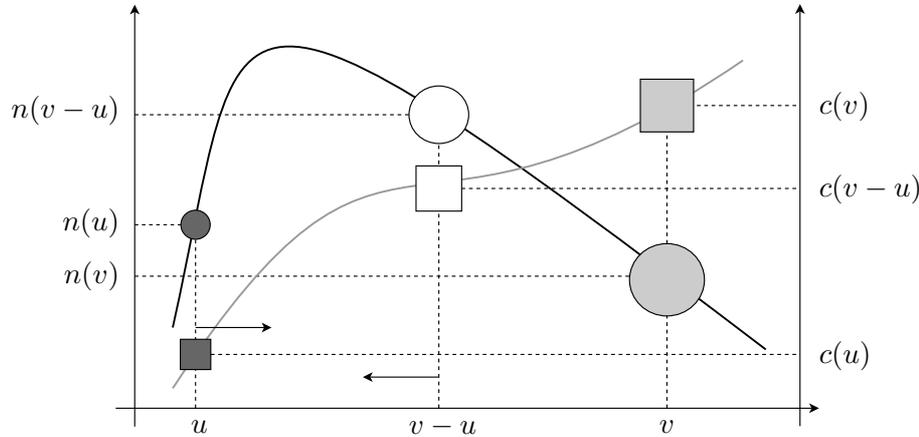


Abbildung 2.4: Modell für die Entstehungsrate bei Erweiterung der Eigenschaftskordinaten

eine unterschiedliche Verweilzeit der Partikel im System kann dazu führen, dass sich die Anzahl der Eigenschaftskordinaten erhöht.

Der mathematische Aufwand zur Lösung solcher mehrdimensionalen Populationssysteme ist sehr hoch, da jede weitere Eigenschaft die möglichen Zustände der Partikel exponentiell erhöht. Zudem ist besonders die experimentelle Untersuchung solcher Systeme ungeklärt. Für die exakte Vermessung eines Systems mit drei Eigenschaftskordinaten (z.B. Volumen, Schadstoffgehalt und Lösungsmittelgehalt), bei der jedes Messverfahren zur Erfassung der drei einzelnen Parameter eine Auflösung von 10 Punkten innerhalb des Messbereiches besitzt, müssten 10^3 mögliche Zustandspunkte analysiert werden. Neben der enormen Anzahl an Messpunkten für die Untersuchung einer einzigen Probe stellt sich zudem die Frage der experimentellen Durchführbarkeit. In der Regel sind keine Messverfahren vorhanden, die innerhalb des Systems gleichzeitig jedes Partikel auf alle drei Eigenschaften hin untersuchen können. Solche Untersuchungen müssten außerhalb des Prozesses vorgenommen werden, indem die Partikel zunächst nach ihrer Größe, anschließend innerhalb der entstandenen Fraktionen nach ihrem Schadstoffgehalt, und in einem nächsten Schritt entsprechend ihres Lösungsmittelgehaltes sortiert werden müssten. Bei dieser Prozedur würden 1000 zu messende Proben entstehen. Dieser extreme experimentelle Aufwand ist durch entstehende Messunsicherheiten und einen hohen zeitlichen Aufwand nicht zu rechtfertigen. Eine für die Praxis tauglichere Methode ist die Untersuchung der weiteren Eigenschaften als integrale Größe über das Partikelvolumen. Eine Fraktionierung der Partikel könnte durch eine Siebung relativ einfach realisiert werden. Innerhalb der entstandenen Fraktionen würden der gesamte Schadstoff- sowie Lösungsmittelgehalt als Integralwert über alle Partikel gleichen Volumens gemessen werden. Dadurch reduziert sich für das beispielhaft beschriebene System die Anzahl der möglichen Zustände auf $3 \cdot 10$. Diese Überlegungen sind der Ansatz für eine Erweiterung der Eigenschaftskordinaten im Sinne der Populationsbilanzen. Ausgangspunkt seien zwei zum Zeitpunkt t über dem Volumen verteilte Eigenschaften (Abbildung 2.4), wobei eine davon die Anzahldichte der Partikel $n(v)$ ist. Die zweite Eigenschaft sei eine Konzentration $c(v)$,

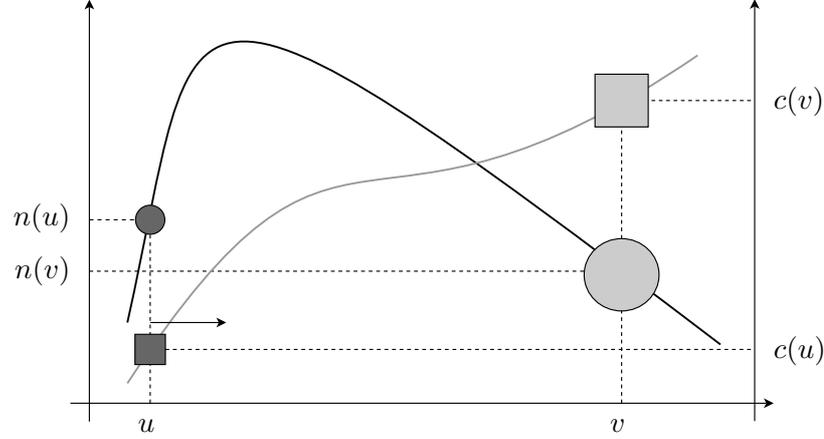


Abbildung 2.5: Modell für die Schwundrate bei Erweiterung der Eigenschaftskordinaten

welche eine Mengedichte $m(v)$ bezogen auf die Partikelanzahldichte darstellt

$$c(v) = \frac{m(v)}{n(v)} . \quad (2.12)$$

Findet nun ein Aggregationsereignis zwischen den Partikeln aus u und $v - u$ statt, so schwinden Partikel aus diesem Bereich und bilden ein neues Aggregat in v . Der Modellansatz basiert auf der Annahme, dass entsprechend des Anteils der aggregierenden Partikel aus u bzw. $v - u$ an der gesamten Anzahl der Partikel in u bzw. $v - u$ auch die zweite Eigenschaft, hier $c(v)$ bzw. $c(v - u)$, transportiert wird. Voraussetzung hierbei ist lediglich, dass es sich bei der neuen Eigenschaft um eine extensive Größe im thermodynamischen Sinn handelt. Diese Art von Größen, welche auch als Quantitätsgrößen bezeichnet werden, addieren sich beim Zusammenfügen zweier thermodynamischer Systeme. Neben der Masse oder der Stoffmenge zählt unter anderem auch die Enthalpie zu den extensiven Größen. Intensive Größen (Qualitätsgrößen) hingegen, welche sich aus der partiellen Ableitung einer extensiven Größe nach einer anderen extensiven Größe ergeben, hängen nicht von der Stoffmenge ab. Beispiele hierfür sind unter anderem Temperatur oder Dichte. Basierend auf der Populationsbilanzgleichung (2.11) unter Vernachlässigung der über die Systemgrenze tretenden Ströme sowie des Wachstumsterms kann für die zeitliche Änderung der extensiven Größe der erweiterten Eigenschaft

$$\frac{\partial m(v)}{\partial t} = \frac{1}{2} \int_0^v \beta(u, v - u) n(u) n(v - u) \{c(u) + c(v - u)\} du - n(v) \int_0^\infty \beta(u, v) n(u) c(v) du \quad (2.13)$$

geschrieben werden. Nach Vereinfachung steht für die zeitliche Änderung der extensiven Größe $m(v)$ durch Aggregation

$$\frac{\partial m(v)}{\partial t} = \int_0^v \beta(u, v - u) n(u) m(v - u) du - m(v) \int_0^\infty \beta(u, v) n(u) du . \quad (2.14)$$

Mit Hilfe dieser Gleichung lässt sich nun die Anzahl der Eigenschaftskordinaten unter den genannten Voraussetzungen beliebig erhöhen, wobei sich der mathematische Aufwand nur linear erhöht.

2.3 Analytische Lösungen für Populationsbilanzen

In dieser Arbeit werden zwei Arten von analytischen Lösungen für Populationsbilanzen näher betrachtet. Zum einen sind dies Gleichungen, mit deren Hilfe die Partikelanzahldichte $n(v, t)$ berechnet werden kann, zum anderen Ausdrücke, welche den Verlauf bestimmter Momente wiedergeben. In der Regel sind diese Lösungen nur für bestimmte Voraussetzungen, wie relativ einfache Aggregationskerne oder größenunabhängige Wachstumsprozesse, anwendbar. Eine weitere Möglichkeit zur Bestimmung von analytischen Lösungen ist die Laplace-Transformation. Diese wird im Rahmen dieser Arbeit nicht aufgeführt. Hounslow u. a. (1988) verweisen darauf, dass die Probleme der Inversion zu groß sind, um eine Aussage über die Partikelverteilung geben zu können.

2.3.1 Analytische Lösungen für Dichtefunktionen

In der Literatur existieren sehr wenige analytische Lösungen, welche die zeitliche Verlaufsform der Dichtefunktion wiedergeben können. Die Bedingungen, für die solche Lösungen gelten, sind sehr restriktiv. Für Aggregationsprozesse in einem abgeschlossenen System muss die Anfangsanzahldichteverteilung eine bestimmte Form aufweisen. In der Literatur wird in nur wenigen Fällen eine Funktion des Typs

$$n(v) = \frac{N_0 a^{\nu+1}}{v_2 \Gamma(\nu+1)} \left(\frac{v}{v_2}\right)^\nu \exp\left(-\frac{av}{v_2}\right) \quad (2.15)$$

angewandt. Dieser Typ wird durch Scott (1968) als Gauss-verteilungsähnliche Funktion bezeichnet. Hierbei ist ν eine positive Zahl, die kein ganzzahliger Wert sein muss. Die Parameter a und v_2 sind Konstanten. Das Symbol Γ bezeichnet die Gamma-Funktion. Das mittlere Volumen dieser Verteilung ist durch

$$v_0 = v_2 \frac{\nu+1}{a} \quad (2.16)$$

gegeben. Für die Aggregation in einem abgeschlossenen System (Batch-System) existieren für einen konstanten Kern $\beta = \beta_0$, einen Summenkern $\beta = \beta_0(u+v)$ und Produktkern $\beta = \beta_0(u \cdot v)$ analytische Lösungen. Für den konstanten Kern lautet die Beziehung

$$n(x, T) = \frac{N_0}{v_0} \frac{4 \exp[-x(\nu+1)]}{x(T+2)^2} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{[x(\nu+1)]^{(\nu+1)(k+1)}}{\Gamma[(k+1)(\nu+1)]} \left(\frac{T}{T+2}\right)^k \quad (2.17)$$

mit

$$T = \beta_0 N_0 t \quad , \quad (2.18)$$

für den Summenkern

$$n(x, T) = \frac{N_0}{v_0} \exp(-T) \exp[-(2 - \exp(-T) + \nu)x] \sum_{k=0}^{\infty} \frac{[1 - \exp(-T)]^k x^{\nu+k(\nu+2)} (\nu+1)^{(k+1)(\nu+1)}}{(k+1)! \Gamma[(k+1)(\nu+1)]} \quad (2.19)$$

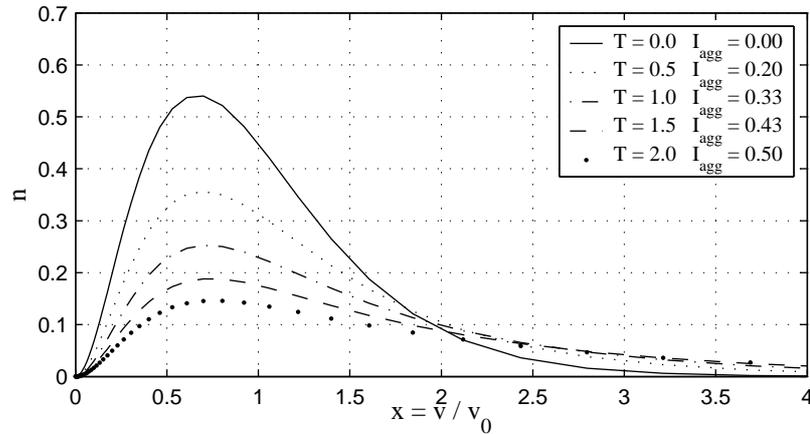


Abbildung 2.6: Analytische Lösung für konstanten Kern nach Gleichung (2.17) mit $\beta_0 = 1$, $v_2 = N_0 = 1$ und $\nu = a = 2$

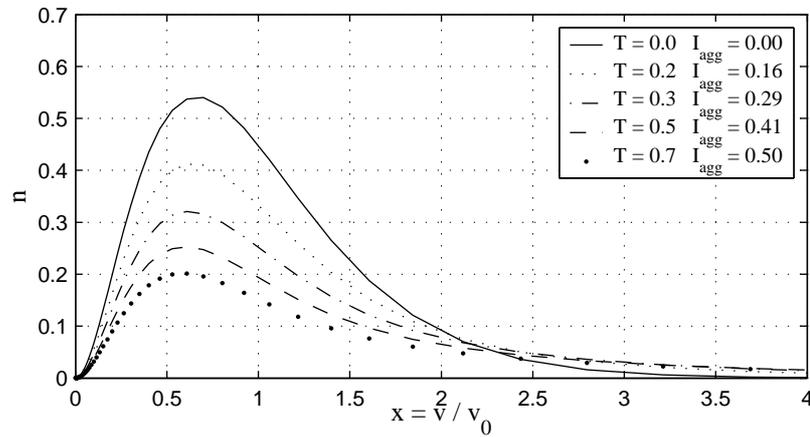


Abbildung 2.7: Analytische Lösung für Summenkern nach Gleichung (2.19) mit $\beta_0 = 1$, $v_2 = N_0 = 1$ und $\nu = a = 2$

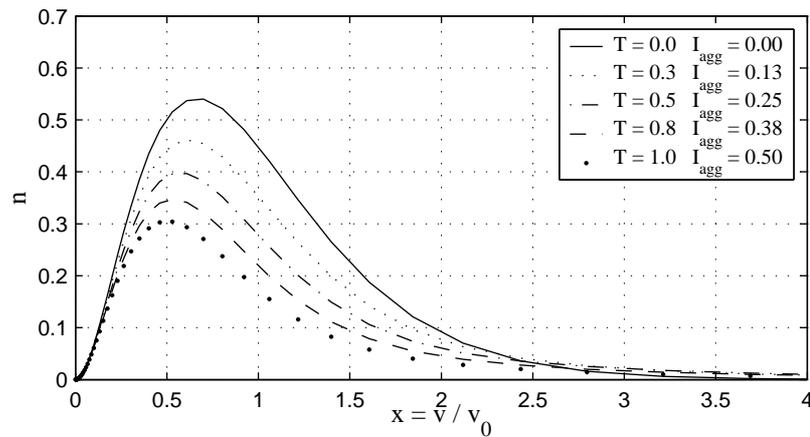


Abbildung 2.8: Analytische Lösung für Produktkern nach Gleichung (2.21) mit $\beta_0 = 1$, $v_2 = N_0 = 1$ und $\nu = a = 2$

mit

$$T = \beta_0 N_0 v_0 t \quad , \quad (2.20)$$

und für den Produktkern

$$n(x, T) = \frac{N_0}{v_0} \exp[-x(T + \nu + 1)] \sum_{k=0}^{\infty} \frac{T^k x^{\nu+k(\nu+3)} (\nu + 1)^{(k+1)(\nu+2)}}{(k + 1)! \Gamma[(k + 1)(\nu + 2)]} \quad (2.21)$$

mit

$$T = \beta_0 N_0 v_0^2 t \quad . \quad (2.22)$$

Die Variable $x = v/v_0$ stellt eine Normierung des Partikelvolumens v mit dem mittleren Volumen der Anfangsverteilung v_0 dar. Die analytischen Lösungen der Gleichungen (2.17) bis (2.22) sind in den Abbildungen 2.6 bis 2.8 für $\beta_0 = 1$ dargestellt. Als Kurvenparameter ist die Aggregationsrate I_{agg} aufgetragen, welche im Abschnitt 2.4.3.1 definiert wird. Mit den in der Tabelle 2.2 aufgezeigten Beziehungen kann die Aggregationsrate für die einzelnen Fälle mit Hilfe der dimensionslosen Zeit T ermittelt werden.

2.3.2 Analytische Lösungen für Momentenverlauf

Das Moment stellt eine integrale Eigenschaft der Partikelverteilung dar. In der unnormierten Form

$$\mu_j = \int_0^{\infty} v^j n(v) dv \quad (2.23)$$

gibt das volumenbezogene Moment μ_j für $j = 0$ die gesamte Partikelanzahl und für $j = 1$ das gesamte Partikelvolumen der Verteilung wieder. Für die Berechnung des zeitlichen Verlaufs der einzelnen Momente sind weniger restriktive Annahmen notwendig als bei der analytischen Beschreibung der Verteilungsdichten. Bei einer beliebigen Anfangsverteilung existieren für konstanten Kern, Summen- und Produktkern für einen Batch-Prozess geschlossene Formulierungen¹, welche in der Tabelle 2.1 zusammengefasst sind. Für die relative zeitliche Änderung des unnormierten längenbezogenen Momentes $\tilde{\mu}_r$

$$\tilde{\mu}_r = \int_0^{\infty} v^r n(v) dv \quad (2.24)$$

bei einer diskontinuierlichen Aggregation mit konstantem, größenunabhängigem Kern einer exponentiellen Anfangsverteilung

$$n(v) = \frac{N_0}{v_0} \exp\left(-\frac{v}{v_0}\right) \quad (2.25)$$

geben Hounslow u. a. (1988) die folgende analytische Lösung an

$$\frac{\tilde{\mu}_r}{\tilde{\mu}_r|_{T=0}} = \left(\frac{2}{T + 2}\right)^{1-r/3} \quad . \quad (2.26)$$

Hierbei ist die dimensionslose Zeit durch $T = N_0 \beta_0 t$ definiert. Der Parameter r ist dabei ein ganzzahliger positiver Wert, welcher das zu bestimmende Moment repräsentiert.

¹Die Herleitung ist im Anhang A.3 dargestellt.

Tabelle 2.1: Volumenbezogener Momentenverlauf für konstanten Kern, Summen- und Produktkern

$d\mu_j/dt$	$\beta = \beta_0$	$\beta = \beta_0(u + v)$	$\beta = \beta_0(u \cdot v)$
$j = 0$	$-\frac{1}{2}\beta_0\mu_0^2$	$-\beta_0\mu_0\mu_1$	$-\frac{1}{2}\beta_0\mu_1^2$
$j = 1$	0	0	0
$j = 2$	$\beta_0\mu_1^2$	$2\beta_0\mu_1\mu_2$	$\beta_0\mu_2^2$

2.4 Numerische Methoden zur Lösung von Populationsbilanzen

Wie schon erwähnt, ist die mathematische Behandlung von Populationsbilanzen auf Grund der enthaltenen Integralterme schwierig. Um numerische Methoden anwenden zu können, ist es zunächst notwendig, eine diskrete Formulierung der kontinuierlichen Populationsbilanz (DPBE) zu finden. Hierzu gibt es in der Literatur eine Reihe von Vorschlägen, welche in den folgenden Abschnitten eingehend diskutiert werden.

2.4.1 Die diskrete Populationsbilanz

Bei der Modellbildung mit Hilfe von Populationsbilanzen sind in Abhängigkeit von der Problemstellung bestimmte Eigenschaften der Partikelpopulation besonders wichtig, wohingegen andere vernachlässigt werden können. So kann beispielsweise in bestimmten Anwendungsbeispielen die Anzahlverteilung von besonderem Interesse sein. Dies ist der Fall, wenn Messgeräte zum Einsatz kommen, welche die Partikelanzahl einer Größenklasse erfassen. In anderen Fällen hingegen spielt die Massenverteilung der Partikel eine größere Rolle, wenn beispielsweise ausschließlich die Resultate einer Siebanalyse zur Verfügung stehen, welche als Ergebnis den Massenanteil in einem bestimmten Partikelgrößenintervall liefert. Besitzen die Partikel eine gleichmäßige geometrische Form (zum Beispiel Kugel, Würfel oder Stab), so können die verschiedenen Eigenschaften der Partikelpopulation ineinander überführt werden.

Die gängigen Diskretisierungsmethoden basieren auf einigen ausgewählten Eigenschaften. Die im Folgenden diskutierte Diskretisierung folgt dem Vorschlag von Ramkrishna (2000). Ausgangspunkt sei die eindimensionale Populationsbilanz für reine Aggregation entsprechend der Gleichung (2.11).

$$\frac{\partial n(v)}{\partial t} = \frac{1}{2} \int_0^v \beta(u, v-u)n(u)n(v-u)du - n(v) \int_0^\infty \beta(u, v)n(u)du \quad . \quad (2.27)$$

Zunächst wird der bilanzierte Bereich des Partikelvolumens v in I beliebige Intervalle zerlegt. Die Intervalle werden jeweils durch eine untere Grenze v_i und eine obere Grenze v_{i+1} vollständig beschrieben. Durch Integration der kontinuierlichen Gleichung (2.27) über ein diskretes Intervall

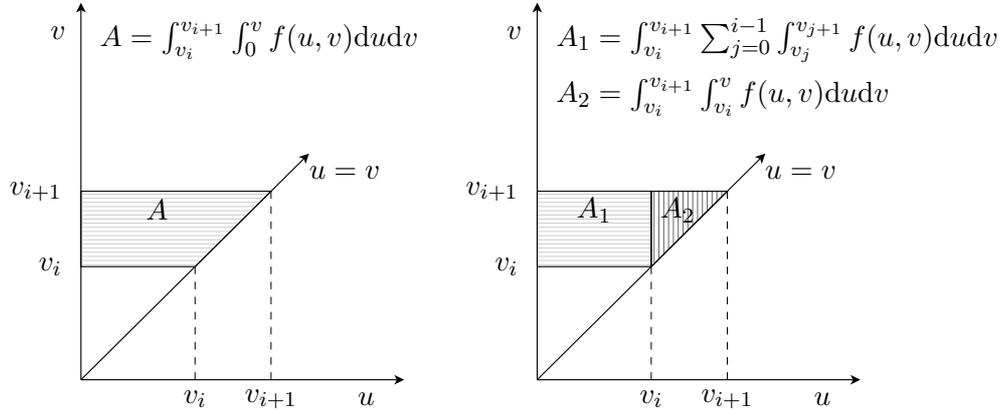


Abbildung 2.9: Fehrender Integrationsbereich bei der Bestimmung der Entstehungsrate

I_i ($i = 1, 2, 3, \dots, I$) mit den Grenzen $[v_i, v_{i+1}]$ folgt

$$\frac{d}{dt} \int_{v_i}^{v_{i+1}} n(v) dv = \int_{v_i}^{v_{i+1}} \left[\frac{1}{2} \int_0^v \beta(v-u, u) n(v-u) n(u) du - n(v) \int_0^\infty \beta(v, u) n(u) du \right] dv \quad . \quad (2.28)$$

Die gesamte Anzahl von Partikeln in dem Intervall i sei durch

$$N_i = \int_{v_i}^{v_{i+1}} n(v) dv \quad (2.29)$$

definiert. Die Integrale über den Bereich u in der Gleichung (2.28) werden durch eine Summe von Integralen über die Intervalle $[0, v_i]$ (Entstehung) bzw. $[0, I]$ (Schwund) ersetzt. Bei dieser Ersetzung wird jedoch nicht der gesamte Bereich der Integration entsprechend Gleichung (2.28) abgedeckt. Der fehlende Integrationsbereich der Entstehungsrate ist in der Abbildung 2.9 im rechten Diagramm durch die Fläche A_2 dargestellt. Für die Schwundrate wird ebenfalls nicht der gesamte Bereich berücksichtigt. Der fehlende Bereich hierbei ist durch das Intervall $[v_{I+1}, \infty[$ beschrieben. Für einen hinreichend großen Wert von I kann dieser Fehler jedoch klein gehalten werden. Somit folgt weiter

$$\frac{dN_i}{dt} \approx \int_{v_i}^{v_{i+1}} \left[\frac{1}{2} \sum_{j=1}^{i-1} \int_{v_j}^{v_{j+1}} \beta(v-u, u) n(v-u) n(u) du - n(v) \sum_{j=1}^I \int_{v_j}^{v_{j+1}} \beta(v, u) n(u) du \right] dv \quad . \quad (2.30)$$

Diese Gleichung bildet die Grundlage für die Diskretisierungsmethoden. Ziel ist es, die rechte Seite der Gleichung (2.30) durch die abhängigen Variablen N_i auszudrücken. Eine Möglichkeit zur Ersetzung der Anzahldichten besteht in der Anwendung der Delta-Dirac-Funktion². Zunächst können für die in der Gleichung (2.30) auftretenden Doppelintegrale, hier am Beispiel der Entstehungsrate,

$$\int_{v_i}^{v_{i+1}} \int_{v_j}^{v_{j+1}} \beta(v, u) n(v) n(u) du dv \quad (2.31)$$

²Die Definition der Delta-Dirac-Funktion ist im Anhang A.1 wiedergegeben

nach Anwendung des Mittelwert-Theorems durch

$$\beta(x_i, x_j) \int_{v_i}^{v_{i+1}} \int_{v_j}^{v_{j+1}} n(v)n(u)du dv = \beta(x_i, x_j)N_iN_j \quad (2.32)$$

ersetzt werden, wobei $x_i \in [v_i, v_{i+1}]$ and $x_j \in [v_j, v_{j+1}]$ als Pivots in den betrachteten Intervallen bezeichnet werden. Da die exakten Werte der Pivots nicht bekannt sind, müssen sie willkürlich festgelegt werden. Das Pivot, in welchem sich alle Partikel des Intervalls konzentrieren, stellt eine für das Intervall repräsentative Größe dar. Damit kann die Anzahldichte $n(v)$ als

$$n(v) = \sum_{i=1}^I N_i \delta(v - x_i) \quad (2.33)$$

beschrieben werden. Durch Einsetzen der Gleichung (2.33) in die Gleichung (2.30) erhält resultiert³

$$\frac{dN_i}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{i-1} N_j \sum_{(x_j+x_k) \in I_i} N_k \beta(x_k, x_j) - N_i \sum_{j=1}^I N_j \beta(x_i, x_j) \quad i = 1, 2, 3, \dots, I \quad (2.34)$$

Das r -te Moment mit $[r = 0, 1, 2, \dots]$ des i -ten Intervalls sei durch

$$\mu_r^{(i)} = \int_{v_i}^{v_{i+1}} v^r n(v) dv \quad (2.35)$$

definiert. Durch Substitution mit der Gleichung (2.33) kann die Gleichung zu

$$\mu_r^{(i)} = x_i^r N_i, \quad r = 0, 1, 2, \dots \quad (2.36)$$

umgeschrieben werden. Das r -te Moment der Population über das gesamte Intervall ergibt sich durch Summation aus

$$\mu_r = \sum_{i=1}^I \mu_r^{(i)} \quad (2.37)$$

Die Differentialgleichung der Änderung des Momentes im i -ten Intervall kann entweder direkt aus der Gleichung (2.27) oder von der diskreten Form der Gleichung (2.34) abgeleitet werden. Nach Multiplikation der Gleichung (2.27) mit v^r und Integration über das Intervall i resultiert

$$\frac{d\mu_r^{(i)}}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{i-1} N_j \sum_{(x_j+x_k) \in I_i} N_k \beta(x_k, x_j) (x_j + x_k)^r - \mu_r^{(i)} \sum_{j=1}^I N_j \beta(x_i, x_j) \quad (2.38)$$

Nach Summation über alle Intervalle steht

$$\frac{d\mu_r}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^I \sum_{j=1}^{i-1} N_j \sum_{(x_j+x_k) \in I_i} N_k \beta(x_k, x_j) (x_j + x_k)^r - \sum_{i=1}^I \mu_r^{(i)} \sum_{j=1}^I N_j \beta(x_i, x_j) \quad (2.39)$$

³Die Herleitung dieser Ersetzung ist im Anhang A.2 dargestellt.

Die zweite Möglichkeit zur Bestimmung der differentiellen Änderung des Momentes besteht in der Multiplikation der Gleichung (2.34) mit x_i^r . Zunächst steht

$$\frac{d\mu_r^{(i)}}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{i-1} N_j \sum_{(x_j+x_k) \in I_i} N_k \beta(x_k, x_j) x_i^r - \mu_i^{(i)} \sum_{j=1}^I N_j \beta(x_i, x_j) \quad (2.40)$$

und nach Summierung über i

$$\frac{d\mu_r}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^I \sum_{j=1}^{i-1} N_j \sum_{(x_j+x_k) \in I_i} N_k \beta(x_k, x_j) x_i^r - \sum_{i=1}^I \mu_i^{(i)} \sum_{j=1}^I N_j \beta(x_i, x_j) \quad . \quad (2.41)$$

Ein Vergleich der Gleichung (2.38) mit der Gleichung (2.40) zeigt, dass sich beide Formulierungen unterscheiden. Folglich weisen auch die Gleichungen (2.39) und (2.41) eine andere Form auf. Kumar u. Ramkrishna (1996a,b) beschrieben diese Situation als *interne Inkonsistenz*. Letztere kann beseitigt werden, wenn $x_j + x_k = x_i$ gilt. Die Bedingung ist nur für eine lineare Teilung (Gitter) der Intervalle gültig. Für das lineare Gitter mit der Gitterbreite h gilt $x_i = ih$, womit die Bedingung $x_j + x_k = (j+k)h = x_{j+k} = x_i$ erfüllt ist. Für solches gleichmäßige Gitter nimmt die Gleichung (2.34) folgende Form an

$$\frac{dN_i}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{i-1} N_j N_{i-j} \beta(x_j, x_{i-j}) - N_i \sum_{j=1}^I N_j \beta(x_i, x_j) \quad i = 1, 2, 3, \dots, I \quad . \quad (2.42)$$

Mit diesem Gitter sind die Gleichungen intern konsistent und liefern eine akkurate Lösung für die Momente bei hinreichend kleinen Intervallen. Der Nachteil einer linearen Teilung ist die große Anzahl an Intervallen, die notwendig sind, um einen bestimmten Bereich des Partikelvolumens zu diskretisieren. Die Problematik der Festlegung eines geeigneten Gitters wird im nächsten Abschnitt eingehender betrachtet.

2.4.2 Diskrete Modelle für Aggregation

Wie im vorigen Abschnitt erwähnt wurde, hängt die Formulierung der diskreten Populationsbilanz von der Art der gewählten Diskretisierung ab. Bleck (1970) schlägt eine geometrische Unterteilung der Größenskala vor, bei der sich das Partikelvolumen zwischen den Intervallen verdoppelt. Der Ansatz basiert grundsätzlich auf der Idee, dass bei der Aggregation zweier Partikel gleicher Größe ein Partikel mit dem doppelten Volumen erzeugt wird. Hounslow (1990a) gibt eine Übersicht der Ansätze zur Unterteilung der Größenskala. Doch wie bereits bemerkt, ist es nicht möglich, für die nicht linearen Gitter eine mathematische Formulierung zu finden, welche konsistent für alle Momente ist. Demzufolge sind alle geometrischen Formulierungen nur für eine bestimmte Anzahl von Momenten konsistent. Hounslow u. a. (1988) schlagen eine Technik vor, die zur Bestimmung der gesamten Partikelanzahl μ_0 und der gesamten Partikelmasse μ_1 dient. Dazu wird ein Korrekturfaktor für das Volumen eingeführt, um die Massenerhaltung während der Aggregation zu gewährleisten. Kumar u. Ramkrishna (1996a,b) entwickelten eine numerische Technik, die einen völlig anderen Ansatz als jene von Hounslow u. a. (1988) verfolgt. Sie ist flexibler bezüglich der anwendbaren Gitter und zu erfüllenden Momente. Damit stellt dieser Ansatz auch eine allgemeinere Lösung dieser Problematik dar. So kann mittels der Arbeiten von Kumar u. Ramkrishna (1996a,b) eine Diskretisierung erzeugt werden, welche sich an

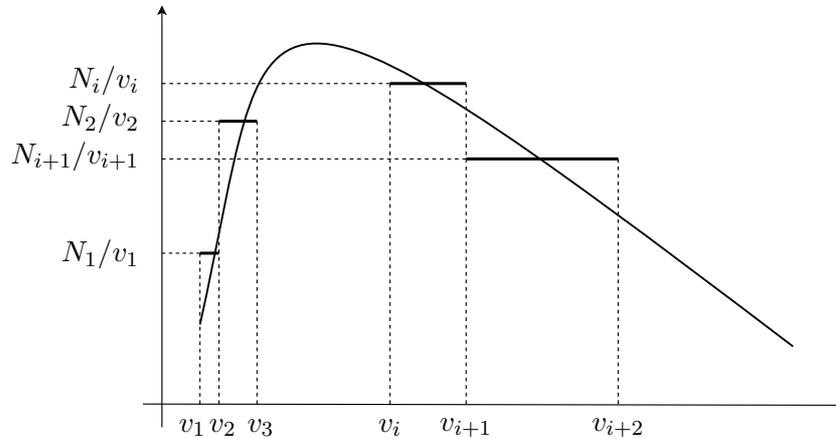


Abbildung 2.10: Modell für die Partikelverteilung der Diskretisierung Hounslogs

spezielle Situationen anpasst. Ein solches adaptives Gitter kann in bestimmten Bereichen eine lineare Volumenteilung und in anderen Bereichen ein geometrisches Gitter aufweisen. Weiterhin können mit dieser Methode eine beliebige Anzahl frei wählbarer Momente exakt bestimmt werden. Die zwei Modelle von Hounslow u. a. (1988) und Kumar u. Ramkrishna (1996a,b) werden in den folgenden Abschnitten weiter diskutiert.

2.4.2.1 Diskretisierung Hounslow u. a. (1988)

Hounslow u. a. (1988) schlagen unter Verwendung einer geometrischen Teilung eine relativ einfache Technik vor, bei welcher die Breite des Intervalls i doppelt so groß wie die des Intervalls $i - 1$ ist

$$v_i = 2v_{i-1} \quad . \quad (2.43)$$

In seinen Arbeiten beschreibt Hounslow vier mögliche binäre Mechanismen, welche eine zeitliche Änderung der Partikelanzahl in einem Intervall hervorrufen können. Eine wesentliche Annahme in diesem Modell ist eine konstante Partikelanzahldichte innerhalb eines Intervalls, wie sie beispielhaft in der Abbildung 2.10 dargestellt ist. Im Gegensatz zu Kumar u. Ramkrishna (1996a,b), wo die Partikel durch Pivots repräsentiert sind, ist bei der Methode Hounslogs keine eindeutige Zuordnung der Partikel zu einer bestimmten Größe möglich. Für die dargestellten Mechanismen ist es hilfreich, das kleinste Partikel im i -ten Intervall mit 2^i und das größte Partikel mit 2^{i+1} zu definieren.

- Mechanismus 1: Hier wird die Bildung eines Aggregates durch die Aggregation eines Partikels aus dem Intervall $i - 1$ und einem Partikel aus einem der Intervalle $[1, i - 2]$ betrachtet. Einige dieser möglichen Vereinigungen führen zu einer Entstehung in i , während andere zu einer Aggregation in einem Intervall kleiner i bewirken. Für den Quellterm dieses Me-

chanismus im Intervall i folgt nach Einführung des Volumenkorrekturfaktors $k = 2/3$

$$B_i^{(1)} = \sum_{j=1}^{i-2} 2^{j-i+1} \beta_{i-1,j} N_{i-1} N_j \quad . \quad (2.44)$$

- Mechanismus 2: Der zweite Mechanismus stellt ebenfalls einen Quellterm dar. Er beschreibt die Entstehung eines neuen Partikels in i durch die Aggregation zweier Partikel aus dem Intervall $i - 1$. Jedes Aggregat, welches aus zwei Partikeln aus $i - 1$ erzeugt wird, muss auf Grund des gewählten Gitters zwangsläufig in i entstehen. Der Quellterm hierfür lautet

$$B_i^{(2)} = \frac{1}{2} \beta_{i-1,i-1} N_{i-1} N_{i-1} \quad . \quad (2.45)$$

- Mechanismus 3: Dieser Mechanismus repräsentiert einen Senkenterm im i -ten Intervall. Hierbei wird der Schwund von Partikeln durch die Aggregation eines Partikels aus i mit einem Partikel aus dem Intervall $[1, i - 1]$ betrachtet. Auch hierbei sind Kombinationen möglich, bei denen kein echter Schwund in i auftritt. Somit wird auch in diesem Term der Volumenkorrekturfaktor berücksichtigt. Der Ausdruck für diesen Vorgang lautet

$$D_i^{(3)} = N_i \sum_{j=1}^{i-1} 2^{j-i} \beta_{i,j} N_j \quad . \quad (2.46)$$

- Mechanismus 4: Der vierte Mechanismus ist ein Schwund im i -ten Intervall, bei dem ein Partikel aus i mit einem Partikel aus $[i, M]$ aggregiert. Jedes dieser Ereignisse wird zu einem Schwinden von Partikeln im Intervall i führen. Der Quellterm hierfür lautet

$$D_i^{(4)} = N_i \sum_{j=i}^I \beta_{i,j} N_j \quad . \quad (2.47)$$

- Mechanismus 5: Wie schon erwähnt, beschreiben Hounslow u. a. (1988) in ihrer Arbeit lediglich vier mögliche Mechanismen der binären Interaktion zwischen den Partikeln der einzelnen Intervalle. Hounslow u. a. (2001) geben in einer späteren Arbeit eine diskrete Formulierung einer abgewandelten Populationsbilanz zur Berechnung einer Tracermassenverteilung an, auf die im Rahmen dieser Arbeit später eingegangen wird. Bei dieser Formulierung berücksichtigen Hounslow u. a. (2001) einen weiteren fünften Mechanismus. Eine explizite Erklärung wird jedoch in ihrer Arbeit nicht gegeben. Aus dem Grund soll dieser fünfte Mechanismus hier kurz erläutert werden. Einige Partikelaggregationen zwischen Partikeln aus i und einem Intervall von $[1, i - 1]$ erzeugen Partikel, die wiederum im Intervall i entstehen. Die Anzahl der Partikel im i -ten Intervall wird hierdurch nicht verändert. Für jedes höhere Moment (Länge, Fläche, Masse) stellt der Mechanismus 5 jedoch eine Entstehung dar. Hounslow u. a. (1988) führen den Volumenkorrekturfaktor $k = 2/3$ ein, um den Effekt der Massenzunahme in einem Intervall zu kompensieren.

Mit den angeführten Ausdrücken ergibt sich für die Änderung der Partikelanzahl

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_{j=1}^{i-2} 2^{j-i+1} \beta_{i-1,j} N_{i-1} N_j + \frac{1}{2} \beta_{i-1,i-1} N_{i-1}^2 - N_i \sum_{j=1}^{i-1} 2^{j-i} \beta_{i,j} N_j - N_i \sum_{j=i}^I \beta_{i,j} N_j \quad . \quad (2.48)$$

Litster u. a. (1995) geben eine Formulierung an, welche die von Hounslow u. a. (1988) vorgeschlagene Methode erweitert. Dabei nutzen Litster u. a. (1995) ein anpassbares geometrisches Gitter der Form

$$\frac{v_{i+1}}{v_i} = 2^{1/q} \quad , \quad (2.49)$$

wobei q ein ganzzahliger Wert größer gleich 1 ist. Die resultierende Beziehung ist durch

$$\begin{aligned} \frac{dN_i}{dt} = & \sum_{j=1}^{i-S(q)-1} \beta_{i-1,j} N_{i-1} N_j \frac{2^{(j-i+1)/q}}{2^{1/q} - 1} + \frac{1}{2} \beta_{i-q,i-q} N_{i-q}^2 \\ & + \sum_{k=2}^q \sum_{j=i-S(q-k+2)-k+1}^{i-S(q-k+1)-k} \beta_{i-k,j} N_{i-k} N_j \frac{2^{(j-i+1)/q} - 1 + 2^{-(k-1)/q}}{2^{1/q} - 1} \\ & + \sum_{k=2}^q \sum_{j=i-S(q-k+2)-k+2}^{i-S(q-k+1)-k+1} \beta_{i-k+1,j} N_{i-k+1} N_j \frac{-2^{(j-i)/q} + 2^{1/q} - 2^{-(k-1)/q}}{2^{1/q} - 1} \\ & - \sum_{j=1}^{i-S(q)} \beta_{i,j} N_i N_j \frac{2^{(j-i)/q}}{2^{1/q} - 1} - \sum_{j=i-S(q)+1}^I \beta_{i,j} N_i N_j \quad . \end{aligned} \quad (2.50)$$

gegeben, wobei

$$S(q) = \sum_{p=1}^q p \quad (2.51)$$

gilt. In den Arbeiten von Wynn (1996) wird gezeigt, dass die von Litster u. a. (1995) entworfene Formulierung nicht für alle Werte von q gültig ist. Für Werte von $q > 4$ ist die Gleichung (2.50) nicht korrekt. Wynn (1996) zeigt, dass durch Änderung der Summationsgrenzen für jeden Wert von q eine bessere Vorhersage der Partikelverteilung und höherer Momente getroffen werden kann. Die korrigierte Formulierung lautet

$$\begin{aligned} \frac{dN_i}{dt} = & \sum_{j=1}^{i-S_1} \frac{2^{(j-i+1)/q}}{2^{1/q} - 1} \beta_{i-1,j} N_{i-1} N_j + \frac{1}{2} \beta_{i-q,i-q} N_{i-q}^2 \\ & + \sum_{p=1}^{q-1} \sum_{j=i+1-S_p}^{i+1-S_{p+1}} \frac{2^{1/q} - 2^{(j-i)/q} - 2^{-p/q}}{2^{1/q} - 1} \beta_{i-p,j} N_{i-p} N_j \\ & + \sum_{p=2}^q \sum_{j=i-S_p-1}^{i-S_p} \frac{2^{(j-i+1)/q} - 1 + 2^{-(p-1)/q}}{2^{1/q} - 1} \beta_{i-p,j} N_{i-p} N_j \\ & - \sum_{j=1}^{i-S_1+1} \frac{2^{(j-i)/q}}{2^{1/q} - 1} \beta_{i,j} N_i N_j - \sum_{j=i-S_1+2}^I \beta_{i,j} N_i N_j \quad . \end{aligned} \quad (2.52)$$

Dabei wird der Term S_p durch

$$S_p = \text{INT} \left[1 - \frac{q \ln(1 - 2^{-p/q})}{\ln 2} \right] \quad (2.53)$$

definiert. Der Operator INT definiert dabei den gegen $-\infty$ abgerundeten ganzzahligen Wert des Klammerausdrucks. Diese Beschreibung konvergiert bei der numerischen Integration wesentlich besser als die Formulierung entsprechend Gleichung (2.50) und verursacht keine negativen Partikelanzahlen. Höhere Momente werden durch diese Formulierung für ein hinreichend großen Wert von q genauer vorhergesagt. Gleichzeitig bedeutet jedoch ein höherer Wert von q eine größere Anzahl von Intervallen zur Beschreibung eines gleichen Größenbereiches. Daraus folgen längere Rechenzeiten.

2.4.2.2 Diskretisierung Kumar u. Ramkrishna (1996a,b)

Kumar u. Ramkrishna (1996a,b) entwickelten zwei diskrete Modelle zur Berechnung der Partikelanzahlverteilung, welche allgemeiner und flexibler als die bis dahin existierenden Modelle sind. Diese Ansätze verfolgen nicht ausschließlich die Erfüllung der Anzahl- und Massenverteilung (μ_0 -Moment und μ_1 -Moment), sondern sind auf beliebige Momente anwendbar. Weiterhin sind diese Methoden unabhängig von der Art der gewählten Diskretisierung und können somit für nicht reguläre Gitter eingesetzt werden. Beide Methoden sollen in den folgenden Abschnitten kurz erläutert werden.

2.4.2.2.1 Fixed Pivot Technik (Kumar u. Ramkrishna (1996a)) In diesem Ansatz ist der gesamte Eigenschaftsraum (Volumenkoordinate) in Intervalle unterteilt. Der Bereich zwischen zwei Größen v_i und v_{i+1} wird als i -tes Intervall bezeichnet. Die Partikelpopulation in dem Intervallbereich i wird durch eine repräsentative Größe x_i , dem sogenannten Pivot, mit $v_i < x_i < v_{i+1}$ dargestellt. Ein neues Partikel der Größe v im Bereich von $[x_i, x_{i+1}]$, welches durch Aggregation, Bruch oder auch Keimbildung entstanden ist, kann durch die Zuordnung der Fragmente $a(v, x_i)$ und $b(v, x_{i+1})$ in den Intervallen x_i und x_{i+1} dargestellt werden. Zur Erhaltung zweier allgemeiner Eigenschaften $f_1(v)$ und $f_2(v)$ müssen die Fragmente die folgenden Gleichungen erfüllen

$$a(v, x_i)f_1(x_i) + b(v, x_{i+1})f_1(x_{i+1}) = f_1(v) \quad , \quad (2.54)$$

$$a(v, x_i)f_2(x_i) + b(v, x_{i+1})f_2(x_{i+1}) = f_2(v) \quad . \quad (2.55)$$

Würde die Anzahl der Fragmente erhöht werden, könnte diese Methode weitere Eigenschaften erhalten. Demzufolge würde das Partikel auf eine größere Anzahl von Pivotelementen bzw. Intervallen verteilt werden.

Der Population im Intervall mit dem Pivot x_i wird ein Fragment durch eine Aggregation im Größenbereich $[x_i, x_{i+1}]$ oder $[x_{i-1}, x_i]$ zugeordnet. Für Partikel, welche im Bereich $[x_i, x_{i+1}]$ aggregieren, werden $a(v, x_i)$ Partikel zugewiesen. Für Aggregate im Bereich $[x_{i-1}, x_i]$ werden $b(v, x_i)$ Fragmente zugeordnet. Eine schematische Darstellung dieser Methode ist in der Abbildung 2.11 wiedergegeben. Um sowohl Partikelanzahl als auch Partikelvolumen beschreiben zu können, ergeben sich folgende diskrete Formulierungen

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_{\substack{j \geq k \\ j, k \\ x_{i-1} \leq v < x_{i+1}}} \left(1 - \frac{1}{2}\delta_{j,k}\right) \eta \beta_{j,k} N_j N_k - N_i \sum_{k=1}^I \beta_{i,k} N_k \quad (2.56)$$

mit η

$$\eta = \begin{cases} \frac{x_{i+1} - v}{x_{i+1} - x_i} & , \quad x_i \leq v \leq x_{i+1} \\ \frac{v - x_{i-1}}{x_i - x_{i-1}} & , \quad x_{i-1} \leq v \leq x_i \end{cases} \quad (2.57)$$

und

$$v = x_j + x_k \quad . \quad (2.58)$$

Der erste Term auf der rechten Seite der Gleichung (2.56) stellt die Entstehungsrate, der zweite Ausdruck den Schwund für die Partikel im i -ten Intervall dar. Für ein geometrisches Gitter der Form $v_{i+1} = 2v_i$ nehmen die obigen Gleichungen die Form

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_{j=1}^{i-2} 2^{j-i-1} \beta_{i-1,j} N_{i-1} N_j + \frac{1}{2} \beta_{i-1,i-1} N_{i-1}^2 + \sum_{j=1}^{i-1} (1 - 2^{j-i}) \beta_{i-1,j} N_{i-1} N_j - N_i \sum_{j=1}^I \beta_{i,j} N_j \quad (2.59)$$

an. Durch Umformung folgt aus Gleichung (2.59)

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_{j=1}^{i-2} 2^{j-i-1} \beta_{i-1,j} N_{i-1} N_j + \frac{1}{2} \beta_{i-1,i-1} N_{i-1}^2 - N_i \sum_{j=1}^{i-1} 2^{j-i} \beta_{i,j} N_j - N_i \sum_{j=i}^I \beta_{i,j} N_j \quad , \quad (2.60)$$

was exakt der diskreten Formulierung von Hounslow u. a. (1988) in Gleichung (2.48) entspricht. Dennoch unterscheiden sich die in der Gleichung (2.59) enthaltenen Ausdrücke für Entstehung und Schwund strukturell von denen in Hounslows Formulierung. Die gesamte Änderung der Partikelanzahl dN_i/dt , also die Summe von Entstehung und Schwund ist in beiden Modellen identisch. Die separierten Senken- und Quellterme geben jedoch unterschiedliche Raten für die Änderung der Population an.

2.4.2.2.2 Moving Pivot Technik (Kumar u. Ramkrishna (1996b)) Eine weitere Möglichkeit zur Diskretisierung der kontinuierlichen Populationsbilanz geben Kumar u. Ramkrishna (1996b) in einer späteren Arbeit an. Dieses Konzept verfolgt die Erhaltung der Anzahl und des Volumens der Partikel. Im Gegensatz zur vorhergehend beschriebenen Methode wird hierbei jedoch nicht das Partikel in Fragmente aufgeteilt. Entsteht ein Aggregat im Intervall i mit dem Bereich $[v_i, v_{i+1}]$, so verbleibt es vollständig in diesem Intervall. Zur Erhaltung des Volumens wird nun das Pivot des i -ten Intervalls in Richtung des entstehenden Partikels bewegt (Moving Pivot). Der Mechanismus ist in der Abbildung 2.12 dargestellt. Die neue Position des Pivots wird dabei so gewählt, dass das Produkt aus Partikelanzahl in i und Pivot stets das korrekte Volumen von i ergibt. Folglich wird zur vollständigen Beschreibung neben der Partikelpopulation

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_{\substack{j \geq k \\ v_i \leq (x_j + x_k) < v_{i+1}}} \left(1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k}\right) \beta_{j,k} N_j N_k - N_i \sum_{k=1}^I \beta_{i,k} N_k \quad (2.61)$$

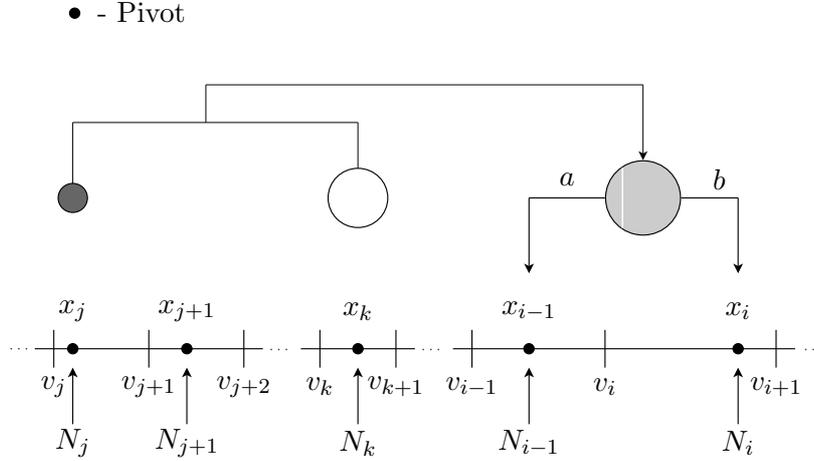


Abbildung 2.11: Modell für die Entstehungsrate bei der Fixed Pivot Technik

eine weitere Differentialgleichung für die Bewegung des Pivots verwendet

$$\frac{dx_i}{dt} = \frac{1}{N_i} \sum_{\substack{j \geq k \\ v_i \leq (x_j + x_k) < v_{i+1}}} \left(1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k}\right) [(x_j + x_k) - x_i] \beta_{j,k} N_j N_k \quad . \quad (2.62)$$

Dieses Modell besitzt im Gegensatz zu allen anderen vorgestellten Verfahren den Nachteil, dass die Anzahl der Differentialgleichungen sich verdoppelt. Dies führt zu einem höheren Aufwand bei der numerischen Berechnung. Weiterhin besitzt dieses System eine hohe Steifigkeit, welche durch den Term $1/N_i$ in der Gleichung (2.62) hervorgerufen wird.

2.4.3 Diskretes Modell für Wachstum

Für die Modellierung des Wachstums wird die von Hounslow u. a. (1988) vorgeschlagene Methode genutzt. Diese nutzt drei Faktoren, welche derart gewählt sind, dass die ersten drei längenbezogenen Momente (Anzahl, Länge, Oberfläche) korrekt wiedergegeben werden. Die dafür notwendige Voraussetzung ist eine kugelige Partikelform, sodass $v \sim L^3$ gilt. Die Diskretisierung des Wachstumsterms nimmt nachstehende Form an

$$\left. \frac{dN_i}{dt} \right|_{growth} = \begin{cases} \frac{2}{(1+r)L_1} \left[\left(1 - \frac{r^2}{r^2-1}\right) G_1 N_1 - \frac{r^2}{r^2-1} G_2 N_2 \right] & i = 1 \\ \frac{2}{(1+r)L_i} \left[\frac{r^2}{r^2-1} G_{i-1} N_{i-1} + G_i N_i - \frac{r^2}{r^2-1} G_{i+1} N_{i+1} \right] & i \neq 1 \end{cases} \quad , \quad (2.63)$$

mit L_i als untere Grenze des Intervalls i . Der Koeffizient r stellt das Verhältnis zwischen zwei unteren Grenzen eines Intervalls dar. Für den Fall einer skalierbaren geometrischen Verteilung gilt

$$r = 2^{1/(3q)} \quad . \quad (2.64)$$

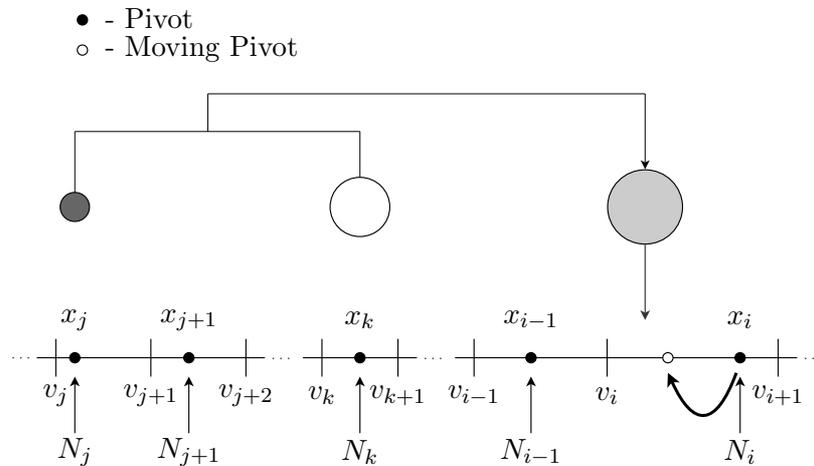


Abbildung 2.12: Modell für die Entstehungsrate bei der Moving Pivot Technik

Hounslow u. a. (1988) verweisen darauf, dass diese Methode unter Umständen Schwierigkeiten bei der numerischen Berechnung verursacht. Sinkt im ersten Intervall die Partikelanzahl auf Null, so werden Schwingungen verursacht, die im gesamten Diskretisierungsbereich negative Partikelanzahlen verursachen können. Das Ersetzen dieser negativen Werte durch Null erlaubt mit Hilfe dieser Methode dennoch gute Ergebnisse zu erzielen.

2.4.3.1 Vergleich zwischen analytischer und numerischer Lösung

Bei jeder numerischen Berechnung treten Fehler auf, die in einer Differenz zwischen dem Berechnungsergebnis und der exakten analytischen Lösung resultieren. Bei der numerischen Integration von Populationsbilanzen nehmen diese Abweichungen mit einer steigenden Aggregationsrate I_{agg} zu. Unter der Aggregationsrate wird die relative Änderung der Partikelanzahl in einem abgeschlossenen System verstanden

$$I_{agg} = 1 - \frac{\mu_0}{\mu_0|_{t=0s}} \quad . \quad (2.65)$$

Hier bezeichnet μ_0 die Partikelanzahl zum Zeitpunkt t , während $\mu_0|_{t=0s}$ die anfängliche Partikelmenge repräsentiert. Die Aggregationsrate eines abgeschlossenen Systems kann für einen konstanten Kern sowie Summen- und Produktkern aus der Integration der differentiellen Ansätze für das μ_0 -Moment aus Tabelle 2.1 bestimmt werden. Die resultierenden Lösungen sind in Tabelle 2.2 zusammengefasst, wobei der Spezialfall für eine Gauss-verteilungsähnliche Funktion ebenfalls aufgeführt ist.

Ein Vergleich zwischen dem diskreten Modell von Kumar u. Ramkrishna (1996a) und den vorgestellten analytischen Lösungen für gaussverteilungsähnliche Funktionen ist in den Abbildungen 2.13 bis 2.18 dargestellt. Alle Berechnungen erfolgen mit Anwendung des anpassbaren geometrischen Gitters der Form $v_{i+1}/v_i = 2^q$ mit $q = 5$. Wie den Abbildungen zu entnehmen ist, wird die Partikeldichteverteilung durch die Fixed Pivot Technik sehr gut wiedergegeben. Die größten Fehler bei der numerischen Integration treten bei geometrischen Gittern am rechten Rand der Verteilung auf, da hier die Intervalle sehr groß werden. Dieser Fehler lässt sich durch

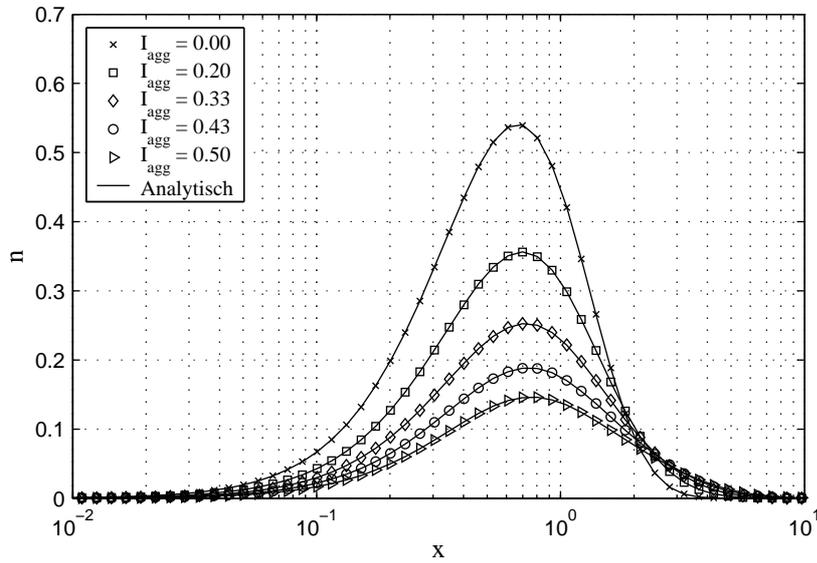


Abbildung 2.13: Vergleich zwischen numerischer und analytischer Lösung für konstanten Kern entsprechend der Gleichung (2.17) mit $v_2 = N_0 = 1$ und $\nu = a = 2$

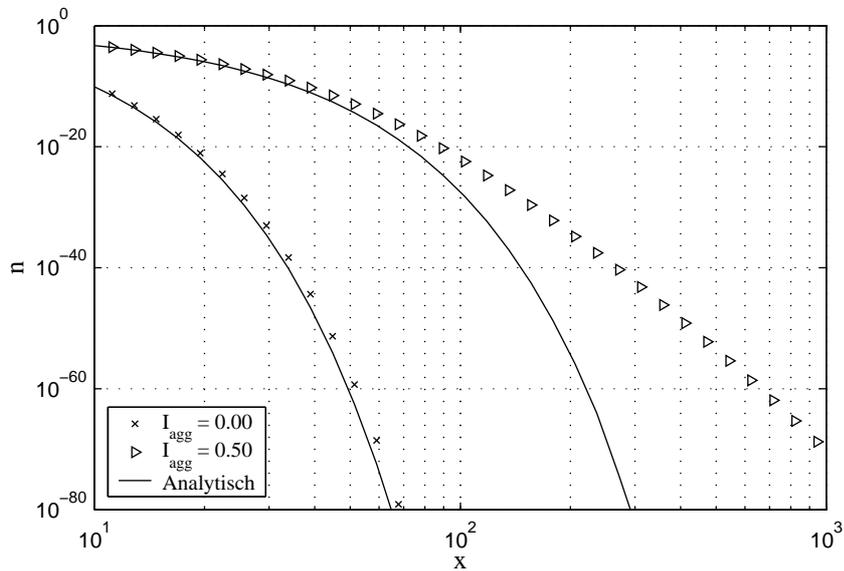


Abbildung 2.14: Vergrößerung des Fehlers aus Abbildung 2.13 für konstanten Kern entsprechend der Gleichung (2.17) mit $v_2 = N_0 = 1$ und $\nu = a = 2$

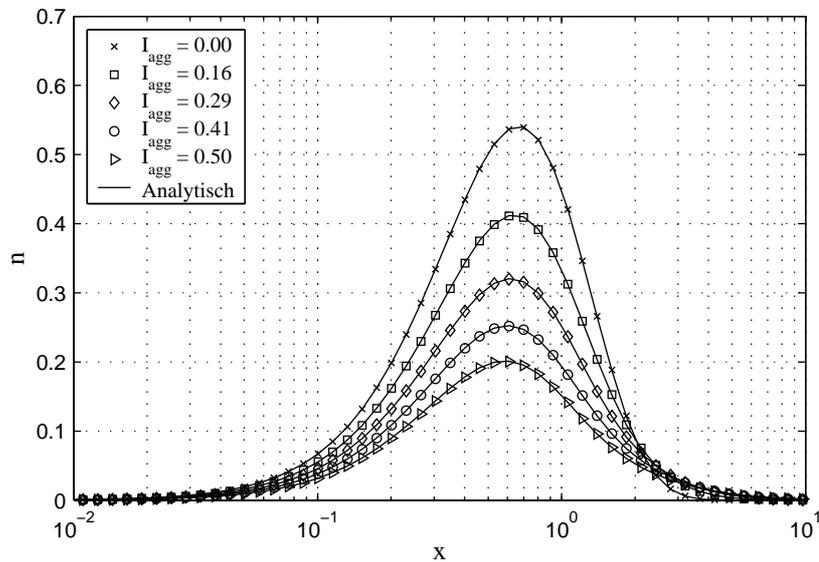


Abbildung 2.15: Vergleich zwischen numerischer und analytischer Lösung für Summenkern entsprechend der Gleichung (2.19) mit $v_2 = N_0 = 1$ und $\nu = a = 2$

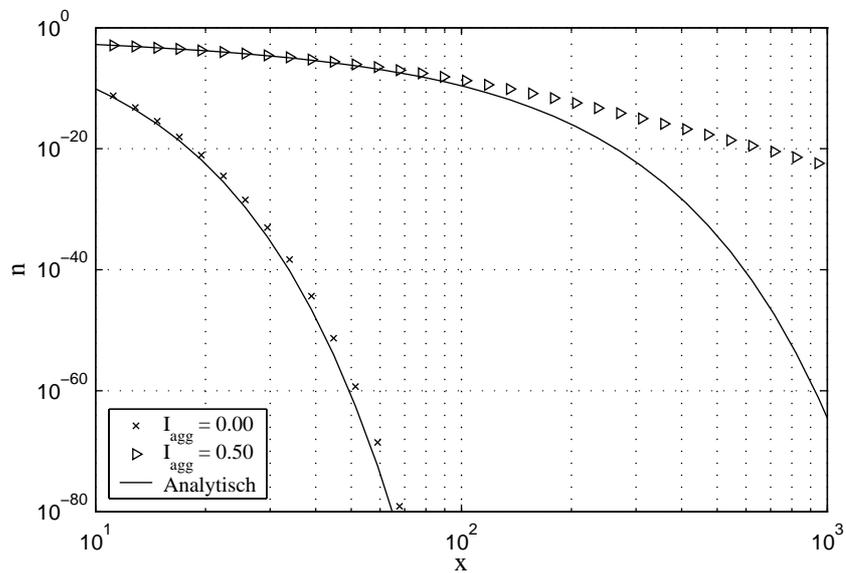


Abbildung 2.16: Vergrößerung des Fehlers aus Abbildung 2.15 für Summenkern entsprechend der Gleichung (2.19) mit $v_2 = N_0 = 1$ und $\nu = a = 2$

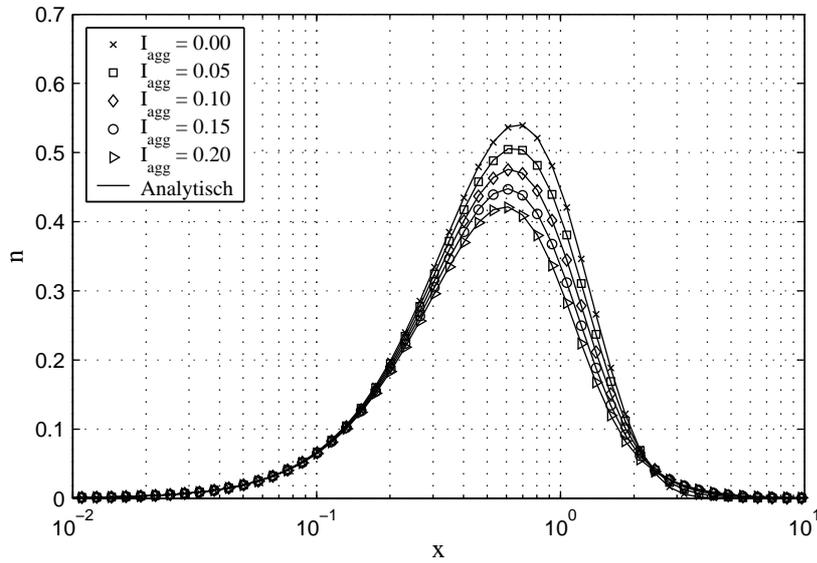


Abbildung 2.17: Vergleich zwischen numerischer und analytischer Lösung für Produktkern entsprechend der Gleichung (2.21) mit $v_2 = N_0 = 1$ und $\nu = a = 2$

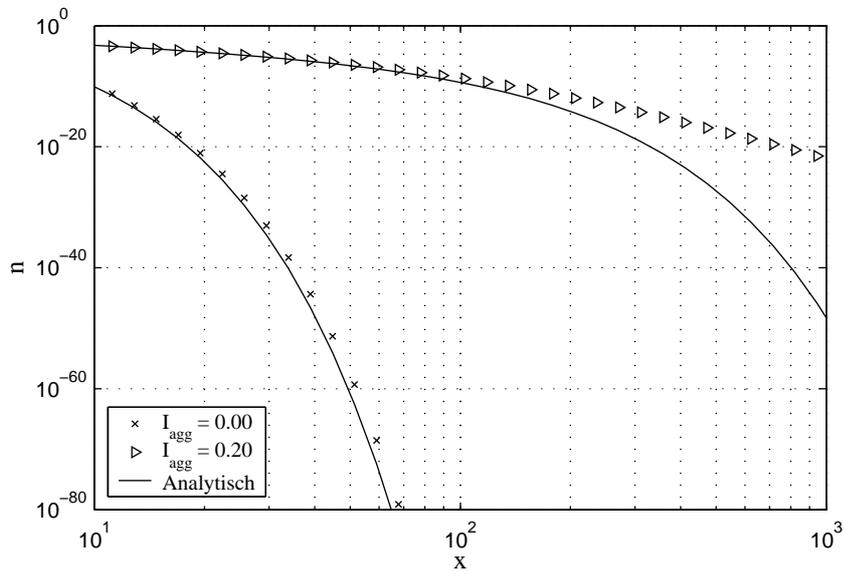


Abbildung 2.18: Vergrößerung des Fehlers aus Abbildung 2.17 für Produktkern entsprechend der Gleichung (2.21) mit $v_2 = N_0 = 1$ und $\nu = a = 2$

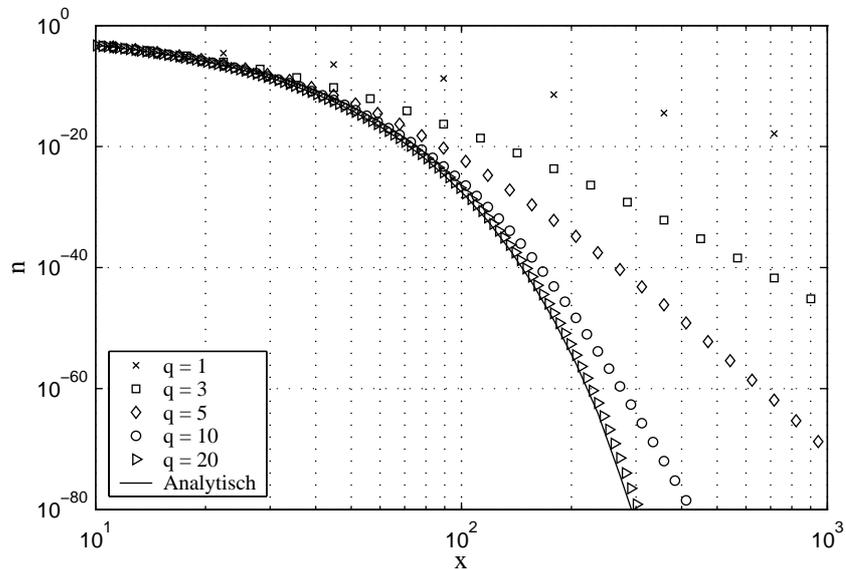


Abbildung 2.19: Einfluss des Diskretisierungsfaktors q auf die numerische Lösung für konstanten Kern entsprechend der Gleichung (2.17) mit $v_2 = N_0 = 1$, $\nu = a = 2$ und $I_{agg} = 0.5$

Tabelle 2.2: Zeitlicher Verlauf der Aggregationsraten für ausgewählte Kerne

Kern β	I_{agg} entsprechend Tabelle 2.1	I_{agg} für Verteilungstyp Gleichung (2.15)
β_0	$\frac{\beta_0 \mu_0 _{t=0s} t}{2 + \beta_0 \mu_0 _{t=0s} t}$	$\frac{\beta_0 N_0 t}{2 + \beta_0 N_0 t}$
$\beta_0(u + v)$	$1 - \exp(-\beta_0 \mu_1 _{t=0s} t)$	$1 - \exp(-\beta_0 N_0 v_0 t)$
$\beta_0(u \cdot v)$	$\frac{1}{2} \beta_0 \frac{\mu_1^2 _{t=0s} t}{\mu_0 _{t=0s}}$	$\frac{1}{2} \beta_0 N_0 v_0^2 t$

die logarithmische Darstellung der Anzahldichte vergrößert darstellen. Während durch die Differenz zwischen numerischer Berechnung und analytischer Lösung bei der Bestimmung niedriger Momente (Anzahl) kein großer Fehler auftritt, wird bei der Berechnung höherer Momente der Einfluss dieser Abweichung verstärkt. Durch eine feineres Gitter und somit einen höheren Wert von q kann die Genauigkeit erhöht werden, wobei jedoch die Rechenzeiten stark ansteigen. Für den konstanten Kern ist in der Abbildung 2.19 ein Vergleich der numerischen Lösungen für verschiedene Werte des Diskretisierungsparameters q dargestellt. Wie der Darstellung zu entnehmen ist, verringert sich der Fehler der numerischen Berechnung mit steigendem Wert von q .

2.5 Diskretisierung der erweiterten Eigenschaftskordinaten

Im Abschnitt 2.2 wurde ein Modell zur Erweiterung der Eigenschaftskordinaten der dispersen Phase vorgestellt, wobei diese Eigenschaften stets als extensive Zustandsgrößen aufgefasst wurden. Die bisher vorgeschlagenen Modelle zur Beschreibung der Partikelanzahlverteilung (DPBE) können nicht auf das Modell entsprechend der Gleichung (2.14) angewandt werden. Hounslow u. a. (2001) entwickelten eine diskrete Formulierung zur Beschreibung der extensiven Eigenschaft. In ihrer Arbeit berechneten sie die Verteilung eines Tracerstoffes (DTMD). Wie jedoch in den folgenden Abschnitten gezeigt wird, ist das Modell von Hounslow u. a. (2001) nicht für alle Problemstellungen konsistent und gültig. Durch einige Modifikationen kann eine allgemeingültigere Formulierung der DTMD aufgestellt werden, welche für eine größere Anzahl von Anwendungen genutzt werden kann.

2.5.1 DTMD Hounslows

Das von Hounslow u. a. (2001) vorgeschlagene Modell ermöglicht die Berechnung der Massenänderung eines Indikatorstoffes (Tracer). Im thermodynamischen Sinn stellt eine solche Masse eine extensive Größe dar. Hounslow u. a. (2001) betrachten zunächst einen bestimmten Betrag eines Tracers in einem Partikel. Wenn M_i die gesamte Tracermasse und N_i die gesamte Partikelanzahl in einem Intervall sind, kann der Traceranteil je Partikel durch M_i/N_i wiedergegeben werden. Mit diesen Annahmen entwickelten Hounslow u. a. (2001) folgendes diskrete Modell für die Massenverteilung des Tracers

$$\begin{aligned} \frac{dM_i}{dt} = & M_{i-1} \sum_{j=1}^{i-2} 2^{j-i+1} \beta_{i-1,j} N_j + N_{i-1} \sum_{j=1}^{i-2} 2^{j-i+1} \beta_{i-1,j} M_j + \beta_{i-1,i-1} N_{i-1} M_{i-1} \\ & + N_i \sum_{j=1}^{i-1} (1 - 2^{j-i}) \beta_{i,j} M_j - M_i \sum_{j=1}^{i-1} 2^{j-i} \beta_{i,j} N_j - M_i \sum_{j=i}^I \beta_{i,j} N_j \quad . \end{aligned} \quad (2.66)$$

In Abschnitt 2.4.2.1 wurde bereits erwähnt, dass Hounslow u. a. (1988) in ihrer Arbeit nur 4 binäre Mechanismen beschreiben, die zu einer Agglomeration führen können. Auf einen weiteren

Mechanismus wird nicht verwiesen. Nach Umschreiben der Gleichung (2.66) zu

$$\begin{aligned}
\frac{dM_i}{dt} &= \sum_{j=1}^{i-2} 2^{j-i+1} \beta_{i-1,j} (M_{i-1}N_j + N_{i-1}M_j) + \frac{1}{2} \beta_{i-1,i-1} (N_{i-1}M_{i-1} + M_{i-1}N_{i-1}) \\
&\quad - M_i \sum_{j=1}^{i-1} 2^{j-i} \beta_{i,j} N_j - M_i \sum_{j=i}^I \beta_{i,j} N_j \\
&\quad + N_i \sum_{j=1}^{i-1} (1 - 2^{j-i}) \beta_{i,j} M_j \quad .
\end{aligned} \tag{2.67}$$

und vergleichender Betrachtung mit der DPBE nach Hounslow u. a. (1988)

$$\begin{aligned}
\frac{dN_i}{dt} &= \sum_{j=1}^{i-2} 2^{j-i+1} \beta_{i-1,j} N_{i-1} N_j + \frac{1}{2} \beta_{i-1,i-1} N_{i-1}^2 \\
&\quad - N_i \sum_{j=1}^{i-1} 2^{j-i} \beta_{i,j} N_j - N_i \sum_{j=i}^I \beta_{i,j} N_j
\end{aligned} \tag{2.68}$$

ist zu erkennen, dass neben der Ersetzung der $N_i N_j$ -Entstehungsterme durch $(N_i M_j + M_i N_j)$ sowie der $N_i N_j$ -Schwundterme durch $M_i N_j$ ein weiterer Ausdruck eingeführt wurde. Dieser repräsentiert einen fünften Aggregationsmechanismus, der in der Arbeit von Hounslow u. a. (2001) nicht weiter diskutiert wird. Dennoch ist die Einführung dieses Ausdruckes notwendig, da die Tracermasse durch diesen weiteren Mechanismus im entsprechenden Intervall erhöht wird. Da die Partikelanzahl durch diesen Vorgang keine Änderung erfährt, ist dieser Term in der Gleichung (2.68) nicht vorhanden. Um dennoch die höheren Momente wie beispielsweise die Partikelmasse mit der Formulierung (2.68) korrekt wiederzugeben, führen Hounslow u. a. (1988) den Volumenkorrekturfaktor $k = 2/3$ in der Gleichung (2.68) ein.

Neben der Forderung nach der extensiven Eigenschaft der zu bilanzierenden Größe ist keine weitere Annahme nötig. Daher kann dieses Modell auf weitere extensive Größen, wie zum Beispiel die Wassermasse innerhalb eines Partikels oder die Enthalpie eines Partikels, angewendet werden. Oftmals ist es zur Beschreibung bestimmter Prozesse, wie etwa die kinetischen Transportvorgänge Wärme- und Stofftransport, notwendig, anstatt der extensiven Zustände intensive Größen, zum Beispiel Temperatur, Konzentration oder Beladungen, einzuführen. Diese ergeben sich aus dem Verhältnis zweier extensiver Größen. So kann die Temperatur als Verhältnis aus Enthalpie und Masse der Partikel unter der Annahme einer konstanten Wärmekapazität oder die Beladung aus dem Verhältnis aus Wassermasse und Partikelmasse bestimmt werden. Aus dieser Überlegung heraus wird ersichtlich, dass sich zur Erhaltung der intensiven Größen die entsprechenden extensiven Parameter in gleichen Verhältnissen ändern müssen. Das Modell von Hounslow u. a. (2001) kann diese Bedingung nicht erfüllen.

Am Beispiel eines Batch-Systems, bei dem die Anfangsverteilung durch eine Exponentialfunktion entsprechend der Gleichung (2.25) beschrieben wird, soll dieses Problem verdeutlicht werden. Die Anfangsbedingung für die Verteilung der extensiven Größe (Tracer) wird hierbei durch $M_i|_{t=0s} = \bar{v}_i N_i|_{t=0s}$ bestimmt. Somit entspricht die extensive Größe zum Zeitpunkt $t = 0s$ exakt der Partikelmasse und das Verhältnis aus $M_i/M_{p,i} = M_i/(\bar{v} N_i)$ nimmt den Wert E_{ims} an. Wenn der Tracer gleichmäßig über alle Partikel verteilt ist und in dem System nur eine reine

Aggregation auftritt, kann sich das Verhältnis aus Tracermasse M_i und Partikelmasse $M_{p,i}$ nicht ändern, da sich sowohl die Partikelmassen als auch die Tracermassen der aggregierenden Partikel additiv verhalten. Wie jedoch in der Abbildung 2.20 zu sehen ist, bleibt dieses Verhältnis nicht zeitkonstant. Für eine Aggregationsrate von $I_{agg} = 0.8$ ist die berechnete Verteilung in der Abbildung 2.20 dargestellt. Demzufolge ist es nicht möglich, mit Hilfe dieses Modellansatzes intensive Eigenschaften zu berechnen, welche sich aus der Änderung bestimmter extensiver Eigenschaften ergeben. Würde in diesem konkreten Fall M_i als die Enthalpie der Partikel und das Verhältnis aus M_i und $\bar{v}_i N_i$ als Temperatur interpretiert werden, käme es auf Grund reiner Aggregation zu einer Temperaturabsenkung bestimmter Partikelgrößen.

2.5.2 Neues Modell zur Berechnung der DTMD

Die im vorherigen Abschnitt dargestellte Inkonsistenz des Modells von Hounslow u. a. (2001) beruht auf der Tatsache, dass sich die Verhältnisse zwischen Tracer- und Partikelmasse ändern. Zur Beseitigung des Problems soll Folgendes gelten: Durch die Aggregation von zwei Partikeln aus den Intervallen j und k entstehen im i -ten Intervall N Partikel. Folglich ist der Tracerbetrag, der durch diese Aggregation in i erzeugt wird, durch $N[M_j/N_j + M_k/N_k]$ beschrieben. Hounslow u. a. (2001) betrachten den identischen Betrag zur Ableitung des Modells entsprechend der Gleichung (2.66). Die Inkonsistenz rührt aus der unterschiedlichen Aufteilung der Partikelmasse und der Tracermasse in dem i -ten Intervall. Zur Verdeutlichung dieses Effektes soll nun ausschließlich die Partikelmasse betrachtet werden. Die tatsächliche Partikelmasse, welche im Intervall i durch die Aggregation entsteht, ist durch $N[\bar{v}_j + \bar{v}_k]$ gekennzeichnet, wenn \bar{v}_j und \bar{v}_k die mittleren Volumen des Intervalls j und k sind. Mathematisch wird jedoch der Betrag $N\bar{v}_i$ dem Intervall i zugeordnet. Die Beziehung

$$N[\bar{v}_j + \bar{v}_k] \neq N\bar{v}_i, \quad \forall \quad i, j, k \quad (2.69)$$

ist in dieser Form für geometrische Gitter nicht gültig. Hounslow u. a. (2001) beschreiben demzufolge die Bewegung des Tracers nicht im gleichen Maße wie die der Partikelmasse. Diese Inkonsistenz kann durch Einführung eines Korrekturfaktors K in folgender Weise beseitigt werden:

$$\frac{\text{Zugeordnete Tracermasse}}{\text{Tatsächliche Tracermasse}} = \frac{\text{Zugeordnete Partikelmasse}}{\text{Tatsächliche Partikelmasse}} = \frac{\bar{v}_i}{(\bar{v}_j + \bar{v}_k)} = K \quad . \quad (2.70)$$

Durch Einführung von Korrekturfaktoren für das vorhergehende Modell ergibt sich

$$\begin{aligned} \frac{dM_i}{dt} = & M_{i-1} \sum_{j=1}^{i-2} 2^{j-i+1} \beta_{i-1,j} N_j K_1 + N_{i-1} \sum_{j=1}^{i-2} 2^{j-i+1} \beta_{i-1,j} M_j K_1 + \beta_{i-1,i-1} N_{i-1} M_{i-1} \\ & + N_i \sum_{j=1}^{i-1} (1 - 2^{j-i}) \beta_{i,j} M_j K_2 - M_i \sum_{j=1}^{i-1} 2^{j-i} \beta_{i,j} N_j K_3 - M_i \sum_{j=i}^I \beta_{i,j} N_j \end{aligned} \quad (2.71)$$

mit den Korrekturfaktoren

$$K_1 = \frac{2}{2^{j-i+1} + 1}, \quad K_2 = \frac{1}{2^{j-i} + 1}, \quad K_3 = \frac{2}{2^{j-i} + 1} \quad . \quad (2.72)$$

Die Einführung von Korrekturfaktoren im dritten und letzten Term sind nicht notwendig, da die Faktoren in diesen Ausdrücken den Wert 1 annehmen. Die Massenänderung des Systems

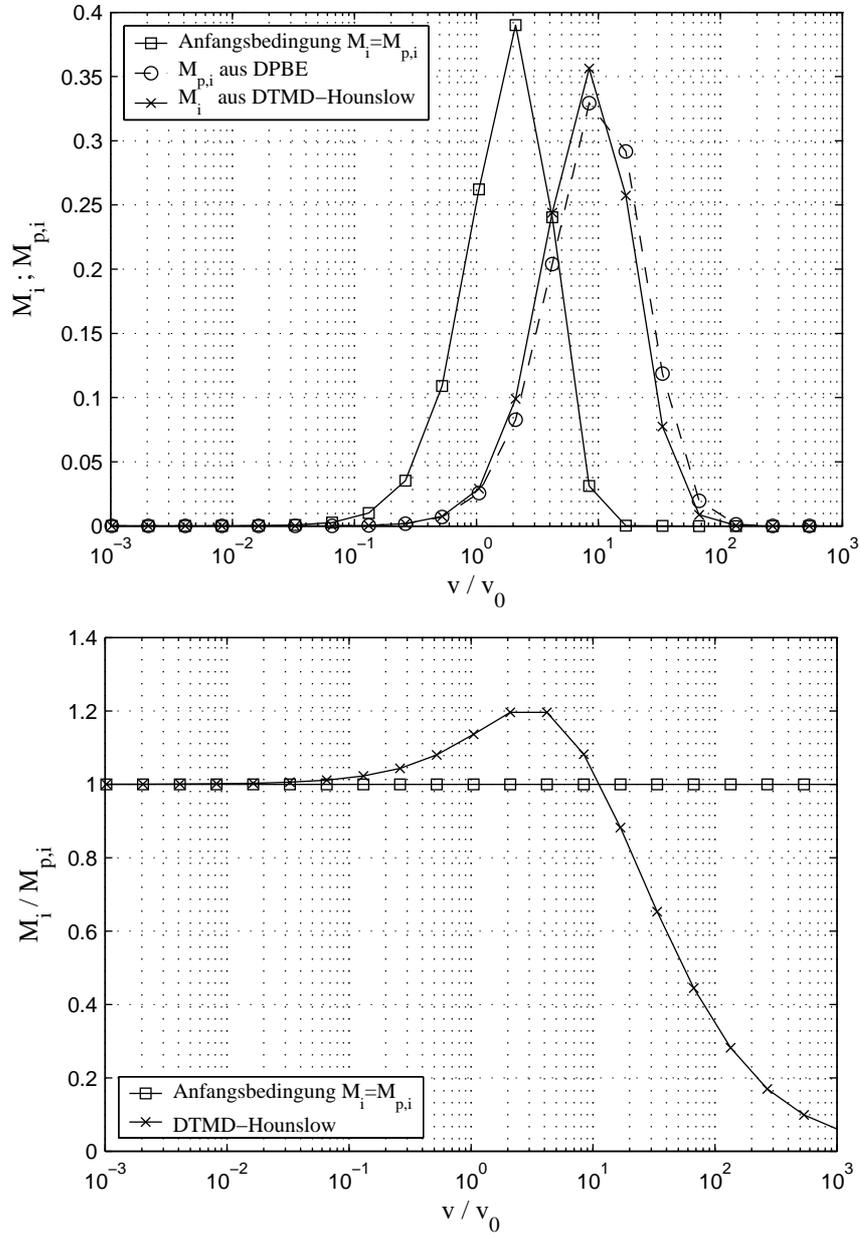


Abbildung 2.20: Verteilung (oben) und Verhältnis (unten) von Tracer- und Partikelmasse für DTMD-Modell nach Hounslow u. a. (2001) entsprechend Gleichung (2.66) für Exponentialverteilung als Anfangsbedingung nach Gleichung (2.25) mit $N_0 = v_0 = 1$, konstanten Kern $\beta_0 = 1$ und $I_{agg} = 0.8$

$\sum dM_i/dt = 0$ ist weiterhin erfüllt⁴. Falls die Gleichung (2.71) zur Berechnung der Aggregatmasse genutzt wird, kann gezeigt werden, dass

$$\frac{dM_i}{dt} = \bar{v}_i \frac{dN_i}{dt} \quad (2.73)$$

mit \bar{v}_i als mittlere Partikelgröße des i -ten Intervalls gilt.

Mit Hilfe des neuen DTMD-Modell der Gleichung (2.71) kann nun gezeigt werden, dass das Verhältnis aus der Tracer-Masse und der Partikelmasse zeitinvariant ist. Analog zum vorherigen Abschnitt wird der Tracer M_i entsprechend der Partikelmasse $M_{p,i}$ so verteilt, dass das Verhältnis aus beiden Größen den Wert *Eins* ergibt. In der Abbildung 2.21 ist das berechnete Verhältnis DTMD-Modell dargestellt. Die Beseitigung der Inkonsistenz zwischen der Verteilung der Partikelanzahl und der Partikelmasse führt dazu, dass die gleichmäßige Verteilung des Tracers erhalten bleibt. Aus den eben dargestellten Betrachtungen folgt, dass es möglich ist, intensive Größen durch Einführung geeigneter extensiver Größen zu beschreiben. Weiterhin kann dieser neue Modellansatz auf andere bestehende diskrete Formulierungen der Populationsbilanz angewendet werden. Für das diskrete Modell der Populationsbilanz von Wynn (1996) mit einem skalierbaren geometrischen Gitter entsprechend der Gleichung (2.52) folgt für die neue Tracerverteilung

$$\begin{aligned} \frac{dM_i}{dt} = & \sum_{j=1}^{i-S_1} \frac{2^{(j-i+1)/q}}{2^{1/q} - 1} \beta_{i-1,j} (M_{i-1}N_j + N_{i-1}M_j)K_1 + \beta_{i-q,i-q}N_{i-q}M_{i-q} \\ & + \sum_{p=1}^{q-1} \sum_{j=i+1-S_p}^{i+1-S_{p+1}} \frac{2^{1/q} - 2^{(j-i)/q} - 2^{-p/q}}{2^{1/q} - 1} \beta_{i-p,j} (M_{i-p}N_j + N_{i-p}M_j)K_2 \\ & + \sum_{p=2}^q \sum_{j=i-S_{p-1}}^{i-S_p} \frac{2^{(j-i+1)/q} - 1 + 2^{-(p-1)/q}}{2^{1/q} - 1} \beta_{i-p,j} (M_{i-p}N_j + N_{i-p}M_j)K_3 \\ & + \sum_{j=1}^{i-S_1+1} \left(1 - \frac{2^{(j-i)/q}}{2^{1/q} - 1} \right) \beta_{i,j}N_iM_jK_4 \\ & - \sum_{j=1}^{i-S_1+1} \frac{2^{(j-i)/q}}{2^{1/q} - 1} \beta_{i,j}M_iN_jK_5 - \sum_{j=i-S_1+2}^I \beta_{i,j}M_iN_j \end{aligned} \quad (2.74)$$

mit den Korrekturfaktoren

$$K_1 = \frac{2^{(i-j)/q}}{1 + 2^{(i-j-1)/q}} \quad (2.75)$$

$$K_2 = K_3 = \frac{2^{(i-j)/q}}{1 + 2^{(i-j-p)/q}} \quad (2.76)$$

$$K_4 = \frac{1}{1 + 2^{(j-i)/q}} \quad (2.77)$$

$$K_5 = \frac{2^{1/q} - 1}{2^{(j-i)/q}} - \frac{-2^{i/q} + 2^{(2i-j)/q}(2^{1/q} - 1)}{2^{i/q} + 2^{j/q}} \quad (2.78)$$

⁴Die Ableitung zur Erhaltung der Masse ist im Anhang A.6 dargestellt.

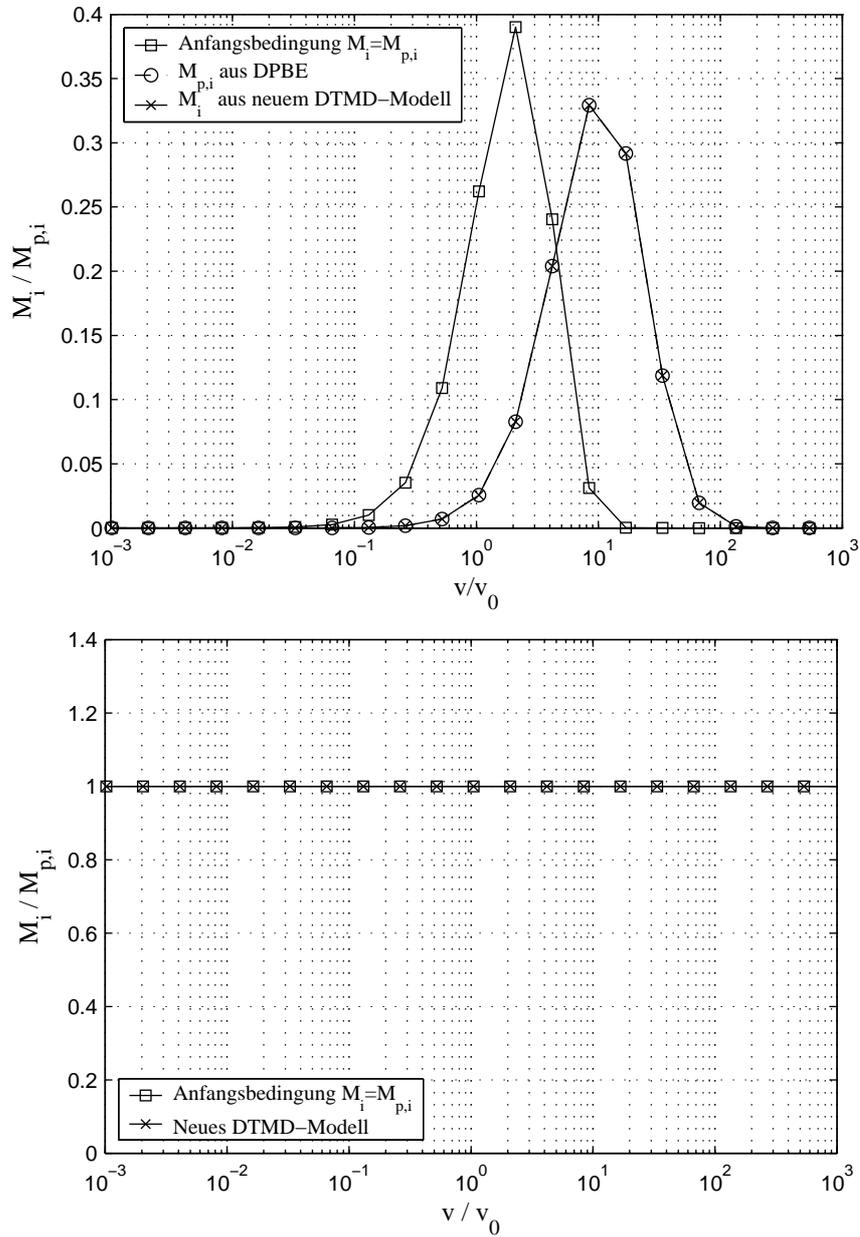


Abbildung 2.21: Verteilung (oben) und Verhältnis (unten) von Tracer- und Partikelmasse für neues DTMD-Modell entsprechend Gleichung (2.71) für Exponentialverteilung als Anfangsbedingung nach Gleichung (2.25) mit $N_0 = v_0 = 1$, konstanten Kern $\beta_0 = 1$ und $I_{agg} = 0.8$

Tabelle 2.3: Analytische Lösungen für den Verlauf des μ_1^T / μ_0^T -Momentes

β	μ_1^T / μ_0^T	Quelle
β_0	$1 + \frac{2I_{agg}}{(1 - I_{agg})^2} \frac{t}{\tau}$	Ilievski u. Hounslow (1995)
$(u + v)$	$\frac{1 - I_{agg}}{3I_{agg} - 1} + \frac{4I_{agg} - 2}{3I_{agg} - 1} \exp\left[\frac{I_{agg}}{1 - I_{agg}} \frac{t}{\tau}\right]$	Ilievski u. Hounslow (1995)
$(u \cdot v)$	$\exp\left[\frac{1 - \sqrt{1 - 8I_{agg}}}{2} \frac{t}{\tau}\right]$	Ilievski u. Hounslow (1995)

Die Formulierung der DTMD für das Modell nach Kumar u. Ramkrishna (1996a) ist relativ einfach. Die in diesem Modell notwendige Bestimmung der Fragmente liefert exakt die Verteilung der Partikelmasse. Diese Anteile können direkt für die Beschreibung der Verteilung des Tracers genutzt werden. Somit folgt für dieses Modell

$$\begin{aligned} \frac{dM_i}{dt} = & \sum_{\substack{j \geq k \\ j,k \\ x_{i-1} \leq v < x_{i+1}}} \left(1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k}\right) \eta \beta_{j,k} [N_j(t) M_k(t) - M_j(t) N_k(t)] \\ & - M_i(t) \sum_{k=1}^I \beta_{i,k} N_k(t) \end{aligned} \quad (2.79)$$

mit

$$\eta = \begin{cases} \frac{x_{i+1} - v}{x_{i+1} - x_i} \cdot \frac{x_i}{v}, & x_i \leq v \leq x_{i+1} \\ \frac{v - x_{i-1}}{x_i - x_{i-1}} \cdot \frac{x_i}{v}, & x_{i-1} \leq v \leq x_i \end{cases} \quad (2.80)$$

und

$$v = x_j + x_k \quad . \quad (2.81)$$

2.5.3 Vergleich der DTMD-Modelle

Hounslow u. a. (2001) überprüfen das vorgeschlagene Modell durch zwei Methoden. Die erste Methode ist die Erhaltung der Tracermasse in einem abgeschlossenen System. Wie nachgewiesen werden kann, erfüllen das Modell von Hounslow u. a. (2001) sowie das neue DTMD-Modell diese Forderung. Ein weiterer Test, der durch Hounslow u. a. (2001) dargestellt wird, bezieht sich auf einen kontinuierlich betriebenen Aggregationsprozess. Letzterer soll sich zum Zeitpunkt $t = 0s$

in einem stationären Zustand befinden

$$\frac{n_{in} - n_{out}}{\tau} = \frac{1}{2} \int_0^v \beta(u, v-u) n(u) n(v-u) du - n(v) \int_0^\infty \beta(u, v) n(u) du \quad , \quad (2.82)$$

wobei kontinuierlich ein monodisperser Keimstrom

$$n_{in}/\tau = B_0 \delta(v - v_0) \quad (2.83)$$

zugeführt wird. Gleichzeitig wird dem System ein konstanter Partikelstrom n_{out}/τ entnommen, sodass die gesamte Partikelanzahl konstant bleibt. Die Verweilzeit der Partikel in dem System beträgt τ . Diesem System wird zum Zeitpunkt $t = 0s$ ein mit Tracer beladener Keimstrom der Menge $\mu_0^T|_{t=0s}$ zugegeben. Unabhängig von der Struktur des Kerns nimmt in jedem Fall die gesamte Tracermasse im System μ_0^T exponentiell nach

$$\mu_0^T = \mu_0^T|_{t=0s} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \quad (2.84)$$

ab. Die weiteren analytischen Lösungen, welche nur für spezielle Aggregationskerne gelten, spiegeln den zeitlichen Verlauf des Verhältnisses aus dem ersten Moment des Tracers μ_1^T und dem nullten Moment des Tracers μ_0^T

$$\frac{\mu_1^T}{\mu_0^T} = \frac{\int_0^\infty v M dv}{\int_0^\infty M dv} \quad (2.85)$$

wider. Der zeitliche Verlauf dieses Wertes wird für die entsprechenden Fälle mit den in der Tabelle 2.3 aufgeführten Gleichungen berechnet. Hierbei wird die Aggregationsrate I_{agg} für kontinuierliche Prozesse durch

$$I_{agg} = 1 - \frac{\mu_0}{\mu_{0,in}} \quad (2.86)$$

wiedergegeben, wobei μ_0 die gesamte Partikelanzahl im System und $\mu_{0,in}$ die von außen zugeführte Partikelmenge beschreiben.

Für alle untersuchten Fälle wurde die exponentielle Abnahme der Tracermasse korrekt wiedergegeben. In der Abbildung 2.22 ist für den konstanten Aggregationskern beispielhaft das Berechnungsergebnis dargestellt.

In der Abbildung 2.24 ist der Verlauf des μ_1^T/μ_0^T -Moments für den konstanten Kern dargestellt. Während das Modell von Hounslow u. a. (2001) exakt mit der analytischen Lösung übereinstimmt, weicht das neue DTMD-Modell deutlich ab. Der Grund hierfür liegt darin, dass bei der neuen Formulierung die Inkonsistenz zwischen dN_i/dt und dM_i/dt beseitigt wurde. In Abbildung 2.23 ist zu sehen, dass die Formulierung der diskreten Populationsbilanz durch Hounslow u. a. (1988) entsprechend der Gleichung (2.48) ebenfalls eine deutliche Abweichung für das zweite Moment der Partikelanzahlverteilung μ_2 ergibt, während das nullte Moment μ_0 korrekt beschrieben wird. Das vorgeschlagene DTMD-Modell der Gleichung (2.71) berücksichtigt bei Berechnung des ersten Momentes des Tracers μ_1^T die Änderung des nullten Momentes μ_0 .

Daher weicht das mit dem neuen DTMD-Modell bestimmte μ_1^T/μ_0^T -Moment in der gleichen Art von der analytischen Lösung ab, wie die Änderung des zweiten Momentes der Partikelanzahl μ_2 nach Gleichung (2.48). Das Ergebnis ist, dass die Beseitigung der Inkonsistenz mit einer schlechteren Vorhersage des höheren Momentes μ_1^T/μ_0^T erzielt wurde. Hounslow u. a. (2001) erhöhen diese Genauigkeit der höheren Momente, indem sie einfach die bestmögliche Beschreibung für die Änderung der Partikelanzahl (2.48) sowie für die Partikelmasse (2.66) wählen, wobei jedoch die beschriebene Inkonsistenz erzeugt wird.

Einen Vergleich der numerischen Lösung des DTMD-Modells für den Produkt- und den Summenkern diskutieren Hounslow u. a. (2001) *nicht*. Im Rahmen dieser Arbeit wurden diese Berechnungen sowohl für das bisherige Modell als auch für die neue Formulierung durchgeführt. Der Vergleich ist in den Abbildungen 2.26 und 2.28 aufgezeigt. Da Hounslow u. a. (2001) das Modell der Gleichung (2.66) nur für das geometrische Gitter $v_{i+1}/v_i = 2^q$ mit $q = 1$ angeben, ist das neue DTMD-Modell ebenfalls für diese Diskretisierung berechnet. Die Werte für μ_1^T/μ_0^T weichen für *beide Formulierungen* stark von der analytischen Lösung ab. Die Differenz zwischen der analytischen Lösung und dem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten DTMD-Modell ist für ein geometrisches Gitter mit der Skalierung $q = 1$ stets höher als die bisherige Formulierung Hounslows. Im Fall eines Produktkerns ist der Vorteil des bisherigen Modells von Hounslow u. a. (2001) für die Berechnung höherer Momente nicht mehr vorhanden, da beide Modelle um ein Vielfaches von der exakten Lösung abweichen. Daraus folgt, dass das DTMD-Modell von Hounslow u. a. (2001) *nur für einen konstanten Kern* angewendet werden kann, wenn das μ_1^T/μ_0^T -Moment bzw. höhere Momente berechnet werden sollen.

Mit Hilfe des neuentwickelten DTMD-Modells ist es jedoch möglich, auch höhere Momente für größenabhängige Kerne exakter als bisher vorherzusagen. Der Grund für die große Abweichung zwischen dem numerischen Berechnungsergebnis und der analytischen Lösung liegt in der Art der gewählten Diskretisierung. Durch den Produkt- bzw. Summenkern werden sehr große Partikel erzeugt, da die Aggregationsrate bedingt durch die Struktur des Kerns mit steigendem Partikelvolumen zunimmt. Bei einem geometrischen Gitter der Form $v_{i+1}/v_i = 2$ sind die Intervalle am rechten Rand der Verteilung sehr groß und es kommt zur fehlerhaften Berechnung der Partikelanzahl bzw. der Partikelmasse (vgl. Abbildung 2.19). Diese Fehler verursachen eine große Abweichung bei der Bestimmung der höheren Momente. Durch Verfeinerung des Gitters kann die Genauigkeit erheblich verbessert werden. Dieser Effekt wird bereits ausführlich durch Litster u. a. (1995) diskutiert. In den Abbildungen 2.25, 2.27 und 2.29 sind für ein anpassbares geometrisches Gitter der Form von Gleichung (2.51) für verschiedene Werte von q die Berechnungsergebnisse dargestellt. Dabei werden jeweils das neue DTMD-Modell entsprechend der Gleichung (2.79) verwendet. Bei dem konstanten Kern wird für diese Diskretisierung sehr gut die analytische Lösung abgebildet. Bei weiter untersuchten Fällen in Bezug auf Produkt- und Summenkern wird das modifizierte Moment μ_1^T/μ_0^T mit einem verfeinerten Gitter wesentlich besser wiedergegeben. Eine stetige Erhöhung des Skalierungsfaktors q würde die Genauigkeit der numerischen Berechnungen weiter erhöhen.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass das neu vorgeschlagene Modell nach den Gleichung (2.74) bzw. (2.79) eine erhebliche Verbesserung der Berechnungsgenauigkeit bei größenabhängigen Aggregationskernen darstellt, da bestimmte höhere Momente durch das bisherige Modell von Hounslow u. a. (2001) fehlerhaft wiedergegeben werden. Die neuen Formulierungen ermöglichen erstmalig, ein anpassbares geometrisches Gitter auf die dargestellte Problematik anzuwenden. Gleichzeitig wird durch das neue Modell die oben diskutierte Inkonsistenz zwischen der Verteilung der Partikelmasse und der Tracermasse beseitigt. Letzteres führt dazu, dass die

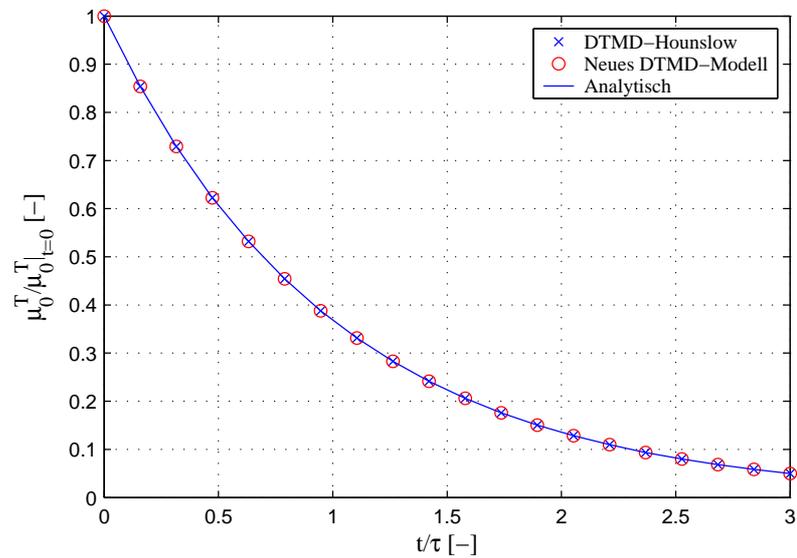


Abbildung 2.22: Zeitlicher Verlauf des μ_0^T -Momentes des Tracers bei konstantem Kern ($I_{agg} = 1/4$)

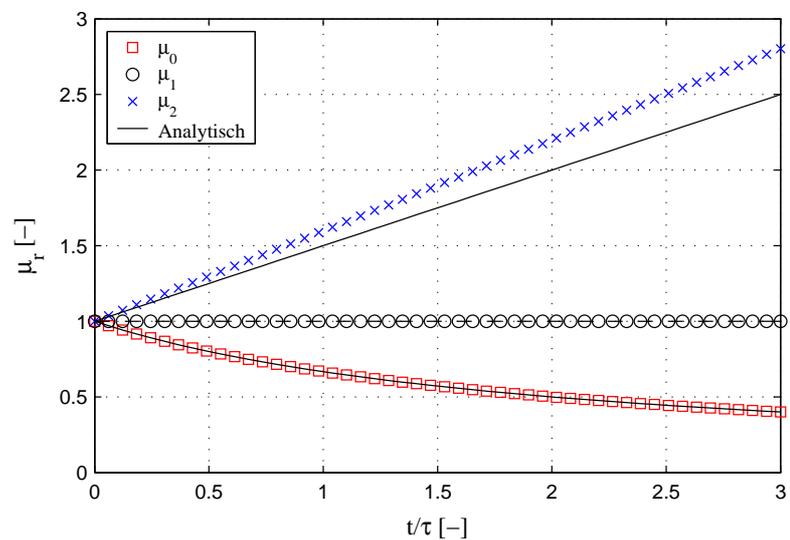


Abbildung 2.23: Zeitlicher Verlauf des normierten μ_0 - und μ_2 -Momentes der Partikelanzahl bei konstantem Kern ($I_{agg} = 3/5$)

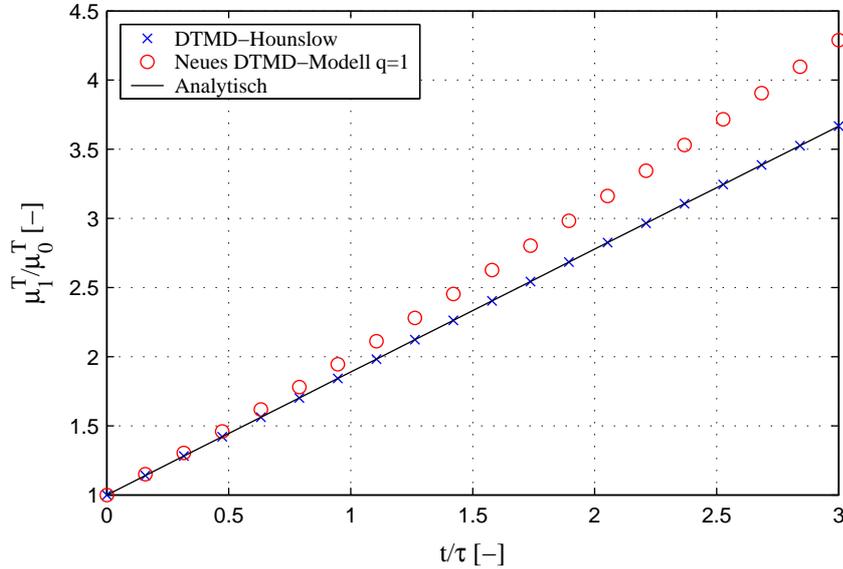


Abbildung 2.24: Vergleich des zeitlichen Verlaufs des normierten μ_1^T/μ_0^T -Momentes bei konstantem Kern für das Gitter $v_{i+1}/v_i = 2^q$ mit $q = 1$ und $I_{agg} = 1/4$ für DTMD-Hounslow nach Gleichung (2.66) und neues DTMD-Modell nach Gleichung (2.79)

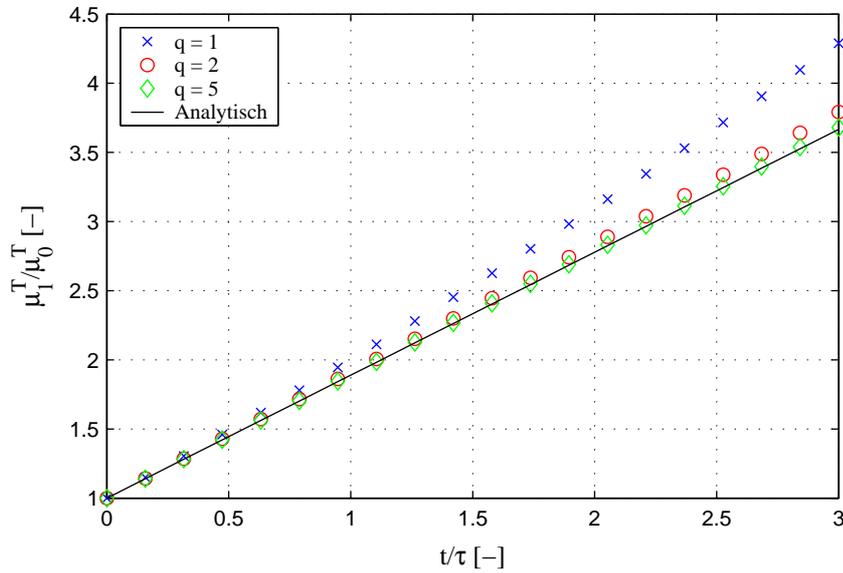


Abbildung 2.25: Einfluss der Diskretisierung auf den zeitlichen Verlauf des normierten μ_1^T/μ_0^T -Momentes des Tracers bei konstanten Kern unter Verwendung des neuen DTMD-Modells nach Gleichung (2.79) für ein anpassbares Gitter $v_{i+1}/v_i = 2^q$ mit $q = 1, 2, 5$ und $I_{agg} = 1/4$

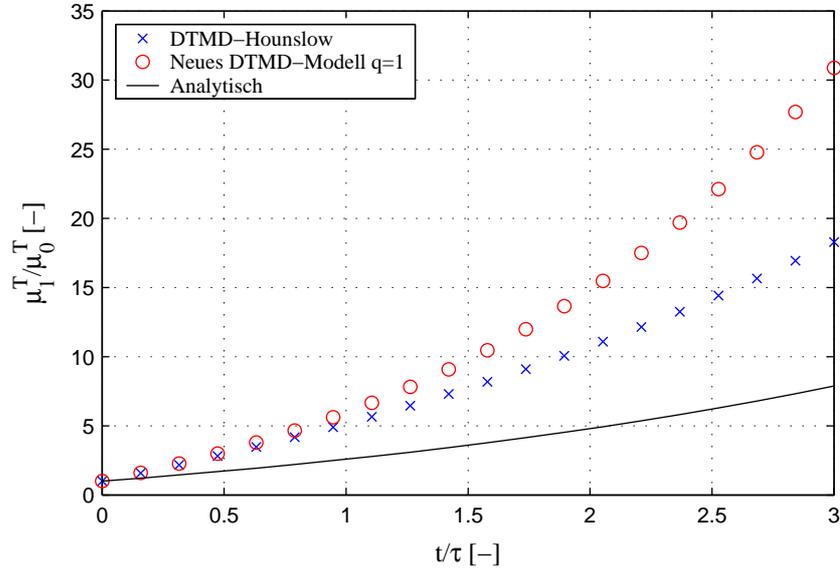


Abbildung 2.26: Vergleich des zeitlichen Verlaufs des normierten μ_1^T/μ_0^T -Momentes bei Summenkern für das Gitter $v_{i+1}/v_i = 2^q$ mit $q = 1$ und $I_{agg} = 1/4$ für DTMD-Hounslow nach Gleichung (2.66) und neues DTMD-Modell nach Gleichung (2.79)

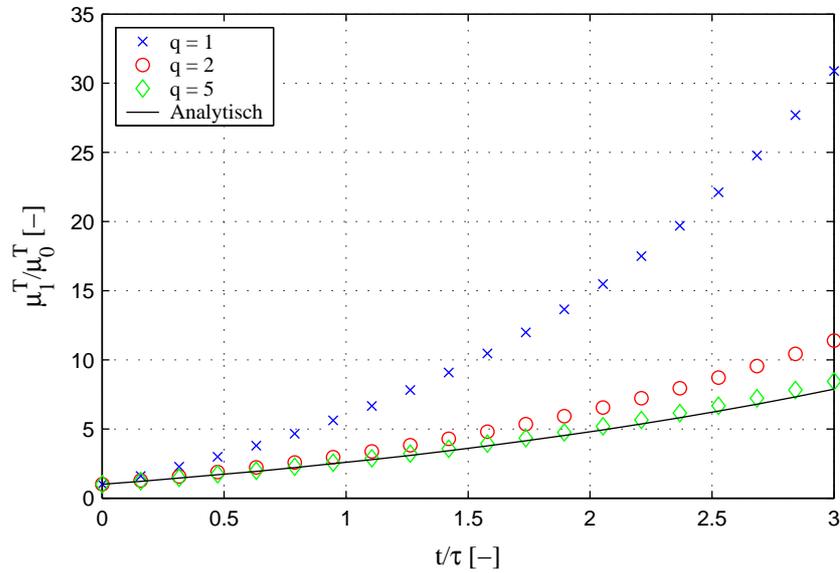


Abbildung 2.27: Einfluss der Diskretisierung auf den zeitlichen Verlauf des normierten μ_1^T/μ_0^T -Momentes des Tracers bei Summenkern unter Verwendung des neuen DTMD-Modells nach Gleichung (2.79) für ein anpassbares Gitter $v_{i+1}/v_i = 2^q$ mit $q = 1, 2, 5$ und $I_{agg} = 1/4$

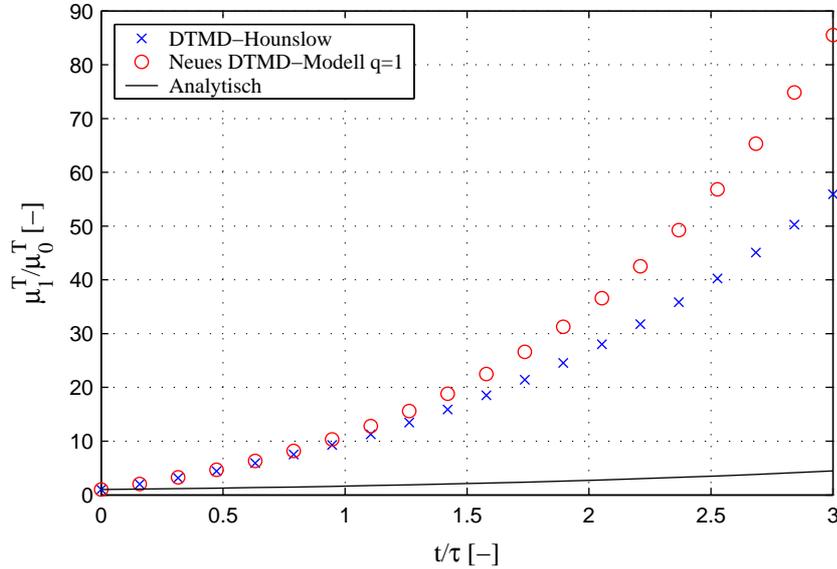


Abbildung 2.28: Vergleich des zeitlichen Verlaufs des normierten μ_1^T/μ_0^T -Momentes bei Produktkern für das Gitter $v_{i+1}/v_i = 2^q$ mit $q = 1$ und $I_{agg} = 1/4$ für DTMD-Hounslow nach Gleichung (2.66) und neues DTMD-Modell nach Gleichung (2.79)

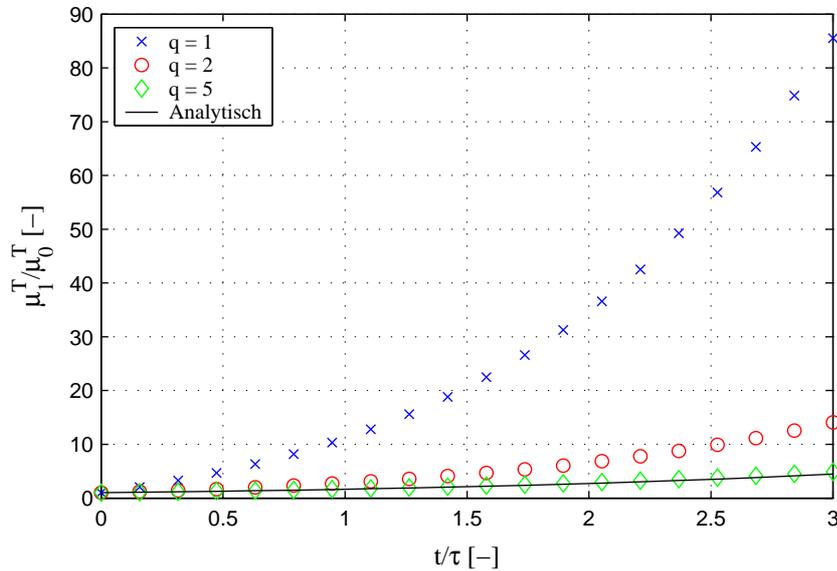


Abbildung 2.29: Einfluss der Diskretisierung auf den zeitlichen Verlauf des normierten μ_1^T/μ_0^T -Momentes des Tracers bei Produktkern unter Verwendung des neuen DTMD-Modells nach Gleichung (2.79) für ein anpassbares Gitter $v_{i+1}/v_i = 2^q$ mit $q = 1, 2, 5$ und $I_{agg} = 1/8$

Modellierung der zeitlichen Veränderung intensiver Zustandsgrößen in Folge von Aggregation durch die Betrachtung der entsprechenden extensiven Zustandsgrößen ermöglicht wird.

2.6 Inverses Problem

Bisher wurde davon ausgegangen, dass die sich zu einem bestimmten Zeitpunkt einstellende Partikelanzahlverteilung bei Kenntnis einer Anfangsverteilung sowie einer gegebenen Aggregationsrate berechnet werden kann. In vielen Problemstellungen ist es jedoch notwendig, den umgekehrten Weg zu beschreiten. Aus einer gegebenen Anzahl von Verteilungen soll der den Prozess beeinflussende Aggregationsmechanismus bestimmt werden. In diesem Zusammenhang spricht man auch von einem inversen Problem.

2.6.1 Methoden zur Bestimmung der Kinetiken

Grundsätzlich existieren die zwei Methoden des differentiellen und des integralen Ansatzes zur Bestimmung von kinetischen Parametern aus Versuchen. Beim Integralansatz wird eine integrale Form der kinetischen Gleichungen über die minimale Summe der quadratischen Fehler

$$SSE = \sum_t \left(\sum_i [N_{t,i} - \hat{N}_{t,i}]^2 \right) \quad (2.87)$$

an experimentelle Daten angepasst. Hierbei sind $N_{t,i}$ und $\hat{N}_{t,i}$ die Anzahl der Partikel in den experimentellen und simulierten Daten in einem Intervall i zum Zeitpunkt t . Dieser Ansatz besitzt jedoch den Nachteil eines hohen rechentechnischen Aufwands, da in der Regel keine geschlossene analytische Lösung der differentiellen Ausdrücke vorhanden ist. In diesem Fall sind kinetische Daten über einen differentiellen Ansatz wesentlich einfacher zugänglich. Ein einfaches Beispiel für die Bestimmung dieser Werte geben Hounslow u. a. (1988) für größenunabhängige Aggregation und größenunabhängiges Wachstum in einem Batch-System an. Über die differentielle Änderung der gesamten Partikelanzahl $d\mu_0/dt$ lässt sich die Aggregationsrate⁵

$$\beta_0(t) = -\frac{2}{\mu_0^2} \frac{d\mu_0}{dt} \quad (2.88)$$

und die Wachstumsrate⁶

$$\tilde{G}_0(t) = \frac{1}{3\tilde{\mu}_2} \frac{d\tilde{\mu}_3}{dt} \quad (2.89)$$

mit Hilfe des längenbezogenen dritten Momentes $d\tilde{\mu}_3/dt$ direkt aus den experimentellen Daten bestimmen. Das Problem dieser Methode besteht in der genauen Bestimmung der Änderung der Momente $d\mu_i/dt$. In der Praxis gestaltet es sich auf Grund der geringen Anzahl von Proben als sehr schwierig, diese Werte hinreichend genau zu erfassen.

⁵Die Ableitung zur Erhaltung der Momente bei der Aggregation ist im Anhang A.3 dargestellt.

⁶Die Ableitung zur Erhaltung der Momente beim Wachstum ist im Anhang A.4 dargestellt.

2.6.2 Bestimmung der Kinetiken bei monodisperser Keimbildung

In der Literatur existieren verschiedene Ansätze für die Bestimmung von Wachstums- und Aggregationskinetiken. Grundsätzlich ist zu unterscheiden, ob es sich um ein kontinuierliches oder diskontinuierliches System handelt. Für kontinuierliche Systeme, welche sich in einem stationären Zustand befinden, geben Hounslow (1990b) ein Modell an, welches grundsätzlich auf einer Momentenbetrachtung beruht. Der Nachteil dieser Methode besteht darin, dass bei der integralen Betrachtung der Partikelverteilung nur eine größenunabhängige Aggregationsrate ermittelt werden kann. Aus diesem Grund soll dieser Ansatz nicht weiter verfolgt werden.

Zur Bestimmung einer partikelgrößenabhängigen Aggregationsrate mit überlagertem Wachstum und monodisperser Keimbildung im kleinsten Intervall in einem Batch-System schlagen Bramley u. a. (1996) ein Modell vor, welches im nächsten Abschnitt als Basis dienen soll, polydisperse Keimbildung zu beschreiben. Dieser Ansatz geht von der Annahme aus, dass die unterschiedlichen Prozesse der Aggregation und des Wachstums voneinander unabhängig auf die Momente wirken. Während eine Änderung der Partikelanzahl μ_0 durch Aggregation hervorgerufen wird, ändert sich das Gesamtvolumen der Partikel μ_1 durch Wachstum. Die Keimbildung B_0 hingegen beeinflusst beide Momente, da sich einerseits die gesamte Partikelanzahl und andererseits auch das gesamte Volumen durch diesen Prozess erhöhen. Eine notwendige Bedingung zur vollständigen Beschreibung des Problems ist die Änderung der Partikelanzahl N_1 im ersten Intervall. Diese kann durch alle drei Prozesse (Aggregation, Wachstum und Keimbildung) verändert werden. Diese Betrachtungen führen zu den folgenden Gleichungen

$$\frac{d\mu_0}{dt} = \beta_0 \frac{\dot{\mu}_{0,agg}}{\beta_0} + B_0 \quad , \quad (2.90)$$

$$\frac{d\mu_1}{dt} = G_0 \frac{\dot{\mu}_{1,g}}{G_0} + B_0 v_1 \quad , \quad (2.91)$$

$$\frac{dN_1}{dt} = G_0 \frac{\dot{N}_{1,g}}{G_0} + \beta_0 \frac{\dot{N}_{1,agg}}{\beta_0} + B_0 \quad . \quad (2.92)$$

Alle Terme auf der rechten Seite der Gleichungen (2.90) bis (2.92) müssen durch eine diskrete Formulierung der Populationsbilanz wiedergegeben werden. Die Terme auf der linken Seite der Gleichungen müssen durch Messwerte ersetzt werden. Durch diese Methode besteht die Möglichkeit, innerhalb der diskreten Formulierung des Terms $\dot{\mu}_{0,agg}/\beta_0$ einen größenabhängigen Kern bzw. in $\dot{\mu}_{1,g}/G_0$ eine partikelgrößenabhängige Wachstumsrate zu verwenden. Im folgenden Abschnitt soll das Modell von Bramley u. a. (1996) als Ausgangspunkt zur Erweiterung für polydisperse Keimbildung dienen.

2.6.3 Neues Modell zur Bestimmung der Kinetiken bei polydisperser Keimbildung

Keimbildung wird oft als die Bildung von Partikeln im kleinsten Größenintervall betrachtet. Aber diese Herangehensweise ist oftmals mit Problemen bei der Partikelgrößenmessung verbunden. Besonders bei der Kristallisation ist es nicht möglich, zwischen Keimen verschiedener Größe zu unterscheiden, da die verwendeten Messgeräte nicht in der Lage sind, diesen Keimbildungsbereich hinreichend aufzulösen. Weiterhin kann es zu einer Keimbildung von Partikeln kommen, deren Größe unterhalb des Messbereiches liegt. Durch Wachstum und Aggregation werden diese Partikel im unteren Messbereich sichtbar. Dieses Erscheinen wird oftmals als Keimbildung

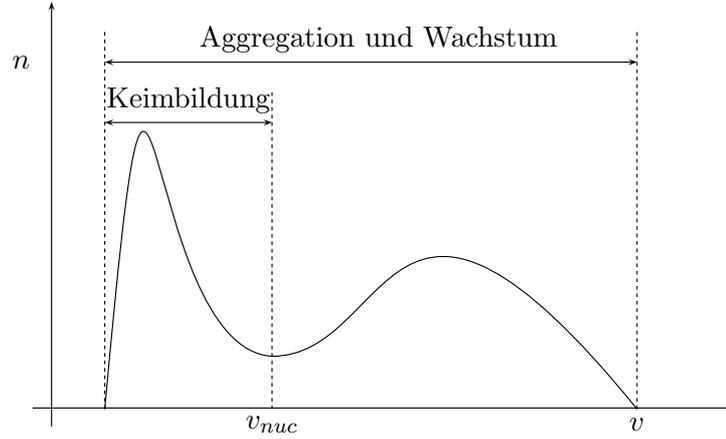


Abbildung 2.30: Partikelverteilung mit polydispenser Keimbildung

bezeichnet. In einer Vielzahl von Aggregationsprozessen kann jedoch durchaus größenabhängige Keimbildung (Nucleation) auftreten. Besonders bei der Wirbelschicht-Sprühagglomeration, bei der sich das Partikelspektrum in einem Bereich von $50\text{--}2000\mu\text{m}$ bewegt, ist auf Grund von Overspray und Abrieb mit einer breiten Keimverteilung zu rechnen. Ziel ist es daher, für einen solchen Prozess ein Modell abzuleiten, welches die Bestimmung einer solchen partikelgrößenabhängigen Keimbildung erlaubt.

Als Modellansatz soll eine kontinuierliche Partikelverteilung dienen, wie sie in Abbildung 2.30 dargestellt ist. Die Verteilung wird in zwei Bereiche unterschieden. Während im gesamten Bereich sowohl Aggregation und Wachstum auftreten, kommt es im Intervall $\{0; v_{nuc}\}$ zur partikelgrößenabhängigen Keimbildung. Ausgangspunkt sei die allgemeine Populationsbilanz mit Aggregation, Wachstum und Keimbildung für ein abgeschlossenes System

$$\begin{aligned} \frac{\partial n(t, v)}{\partial t} + \frac{\partial (G(t, v) n(t, v))}{\partial v} &= \frac{1}{2} \int_0^v \beta(t, u, v-u) n(t, u) n(t, v-u) du \\ &\quad - n(v, t) \int_0^\infty \beta(t, u, v) n(t, u) du + B_0(t, v) \quad , \end{aligned} \quad (2.93)$$

wobei alle kinetischen Parameter eine Funktion der Partikelgröße und der Zeit darstellen. Zur Vereinfachung werden die Ausdrücke

$$\left(\frac{\partial n}{\partial t} \right)_g = - \frac{\partial (G(t, v) n(t, v))}{\partial v} \quad (2.94)$$

und

$$\left(\frac{\partial n}{\partial t}\right)_{agg} = \frac{1}{2} \int_0^v \beta(t, u, v-u) n(t, u) n(t, v-u) du - n(v, t) \int_0^\infty \beta(t, u, v) n(t, u) du \quad (2.95)$$

ersetzt. Zur Trennung dieser beiden Abhängigkeiten werden die Aggregationsrate durch

$$\beta(t, u, v) = \beta_0(t) \cdot \beta(u, v) \quad (2.96)$$

und die Wachstumsrate durch

$$G(t, v) = G_0(t) \cdot G(v) \quad (2.97)$$

definiert. Um die zeitliche Änderung der Partikel unabhängig von β_0 und G_0 beschreiben zu können, werden die zwei neuen Parameter

$$\xi_0 = \frac{1}{\beta_0} \left(\frac{\partial n}{\partial t}\right)_{agg} \quad (2.98)$$

und

$$\xi_1 = \frac{1}{G_0} \left(\frac{\partial n}{\partial t}\right)_g \quad (2.99)$$

eingeführt. Die Änderung des nullten und ersten Momentes sei durch

$$\dot{\mu}_0 = \int_0^\infty \frac{\partial n(t, v)}{\partial t} dv \quad (2.100)$$

und

$$\dot{\mu}_1 = \int_0^\infty v \frac{\partial n(t, v)}{\partial t} dv \quad (2.101)$$

gegeben. Damit ergibt sich für die Änderung der gesamten Partikelanzahl, welche nur durch die Aggregation und die Keimbildung beeinflusst werden kann, der folgende Ausdruck

$$\dot{\mu}_0 = \beta_0 \int_0^\infty \xi_0 dv + \int_0^\infty B_0 dv \quad (2.102)$$

Eine Veränderung der Gesamtmasse der Partikel kann nur durch Wachstum und durch neue Keime hervorgerufen werden. Somit gilt

$$\dot{\mu}_1 = G_0 \int_0^\infty v \xi_1 dv + \int_0^\infty v B_0 dv \quad (2.103)$$

Bei Betrachtung des Intervalls $[0, v_{nuc}]$, in welchem Keimbildung auftritt, müssen bei der Beschreibung der zeitlichen Änderung von Partikelanzahl und Partikelmasse Wachstum und Aggregation gleichzeitig berücksichtigt werden. Im Gegensatz zur Betrachtung des gesamten Intervalls $[0, \infty]$ hat hier sowohl die Aggregation einen Einfluss auf die Partikelmasse als auch das Wachstum auf die Partikelanzahl in $[0, v_{nuc}]$. Somit gilt für die Änderung des nullten Momentes

$$\dot{\mu}_0^{v_{nuc}} = \beta_0 \int_0^{v_{nuc}} \xi_0 dv + G_0 \int_0^{v_{nuc}} \xi_1 dv + \int_0^{v_{nuc}} B_0 dv \quad (2.104)$$

mit

$$\dot{\mu}_0^{v_{nuc}} = \int_0^{v_{nuc}} \frac{\partial n(t, v)}{\partial t} dv \quad . \quad (2.105)$$

Für die Änderung des ersten Momentes gilt

$$\dot{\mu}_1^{v_{nuc}} = \beta_0 \int_0^{v_{nuc}} v \xi_0 dv + G_0 \int_0^{v_{nuc}} v \xi_1 dv + \int_0^{v_{nuc}} v B_0 dv \quad (2.106)$$

mit

$$\dot{\mu}_1^{v_{nuc}} = \int_0^{v_{nuc}} v \frac{\partial n(t, v)}{\partial t} dv \quad . \quad (2.107)$$

Mit diesen Gleichungen ist das inverse Problem zur Bestimmung der partikelgrößenabhängigen Keimbildung vollständig beschrieben. In der Regel sind die zu untersuchenden Prozesse entweder durch Aggregation oder durch Wachstum dominiert. Aus dem Grund werden für diese beiden Fälle in den folgenden Abschnitten die exakten Lösungen dargestellt.

2.6.3.1 Aggregation und Keimbildung

Für den Fall, dass kein Wachstum auftritt, wird $G_0 = 0$ in der Gleichung (2.104) gesetzt. Somit kann aus den Gleichungen (2.105) und (2.102) die Aggregationsrate

$$\beta_0(t) = \frac{\dot{\mu}_0 - \dot{\mu}_0^{v_{nuc}}}{\int_0^\infty \xi_0 dv - \int_0^{v_{nuc}} \xi_0 dv} \quad (2.108)$$

und die Keimbildungsrate aus den Gleichungen (2.93) und (2.98)

$$B_0(t, v) = \frac{\partial n}{\partial t} - \beta_0(t) \xi_0 \quad (2.109)$$

bestimmt werden.

2.6.3.2 Wachstum und Keimbildung

In der gleichen Weise lässt sich aus den Gleichungen (2.106) und (2.103) die Wachstumsrate

$$G_0(t) = \frac{\dot{\mu}_1 - \dot{\mu}_1^{I_{nuc}}}{\int_0^\infty v \xi_1 dv - \int_0^{v_{nuc}} v \xi_1 dv} \quad (2.110)$$

und die Keimbildungsrate aus den Gleichungen (2.93) und (2.99)

$$B_0(t, v) = \frac{\partial n}{\partial t} - G_0(t) \xi_1 \quad (2.111)$$

bestimmen, indem in den entsprechenden Formulierungen $\beta_0 = 0$ gesetzt wird.

Mit diesen kontinuierlichen Gleichungen können folglich die kinetischen Parameter β_0 , G_0 und $B_0(v)$ bestimmt werden. Für eine praktische Anwendung ist es jedoch notwendig, eine diskrete Formulierung des Modells aufzustellen, da kontinuierliche Informationen über den Verlauf der Verteilungen nicht zugänglich sind. Dabei finden die Modelle von Hounslow u. a. (1988), Kumar u. Ramkrishna (1996a,b), Litster u. a. (1995) und Wynn (1996) Anwendung.

2.6.3.3 Diskrete Formulierung des Modells für Aggregation und Keimbildung

Bei experimentellen Untersuchungen werden Partikelverteilungen zu bestimmten diskreten Zeitpunkten gemessen. Die Änderung der gesamten Anzahl der Partikel $\dot{\mu}_0$ sowie der Partikelanzahl im Keimbildungsbereich $\dot{\mu}_0^{I_{nuc}}$ kann aus diesen Messwerten bestimmt werden. Damit gilt

$$\beta_0 = \frac{\dot{\mu}_0 - \dot{\mu}_0^{I_{nuc}}}{\sum_{i=1}^I \xi_{0,i} - \sum_{i=1}^{I_{nuc}} \xi_{0,i}} \quad (2.112)$$

und

$$B_{0,i} = \dot{N}_i - \beta_0 \xi_{0,i} \quad . \quad (2.113)$$

Der Parameter I_{nuc} gibt das letzte Intervall an, in welchem eine Keimbildung auftritt. Somit korrespondiert I_{nuc} in der diskreten Beschreibung des Modells mit v_{nuc} aus der kontinuierlichen Form. Die diskrete Formulierung von $\xi_{0,i}$ ist hierbei durch

$$\xi_{0,i} = \frac{1}{\beta_0} \left(\frac{dN_i}{dt} \right)_{agg} \quad (2.114)$$

mit

$$\dot{\mu}_0 = \frac{d}{dt} \left[\sum_{i=1}^I N_i \right] \quad , \quad (2.115)$$

$$\dot{\mu}_0^{I_{nuc}} = \frac{d}{dt} \left[\sum_{i=1}^{I_{nuc}} N_i \right] \quad (2.116)$$

gegeben. Die Summenterme im Nenner der Gleichung (2.112) müssen aus einer diskreten Formulierung der Populationsbilanz (Gleichung (2.50), (2.52), (2.56) oder (2.61)) unter Verwendung der Messwerte bestimmt werden.

2.6.3.4 Diskrete Formulierung des Modells für Wachstum und Keimbildung

Analog zum vorhergehenden Fall muss die Information über die gesamte Massenänderung $\dot{\mu}_1$ und der Änderung der Masse $\dot{\mu}_1^{I_{nuc}}$ in den diskreten Klassen $[1, I_{nuc}]$ wiederum aus den experimentellen Daten bestimmt werden. Ähnlich wie für den Parameter $\xi_{0,i}$ erhält man in der diskreten Formulierung für $\xi_{1,i}$

$$\xi_{1,i} = \frac{1}{G_0} \left(\frac{dN_i}{dt} \right)_g, \quad (2.117)$$

woraus für die Wachstumsrate

$$G_0 = \frac{\dot{\mu}_1 - \dot{\mu}_1^{I_{nuc}}}{\sum_{i=1}^I \xi_{1,i} \bar{v}_i - \sum_{i=1}^{I_{nuc}} \xi_{1,i} \bar{v}_i} \quad (2.118)$$

folgt. Somit gilt für die größenabhängige Keimbildungsrate

$$B_{0,i} = \dot{N}_i - G_0 \xi_{1,i} \quad (2.119)$$

Zur Bestimmung der zeitlich veränderlichen Größen (Anzahl, Volumen) aus den experimentellen Verteilungsmessungen können verschiedene Techniken (Interpolation, Differenzenverfahren) angewendet werden, welche aber die Qualität der abgeleiteten Parameter beeinflussen können. Im Rahmen dieser Arbeit wird stets der zentrale Differenzenquotient der Form von

$$\dot{x}|_t = \frac{x|_{t+\Delta t} - x|_{t-\Delta t}}{2\Delta t} \quad (2.120)$$

verwendet. Ausgenommen davon sind die Messwerte der ersten und letzten Verteilung. Hierbei wird stets der vordere Differenzenquotient

$$\dot{x}|_t = \frac{x|_{t+\Delta t} - x|_t}{\Delta t} \quad (2.121)$$

bzw. der hintere Differenzenquotient

$$\dot{x}|_t = \frac{x|_t - x|_{t-\Delta t}}{\Delta t} \quad (2.122)$$

verwendet.

2.6.3.5 Überprüfung des Modells für Aggregation

Zur Überprüfung des Modells erfolgte die Bestimmung der kinetischen Werte aus Partikelverteilungen mit bekannten Aggregations-, Wachstums- und Keimbildungsraten. Dazu wurden Partikelanzahlverteilungen der Form $N(v, t)$ durch Simulationen erzeugt. Die Generierung dieser Daten erfolgte bei allen Berechnungen mit der Annahme, dass sowohl die Anfangsverteilungen (*seed*) als auch die Keimverteilungen (*nuc*) einer exponentiellen Verteilung der Form

$$n(v) = \frac{N_0}{v_0} \exp\left(-\frac{v}{v_0}\right) \quad (2.123)$$

Tabelle 2.4: Parameter zur Datengenerierung für Aggregation und Keimbildung

Simulation	N_0^{seed}	v_0^{seed}	N_0^{nuc}	v_0^{nuc}	τ	$\beta(u, v)$
A1	1	1	1	1	1	1
A2	1	1	10	1	1	1
A3	1	1	1	0.001	1	1
A4	1	1	10	0.001	1	1
A5	1	1	1	1	1	$u + v$

entsprechen. Aus Gleichung (2.112) resultiert, dass stets $I_{nuc} < I$ gelten muss, da sonst bei der Berechnung dieser Gleichung eine Division durch Null erfolgt. Aus diesem Grund wurde für alle Simulationen das Keimbildungsintervall mit $[0; v_{nuc} = 2^3]$ festgelegt.

Zur Bestimmung der Aggregationskinetik sind fünf unterschiedliche Datensätze generiert worden, deren Parameter in der Tabelle 2.4 zusammengefasst sind, wobei ein anpassbares geometrisches Gitter mit $q = 2$ gewählt wurde. Die dimensionslose Zeit ist für den konstanten Kern durch $T = N_0\beta_0t$ und für den Summenkern durch $T = N_0\beta_0v_0t$ definiert. In den ersten Simulationen (A1-A4) wurde dabei ein größenunabhängiger Kern verwendet, während in der Simulation A5 ein einfacher Summenkern angenommen wurde. Da bei der Aggregation die Partikelanzahl zu Beginn stark abnimmt, wurden die einzelnen Datensätze in einem logarithmischen Zeitmaßstab erzeugt. Damit konnte die Genauigkeit der benötigten zeitlichen Ableitung wesentlich erhöht werden.

In den Abbildungen (2.31) bis (2.35) sind die Ergebnisse der kinetischen Parameter dargestellt. Im linken Diagramm ist jeweils die Anfangs- und Endverteilung zu sehen. Das rechte Bild zeigt die Abweichung der extrahierten (*ext*) kinetischen Parameter von den erwarteten (*exp*) Werten, welche zur Datenerzeugung genutzt wurden. Die Abweichung der akkumulierten Keimbildungsrate $\Delta \sum_i B_{0,i}$ ist ebenfalls in diesem Diagramm dargestellt. Die Fehler werden durch

$$\Delta x = 100 \left(\frac{x^{ext}}{x^{exp}} - 1 \right) \quad (2.124)$$

berechnet.

Wie den Abbildungen (2.31) bis (2.35) entnommen werden kann, sind die Abweichungen für alle Beispiele kleiner als ein Prozent. Dies zeigt, dass das Modell in der Lage ist, größenabhängige Keimbildung aus Messdaten zu ermitteln. Die Größe der Abweichung zwischen den erwarteten und extrahierten Werten variiert mit der Zeit, da das Modell sensibel auf die berechneten Ableitungen der generierten Daten reagiert. Im mittleren Diagramm der jeweiligen Abbildungen ist die ermittelte Keimverteilung zum Zeitpunkt $T = 0$ und zum Ende der Simulation im Vergleich mit der erwarteten Keimverteilung dargestellt. Wiederum ist zu erkennen, dass durch das Modell die größenabhängige Keimbildung gut wiedergegeben wird.

Am Beispiel der Simulation A5 soll ein weiterer Aspekt diskutiert werden. Entsprechend der Gleichung (2.112) ergibt sich die Aggregationsrate β_0 aus einem Quotienten, welcher im Zähler und im Nenner Differenzen zeitlich abhängiger Größen enthält. Wenn die Intervalle mit $i > I_{nuc}$ nur eine geringe Anzahl von Partikeln enthalten, nähern sich die Differenzen der Gleichung (2.112) dem Wert Null an. Eine solche Singularität tritt in der Simulation A5 zum Zeitpunkt von $T = 0.9$ auf. Da zur Berechnung von β_0 an dieser Stelle lediglich drei benachbarte Messpunkte

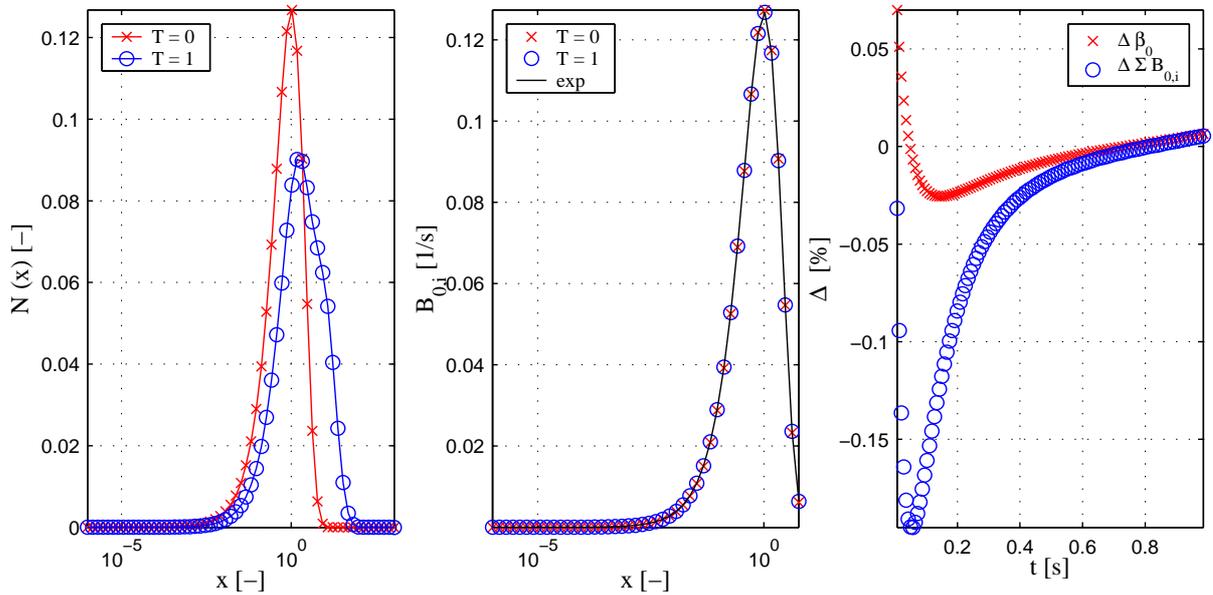


Abbildung 2.31: Simulation A1 - Linkes Diagramm: Partikelverteilung zum Zeitpunkt $T = 0$ und $T = 1$ s; Mittleres Diagramm: Vergleich der erwarteten (*exp*) und der berechneten Keimverteilung zum Zeitpunkt $T = 0$ und $T = 1$; Rechtes Diagramm: Vergleich der Fehler für Agglomerationsrate β_0 und kummulative Keimbildungsrate $\sum_i B_{0,i}$

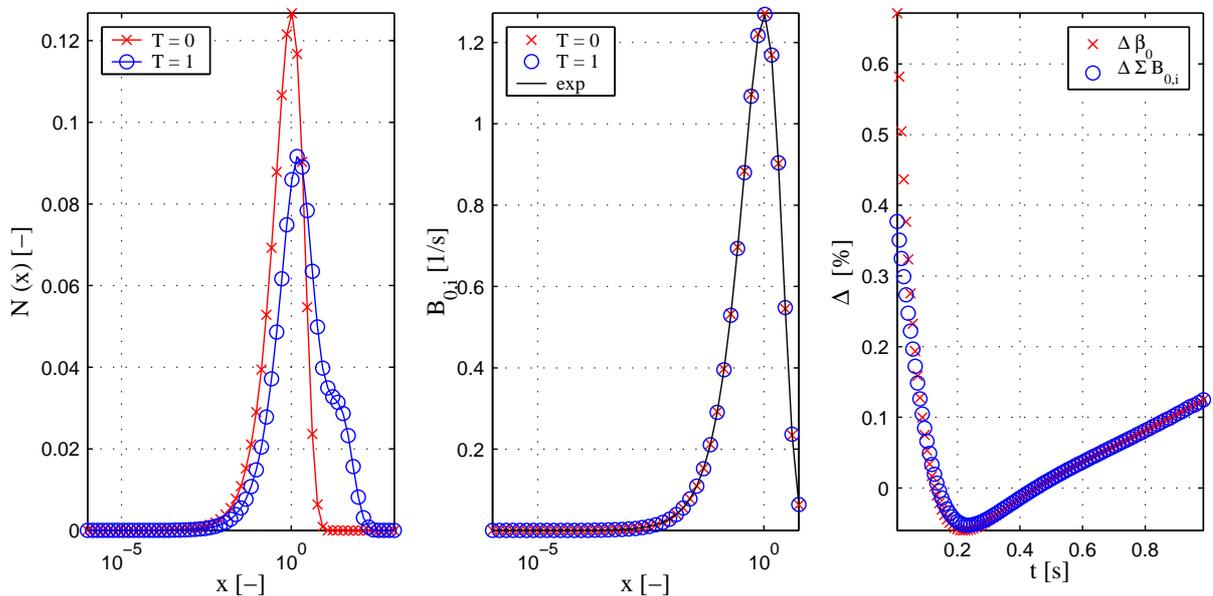


Abbildung 2.32: Simulation A2 - Linkes Diagramm: Partikelverteilung zum Zeitpunkt $T = 0$ und $T = 1$; Mittleres Diagramm: Vergleich der erwarteten (*exp*) und der berechneten Keimverteilung zum Zeitpunkt $T = 0$ und $T = 1$; Rechtes Diagramm: Vergleich der Fehler für Agglomerationsrate β_0 und kummulative Keimbildungsrate $\sum_i B_{0,i}$

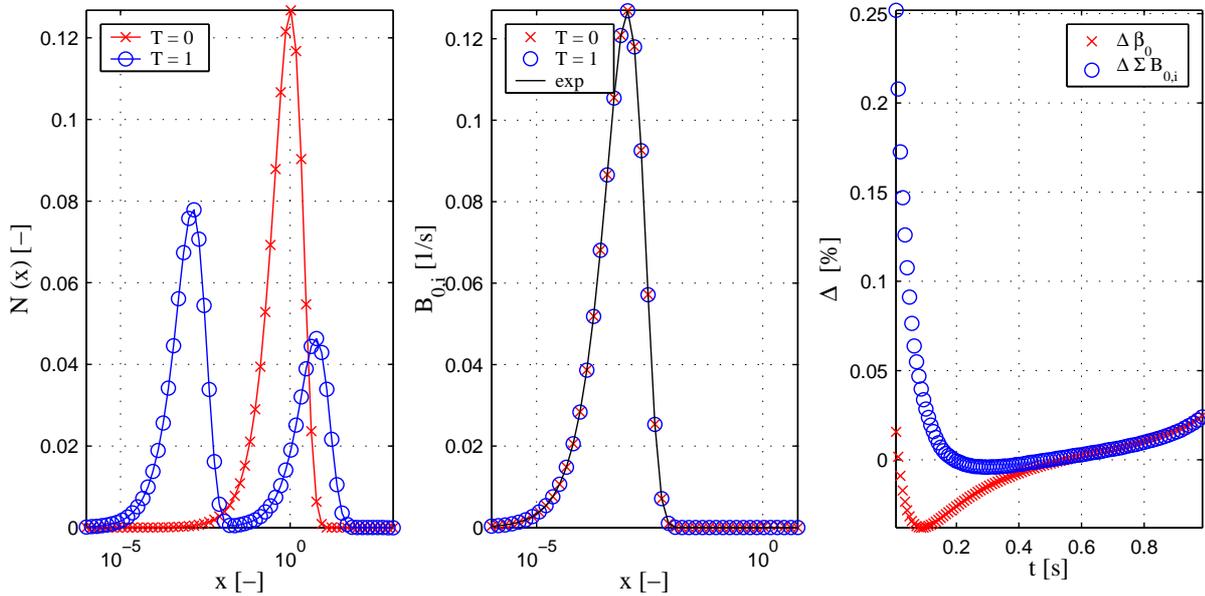


Abbildung 2.33: Simulation A3 - Linkes Diagramm: Partikelverteilung zum Zeitpunkt $T = 0$ und $T = 1$; Mittleres Diagramm: Vergleich der erwarteten (*exp*) und der berechneten Keimverteilung zum Zeitpunkt $T = 0$ und $T = 1$; Rechtes Diagramm: Vergleich der Fehler für Agglomerationsrate β_0 und kummulative Keimbildungsrate $\sum_i B_{0,i}$

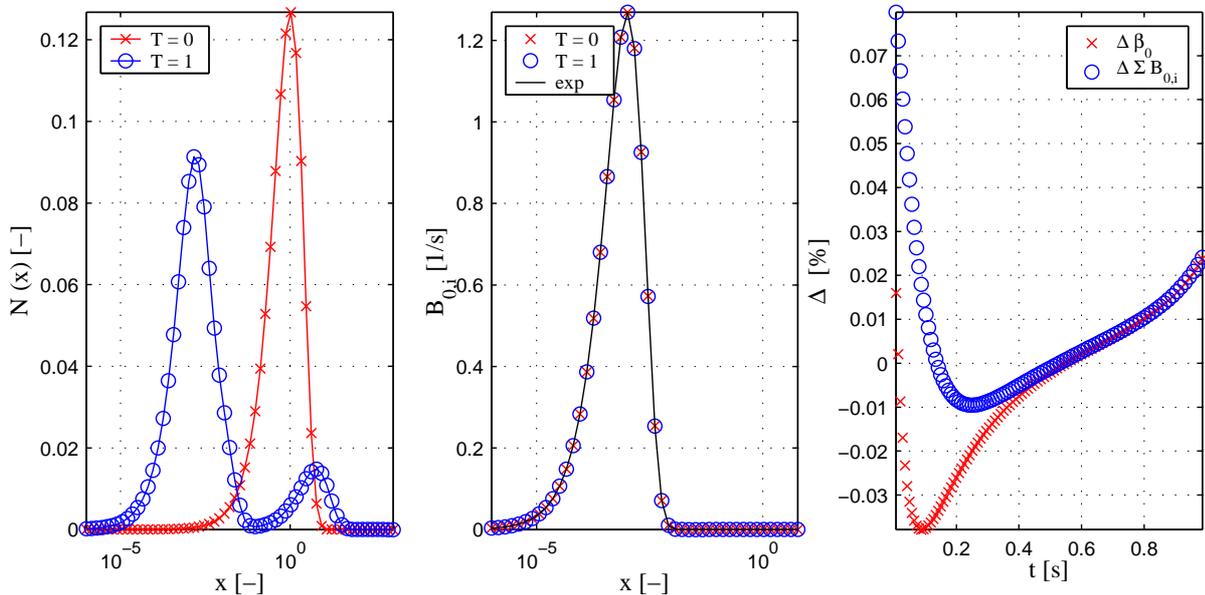


Abbildung 2.34: Simulation A4 - Linkes Diagramm: Partikelverteilung zum Zeitpunkt $T = 0$ und $T = 1$; Mittleres Diagramm: Vergleich der erwarteten (*exp*) und der berechneten Keimverteilung zum Zeitpunkt $T = 0$ und $T = 1$; Rechtes Diagramm: Vergleich der Fehler für Agglomerationsrate β_0 und kummulative Keimbildungsrate $\sum_i B_{0,i}$

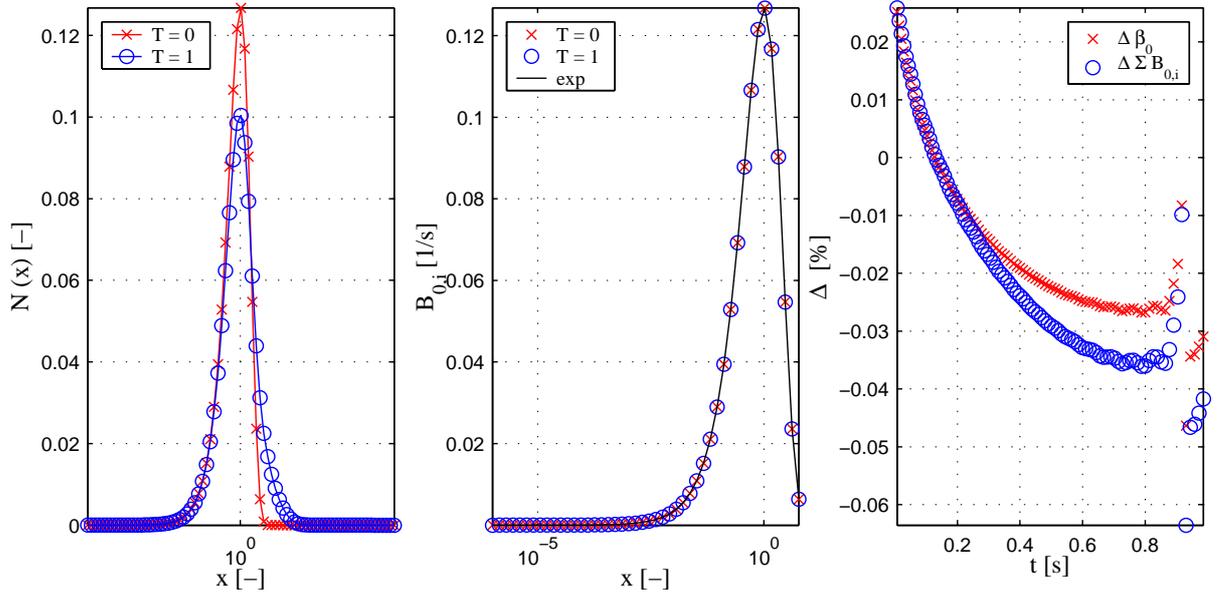


Abbildung 2.35: Simulation A5 - Linkes Diagramm: Partikelverteilung zum Zeitpunkt $T = 0$ und $T = 1$; Mittleres Diagramm: Vergleich der erwarteten (*exp*) und der berechneten Keimbildung zum Zeitpunkt $T = 0$ und $T = 1$; Rechtes Diagramm: Vergleich der Fehler für Agglomerationsrate β_0 und kumulative Keimbildung $\sum_i B_{0,i}$

Tabelle 2.5: Parameter zur Datengenerierung für Wachstum und Keimbildung

Simulation	N_0^{seed}	v_0^{seed}	N_0^{nuc}	v_0^{nuc}	τ	G_0
B1	1	1	1	1	1	1
B2	1	1	0.1	0.001	1	1

(Datensätze) benötigt werden, führt solche Singularität nicht zu einer falschen Parameterbestimmung für alle anderen Messpunkte. Eine Erhöhung der Anzahl der Datensätze an Stellen, in welchen Gleichung (2.112) eine Singularität aufweist, würde zu positiv oder negativ unendlichen Werten von β_0 führen.

2.6.3.6 Überprüfung des Modells für Wachstum

Analog zum vorherigen Abschnitt wurde das vorgestellte Modell für reines Wachstum unter Verwendung generierter Datensätze untersucht. In der Tabelle 2.5 sind die zur Datenerzeugung genutzten Parameter aufgeführt. Die dimensionslose Zeit ist durch $T = G_0/v_0 t$ definiert. Mit der Annahme einer konstanten volumenbezogenen Wachstumsrate erhöht sich das Partikelvolumen mit einer konstanten Geschwindigkeit. Aus diesem Grund wurden die Partikelanzahlverteilungen in einem linearen Zeitmaßstab durch die Simulation erzeugt. Wie bereits erwähnt, verursacht die Diskretisierungsmethode des Wachstumsterms nach Hounslow u. a. (1988) Instabilitäten, wenn die Partikelanzahl im ersten Intervall auf den Wert Null absinkt. Für die Datenerzeugung wurden diese Schwingungen nicht unterdrückt, was sich in starken Schwankungen auf der linken Seite

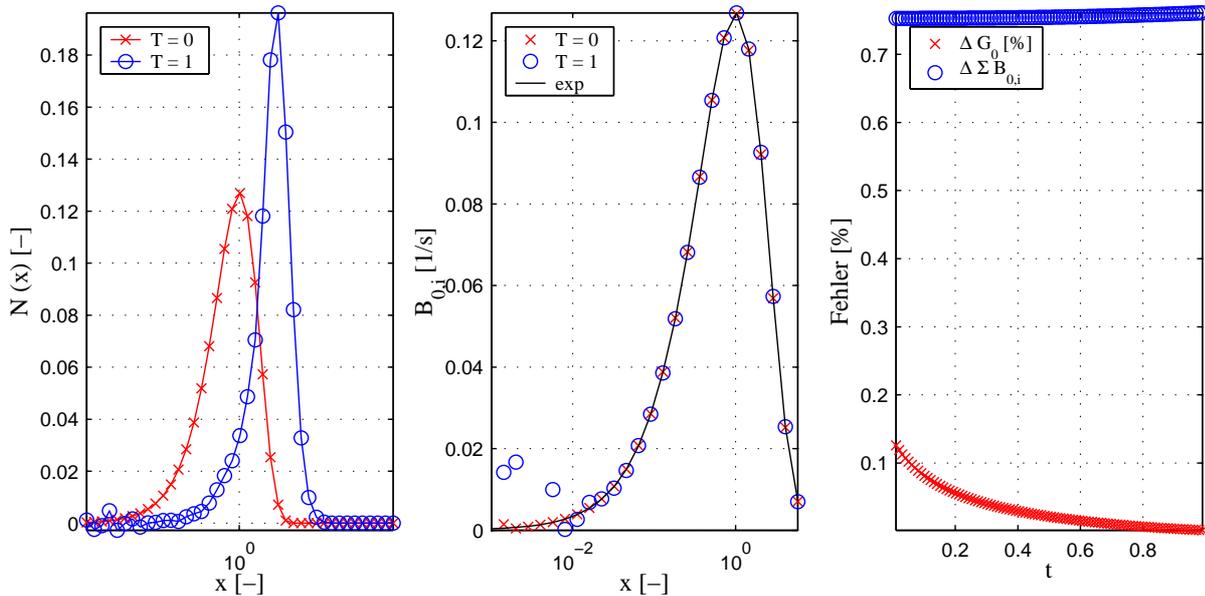


Abbildung 2.36: Simulation B1 - Linkes Diagramm: Partikelverteilung zum Zeitpunkt $T = 0$ und $T = 1$; Mittleres Diagramm: Vergleich der erwarteten (exp) und der berechneten Keimbildung zum Zeitpunkt $T = 0$ und $T = 1$; Rechtes Diagramm: Vergleich der Fehler für Wachstumsrate G_0 und kumulative Keimbildungsrate $\sum_i B_{0,i}$

der Partikelverteilung widerspiegelt.

Die Ergebnisse der Berechnungen sind den Abbildungen 2.36 und 2.37 dargestellt. Wiederum sind die Abweichungen der erwarteten Werte von den extrahierten kleiner als ein Prozent. Steigt die Anzahl der Partikel in den Intervallen außerhalb des Keimbildungsbereiches, so erhöht sich die Genauigkeit der Vorhersage. Ein Vergleich der Keimbildung im mittleren Diagramm zu Beginn und am Ende der Simulation zeigt, dass das neue Modell auch bei Wachstumsprozessen eine befriedigende Bestimmung einer partikelgrößenabhängigen Keimbildung ermöglicht.

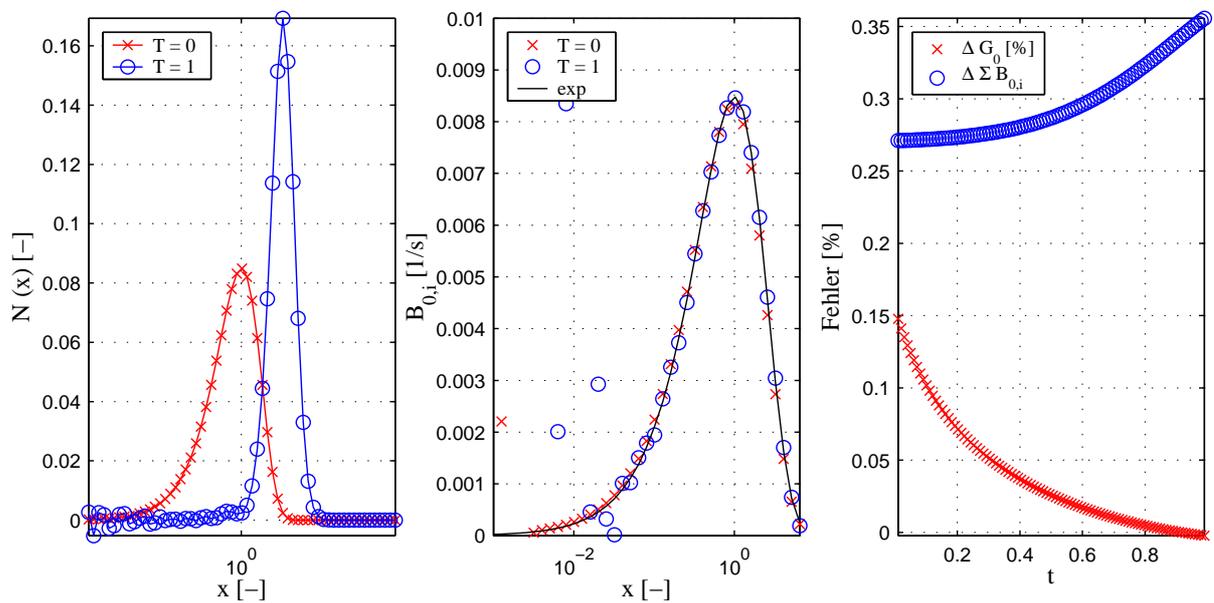


Abbildung 2.37: Simulation B2 - Linkes Diagramm: Partikelverteilung zum Zeitpunkt $T = 0$ und $T = 1$; Mittleres Diagramm: Vergleich der erwarteten (*exp*) und der berechneten Keimverteilung zum Zeitpunkt $T = 0$ und $T = 1$; Rechtes Diagramm: Vergleich der Fehler für Wachstumsrate G_0 und kummulative Keimbildungsrate $\sum_i B_{0,i}$

Kapitel 3

Wirbelschicht-Sprühagglomeration

In diesem Kapitel werden die im ersten Teil der Arbeit vorgestellten Modelle zur Beschreibung der dispersen Phase am Beispiel der Wirbelschicht-Sprühagglomeration angewendet. Bei der Wirbelschicht-Sprühagglomeration werden die Partikel durch einen Gasstrom, der von unten in den Apparat eintritt, in einen Zustand der Fluidisation versetzt. Dazu ist es notwendig, dass die Gasgeschwindigkeit innerhalb des Apparates oberhalb der Minimalfluidisations- und unterhalb der Austragsgeschwindigkeit der Partikel liegt. Über eine Düse werden Partikel mit einem Binder besprüht. Zwischen den feuchten Teilchen können sich bei den auftretenden Partikelstößen Flüssigkeitsbrücken ausbilden. Sind die viskosen Haftkräfte dieser Brücke stark genug, bleiben die Partikel aneinander haften. Das warme Fluidisierungsgas bewirkt einen Trocknungsvorgang, bei welchem das flüssige Wasser aus der dispersen Phase in die Gasphase überführt wird. Dabei werden die Flüssigkeitsbrücken in Feststoffbrücken umgewandelt, welche eine erheblich höhere Festigkeit aufweisen.

Ziel ist es, basierend auf den vorhandenen Arbeiten zum Wärme- und Stoffübergang in Wirbelschichten ein detailliertes Modell zu formulieren, welches die Vorgänge der Veränderung der Partikelgrößenverteilung mit den thermodynamischen Mechanismen verknüpft.

3.1 Das Wirbelschichtmodell

Für die Modellierung der Wirbelschicht wird ein heterogenes Modell mit aktivem Bypass genutzt, welches von May (1959) vorgeschlagen wurde. Die Grundlage dieses Zonenmodells ist die Annahme, dass ein Anteil des Fluidisationsgases mit einer Bypasswirkung die feststoffreiche Suspensionsphase umströmt. Burgschweiger (2000) wendet das Zweiphasenmodell auf die Trocknung poröser Stoffe an, indem er für die Modellierung der Stofftransportvorgänge sowohl das Sorptionsgleichgewicht, welches die Abhängigkeit der relativen Gleichgewichtsluftfeuchte ϕ_{eq} von der Partikelfeuchte und der Partikeltemperatur beschreibt, als auch eine normierte Trocknungskurve nutzt. Nach Burgschweiger (2000) sind zur Beschreibung der Wärme- und Stoffübergangsprozesse folgende Modellannahmen nötig:

- Das Suspensions- und das Bypassgas bewegen sich als idealer Pfropfen durch den Apparat.
- Die Feststoffphase wird mit dem Modell des idealen Rührkessels beschrieben.
- Der gesamte Feststoff befindet sich in der Suspensionsphase.

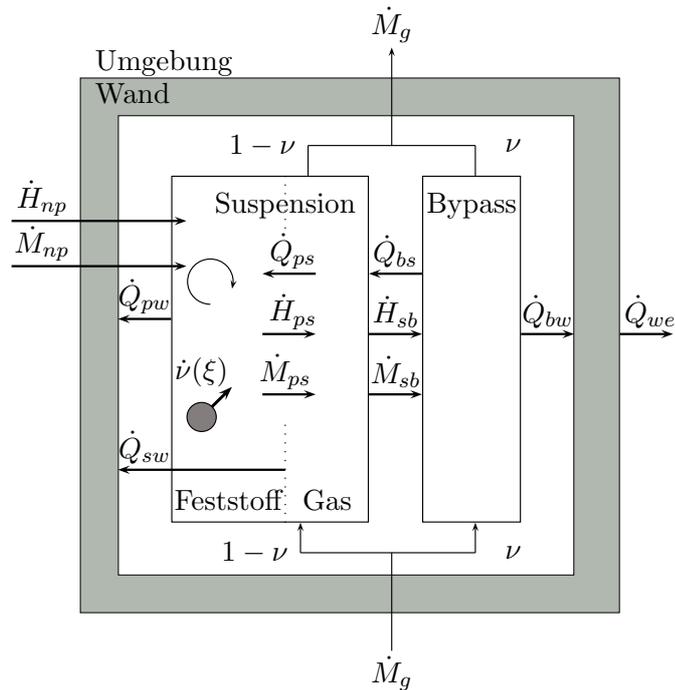


Abbildung 3.1: Modifiziertes zweiphasiges Wirbelschichtmodell nach Burgschweiger (2000)

- Die Suspensions- und Bypassphase stehen im Stoff- und Wärmeaustausch.
- Der Feststoff und das Suspensionsgas befinden sich im Stoff- und Wärmeaustausch.
- Die Apparatewand tauscht mit dem Feststoff, der Umgebung sowie dem Suspensions- und Blasengas Wärme aus.
- Die Wandtemperatur ist räumlich konstant.

Da neben der Trocknung auch die Agglomeration der Partikel betrachtet wird, werden ergänzend folgende Annahmen getroffen:

- Der Feststoff ist ein polydisperses Haufwerk.
- Die Partikel unterliegen einem Agglomerationsprozess. Bruch und Wachstum treten nicht auf.
- Die Partikel besitzen das Partikelvolumen, den Wassergehalt und die Enthalpie als Eigenschaftskordinaten, wobei jedoch Partikel eines bestimmten Volumens stets den gleichen Wassergehalt und die gleiche Enthalpie aufweisen.
- Der partikelinterne Wärmetransportwiderstand kann vernachlässigt werden.

Das Schema des Modells mit den zu bilanzierenden Massen-, Enthalpie- und Wärmeströmen ist in der Abbildung 3.1 dargestellt.

3.1.1 Bilanzgleichungen der Gasphase

Für das in der gasförmigen Suspensions- und Bypassphase enthaltene Wasser lauten die zeitlich abhängigen Bilanzgleichungen

$$(1 - \nu) \frac{dM_g}{dz} \frac{\partial Y_s}{\partial t} = - (1 - \nu) \dot{M}_g \frac{\partial Y_s}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} (\dot{M}_{ps} - \dot{M}_{sb}) \quad (3.1)$$

$$\nu \frac{dM_g}{dz} \frac{\partial Y_b}{\partial t} = - \nu \dot{M}_g \frac{\partial Y_b}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} \dot{M}_{sb} \quad . \quad (3.2)$$

Für die entsprechenden Enthalpiebilanzen der Gasphase gilt

$$(1 - \nu) \frac{dM_g}{dz} \frac{\partial h_s}{\partial t} = - (1 - \nu) \dot{M}_g \frac{\partial h_s}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} (\dot{H}_{ps} - \dot{H}_{sb} - \dot{Q}_{ps} + \dot{Q}_{bs} - \dot{Q}_{sw}) \quad (3.3)$$

$$\nu \frac{dM_g}{dz} \frac{\partial h_b}{\partial t} = - \nu \dot{M}_g \frac{\partial h_b}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} (\dot{H}_{sb} - \dot{Q}_{bs} - \dot{Q}_{bw}) \quad , \quad (3.4)$$

wobei die spezifischen Enthalpien der feuchten Luft in der Suspension und im Bypass durch

$$h_s = c_g \vartheta_s + Y_s (c_{w,l} \vartheta_s + \Delta h_V) \quad (3.5)$$

$$h_b = c_g \vartheta_b + Y_b (c_{w,l} \vartheta_b + \Delta h_V) \quad (3.6)$$

definiert ist.

3.1.2 Bilanzgleichungen der Partikel

Für die Beschreibung der dispersen Phase ergeben sich die folgenden Bilanzgleichungen. Der Agglomerationsprozess wird durch die allgemeine Populationsbilanz unter Berücksichtigung von Keimbildung beschrieben

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{1}{2} \int_0^v \beta(u, v-u) n(u) n(v-u) du - n(v) \int_0^\infty \beta(u, v) n(u) du + \frac{\partial}{\partial v} B_0 \quad . \quad (3.7)$$

Bedingt durch die Agglomeration erfolgt ein Austausch der Enthalpie und Feuchte zwischen den Partikeln. Weiterhin befinden sich die Partikel entsprechend der Abbildung 3.1 im Stoff- und Wärmeaustausch mit der Gasphase der Suspension. Für das in den Partikeln enthaltene Wasser folgt

$$\begin{aligned} \frac{\partial m_{w,l}}{\partial t} &= \int_0^v \beta(u, v-u) n(u) m_{w,l}(v-u) du - m_{w,l}(v) \int_0^\infty \beta(u, v) n(u) du \\ &+ \frac{\partial}{\partial v} (-\dot{M}_{pg} + \dot{M}_{np}) \end{aligned} \quad (3.8)$$

und für die Enthalpie der Partikel

$$\begin{aligned} \frac{\partial h_p}{\partial t} &= \int_0^v \beta(u, v-u) n(u) h_p(v-u) du - h_p(v) \int_0^\infty \beta(u, v) n(u) du \\ &+ \frac{\partial}{\partial v} (-\dot{H}_{ps} + \dot{H}_{np} - \dot{Q}_{pw} + \dot{Q}_{sp} + \dot{H}_{B_0}) \quad . \end{aligned} \quad (3.9)$$

Hierbei sind h_p und $m_{w,l}$ analog zur Partikelanzahldichte n als Dichtefunktionen der Form

$$m_{w,l} = \frac{\partial M_{w,l}}{\partial v} \quad (3.10)$$

$$h_p = \frac{\partial H_p}{\partial v} \quad (3.11)$$

mit

$$M_{w,l} = X M_p \quad (3.12)$$

$$H_p = M_p [(c_p + X c_{w,l}) \vartheta_p - X \Delta h_{ad}(X)] \quad (3.13)$$

definiert. Die Partikelmasse wird durch M_p und die Feuchtebelastung der Partikel durch X bezeichnet. Im Rahmen dieser Arbeit wird die Adsorptionswärme $\Delta h_{ad}(X)$ nicht berücksichtigt.

3.1.3 Bilanzgleichungen der Wand

Mit den getroffenen Modellvoraussetzungen ergibt sich für die Energiebilanz der Wand

$$M_w \frac{\partial h_w}{\partial t} = \dot{Q}_{pw} + \dot{Q}_{sw} + \dot{Q}_{bw} - \dot{Q}_{we} \quad , \quad (3.14)$$

wobei die Enthalpie der Wand h_w durch

$$h_w = c_w T_w \quad (3.15)$$

definiert sei.

3.2 Die Kinetiken

3.2.1 Stoff- und Wärmeübergang zwischen Partikeln und Suspensionsgas

Durch die Modellvoraussetzung der ideal rückvermischten dispersen Phase und der Annahme, dass die Partikel mit dem Partikelvolumen eine Eigenschaftskordinate aufweisen, müssen die Wärme- und Stoffströme zwischen der Feststoff- und Gasphase zweidimensional über dem Partikelvolumen v und der Ortskordinate z modelliert werden. Die differentielle Stoffaustausch- bzw. Wärmeübertragungsfläche zwischen Partikeln und Suspensionsgas ergibt sich aus

$$\frac{\partial^2 A_p}{\partial z \partial v} = \pi d_p^2 \frac{\partial n(v)}{\partial z} = \pi d_p^2 \frac{\partial^2 N}{\partial z \partial v} \quad . \quad (3.16)$$

Die kinetischen Ansätze zwischen disperser und gasförmiger Phase sind durch

$$\frac{\partial^2 \dot{M}_{ps}}{\partial z \partial v} = \varrho_g \beta_{ps} \frac{\partial^2 A_p}{\partial z \partial v} [Y_{eq}(X(v), \vartheta_p(v)) - Y_s(z)] \dot{v}(\eta) \quad (3.17)$$

$$\frac{\partial^2 \dot{Q}_{sp}}{\partial z \partial v} = \alpha_{ps} \frac{\partial^2 A_p}{\partial z \partial v} [\vartheta_s(z) - \vartheta_p(v)] \quad (3.18)$$

definiert. Durch Integration über das Partikelvolumen v im Intervall $[0, \infty]$ ergeben sich die Ströme zur Berechnung der Gasphasenbilanzen, während die Integration über z im Bereich

$[0, H_{bed}]$ die Ausdrücke zur Beschreibung der Partikelpopulation liefert. Der Enthalpiestrom zwischen Partikeln und Suspensionsgas ergibt sich aus dem Dampfmassenstrom zu

$$\frac{\partial^2 \dot{H}_{ps}}{\partial z \partial v} = \frac{\partial^2 \dot{M}_{ps}}{\partial z \partial v} [c_{w,g} \vartheta_p + \Delta h_v^0] \quad . \quad (3.19)$$

Die Gleichgewichtsbeladung der Gasphase Y_{eq} wird aus dem Gleichgewichtspartialdruck

$$p_{eq}(X, \vartheta_p) = p_{sat}(\vartheta_p) \phi_{eq}(X, \vartheta_p) \quad (3.20)$$

nach

$$Y_{eq} = \frac{\tilde{M}_w}{\tilde{M}_g} \frac{p_{eq}(X, \vartheta_p)}{P - p_{eq}(X, \vartheta_p)} \quad (3.21)$$

bestimmt. Dabei sind \tilde{M}_w und \tilde{M}_g die molaren Massen der Luft und des Wassers. Der Sättigungspartialdruck des Wassers p_{sat} wird mit der Gleichung (B.17) berechnet. Die Berechnung der Stoff- und Wärmeübergangskoeffizienten erfolgt nach dem Modell von Gnielinski (1980), welches im Anhang C.1.1 dargestellt ist. Burgschweiger (2000) schlägt vor, die Koeffizienten für den Punkt der Minimalfluidisation zu berechnen. Hierbei trifft er die Annahme, dass die Nusselt- bzw. Sherwoodzahlen innerhalb der Fluidisationsgrenzen konstant sind.

Die normierte Trocknungsgeschwindigkeit $\dot{\nu}$ ist nach van Meel (1958) aus dem Quotienten der aktuellen Trocknungsgeschwindigkeit \dot{m}_{pg} und der Trocknungsgeschwindigkeit im ersten Trocknungsabschnitt $\dot{m}_{pg,I}$

$$\dot{\nu}(\eta) = \frac{\dot{m}_{pg}(\eta)}{\dot{m}_{pg,I}(\eta)} \quad (3.22)$$

definiert, wobei sich die normierte Partikelbeladung η aus

$$\eta = \frac{X_p - X_{hyg}}{X_c - X_{hyg}} \quad (3.23)$$

ergibt.

3.2.2 Stoff- und Wärmeübergang zwischen Suspensions- und Bypassgas

Die Wärme- und Stoffströme zwischen dem Suspensions- und dem Bypassgas sind durch

$$\frac{\partial \dot{M}_{sb}}{\partial z} = \varrho_g \beta_{sb} A_{sb} [Y_s(z) - Y_b(z)] \quad (3.24)$$

$$\frac{\partial \dot{Q}_{bs}}{\partial z} = \alpha_{bs} A_{sb} [\vartheta_b(z) - \vartheta_s(z)] \quad (3.25)$$

beschrieben. Für den Enthalpiestrom gilt analog zur Gleichung (3.19)

$$\frac{\partial \dot{H}_{sb}}{\partial z} = \frac{\partial \dot{M}_{sb}}{\partial z} [c_{w,g} \vartheta_{sb} + \Delta h_v^0] \quad . \quad (3.26)$$

Die kinetischen Koeffizienten $\beta_{sb}A_{sb}$ und $\alpha_{sb}A_{sb}$ werden nach einer Korrelationsgleichung von Groenewold u. Tsotsas (1997, 1998) berechnet. Die entsprechende Korrelation ist durch

$$NTU_{sb} = \frac{H_{bed}}{0.05m} \quad (3.27)$$

gegeben, wobei

$$NTU_{sb} = \frac{\rho_g \beta_{sb} A_{sb}}{\dot{M}_g} = {}_{1-m} \sqrt{\frac{\alpha_{sb} A_{sb}}{c_g \dot{M}_g}} \quad (3.28)$$

mit $m = 1/3$ gilt.

3.2.3 Stoff- und Wärmeübergang zwischen Gas und Wand sowie Partikeln und Wand

Zur Berechnung der Wärmeströme zwischen der Gasphase und der Wand werden folgende Ansätze genutzt

$$\frac{\partial \dot{Q}_{sw}}{\partial z} = \alpha_{gw} (1 - \nu) A_w [\vartheta_s(z) - \vartheta_w] \quad (3.29)$$

$$\frac{\partial \dot{Q}_{bw}}{\partial z} = \alpha_{gw} \nu A_w [\vartheta_b(z) - \vartheta_w] \quad (3.30)$$

Der kinetische Ansatz zur Bestimmung des Wärmestromes zwischen Partikeln und Wand lautet

$$\frac{\partial \dot{Q}_{pw}}{\partial v} = \alpha_{pw} \frac{1}{M_{bed}} \frac{\partial M_p}{\partial v} A_w [\vartheta_p(v) - \vartheta_w] \quad (3.31)$$

In dieser Beziehung steht nach Martin (1994) die Wandfläche A_w im Kontakt mit allen Partikeln. Da jedoch entsprechend des Modellansatzes der Wärmestrom zwischen der Wand und einem differentiellen Anteil der Partikel zu bestimmen ist, wird die Wärmeübertragungsfläche A_w mit dem differentiellen volumetrischen Anteil der Partikel am gesamten Partikelvolumen $\partial M_p / \partial v / M_{bed}$ gewichtet. Der Wärmeübergang zwischen dem Gas und der Wand wird nach einem Modell von Baskakov u. a. (1973) berechnet und ist im Anhang C.1.4 dargestellt. Der Übergangskoeffizient für den Wärmestrom zwischen Partikeln und Wand wird nach Martin (1994) bestimmt. Die Korrelationen sind im Anhang C.1.2 aufgeführt.

3.2.4 Wärmeübergang zwischen Wand und Umgebung

Der Wärmetransport zwischen Wand und Umgebung folgt aus

$$\frac{\partial \dot{Q}_{we}}{\partial z} = k_{we} A_w [\vartheta_w - \vartheta_e] \quad (3.32)$$

Der Wärmedurchgangskoeffizient k_{we} ergibt sich aus den Einzelwiderständen Wärmeleitfähigkeit und Wandstärke sowie dem konvektiven Anteil an der Apparateoberfläche

$$\frac{1}{k_{we}} = \frac{1}{k_{iso}} + \frac{1}{\alpha_{we}} \quad (3.33)$$

Der Koeffizient α_{we} wird nach einem Modell von Churchill u. Chu (1975) bestimmt. Die Gleichungen sind im Anhang C.1.3 dargestellt.

3.2.5 Stoffübergang zwischen Düse und Partikeln

Der Stoffübergang zwischen der Düse und den Partikeln beschreibt die Einbringung der Flüssigkeit in den Apparat durch Verdüsung. Der gesamte Flüssigkeitseintrag soll sich dabei auf den Partikeln abscheiden. Die Flüssigkeitsabscheidung wird analog zum Wachstumsmodell von Mörl u. a. (1977) modelliert. Hierbei wird der Anteil der abgeschiedenen Flüssigkeit durch den Oberflächenanteil des Partikels an der gesamten Schichtoberfläche genutzt

$$\frac{\partial \dot{M}_{np}}{\partial v} = \frac{\pi d_p^2}{A_{bed}} \frac{\partial n}{\partial v} \dot{M}_n \quad . \quad (3.34)$$

3.2.6 Agglomerationskinetik

Grundsätzlich wird bei der Prozessmodellierung zwischen den zwei Verfahren der deduktiven und induktiven Modellbildung unterschieden. Die empirischen Modelle werden durch die induktive Modellbildung gewonnen. Hierzu müssen zunächst die Ein- und Ausgangsgrößen des Prozesses durch Messung erfasst werden. Ein geeignetes statistisches Analyseverfahren korreliert diese Messungen mit einem vorgegebenen Modell, sodass ein Zusammenhang zwischen den Ein- und Ausgangsgrößen hergestellt werden kann. Das Resultat dieser Korrelation ist somit das empirische Modell. Mit dessen Hilfe ist es zwar möglich, eine Aussage zum Prozessverhalten zu treffen, jedoch ein Rückschluss auf physikalische Vorgänge ist nicht möglich. Die deduktive Modellbildung ist hingegen dadurch charakterisiert, dass mit Hilfe der naturwissenschaftlichen Grundgesetze eine mathematische Formulierung der Prozesse hergeleitet wird.

Wie im Abschnitt 1.1 dargestellt wurde, ist die Formulierung eines physikalisch begründeten Agglomerationsmodells nur für sehr wenige Fälle möglich. Die Vielzahl an Prozess- und damit Einflussparametern erfordert für einen praxistauglichen Ansatz ein empirisches Modell. Im Rahmen dieser Arbeit wird ein partikelgrößenabhängiges Modell mit drei Parametern von Kapur (1972)

$$\beta(u, v) = \beta_0 \frac{(u + v)^a}{(u \cdot v)^b} \quad (3.35)$$

genutzt. Die empirischen Parameter a und b müssen hierbei so gewählt werden, dass sie das im Prozess beobachtete Wachstumsverhalten wiedergeben. Der Koeffizient β_0 ist eine von den Betriebsparametern abhängige Größe. Oftmals wird darauf verwiesen, dass die Art der Aggregation von der Ordnung des Kerns abhängt. Nach Umformung ergibt sich aus der Gleichung (3.35)

$$\beta(u, v) = \beta_0 u^{a-2b} f(v/u) \quad , \quad (3.36)$$

wobei die Ordnung des Kerns durch $m = a - 2b$ bezeichnet wird. Ennis (1996) verweist auf den Einfluss der Größe von m . Während Ordnungen $m < 0$ eine schmalere Partikelgrößenverteilung erzeugen, werden durch $m > 0$ breitere Verteilungen berechnet.

3.3 Strömungsverhalten der Wirbelschicht

3.3.1 Das Expansionsverhalten

Die Porosität einer Wirbelschicht hängt von der Gasgeschwindigkeit ab, welche zwischen den Geschwindigkeiten der Minimalfluidisation und des Austrages liegen muss. Die Porosität wird

mit Hilfe der Gleichung

$$\psi^n = \frac{Re_0}{Re_{elu}} \quad (3.37)$$

von Richardson u. Zaki (1954) berechnet. Für den Exponenten n gibt Martin (1994) die Beziehung

$$n = \frac{\ln(Re_{mf}/Re_{elu})}{\ln \psi_{mf}} \quad (3.38)$$

an. Die Reynoldszahl am Betriebspunkt

$$Re_0 = \frac{u_0 d_p}{\nu_g} \quad (3.39)$$

ergibt sich aus der entsprechenden Leerrohrgeschwindigkeit

$$u_0 = \frac{\dot{M}_g}{\rho_g F_{bed}} \quad (3.40)$$

Weiterhin sind für die Berechnung des Existenzbereiches der Wirbelschicht die Reynoldszahlen am Austragspunkt für inhomogene Wirbelschichten nach Reh (1977)

$$Re_{elu} = \sqrt{\frac{4}{3} Ar} \quad (3.41)$$

sowie am Punkt der Minimalfluidisation nach Martin (1994)

$$Re_{mf} = 42.9(1 - \psi_{mf}) \left\{ \sqrt{\left[1 + \frac{\psi_{mf}^3}{(1 - \psi_{mf}^3)^2} \frac{Ar}{3214} \right]} - 1 \right\} \quad (3.42)$$

notwendig. Dabei ist die Archimedes-Zahl Ar durch

$$Ar = \frac{g \bar{d}_p^3}{\nu_g^2} \frac{\rho_p - \rho_g}{\rho_g} \quad (3.43)$$

mit

$$\bar{d}_p = \frac{6V_{bed}}{A_{bed}} \quad (3.44)$$

definiert. Die Porosität am Lockerungspunkt ψ_{mf} nimmt praktisch Werte zwischen 0.4 und 0.7 an.

3.3.2 Der Bypassanteil

Der lokale Anteil des Blasenvolumens am Gesamtvolumen der Wirbelschicht ist nach Hillgardt u. Werther (1986) durch

$$v = \frac{\dot{V}_b}{u_b} \quad (3.45)$$

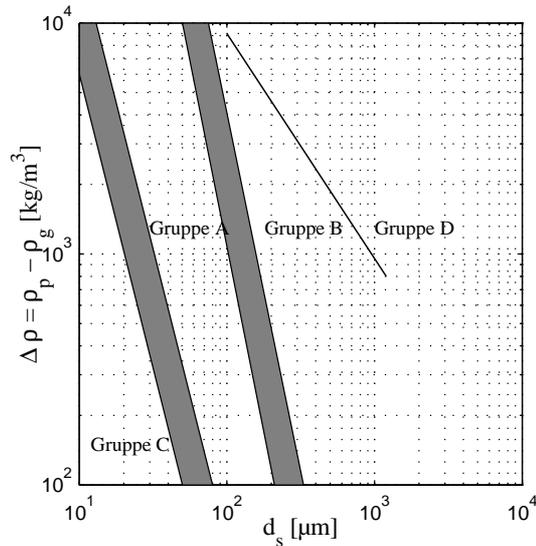


Abbildung 3.2: Abgrenzung der Schüttguttypen im Geldart-Diagramm (Geldart (1973)), Grenzlinien nach Molerus (1982)

gegeben, wobei \dot{V}_b der sichtbare Blasenstrom bezogen auf den Apparatequerschnitt und u_b die Blasenauftiegs geschwindigkeit sind. Der Blasenstrom lässt sich aus der Beziehung

$$\dot{V}_b = v_r(u_0 - u_{mf}) \quad (3.46)$$

ermitteln. Der Koeffizient v_r bezeichnet den sichtbaren dimensionslosen Blasenstrom und wird entsprechend der Geldart-Klasse des Stoffsystems aus der Tabelle 3.1 berechnet. Die Zuordnung der Partikel zu einer Geldart-Klasse ist in der Abbildung 3.2 dargestellt.

3.4 Simulationsergebnisse

Im folgenden Abschnitt werden einige Simulationsbeispiele am vollständigen Modell dargestellt, welches im Abschnitt 3.1 hergeleitet wurde. Das vollständige Modell umfasst dabei

- den höhen- und zeitabhängigen Temperaturverlauf des Gases,
- den höhen- und zeitabhängigen Feuchteverlauf des Gases,
- den zeitabhängigen Verlauf der Wandtemperatur,
- die partikelgrößen- und zeitabhängige Verteilung der Partikelanzahl,
- die partikelgrößen- und zeitabhängige Verteilung der Partikeltemperatur sowie
- die partikelgrößen- und zeitabhängige Verteilung der Partikelbeladung.

Tabelle 3.1: Berechnungsgleichungen für v_r entsprechend der Geldart-Klassifizierung nach Hillgardt u. Werther (1986)

A	B	D
0.8 für $H_{bed}/d_{bed} < 1$	0.67 für $H_{bed}/d_{bed} < 1.7$ s	0.26 für $H_{bed}/d_{bed} < 0.55$
	0.51(H_{bed}/d_{bed}) ^{1/2} für $1.7 < H_{bed}/d_{bed} < 4$	0.35(H_{bed}/d_{bed}) ^{1/2} für $0.55 < H_{bed}/d_{bed} < 8$
	1 für $H_{bed}/d_{bed} > 4$	1 für $H_{bed}/d_{bed} > 8$

3.4.1 Numerisches Lösungsverfahren

Das vollständige Modell wurde in der Programmiersprache MATLAB implementiert. Zur Lösung der zeitlichen Abhängigkeiten wurde das Gleichungssystem unter Verwendung der Integrationsroutine `ode15s` numerisch integriert. Dieses implizite Verfahren basiert auf numerischer Differentiation, verfügt über eine automatische Schrittweitensteuerung und eignet sich besonders gut für steife Systeme. Weitere Ausführungen über die exakten numerischen Methoden dieses Lösungsverfahrens werden von Shampine u. Hosea (1996); Shampine u. Reichelt (1997) gegeben.

Für die numerische Integration ist es notwendig, das System der nicht-gewöhnlichen Differentialgleichungen in ein System gewöhnlicher Differentialgleichungen erster Ordnung zu überführen. Dazu wurden die in den Gleichungen (3.1) bis (3.4) auftretenden Konvektionsterme durch einen hinteren Differenzenquotienten

$$\frac{\partial x}{\partial z} = \frac{x_i - x_{i-1}}{\Delta z} \quad (3.47)$$

ersetzt. Die partiellen Integro-Differentialgleichungen zur Beschreibung der Partikelanzahl nach Gleichung (3.7) wurden mit Hilfe der Fixed Pivot Technik entsprechend der Gleichungen (2.56) und (2.57) in gewöhnliche Differentialgleichungen transformiert. Zur Beschreibung der extensiven Eigenschaften Wassergehalt in Gleichung (3.8) und Enthalpie der Partikel in Gleichung (3.9) wurde das neu entwickelte DTMD-Modell entsprechend den Gleichungen (2.79) und (2.80) genutzt.

3.4.2 Simulationsparameter

Zur Berechnung des Gleichgewichtszustandes zwischen der dispersen Phase und der Gasphase wurde für alle Simulationen ein Feld von temperaturabhängigen Adsorptionsisothermen genutzt. Dabei erfolgte die Annahme, dass sich die Isothermen mit Hilfe des BET-Isothermenmodells nach Brunauer u. a. (1938) entsprechend

$$X = X_1 \frac{\phi c}{1 - \phi} \cdot \frac{1 - (N + 1)\phi^N + N\phi^{N+1}}{1 + (c - 1)\phi - c\phi^{N+1}} \quad (3.48)$$

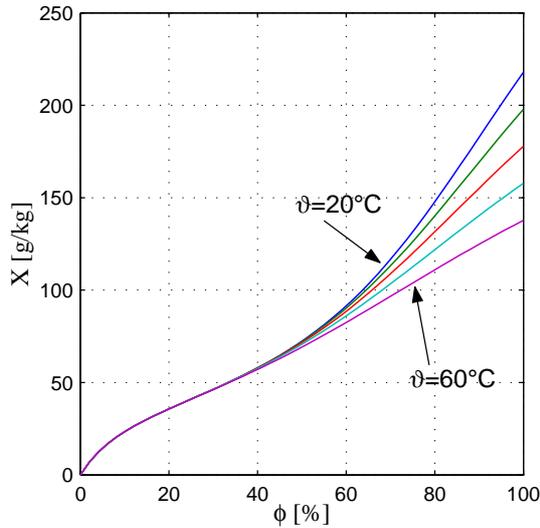


Abbildung 3.3: BET-Isothermenfeld der Simulationsrechnungen

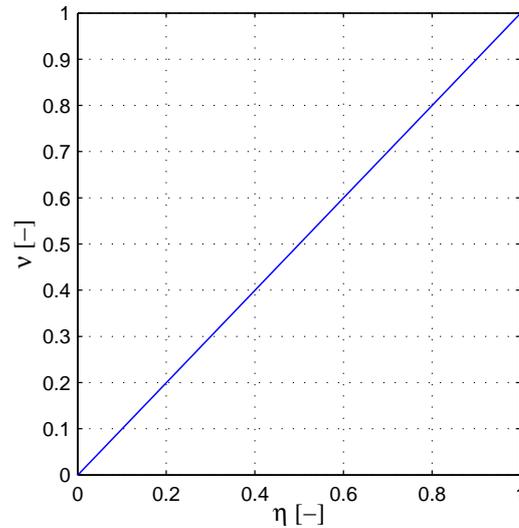


Abbildung 3.4: Normierte Trocknungskurve der Simulationsrechnungen

darstellen lassen. In der Gleichung (3.48) stellt X_1 die Beladung bei einer monomolekularen Schicht, c eine Konstante und N die Anzahl der Bedeckungsschichten dar. Für das in der Abbildung 3.3 dargestellte Isothermenfeld variiert der Wert für N im Temperaturbereich von 20–60°C linear von 10 bis 6. Für die weiteren Parameter wurden die konstanten Werte $c = 10$ und $X_1 = 0.04$ gewählt. Die normierte Trocknungskurve wurde durch eine linear fallende Funktion im zweiten Trocknungsabschnitt angenähert (siehe Abbildung 3.4). Der Bypassanteil betrug für die Simulationsrechnungen zur Vereinfachung $\nu = 0$. Alle weiteren Parameter sind in der Tabelle 3.2 zusammengefasst.

3.4.3 Simulation der Trocknung

Die Simulation der reinen Trocknung eines Batchsystems stellt den einfachsten Fall dar. Zum Zeitpunkt $t = 0s$ wird ein polydisperses Haufwerk mit einer bestimmten Anfangsfeuchte in die Wirbelschicht eingebracht. Durch das warme Fluidisierungsgas wird das Wasser aus den Partikeln durch Trocknung entfernt. Entsprechend der gewählten Prozessparameter wie unter anderem Gaseintrittstemperatur, Gaseintrittsfeuchte und Eindüsungsrates stellt sich nach einer bestimmten Zeit ein thermodynamisches Gleichgewicht zwischen dem Zustand der Partikel und der Gasphase ein. Dieses Gleichgewicht hängt vom Adsorptionsverhalten des Feststoffes ab. Eine Veränderung der Partikelverteilung in Folge von Agglomeration wird in dieser Simulation nicht betrachtet, sodass für die Agglomerationsrate $\beta_0 = 0$ gilt. Weiterhin wurde der eingedüστε Wassermassenstrom auf $\dot{M}_n = 0kg/h$ festgelegt.

Die zur Berechnung notwendigen Anfangsbedingungen sind in der Tabelle 3.3, die Ergebnisse der Simulation in den Abbildungen 3.5 bis 3.8 dargestellt. Die Temperaturverteilung in Abbildung 3.5 zeigt, dass sich kleine Partikel erheblich schneller aufheizen als große. Dieser Effekt hat zwei Ursachen: Für jeden Partikeldurchmesser wird die Sherwood-Zahl Sh_{gp} für die entsprechende Reynolds-Zahl der Minimalfluidisation Re_{mf} berechnet. Wie in der Abbildung 3.9 verdeutlicht wird, nimmt dieser Wert mit steigendem Partikeldurchmesser zu. Dennoch verringert

Tabelle 3.2: Parameter für Simulation des Wirbelschichtmodells

Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Bettmasse	M_p	1	[kg]
Dichte Partikel	ρ_p	800	[kg/m ³]
Spezifische Wärmekapazität Partikel	c_p	1000	[J/(kg K)]
Kritische Feuchte Partikel	X_c	0.1	[kg/kg]
Hygroskopische Feuchte Partikel	X_{hyg}	0	[kg/kg]
Apparatedurchmesser	d_{bed}	0.15	[m]
Masse der Apparatewand	M_w	5	[kg]
Spezifische Wärmekapazität Wand	c_w	500	[J/(kg K)]
Massenstrom trockenes Gas	\dot{M}_g	0.06	[kg/s]
Eintrittsfeuchte Gas	Y_{in}	0.01	[kg/kg]
Eintrittstemperatur Gas	ϑ_{in}	60	[°C]
Eindüsungsmenge Wasser	\dot{M}_n	2.1	[kg/h]
Eindüsungstemperatur	ϑ_n	20	[°C]
Temperatur Umgebung	ϑ_e	20	[°C]
Parameter für Partikelverteilung	a	2	[–]
entsprechend Gleichung (2.15)	ν	1	[–]
	v_0	$\pi/6 \cdot 10^{-6}$	[m ³]
Diskretisierungsparameter Gleichung (2.49)	q	2	[–]

Tabelle 3.3: Anfangsbedingungen für Simulation der Trocknung

Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Temperatur Partikel	$\vartheta_p _{t=0s}$	20	[°C]
Feuchte Partikel	$X _{t=0s}$	0.2	[kg/kg]
Temperatur Gas	$\vartheta_g _{t=0s}$	60	[°C]
Beladung Gas	$Y _{t=0s}$	10	[g/kg]
Temperatur Wand	$\vartheta_w _{t=0s}$	60	[°C]

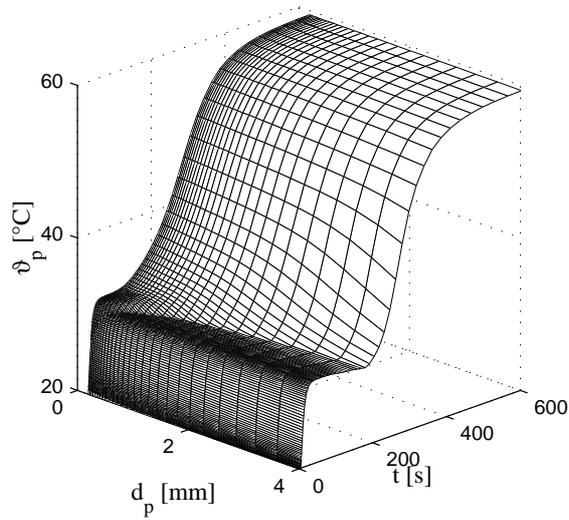


Abbildung 3.5: Temperaturverteilung der Partikel (Simulation der Trocknung)

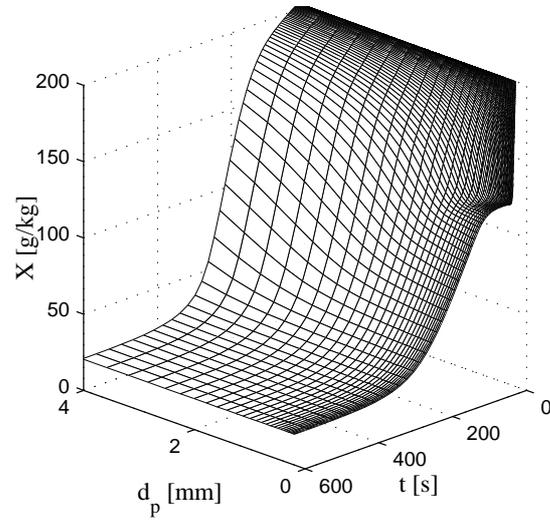


Abbildung 3.6: Feuchteverteilung der Partikel (Simulation des Trocknung)

sich der Stoffübergangskoeffizient β_{pg} mit zunehmenden Durchmesser. Unter der Annahme eines konstanten Diffusionskoeffizienten $\delta_{w,g}$ gilt $\beta_{pg} \sim Sh_{pg}/d_p$. Dieser Verlauf ist in der Abbildung 3.10 aufgezeigt. Durch die Analogie zwischen Wärmeübergang und Stofftransport ist die Aufheizung der kleinen Partikel entsprechend schneller. Die zweite Ursache ist das Verhältnis aus Partikeloberfläche und Partikelvolumen. Dieser Quotient verdeutlicht die Beziehung zwischen der Wärmeübertragungsfläche und der aufzuheizenden Kapazität. Bei kugelförmigen Partikeln ist dieser Wert proportional zu $A_p/V_p \sim 1/d_p$. Ein kleiner Wert stellt ein ungünstiges Verhältnis für die schnelle Aufheizung dar. Die Kombination dieser zwei Ursachen drückt sich letztlich in dem Verhältnis Sh_{pg}/d_p^2 aus. Das Verhältnis ist für kleine Partikel erheblich höher, wodurch sich die schnellere Erwärmung begründen lässt. Dementsprechend ist auch die Trocknungsgeschwindigkeit der kleinen Partikel erheblich höher. Im ersten Trocknungsabschnitt ist eine deutliche Verteilung der Feuchte über dem Partikeldurchmesser zu erkennen. Erst nach Erreichen der kritischen Gutsfeuchte $X_c = 100\text{g/kg}$ gleicht sich das Feuchteprofil aufgrund der verringerten Trocknungsgeschwindigkeit wieder aus. Während kleine Partikel sehr schnell den ersten Trocknungsabschnitt durchlaufen, ist dieser Bereich bei großen Partikeln zeitlich ausgeprägt. Das lässt sich am Temperaturplateau im Bereich 50–200s in der Abbildung 3.5 gut erkennen. Die Gastemperatur in der Abbildung 3.7 folgt in ihrem zeitlichen Verlauf der Partikeltemperatur. Aufgrund der Rückvermischung des Feststoffes und der hohen Sherwood- bzw. Nusselt-Zahlen zwischen Gasphase und Partikeln liegt die mittlere Gastemperatur nahe der Partikeltemperatur. Der intensive Kontakt zwischen den beiden Phasen spiegelt sich auch in der sprunghaften Änderung der Austrittstemperatur auf die anfängliche Partikeltemperatur von $\vartheta_p|_{t=0s} = 20^\circ\text{C}$ wider. Die Austrittsfeuchte durchläuft bedingt durch den zeitlichen Verlauf der Partikelfeuchteverteilung und der Gastemperatur eine permanente Änderung. Nur bei einem System, in welchem sich alle Partikel über einen längeren Zeitraum, im ersten Trocknungsabschnitt befinden, kann sich ein Bereich konstanter Luftaustrittsfeuchte und -temperatur bilden.

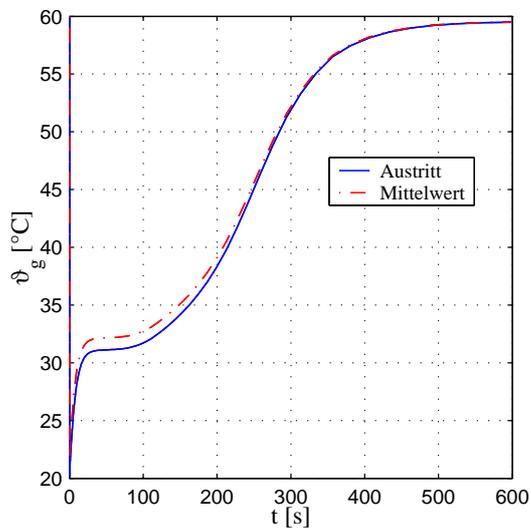


Abbildung 3.7: Zeitlicher Verlauf der Gas-temperatur (Simulation der Trocknung)

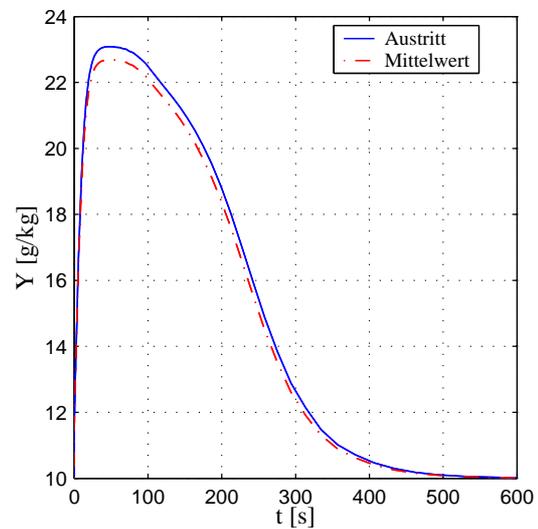


Abbildung 3.8: Zeitlicher Verlauf der Gasbe-ladung (Simulation der Trocknung)

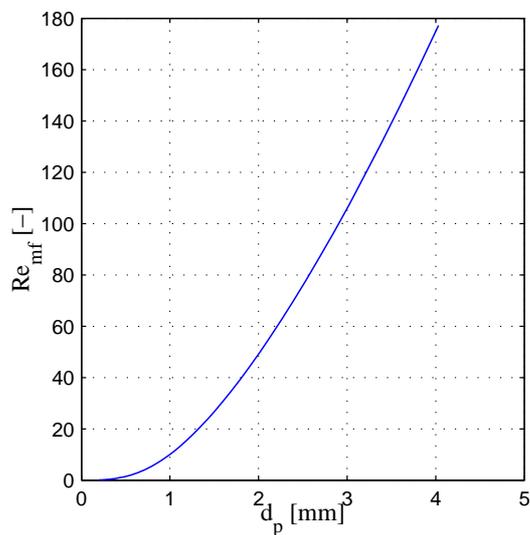


Abbildung 3.9: Verlauf der Reynoldszahl für die Minimalfluidisation unter Verwendung der Simulationsparameter aus der Tabelle 3.2

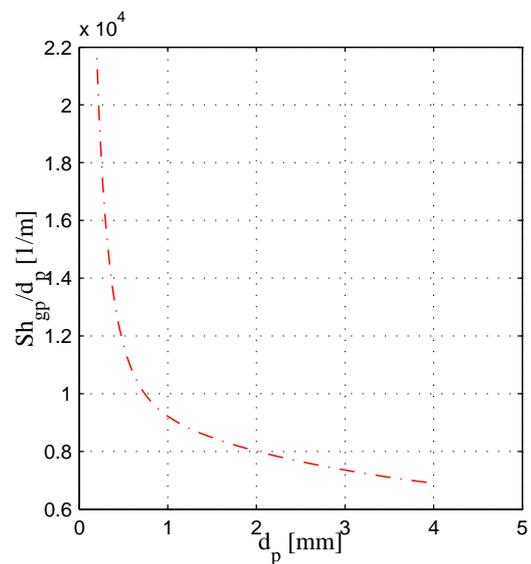


Abbildung 3.10: Verhältnis von Sh_{gp} und Partikeldurchmesser d_p unter Verwendung der Simulationsparameter aus der Tabelle 3.2

Tabelle 3.4: Anfangsbedingungen für Simulation der Eindüsung

Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Temperatur Partikel	$\vartheta_p _{t=0s}$	60	$[^{\circ}C]$
Feuchte Partikel	$X _{t=0s}$	0.05	$[kg/kg]$
Temperatur Gas	$\vartheta_g _{t=0s}$	60	$[^{\circ}C]$
Beladung Gas	$Y _{t=0s}$	10	$[g/kg]$
Temperatur Wand	$\vartheta_w _{t=0s}$	60	$[^{\circ}C]$

3.4.4 Simulation der Eindüsung

Die Simulation der Eindüsung zeigt den instationären Verlauf der bilanzierten Größen bei Einbringung einer bestimmten Flüssigkeitsmenge in die Wirbelschicht. Abhängig von den sich einstellenden thermodynamischen Bedingungen erreicht das Wirbelgut eine stationäre Feuchte. Die Anfangsbedingungen der Simulation sind in Tabelle 3.4 zusammengefasst. Eine Veränderung der Partikelverteilung in Folge von Agglomeration wird in dieser Simulation nicht betrachtet, sodass für die Agglomerationsrate $\beta_0 = 0$ gilt. Die Ergebnisse der Berechnungen sind in den Abbildungen 3.11 bis 3.14 dargestellt. Im zeitlichen Verlauf der Austrittsbeladung in Abbildung 3.14 ist zu erkennen, dass sich nach bereits sehr kurzer Zeit eine annähernd konstante Austrittsfeuchte ausbildet. Das starke Überschwingen der Feuchte bei $t = 0s$ mit einer Beladung von etwa $Y = 45g/kg$, welches in der Darstellung der Luftaustrittsbeladung nicht sichtbar ist, sich jedoch in dem starken Abfall der Partikelbeladung widerspiegelt, ist durch die gewählte Anfangsbedingung bei der numerischen Simulation zu erklären. Zum Zeitpunkt $t = 0s$ wird für jedes diskretisierte Höhenelement die Gastemperatur auf $\vartheta_g = 60^{\circ}C$ und die Luftfeuchte auf $Y = 10g/kg$ gesetzt. Somit ist das Trocknungspotential über der gesamten Wirbelschichthöhe zu Beginn der Simulation sehr groß. Kurzzeitig steigt der verdampfte Wassermassenstrom und somit die Austrittsfeuchte stark an. Dieser Effekt ist – wie erwähnt – in einem Abfall der Partikelfeuchte in der Abbildung 3.12 erkennbar. Mit fortschreitender Prozesszeit stellt sich eine nahezu konstante Partikelfeuchte von etwa $X = 73g/kg$ ein. Wiederum weisen kleine Partikel eine etwas höhere Temperatur auf als große Partikel (siehe Abbildung 3.11). Demzufolge ist auch die Partikelfeuchte der kleinen Partikel geringer, da das thermodynamische Gleichgewicht entsprechend des Adsorptionsverhaltens für höhere Temperaturen geringere Beladungen vorhersagt. Der leicht abfallende zeitliche Verlauf der Gastemperatur in der Abbildung 3.13 ist durch den Wärmetransport zur Wand bedingt. Die vergleichsweise hohe Wärmekapazität der Wand im Verhältnis zum Bettmaterial bedingt den langen instationären Anlaufprozess, wie in der Darstellung des zeitlichen Verlaufs der Wandtemperatur in der Abbildung 3.15 zu sehen ist.

3.4.5 Simulation der Agglomeration

Das Ziel der Simulationen der reinen Agglomeration ist der Nachweis, dass die gewählte Art der Bilanzierung der extensiven Zustandsgrößen Partikelenthalpie H_p und Wassergehalt der Partikel M_{wp} zu einer korrekten Bestimmung der korrespondierenden intensiven Zustandsgrößen Parti-

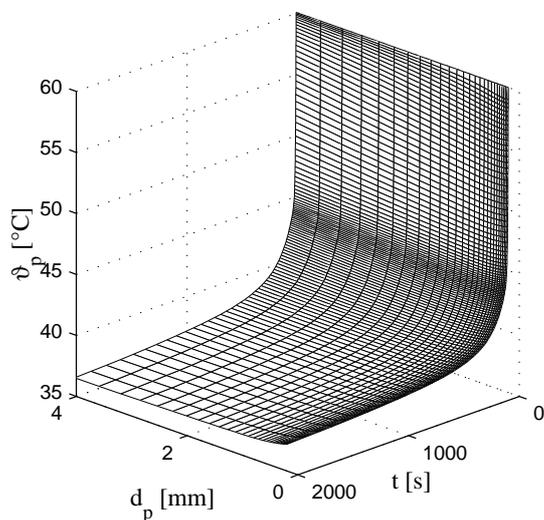


Abbildung 3.11: Temperaturverteilung der Partikel (Simulation der Eindüsung)

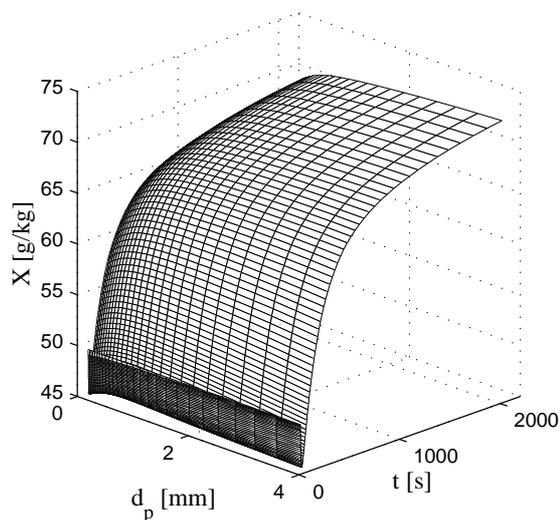


Abbildung 3.12: Feuchteverteilung der Partikel (Simulation der Eindüsung)

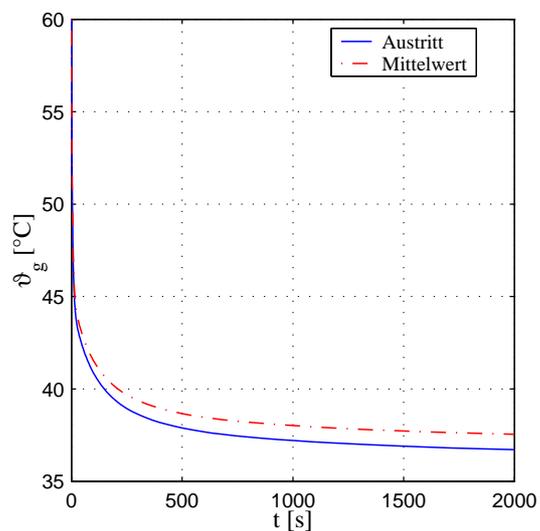


Abbildung 3.13: Zeitlicher Verlauf der Gas-temperatur (Simulation der Eindüsung)

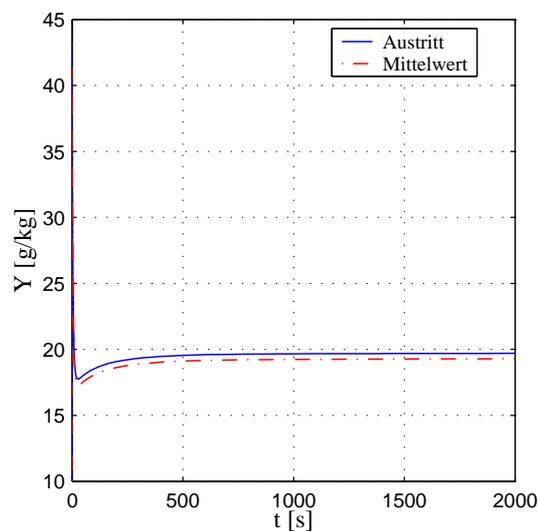


Abbildung 3.14: Zeitlicher Verlauf der Gas-beladung (Simulation der Eindüsung)

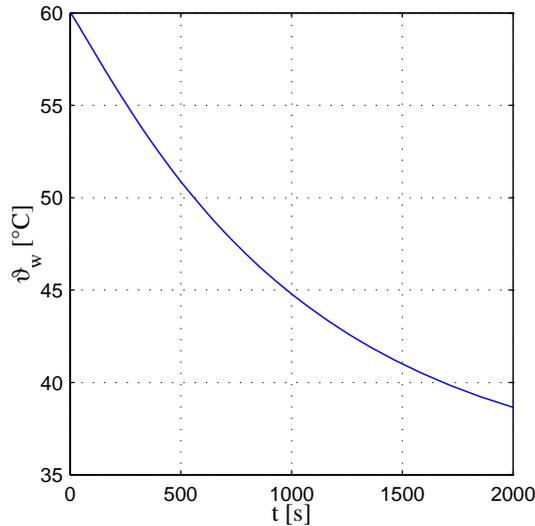


Abbildung 3.15: Wandtemperatur (Simulation Eindüsung 1)

keltemperatur ϑ_p und Partikelbeladung X führt. Dazu wurde das vollständige System simuliert, wobei jedoch sämtliche Wärme- und Stoffübergangskoeffizienten $\alpha = \beta = 0$ gesetzt wurden. Das Modell muss damit für die intensiven Zustandsgrößen einen konstanten Wert vorhergesagen. Der Agglomerationsprozess wurde durch einen partikelgrößenunabhängigen Kern β_0 beschrieben. Die Aggregationsrate zum Ende des Prozesses wurde mit $I_{agg} = 0.8$ festgelegt. Somit ergibt sich aus Tabelle 2.2 für den numerischen Wert des Kerns $\beta_0 = 3.418^{-9} 1/s$.

Die Ergebnisse der Simulation sind in den Abbildungen 3.16 bis 3.18 dargestellt. Mit Beginn der Agglomeration verändert sich das Verteilungsspektrum der Partikel kontinuierlich. Die Abbildungen 3.17 und 3.18 zeigen hingegen einen konstanten Wert über die gesamte Prozesszeit. Daraus folgt, dass das neu entwickelte DTMD-Modell der Gleichungen (2.79) und (2.80) die korrekten Werte der intensiven Zustandsgrößen wiedergibt.

3.4.6 Simulation des vollständigen Prozesses

In diesem Abschnitt wird ein Beispiel für die Simulation eines vollständigen Prozesses dargestellt. Dieser Prozess ist durch die drei Stufen

- Vortrocknung und Erwärmung des Wirbelgutes,
- Eindüsung und Agglomeration sowie
- Nachtrocknung des Wirbelgutes

gekennzeichnet. Für die Simulation soll die Voraussetzung getroffen werden, dass es nur während der Eindüsung zu einer Agglomeration kommt. In der Vor- bzw. Nachtrocknungsphase soll sich das Partikelspektrum nicht verändern. Die zur Berechnung notwendigen Anfangsbedingungen und Prozesszeiten sind in den Tabellen 3.5 bzw. 3.2 dargestellt.

In den Abbildungen 3.19 bis 3.22 sind die Berechnungsergebnisse des vollständigen Prozesses wiedergegeben. Die drei Stufen sind in den Abbildungen 3.21 und 3.22 deutlich erkennbar. In der Vortrocknungsphase steigt die Luftaustrittsfeuchte kurzzeitig an und sinkt dann auf den

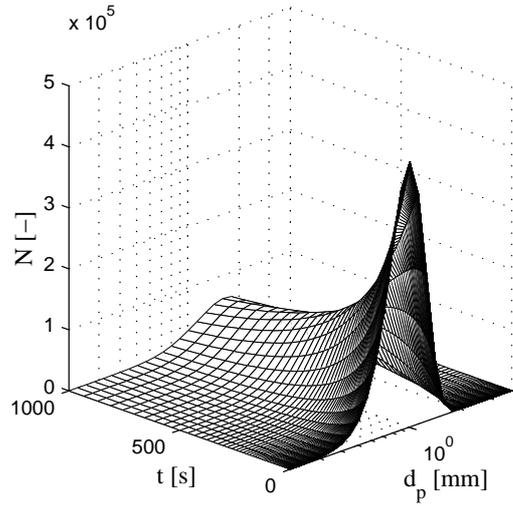


Abbildung 3.16: Anzahlverteilung der Partikel (Simulation der Agglomeration)

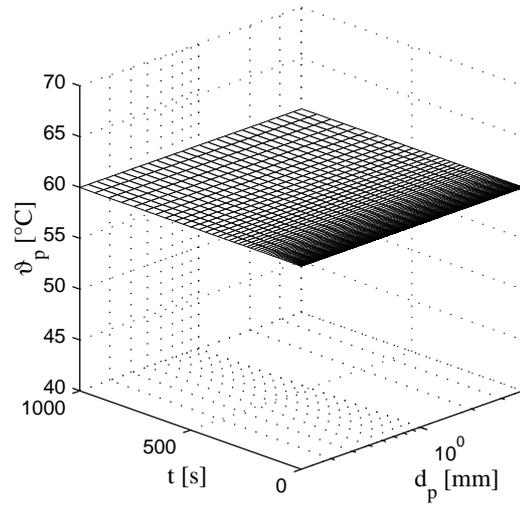


Abbildung 3.17: Temperaturverteilung der Partikel (Simulation der Agglomeration)

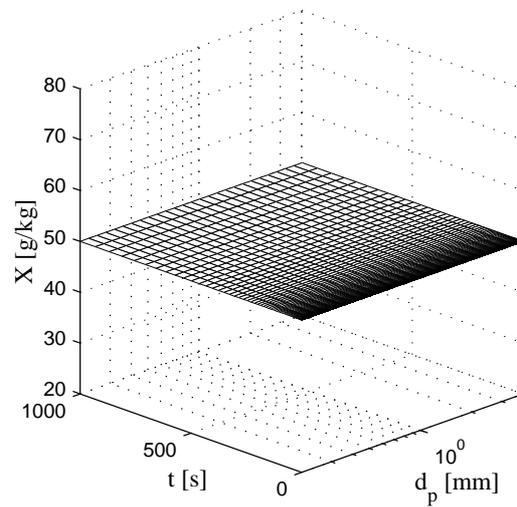


Abbildung 3.18: Feuchteverteilung der Partikel (Simulation der Agglomeration)

Tabelle 3.5: Anfangsbedingungen für Simulation des vollständigen Prozesses

Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Temperatur Partikel	$\vartheta_p _{t=0s}$	20	$[^{\circ}C]$
Feuchte Partikel	$X _{t=0s}$	0.2	$[kg/kg]$
Temperatur Gas	$\vartheta_g _{t=0s}$	60	$[^{\circ}C]$
Beladung Gas	$Y _{t=0s}$	10	$[g/kg]$
Temperatur Wand	$\vartheta_w _{t=0s}$	60	$[^{\circ}C]$
Eindüsungsbeginn	t	600	$[s]$
Eindüsungsende	t	1600	$[s]$
Prozesszeit	t	2200	$[s]$

Eintrittszustand von $Y = 10g/kg$ ab. Dementsprechend sinkt die Temperatur während der Trocknung am Apparateaustritt und steigt dann wieder auf den Eintrittswert von $\vartheta_g = 60^{\circ}C$ an. Zum Ende des Prozesses sind die Zustände der Bilanzgrößen mit denen im Abschnitt 3.4.3 dargestellten Werten der reinen Trocknung identisch.

Um den Effekt der Verteilung der Zustandsgrößen Enthalpie und Wassergehalt der Partikel zu verdeutlichen, wurde eine weitere Simulation durchgeführt, bei der die Bettmasse auf $M_p = 0.1kg$ verringert wurde. Die Berechnungsergebnisse sind in den Abbildungen 3.23 bis 3.26 wiedergegeben. Deutlich ist in der Abbildung 3.24 die partikelgrößenabhängige Beladung zu erkennen. Mit steigender Prozesszeit prägt sich diese Verteilung deutlicher aus. Ein direkter Vergleich der maximalen und minimalen Partikeltemperaturen in beiden Simulationen zum vollständigen Prozess zeigen ebenfalls die deutlichen Unterschiede in den absoluten Werten. Grund hierfür ist die Verringerung der Stoff- und Wärmeübertragungsfläche und damit der NTU_{pg} -Zahl (Number of Transfer Units)

$$NTU_{pg} = \frac{\varrho_g \sum_i \beta_{pg,i} A_{p,i}}{\dot{M}_g} \quad (3.49)$$

zwischen dem Suspensionsgas und den Partikeln durch die Verringerung der Schichtmasse. In der ersten Simulation nimmt NTU_{pg} keinen Wert kleiner 17 an, während in der zweiten Simulation der Wert auf etwa 2 abfällt. Für die überschlägige Berechnung der Luftaustrittsfeuchte in einer Wirbelschicht mit inaktivem Bypass gilt unter der vereinfachenden Annahme, dass sich das Gas isenthalp befeuchtet, der folgende Zusammenhang

$$\eta = \frac{Y_{out} - Y_{in}}{Y_{eq} - Y_{in}} = (1 - \nu) \left[1 - \exp\left(-\frac{NTU_{pg}}{1 - \nu}\right) \right] \quad (3.50)$$

Hierbei bezeichnet η das Trocknungspotential der eintretenden Luft und ist für das Intervall $[0, 1]$ definiert. Für einen Bypassanteil $\nu = 0$ ist η in Abhängigkeit von NTU_{pg} in der Abbildung 3.29 wiedergegeben. Bereits für $NTU_{pg} = 6$ ist das Trocknungspotential nahezu ausgeschöpft und nimmt einen Wert von eins am Apparateaustritt an. Für ein deutlich größeres $NTU_{pg} = 17$ ist bereits nach etwa 1/3 der Wirbelschichthöhe $\eta = 1$. Bedingt durch diesen hohen Stoff-

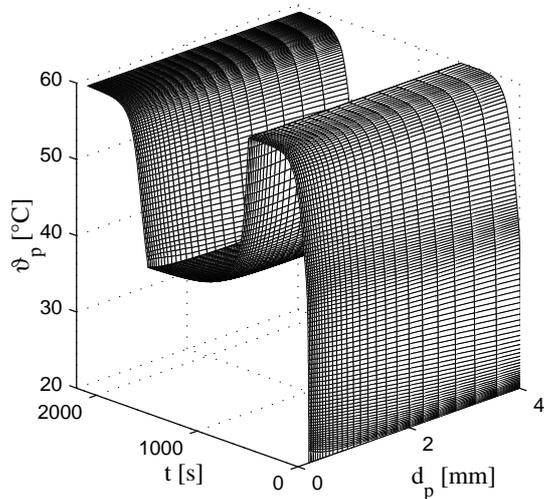


Abbildung 3.19: Temperaturverteilung der Partikel (Simulation des vollständigen Prozesses Beispiel 1)

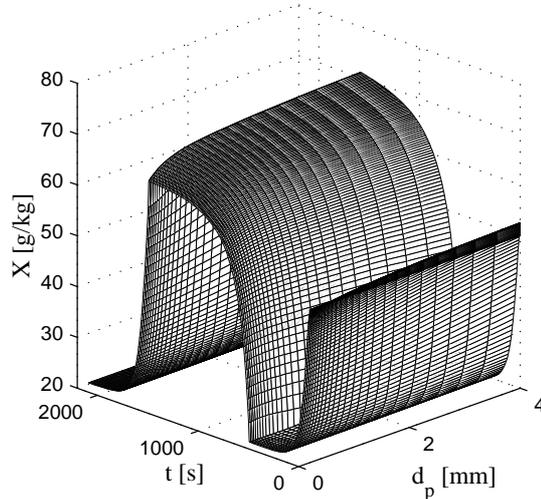


Abbildung 3.20: Feuchteverteilung der Partikel (Simulation des vollständigen Prozesses Beispiel 1)

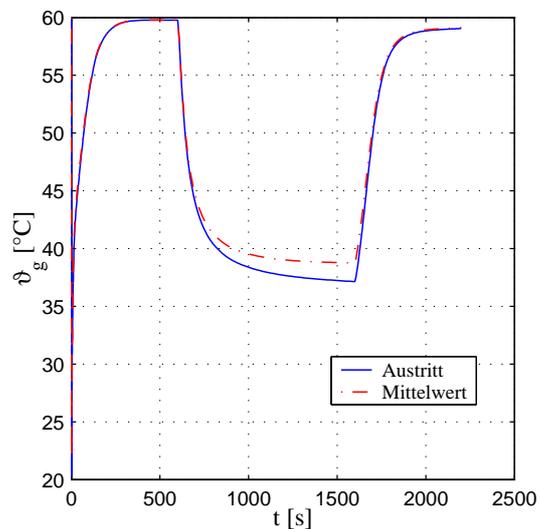


Abbildung 3.21: Zeitlicher Verlauf der Gas-temperatur (Simulation des vollständigen Prozesses Beispiel 1)

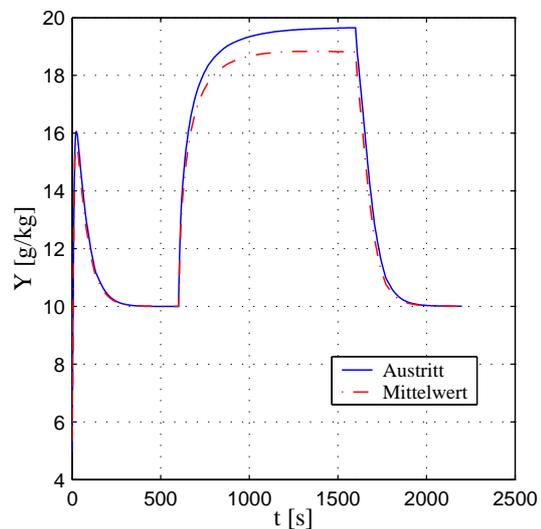


Abbildung 3.22: Zeitlicher Verlauf der Gas-beladung (Simulation des vollständigen Prozesses Beispiel 1)

und Wärmeübergang können sich alle Partikel ihrem thermodynamischen Gleichgewichtszustand $X = X_{eq}$ nähern. Die Abhängigkeit der kinetischen Koeffizienten β_{pg} und α_{pg} von der Partikelgröße spielt in diesem Fall eine untergeordnete Rolle. Für kleine Werte $NTU_{pg} = 2$ ist dies nicht der Fall. Da für kleine Partikel das Verhältnis aus kinetischen Koeffizient und Partikeldurchmesser sehr groß ist (siehe Abbildung 3.10), nähern sie sich im Vergleich zu großen Partikeln stark dem thermodynamischen Gleichgewichtszustand. Die kurze Verweilzeit des Gases führt zu einer verringerten Nutzung des Trocknungspotentials, welche sich besonders deutlich in einer erhöhten Beladung großer Partikel niederschlägt.

Als Ergebnis dieser Ausführungen lässt sich festhalten, dass nur für kleine NTU_{pg} -Werte ($\ll 8$) eine Verteilung der Enthalpie und des Wassergehaltes als Funktion des Partikeldurchmessers erwartet werden kann. Für große NTU_{pg} -Werte ist es hingegen ausreichend, die disperse Phase vereinfachend zu modellieren. An Stelle der partikelgrößenabhängigen Enthalpie- bzw. Wassermassenverteilung in der dispersen Phase werden diese beiden Bilanzgrößen als integrale Werte des gesamten Systems betrachtet. Durch die Einführung eines äquivalenten Partikeldurchmessers, wie beispielsweise der Sauterdurchmesser d_{32} , können Stoffaustauschflächen bzw. kinetische Koeffizienten bestimmt werden. Der Sauterdurchmesser repräsentiert jenes monodisperse Partikelsystem, welches das gleiche Volumen sowie die gleiche Oberfläche des polydispersen Systems besitzt. Die Berechnung erfolgt durch

$$d_{32} = \frac{6V_{bed}}{A_{bed}} \quad . \quad (3.51)$$

Der Wert von d_{32} kann direkt aus der Partikelanzahlverteilung nach Gleichung (3.7) bestimmt werden. Mit dieser Voraussetzung können die Modellgleichungen (3.8) und (3.9) erheblich vereinfacht werden. Die Integration dieser Gleichungen über das gesamte Partikelvolumen führt zu

$$\frac{dM_{w,l}}{dt} = -\dot{M}_{pg} + \dot{M}_{np} \quad (3.52)$$

$$\frac{dH_p}{dt} = -\dot{H}_{ps} + \dot{H}_{np} - \dot{Q}_{pw} - \dot{Q}_{sp} + \dot{H}_{B_0} \quad , \quad (3.53)$$

da entsprechend der Erhaltungsgleichungen die Integralterme in den Gleichungen (3.8) und (3.9) den Wert Null ergeben¹.

¹Der Nachweis über die Erhaltung der Tracer-Masse ist im Anhang A.5 dargestellt.

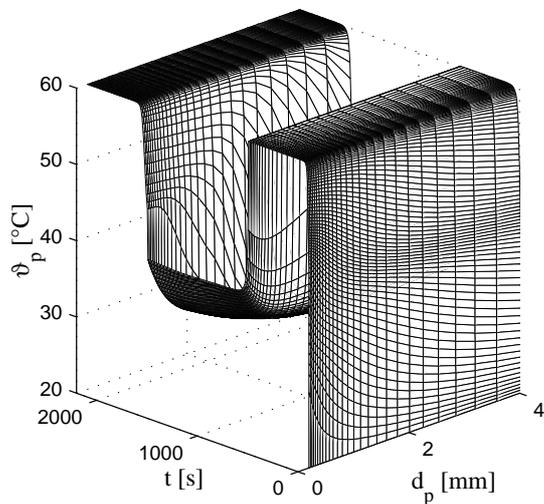


Abbildung 3.23: Temperaturverteilung der Partikel (Simulation des vollständigen Prozesses Beispiel 2)

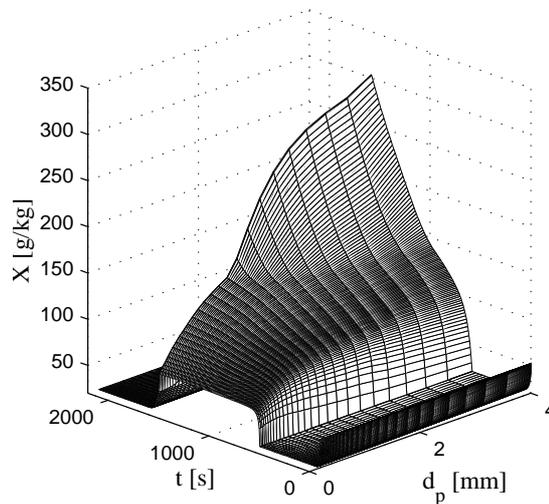


Abbildung 3.24: Feuchteverteilung der Partikel (Simulation des vollständigen Prozesses Beispiel 2)

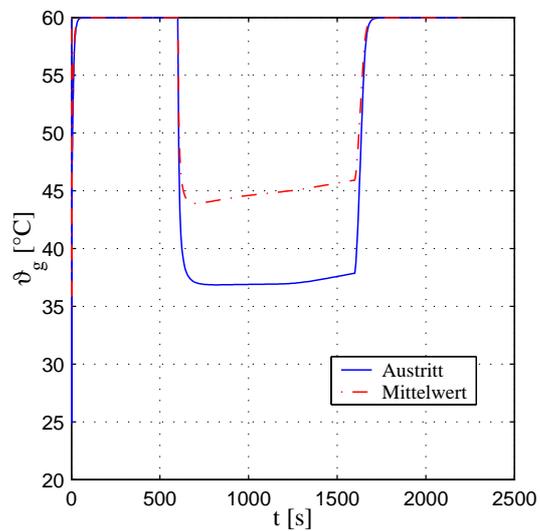


Abbildung 3.25: Zeitlicher Verlauf der Gastemperatur (Simulation des vollständigen Prozesses Beispiel 2)

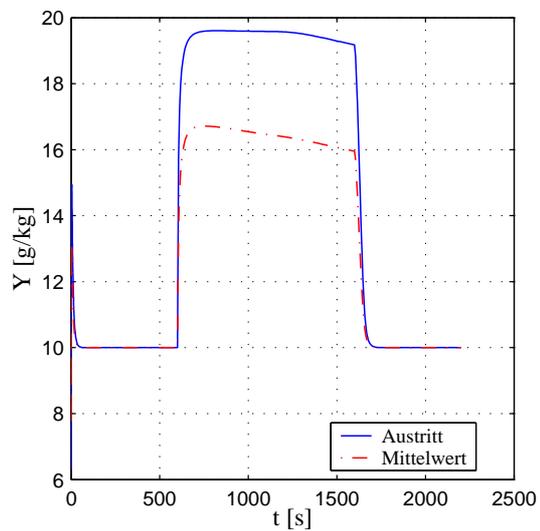


Abbildung 3.26: Zeitlicher Verlauf der Gasbeladung (Simulation des vollständigen Prozesses Beispiel 2)

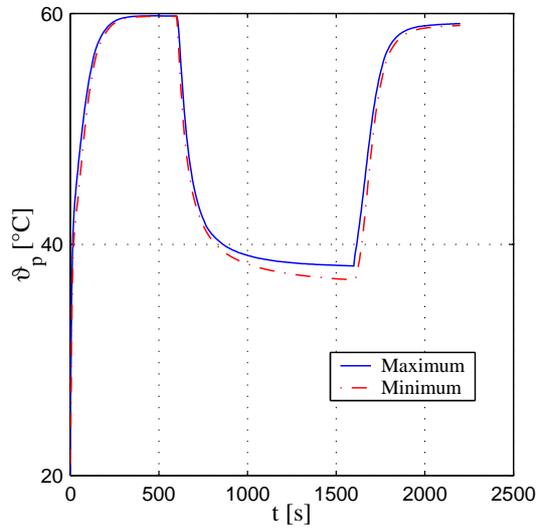


Abbildung 3.27: Zeitlicher Verlauf der maximalen und minimalen Partikeltemperaturen (Simulation des vollständigen Prozesses Beispiel 1)

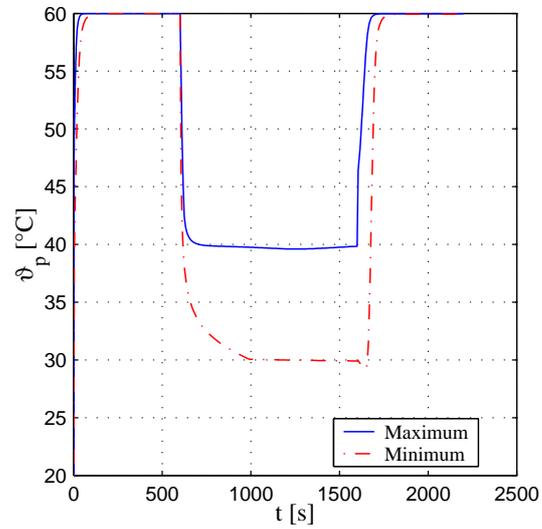


Abbildung 3.28: Zeitlicher Verlauf der maximalen und minimalen Partikeltemperaturen (Simulation des vollständigen Prozesses Beispiel 2)

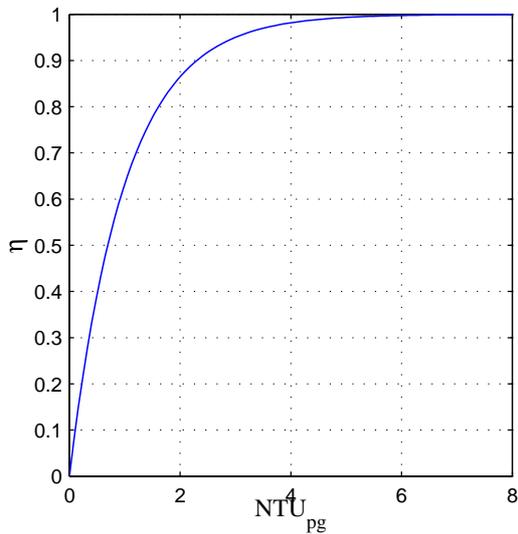


Abbildung 3.29: Verlauf des Trocknungspotentials in Abhängigkeit von NTU_{pg}

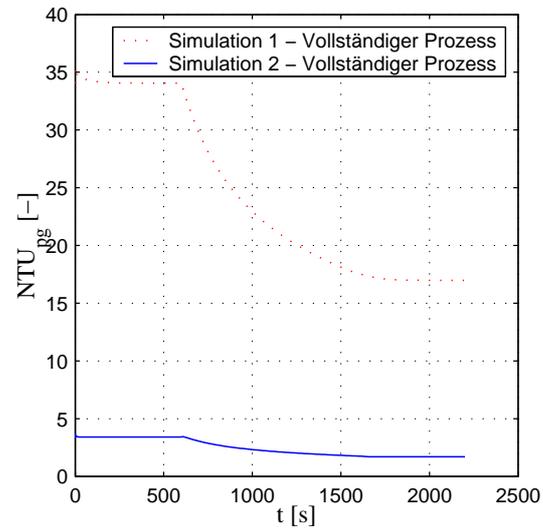


Abbildung 3.30: Vergleich von NTU_{pg} für Simulation 1 und 2 des vollständigen Prozesses

Kapitel 4

Experimentelle Untersuchungen

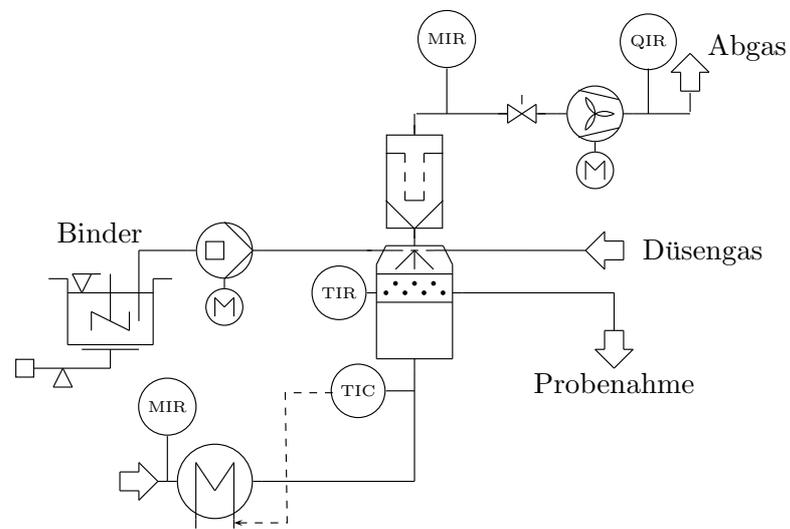
Das Ziel der Versuche bestand darin, das Agglomerations- und Trocknungsverhalten eines ausgewählten Versuchsstoffes in einer Wirbelschicht unter Variation einiger Prozessparameter zu untersuchen. Bei einer diskontinuierlichen Fahrweise unterliegt das Partikelspektrum innerhalb des Apparates einer ständigen Veränderung. Durch eine Produktentnahme in konstanten Intervallen soll der zeitliche Verlauf der Partikelverteilung bestimmt und zur Ermittlung der Agglomerationskinetik genutzt werden. Die Messung trockenungsrelevanter Größen (Gasbeladungen, Temperaturen, Partikelfeuchten) dient zur Validierung des vorgestellten Wirbelschichtmodells.

4.1 Versuchsanlage

Die Abbildung 4.1 zeigt ein Schema, die Abbildung 4.2 die Ansicht der Versuchsanlage. Diese kommerzielle Wirbelschicht-Granulationsanlage vom Typ GPCG 1.1 der Firma GLATT SYSTEMTECHNIK GMBH ist eine Laboranlage, die zur absatzweisen Agglomeration bzw. Granulation von Feststoffen dient.

Die Anlage besteht im Kern aus einer konischen Wirbelkammer, die im unteren Bereich einen Durchmesser von 138mm und im oberen 304mm aufweist. Die Höhe der Wirbelkammer beträgt 565mm . Zur Prozessbeobachtung sind zwei Glasschlitze in die Wirbelschichtkammer eingelassen. Ein Anströmboden grenzt den Wirbelschichtbereich von der Anströmkammer ab. Durch ein Sauggebläse wird Umgebungsluft in einen mehrstufigen Elektroheizer gefördert. Dieser Heizer mit einer Heizleistung von 3.96kW regelt die Zulufttemperatur der Wirbelschichtkammer. Der Ist-Wert der Regelung wird über ein in der Anströmkammer befindliches Thermoelement erfasst. Eine elektrisch verstellbare Klappe, welche sich vor dem Sauggebläse befindet, steuert die angesaugte Luftmenge. Nachdem die Luft die Wirbelkammer passiert hat, wird sie durch zwei oberhalb der Kammer angeordnete Schlauchfilter von mitgerissenen Feststoffpartikeln gereinigt. Die Schlauchfilter werden durch eine Steuerung in festen Zeitintervallen asynchron abgereinigt. Durch die asynchrone Reinigung wird gewährleistet, dass die Schicht stets in einem fluidisierten Zustand gehalten wird. Nach dem Schlauchfilter ist ein weiterer Kassettenfilter angeordnet, welcher Feinstpartikel abscheidet.

Zur Befüllung des Apparates mit Feststoff wird über eine pneumatische Absenkvorrichtung die Wirbelkammer von der Anströmkammer gelöst. Anschließend kann der konische Kammerbereich herausgeschwenkt und von oben befüllt werden. Zur vollständigen Entleerung besteht die Möglichkeit, den Behälter abzukippen. Für eine Probenahme während des laufenden Prozesses



Fluidisierungsgas

Abbildung 4.1: Schema der Versuchsanlage



Abbildung 4.2: Versuchsanlage GPCG 1.1



Abbildung 4.3: Probenahmestutzen der Versuchsanlage GPCG 1.1



Abbildung 4.4: Zweistoffdüse der Firma DÜSEN-SCHLICK GMBH Typ 970/0-S4

ist ein Stutzen vorgesehen, welcher in der Abbildung 4.3 dargestellt ist. Zur Probenahme wird ein Gefäß (Valve) über eine Gummidichtung gasdicht mit dem Entnahmestutzen verbunden. Durch einen Federmechanismus wird die Entnahme geöffnet und das Valve befüllt. Der gasdichte Anschluss des Probegefäßes mit der Anlage gewährt eine möglichst repräsentative Probe. Bei Undichtigkeiten würde durch den Entnahmestutzen ein Gasstrom gesaugt werden, da sich die gesamte Anlage durch die beschriebene Ventilatorconfiguration im Unterdruck befindet. Dieser Gasstrom hätte innerhalb der Probenahmeöffnung eine klassierende Wirkung auf die entnommenen Partikel.

Die Eindüsung wird mit einer Zweistoffdüse der Firma DÜSEN-SCHLICK GMBH vom Typ 970/0-S4 realisiert. Die verwendete Düse ist in der Abbildung 4.4 dargestellt. Durch einen regelbaren Düsendruck und eine an der Düse einstellbare Luftklappe kann sowohl der Durchsatz an Düsenluft als auch der Sprühkegel variiert werden. In dieser Anlagenkonfiguration wird das Wirbelbett von oben (Topspray) mit der Flüssigkeit bedüst. Eine stufenweise einstellbare Schlauchpumpe steuert den Massenstrom der eingedüsten Flüssigkeit. Die Pumpe besitzt eine maximale Förderleistung von $53\text{ml}/\text{min}$ bei einem Schlauchinnendurchmesser von 4.8mm . Die Bestimmung der Fördermenge wird durch Wägung des Vorlagebehälters der Flüssigkeit realisiert.

Zur Erfassung der Prozessparameter erfolgt die Visualisierung einiger Größen auf der Steuerung der Laboranlage. Diese Größen umfassen unter anderem den Schicht-, Boden- und Filterdruckverlust, den Gasvolumenstrom der Hauptluft, den Düsenvordruck und die Schichttemperatur. Diese Werte können in der beschriebenen Anlagenkonfiguration datenverarbeitungstechnisch nicht erfasst werden. Aus diesem Grund sind zusätzliche Sensoren installiert, welche im Anlagenschema der Abbildung 4.1 aufgeführt sind. Diese Sensoren sind Bestandteil eines Messsystems der Firma TESTO AG. Eine Auflistung der verwendeten Sensortypen ist in Tabelle 4.1 zusammengestellt. Die Eintritts- und Austrittsbeladungen des Gasstromes mit Wasser werden mit zwei entsprechend angeordneten Feuchtesensoren erfasst. Der Gasdurchsatz ist über eine eigens konstruierte $D - D/2$ -Blendenmessstrecke realisiert, welche am Gasaustritt der Anlage positioniert ist. Die Öffnung der Blende beträgt 40mm . Eine kurze Übersicht der zur Berechnung des Gasmassenstromes verwendeten Gleichungen ist im Anhang D gegeben. Zur weiteren Überprüfung wird die Strömungsgeschwindigkeit am Messstreckenaustritt mit Hilfe eines Flügelrades gemessen. Durch ein im Flügelrad integriertes Thermoelement kann eine Temperaturkorrektur

Tabelle 4.1: Verwendete Sensoren der Firma TESTO AG

Fühlertyp (Messgröße)	Messbereich	Auflösung/Genauigkeit
NiCr-Ni-Thermoelement	$-200.0 \dots 800.0^{\circ}C$	$\pm 0.01^{\circ}C (-99.99 \dots 300.0^{\circ}C)$
Feuchtesensor	$0.0 \dots 100.0\%$	$\pm 0.1\% (0.0 \dots 100.0\%)$
Flügelrad	$0.0 \dots 60.0m/s$	
Differenzdrucksensor	$-200.0 \dots 200.0hPa$	$\pm 0.1hPa (-200.0 \dots 200.0hPa)$

und Umrechnung in einen Massenstrom vorgenommen werden. Oberhalb des Wirbelbettes ist ein weiteres Thermoelement installiert, welches zur Bestimmung der Gasaustrittstemperatur genutzt wird.

4.2 Labormesstechnik

4.2.1 Feuchtigkeitsanalysator

Die während der Versuche entnommenen Partikelproben wurden mit Hilfe eines Feuchtigkeitsanalysators HG63 Halogen Moisture Analyzer der Firma METTLER-TOLEDO GMBH auf den Wassergehalt untersucht. Bei diesem Messgerät wird eine Probe durch einen kreisförmigen Halogenstrahler schnell auf die gewünschte Temperatur erhitzt und dann getrocknet. Ein vergoldeter Reflektor verstärkt den Effekt einer schnellen Erwärmung der Probe. Durch Erfassung der Massenänderung des Versuchsgutes zu Beginn und am Ende der Messung wird der Wasserinhalt der ursprünglichen Probe bestimmt. Die Trocknungstemperatur während der Versuche wurde jeweils auf $105^{\circ}C$ gesetzt, wobei die maximale Trocknungszeit 180s betrug.

4.2.2 Partikelgrößenanalysator

Zur Bestimmung der Partikelgröße wurde das Messgerät Camsizer der Firma RETSCH GMBH & Co. KG verwendet. Die Funktionsweise des Gerätes basiert auf dem Messprinzip der digitalen Bildverarbeitung. Der Camsizer verfügt über zwei Matrixkameras (Basic- und Zoomkamera) zur Bildaufnahme rieselfähiger Partikel in einem Größenbereich von $0.03mm$ bis $30mm$. Als Probenzuführeinrichtung dient eine Dosierrinne mit einer Regelung, deren Sollwert über den Anteil der Projektionsflächen der Partikel am Gesamtbild definiert ist. Diese Regelung stellt sicher, dass ein kontinuierlicher Partikelstrom von der Rinne in den Messschacht fällt. Im Messschacht werden die Projektionsflächen der Partikel gleichzeitig durch beide CCD-Kameras erfasst und analysiert. Maximal können 25 Bilder pro Sekunde vom Messgerät aufgenommen und ausgewertet werden. Der Camsizer verfügt intern über 10.000 Messklassen, denen die Partikel entsprechend ihrer Größe zugeordnet werden. Zur Ausgabe werden diese Messklassen in bis zu 50 Ausgabeklassen zusammengefasst, wobei die Klassengrenzen frei festlegbar sind.

Bei der Bestimmung der Partikelgröße und Partikelform kommen verschiedene Algorithmen zur Anwendung, deren Grundlagen in der DIN 66141 definiert sind. Je nach Auswertung des Messsignals können die ermittelten Partikelverteilungen voneinander abweichen. Zur Bestimmung der Partikelgröße wurden bei den experimentellen Untersuchungen zwei Auswertungsverfahren angewandt. Die erste Variante besteht in der Bestimmung des Durchmessers x_{area} ,

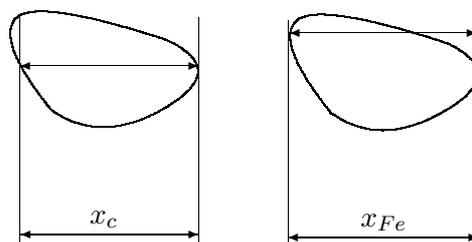


Abbildung 4.5: Bestimmung der maximalen Sehne (links) und des Feret-Durchmessers (rechts) senkrecht zur Messrichtung

dessen Kreisfläche äquivalent zur gemessenen Projektionsfläche ist. Bei der zweiten Auswertungsmöglichkeit wird der Partikeldurchmesser $x_{c,min}$ ermittelt, der die kleinste maximale Sehne darstellt. Die maximale Sehne ist als die maximale Ausdehnung der Projektionsfläche in Messrichtung definiert. Das beschriebene zweite Auswertungsverfahren ist besonders für die vergleichende Messung mit einer Siebanalyse geeignet, da $x_{c,min}$ auch als Breite des Partikels verstanden wird und damit für den Durchtritt durch ein Sieb mit einer bestimmten Maschenweite maßgebend ist. Eine weitere Form der Auswertung wäre die Bestimmung des Feret-Durchmessers x_{Fe} . Der Feret-Durchmesser gibt den Abstand zweier Tangenten senkrecht zur Messrichtung an. Des dessen Maximum wird auch als Länge des Partikels $x_{Fe,max}$ bezeichnet. Das Prinzip der Ermittlung dieser Durchmesser ist in der Abbildung 4.5 dargestellt.

4.2.3 Adsorptionswaage

Die Ermittlung der Adsorptionsisothermen erfolgte mit Hilfe einer Adsorptionswaage vom Typ DVS1/1085 der Firma POROTEC GMBH. Dieses Gerät erlaubt Messungen der Wasserdampfadsorption und -desorption in einem Temperaturbereich von $20 - 50^\circ C$. Das Messprinzip basiert auf der Erfassung der Massenab- bzw. -zunahme der zu untersuchenden Probe. Eine Balkenwaage dient als Messsystem, wobei sich auf einer Seite dieser Waage eine Referenzmasse befindet. Während der Messung werden beide Tiegel (Probe und Referenz) von einem konditionierten Luftstrom umspült. Die Waage ist in der Lage, Massendifferenzen bis zu $10^{-5} mg$ zu erfassen.

Der gesamte Wägemechanismus befindet sich in einem Inkubator, der über eine Temperaturregelung verfügt. Während der Messung wird die Temperatur im Inkubator auf den Wert der zu ermittelnden Isothermen eingestellt.

In einer Kammer werden zwei Gasströme miteinander gemischt. Einer dieser Gasströme wird dabei zuvor durch eine Sprudelflasche geleitet, wobei sich dieser Strom bei der entsprechenden Inkubator Temperatur vollständig mit Wasserdampf sättigt. Der zweite Gasstrom wird vollständig entfeuchtet. Dies geschieht in einem Festbettadsorber, der vollständig mit Silikagel als Trocknungsmittel gefüllt ist. Durch die Regelung der Gasmassenströme können in der Mischkammer Sättigungen zwischen $0 \dots 100\%$ eingestellt werden. Der gemischte Gasstrom wird über die Probe und die Referenzmasse geleitet. Entsprechend des Adsorptionsverhaltens stellt sich ein Gleichgewicht zwischen Partikelbeladung und Gasphasenzustand ein. Die zeitliche Massenänderung ist ein Maß für das Erreichen des Gleichgewichtes.

4.3 Versuchsbeschreibung

4.3.1 Versuchsgut

Für die Durchführung der Agglomerationsversuche wurde als Versuchsgut mikrokristalline Zellulose (MCC) ausgewählt. MCC findet eine breite Anwendung in der pharmazeutischen Industrie als Träger- bzw. Füllstoff für Wirksubstanzen. Der Stoff eignet sich nach Zugabe bestimmter Hilfsstoffe, wie unter anderem das Schmiermittel Magnesium-Stearat, hervorragend zur Tablettierung. Ein wesentlicher Verfahrensschritt vor der Tablettierung ist die Herstellung von MCC-Agglomeraten. Hierdurch kann u.a. nach Zugabe von Wirkstoffen eine gleichmäßige Mischung der einzelnen Bestandteile erzielt werden. Weitaus wichtiger sind jedoch die verbesserten Fließeigenschaften sowie die Staubfreiheit des Agglomerates gegenüber der reinen Zellulose. Durch diese verbesserten Dosiereigenschaften werden etwa Brückenbildungen oder ungleichmäßige Befüllungen der Matrizen bei der maschinellen Tablettierung vermieden. Des Weiteren kann durch eine gezielte Einstellung der Agglomeratverteilung die Festigkeit der Tabletten und die Wirkstofffreisetzung beeinflusst werden.

4.3.1.1 Adsorptionsverhalten

Zur Beschreibung des Adsorptionsverhaltens wurden die Adsorptionsisothermen von reiner MCC (nicht-agglomeriertes Ausgangsmaterial) bei drei verschiedenen Temperaturen (30°C , 40°C und 50°C) aufgenommen. Jede der Messungen wurde dreimal wiederholt, um Messfehler abschätzen zu können. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind in den Abbildungen 4.7 und 4.8 dargestellt, wobei ein Vertrauensbereich¹ der Messung von 95% aufgetragen ist. In den Tabellen 4.2 bzw. 4.3 sind die Messwerte der Beladungen für die Adsorption bzw. Desorption aufgeführt.

Die Messungen zeigen eine deutliche Temperaturabhängigkeit des Adsorptionsverhaltens bei hohen relativen Luftfeuchten. Der Wert der maximalen Beladung steigt bei 30°C und $\phi = 98\%$ um 50% im Vergleich zur Messung bei 50°C an. Zwischen der Adsorptionsisotherme und der Desorptionsisotherme ist eine deutliche Hysterese erkennbar. Ursache hierfür ist der sogenannte Kapillareffekt, der in Abbildung 4.6 dargestellt ist. Durch die Krümmung des Flüssigkeitsmeniskus verringert sich der Dampfdruck an der Gas-Flüssig-Phasengrenze. Somit kondensieren Flüssigkeitsmoleküle der Gasphase aus. Dieser Effekt wird durch die Gleichung

$$\ln \frac{p_{ad}(r)}{p_{ad}^0} = \frac{2\sigma_{gl} M_{ad}}{R(\vartheta_g + 273.15\text{K}) \varrho_{ad} r} \quad (4.1)$$

beschrieben. Hierbei bezeichnen p_{ad} den Partialdruck des Adsorptivs, p_{ad}^0 den Partialdruck des Adsorptivs im Standardzustand, σ_{gl} die Grenzflächenspannung zwischen Gas- und Flüssigphase und ϱ_{ad} die Dichte des Adsorptivs. Mit abnehmendem Porenradius r steigt der Einfluss dieses Effektes. Eine Folge dieses Vorgangs sind die Hysteresen zwischen der Adsorption und Desorption. Bathen u. Breitbach (2001) geben für dieses Verhalten zwei mögliche Ursachen an. So können bei der Desorption auf Grund der feuchten Wände der teilweise benetzten Poren kleinere Krümmungsradien im Vergleich zur Adsorption auftreten. Eine weitere Ursache ist der Flaschenhals-Effekt. Bei stark verengten Zugangsporen spielen die hinter diesen Poren liegende Flaschenbäuche für das thermodynamische Gleichgewicht keine Rolle. Dieser Effekt wird in der Literatur durch Netzwerktheorien beschrieben.

¹Die Berechnung des Vertrauensbereiches ist im Anhang F dargestellt.

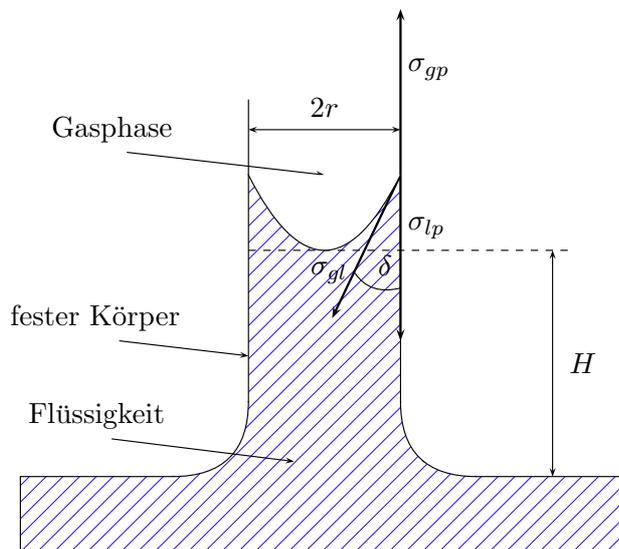


Abbildung 4.6: Mechanismus der Kapillarkondensation nach Bathen u. Breitbach (2001)

Tabelle 4.2: Beladungen X in $100[kg/kg]$ für Adsorption

$\vartheta[^\circ C]$	30	30	30	40	40	40	50	50	50	$\phi[\%]$
Messung	1	2	3	1	2	3	1	2	3	
	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.0
	1.34	1.41	1.35	1.42	1.42	1.44	1.30	1.30	1.35	5.2
	1.95	2.01	1.97	2.01	2.02	2.03	1.86	1.86	1.91	10.3
	2.54	2.63	2.59	2.59	2.61	2.62	2.43	2.42	2.47	15.5
	3.07	3.14	3.14	3.09	3.10	3.11	2.90	2.88	2.93	20.6
	3.54	3.65	3.62	3.53	3.55	3.54	3.32	3.31	3.36	25.8
	3.98	4.10	4.08	3.97	3.97	3.97	3.73	3.69	3.74	31.0
	4.36	4.48	4.52	4.33	4.36	4.34	4.09	4.05	4.10	36.1
	4.73	4.85	4.87	4.70	4.71	4.70	4.43	4.40	4.43	41.3
	5.08	5.19	5.24	5.05	5.04	5.05	4.77	4.73	4.76	46.4
	5.39	5.56	5.59	5.39	5.38	5.40	5.12	5.08	5.09	51.6
	5.83	5.96	6.01	5.76	5.78	5.78	5.50	5.44	5.43	56.7
	6.36	6.49	6.55	6.26	6.23	6.27	5.92	5.82	5.82	61.9
	6.96	7.14	7.19	6.75	6.77	6.86	6.38	6.33	6.27	67.1
	7.74	7.93	7.95	7.39	7.38	7.52	6.90	6.84	6.78	72.2
	8.54	8.68	8.76	8.02	8.06	8.25	7.47	7.38	7.32	77.4
	9.41	9.55	9.62	8.80	8.83	9.13	8.11	7.97	7.90	82.5
	10.51	10.70	10.71	9.77	9.75	10.32	8.75	8.69	8.57	87.7
	12.10	12.24	12.34	10.93	11.04	11.69	9.76	9.50	9.40	92.8
	14.90	15.15	15.02	12.85	12.79	14.22	10.88	10.55	10.46	98.0

Tabelle 4.3: Beladungen X in $100[kg/kg]$ für Desorption

$\vartheta[^\circ C]$	30	30	30	40	40	40	50	50	50	$\phi[\%]$
Messung	1	2	3	1	2	3	1	2	3	
	0.21	0.39	0.45	0.43	0.26	0.23	0.06	0.07	0.09	0.0
	1.66	1.85	1.90	1.81	1.69	1.65	1.43	1.45	1.46	5.2
	2.34	2.53	2.58	2.45	2.33	2.31	2.06	2.07	2.09	10.3
	3.01	3.22	3.28	3.10	2.97	2.97	2.68	2.68	2.71	15.5
	3.61	3.80	3.85	3.63	3.53	3.53	3.21	3.22	3.23	20.6
	4.14	4.35	4.40	4.15	4.04	4.05	3.70	3.70	3.71	25.8
	4.68	4.87	4.91	4.62	4.55	4.55	4.16	4.15	4.16	31.0
	5.15	5.37	5.42	5.06	5.01	5.03	4.57	4.54	4.58	36.1
	5.69	5.88	5.92	5.51	5.47	5.52	5.01	4.99	4.98	41.3
	6.19	6.42	6.44	5.97	5.88	5.96	5.44	5.40	5.41	46.4
	6.74	6.96	6.96	6.45	6.39	6.51	5.90	5.84	5.82	51.6
	7.34	7.58	7.57	6.99	6.94	7.13	6.35	6.30	6.29	56.7
	8.03	8.22	8.35	7.53	7.51	7.76	6.85	6.76	6.78	61.9
	8.75	8.95	8.99	8.20	8.19	8.48	7.38	7.27	7.25	67.1
	9.62	9.83	9.85	8.86	8.85	9.21	8.00	7.80	7.78	72.2
	10.52	10.73	10.70	9.58	9.50	10.09	8.54	8.37	8.29	77.4
	11.50	11.65	11.60	10.33	10.36	11.00	9.05	8.89	8.88	82.5
	12.54	12.70	12.71	11.18	11.15	12.00	9.71	9.45	9.44	87.7
	13.74	14.03	13.94	12.07	11.98	13.17	10.29	10.02	9.95	92.8
	14.90	15.15	15.02	12.85	12.79	14.22	10.88	10.55	10.46	98.0

Tabelle 4.4: Koeffizienten der BET-Isothermen nach Gleichung (3.48)

ϑ_g	Adsorption			Desorption		
	X_1	c	N	X_1	c	N
30	0.0260	33.8119	9.8589	0.0354	19.1401	7.5281
40	0.0259	33.6859	8.6907	0.0337	18.6577	6.9282
50	0.0253	23.3283	7.4881	0.0315	15.5128	6.2070

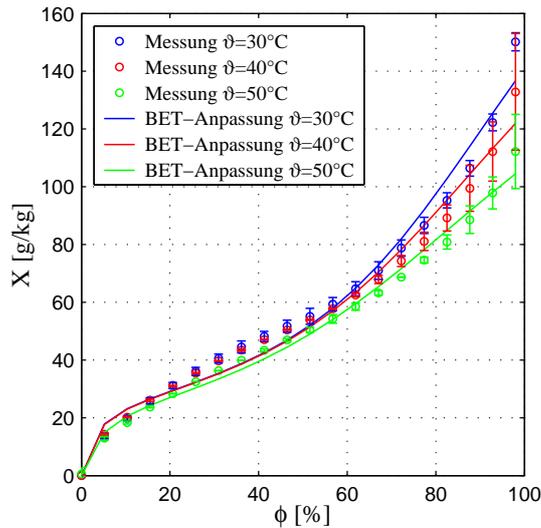


Abbildung 4.7: Vergleich der gemessenen Adsorptionsisothermen (Vertrauensbereich 95%) mit der BET-Anpassung nach Gleichung (3.48) und den ermittelten Koeffizienten der Tabelle 4.4

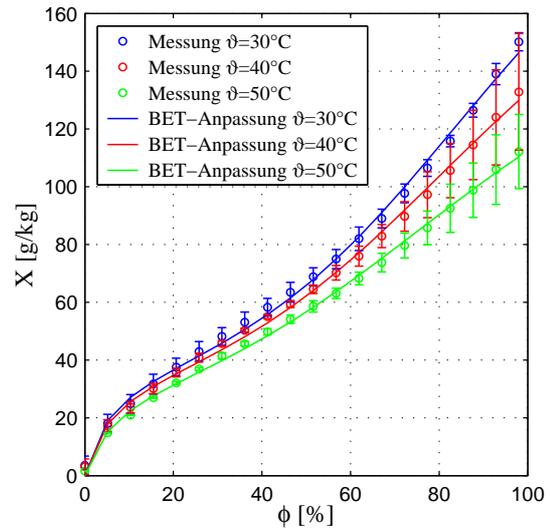


Abbildung 4.8: Vergleich der gemessenen Desorptionsisothermen (Vertrauensbereich 95%) mit der BET-Anpassung nach Gleichung (3.48) und den ermittelten Koeffizienten der Tabelle 4.4

Für die Validierung des aufgestellten Modells wurde das Adsorptionsverhalten durch ein Feld von BET-Isothermen beschrieben. Die notwendigen Parameter N , X_1 und c wurden mit Hilfe der Gaussmethode zur Bestimmung der minimalen Fehlerquadratsumme der Gleichung (3.48) ermittelt. Eine genaue Beschreibung des verwendeten Verfahrens gibt Dennis (1977). Eine vergleichende Darstellung dieser Parameteranpassung mit den Versuchsdaten ist in den Abbildungen 4.7 und 4.8 wiedergegeben. Während das Desorptionsverhalten über den gesamten Bereich der relativen Feuchte für alle Temperaturen befriedigend mit dem BET-Isothermenmodell beschrieben werden kann, gibt es bei der Adsorption im Bereich von $\phi = 25 - 55\%$ eine leichte Abweichung.

4.3.1.2 Trocknungsverhalten

Neben dem Adsorptionsverhalten ist die experimentelle Bestimmung der Trocknungskurve des Versuchsgutes notwendig. Das Adsorptionsverhalten ist ein Maß für den Gleichgewichtszustand zwischen der Gas- und Feststoffphase, während die Trocknungskurve Auskunft über die intra-

partikulären Widerstände während des Trocknungsvorganges gibt. Diese Widerstände führen zu einer Verringerung der Kinetik und vermindern somit den Stoffübergang.

Die Trocknungskurven wurden an der Adsorptionswaage für jeweils drei Temperaturen ($30^{\circ}C$, $40^{\circ}C$ und $50^{\circ}C$) bei einer Eintrittsbeladung des Gases in den Messraum von $Y_{in} = 0[g/kg]$ ermittelt. Hierzu wurde wiederum eine Probe nicht-agglomerierter Zellulose verwendet. Die Trocknungskinetik der Agglomerate wurde nicht bestimmt. Die Abbildungen 4.9 bis 4.11 zeigen die Trocknungsverläufe der Produktproben. Die kritische Partikelfeuchte wurde aus jedem dieser Versuche zu $X_c = 600g/kg$ bestimmt. In der Abbildung 4.12 sind für alle drei Temperaturen die normierten Trocknungskurven dargestellt, wobei sich die normierte Partikelbeladung η aus

$$\eta = \frac{X - X_{hyg}}{X_c - X_{hyg}} \quad (4.2)$$

mit $X_{hyg} = 0$ ergibt.

4.3.1.3 Binder

Als Bindemittel wurde für die Agglomerationsversuche Pharmacoat 606 der Firma SHINETSU eingesetzt. Es handelt sich hierbei um eine in der Pharmatechnik häufig zur Granulierung verwendete Hydroxypropyl-Methylzellulose.

Zur Agglomeration von Partikeln ist eine Lösungskonzentration zwischen $5 - 12.5Ma - \%$ sinnvoll. Bei zu hohen Konzentrationen steigt die Viskosität der Lösung stark an, sodass die Eindüsung erschwert wird und eine zu schnelle Trocknung der Sprühtropfen stattfindet. Dieser Fall tritt etwa ab einer Konzentration von $15Ma - \%$ ein. Bei einer Binderkonzentration von $12.5Ma - \%$ und einer Temperatur von $20^{\circ}C$ beträgt die Viskosität des Binders $800 - 900mPa \cdot s$. Sinkt die Konzentration auf $10Ma - \%$ verringert sich die Viskosität auf etwa $350mPa \cdot s$.

4.3.2 Versuchsdurchführung

Jeder Versuch wurde zweifach durchgeführt. Um eine möglichst hohe Vergleichbarkeit zwischen den Versuchen herzustellen, wurde ein fester zeitlicher Ablauf erarbeitet. Diese Abfolge gestaltete sich folgendermaßen:

- Aufheizen der Anlage bis zum Erreichen eines thermisch stationären Zustandes: Zu Versuchsbeginn wurde die Apparatur auf eine konstante Temperatur vorgewärmt, sodass thermische Einflüsse der Wand weitgehend ausgeschlossen werden konnten. Die Anlage wurde in dieser Aufheizphase unter den entsprechenden Versuchsbedingungen (Volumenstrom, Temperatur) ohne Produkt betrieben. Eine konstante Gasaustrittstemperatur wurde als Maß für das Erreichen eines stationären Zustandes genutzt.
- Vorbereitung der Bettmasse: Die Gewinnung der Nullfüllung von MCC erfolgte durch Siebung, wobei die Siebfraktion $63 - 125\mu m$ als Vorlage genutzt wurde. Aus der gewonnenen Fraktion wurde eine Nullfüllungsmasse von $M_{bed} = 200[g]$ abgewogen.
- Vorbereitung der Eindüsungsanlage: Um Verstopfungen der Düse während der Vortrocknungsphase zu vermeiden, wurde die Düse vor Versuchsbeginn vollständig gesäubert und getrocknet. Somit konnte vermieden werden, dass einerseits vor der Eindüsung Partikel am Düsenkopf anhafteten und andererseits Binder durch die hohen Gastemperaturen in der Düse antrocknete. Um dennoch den Zeitpunkt des Beginns der Eindüsung

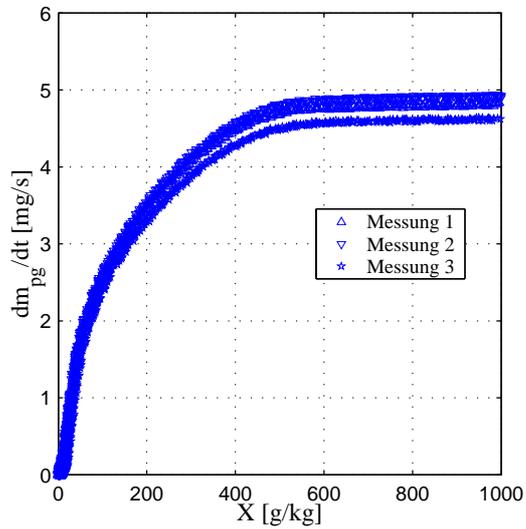


Abbildung 4.9: Messung des Trocknungsverlaufes von MCC bei $\vartheta_g = 30^\circ C$

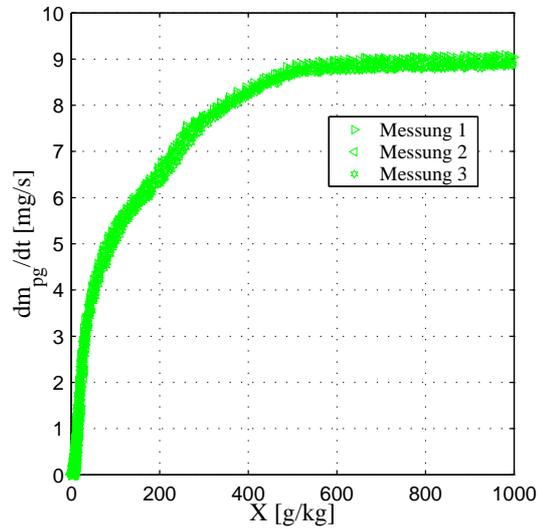


Abbildung 4.10: Messung des Trocknungsverlaufes von MCC bei $\vartheta_g = 40^\circ C$

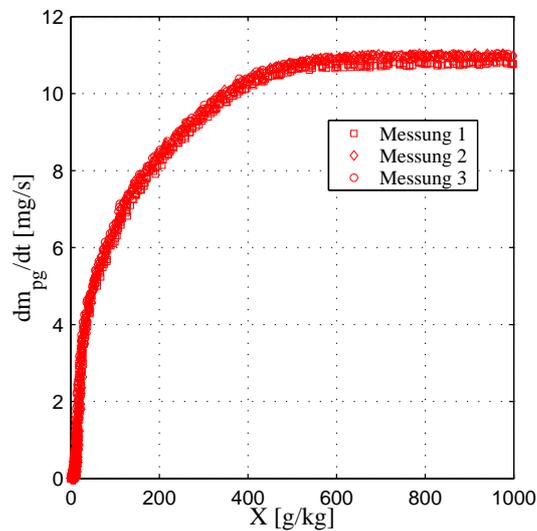


Abbildung 4.11: Messung des Trocknungsverlaufes von MCC bei $\vartheta_g = 50^\circ C$

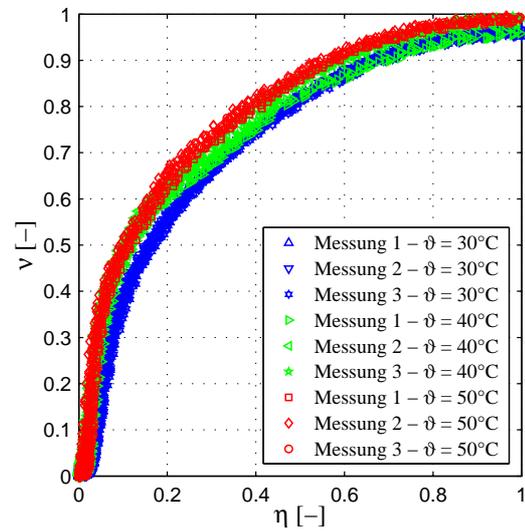


Abbildung 4.12: Normierte Trocknungskurven mit kritischer Partikelfeuchte $X_c = 600g/kg$ für alle Messungen

genau festzulegen, erfolgte eine Messung der Totzeit zwischen Inbetriebnahme der Pumpe und Eindüsungsbeginn. Dementsprechend wurde die Schlauchpumpe bereits während der Vortrocknung in Betrieb genommen, um exakt nach einer Zeitdauer von $4min$ mit der Eindüsung beginnen zu können.

- Start und Durchführung des Agglomerationsprozesses: Zu Beginn des eigentlichen Versuches wurde die Anlage kurzzeitig außer Betrieb genommen, um die Wirbelkammer zur Befüllung mit dem Bettmaterial kurzzeitig öffnen zu können. Nach Schließen der Wirbelkammer wurde die Schicht in Fluidisation versetzt. Zunächst erfolgte für eine Zeitdauer von $4min$ eine Vortrocknung des Bettmaterials. Dieser Vorgang war gleichzeitig mit einem Aufheizen der Partikel verbunden. Am Ende der Vortrocknung begann die Eindüsung, deren Dauer dabei stets so gewählt wurde, dass ein fester Massenanteil von $10Ma - \%$ des Binders auf das Versuchsgut gedüst wurde. Die Probennahme erfolgte im Intervall von $2min$. Der Wassergehalt der Probe wurde sofort bestimmt. Nach dem Ende der Eindüsung trocknete das Schichtmaterial für weitere $4min$ nach. Anschließend wurde die Anlage ausgeschaltet, das Bettmaterial entnommen und die Ausbeute bestimmt.

4.3.3 Versuchsparameter

Um den Einfluss verschiedener Prozessbedingungen auf das Agglomerationsergebnis zu untersuchen, wurden drei wesentliche Prozessparameter systematisch variiert. Für diese Parameter

- Luftmassenstrom der Fluidisation (2 Variationen),
- Bindemittelkonzentration der Lösung (2 Variationen) sowie
- Lufteintrittstemperatur (3 Variationen)

ergab sich ein Feld von 11 möglichen Versuchen. Jeder Versuch wurde zur Vermeidung von Fehlern zweifach durchgeführt. Eine Auflistung der Versuche ist in der Tabelle 4.5 gegeben. Auf Grund thermodynamischer Limitierungen konnte für den geringen Luftmassenstrom von $\dot{M}_g = 0.014kg/s$ kein Versuch bei einer Eintrittstemperatur von $\vartheta_{g,in} = 50^\circ C$ durchgeführt werden. Somit reduzierte sich die Zahl der Punkte im Versuchsfeld auf 10. Die Bettmasse betrug zu Beginn jedes Versuches $m_{bed} = 0.2kg$

Der Eindüsungsdruck wurde bei den Untersuchungen auf $p = 1.2bar$ bei einer Luftklappenstellung von 1.5 gesetzt.

4.4 Versuchsergebnisse

Zur Beschreibung der Versuchsergebnisse sind in den Abbildungen 4.13 bis 4.26 für den Versuch 220404A die Messwerte beispielhaft dargestellt. Alle anderen Versuche sind im Anhang dokumentiert. Der Verlauf der Gasaustrittstemperatur in der Abbildung 4.13 zeigt drei charakteristische Abschnitte. Zunächst kommt es bis $t = 240s$ zu einer ständigen Erhöhung der Gasaustrittstemperatur. Dieser Anstieg kennzeichnet den Vortrocknungsprozess. In jener Versuchsphase wird das Bettmaterial getrocknet und gleichzeitig erwärmt. Das Trocknungsverhalten ist auch deutlich am Verlauf der Austrittsbeladung in Abbildung 4.14 zu erkennen. Kurz nach der Befüllung steigt die Beladung kurzzeitig sehr stark und fällt dann wieder auf den Eintrittswert ab. Dieser Zeitpunkt verdeutlicht das Ende der Trocknung, ab welchem sich die Partikelfeuchte

Tabelle 4.5: Auflistung der durchgeführten Versuche mit variierenden Parametern

Versuch	$\dot{M}_g[kg/s]$	Binder [$Ma - \%$]	Proben	$\vartheta_{g,in}[^\circ C]$
220404A	0.02	12.5	9	60
220404B	0.02	12.5	9	60
220404C	0.02	12.5	9	50
220404D	0.02	12.5	9	50
260404A	0.02	12.5	9	55
280404A	0.02	12.5	9	55
280404B	0.02	10	11	50
280404C	0.02	10	11	50
300404A	0.02	10	11	55
300404B	0.02	10	11	55
060504A	0.02	10	11	60
060504B	0.02	10	11	60
180504A	0.014	12.5	9	60
180504B	0.014	12.5	9	60
190504A	0.014	12.5	9	55
190504B	0.014	12.5	9	55
260504A	0.014	10	11	60
260504B	0.014	10	11	60
270504A	0.014	10	11	55
270504B	0.014	10	11	55

nicht mehr ändert. Die Eindüsung der Binderlösung setzt zum Zeitpunkt $t = 240s$ ein, der mit einem rapidem Abfall der Gasaustrittstemperatur verbunden ist. Gleichzeitig steigt die Luftaustrittsfeuchte auf einen deutlich höheren Wert an und ist nach einer kurzen Weile konstant. Dieser konstante Wert verdeutlicht, dass sich der Flüssigkeitsinhalt des Bettmaterials nur unwesentlich ändert. Der Betrag der eingedüsten und durch Trocknung mit dem Gas ausgetragenen Flüssigkeitsmenge ist identisch. Die Messung der Partikelfeuchte, welche in der Abbildung 4.16 demonstriert ist, bestätigt diese Beobachtung mit einem zeitlich annähernd konstanten Wert. Die Gasaustrittstemperatur fällt während der gesamten Eindüsungsdauer ab, wobei jedoch diese Änderungen mit zunehmender Prozesszeit immer geringer werden. Dieser temporäre Verlauf ist durch die thermische Kapazität der Wand bedingt, welche im Wärmeaustausch mit den Partikeln und dem Gas steht. Nach dem Ende der Eindüsung nach $t = 1340s$ beginnt die Nach-trocknung. Diese ist wiederum mit einem Abfall der Austrittsgasbeladung verbunden, während die Gastemperatur ansteigt. Eine Kontrolle der Messung von Ein- und Austrittsbeladungen sowie des Gasmassenstroms erfolgte während der Eindüsung durch den Vergleich mit der zeitlichen Massenabnahme des Vorlagebehälters. Durch eine einfache Wassermassenbilanz zwischen Apparateeintritt und -austritt

$$\dot{M}_{np} = \dot{M}_g(Y_{out} - Y_{in}) \quad (4.3)$$

wurde die mit dem Fluidisierungsluftstrom ausgetragene Wassermenge erfasst. Im Bereich einer stationären Luftaustrittsfeuchte muss der so ermittelte Wert identisch mit der Eindüsungsrate sein. In der Abbildung 4.15 ist dieser Vergleich aufgezeigt. Wie der Abbildung zu entnehmen ist, weisen die einzelnen Messpunkte, welche durch Wägung des Vorlagebehälters ermittelt wurden, eine sehr gute Übereinstimmung mit der permanenten Gasmengen- und Gasfeuchtemessung auf.

Neben der Erfassung der trockenungsrelevanten Größen Temperatur und Beladung erfolgte in zeitlich konstanten Intervallen eine Untersuchung der Partikelgrößenverteilungen. Die Proben wurden mit dem Camsizer und der im Abschnitt 4.2 beschriebenen Auswertungsmethode x_{area} analysiert. Aufgrund der geringen Durchmesser der Primärpartikel der nicht-agglomerierten Zellulose konnte keine reproduzierbare Bestimmung der Partikelgrößenverteilung mit dem Camsizer durchgeführt werden. Somit erfolgte nur die Auswertung von Agglomeraten, welche als Probe aus der Wirbelschicht entnommenen wurden. Zur Verdeutlichung des Partikelwachstums sind in den Abbildungen 4.17 bis 4.19 zunächst mikroskopischen Aufnahmen der Partikel dargestellt. Die Vergrößerung der Agglomerate ist in diesen Abbildungen deutlich zu erkennen. Des Weiteren wurden mit Hilfe der Rasterelektronenmikroskopie (REM) Aufnahmen der Proben gemacht, die in den Abbildungen 4.20 bis 4.25 aufgezeigt sind. Hierfür kam ein REM vom Typ XL30 ESEM-FEG/FEI zum Einsatz. Zunächst ist deutlich zu erkennen, dass die erzielten Agglomerate deutlich von der Kugelform abweichen. Insbesondere in den Abbildungen 4.20 und 4.24 ist bei einer 50-fachen Vergrößerung die amorphe Struktur sehr gut zu erkennen. Die weitere Vergrößerung (1000-fach) verdeutlicht die unregelmäßige amorphe Struktur des Agglomerates. Die sich zwischen den Primärpartikeln ausbildenden Feststoffbrücken sind jedoch nicht klar erkennbar. Das Ergebnis des zeitlichen Verlaufs der normierten Anzahldichteverteilung² ist in der Abbildung 4.26 wiedergegeben. Deutlich ist zu erkennen, dass mit fortschreitender Prozessdauer die Verteilungen breiter werden. Dies ist auch am Abfall des Maximums von q_0 erkennbar. Während die erste Probe zum Zeitpunkt $t = 360s$ noch einen maximalen Wert von 12 aufweist, zeigt die letzte Probe bei $t = 1320s$ nur noch einen Wert von etwa 5. Durch die logarithmische

²Die Definition der normierten Anzahldichteverteilung ist im Anhang E.1 dargestellt.

Darstellung wird auch ein Bereich $d_p = [10^{-2}, 3 \cdot 10^{-2}]mm$ auf der linken Seite der Verteilung sichtbar, in welchem ein erheblicher Feinanteil vorhanden ist. Die Partikel innerhalb dieses Bereiches können durch Bruch und Abrieb gebildet werden. Mit steigender Prozesszeit nimmt der Anteil dieser Partikel leicht zu.

4.4.1 Messunsicherheiten

Jede Messung einer physikalischen Größe unterliegt einem Messfehler. Insbesondere die Untersuchung des dynamischen Verhaltens eines dispersen Feststoffsystems gestaltet sich auf Grund der Probleme bei der Gewinnung repräsentativer Proben und deren korrekter Analyse als schwierig. Bei den durchgeführten experimentellen Untersuchungen wurde über einen Probenahmestutzen ein kleiner Teil des Bettmaterials abgezogen, um die Partikelverteilung zu analysieren. Auf Grund der im Verhältnis zur Bettmasse sehr geringen Probenmasse musste in jedem Fall mit erheblichen Messunsicherheiten gerechnet werden. So zeigt die Auswertung der normierten Verteilungsdichten in der Abbildung 4.26, dass kein monotonen Verhalten bezüglich der zeitlichen Lageänderung und der Entwicklung des Maximalwertes der q_0 -Verteilung ermittelt wurde. Die vergleichende Betrachtung der Messungen zum Zeitpunkt $t = 1080s$ und $t = 1200s$ verdeutlicht, dass sich der Maximalwert mit zunehmender Versuchsdauer wieder nach links verschiebt und die Verteilung breiter wird. Bei einem solchen Versuchsergebnis muss mit großer Sicherheit von einer fehlerhaften Probenahme ausgegangen werden. Qualitativ konnte jedoch die zeitliche Veränderung der Partikelverteilung gut erfasst werden.

4.4.2 Vergleich Messung Modell

4.4.2.1 Agglomerationsmodell

Mit Hilfe des im Abschnitt 2.6 vorgeschlagenen Modells wird im Folgenden für die gemessene zeitliche Veränderung der Partikelgrößenverteilungen die Agglomerationskinetik ermittelt. Um die Bildung neuer Partikel im Feinstbereich und die damit verbundene bimodale Entwicklung der Verteilung erfassen zu können, wird die Keimbildung bis zu einer Partikelgröße von $d_{nuc} = 0.035mm$ berücksichtigt. Die Bestimmung dieses Wertes erfolgt aus den Messergebnissen aller Partikelgrößenverteilungen.

Die Keimbildung selbst kann durch zwei Prozesse hervorgerufen werden. Durch die Sprühtrocknung der eingedüsten Lösung können sehr feine Partikel entstehen. Da jedoch die Flüssigkeit nur einen Feststoffanteil von maximal $12.5Ma - \%$ aufweist, ist diese Art der Eigenkeimbildung auszuschließen. Wahrscheinlicher ist, dass es durch die mechanische Belastung zu einem Abrieb der Partikel kommt. Demzufolge muss der Eigenkeimanteil bei der Massenbilanzierung der Partikel berücksichtigt werden. Tan u. a. (2004) schlagen hierfür eine negative Wachstumsrate für die Partikel vor. Im Rahmen der Validierungsrechnungen dieser Arbeit wird jedoch dieser Wachstumsterm vernachlässigt. Grund hierfür ist der sehr kleine Anteil der Eigenkeime an der Gesamtmasse der Partikel. Um dies zu verdeutlichen, ist in der Abbildung 4.27 die aus der Anzahldichte q_0 berechnete Massenverteilungsdichte q_3 dargestellt. Wie dem Diagramm entnommen werden kann, ist der Beitrag der Eigenkeime an der Gesamtmasse so klein, dass er in dieser Darstellungsform nicht mehr sichtbar ist. Lediglich in der Darstellung der normierten Anzahlverteilung q_0 (Abbildung 4.26) ist die Eigenkeimbildung zu erkennen.

Zur Berechnung der kinetischen Parameter müssen die Informationen aus den experimentellen Untersuchungen in Form absoluter Partikelanzahlen N_i und dN_i/dt aufbereitet werden.

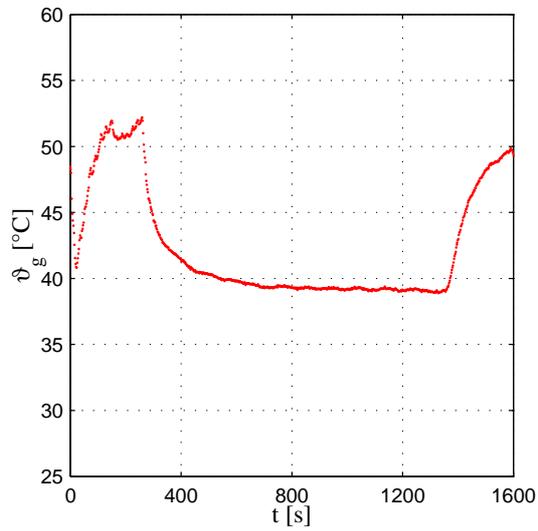


Abbildung 4.13: Gemessene Gasaustrittstemperatur Versuch: 220404A

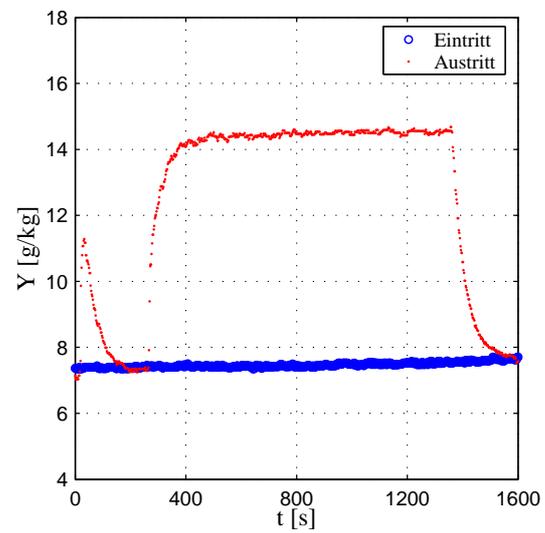


Abbildung 4.14: Gemessene Gasbeladung Versuch: 220404A

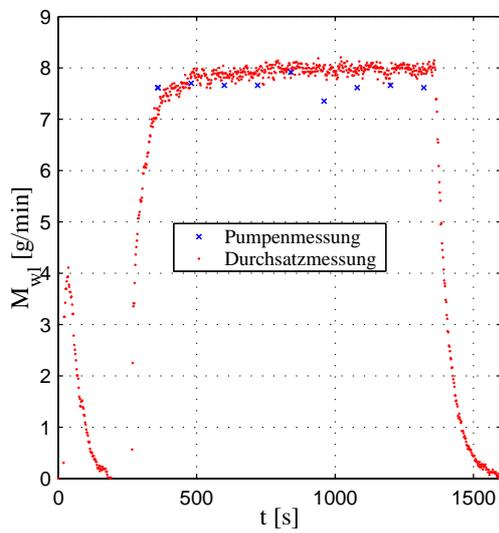


Abbildung 4.15: Gemessene Wassereindüsungsrates Versuch: 220404A

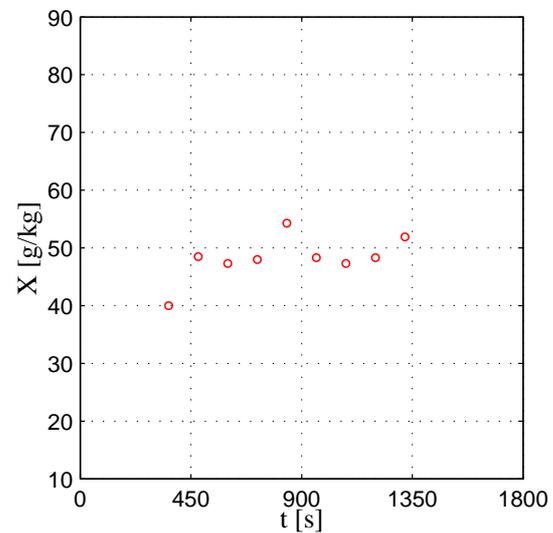


Abbildung 4.16: Gemessene Partikelbeladung Versuch: 220404A

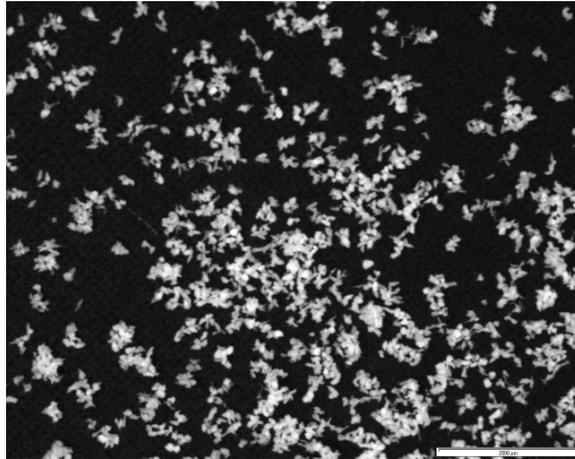


Abbildung 4.17: Probe 1 des Versuchs 220404A nach $t = 360s$ (10-fache Vergrößerung, Messbalken entspricht $2000\mu m$)

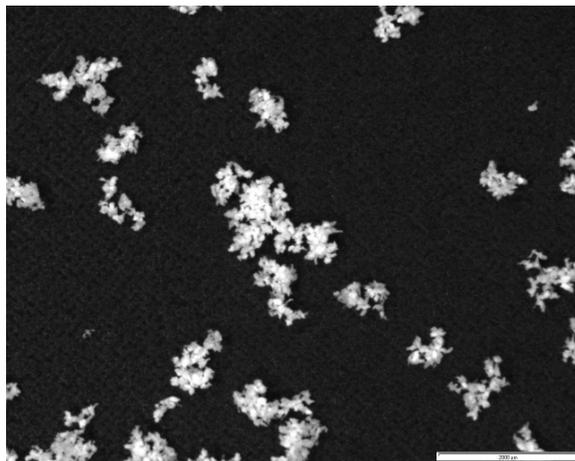


Abbildung 4.18: Probe 6 des Versuchs 220404A nach $t = 960s$ (10-fache Vergrößerung, Messbalken entspricht $2000\mu m$)

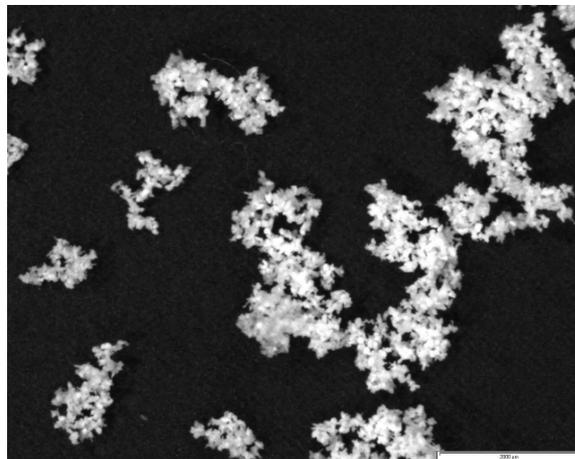


Abbildung 4.19: Probe 9 des Versuchs 220404A nach $t = 1320s$ (10-fache Vergrößerung, Messbalken entspricht $2000\mu m$)

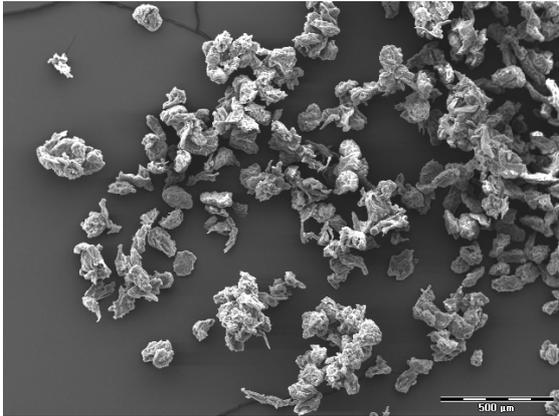


Abbildung 4.20: Probe 1 des Versuchs 220404A nach $t = 360s$ (50-fache Vergrößerung, Messbalken entspricht $500\mu m$)

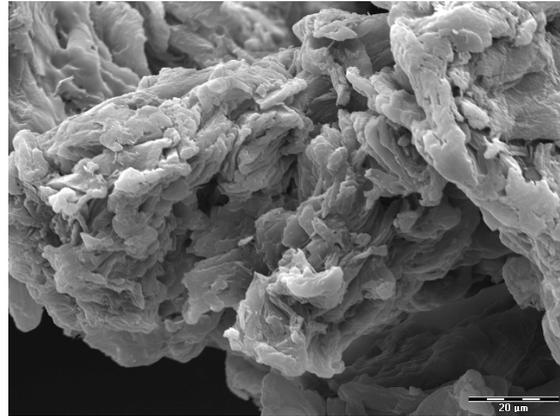


Abbildung 4.21: Probe 1 des Versuchs 220404A nach $t = 360s$ (1000-fache Vergrößerung, Messbalken entspricht $20\mu m$)

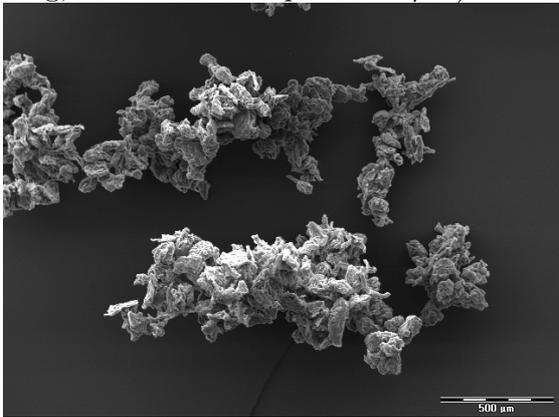


Abbildung 4.22: Probe 6 des Versuchs 220404A nach $t = 960s$ (50-fache Vergrößerung, Messbalken entspricht $500\mu m$)

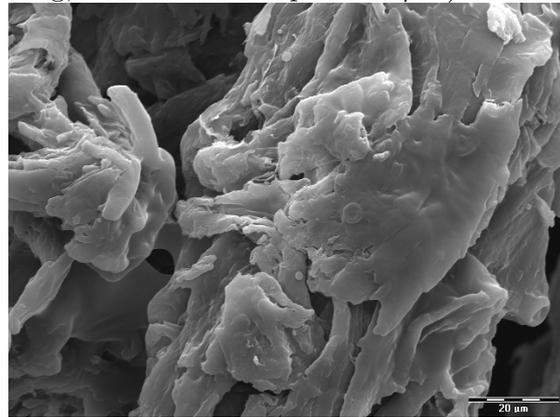


Abbildung 4.23: Probe 6 des Versuchs 220404A nach $t = 960s$ (1000-fache Vergrößerung, Messbalken entspricht $20\mu m$)

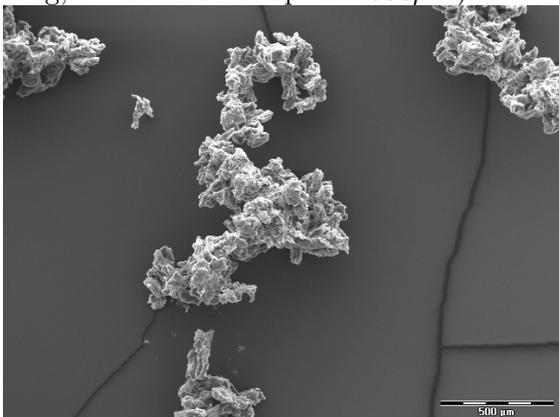


Abbildung 4.24: Probe 9 des Versuchs 220404A nach $t = 1320s$ (50-fache Vergrößerung, Messbalken entspricht $500\mu m$)

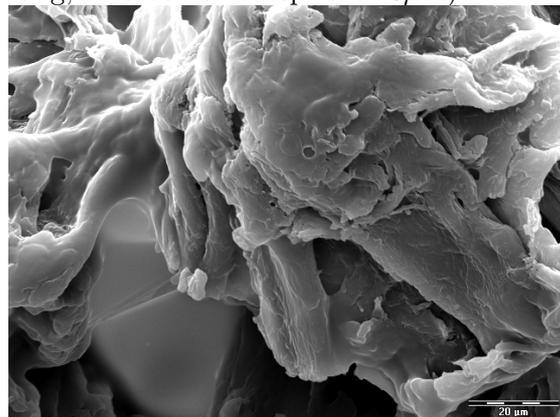
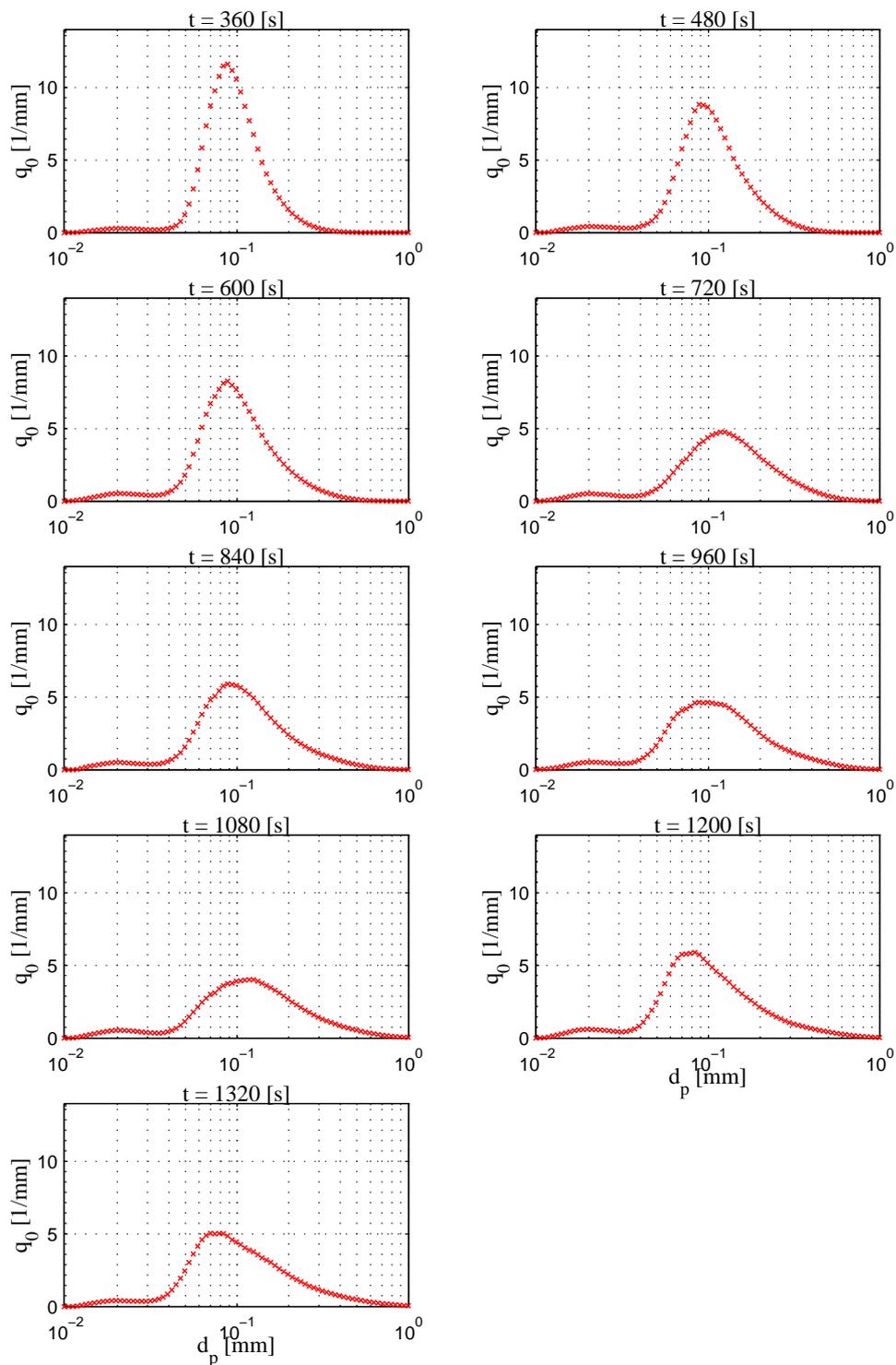


Abbildung 4.25: Probe 9 des Versuchs 220404A nach $t = 1320s$ (1000-fache Vergrößerung, Messbalken entspricht $20\mu m$)

Abbildung 4.26: Gemessene Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 220404A

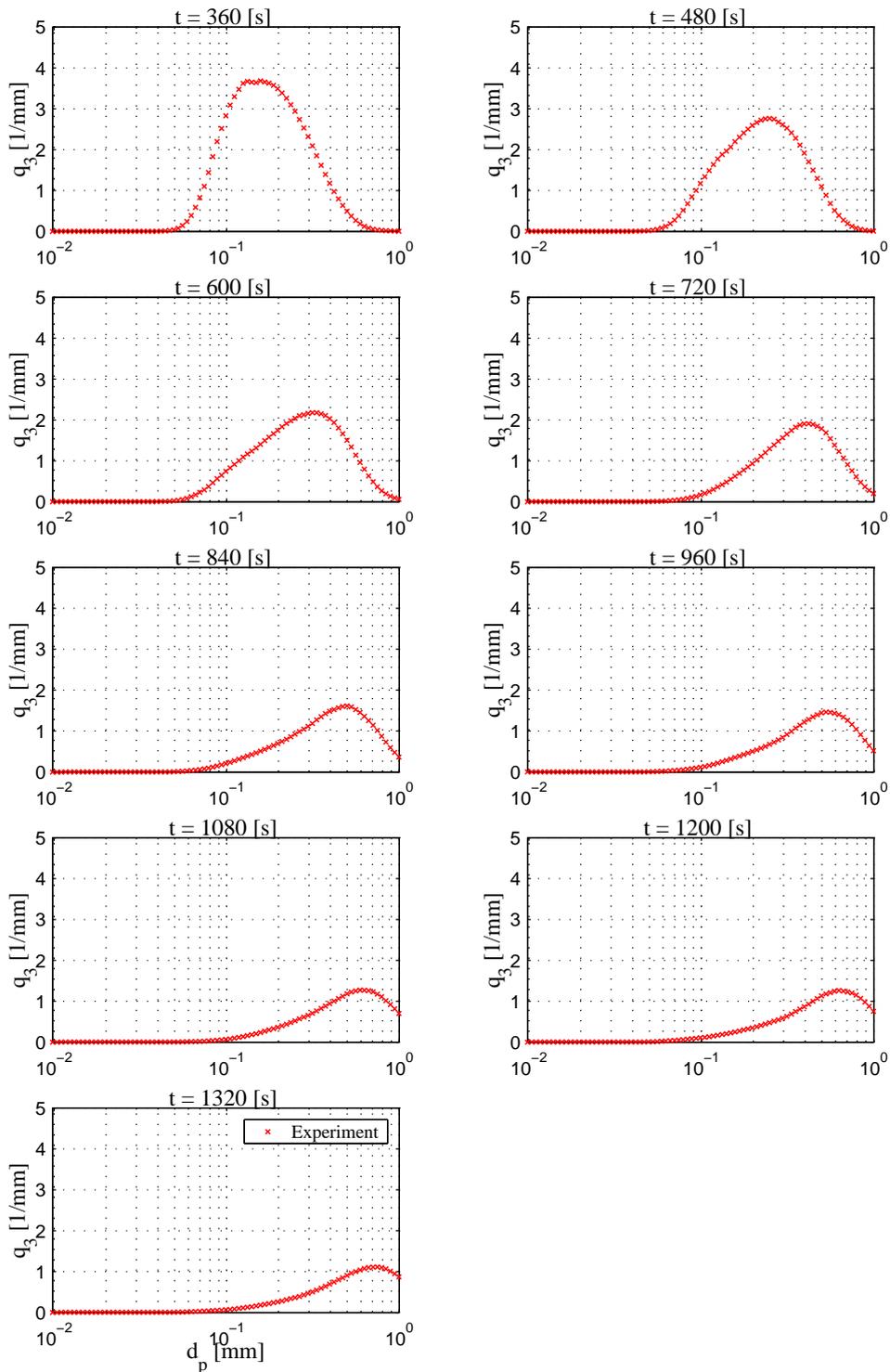


Abbildung 4.27: Berechnete Massendichteverteilung q_3 (berechnet aus gemessener Anzahldichteverteilung q_0) - Versuch 220404A

Die Rohdaten aus der Camsizer-Software stehen als Wertepaar $(d_i, q_{0,i})$ der einzelnen Messklassen zur Verfügung. Die normierte Anzahldichteverteilung wird zunächst durch Anwendung der Momentenmethode³ in eine normierte Massendichteverteilung q_3

$$q_{3,i} = d_i^3 \frac{q_{0,i}}{M_{3,0}} \quad (4.4)$$

umgewandelt. Hierbei bezeichnet $M_{3,0}$ das vollständige dritte Moment der q_0 -Verteilung. Der Massenanteil der i -ten Messklasse an der Gesamtmasse M_{bed} ist durch

$$M_i = q_{3,i} \Delta d_i M_{bed} \quad (4.5)$$

gegeben, wobei Δd_i die Breite des Intervalls i repräsentiert. Gefolgt der Annahme, dass die Partikel innerhalb einer Messklasse eine monodisperse Kugelform besitzen, ergibt sich für die Partikelanzahl in i

$$N_i = \frac{6M_i}{\rho_p \pi d_{p,i}^3} \quad (4.6)$$

Zur Berechnung von β_0 muss zunächst anhand der zeitlichen Entwicklung der Partikelgrößenverteilung eine geeignete Struktur des Kerns $\beta(u, v) = \beta_0 \beta(u, v)$ gewählt werden. Da für möglichst alle Versuche der gleiche Kern zur Anwendung kommen soll, wird dessen Optimierung mit nur einem Versuchsdatensatz durchgeführt. Hierzu wird der Versuch 220404D ausgewählt, denn die zeitliche Entwicklung der Partikelverteilung im Sinne eines fallenden Maximalwertes und einer Verbreiterung von q_0 ist nahezu monoton. Zur Anpassung an die Messwerte besitzt der Kern entsprechend der Gleichung (3.36) zwei Parameter a und b . Für $a = b = 0$ erhält man den einfachsten Fall des größenunabhängigen Kerns $\beta(u, v) = \beta_0$, für $a = 1$ und $b = 0$ ergibt sich der Summenkern, für $a = 0$ und $b = -1$ der Produktkern. Durch ein Optimierungsverfahren für die Anpassung dieser Werte kann der relative Fehler RE verringert werden, sodass eine gute Übereinstimmung zwischen den Verteilungen möglich ist. Die Optimierung wird für einen Bereich $a = [0.5, 1.5]$ und $b = [0.01, 1]$ durchgeführt. Für jedes Wertepaar von a und b erfolgt die Berechnung von β_0 mit Hilfe der Gleichungen (2.112) bis (2.116). Die Bestimmung des kinetischen Parameters β_0 aus den einzelnen Proben liefert keinen zeitlich konstanten Wert. Ziel ist jedoch, einen konstanten Parameter für einen einzelnen Versuch zu ermitteln. Aus diesem Grund wird aus den Ergebnissen jedes Versuches der arithmetische Mittelwert von β_0 gebildet. Mit den Werten a , b und β_0 kann dann die Berechnung der Entwicklung der Partikelanzahlverteilung vorgenommen werden, wobei die erste Probe als Anfangsverteilung für die Simulation genutzt wird. Der Vergleich zwischen der simulierten und gemessenen Partikelverteilung erfolgt für jede Probe durch die Berechnung des relativen Fehlers

$$RE(t) = \sum_i \left| \frac{q_{0,i}^{Sim}(t) - q_{0,i}^{Exp}(t)}{\sum_i q_{0,i}^{Sim}(t)} \right| \quad (4.7)$$

Das Ergebnis dieser Anpassung ist in der Tabelle 4.6 aufgeführt. Mit dem ermittelten optimalen Wertepaar a und b lautet der Kern

$$\beta = \beta_0 \frac{(u+v)^{0.71053}}{(u \cdot v)^{0.06211}} \quad (4.8)$$

³Die Herleitung der Momentengleichung ist im Anhang E.2 dargestellt.

Tabelle 4.6: Summe aller relativen Fehler RE für Variation der Parameter a und b (Ausschnitt)

b	a							
	...	0.50000	0.55263	0.60526	0.65789	0.71053	0.76316	...
⋮		⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	
0.01000	...	1.20008	1.05805	1.16372	1.43148	1.77609	2.10232	...
0.06211	...	2.95651	2.22242	1.63936	1.18733	1.01246	1.11710	...
0.11421	...	5.30917	4.45151	3.64124	2.88531	2.23613	1.74806	...
0.16632	...	7.48180	6.68993	5.87665	5.06076	4.27815	3.54944	...
0.21842	...	9.22974	8.56388	7.85300	7.10293	6.33593	5.56254	...
0.27053	...	10.53554	10.00322	9.41674	8.77611	8.09416	7.38618	...
0.32263	...	11.46935	11.05731	10.58903	10.06672	9.49290	8.87726	...
0.37474	...	12.11911	11.81215	11.45081	11.03797	10.57122	10.05586	...
⋮		⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	

Für den beschriebenen kinetischen Ansatz sind die ermittelten Agglomerationskonstanten und die aus der anschließenden Simulation der Partikelverteilung resultierenden Fehler in Tabelle 4.7 aufgeführt. Die aus den experimentellen Daten ermittelten kumulativen Keimbildungsraten $\sum_i B_{0,i}$ sind in der Tabelle 4.8 aufgeführt. Anhand dieser Werte ist zu sehen, dass mit steigender Versuchsdauer die Keimbildung stark abnimmt. Exemplarisch ist die Darstellung der Versuche 060504A, 060504B, 180504A und 180504B in den Abbildungen 4.28 bis 4.31 zu finden, während alle anderen Versuche im Anhang G.1 tabellarisch und im Anhang G.3 in der vergleichenden Darstellung mit den Validierungsrechnungen aufgelistet sind. Wie den Abbildungen 4.28 bis 4.31 zu entnehmen ist, kann der gewählte Kern mit den angepassten Parametern die Entwicklung der Partikelverteilung qualitativ befriedigend wiedergeben. Anhand eines Vergleiches der kumulativen relativen Fehler aus der Tabelle 4.7 ist erkennbar, dass im Versuch 220404D die geringste Abweichung zwischen Experiment und Simulation besteht, da die Parameter des kinetischen Ansatzes für diesen Versuch optimiert wurden. Dennoch wird in jedem Versuch tendenziell Lage und Wert des Maximums der experimentell ermittelten q_0 -Verteilung wiedergegeben.

Der Wert der Agglomerationskonstanten zeigt keine messbare Abhängigkeit von den veränderten Prozessparametern. Dies lässt den Schluss zu, dass innerhalb des untersuchten Bereiches die variierten Randbedingungen keinen großen Einfluss auf das Agglomerationsergebnis haben. Des Weiteren könnten auch Messunsicherheiten und daraus resultierende Fehler bei der Ermittlung der zeitlichen Evolution der Partikelverteilung derart groß sein, dass die untersuchten Abhängigkeiten nicht mehr erkennbar sind. Wie die Abbildungen 4.32 und 4.33 erkennen lassen, ergibt sich insofern eine leichte tendenzielle Abhängigkeit der Agglomerationsrate β_0 , als dass bei einem höheren Bindermassengehalt der Wert für β_0 ebenfalls ansteigt.

Tabelle 4.7: Ermittelte Agglomerationskonstanten β_0 und kumulativer relativer Fehler RE

Versuch	$\beta_0[1/s]$	RE
220404A	$5.39718 \cdot 10^{-4}$	1.63423488
220404B	$7.48228 \cdot 10^{-4}$	1.59908667
220404C	$6.18323 \cdot 10^{-4}$	1.56742693
220404D	$6.30521 \cdot 10^{-4}$	1.01246595
260404A	$9.24410 \cdot 10^{-4}$	2.39543010
280404A	$9.67298 \cdot 10^{-4}$	1.83252078
280404B	$5.58328 \cdot 10^{-4}$	1.82376219
280404C	$6.08343 \cdot 10^{-4}$	1.90440374
300404A	$5.12459 \cdot 10^{-4}$	2.69676001
300404B	$6.87339 \cdot 10^{-4}$	1.65023284
060504A	$5.17408 \cdot 10^{-4}$	1.58931809
060504B	$4.97609 \cdot 10^{-4}$	1.50493595
180504A	$5.86283 \cdot 10^{-4}$	1.63695392
180504B	$4.33246 \cdot 10^{-4}$	1.50545944
190504A	$5.44835 \cdot 10^{-4}$	1.32027994
190504B	$7.79608 \cdot 10^{-4}$	1.52534771
260504A	$4.69930 \cdot 10^{-4}$	1.54482282
260504B	$5.30974 \cdot 10^{-4}$	2.26259447
270504A	$6.56348 \cdot 10^{-4}$	2.70236483
270504B	$5.31191 \cdot 10^{-4}$	2.26822825

Tabelle 4.8: Ermittelte kummulative Keimbildungsrate $\sum_i B_{0,i}$

Versuch	Probenahmezeit [s]											
	120	240	360	480	600	720	840	960	1080	1200	1320	
220404A	2095.05	2373.64	1100.75	401.33	132.59	182.81	69.36	18.58	13.34			
220404B	1225.61	627.44	507.86	305.50	99.39	58.70	20.02	16.20	28.20			
220404C	1091.97	1271.73	570.99	232.62	56.76	98.59	37.79	9.64	2.47			
220404D	1596.11	986.81	552.88	330.79	194.56	5.84	3.37	36.39	3.39			
260404A	1572.48	898.93	762.72	357.80	97.38	47.93	13.84	27.72	0.78			
280404A	2784.60	2134.96	220.10	141.12	3.45	203.18	8.97	41.98	120.74			
280404B	2207.91	1789.50	680.17	486.79	281.36	7.34	154.96	24.70	1.41	1.87	1.88	
280404C	1615.00	1204.32	518.54	320.64	162.42	18.60	23.22	53.11	15.51	0.62	10.89	
300404A	2264.28	489.75	862.76	641.54	140.90	185.27	135.65	0.84	0.29	0.88	5.77	
300404B	1759.96	958.28	888.77	356.22	237.24	86.15	37.59	62.66	14.74	30.43	47.04	
060504A	1540.14	275.96	860.61	734.95	328.81	197.78	184.55	3.78	0.28	1.25	0.64	
060504B	2852.28	844.00	702.13	525.85	81.31	191.15	149.34	121.74	50.61	12.86	11.59	
180504A	507.49	352.14	725.34	173.86	127.02	33.28	5.26	40.32	20.93			
180504B	1390.40	1127.52	604.55	351.21	186.66	0.95	37.86	0.28	0.04			
190504A	1352.61	678.37	337.90	454.22	39.62	102.95	22.09	0.07	0.02			
190504B	948.51	803.89	477.16	261.33	91.28	73.71	59.83	3.11	80.45			
260504A	1643.25	770.69	824.01	417.25	231.32	47.13	43.06	58.08	42.16	25.83	0.00	
260504B	1921.86	961.96	587.39	531.21	263.87	184.94	13.02	78.88	53.84	3.04	56.90	
270504A	615.23	602.17	822.54	367.42	176.13	244.72	43.47	41.33	65.82	2.05	0.10	
270504B	1935.81	966.45	587.39	531.21	263.87	184.94	13.02	78.88	53.84	3.04	56.90	

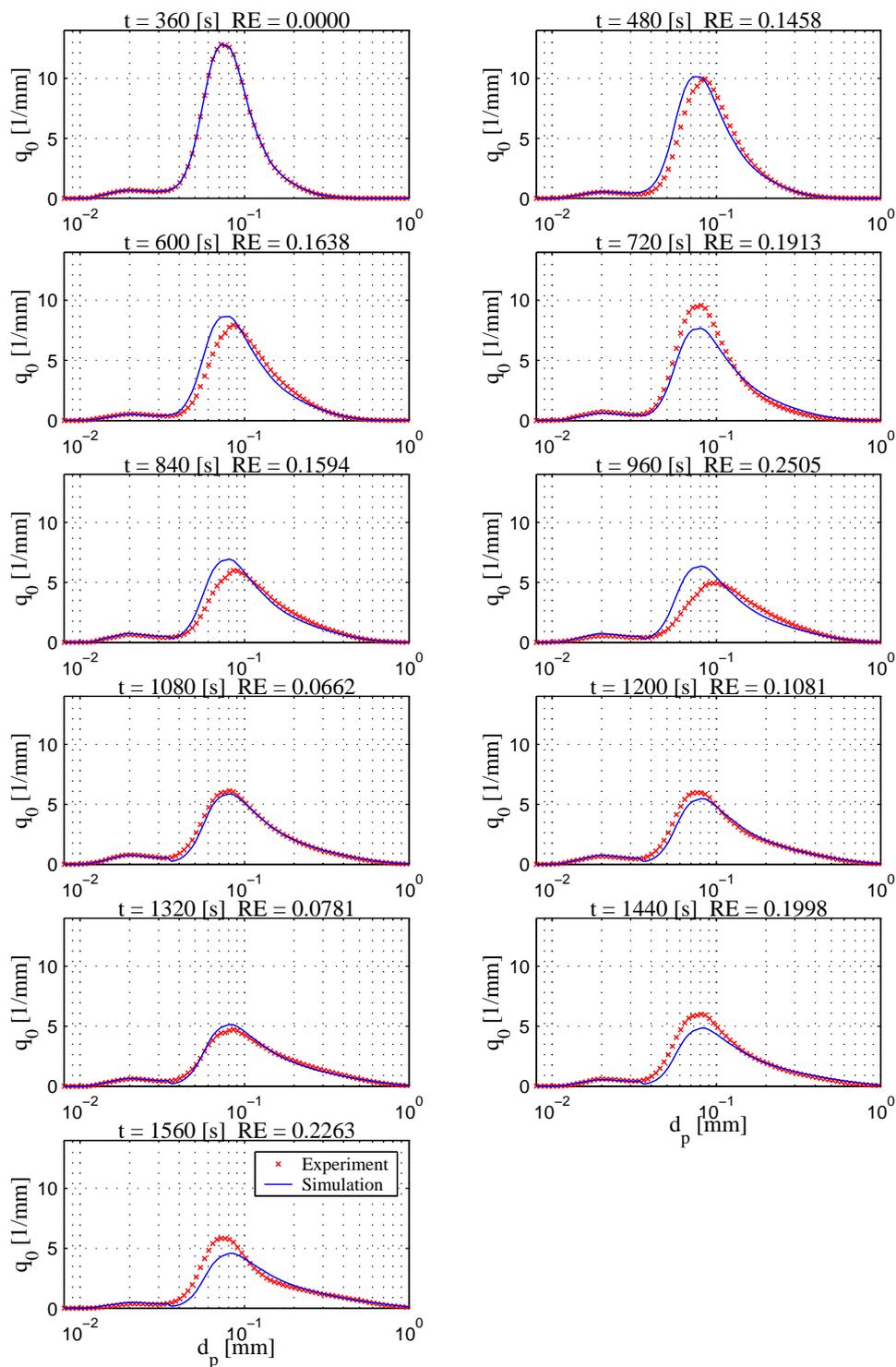


Abbildung 4.28: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 060504A

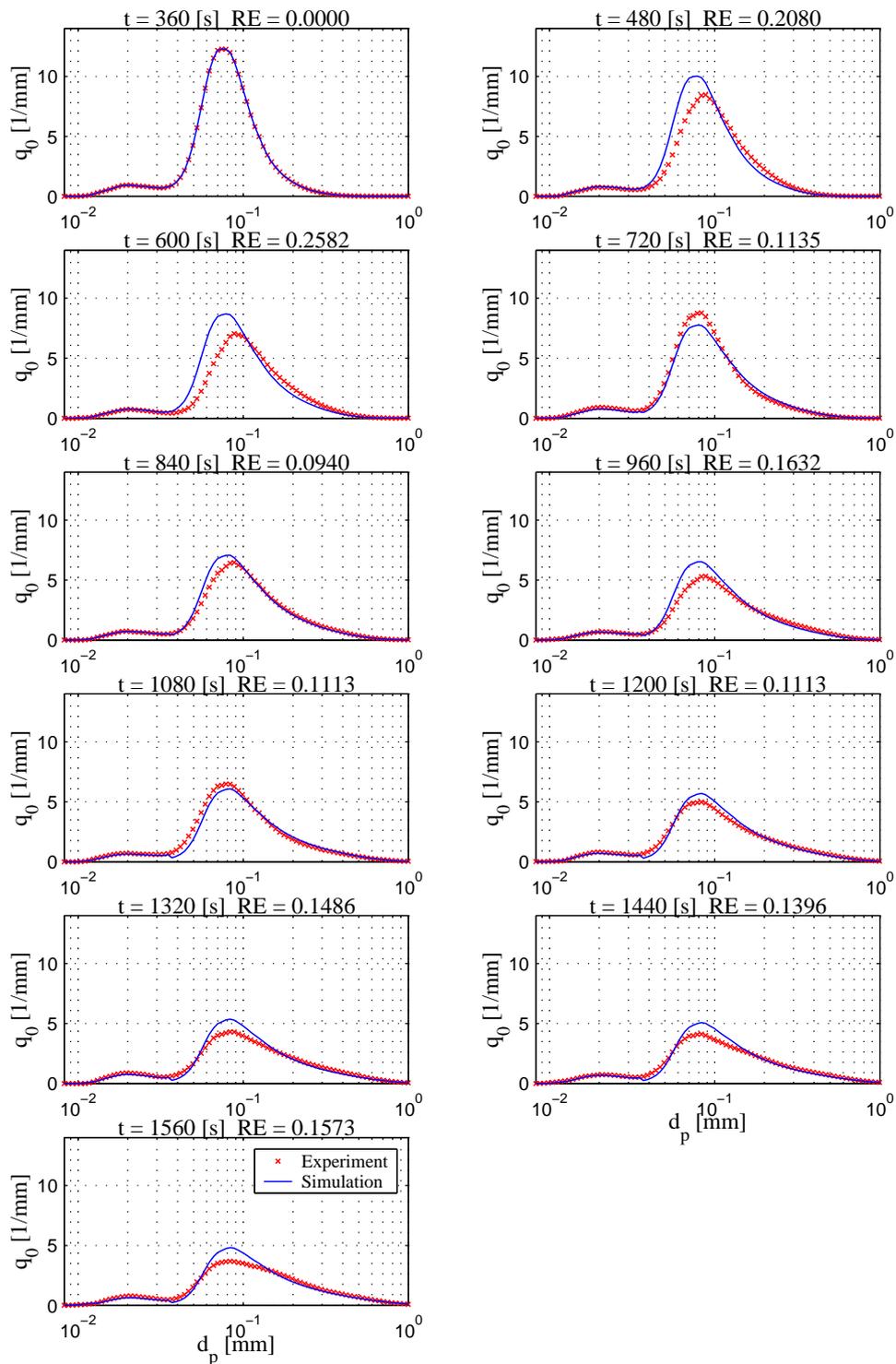


Abbildung 4.29: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 060504B

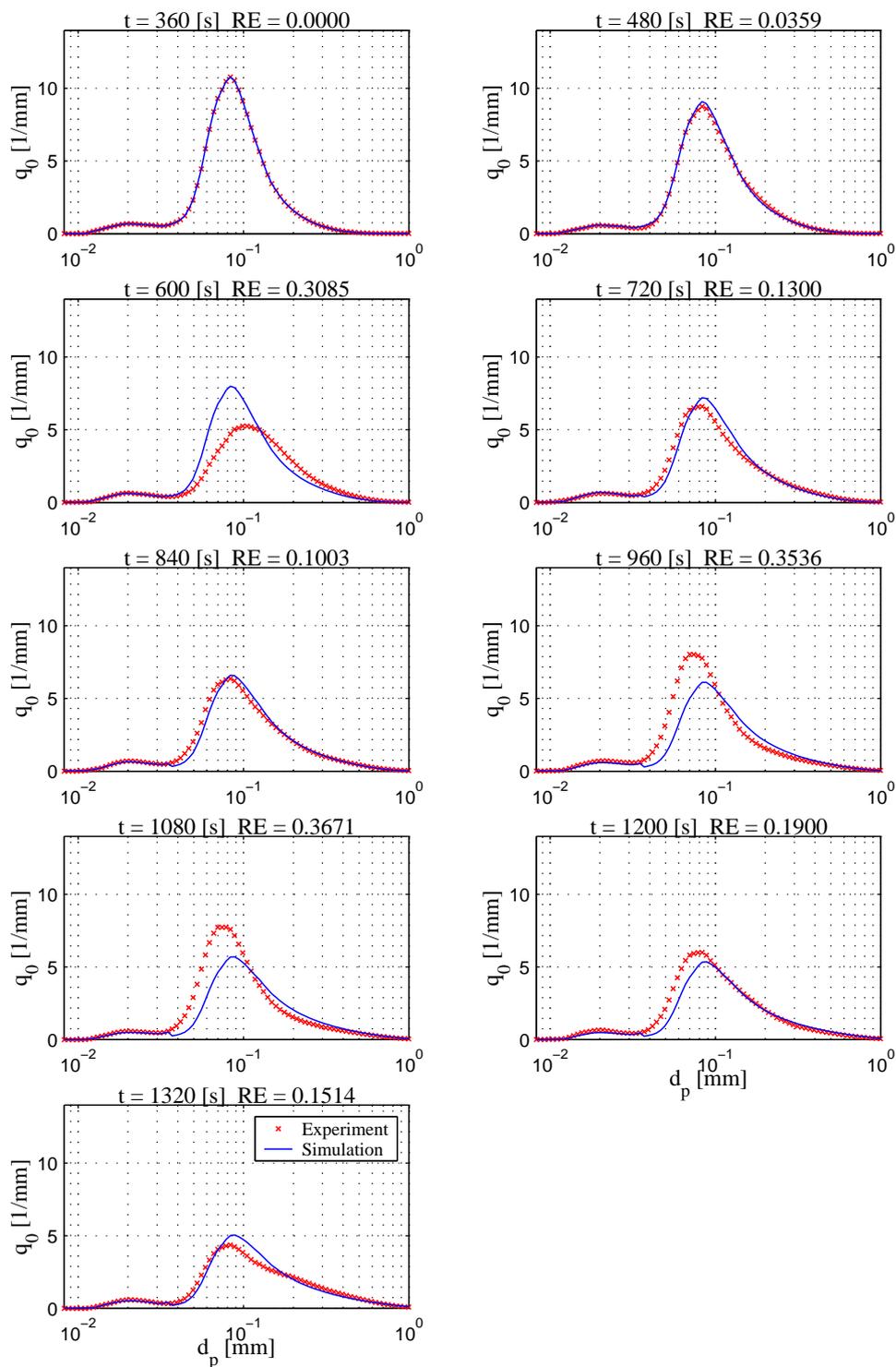


Abbildung 4.30: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 180504A

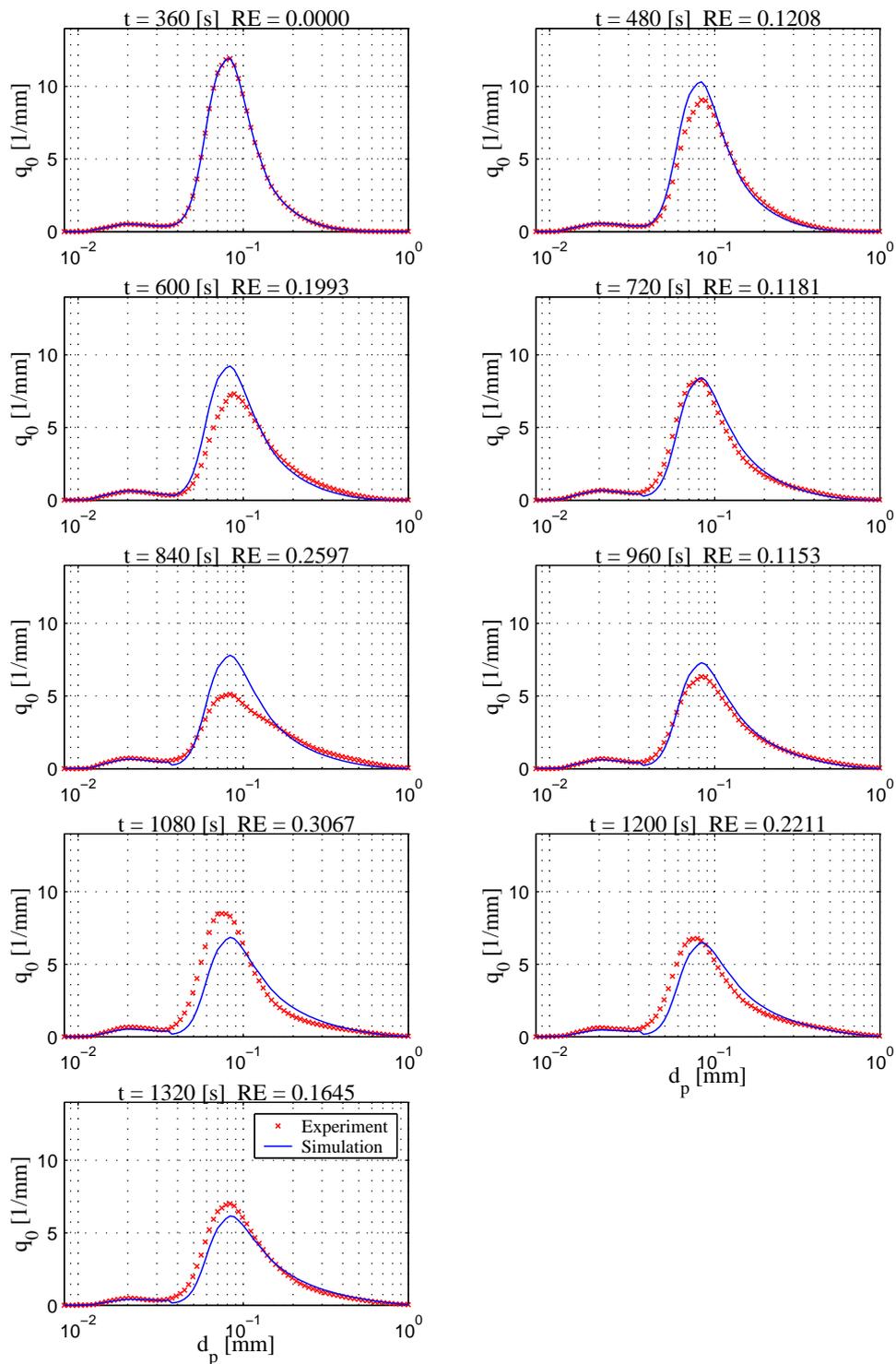


Abbildung 4.31: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 180504B

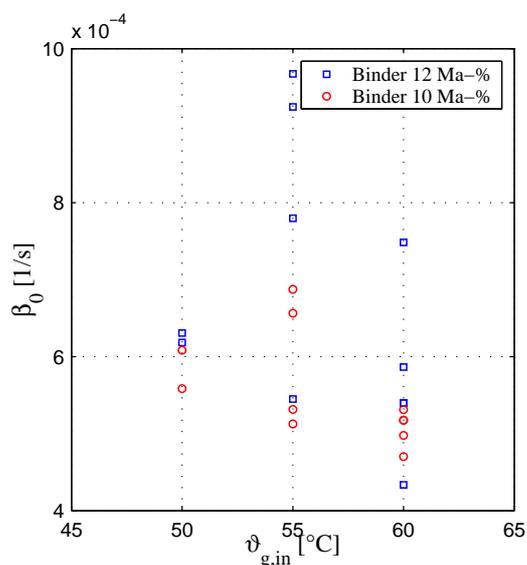


Abbildung 4.32: Vergleich der Agglomerationsraten für die Variation des Bindergehaltes der eingedüsten Lösung

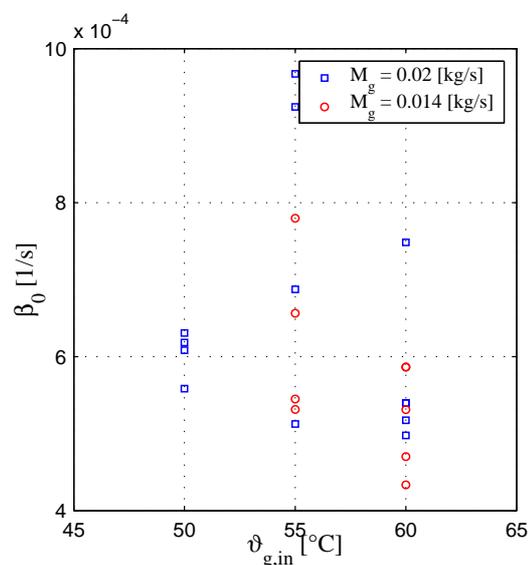


Abbildung 4.33: Vergleich der Agglomerationsraten für die Variation des Massenstroms des Fluidisierungsgases

Tabelle 4.9: Parameter für die Validierung des Wirbelschichtmodells

Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Bettmasse	M_p	0.2	[kg]
Dichte Feststoff	ρ_s	800	[kg/m ³]
Spezifische Wärmekapazität Partikel	c_p	1460	[J/(kg K)]
Kritische Feuchte Partikel	X_c	0.6	[kg/kg]
Hygroskopische Feuchte Partikel	X_{hyg}	0	[kg/kg]
Apparatedurchmesser	d_{bed}	0.13	[m]
Masse der Apparatewand	M_w	5	[kg]
Spezifische Wärmekapazität Wand	c_w	500	[J/(kg K)]
Massenstrom trockenes Gas	\dot{M}_g	variabel	[kg/s]
Eintrittsfeuchte Gas	Y_{in}	variabel	[kg/kg]
Eintrittstemperatur Gas	ϑ_{in}	variabel	[°C]
Eindüsungsmenge Wasser	\dot{M}_n	variabel	[kg/h]
Eindüsungstemperatur	ϑ_n	23	[°C]
Temperatur Umgebung	ϑ_e	23	[°C]
Diskretisierungsparameter Gleichung (2.49)	q	2	[-]

4.4.2.2 Wärme- und Stoffübergangsmodell

Zur Überprüfung des Stoff- und Wärmeübergangsmodells wird der zeitliche Verlauf der experimentell erfassten Messgrößen mit den berechneten Werten des Modells verglichen. Das vollständige Modell umfasst neben der Massen- und Energiebilanz für die Gasphase drei weitere Gleichungen zur Beschreibung der dispersen Phase. Die Simulationsergebnisse im Abschnitt 3.4.6 zeigen, dass eine Betrachtung der Verteilung von Partikelfeuchte und -enthalpie nur bei kleinen NTU -Zahlen nötig ist. Für die durchgeführten Untersuchungen lag der Wert für NTU stets in einer Größenordnung $\gg 20$. Aus diesem Grund wird für die Validierung des Modells lediglich der reduzierte Ansatz entsprechend der Gleichungen (3.52) und (3.53) genutzt. Bei der Berechnung wird mit Hilfe der ermittelten kinetischen Werte (Tabelle 4.7) die Evolution der Partikelverteilung berücksichtigt.

Eine Auflistung der zur Berechnung notwendigen Anlagenparameter ist in der Tabelle 4.9 gegeben. Einige Prozessgrößen sind stets leichten Schwankungen unterworfen. So variiert beispielsweise die Eintrittsbeladung des Fluidisierungsgases oder der trockene Gasmassenstrom geringfügig. Diese Werte werden für jeden Versuch separat angepasst.

Für die Versuche 060504A, 060504B, 180504A und 180504B ist der Vergleich zwischen Messung und Modell in den Abbildungen 4.34 bis 4.45 ebenfalls beispielhaft dargestellt. Aus den zeitlichen Verläufen aller Bilanzgrößen ist zu entnehmen, dass sowohl qualitativ als auch quantitativ eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Werten erzielt wird. Die während der Eindüsungsphase berechnete Gasaustrittstemperatur ist mit den Messwerten praktisch identisch. Während der Trocknung weicht die Berechnung jedoch von den experimentellen Daten ab. Grund hierfür ist die Positionierung des Thermoelements oberhalb der Schicht. Da der Bilanzraum des Modells nur den Wirbelschichtbereich berücksichtigt, die tatsächliche Gasaustrittstemperatur hingegen einige Zentimeter oberhalb der Schicht gemessen wird, kommt es zu einer Temperaturdifferenz. Diese wird besonders in der Trocknungsphase deutlich, bei welcher die Gastemperatur ansteigt, was zu einer Steigerung der Wärmeverluste über die Wand oberhalb der Wirbelschicht führt. Für die Beladung der Partikel werden durch das Modell bis auf wenige Ausnahmen Werte berechnet, die tendenziell oberhalb der gemessenen Feuchten liegen. Diese Abweichung kann mehrere Ursachen haben. Durch die geringe Masse der Partikelprobe können Messunsicherheiten bei der Feuchtebestimmung entstehen. Eine höhere Probemasse sollte vermieden werden, um die Gesamtmasse des Systems konstant zu halten. Für die Modellierung wird weiterhin davon ausgegangen, dass die eingedüste Flüssigkeit gleichmäßig auf alle Partikel verdunstet wird. In der Versuchsanlage existiert jedoch eine Eindüsungszone. Durch die Anordnung des Probenahmestutzens können direkt aus dem Sprühkegel Partikel abgezogen werden, welche dann eine deutlich höhere Feuchte als die Gleichgewichtsfeuchte aufweisen.

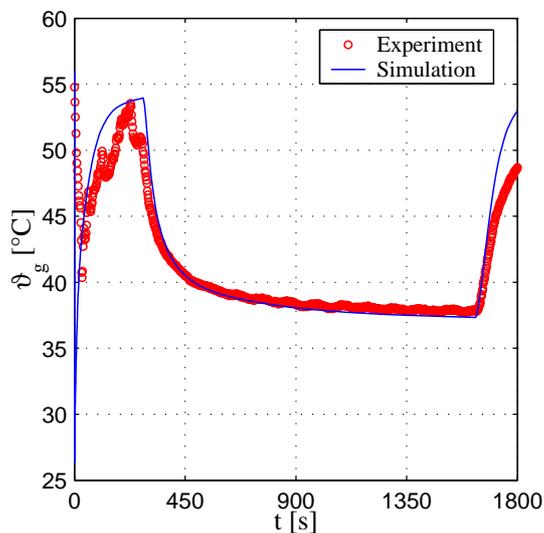


Abbildung 4.34: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 060504A

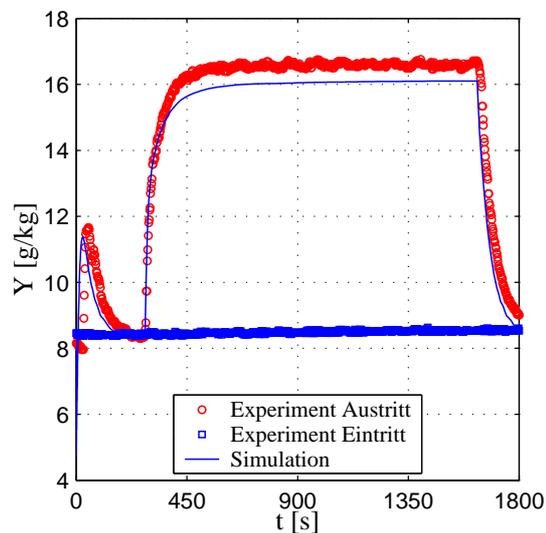


Abbildung 4.35: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 060504A

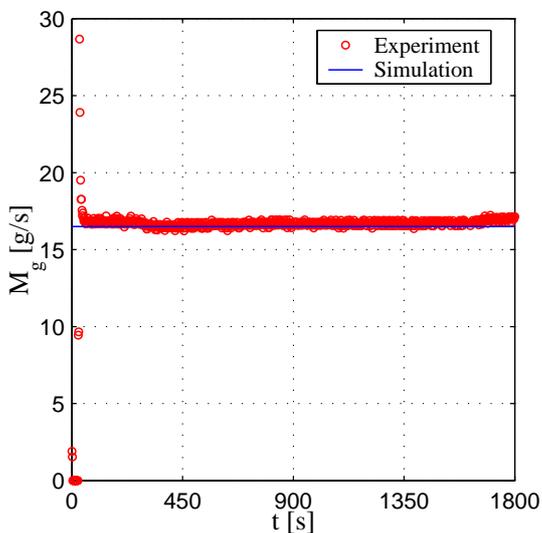


Abbildung 4.36: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 060504A

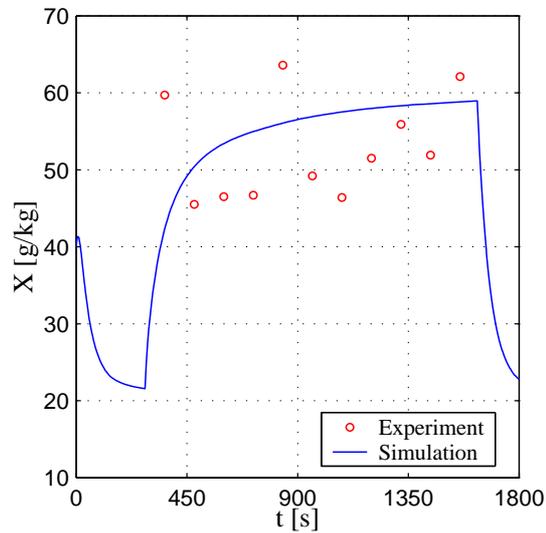


Abbildung 4.37: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 060504A

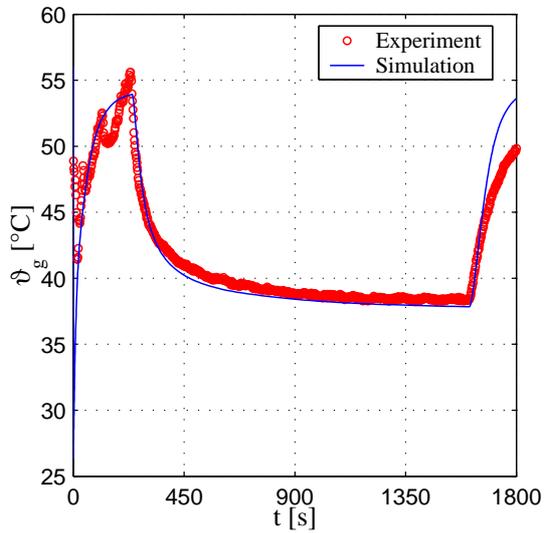


Abbildung 4.38: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 060504B

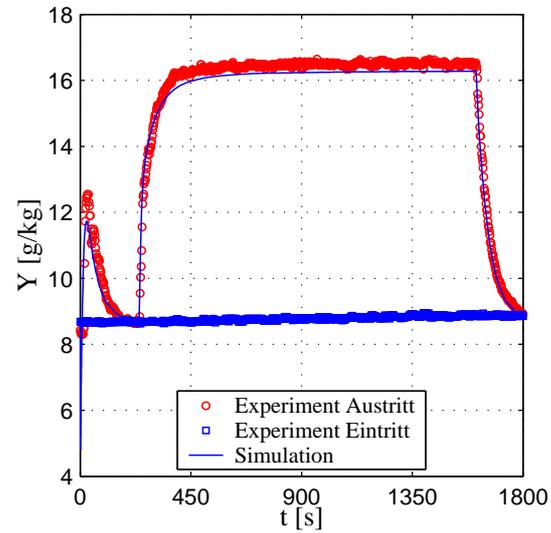


Abbildung 4.39: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 060504B

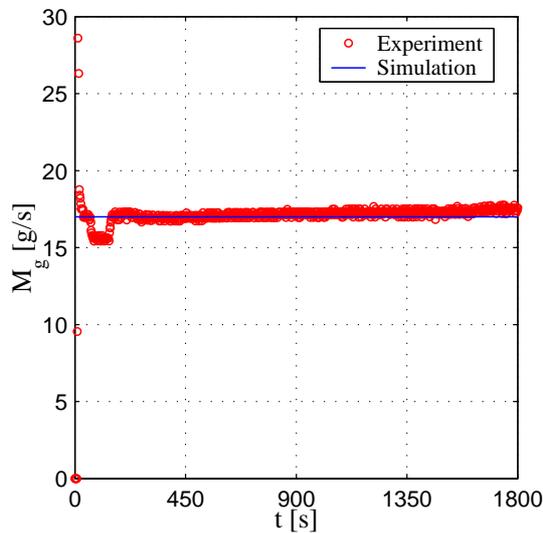


Abbildung 4.40: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 060504B

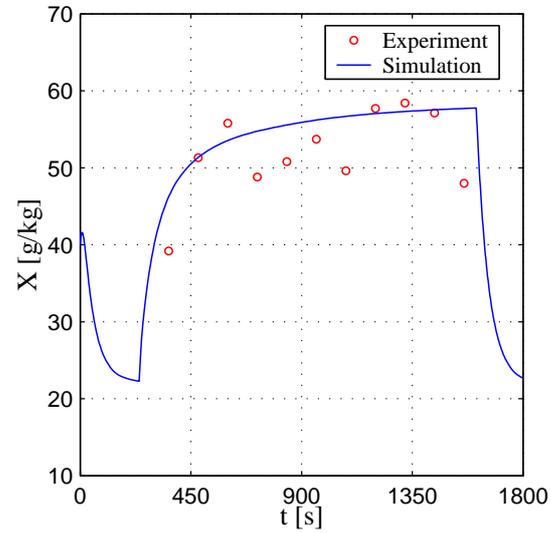


Abbildung 4.41: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 060504B

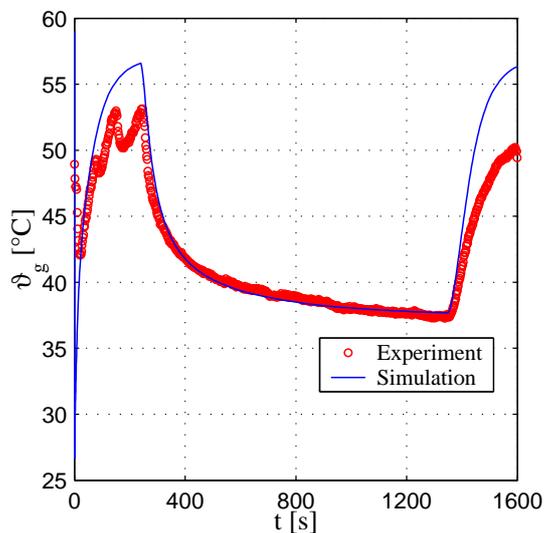


Abbildung 4.42: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 180504A

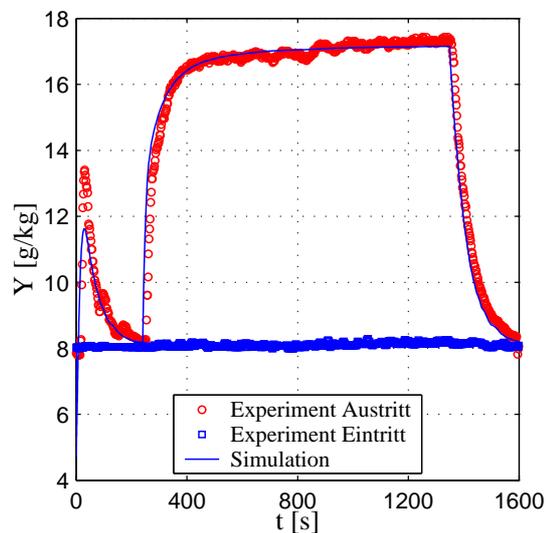


Abbildung 4.43: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 180504A

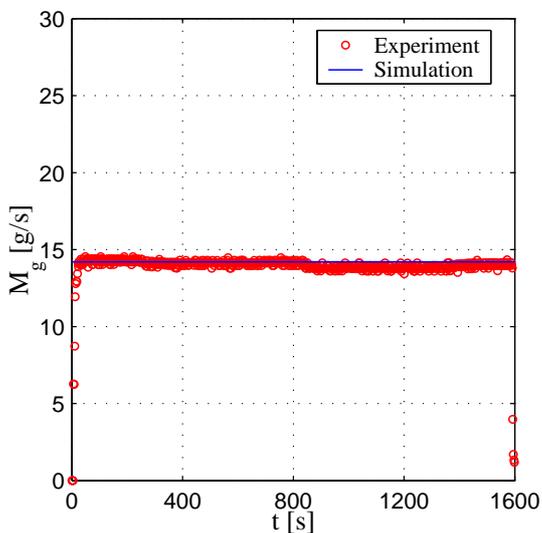


Abbildung 4.44: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 180504A

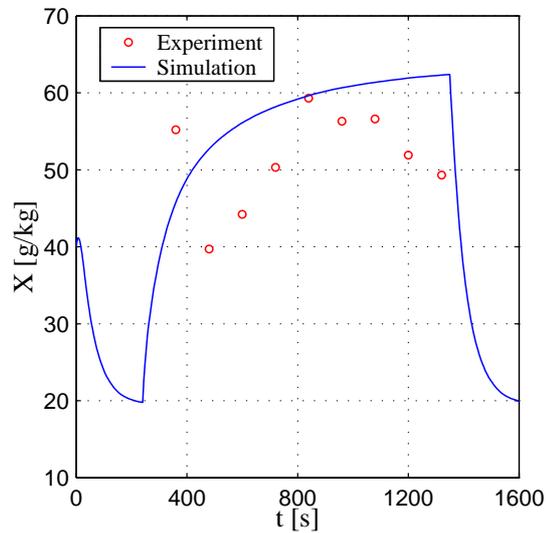


Abbildung 4.45: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 180504A

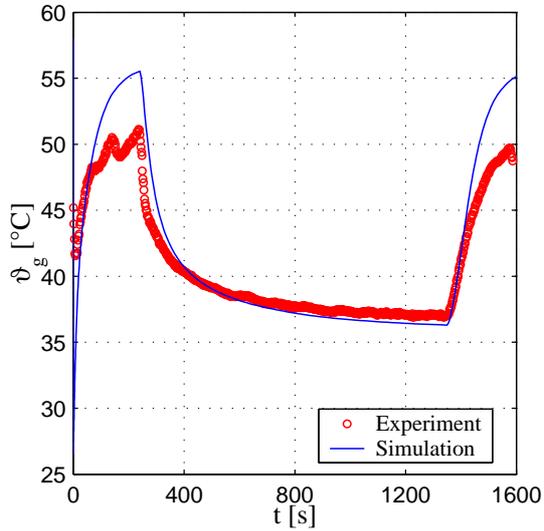


Abbildung 4.46: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 180504B

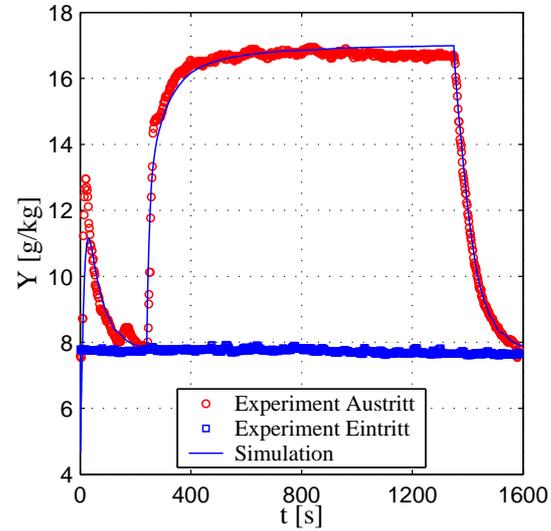


Abbildung 4.47: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 180504B

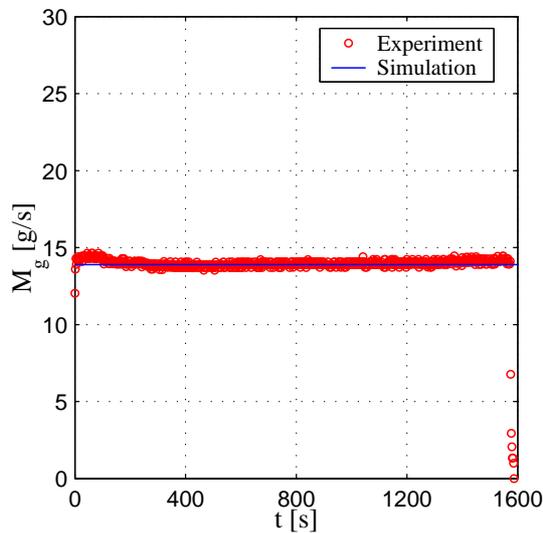


Abbildung 4.48: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 180504B

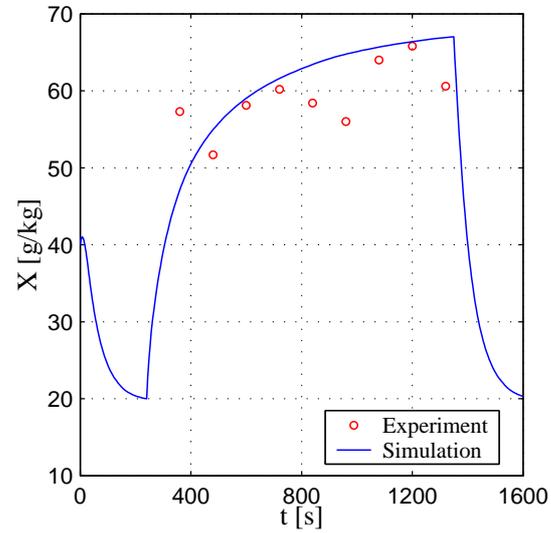


Abbildung 4.49: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 180504B

Kapitel 5

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit gliedert sich in zwei Teile. Der erste Teil beinhaltet eine Übersicht zu allgemeinen Formulierungen, analytischen Lösungen und numerischen Methoden zur Beschreibung von Aggregationsprozessen. Weiterhin werden neue Modelle zur Berechnung von populationsdynamischen Problemen vorgeschlagen, welche bestehende Ansätze verbessern oder ersetzen können. Im zweiten Teil der Arbeit wird ein Modell zur Berechnung der Wärme- und Stofftransportvorgänge sowie Aggregationsmechanismen bei der Wirbelschichtsprühagglomeration vorgestellt. Hierbei werden die neuen Lösungsansätze aus dem ersten Teil direkt umgesetzt und anhand experimenteller Untersuchungen validiert. Es erfolgt erstmalig eine vollständige Kopplung der Massen- und Energiebilanzen zwischen Feststoff- und Gasphase unter Berücksichtigung der Aggregationsprozesse.

In der Literatur existieren eine Reihe von Modellen zur Beschreibung des populationsdynamischen Verhaltens von dispersen Systemen, wobei besonders die Aggregation von Partikeln eine große Rolle spielt. Ausgehend von einem binären Aggregationsmechanismus, bei welchem sich zwei Partikel unter Erhaltung ihrer Masse zu einem Aggregat vereinigen, wird das kontinuierliche Modell der Aggregation hergeleitet. Zur Erweiterung der möglichen Eigenschaftskordinaten des dispersen Systems wird ein weiteres Modell vorgestellt. Einige vereinfachende Annahmen reduzieren hierbei den Raum der möglichen Zustände der dispersen Phase. Dadurch kann der Modellierungsaufwand erheblich verringert werden.

Für eine numerische Lösung der Populationsbilanzen ist es notwendig, eine diskrete Formulierung der kontinuierlichen Gleichung aufzustellen. Die bei der Entwicklung der diskreten Populationsbilanz auftretenden Probleme und getroffenen vereinfachenden Annahmen werden in der vorliegenden Arbeit diskutiert. Die diskrete Form der Bilanz dient weiterhin als Basis, die in der Literatur vorhandenen Aggregationsmodelle zu diskutieren, wobei auf Modelle von Hounslow u. a. (1988), Litster u. a. (1995), Wynn (1996) und Kumar u. Ramkrishna (1996a,b) eingegangen wird.

Hounslow u. a. (2001) schlagen ein Modell zur Berechnung der Verteilung einer extensiven Eigenschaft (zum Beispiel Tracer, Enthalpie) der Partikel vor. Für eine Vielzahl von Prozessen ist es notwendig, intensive Zustandsgrößen (zum Beispiel Temperatur, Konzentration) aus dem Verhältnis eines extensiven Zustandes und der Partikelmasse zu berechnen, um beispielsweise transportkinetische Ansätze (Wärmestrom, Massenstrom) aufstellen zu können. Im Rahmen dieser Arbeit wird gezeigt, dass das Modell von Hounslow u. a. (2001) inkonsistent bezüglich der Partikelmasse und der extensiven Eigenschaft ist, da sich durch reine Aggregation das Verhält-

nis dieser beiden Werte ändern kann. Somit ist das durch Hounslow u. a. (2001) entwickelte Modell nicht für Systeme anwendbar, zu deren vollständiger Beschreibung intensive Zustandsgrößen notwendig sind, die aus extensiven Werten ermittelt werden müssen. Weiterhin ist die von diesen Autoren vorgeschlagene Methode nur für einen größenunabhängigen Aggregationskern gültig. Höhere Momente werden bei anderen Kernstrukturen (Summen- oder Produktkern) nicht mehr korrekt wiedergegeben. In der vorliegenden Arbeit wird eine neue Formulierung für die Erweiterung der Eigenschaftskordinaten entwickelt. Diese ist so strukturiert, dass sich Partikelmasse und extensive Eigenschaften stets in gleichen Verhältnissen ändern. Durch die Übertragung dieser Methode auf die diskreten Formulierungen von Wynn (1996) und Kumar u. Ramkrishna (1996a,b) steht ein neues Modell zur Verfügung, welches sich zur Berechnung intensiver Zustände und ebenfalls für die exakte Bestimmung höherer Momente bei größenabhängigen Kernen eignet.

Die Fragestellung zur experimentellen Bestimmung einer Kinetik, die einen Aggregationsprozess kontrolliert, wird im Rahmen dieser Arbeit ebenfalls diskutiert. Bramley u. a. (1996) schlagen ein Modell zur Identifikation einer partikelgrößenabhängigen Aggregations- oder Wachstumsrate unter Berücksichtigung monodisperser Keimbildung vor. Dieses Modell wird derart erweitert, dass die Bestimmung einer partikelgrößenabhängigen Keimbildungsrate ermöglicht wird. Sowohl für Wachstum als auch für Aggregation wird dieses neue Modell anhand von einigen Beispielen validiert.

Der zweite Teil der Arbeit befasst sich mit der Modellierung und experimentellen Untersuchung des Agglomerationsprozesses in Gas-Feststoff-Wirbelschichten. Aufbauend auf einem heterogenen Wirbelschichtmodell mit aktivem Bypass, welches von May (1959) entwickelt wurde, erfolgt die Beschreibung der Stoff- und Wärmebilanzen. Hierbei wird neben den Bilanzen und kinetischen Ansätzen zur Beschreibung der Befeuchtung und Trocknung auch die Agglomeration der Partikel berücksichtigt. Durch die Agglomeration kommt es neben der Partikelvergrößerung auch zu einem Austausch von Enthalpie und Wasser zwischen den einzelnen Partikeln. Zur Beschreibung dieses Stoff- und Energietransportes und der damit verbundenen zeitlichen Änderung von Zustandsgrößen der dispersen Phase (Partikelgrößenverteilung, Enthalpieverteilung und Feuchteverteilung) werden die neu entwickelten Modelle zur Beschreibung der erweiterten extensiven Eigenschaftskordinaten genutzt. Durch diesen Ansatz erfolgt eine vollständige Kopplung des Populationsbilanzmodells mit Wärme- und Stoffübergangsmodellen.

Anhand einiger ausgewählter Beispiele wird das Wirbelschichtmodell in Verbindung mit dem Agglomerationsmodell numerisch gelöst und dessen dynamisches Verhalten analysiert. Hierbei werden zunächst die Grenzfälle der einfachen Trocknung, der Eindüsung von Wasser in die Schicht sowie der Agglomeration dargestellt. Unterschiedliche Aufheiz- bzw. Trocknungszeiten der Partikel sowie die Verteilung der Partikeltemperatur und Partikelfeuchte werden anhand der reinen Trocknung und Eindüsung herausgestellt. Für die Simulation der reinen Agglomeration wird gezeigt, dass die intensiven Zustandsgrößen Partikeltemperatur und Partikelfeuchte, die sich aus der Bilanzierung der entsprechenden extensiven Werte Partikelenthalpie und Wassergehalt ergeben, bei Ausschluss von Wärme- und Stoffübergang zeitlich konstant sind. Anhand des Wirbelschichtmodells wird die Anwendbarkeit der in dieser Arbeit vorgeschlagenen diskreten Formulierung zur Beschreibung der erweiterten Eigenschaftskordinaten demonstriert. Die Simulation des gesamten Agglomerationsprozesses, welcher Vortrocknung, Eindüsung, Agglomeration und Nach Trocknung beinhaltet, wird ebenfalls dargestellt. Es wird gezeigt, dass für große NTU -Zahlen zwischen Gas und Feststoff eine integrale Betrachtung der Zustandsgrößen Partikelfeuchte und -enthalpie möglich ist. Es werden Vorschläge zu einer Modellreduktion gegeben.

Die Validierung der vorgestellten Modelle erfolgt durch die experimentelle Untersuchung des Agglomerations- und Trocknungsverhaltens von Mikrokristalliner Zellulose (MCC). Dieses Versuchsgut ist ein wichtiger Füll- bzw. Trägerstoff bei der Herstellung von Tabletten in der pharmazeutischen Industrie. Es werden experimentelle Voruntersuchungen zur Charakterisierung des Trocknungs- und Adsorptionsverhaltens bei verschiedenen Temperaturen von MCC dargestellt. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen werden bei der späteren Validierung des Modells genutzt. Der absatzweise Agglomerationsprozess wird unter Variation verschiedener Prozessparameter, zum Beispiel Zulufttemperatur, Massenstrom der Fluidisierungsluft und Massengehalt der eingedühten Binderlösung, untersucht. Dabei werden integrale Prozessgrößen, wie unter anderem die Feuchte der Zu- und Abluft, die Gasaustrittstemperatur und der Gasmassenstrom der Fluidisierungsluft messtechnisch erfasst. Die zeitliche Entwicklung der Partikelverteilung wird durch Probenahme in konstanten Intervallen ermittelt, wobei der Einfluss der veränderten Prozessparameter auf das Versuchsergebnis dargestellt wird.

Die Validierung des vorgeschlagenen Wirbelschichtmodells erfolgt in zwei Schritten. Zunächst wird zur Berechnung der experimentell ermittelten Zustandsgrößen eine Aggregationskinetik $\beta(t, u, v)$ bestimmt, welche das in den Untersuchungen gemessene Wachstumsverhalten der Partikel wiedergibt. Hierzu wird das im ersten Teil der Arbeit entwickelte Modell zur Ermittlung der Aggregationskonstanten unter Berücksichtigung der polydispersen Keimbildungsrate eingesetzt. Anhand eines ausgewählten Versuchs erfolgt die Anpassung zweier Parameter einer größenabhängigen Aggregationskinetik $\beta(u, v)$ über die Summe der relativen Fehler. Diese Parameter legen die Ordnung der Agglomerationskinetik fest und stellen apparatespezifische Werte dar. Für jeden der durchgeführten Versuche werden im Weiteren die prozessspezifischen Agglomerationskonstanten β_0 berechnet. Der abschließende Vergleich zwischen Simulation und Messung zeigt für alle Versuche eine qualitativ gute Übereinstimmung in der zeitlichen Evolution der Partikelverteilung. Die Validierung des Wärme- und Stoffübergangsmodells erfolgt am reduzierten Wirbelschichtmodell, bei welchem sowohl qualitativ als auch quantitativ eine deutliche Kongruenz zwischen experimentellen und berechneten Daten verzeichnet werden kann.

Anhang A

Mathematischer Anhang

A.1 Die Dirac-Delta-Verteilung

Das Symbol Ω sei eine offene Teilmenge von \mathbb{R} und $D(\Omega)$ ist der Raum unendlich oft differenzierbarer Funktionen mit kompakten Träger in Ω . Die Menge der stetigen linearen Funktionen in $D(\Omega)$ seien durch $D'(\Omega)$ gekennzeichnet. Ein Element $f \in D'$ wird Verteilung oder allgemeine Funktion genannt. Jede lokal integrierbare Funktion f entspricht einer Verteilung F . Solch eine Verteilung wird reguläre Verteilung genannt

$$F(\phi) = \int_{\Omega} f(x)\phi(x)dx \quad , \quad (\text{A.1})$$

mit $\phi \in D$. Die Dirac-Delta-Verteilung δ ist eine singuläre Verteilung, da keine lokal integrierbare Funktion $g(x)$ existiert, sodass

$$\delta(\phi) = \int_{\Omega} g(x)\phi(x)dx \quad (\text{A.2})$$

gilt. Die Dirac-Delta-Verteilung hat folgende Eigenschaften

(i) $\delta(x - x_0) = 0$, $x \neq x_0$ und

(ii) $\int_{\Omega_x} f(x)\delta(x - x_0)dx = f(x_0)$,

mit Ω_x als eine offene Menge, der den Punkt x_0 enthält. Mit den genannten Eigenschaften der Dirac-Delta-Verteilung kann gezeigt werden, dass $\sum_{i=0}^M N_i\delta(v - x_i)$ der Anzahldichte entspricht, was durch Integration über das j -te Intervall gezeigt werden kann

$$\begin{aligned} \int_{v_j}^{v_{j+1}} \sum_{i=0}^M N_i\delta(v - x_i)dv &= \int_{v_j}^{v_{j+1}} N_j\delta(v - x_j)dv, \quad x_j \in [v_j, v_{j+1}) \\ &= N_j \int_{v_j}^{v_{j+1}} \delta(v - x_j)dv \\ &= N_j \\ &= \int_{v_j}^{v_{j+1}} n(v, t)dv \quad . \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

A.2 Herleitung der diskreten Terme für DPBE

Mit der Definition der Dirac-Delta-Verteilung gilt

$$\int_{v_j}^{v_{j+1}} \beta(v, u) \sum_{k=0}^I [N_k \delta(u - x_k)] du = \beta(v, x_j) N_j \quad . \quad (\text{A.4})$$

Ausgehend von der kontinuierlichen Entstehungsrate in einem Intervall $[v_i, v_{i+1}]$ gilt

$$B = \int_{v_i}^{v_{i+1}} \frac{1}{2} \sum_{j=0}^{i-1} \int_{v_j}^{v_{j+1}} \beta(v - u, u) n(v - u) n(u) du dv \quad (\text{A.5})$$

$$= \int_{v_i}^{v_{i+1}} \frac{1}{2} \sum_{j=0}^{i-1} \int_{v_j}^{v_{j+1}} \beta(v - u, u) \sum_{k=0}^I [N_k \delta(v - (u + x_k))] \sum_{k=0}^I [N_k \delta(u - x_k)] du dv \quad . \quad (\text{A.6})$$

Da u innerhalb des Intervalles $[v_j, v_{j+1}]$ liegt, nimmt $\sum_{k=0}^I [N_k \delta(u - x_k)]$ in jedem Fall N_j an

$$B = \int_{v_i}^{v_{i+1}} \frac{1}{2} \sum_{j=0}^{i-1} \beta(v - x_j, x_j) \sum_{k=0}^I [N_k \delta(v - (x_j + x_k))] N_j dv \quad (\text{A.7})$$

$$= \frac{1}{2} \sum_{j=0}^{i-1} N_j \int_{v_i}^{v_{i+1}} \beta(v - x_j, x_j) \sum_{k=0}^I [N_k \delta(v - (x_j + x_k))] dv \quad . \quad (\text{A.8})$$

Für $v = x_j + x_k$, wobei v bzw. $x_j + x_k$ im Intervall $[v_i, v_{i+1}]$ liegen, gilt

$$B = \frac{1}{2} \sum_{j=0}^{i-1} N_j \sum_{(x_j + x_k) \in [v_i, v_{i+1}]} \beta(x_k, x_j) N_k \quad . \quad (\text{A.9})$$

Die Ableitung der diskreten Schwundrate für ein Intervall $[v_i, v_{i+1}]$ erfolgt in analoger Weise

$$D = \int_{v_i}^{v_{i+1}} n(v) \sum_{j=0}^I \int_{v_j}^{v_{j+1}} \beta(v, u) n(u) du dv \quad (\text{A.10})$$

$$= \int_{v_i}^{v_{i+1}} \sum_{k=0}^I [N_k \delta(v - x_k)] \sum_{j=0}^I \int_{v_j}^{v_{j+1}} \beta(v, u) \sum_{k=0}^I [N_k \delta(u - x_k)] du dv \quad (\text{A.11})$$

$$= \int_{v_i}^{v_{i+1}} \sum_{k=0}^I [N_k \delta(v - x_k)] \sum_{j=0}^I \beta(v, x_j) N_j dv \quad (\text{A.12})$$

$$= \sum_{j=0}^I N_j \int_{v_i}^{v_{i+1}} \sum_{k=0}^I [N_k \delta(v - x_k)] \beta(v, x_j) dv \quad (\text{A.13})$$

$$= \sum_{j=0}^I \beta(x_i, x_j) N_j N_i \quad . \quad (\text{A.14})$$

A.3 Momentenerhaltung für Aggregation

Ausgangspunkt ist ein beliebiges j -tes Moment der kontinuierlichen Populationsbilanz für reine Aggregation

$$\int_0^{\infty} v^j \frac{\partial n}{\partial t} dv = \int_0^{\infty} v^j \frac{1}{2} \int_0^v \beta(u, v-u) n(u) n(v-u) du dv - \int_0^{\infty} v^j n(v) \int_0^{\infty} \beta(u, v) n(u) du dv \quad . \quad (\text{A.15})$$

Durch Änderung der Reihenfolge der Integration im Entstehungs- und im Schwundterm steht

$$\frac{d\mu_j}{dt} = \int_0^{\infty} \frac{1}{2} \int_u^{\infty} v^j \beta(u, v-u) n(u) n(v-u) dv du - \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} v^j n(v) \beta(u, v) n(u) dv du \quad . \quad (\text{A.16})$$

Nach Substitution von $w = v - u$ folgt

$$\frac{d\mu_j}{dt} = \int_0^{\infty} \frac{1}{2} \int_0^{\infty} (w+u)^j \beta(u, w) n(u) n(w) dw du - \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} v^j n(v) \beta(u, v) n(u) dv du \quad . \quad (\text{A.17})$$

Mit $w = v$ gilt nach Vereinfachung

$$\frac{d\mu_j}{dt} = \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} \left[\frac{1}{2} (v+u)^j - v^j \right] \beta(u, v) n(v) dv n(u) du \quad . \quad (\text{A.18})$$

Nimmt j einen ganzzahligen Wert an, so kann der Ausdruck ausgewertet werden. Zur Erhaltung der Masse ($j = 1$) gilt

$$\frac{d\mu_1}{dt} = \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} \frac{u}{2} \beta(u, v) n(v) dv n(u) du - \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} \frac{v}{2} \beta(u, v) n(v) dv n(u) du = 0 \quad , \quad (\text{A.19})$$

da $\beta(u, v) = \beta(v, u)$ gilt. Für das nullte Moment ($j = 0$) gilt weiterhin

$$\frac{d\mu_0}{dt} = - \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} \frac{1}{2} \beta(u, v) n(v) dv n(u) du \quad . \quad (\text{A.20})$$

Somit ergibt sich direkt für $\beta(u, v) = \beta_0$

$$\frac{d\mu_0}{dt} = - \frac{1}{2} \beta_0 \mu_0^2 \quad , \quad (\text{A.21})$$

für $\beta(u, v) = \beta_0(u+v)$

$$\frac{d\mu_0}{dt} = - \beta_0 \mu_0 \mu_1 \quad , \quad (\text{A.22})$$

und für $\beta(u, v) = \beta_0(u \cdot v)$

$$\frac{d\mu_0}{dt} = - \frac{1}{2} \beta_0 \mu_1^2 \quad . \quad (\text{A.23})$$

A.4 Momentenerhaltung für Wachstum

Ausgangspunkt ist ein beliebiges j -tes Moment der kontinuierlichen Populationsbilanz für reines Wachstum

$$\int_0^{\infty} v^j \frac{\partial n}{\partial t} dv = - \int_0^{\infty} v^j \frac{\partial Gn}{\partial v} dv \quad . \quad (\text{A.24})$$

Durch partielle Integration kann die rechte Seite der Gleichung A.24 zu

$$\frac{d\mu_j}{dt} = - (v^j Gn)|_0^{\infty} + \int_0^{\infty} j v^{j-1} Gn dv \quad (\text{A.25})$$

umgeschrieben werden. Der erste Ausdruck innerhalb der Klammer auf der rechten Seite der Gleichung nimmt stets den Wert Null an, falls $n(v=0) = 0$ und $n(v \rightarrow \infty) = 0$ gilt. Somit gilt allgemein für die zeitliche Änderung des j -ten Moments

$$\frac{d\mu_j}{dt} = \int_0^{\infty} j v^{j-1} Gn dv \quad . \quad (\text{A.26})$$

Bei einer zeitlich konstanten volumenbezogenen Wachstumsrate steht für das erste Moment mit $j = 1$

$$\frac{d\mu_1}{dt} = G\mu_0 \quad . \quad (\text{A.27})$$

Das nullte Moment ($j = 0$) ändert sich durch Wachstumsprozesse nicht, da aus Gleichung (A.26)

$$\frac{d\mu_0}{dt} = 0 \quad (\text{A.28})$$

folgt. In einigen Anwendungen ist es erforderlich, eine längenbezogene Wachstumsrate \tilde{G} einzuführen. Für kugelförmige Partikel gilt für die zeitliche Änderung des längenbezogenen Momentes $\tilde{\mu}_j$

$$\int_0^{\infty} L^j \frac{\partial n}{\partial t} dL = - \int_0^{\infty} L^j \frac{\partial \tilde{G}n}{\partial L} dL \quad . \quad (\text{A.29})$$

Durch partielle Integration folgt allgemein

$$\frac{d\tilde{\mu}_j}{dt} = j \int_0^{\infty} L^{j-1} \tilde{G}n dL \quad . \quad (\text{A.30})$$

Bei dieser Art des Wachstums ist für eine konstante Wachstumsrate somit die zeitliche Änderung des dritten Momentes durch

$$\frac{d\tilde{\mu}_3}{dt} = 3\tilde{G}\tilde{\mu}_2 \quad (\text{A.31})$$

gegeben.

A.5 Herleitung der Momentenerhaltung für Tracer

Ausgangspunkt ist ein beliebiges j -tes Moment der kontinuierlichen Tracermassenbilanz μ_j^T für reine Aggregation

$$\int_0^\infty v^j \frac{\partial m}{\partial t} dv = \int_0^\infty v^j \int_0^v \beta(u, v-u) n(u) m(v-u) du dv - \int_0^\infty v^j m(v) \int_0^\infty \beta(u, v) n(u) du dv \quad . \quad (\text{A.32})$$

Durch Änderung der Reihenfolge der Integration im Entstehungs- und im Schwundterm steht

$$\frac{d\mu_j^T}{dt} = \int_0^\infty \int_u^\infty v^j \beta(u, v-u) n(u) m(v-u) du dv - \int_0^\infty \int_0^\infty v^j m(v) \beta(u, v) n(u) du dv \quad . \quad (\text{A.33})$$

Nach Substitution von $w = v - u$ folgt

$$\frac{d\mu_j^T}{dt} = \int_0^\infty \int_0^\infty (w+u)^j \beta(u, w) n(u) m(w) dw du - \int_0^\infty \int_0^\infty v^j m(v) \beta(u, v) n(u) dv du \quad . \quad (\text{A.34})$$

Mit $w = v$ gilt nach Vereinfachung

$$\frac{d\mu_j^T}{dt} = \int_0^\infty \int_0^\infty [(v+u)^j - v^j] \beta(u, v) m(v) n(u) dv du \quad . \quad (\text{A.35})$$

Nimmt j einen ganzzahligen Wert an, so kann der Ausdruck ausgewertet werden. Für $j = 0$ kann offensichtlich gezeigt werden, dass

$$\frac{d\mu_0^T}{dt} = 0 \quad (\text{A.36})$$

gilt. Für $j = 1$ gilt allgemein

$$\frac{d\mu_1^T}{dt} = \int_0^\infty \int_0^\infty \beta(u, v) m(v) dv u n(u) du \quad . \quad (\text{A.37})$$

Für einen konstanten Kern $\beta(u, v) = \beta_0$ gilt somit

$$\frac{d\mu_1^T}{dt} = \beta_0 \mu_1 \mu_0^T \quad , \quad (\text{A.38})$$

mit dem dritten Moment der Partikelanzahl¹ μ_1 . Für einen Summenkern $\beta(u, v) = \beta_0(u+v)$ gilt

$$\frac{d\mu_1^T}{dt} = \beta_0 (\mu_2 \mu_0^T + \mu_1 \mu_1^T) \quad (\text{A.39})$$

mit μ_2 als zweitem Moment der Partikelanzahl und für den Produktkern $\beta(u, v) = \beta_0(u \cdot v)$ folgt

$$\frac{d\mu_1^T}{dt} = \beta_0 \mu_2 \mu_1^T \quad . \quad (\text{A.40})$$

¹siehe Anhang A.3

A.6 Massenerhaltung für neues DTMD-Modell

Die Massenerhaltung in dem neuen DTMD-Modell kann durch Summation über alle Intervalle i gezeigt werden

$$\begin{aligned}
\sum_i \frac{dM_i}{dt} = & \quad (A.41) \\
& \sum_i \sum_{j=1}^{i-2} \frac{2^{j-i+2}}{2^{j-i+1} + 1} \beta_{i-1,j} (M_{i-1}N_j + N_{i-1}M_j) + \sum_i N_i \sum_{j=1}^{i-1} (1 - 2^{j-i}) \beta_{i,j} M_j \frac{1}{2^{j-i} + 1} \\
& + \sum_i \beta_{i-1,i-1} N_{i-1} M_{i-1} - \sum_i M_i \sum_{j=1}^{i-1} \frac{2^{j-i+1}}{2^{j-i} + 1} \beta_{i,j} N_j - \sum_i M_i \sum_{j=i} \beta_{i,j} N_j
\end{aligned}$$

Nach Umschreiben der Gleichung erhält man

$$\begin{aligned}
\sum_i \frac{dM_i}{dt} = & \quad (A.42) \\
& \sum_i M_{i-1} \sum_{j=1}^{i-2} \frac{2^{j-i+2}}{2^{j-i+1} + 1} \beta_{i-1,j} N_j - \sum_i M_i \sum_{j=1}^{i-1} \frac{2^{j-i+1}}{2^{j-i} + 1} \beta_{i,j} N_j \\
& + \sum_i N_{i-1} \sum_{j=1}^{i-2} \frac{2^{j-i+2}}{2^{j-i+1} + 1} \beta_{i-1,j} M_j - \sum_i N_i \sum_{j=1}^{i-1} \frac{2^{j-i}}{2^{j-i} + 1} \beta_{i,j} M_j \\
& + \sum_i \beta_{i-1,i-1} N_{i-1} M_{i-1} + \sum_i N_i \sum_{j=1}^{i-1} \beta_{i,j} M_j \frac{1}{2^{j-i} + 1} - \sum_i M_i \sum_{j=i} \beta_{i,j} N_j \quad .
\end{aligned}$$

Durch Zerlegung des dritten Terms in zwei Teile folgt

$$\begin{aligned}
\sum_i \frac{dM_i}{dt} = & \quad (A.43) \\
& \sum_i M_{i-1} \sum_{j=1}^{i-2} \frac{2^{j-i+2}}{2^{j-i+1} + 1} \beta_{i-1,j} N_j - \sum_i M_i \sum_{j=1}^{i-1} \frac{2^{j-i+1}}{2^{j-i} + 1} \beta_{i,j} N_j \\
& + \sum_i N_{i-1} \sum_{j=1}^{i-2} \frac{2^{j-i+1}}{2^{j-i+1} + 1} \beta_{i-1,j} M_j + \sum_i N_{i-1} \sum_{j=1}^{i-2} \frac{2^{j-i+1}}{2^{j-i+1} + 1} \beta_{i-1,j} M_j - \sum_i N_i \sum_{j=1}^{i-1} \frac{2^{j-i}}{2^{j-i} + 1} \beta_{i,j} M_j \\
& + \sum_i \beta_{i-1,i-1} N_{i-1} M_{i-1} + \sum_i N_i \sum_{j=1}^{i-1} \beta_{i,j} M_j \frac{1}{2^{j-i} + 1} - \sum_i M_i \sum_{j=i} \beta_{i,j} N_j \quad .
\end{aligned}$$

Somit steht

$$\begin{aligned}
\sum_i \frac{dM_i}{dt} = & \tag{A.44} \\
& \sum_i M_{i-1} \sum_{j=1}^{i-2} \frac{2^{j-i+2}}{2^{j-i+1} + 1} \beta_{i-1,j} N_j - \sum_i M_i \sum_{j=1}^{i-1} \frac{2^{j-i+1}}{2^{j-i} + 1} \beta_{i,j} N_j \\
& + \sum_i N_{i-1} \sum_{j=1}^{i-2} \frac{2^{j-i+1}}{2^{j-i+1} + 1} \beta_{i-1,j} M_j - \sum_i N_i \sum_{j=1}^{i-1} \frac{2^{j-i}}{2^{j-i} + 1} \beta_{i,j} M_j \\
& + \sum_i \beta_{i-1,i-1} N_{i-1} M_{i-1} + \sum_i N_i \sum_{j=1}^{i-1} \beta_{i,j} M_j - \sum_i M_i \sum_{j=i} \beta_{i,j} N_j \\
& = 0 \quad .
\end{aligned}$$

Anhang B

Stoffwerte und Stoffkonstanten

B.1 Konstanten

absolute Gaskonstante:

$$\tilde{R} = 8,3143 \text{ J}/(\text{mol K}) \quad (\text{B.1})$$

Gravitationskonstante:

$$g = 9,81 \text{ m}/\text{s}^2 \quad (\text{B.2})$$

Stefan-Boltzmann-Konstante:

$$\sigma_s = 5,67 \cdot 10^{-8} \text{ W}/(\text{m}^2 \text{ K}^4) \quad (\text{B.3})$$

B.2 Stoffwerte reiner Komponenten

Im Allgemeinen sind die Stoffwerte eine Funktion des Druckes und der Temperatur. Die Druckabhängigkeiten der spezifischen Wärmekapazität c der Wärmeleitfähigkeit λ und der dynamischen Viskosität η der Gase werden vernachlässigt. Lediglich bei der Dichte und somit bei der kinematischen Viskosität erfolgt über das ideale Gasgesetz eine Berücksichtigung der Temperatur- und Druckabhängigkeit.

Die Berechnung der Stoffwerte des flüssigen Wassers erfolgt nur unter Berücksichtigung der Temperaturabhängigkeit.

Sowohl der Diffusionskoeffizient von Wasserdampf in Luft $\delta_{w,g}$ als auch die Sättigungsbeladung der Luft Y_{sat} sind eine Funktion des Druckes und der Temperatur.

B.2.1 Stoffwerte der trockenen Luft

Mittlere Molare Masse

Quelle: Krauss (1994)

$$\tilde{M}_g = 28.96 \text{ kg}/\text{kmol} \quad (\text{B.4})$$

Spezifische Gaskonstante

Quelle: Krauss (1994)

$$R_g = 287.22 \text{ J}/(\text{kg K}) \quad (\text{B.5})$$

Dichte

$$\rho_g = \frac{P\tilde{M}_g}{\tilde{R}T_g} = \frac{P}{R_g(273.14K + \vartheta)} \quad (\text{B.6})$$

Einheit: kg/m^3

Spezifische Wärmekapazität

Quelle: Glück (1986)

$$c_g = A + B \cdot \vartheta + C \cdot \vartheta^2 + D \cdot \vartheta^3 \quad (\text{B.7})$$

$$A = +1006.256 \cdot 10^0$$

$$B = +2.120536 \cdot 10^{-2}$$

$$C = +4.180195 \cdot 10^{-4}$$

$$D = -1.521916 \cdot 10^{-7}$$

Einheit: $J/(kg K)$

Gültigkeitsbereich: $-20^\circ C \leq \vartheta \leq 200^\circ C$; $P = 100000 Pa$

Maximaler Fehler: 0.05%

Wärmeleitfähigkeit

Quelle: Glück (1986)

$$\lambda_g = A + B \cdot \vartheta + C \cdot \vartheta^2 + D \cdot \vartheta^3 \quad (\text{B.8})$$

$$A = +24.52110 \cdot 10^{-3}$$

$$B = +7.501414 \cdot 10^{-5}$$

$$C = -2.593344 \cdot 10^{-8}$$

$$D = +5.292884 \cdot 10^{-11}$$

Einheit: $W/(m K)$

Gültigkeitsbereich: $-20^\circ C \leq \vartheta \leq 200^\circ C$; $P = 100000 Pa$

Maximaler Fehler: 0.08%

Dynamische Viskosität

Quelle: Glück (1986)

$$\eta_g = A + B \cdot \vartheta + C \cdot \vartheta^2 + D \cdot \vartheta^3 \quad (\text{B.9})$$

$$A = +1.705568 \cdot 10^{-5}$$

$$B = +4.511012 \cdot 10^{-8}$$

$$C = -8.766234 \cdot 10^{-12}$$

$$D = -3.382035 \cdot 10^{-15}$$

Einheit: $kg/(m s)$

Gültigkeitsbereich: $-20^{\circ}\text{C} \leq \vartheta \leq 200^{\circ}\text{C}$; $P = 100000\text{Pa}$
 Maximaler Fehler: 0.6%

Prandtl-Zahl

$$Pr_g = \frac{\eta_g c_g}{\lambda_g} \quad (\text{B.10})$$

Einheit: –

Kinematische Viskosität

$$\nu_g = \frac{\eta_g}{\rho_g} \quad (\text{B.11})$$

Einheit: $\text{m}^2/(\text{s})$

B.2.2 Stoffwerte von Wasser**Mittlere Molare Masse**

Quelle: Wagner u. Kruse (1998)

$$\tilde{M}_w = 18.0153 \text{ kg/kmol} \quad (\text{B.12})$$

Spezifische Gaskonstante

Quelle: Wagner u. Kruse (1998)

$$R_w = 461.519 \text{ J/(kg K)} \quad (\text{B.13})$$

Dichte

Quelle: Glück (1986)

$$\rho_{w,l} = A + B \cdot \vartheta + C \cdot \vartheta^2 \quad (\text{B.14})$$

$$A = +1006$$

$$B = +0.26$$

$$C = -0.0022$$

Einheit: $\text{J}/(\text{kg m}^3)$

Gültigkeitsbereich: $-20^{\circ}\text{C} \leq \vartheta \leq \vartheta_s$ oder 200°C

Maximaler Fehler: 0.16%

Spezifische Wärmekapazität

Quelle: Glück (1986)

$$c_{w,l} = A + B \cdot \vartheta + C \cdot \vartheta^2 + D \cdot \vartheta^3 \quad (\text{B.15})$$

$$A = +4174.785 \cdot 10^0$$

$$B = +1.785308 \cdot 10^{-2}$$

$$C = -5.097403 \cdot 10^{-4}$$

$$D = +4.216721 \cdot 10^{-5}$$

Einheit: $J/(kg K)$

Gültigkeitsbereich: $10^\circ C \leq \vartheta \leq \vartheta_s$ oder $200^\circ C$

Maximaler Fehler: 0.043%

Spezifische Verdampfungsenthalpie

Quelle: Glück (1986)

$$\Delta h_v = A + B \cdot \vartheta + C \cdot \vartheta^2 \quad (\text{B.16})$$

$$A = +2.5 \cdot 10^6$$

$$B = -2.0425 \cdot 10^3$$

$$C = -3.813 \cdot 10^0$$

Einheit: $J/(kg)$

Gültigkeitsbereich: $10^\circ C \leq \vartheta \leq 200^\circ C$

Maximaler Fehler: 0.3%

Sattdampfdruck

Quelle: Glück (1986)

$$p_{sat} = A \cdot \exp(B \cdot \vartheta + C \cdot \vartheta^2 + D \cdot \vartheta^3 + E \cdot \vartheta^4) \quad (\text{B.17})$$

$$A = +611$$

$$B = +7.257 \cdot 10^{-2}$$

$$C = -2.937 \cdot 10^{-4}$$

$$D = +9.810 \cdot 10^{-7}$$

$$E = -1.901 \cdot 10^{-9}$$

Einheit: Pa

Gültigkeitsbereich: $0.01^\circ C \leq \vartheta \leq 100^\circ C$

Maximaler Fehler: 0.02% ($\equiv 7Pa$)

B.2.3 Stoffwerte von Wasserdampf

Dichte

$$\rho_{w,g} = \frac{P \tilde{M}_w}{\tilde{R} T_g} = \frac{P}{R_w (273.14K + \vartheta)} \quad (\text{B.18})$$

Einheit: kg/m^3

Spezifische Wärmekapazität

Quelle: Glück (1986)

$$\begin{aligned}
 c_{w,g} &= A + B \cdot \vartheta + C \cdot \vartheta^2 + D \cdot \vartheta^3 & (B.19) \\
 A &= +1.862 \cdot 10^3 \\
 B &= +2.858485 \cdot 10^{-1} \\
 C &= +6.148483 \cdot 10^{-4} \\
 D &= -2.060606 \cdot 10^{-7}
 \end{aligned}$$

Einheit: $J/(kg K)$

Gültigkeitsbereich: $25^\circ C \leq \vartheta \leq 400^\circ C; 100 Pa \leq P \leq 1000 Pa$

Maximaler Fehler: 0.06%

Wärmeleitfähigkeit

Quelle: Glück (1986)

$$\begin{aligned}
 \lambda_{w,g} &= A + B \cdot \vartheta + C \cdot \vartheta^2 + D \cdot \vartheta^3 & (B.20) \\
 A &= +0.0170 \cdot 10^0 \\
 B &= +5.698384 \cdot 10^{-5} \\
 C &= +1.297172 \cdot 10^{-7} \\
 D &= -9.131313 \cdot 10^{-11}
 \end{aligned}$$

Einheit: $W/(m K)$

Gültigkeitsbereich: $25^\circ C \leq \vartheta \leq 400^\circ C; 100 Pa \leq P \leq 1000 Pa$

Maximaler Fehler: 0.14%

Dynamische Viskosität

Quelle: Glück (1986)

$$\begin{aligned}
 \eta_{w,g} &= A + B \cdot \vartheta + C \cdot \vartheta^2 + D \cdot \vartheta^3 & (B.21) \\
 A &= +9.16 \cdot 10^{-6} \\
 B &= +2.781303 \cdot 10^{-8} \\
 C &= +4.626970 \cdot 10^{-11} \\
 D &= -5.054545 \cdot 10^{-14}
 \end{aligned}$$

Einheit: $kg/(m s)$

Gültigkeitsbereich: $25^\circ C \leq \vartheta \leq 400^\circ C; 100 Pa \leq P \leq 1000 Pa$

Maximaler Fehler: 0.19%

Kinematische Viskosität

$$\nu_{w,g} = \frac{\eta_{w,g}}{\rho_{w,g}} \quad (B.22)$$

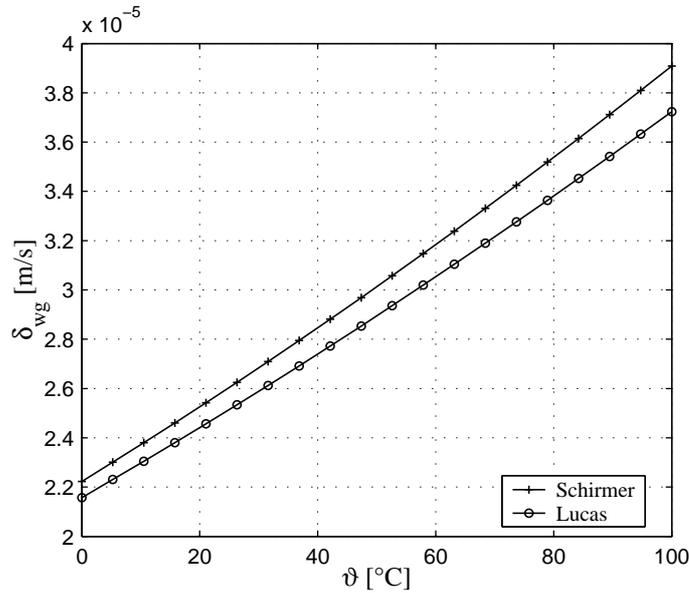


Abbildung B.1: Vergleich der Modelle von Schirmer (1938) und Lucas u. Luckas (1994) für $P = 100000 Pa$

Einheit: $m^2/(s)$

Prandtl-Zahl

$$Pr_{w,g} = \frac{\eta_{w,g} c_{w,g}}{\lambda_{w,g}} \quad (B.23)$$

Einheit: –

Diffusionskoeffizient von Wasserdampf in Luft

Quelle: Schirmer (1938)

$$\delta_{w,g} = \frac{2.252}{P} \left(\frac{\vartheta + 273.15 K}{273.15 K} \right)^{1.81} \quad (B.24)$$

Quelle: Lucas u. Luckas (1994)

$$\delta_{w,g} = \frac{0.01013 T^{1.75}}{P [(\Sigma \nu_w)^{1/3} (\Sigma \nu_g)^{1/3}]^2} \left(\frac{\tilde{M}_w + \tilde{M}_g}{\tilde{M}_w \tilde{M}_g} \right)^{1/2} \quad (B.25)$$

$\nu_w = 12.7$ für Wasser

$\nu_g = 20.1$ für Luft

Einheit: m^2/s

Anhang C

Stoff- und Wärmeübergangskoeffizienten

C.1 Stoff- und Wärmeübergang in der Wirbelschicht

C.1.1 Stoff- und Wärmeübergang zwischen Partikeln und Suspensionsgas

Quelle: Gnielinski (1980)

$$Re = \frac{Re_{mf}}{\psi_{mf}} \quad (C.1)$$

$$Sc = \frac{\nu_g}{\delta_{w,g}} \quad (C.2)$$

$$Sh_{lam} = 0.664Re^{1/2}Sc^{1/3} \quad (C.3)$$

$$Sh_{tur} = \frac{0,037Re^{0.8}Sc}{1 + 2.443Re^{-0.1}(Sc^{2/3} - 1)} \quad (C.4)$$

$$Sh_{Einzelkugel} = 2 + \sqrt{Sh_{lam}^2 + Sh_{tur}^2} \quad (C.5)$$

$$Sh_{ps} = [1 + 1.5(1 - \psi_{mf})] Sh_{Einzelkugel} \quad (C.6)$$

Die Werte für die Nusselt-Zahl werden aus der Analogie zwischen Wärme- und Stoffübergang berechnet.

$$Nu = Sh Le^{-(1/3)} \quad (C.7)$$

$$Le = \frac{\lambda_g}{c_g \rho_g \delta_g} \quad (C.8)$$

C.1.2 Wärmeübergang zwischen Partikeln und Wand

Quelle: Martin (1994)

$$Nu_{pw} = \frac{\alpha_{pw} d_p}{\lambda_g} = (1 - \psi) Z (1 - e^{-N}) \quad (C.9)$$

$$N = \frac{Nu_{pw,max}}{C_K Z} \quad (C.10)$$

$$Z = \frac{1}{6} \frac{\rho_p c_p}{\lambda_g} \sqrt{\frac{g d_p^3 (\psi - \psi_{mf})}{5(1 - \psi_{mf})(1 - \psi)}} \quad (C.11)$$

$$C_K = 2.6 \quad (C.12)$$

$$Nu_{pw,max} = 4 \left[\left(1 + \frac{2l}{d_p} \right) \ln \left(1 + \frac{d_p}{2l} \right) - 1 \right] \quad (C.13)$$

$$l = 2 \left(\frac{2}{\gamma} - 1 \right) \Lambda \quad (C.14)$$

$$\Lambda = \sqrt{\frac{2\pi \tilde{R} T}{\tilde{M}_g}} \frac{\lambda_g}{P(2c_g - \tilde{R}/\tilde{M}_g)} \quad (C.15)$$

$$\lg \left(\frac{1}{\gamma} - 1 \right) = 0.6 - \left(\frac{1000K}{T_g} + 1 \right) / C_A \quad (C.16)$$

$$C_A = 2.8 \quad (C.17)$$

C.1.3 Wärmeübergang zwischen Wand und Umgebung

Quelle: Churchill u. Chu (1975) (senkrechte Platte)

$$Nu_{we} = \frac{\alpha_{we} L_{bed}}{\lambda_g} = (0.825 + 0.387 [Ra f_1(Pr)]^{1/8})^2 \quad (C.18)$$

$$Ra = Gr Pr = \frac{\beta_g g L_{max}^3 (T_w - T_e)}{\nu_g} \quad (C.19)$$

$$\beta_g = \frac{2}{T_w + T_e} \quad (C.20)$$

$$f_1(Pr) = \left[1 + \left(\frac{0.492^{9/16}}{Pr} \right) \right]^{-16/9} \quad (C.21)$$

C.1.4 Wärmeübergang zwischen Gas und Wand

Quelle: Baskakov u. a. (1973)

$$Nu_{gw} = \frac{\alpha_{gw} d_p}{\lambda_g} = \begin{cases} 0.009 Pr^{1/3} Ar^{1/2} \left(\frac{u}{u_{opt}} \right)^{0.3} & \text{für } u_{mf} < u_0 < u_{opt} \\ 0.009 Pr^{1/3} Ar^{1/2} & \text{für } u_{opt} < u_0 < u_{elu} \end{cases} \quad (C.22)$$

$$Re_{opt} = \frac{u_{opt} d_p}{\nu_g} = 7.5 \left(\frac{g d_p^3}{\nu_g^2} \right)^{0.45} \quad (C.23)$$

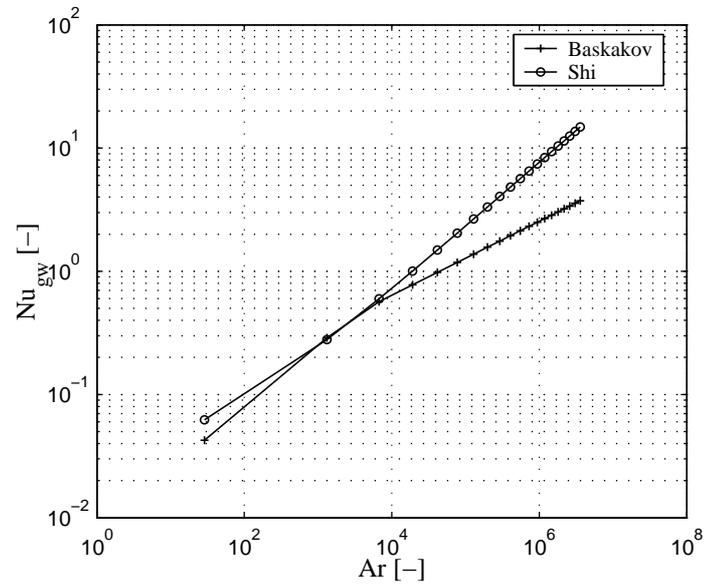


Abbildung C.1: Vergleich der Modelle von Baskakov u. a. (1973) und Shi für $T_g = 50^\circ\text{C}$, $Re_0 = 10$, $\rho_p = 1000\text{kg/m}^3$ und $d_p = 0.1 - 5\text{mm}$

Quelle: Shi (1997)

$$Nu_{gw} = \left[0.005Re_{elu} + 0.06Re_{elu}^{1/3} \right] Pr^{1/3} \quad (\text{C.24})$$

Anhang D

Durchflussmessung mittels Blende

Quelle: *ENISO5167 – 1* - Durchflussmessung von Fluiden mit Drosselgeräten

Die folgende Berechnungsvorschrift bezieht sich auf Messungen mit D - und $D/2$ -Druckentnahmen. Hierfür gelten folgende Einschränkungen

- Durchmesser der Blende $d \geq 12.5\text{mm}$
- Innendurchmesser des Rohres $50\text{mm} \leq D \leq 1000\text{mm}$
- Durchmesser Verhältnis $0.2 \leq \beta = d/D \leq 0.75$
- Reynolds-Zahl bezogen auf den Innendurchmesser des Rohres $Re_D > 1260\beta^2 D$

$$\dot{m} = \frac{C}{\sqrt{1-\beta^4}} \varepsilon_1 \frac{\pi}{4} d^2 \sqrt{2\Delta p \rho_1} \quad (\text{D.1})$$

$$C = 0.5959 + 0.0312\beta^{2.1} - 0.184\beta^8 + 0.0029\beta^{2.5} \left(\frac{10^6}{Re_D} \right)^{0.75} + \\ + 0.09L_1 \frac{\beta^4}{(1-\beta^4)} - 0.0337L_2\beta^3 \quad (\text{D.2})$$

$$\beta = D/d \quad (\text{D.3})$$

$$L_1 = l_1/D = 1.00 \quad \text{für } D\text{- und } D/2\text{-Druckentnahmen} \quad (\text{D.4})$$

$$L_2 = l_2/D = 0.47 \quad \text{für } D\text{- und } D/2\text{-Druckentnahmen} \quad (\text{D.5})$$

$$\varepsilon_1 = 1 - (0.41 + 0.35\beta^4) \frac{\Delta p}{\kappa p_1} \quad (\text{D.6})$$

Anhang E

Normierte Partikelgrößencharakterisierung

E.1 Normierte Summen- und Dichteverteilung

Um Partikelgrößenverteilungen unterschiedlicher Proben miteinander vergleichen zu können, müssen sie in normierter Form dargestellt werden. Die normierte Summenverteilung $Q(x)$ beschreibt den normierten Anteil einer Materialmenge von der Gesamtmenge, deren Größe kleiner als x ist. Sie ist in einem Bereich von der minimalen Größe $x_{min} > 0$ und der maximalen Größe $x_{max} < \infty$ definiert. Für diese normierte Summenverteilung lassen sich folgenden Eigenschaften festhalten:

- Die Summenverteilung ist monoton nicht fallend, das heißt für $x_2 > x_1$ muss $Q(x_2) \geq Q(x_1)$ gelten.
- Die Summenverteilung ist stetig.
- Es gelten die Normierungsbedingungen $Q(x \leq x_{min}) = 0$ und $Q(x \geq x_{max}) = 1$.

Die Dichteverteilung $q(x)$ ergibt sich aus der Ableitung der Summenverteilung nach x

$$\frac{dQ(x)}{dx} = q(x) \quad . \quad (E.1)$$

Für eine diskrete Summenverteilung kann die Dichteverteilung aus dem Differenzenquotienten ermittelt werden

$$\frac{Q(x_{i+1}) - Q(x_i)}{x_{i+1} - x_i} = q(\bar{x}_i) \quad . \quad (E.2)$$

Der Durchmesser \bar{x}_i bezeichnet dabei die Mitte eines Intervalls zwischen x_{i+1} und x_i und ergibt sich aus

$$\bar{x}_i = \frac{x_{i+1} + x_i}{2} \quad . \quad (E.3)$$

Demzufolge ist die diskrete Summenverteilung stets für die Grenzen eines Intervalls darzustellen, während bei der diskreten Dichteverteilung stets die Klassenmitte eines Intervalls gegen

Tabelle E.1: Index zur Kennzeichnung der Mengenart

Index	Mengenart	Dimension
$r = 0$	Anzahl	L^0
$r = 1$	Länge	L^1
$r = 2$	Fläche	L^2
$r = 3$	Masse / Volumen	L^3

den entsprechenden Wert aufzutragen ist. Zur weiteren Kennzeichnung der Verteilungsart wird ein Index r eingeführt. Der Index ist direkt einer Mengenart zugeordnet, wie Tabelle E.1 zu entnehmen ist. Die häufigsten Verteilungen sind die Anzahldichteverteilung bzw. Anzahlsummenverteilung ($r=0$) sowie die Massendichteverteilung bzw. Massensummenverteilung ($r=3$), da diese einfach durch Zählung bzw. Wägung der einzelnen Fraktionen zu ermitteln sind. Die Verteilungen der Anzahl lassen sich durch Zählen bestimmen, während die der Masse durch Wiegen ermittelbar sind.

E.2 Momentenbegriff

Das vollständige j -te Moment einer Dichteverteilung mit dem Index r sei durch

$$M_{j,r} = \int_0^{\infty} x^j q_r(x) dx \quad (\text{E.4})$$

definiert. Das Moment wird als vollständig bezeichnet, da über alle Partikelgrößen der Verteilung integriert wird. Mit der Normierungsbedingung kann für dieses Moment auch

$$M_{j,r} = \int_{x_{min}}^{x_{max}} x^j q_r(x) dx \quad (\text{E.5})$$

geschrieben werden. Für das 0-te Moment einer beliebigen Verteilung gilt stets $M_{0,r} = 1$. Das Moment, welches sich aus der Integration eines Intervalls ergibt und zwischen x_{min} und x_{max} liegt, bezeichnet man als *unvollständiges* Moment. Oftmals ist es nötig, aus einer gegebenen Anzahldichteverteilung q_0 das vollständige k -te Moment der Dichteverteilung einer anderen Mengenart zu ermitteln. Für diese Berechnung ist es jedoch notwendig, den Mengenbeitrag der Partikel in ein bestimmtes Verhältnis zur Größe x setzen können. Wenn die Partikelform nicht von der Größe der Partikel abhängig ist, gilt für das Partikelvolumen V

$$x^3 \sim V \quad . \quad (\text{E.6})$$

Dementsprechend kann die Beziehung zwischen der Größe bzw. der Oberfläche aufgestellt werden

$$x^2 \sim A \quad . \quad (\text{E.7})$$

Durch die beschriebenen Voraussetzungen ist es beispielsweise möglich, eine beliebige q_{r-j} -Dichteverteilung aus einer Dichteverteilung q_j zu berechnen

$$q_{r-j} = \frac{x^{r-j} q_j(x)}{M_{r-j,j}} \quad . \quad (\text{E.8})$$

Für $j = 0$ gilt

$$q_r(x) = \frac{x^r q_0(x)}{M_{r,0}} \quad . \quad (\text{E.9})$$

Indem man Gleichung (E.9) in die Definitionsgleichung des vollständigen Momentes den Ausdruck (E.4) einsetzt, erhält man den Ausdruck

$$M_{j,r} = \int_{x_{min}}^{x_{max}} x^j \frac{x^r q_0(x)}{M_{r,0}} dx \quad , \quad (\text{E.10})$$

welcher sich sich zu

$$M_{j,r} = \frac{1}{M_{r,0}} \int_{x_{min}}^{x_{max}} x^j x^r q_0(x) dx = \frac{M_{j+r,0}}{M_{r,0}} \quad (\text{E.11})$$

umformen lässt. Mit Hilfe der Gleichung (E.11) kann nun ein beliebiges Moment physikalisch gedeutet werden. So entspricht zum Beispiel das Moment $M_{-1,3}$ dem Verhältnis der Momente $M_{2,0}$ und $M_{3,0}$, sprich dem Verhältnis von Oberfläche und Volumen.

Anhang F

Ermittlung des Messfehlers

Das vollständige Messergebnis x wird durch den Mittelwert \bar{x} und die Messunsicherheit $\Delta\bar{x}$ wiedergegeben

$$x = \bar{x} \pm \Delta\bar{x} \quad , \quad (\text{F.1})$$

wobei sich die Messunsicherheit aus einem zufälligen Fehler $\Delta\bar{x}_{ran}$, welcher auch als Vertrauensbereich bezeichnet wird, und einer systematischer Komponente $\Delta\bar{x}_{sys}$ zusammensetzt

$$\Delta\bar{x} = \Delta\bar{x}_{ran} + \Delta\bar{x}_{sys} \quad . \quad (\text{F.2})$$

Die Größe des Vertrauensbereichs $\Delta\bar{x}_{ran}$ hängt von dem Vertrauensniveau und der Zahl der Messwerte k ab. Bei einer großen Anzahl von Messwerten x_i einer Messung ergibt sich die in der Abbildung F.1 dargestellte Gauss'sche Fehlerkurve. Ein charakteristischer Punkt ist die Breite 2σ zwischen den Wendepunkten der Kurve. Für eine hinreichende Anzahl k von Messwerten gilt für σ

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{k-1} \sum_{i=1}^k (x_i - \bar{x})^2} \quad , \quad (\text{F.3})$$

wobei sich das arithmetische Mittel \bar{x} aus den Messwerten x_i

$$\bar{x} = \frac{1}{k} \sum_{i=1}^k x_i \quad (\text{F.4})$$

berechnen lässt. Die Standardabweichung berücksichtigt jedoch nicht, dass mit zunehmender Anzahl von Messwerten, die Differenz zwischen dem Mittelwert \bar{x} und dem wahren Messwert kleiner wird. Die Theorie besagt, dass

- 68.3% der Messwerte in $\bar{x} \pm \sigma$,
- 95.4% der Messwerte in $\bar{x} \pm 2\sigma$ und
- 99.7% der Messwerte in $\bar{x} \pm 3\sigma$

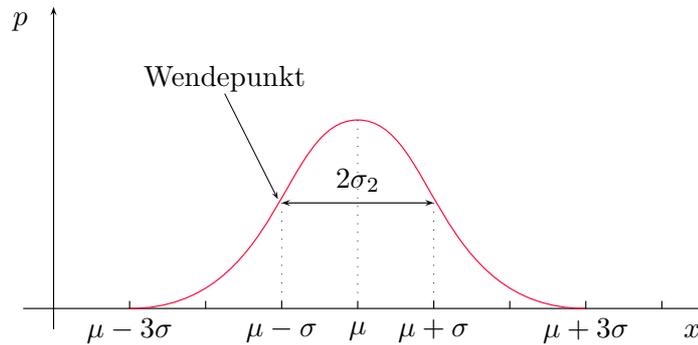


Abbildung F.1: Gauss'sche Fehlerkurve

Tabelle F.1: Studentfaktor ζ in Abhängigkeit vom Vertrauensniveau $(1 - \alpha)$ und der Stichprobenanzahl k nach Walcher (1989)

$(1 - \alpha)$	68.27%	95%	99.73%
k	ζ	ζ	ζ
3	1.32	4.3	19.2
5	1.15	2.8	6.6
10	1.06	2.3	4.1
20	1.03	2.1	3.4
30	1.02	2.05	3.3
100	1.00	2.0	3.1
∞	1.00	1.96	3

liegen. Wie erwähnt, nimmt mit wachsender Zahl von k die Vertrauenswürdigkeit der Messung zu. Durch die Berechnung des mittleren statistischen Fehlers σ_m

$$\sigma_m = \frac{\sigma}{\sqrt{k}} = \sqrt{\frac{1}{k(k-1)} \sum_{i=1}^k (x_i - \bar{x})^2} \quad (\text{F.5})$$

wird dieser Einfluss berücksichtigt. Mit Hilfe des entsprechenden Vertrauensbereiches $(1 - \alpha)$ und σ_m kann aus der Tabelle F.1 der Koeffizient ζ zur Berechnung des zufälligen Fehlers

$$\Delta \bar{x}_{ran} = \zeta \cdot \sigma_m \quad (\text{F.6})$$

bestimmt werden.

Anhang G

Messwerte und Simulationsergebnisse

G.1 Messwerte Partikelgrößenverteilung

Im Folgenden sind die ermittelten Partikelgrößenverteilungen der einzelnen Versuche entsprechend Tabelle 4.5 aufgeführt. Die Darstellung in Tabellenform erfolgt jeweils für die kummulative normierte Anzahlverteilung Q_0 .

G.2 Messwerte Partikelfeuchtemessung

Im Folgenden sind die ermittelten Partikelfeuchten der diskontinuierlichen Probenahme dargestellt. Gleichzeitig sind die zu den entsprechenden Zeitpunkten gemessenen Größen wie die Eindüsungsmenge \dot{m}_{np} , die Gasaustrittstemperatur $\vartheta_{g,out}$ sowie die Eintritts- und Austrittsbeladungen Y_{in} bzw. Y_{out} aufgeführt. Zur vergleichenden Darstellung mit den Adsorptionsisothermen des Versuchsgutes erfolgte eine Berechnung der relative Luftfeuchte φ . Dabei wurde die Gasaustrittstemperatur sowie der arithmetische Mittelwert aus Eintritts- und Austrittsbeladung zugrunde gelegt.

Tabelle G.21: Messwerte der diskontinuierlichen Partikelfeuchtemessung

Versuch/Probe	$t[sec]$	$\dot{m}_{np}[g/s]$	$\vartheta_{g.in}[^{\circ}C]$	$Y_{in}[g/kg]$	$Y_{out}[g/kg]$	$\phi[\%]$	$X[g/kg]$
220404A							
1	360	0.127	42.16	7.42	13.78	20.52	40.0
2	480	0.128	40.42	7.44	14.37	23.14	48.5
3	600	0.128	39.77	7.44	14.45	24.03	47.3
4	720	0.128	39.28	7.41	14.46	24.65	48.0
5	840	0.132	39.27	7.45	14.44	24.69	54.3
6	960	0.123	39.23	7.49	14.56	24.91	48.3
7	1080	0.127	39.09	7.50	14.50	25.04	47.3
8	1200	0.128	39.15	7.54	14.42	24.93	48.3
9	1320	0.127	38.93	7.53	14.51	25.31	51.9
220404B							
1	360	0.127	42.73	7.57	14.08	20.34	50.6
2	480	0.128	41.00	7.53	14.51	22.67	43.7
3	600	0.128	40.31	7.60	14.66	23.74	46.9
4	720	0.126	40.02	7.72	14.91	24.50	48.5
5	840	0.126	39.92	7.72	14.89	24.62	46.5
6	960	0.129	39.72	7.67	14.89	24.82	46.6
7	1080	0.126	39.66	7.56	14.70	24.58	50.8
8	1200	0.127	39.76	7.59	14.72	24.50	52.3
9	1320	0.127	39.55	7.46	14.78	24.70	45.5
220404C							
1	360	0.127	36.39	7.10	12.81	26.28	56.6
2	480	0.127	34.20	7.12	13.60	30.84	55.6
3	600	0.128	33.38	7.09	13.69	32.37	54.4
4	720	0.126	32.75	7.09	13.78	33.67	55.0
5	840	0.125	32.37	7.03	13.70	34.18	60.6
6	960	0.128	32.09	7.03	13.67	34.67	62.5
7	1080	0.126	31.79	7.03	13.65	35.23	63.5
8	1200	0.126	31.53	6.97	13.75	35.82	57.1

Weiter auf nächster Seite

Versuch/Probe	$t[sec]$	$\dot{m}_{np}[g/s]$	$\vartheta_{g.in}[^{\circ}C]$	$Y_{in}[g/kg]$	$Y_{out}[g/kg]$	$\phi[\%]$	$X[g/kg]$
9	1320	0.132	31.45	7.01	13.84	36.20	65.0
220404D							
1	360	0.128	35.58	6.93	13.13	27.68	59.7
2	480	0.126	33.64	6.89	13.59	31.44	46.8
3	600	0.126	32.78	6.87	13.65	33.06	49.3
4	720	0.126	32.21	6.89	13.69	34.24	52.6
5	840	0.126	31.85	6.93	13.76	35.14	62.2
6	960	0.130	31.58	6.95	13.81	35.80	53.9
7	1080	0.123	31.21	6.89	13.77	36.38	59.6
8	1200	0.128	31.34	7.00	13.91	36.53	61.9
9	1320	0.125	31.05	7.00	13.93	37.18	65.8
260404A							
1	360	0.128	36.95	6.66	13.29	25.54	52.4
2	480	0.128	35.93	6.73	13.68	27.61	52.0
3	600	0.128	35.45	6.73	13.88	28.62	50.6
4	720	0.130	35.06	6.73	13.82	29.16	52.6
5	840	0.126	34.67	6.74	13.87	29.89	50.8
6	960	0.128	34.71	6.80	13.90	29.96	54.1
7	1080	0.127	34.61	6.68	13.91	29.96	57.5
8	1200	0.129	34.56	6.70	13.91	30.06	54.3
9	1320	0.128	34.62	6.68	13.92	29.95	54.2
280404A							
1	360	0.128	38.57	6.01	13.23	22.58	52.4
2	480	0.128	36.25	6.05	13.91	26.54	52.0
3	600	0.128	35.74	6.03	13.82	27.15	50.6
4	720	0.130	35.04	6.09	13.99	28.54	52.6
5	840	0.126	34.75	6.10	14.00	29.03	50.8
6	960	0.128	34.54	6.12	14.02	29.42	54.1
7	1080	0.127	34.35	6.18	14.06	29.88	57.5
8	1200	0.129	34.14	6.10	14.06	30.12	54.3
9	1320	0.128	34.16	6.16	14.13	30.27	54.2
280404B							
1	360	0.131	35.09	6.31	13.68	28.34	68.2
2	480	0.132	32.73	6.31	14.08	32.94	53.3
3	600	0.134	31.65	6.34	14.13	35.16	51.9
4	720	0.130	30.92	6.37	14.17	36.76	47.9
5	840	0.132	30.44	6.38	14.18	37.83	59.2
6	960	0.132	30.11	6.38	14.26	38.70	64.0
7	1080	0.134	29.93	6.37	14.22	39.00	61.6
8	1200	0.132	29.71	6.39	14.18	39.46	72.5
						Weiter auf nächster Seite	

Versuch/Probe	$t[sec]$	$\dot{m}_{np}[g/s]$	$\vartheta_{g.in}[^{\circ}C]$	$Y_{in}[g/kg]$	$Y_{out}[g/kg]$	$\phi[\%]$	$X[g/kg]$
9	1320	0.132	29.49	6.39	14.16	39.92	63.8
10	1440	0.137	29.32	6.44	14.18	40.46	73.0
11	1560	0.125	29.36	6.41	14.17	40.27	72.5
280404C							
1	360	0.131	34.48	6.47	13.58	29.40	61.5
2	480	0.133	32.32	6.52	14.11	34.11	53.1
3	600	0.131	31.21	6.50	14.23	36.51	61.5
4	720	0.133	30.33	6.52	14.31	38.56	57.0
5	840	0.131	30.45	6.60	14.31	38.43	65.0
6	960	0.133	30.07	6.55	14.33	39.22	66.7
7	1080	0.132	29.57	6.53	14.39	40.44	65.6
8	1200	0.131	29.54	6.53	14.36	40.46	64.7
9	1320	0.131	29.20	6.53	14.30	41.13	63.3
10	1440	0.135	29.11	6.51	14.34	41.39	69.9
11	1560	0.129	28.98	6.55	14.32	41.74	70.9
300404A							
1	360	0.132	39.28	6.00	13.14	21.61	53.3
2	480	0.136	37.33	6.01	13.52	24.49	47.2
3	600	0.134	36.40	6.07	13.65	26.01	55.6
4	720	0.136	35.99	6.12	13.67	26.70	50.4
5	840	0.134	35.45	6.14	13.69	27.55	47.2
6	960	0.133	35.17	6.17	13.76	28.14	54.9
7	1080	0.137	35.06	6.17	13.79	28.34	50.0
8	1200	0.131	34.83	6.21	13.84	28.83	50.0
9	1320	0.134	34.77	6.23	13.82	28.92	53.2
10	1440	0.135	34.72	6.25	13.76	28.94	48.6
11	1560	0.133	34.54	6.22	13.76	29.20	55.1
300404B							
1	360	0.134	39.49	6.39	13.31	21.98	56.2
2	480	0.134	37.18	6.42	13.78	25.54	49.2
3	600	0.133	36.32	6.39	13.79	26.73	54.7
4	720	0.132	35.61	6.47	14.02	28.20	58.3
5	840	0.134	35.35	6.53	13.92	28.56	51.4
6	960	0.131	35.14	6.50	14.04	29.02	51.9
7	1080	0.133	34.96	6.50	14.06	29.35	43.2
8	1200	0.132	34.68	6.54	14.01	29.78	47.6
9	1320	0.135	34.86	6.48	13.99	29.38	56.9
10	1440	0.133	34.47	6.58	14.04	30.23	59.7
11	1560	0.132	34.30	6.58	14.09	30.59	60.3
060504A							

Weiter auf nächster Seite

Versuch/Probe	$t[sec]$	$\dot{m}_{np}[g/s]$	$\vartheta_{g.in}[^{\circ}C]$	$Y_{in}[g/kg]$	$Y_{out}[g/kg]$	$\phi[\%]$	$X[g/kg]$
1	360	0.131	42.63	8.45	15.17	22.27	59.7
2	480	0.134	40.05	8.41	16.28	26.65	45.5
3	600	0.134	39.23	8.46	16.58	28.22	46.5
4	720	0.134	38.70	8.49	16.54	29.03	46.7
5	840	0.135	38.39	8.46	16.57	29.52	63.6
6	960	0.134	38.35	8.49	16.63	29.68	49.2
7	1080	0.134	38.26	8.56	16.69	29.98	46.4
8	1200	0.134	38.08	8.51	16.64	30.16	51.5
9	1320	0.134	37.90	8.51	16.59	30.39	55.9
10	1440	0.131	37.86	8.55	16.63	30.54	51.9
11	1560	0.138	37.88	8.52	16.49	30.32	62.1
<hr/>							
060504B							
1	360	0.134	42.51	8.67	15.86	23.25	39.2
2	480	0.134	40.73	8.69	16.31	26.02	51.3
3	600	0.139	39.90	8.78	16.44	27.42	55.8
4	720	0.128	39.41	8.78	16.39	28.10	48.8
5	840	0.132	39.04	8.83	16.44	28.77	50.8
6	960	0.135	38.75	8.76	16.51	29.23	53.7
7	1080	0.133	38.57	8.78	16.44	29.45	49.6
8	1200	0.134	38.30	8.85	16.53	30.07	57.7
9	1320	0.134	38.61	8.82	16.45	29.44	58.4
10	1440	0.133	38.52	8.83	16.63	29.81	57.1
11	1560	0.136	38.38	8.90	16.55	30.02	48.0
<hr/>							
180504A							
1	360	0.128	42.88	8.05	16.15	22.51	55.2
2	480	0.128	40.66	8.06	16.64	25.81	39.7
3	600	0.128	39.69	8.09	16.76	27.34	44.2
4	720	0.128	38.94	8.03	16.84	28.48	50.3
5	840	0.131	38.61	8.07	16.81	29.00	59.3
6	960	0.135	38.01	8.13	17.15	30.42	56.3
7	1080	0.117	37.82	8.13	17.22	30.82	56.6
8	1200	0.127	37.64	8.23	17.20	31.22	51.9
9	1320	0.127	37.44	8.19	17.35	31.70	49.3
<hr/>							
180504B							
1	360	0.128	41.03	7.78	16.19	24.58	57.3
2	480	0.125	39.34	7.80	16.62	27.38	51.7
3	600	0.128	38.50	7.78	16.80	28.83	58.1
4	720	0.127	37.93	7.76	16.72	29.61	60.2
5	840	0.128	37.74	7.72	16.94	30.12	58.4
6	960	0.125	37.36	7.76	16.89	30.75	56.0

Weiter auf nächster Seite

Versuch/Probe	$t[sec]$	$\dot{m}_{np}[g/s]$	$\vartheta_{g.in}[^{\circ}C]$	$Y_{in}[g/kg]$	$Y_{out}[g/kg]$	$\phi[\%]$	$X[g/kg]$
7	1080	0.127	37.25	7.73	16.68	30.63	64.0
8	1200	0.128	37.09	7.67	16.72	30.87	65.8
9	1320	0.126	36.95	7.66	16.71	31.08	60.6
190504A							
1	360	0.124	38.67	6.25	14.64	24.35	56.6
2	480	0.128	36.32	6.28	15.51	28.82	48.9
3	600	0.128	35.19	6.26	15.62	30.79	58.8
4	720	0.187	34.56	6.30	15.67	32.01	57.8
5	840	0.069	34.04	6.33	15.71	33.07	62.0
6	960	0.135	33.82	6.32	15.68	33.40	62.2
7	1080	0.120	33.58	6.28	15.61	33.69	59.5
8	1200	0.130	33.41	6.27	15.57	33.93	63.6
9	1320	0.126	33.10	6.27	15.44	34.33	65.0
190504B							
1	360	0.127	37.98	5.98	14.47	24.74	62.1
2	480	0.128	35.48	6.00	15.24	29.43	52.9
3	600	0.125	34.48	6.07	15.37	31.40	58.4
4	720	0.129	33.89	6.07	15.44	32.55	64.7
5	840	0.127	33.57	6.13	15.50	33.31	56.7
6	960	0.126	33.17	6.14	15.44	34.01	66.4
7	1080	0.128	32.86	6.18	15.50	34.75	69.0
8	1200	0.125	32.81	6.18	15.38	34.66	66.3
9	1320	0.127	32.57	6.18	15.45	35.24	70.3
260504A							
1	360	0.134	36.95	6.66	13.29	25.54	26.1
2	480	0.131	35.93	6.73	13.68	27.61	38.2
3	600	0.131	35.45	6.73	13.88	28.62	56.3
4	720	0.136	35.06	6.73	13.82	29.16	57.9
5	840	0.128	34.67	6.74	13.87	29.89	57.1
6	960	0.134	34.71	6.80	13.90	29.96	52.6
7	1080	0.131	34.61	6.68	13.91	29.96	60.1
8	1200	0.137	34.56	6.70	13.91	30.06	55.2
9	1320	0.128	34.62	6.68	13.92	29.95	55.2
10	1440	0.128	41.27	6.70	8.13	15.11	56.4
11	1560	0.134	44.89	6.72	6.76	11.40	60.6
260504B							
1	360	0.134	38.57	6.01	13.23	22.58	25.6
2	480	0.135	36.25	6.05	13.91	26.54	37.9
3	600	0.135	35.74	6.03	13.82	27.15	55.9
4	720	0.143	35.04	6.09	13.99	28.54	57.8

Weiter auf nächster Seite

Versuch/Probe	$t[sec]$	$\dot{m}_{np}[g/s]$	$\vartheta_{g.in}[^{\circ}C]$	$Y_{in}[g/kg]$	$Y_{out}[g/kg]$	$\phi[\%]$	$X[g/kg]$
5	840	0.121	34.75	6.10	14.00	29.03	56.6
6	960	0.132	34.54	6.12	14.02	29.42	52.5
7	1080	0.133	34.35	6.18	14.06	29.88	59.6
8	1200	0.136	34.14	6.10	14.06	30.12	54.6
9	1320	0.143	34.16	6.16	14.13	30.27	55.1
10	1440	0.151	40.90	6.14	8.00	14.71	55.9
11	1560	0.102	45.14	6.17	6.39	10.49	60.2
270504A							
1	360	0.134	37.93	6.25	14.72	25.43	50.9
2	480	0.135	35.50	6.26	15.29	29.82	55.2
3	600	0.133	34.40	6.29	15.40	31.90	37.6
4	720	0.134	33.86	6.38	15.51	33.18	60.8
5	840	0.136	33.31	6.37	15.59	34.31	54.3
6	960	0.133	32.96	6.37	15.62	35.04	62.2
7	1080	0.137	32.84	6.42	15.77	35.59	60.1
8	1200	0.131	32.51	6.42	15.60	35.97	56.5
9	1320	0.135	32.12	6.39	15.51	36.59	46.5
10	1440	0.130	31.96	6.39	15.54	36.98	58.8
11	1560	0.144	31.86	6.45	15.63	37.43	51.1
270504B							
1	360	0.132	38.66	6.15	13.63	23.08	57.6
2	480	0.134	35.17	6.14	15.09	29.92	33.8
3	600	0.133	33.85	6.17	15.34	32.63	52.6
4	720	0.125	33.06	6.19	15.41	34.23	67.0
5	840	0.142	32.50	6.15	15.45	35.34	69.0
6	960	0.134	32.21	6.19	15.39	35.89	66.3
7	1080	0.133	31.89	6.16	15.50	36.66	56.3
8	1200	0.132	31.61	6.12	15.34	36.92	63.9
9	1320	0.125	31.47	6.12	15.38	37.29	75.5
10	1440	0.143	31.30	6.09	15.45	37.70	64.1
11	1560	0.131	31.07	6.12	15.42	38.22	72.8

G.3 Vergleich Messung - Simulation

G.3.1 Validierung des Agglomerationsmodells

Die im Folgenden dargestellten Ergebnisse wurden mit der im Abschnitt 4.4.2.1 beschriebenen Methode berechnet. Die verwendeten Agglomerationskonstanten sind in der Tabelle 4.7 zusammengefasst.

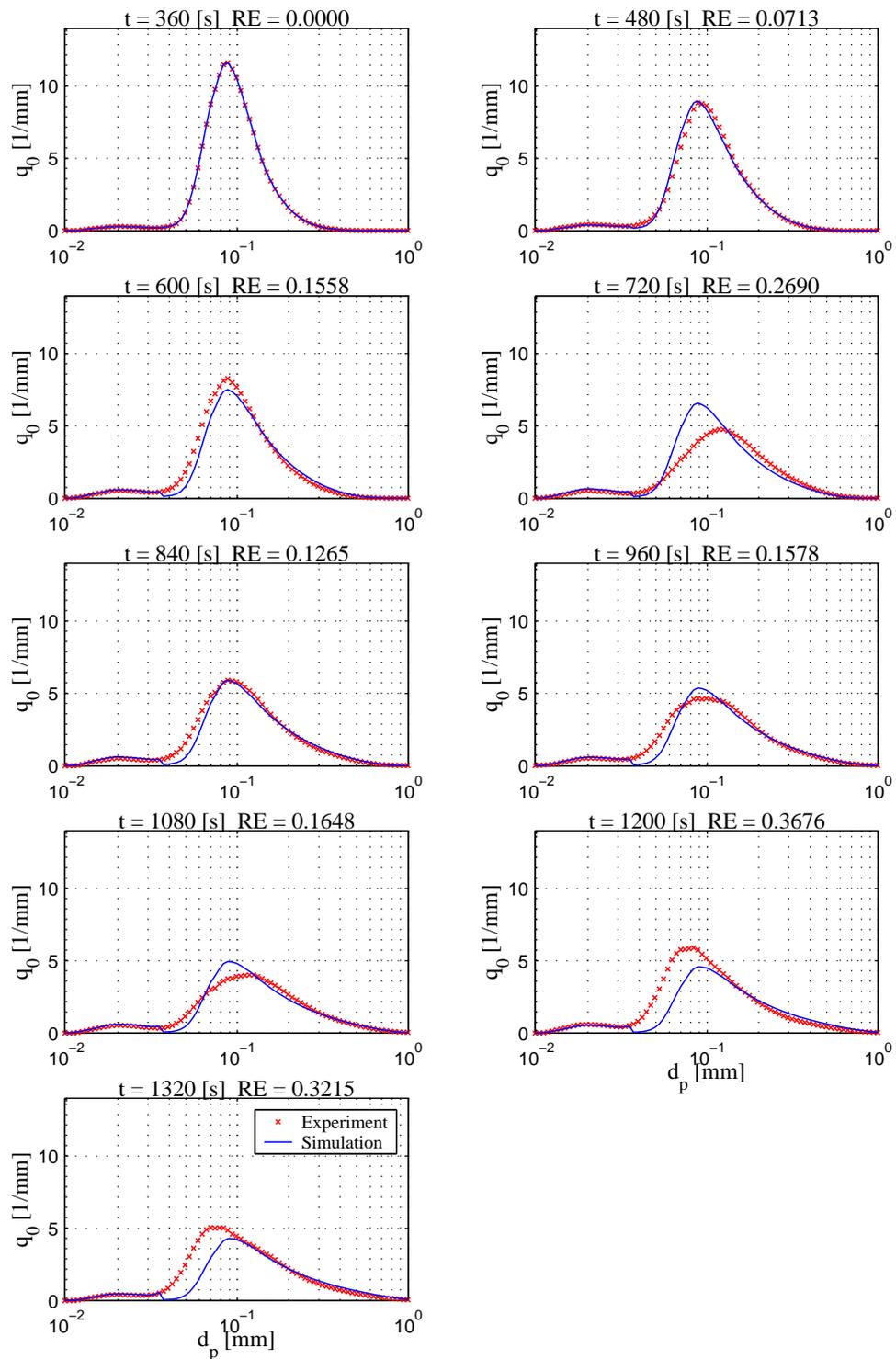


Abbildung G.1: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 220404A

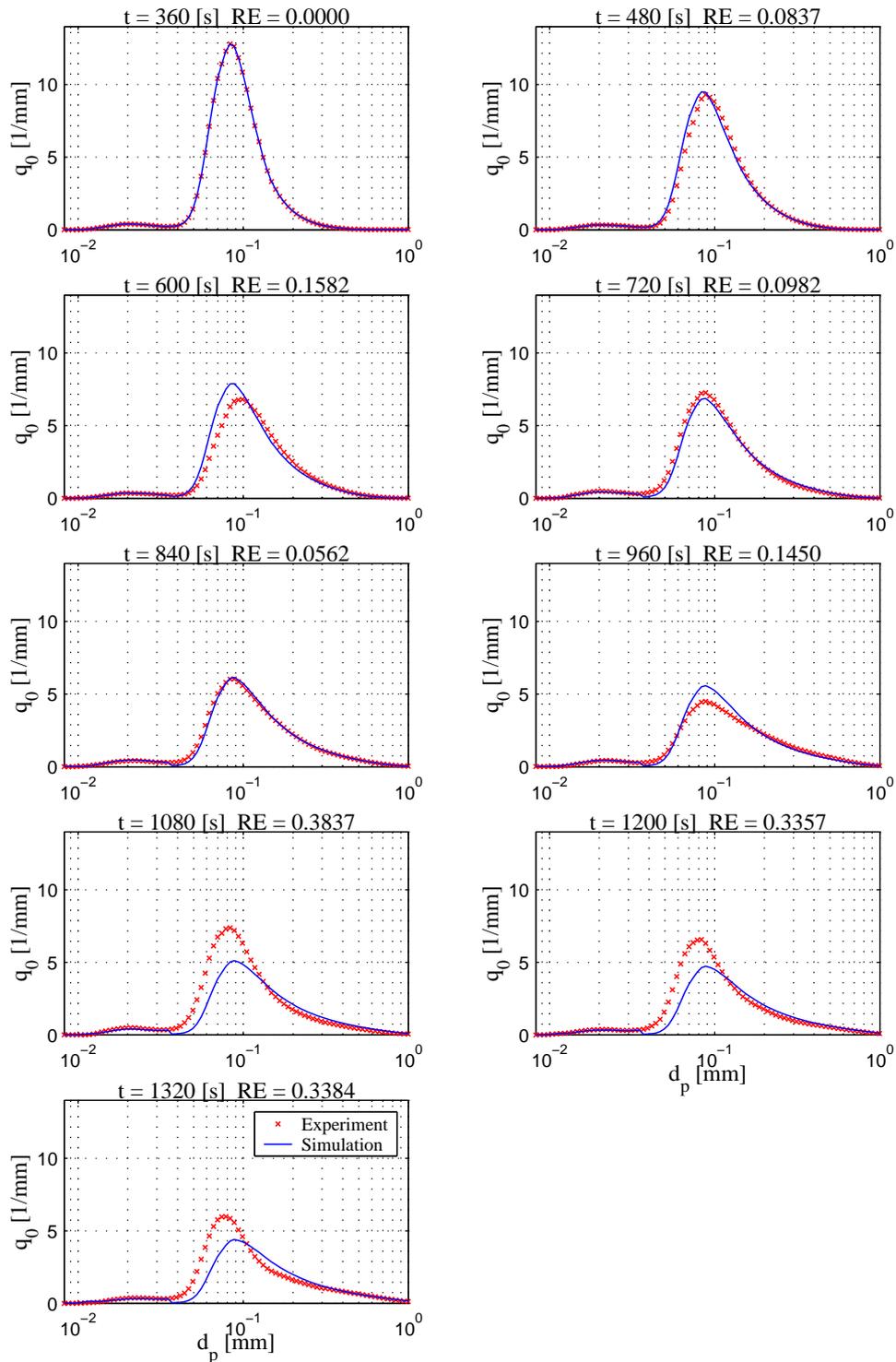


Abbildung G.2: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 220404B

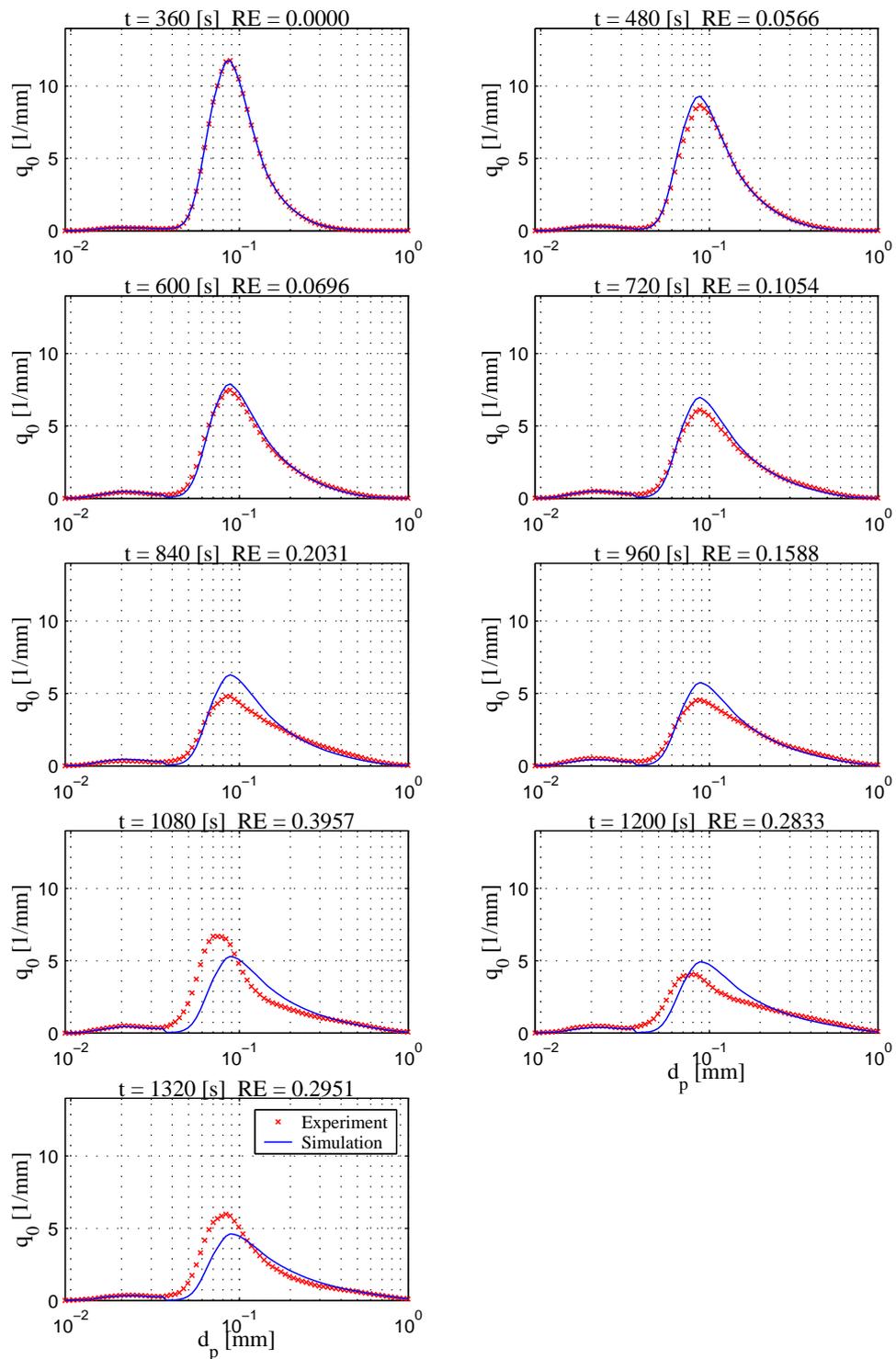


Abbildung G.3: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 220404C

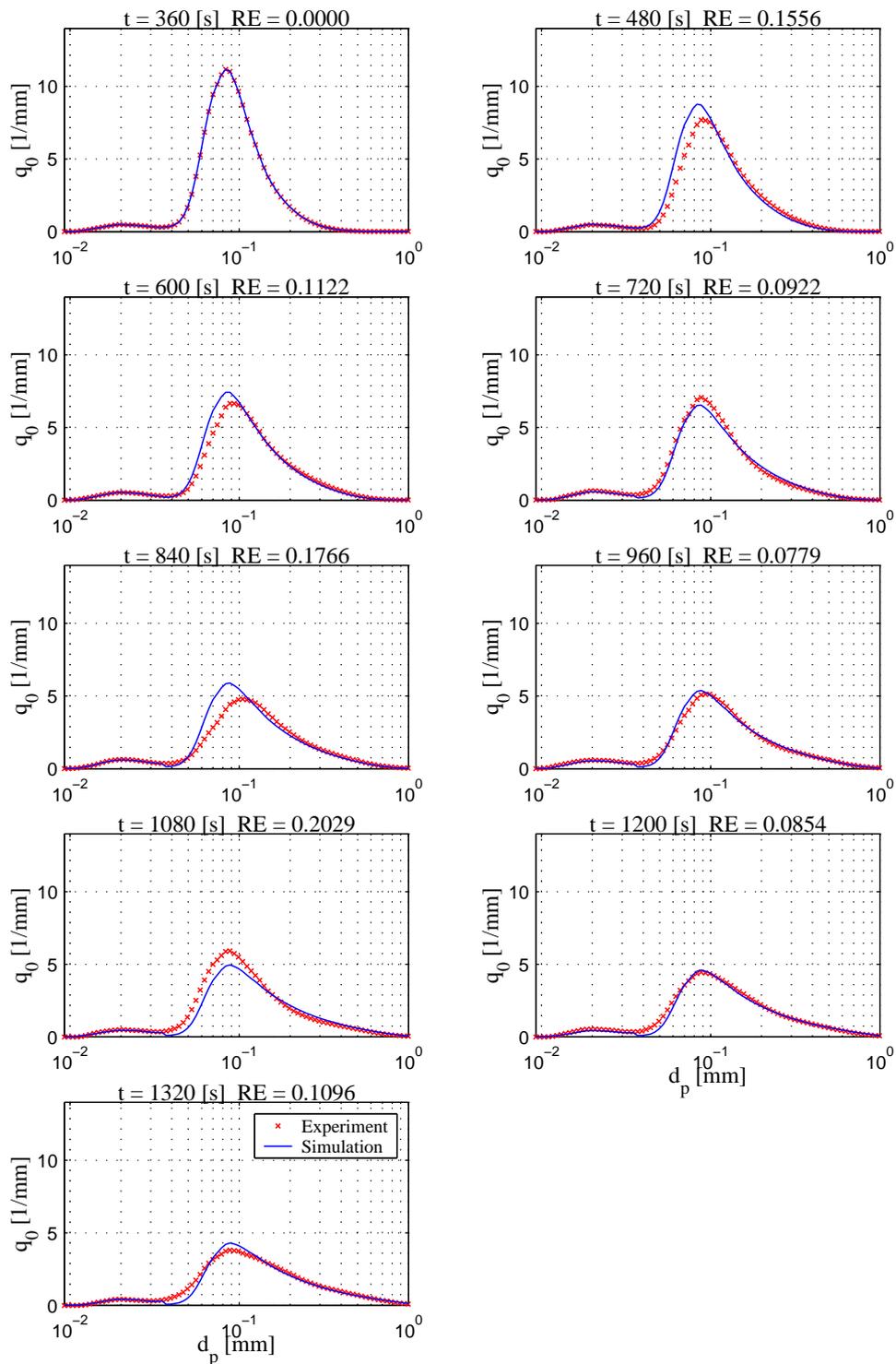


Abbildung G.4: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 220404D

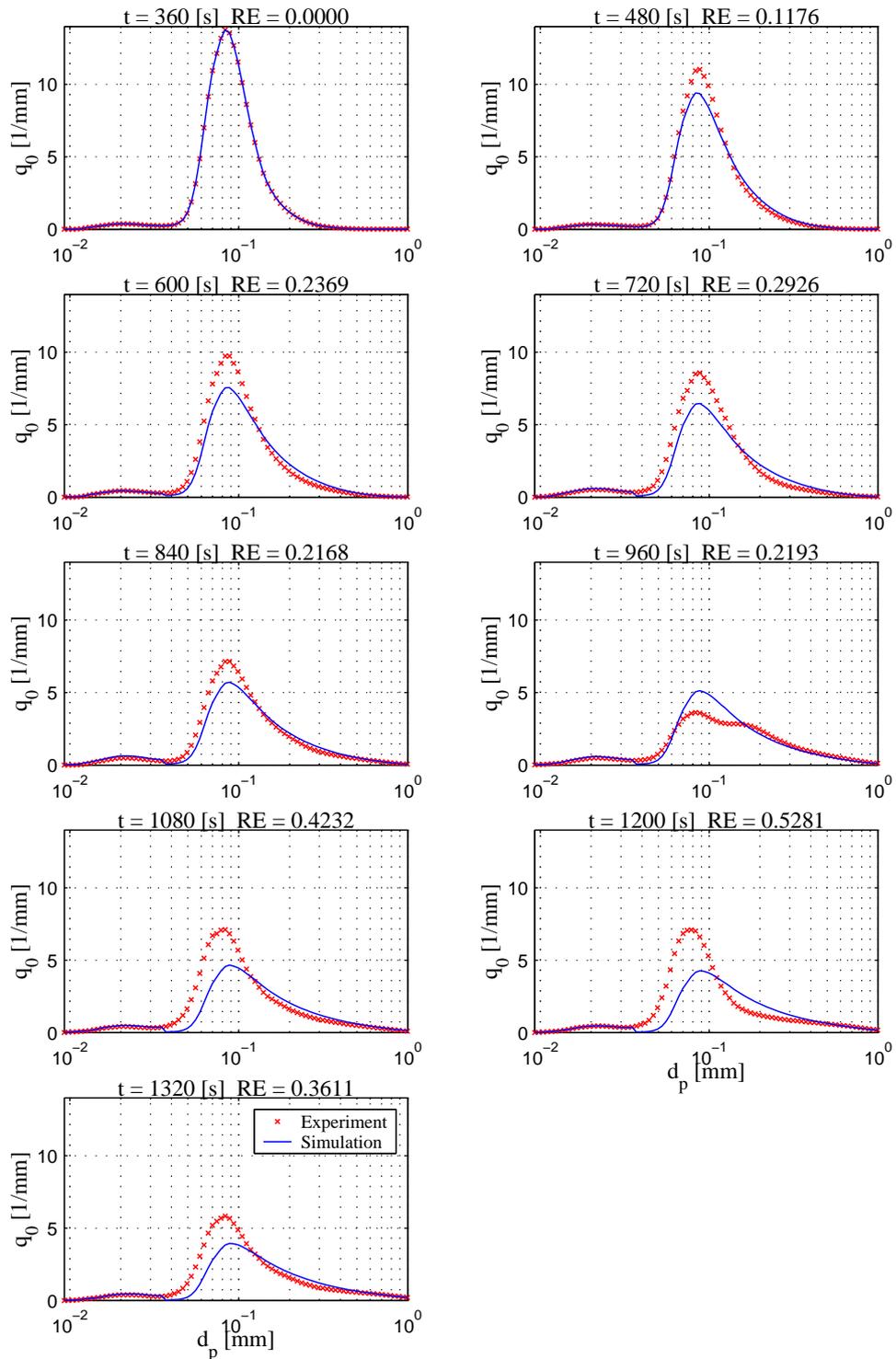


Abbildung G.5: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 260404A

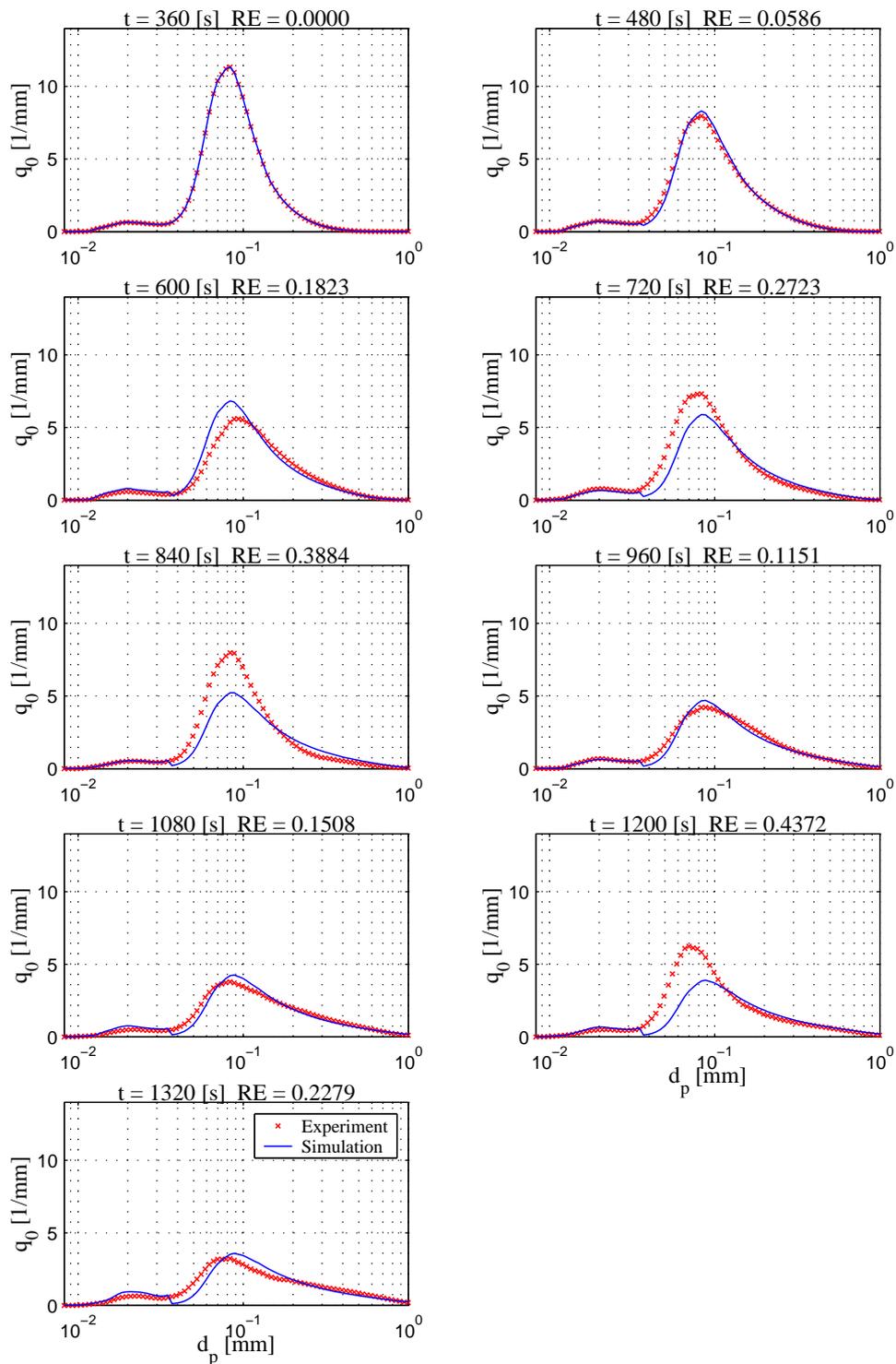


Abbildung G.6: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 280404A

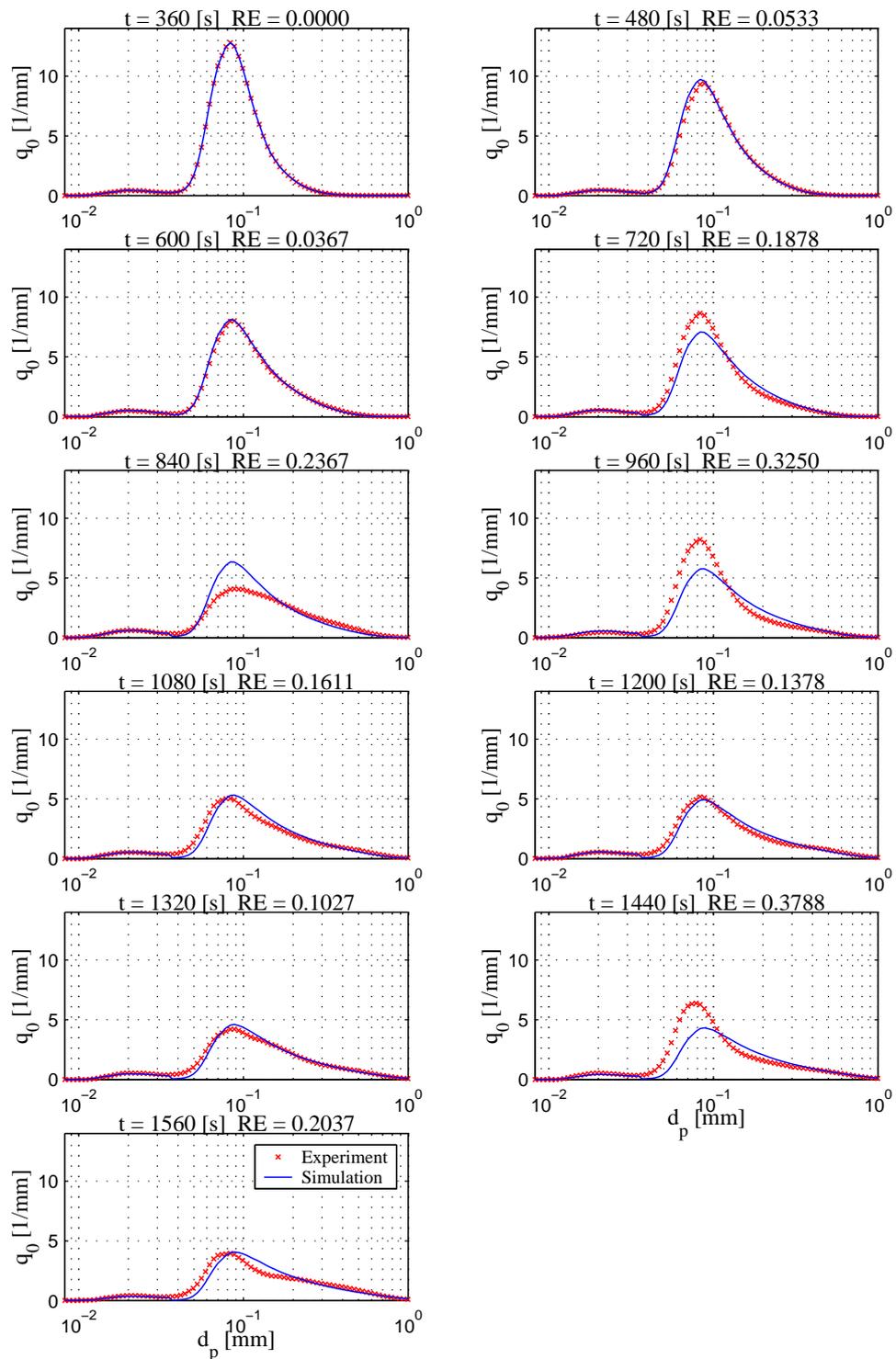


Abbildung G.7: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 280404B

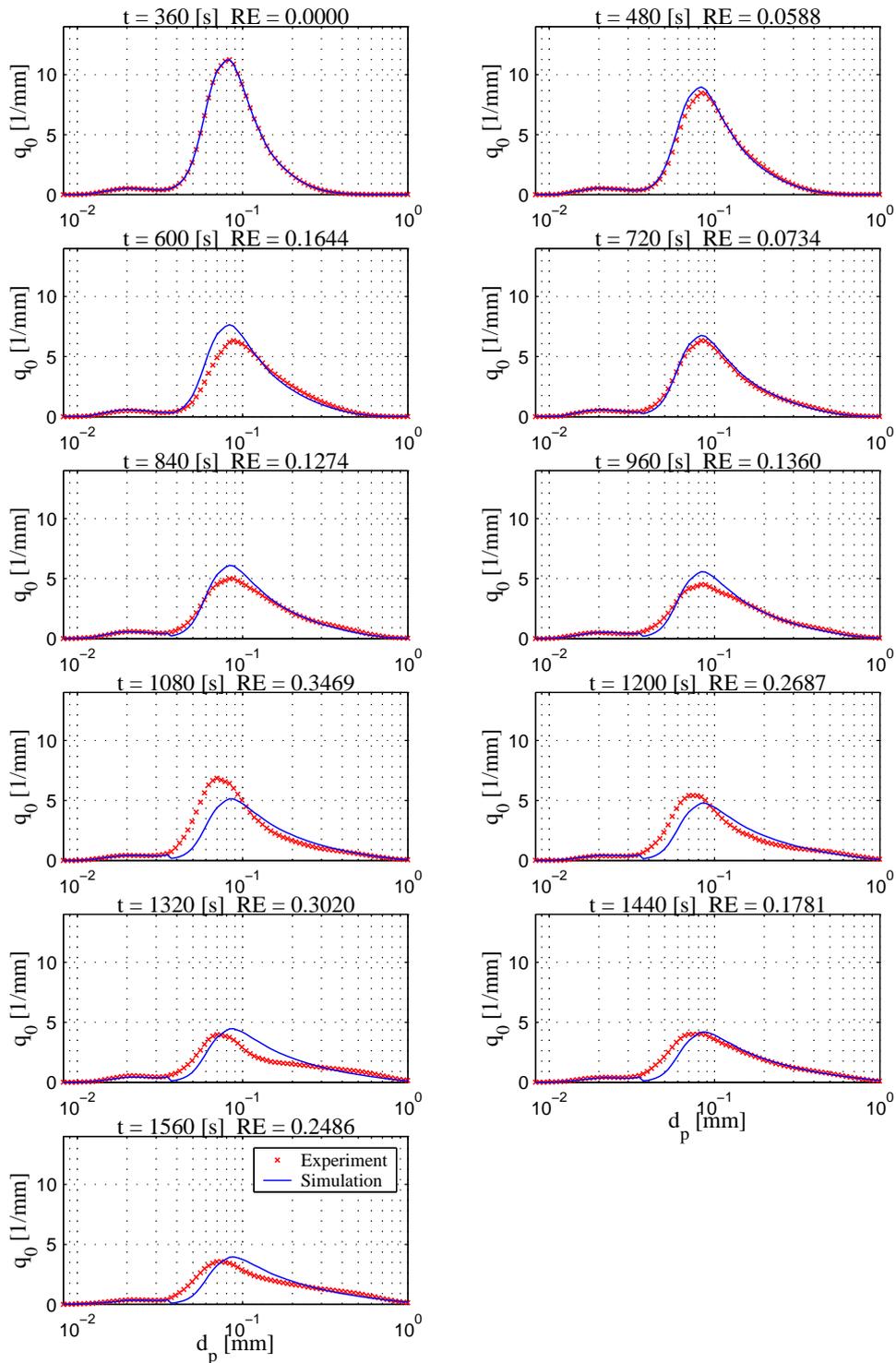


Abbildung G.8: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 280404C

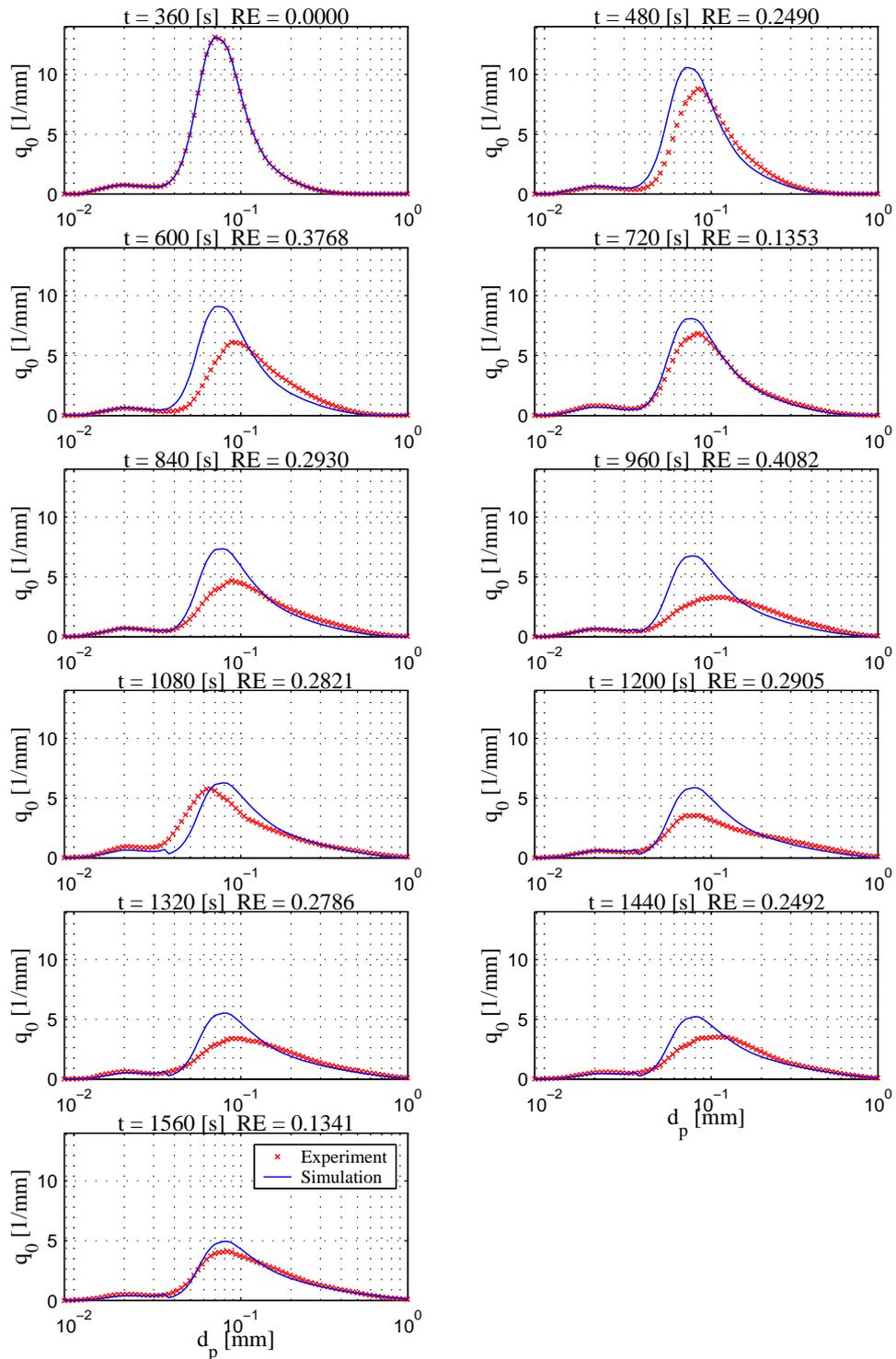


Abbildung G.9: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 300404A

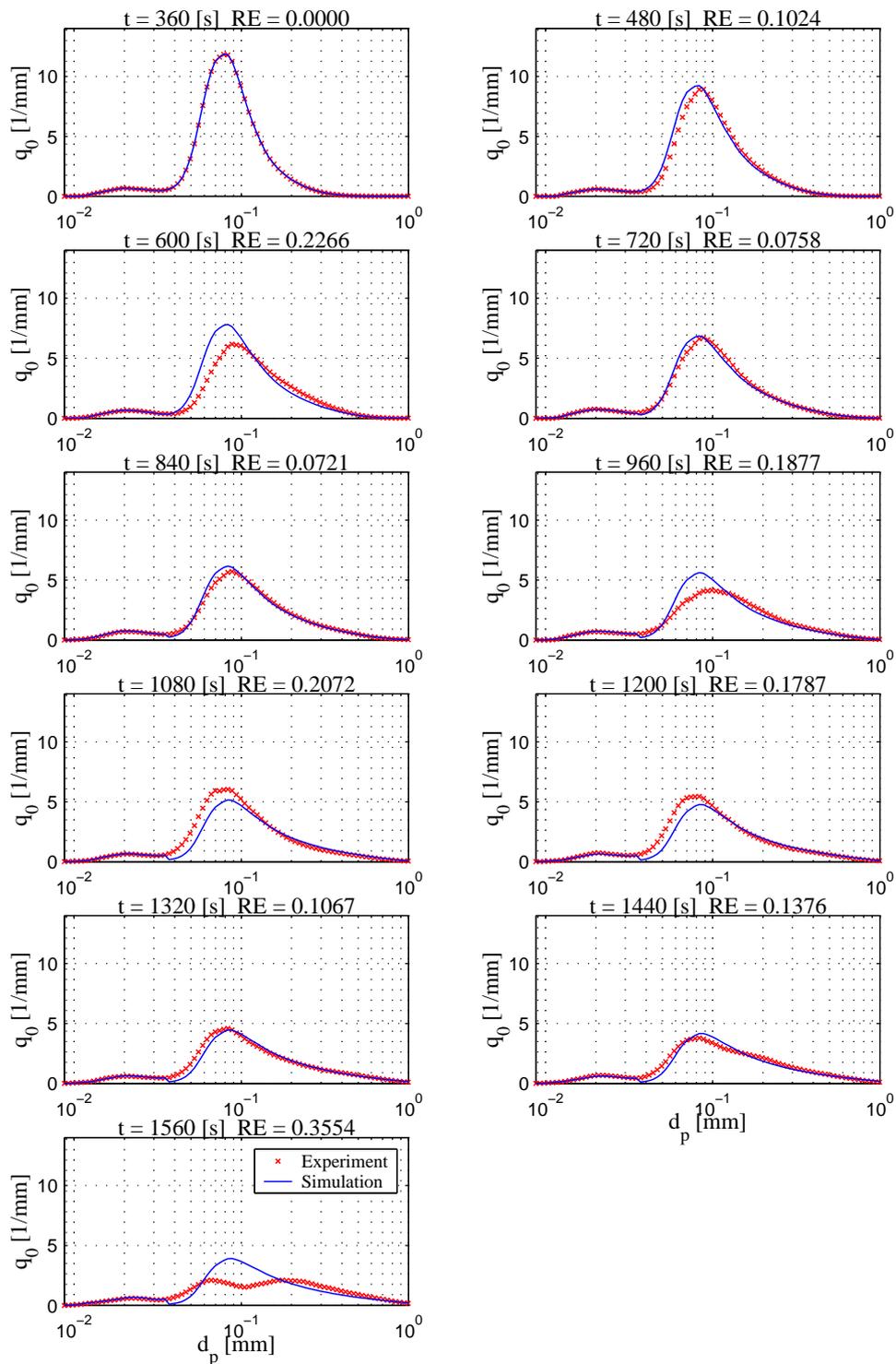


Abbildung G.10: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 300404B

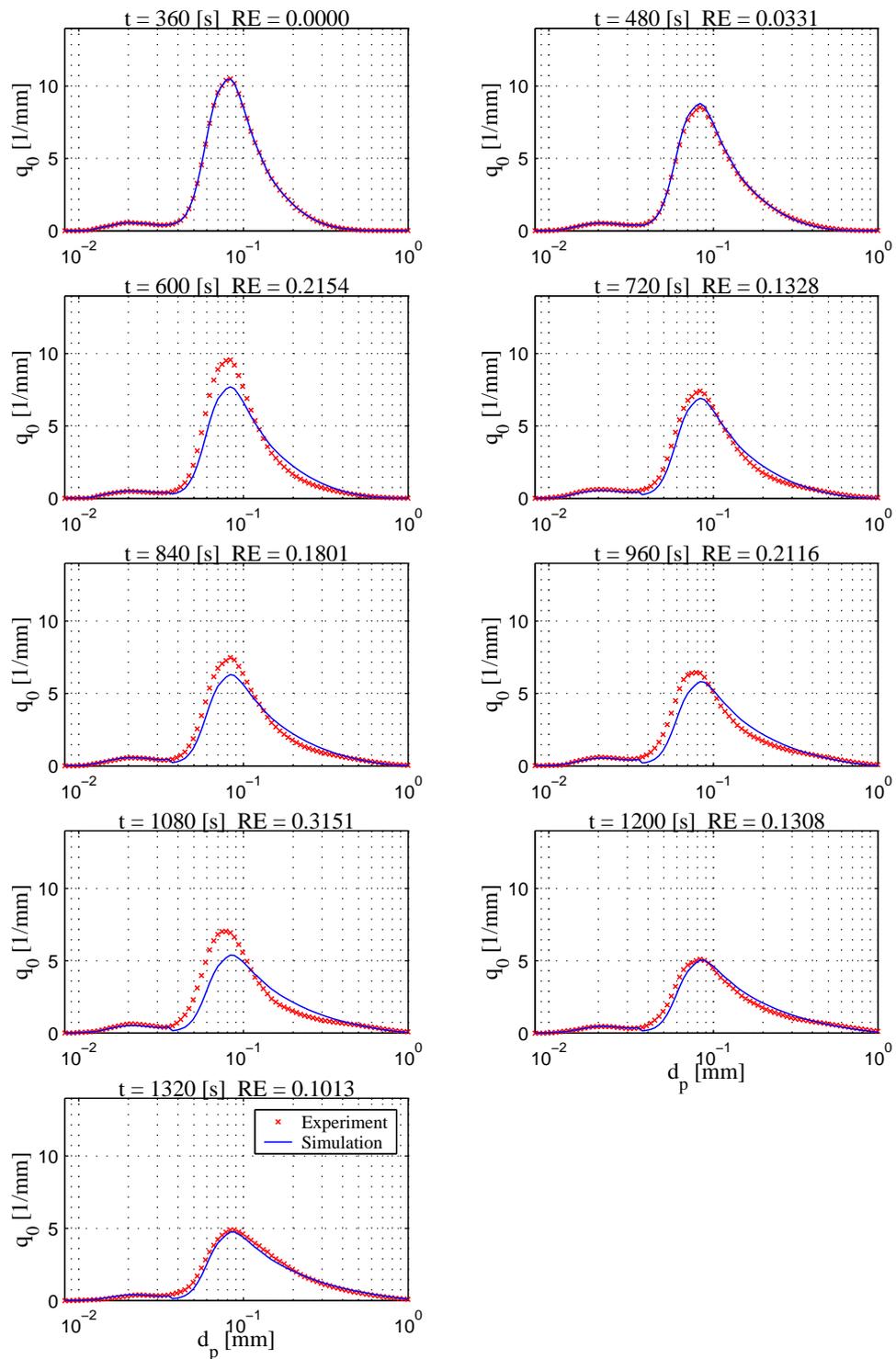


Abbildung G.11: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 190504A

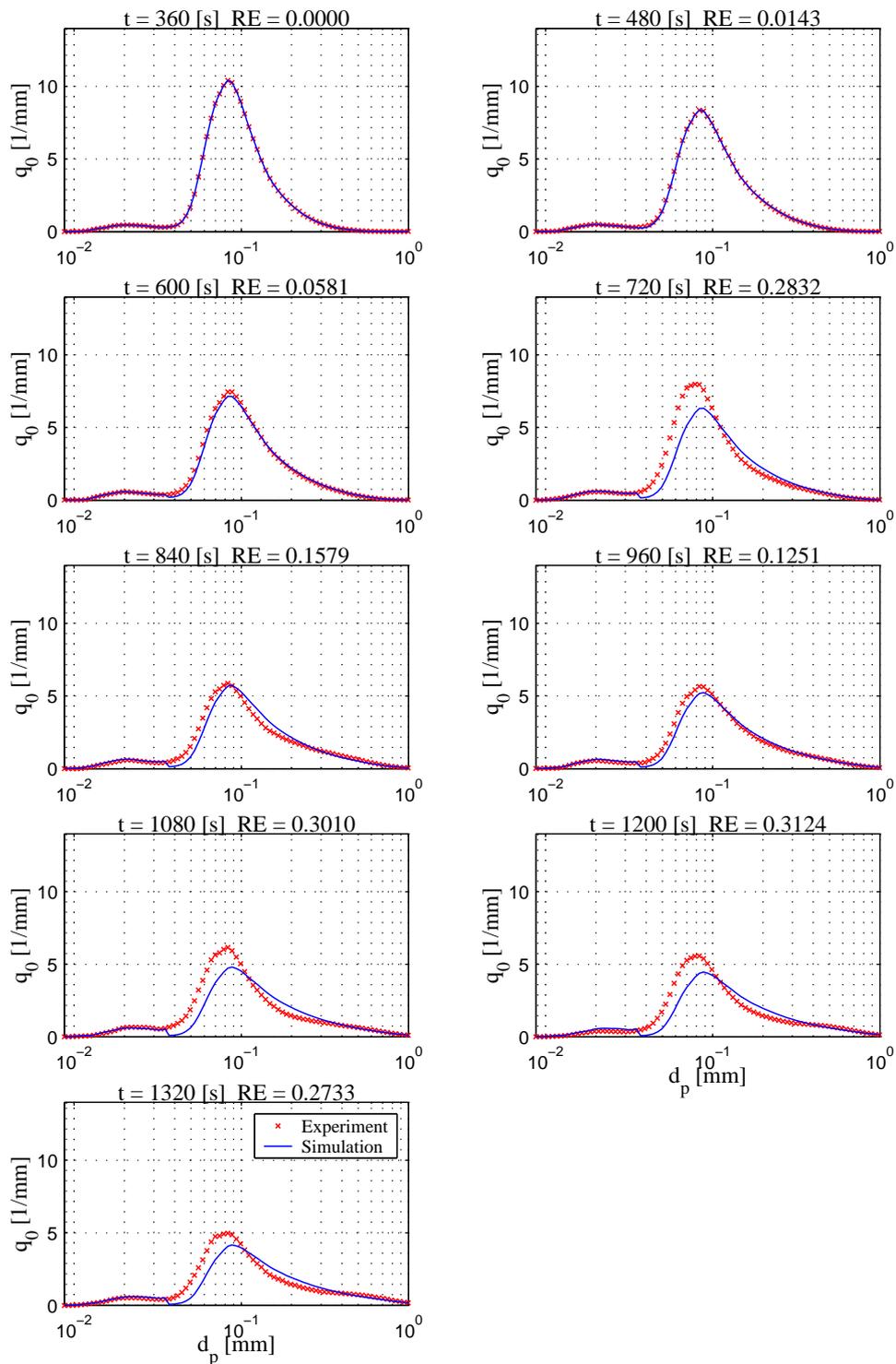


Abbildung G.12: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 190504B

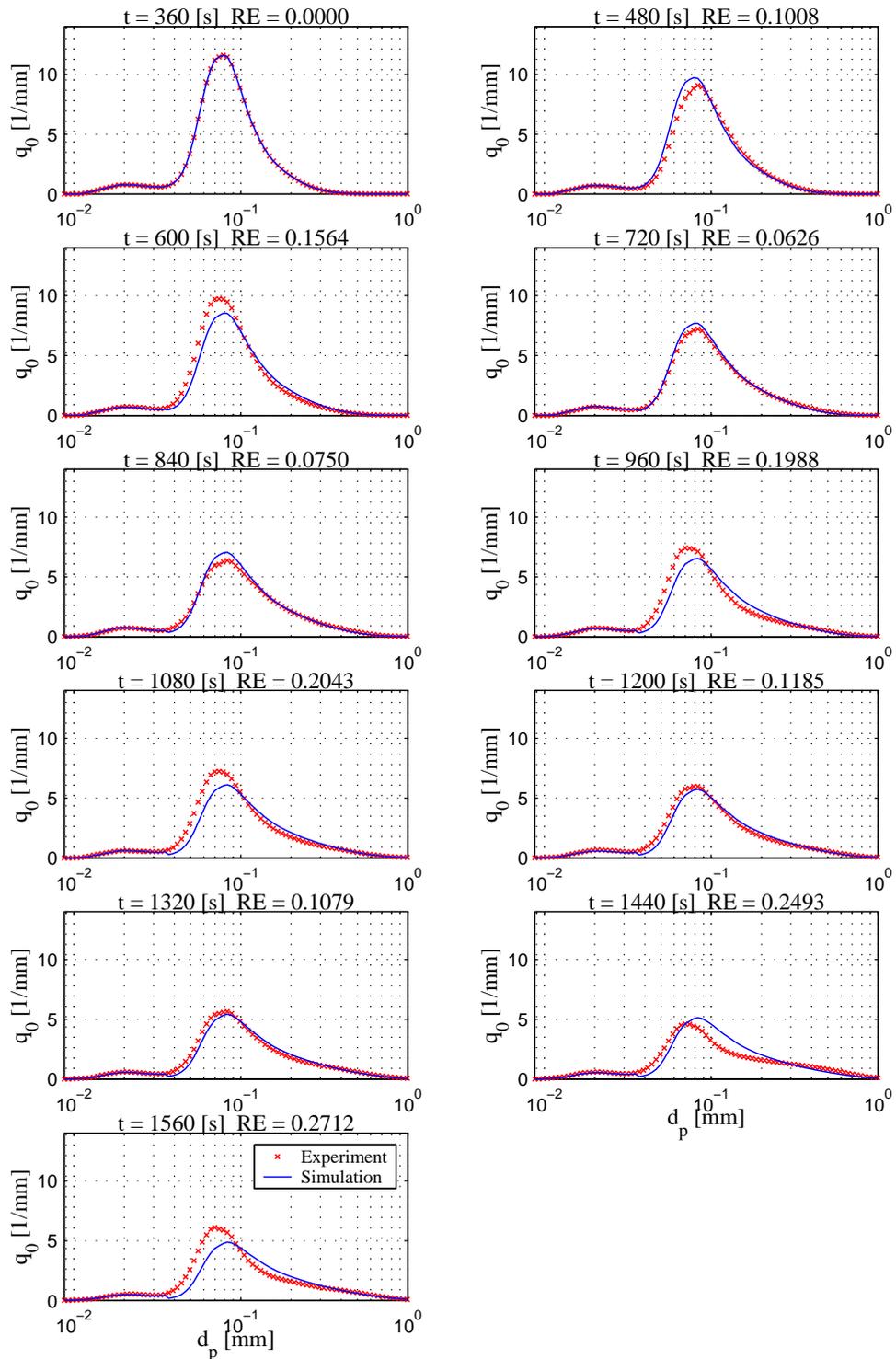


Abbildung G.13: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 260504A

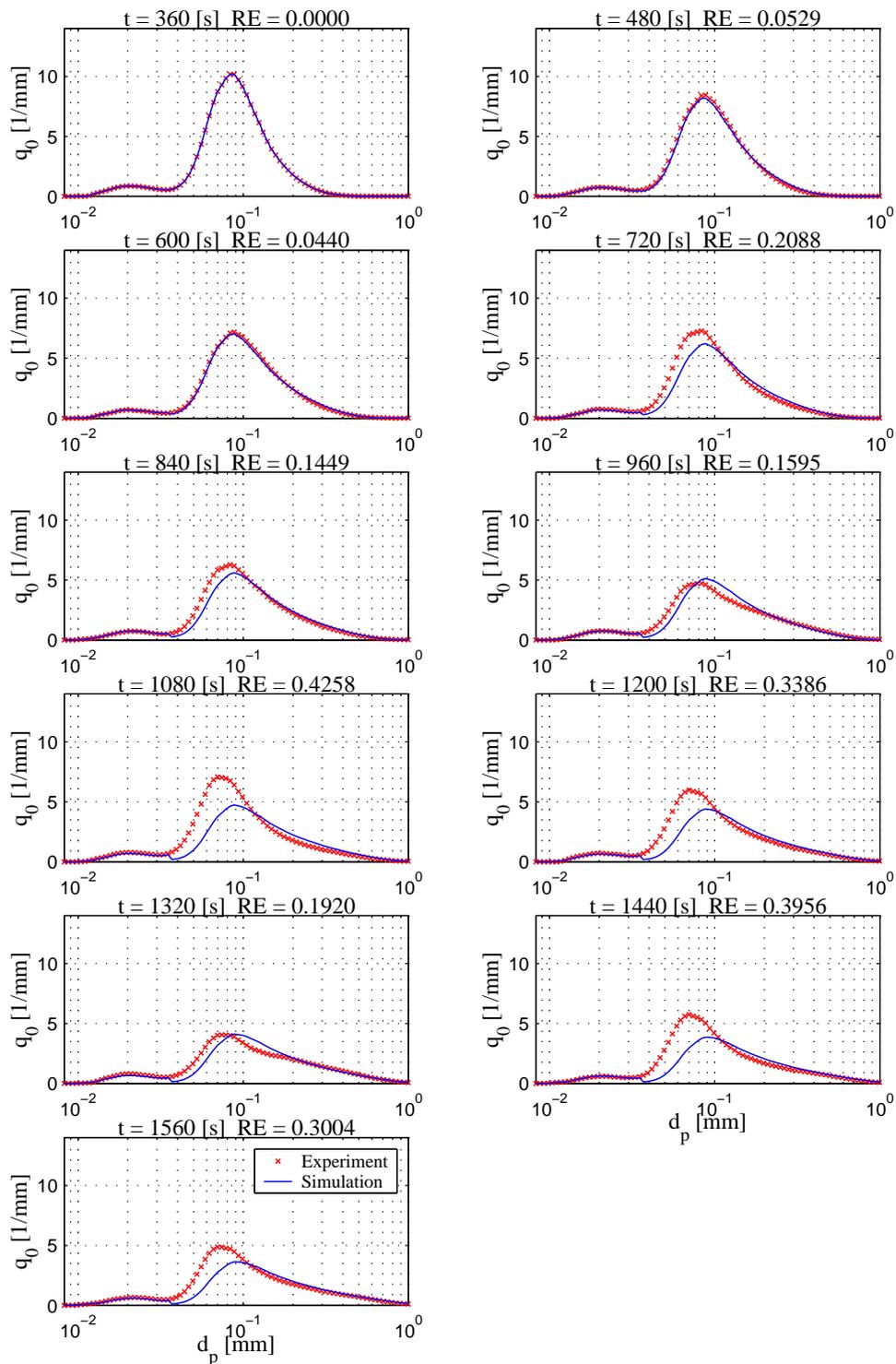


Abbildung G.14: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 260504B

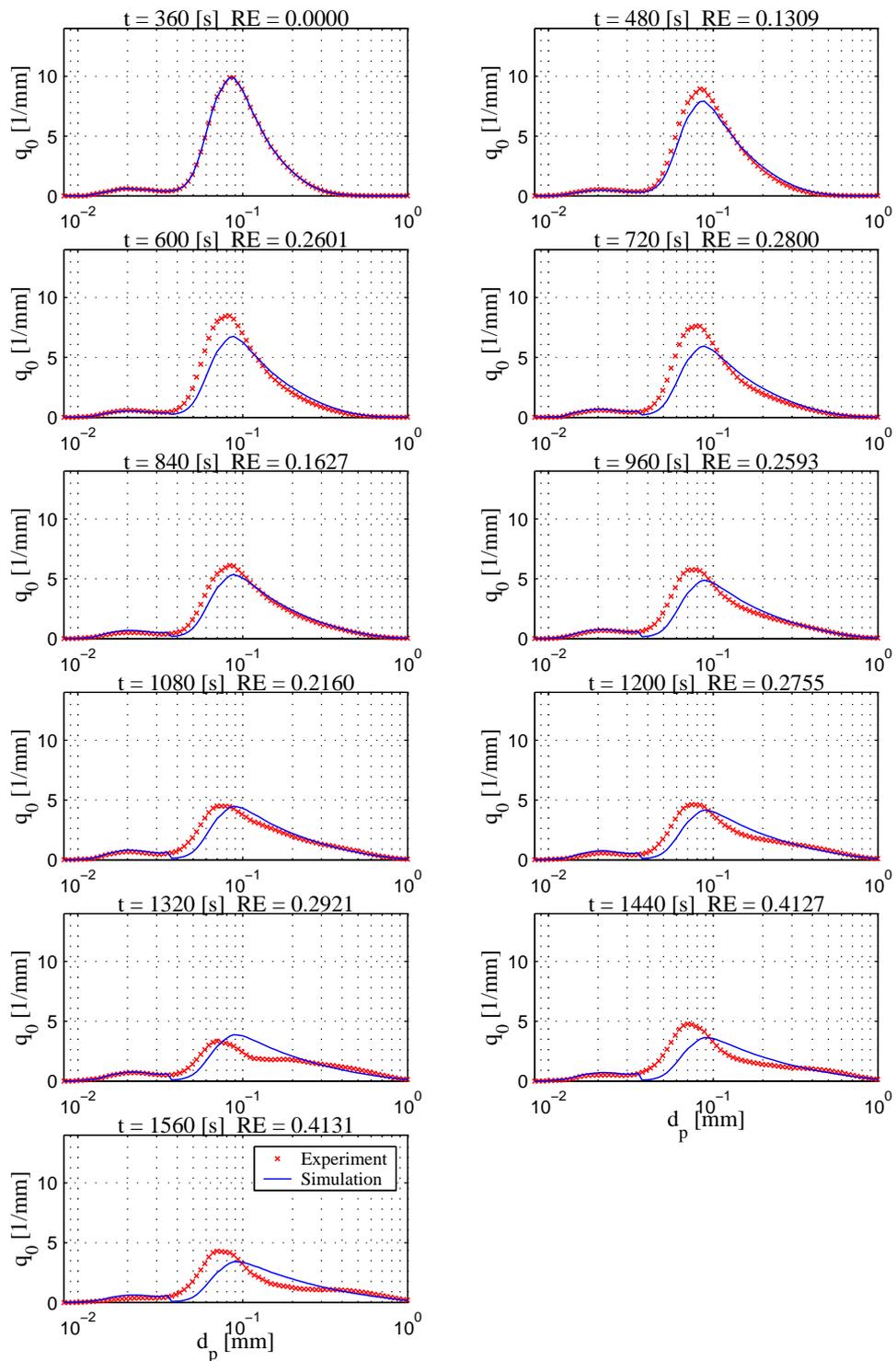


Abbildung G.15: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 270504A

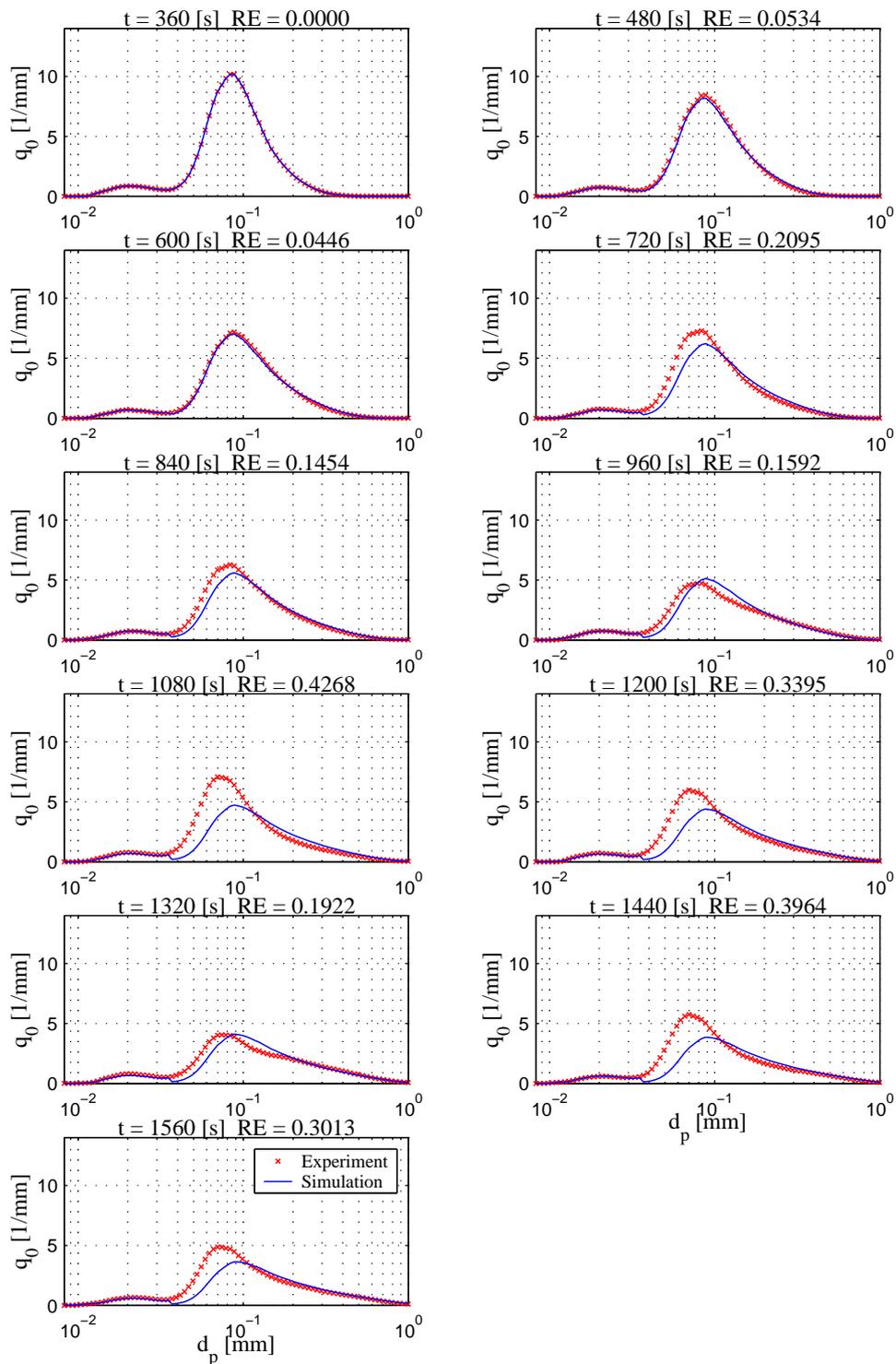


Abbildung G.16: Vergleich Messung und Simulation der Anzahldichteverteilung q_0 - Versuch 270504B

G.3.2 Validierung des Wärme- und Stofftransportmodells

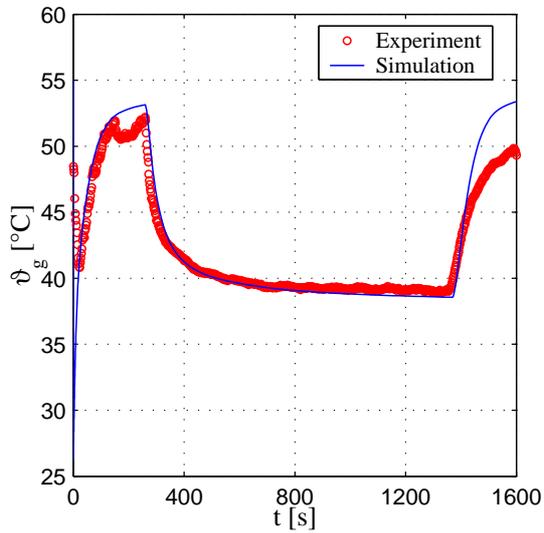


Abbildung G.17: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 220404A

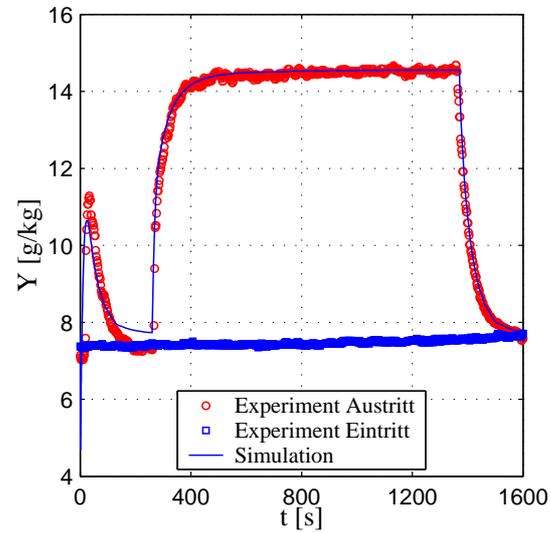


Abbildung G.18: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbelastung Versuch: 220404A

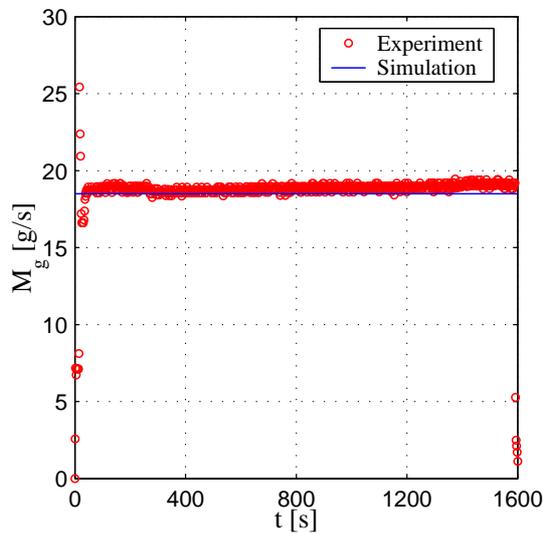


Abbildung G.19: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 220404A

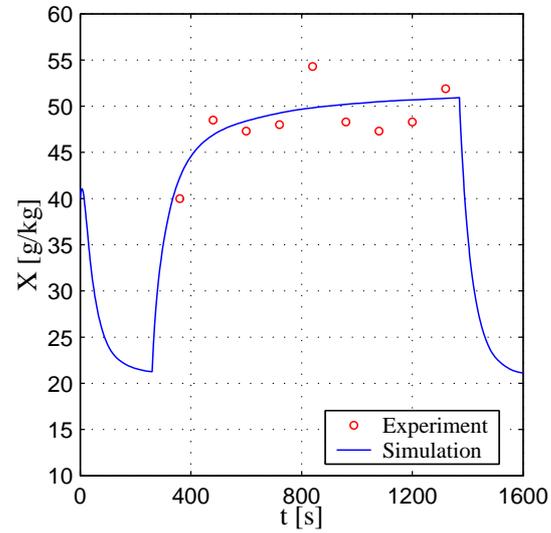


Abbildung G.20: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbelastung Versuch: 220404A

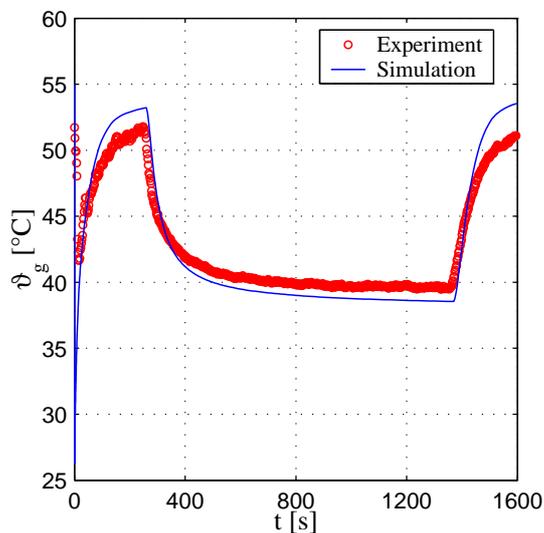


Abbildung G.21: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 220404B

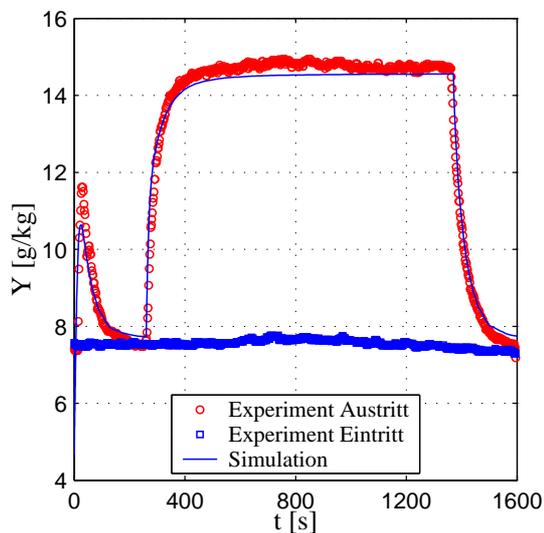


Abbildung G.22: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 220404B

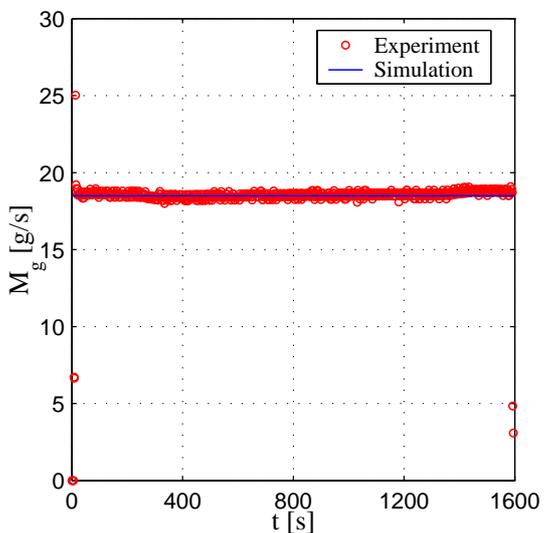


Abbildung G.23: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 220404B

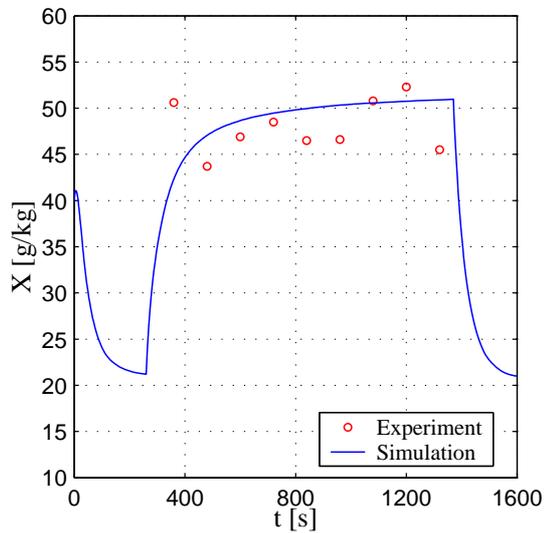


Abbildung G.24: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 220404B

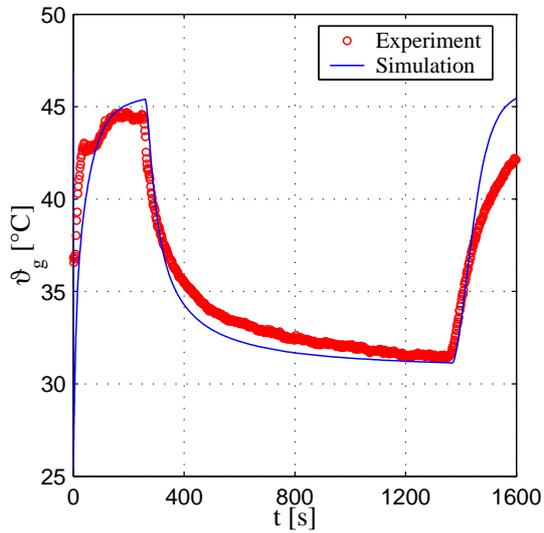


Abbildung G.25: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 220404C

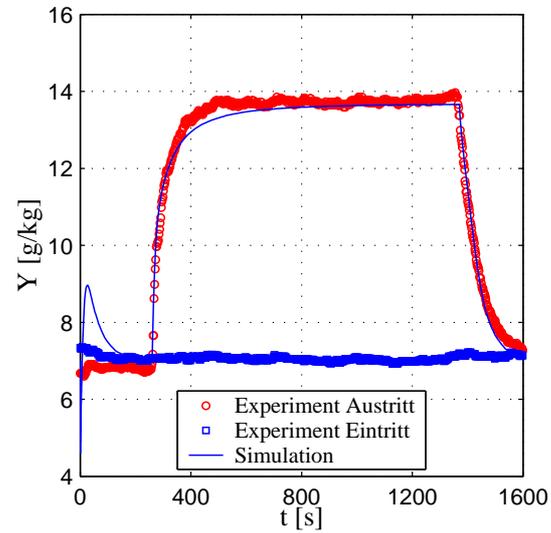


Abbildung G.26: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 220404C

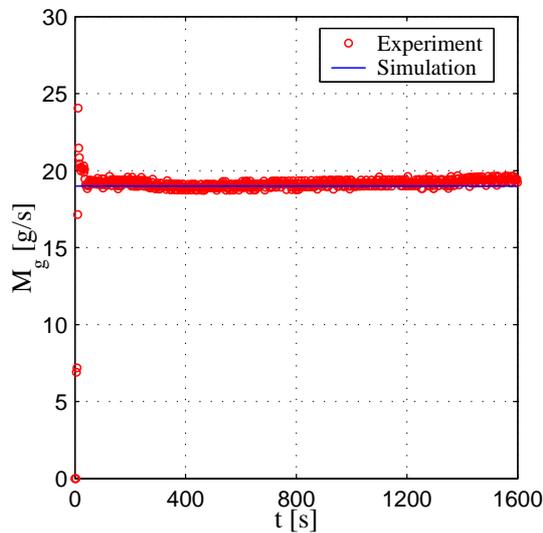


Abbildung G.27: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 220404C

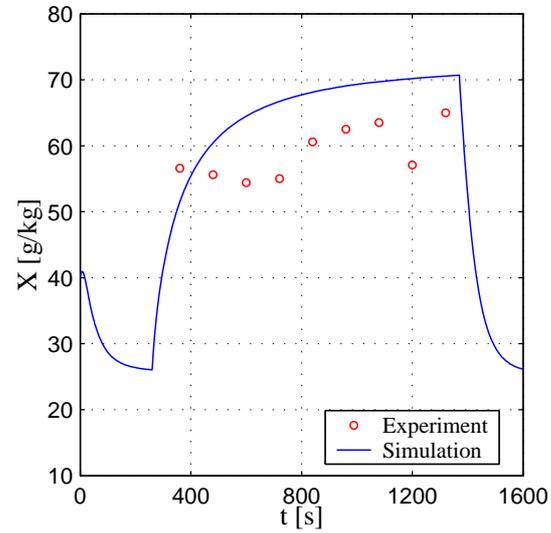


Abbildung G.28: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 220404C

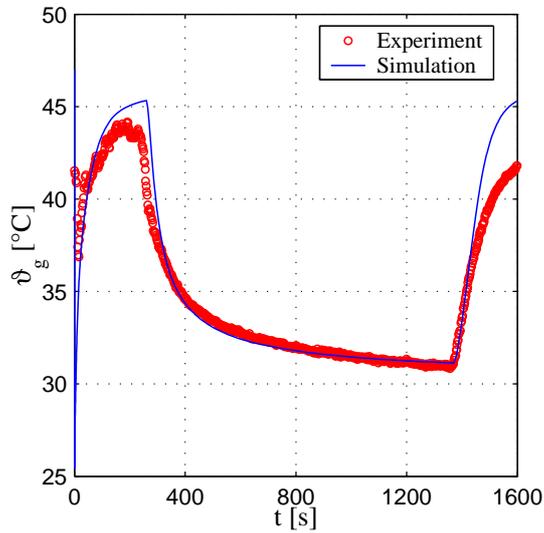


Abbildung G.29: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 220404D

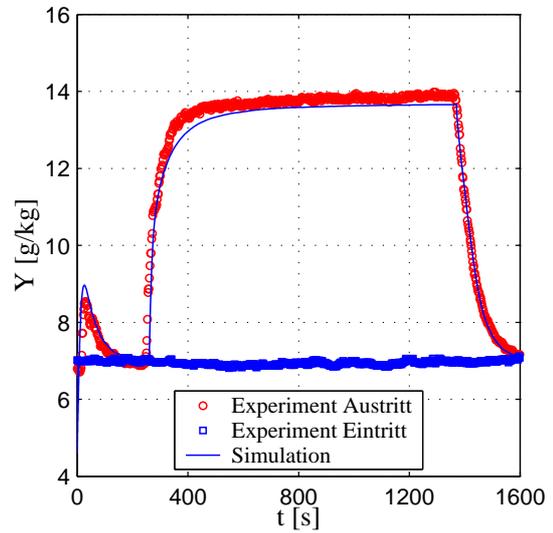


Abbildung G.30: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 220404D

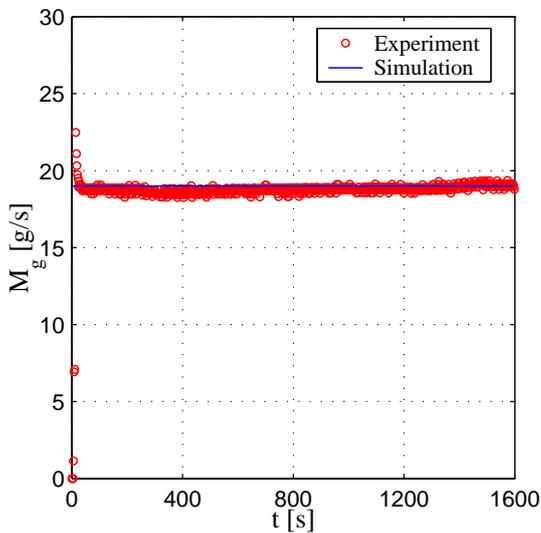


Abbildung G.31: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 220404D

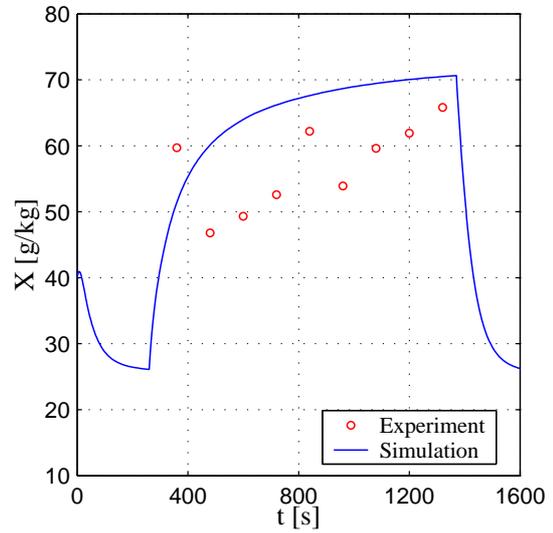


Abbildung G.32: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 220404D

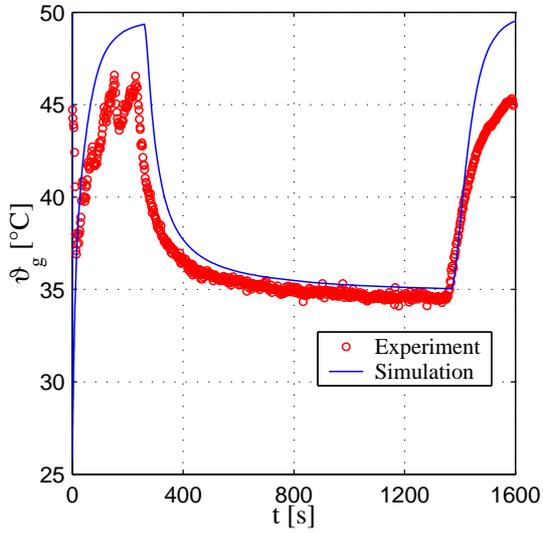


Abbildung G.33: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 260404A

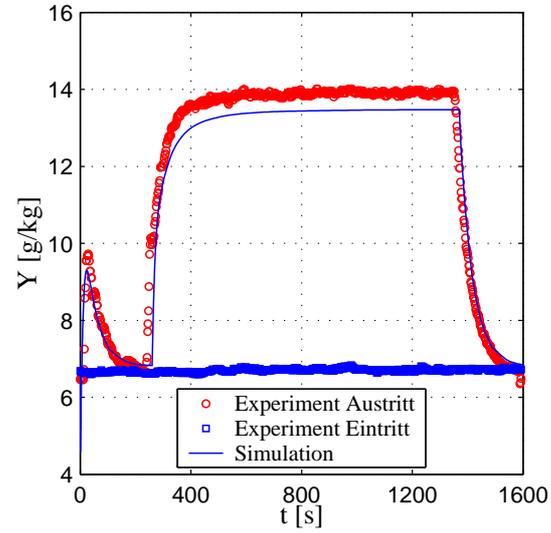


Abbildung G.34: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 260404A

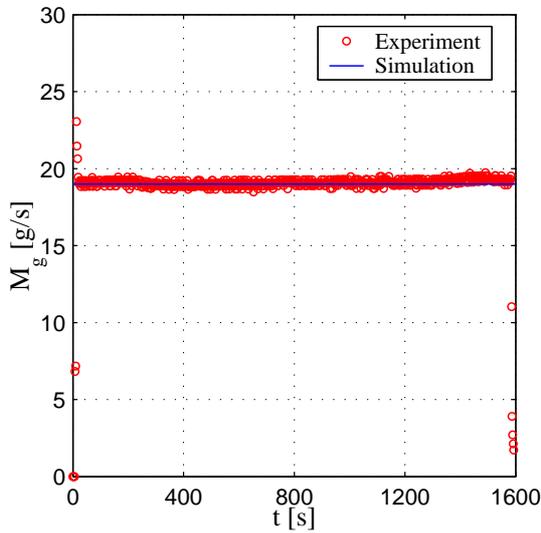


Abbildung G.35: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 260404A

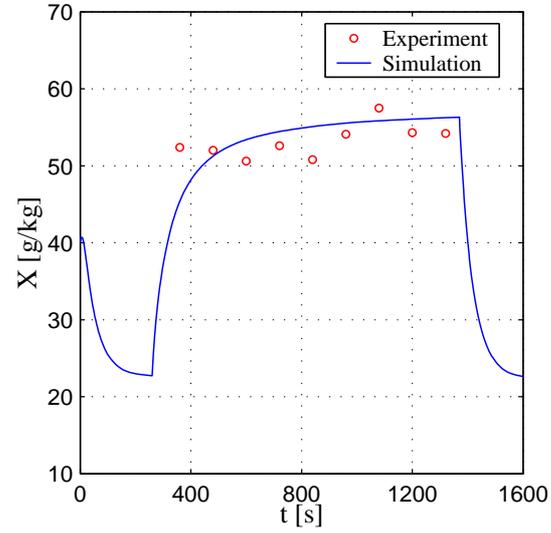


Abbildung G.36: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 260404A

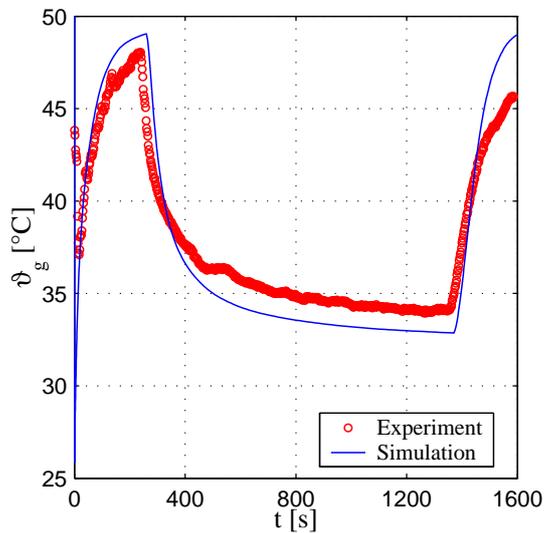


Abbildung G.37: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 280404A

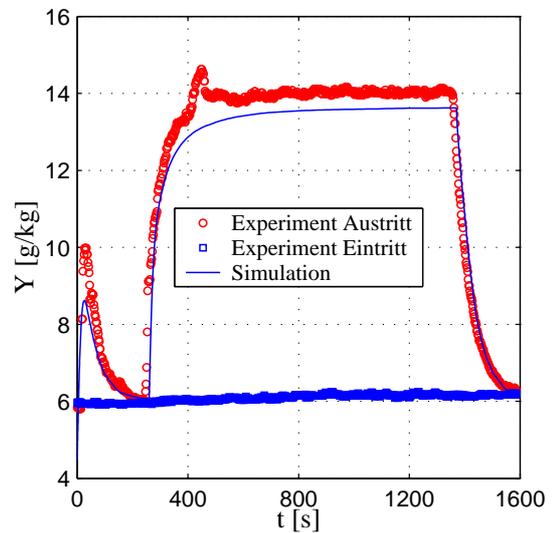


Abbildung G.38: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 280404A

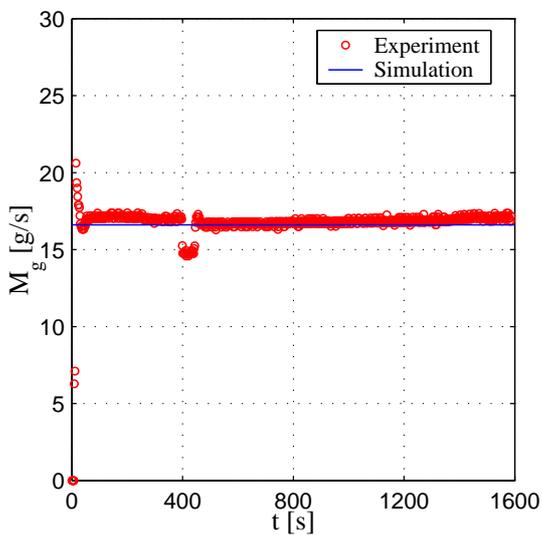


Abbildung G.39: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 280404A

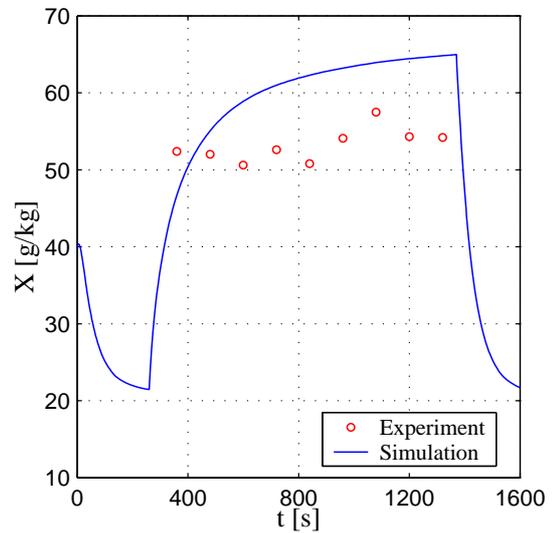


Abbildung G.40: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 280404A

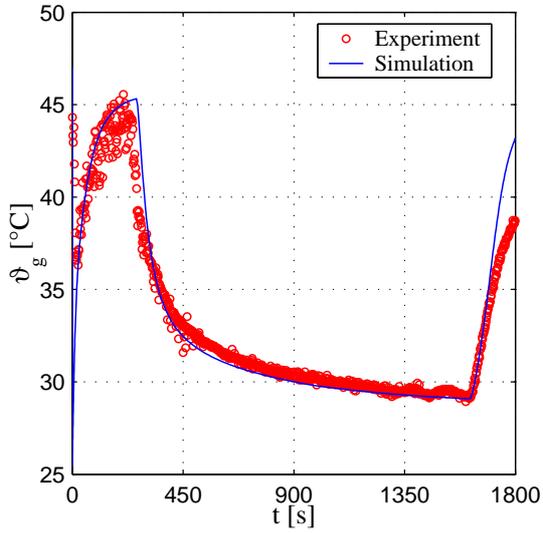


Abbildung G.41: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 280404B

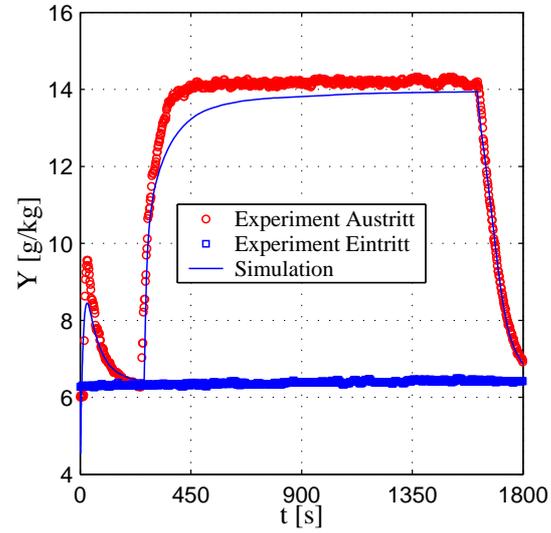


Abbildung G.42: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 280404B

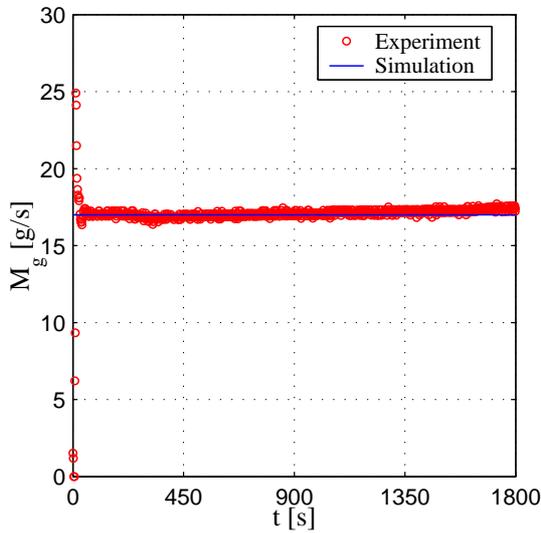


Abbildung G.43: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 280404B

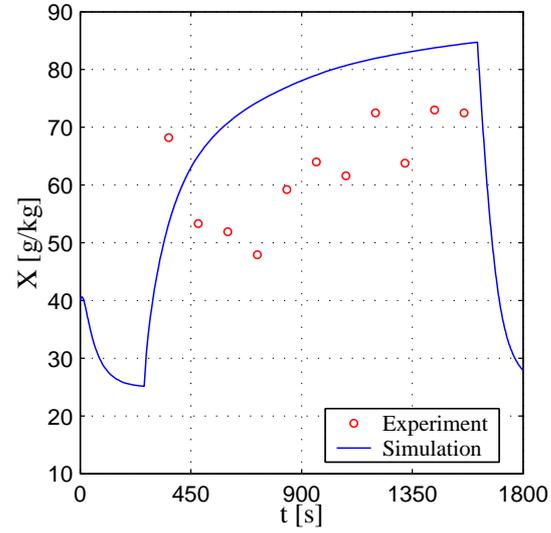


Abbildung G.44: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 280404B

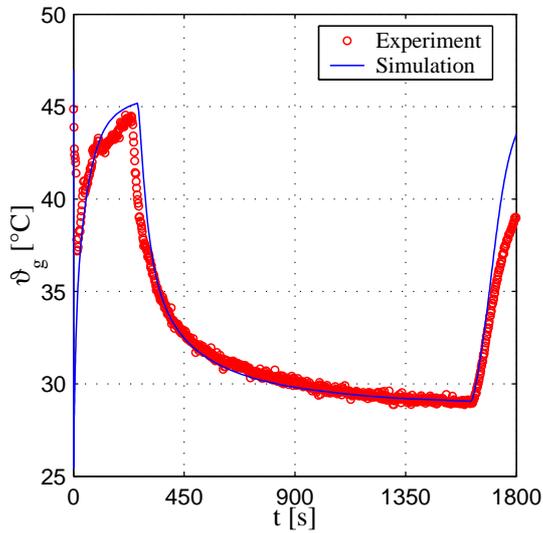


Abbildung G.45: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 280404C

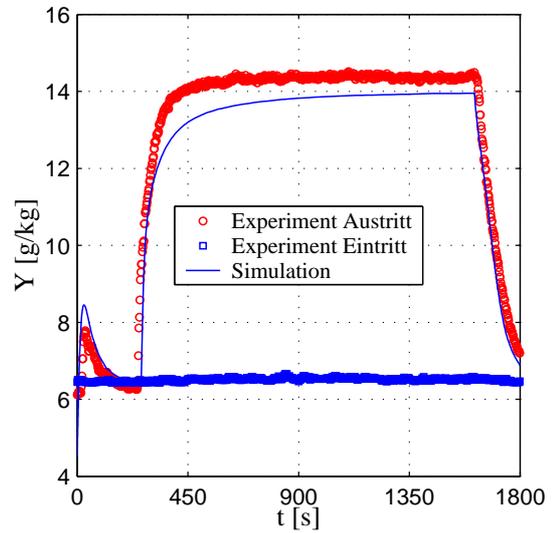


Abbildung G.46: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 280404C

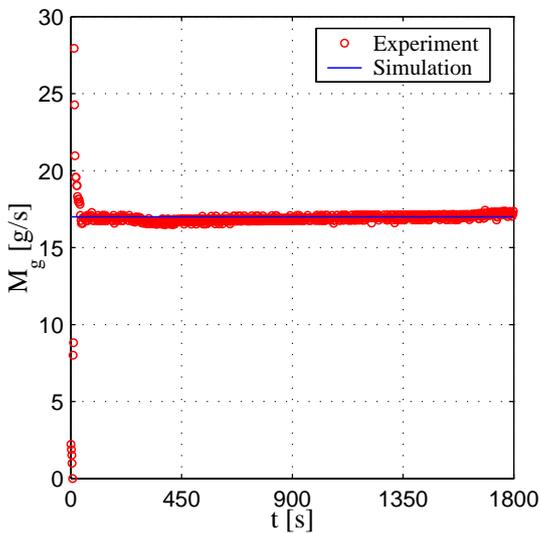


Abbildung G.47: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 280404C

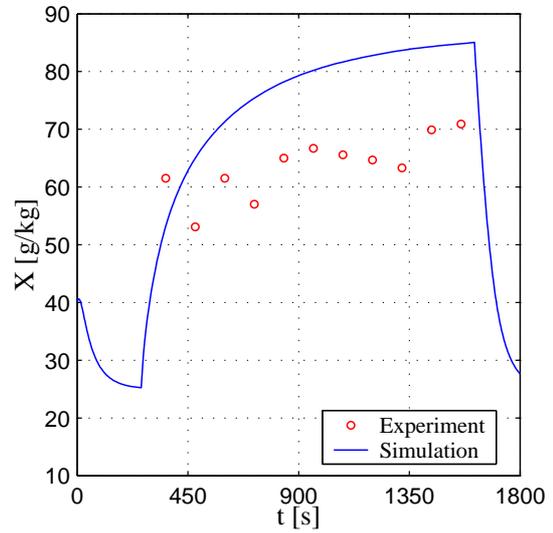


Abbildung G.48: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 280404C

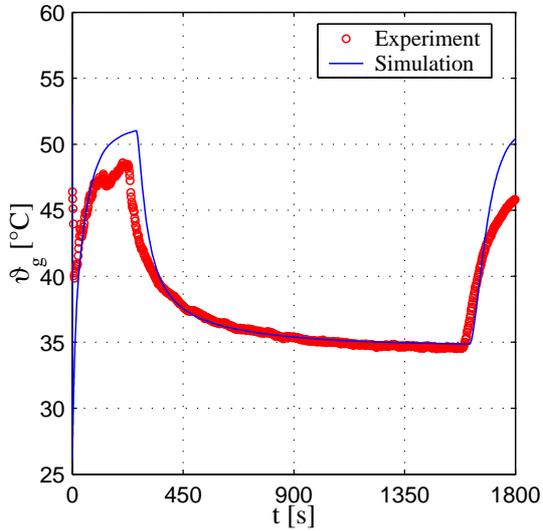


Abbildung G.49: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 300404A

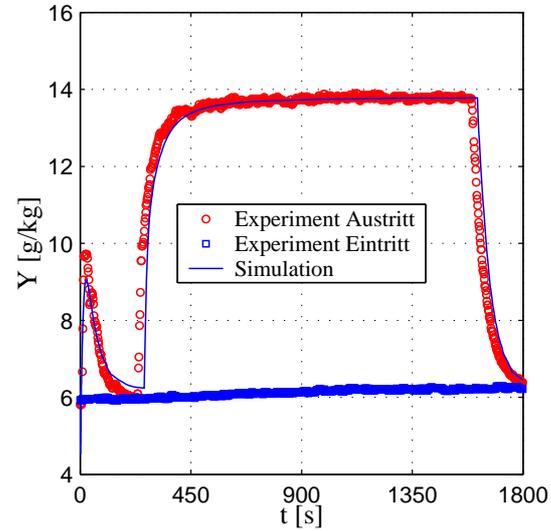


Abbildung G.50: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 300404A

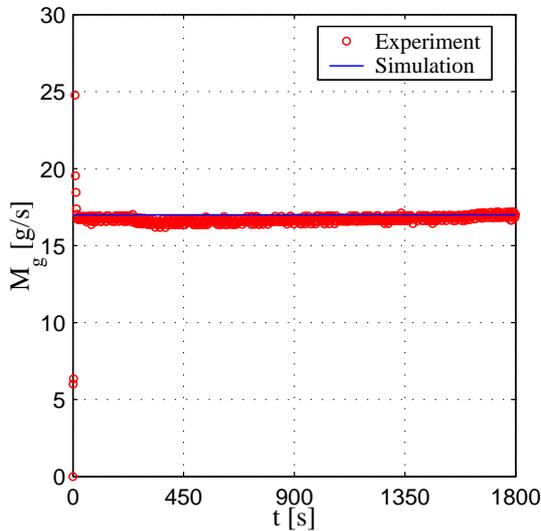


Abbildung G.51: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 300404A

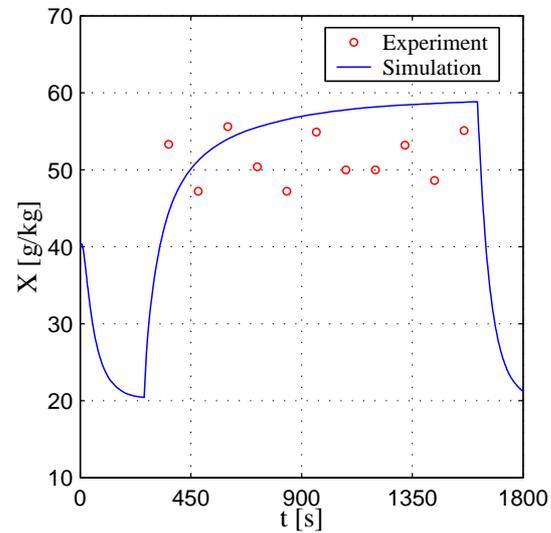


Abbildung G.52: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 300404A

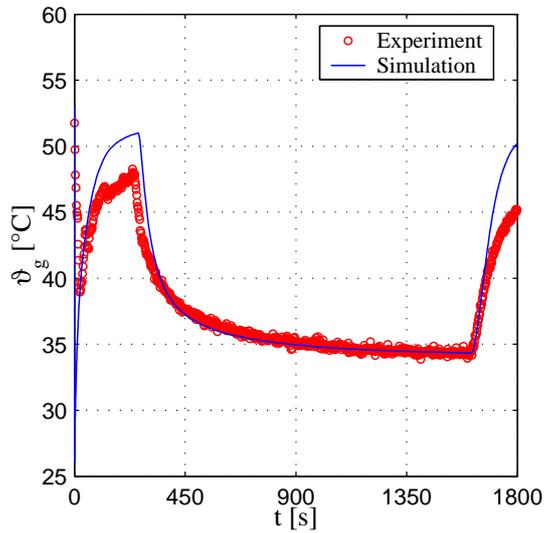


Abbildung G.53: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 300404B

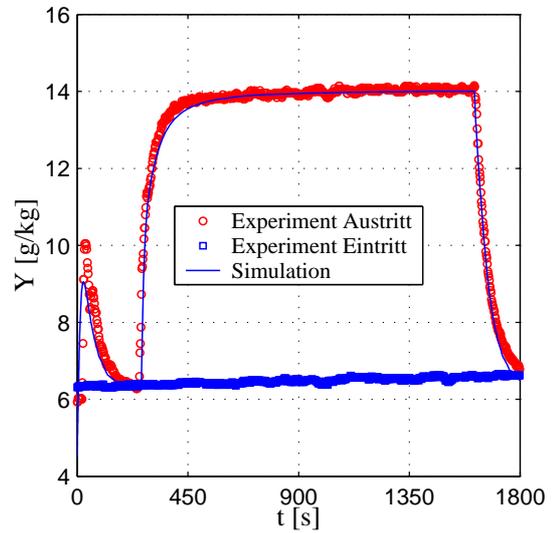


Abbildung G.54: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 300404B

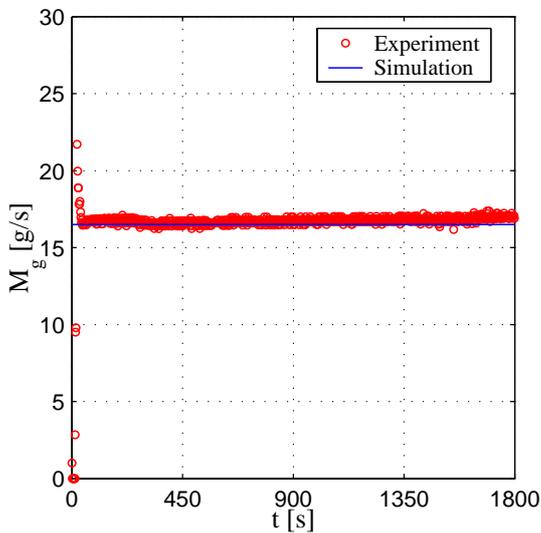


Abbildung G.55: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 300404B

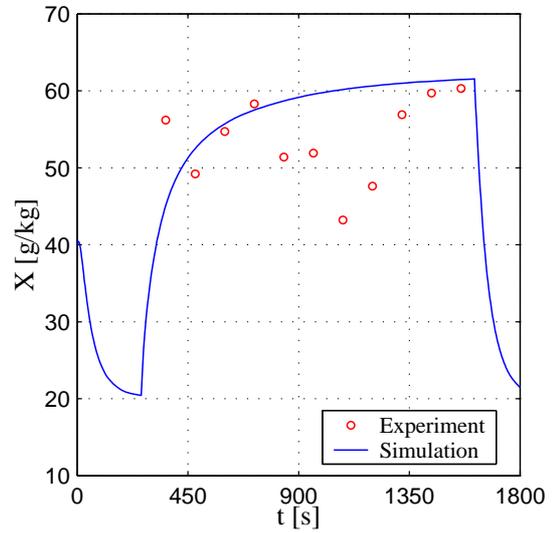


Abbildung G.56: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 300404B

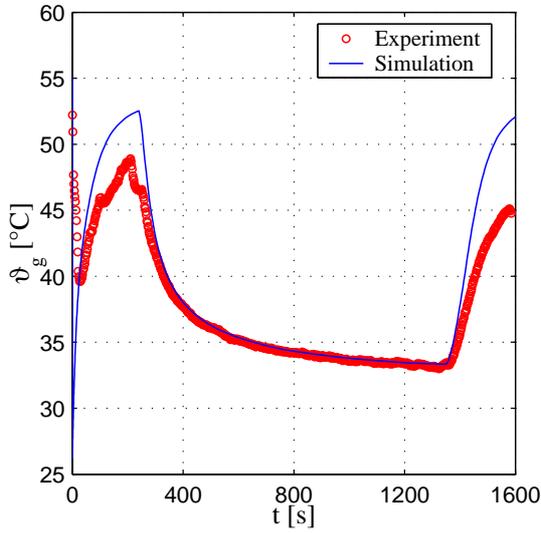


Abbildung G.57: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 190504A

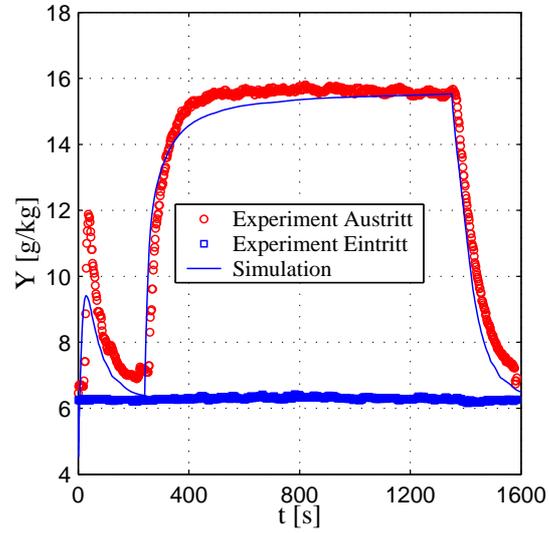


Abbildung G.58: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 190504A

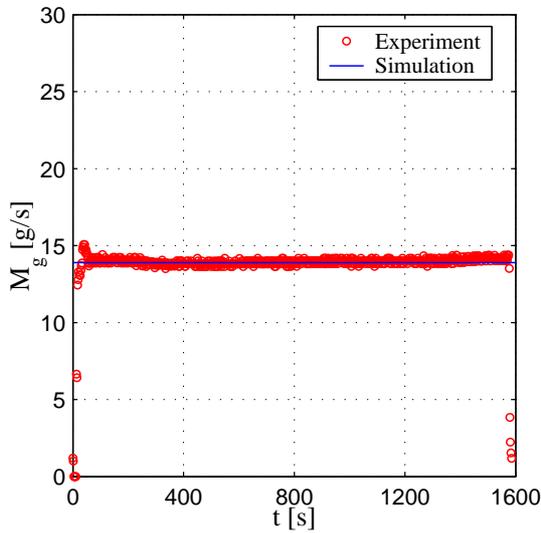


Abbildung G.59: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 190504A

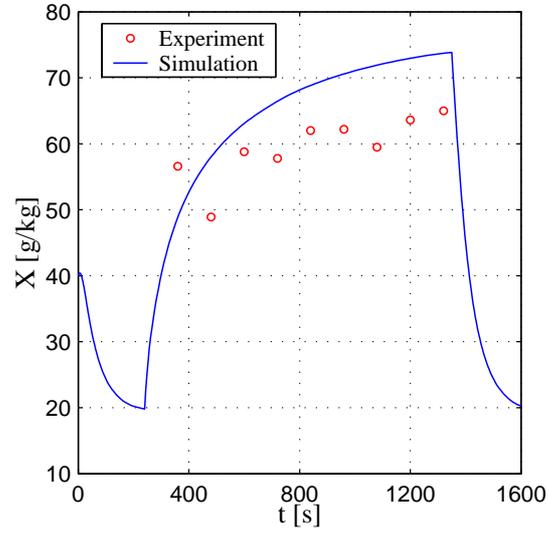


Abbildung G.60: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 190504A

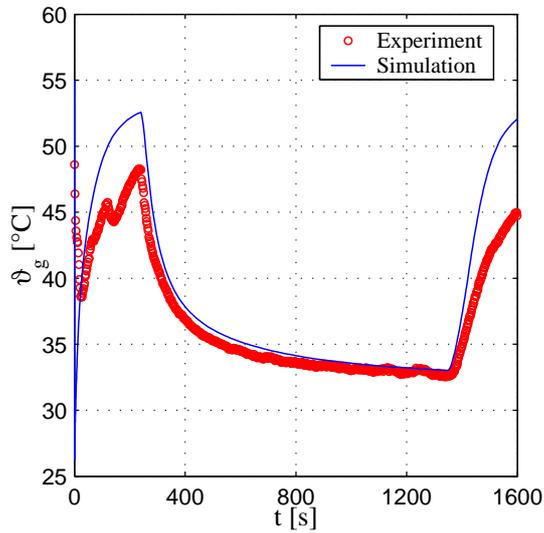


Abbildung G.61: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 190504B

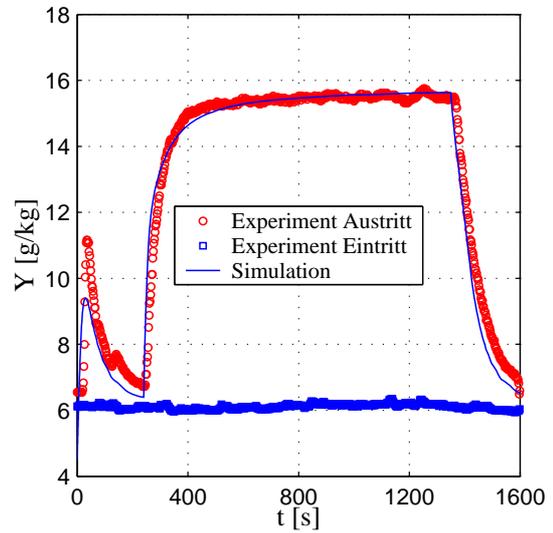


Abbildung G.62: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 190504B

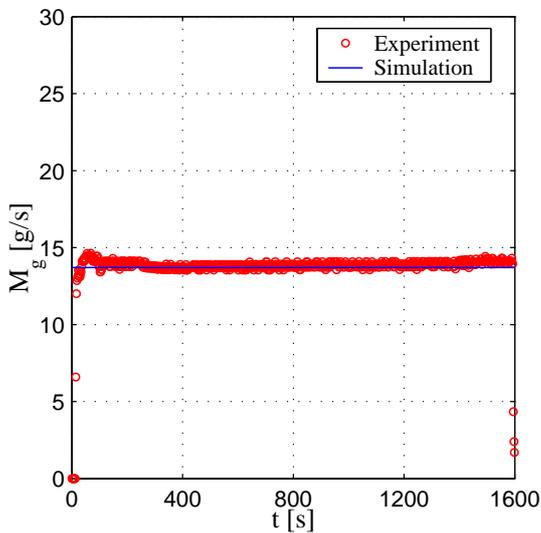


Abbildung G.63: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 190504B

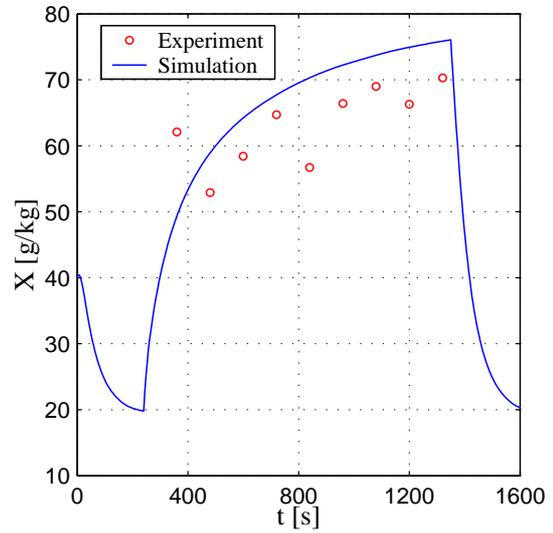


Abbildung G.64: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 190504B

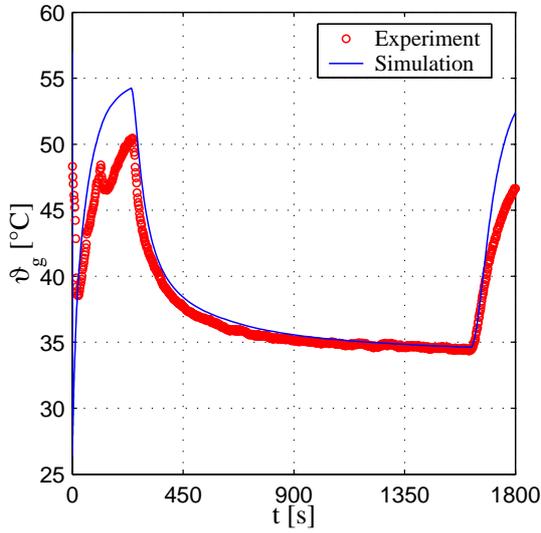


Abbildung G.65: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 260504A

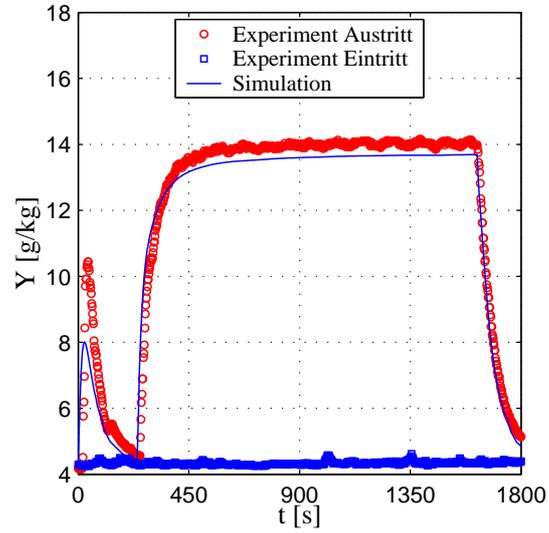


Abbildung G.66: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 260504A

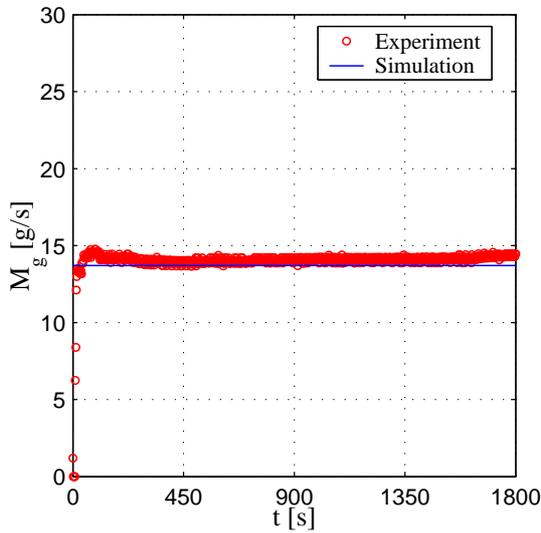


Abbildung G.67: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 260504A

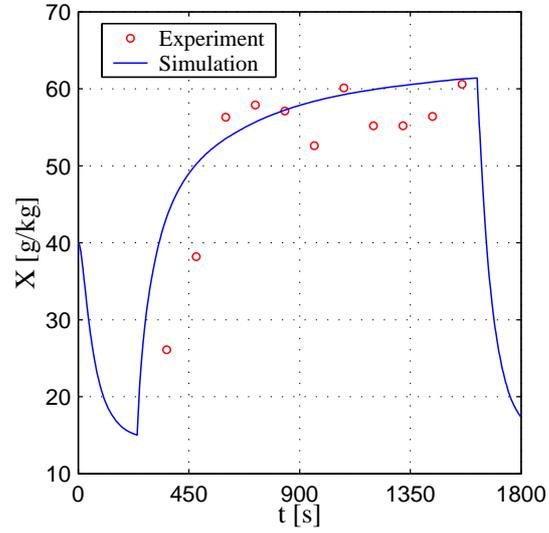


Abbildung G.68: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 260504A

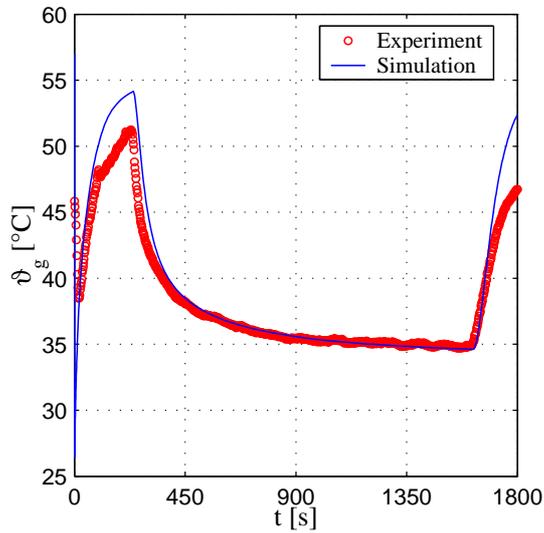


Abbildung G.69: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 260504B

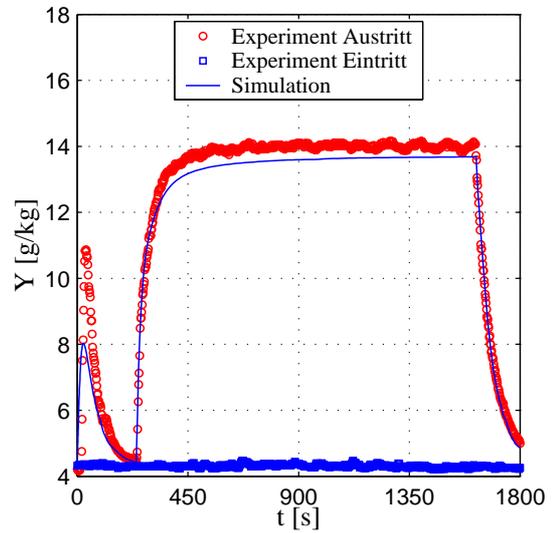


Abbildung G.70: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 260504B

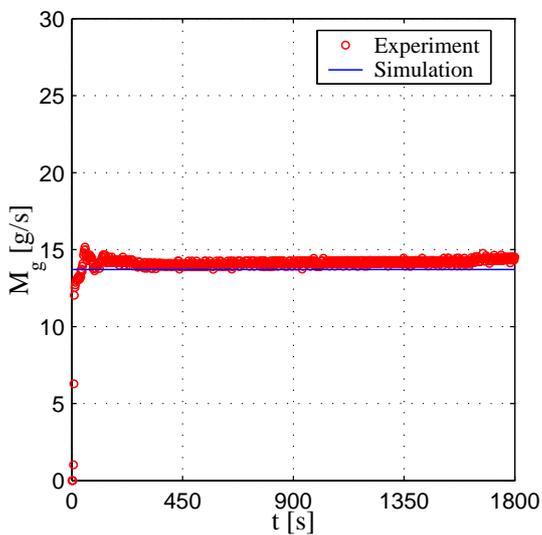


Abbildung G.71: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 260504B

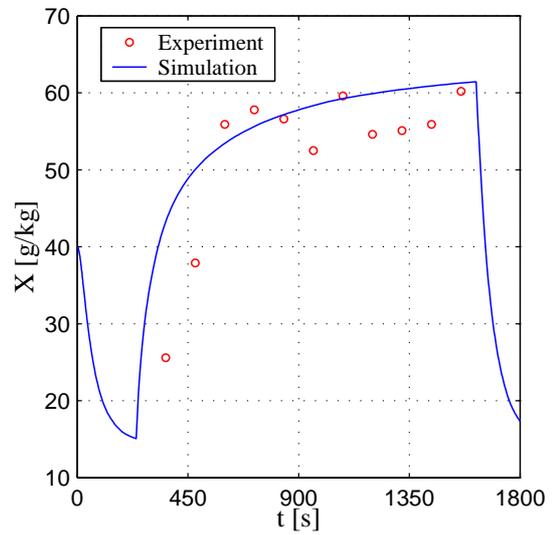


Abbildung G.72: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 260504B

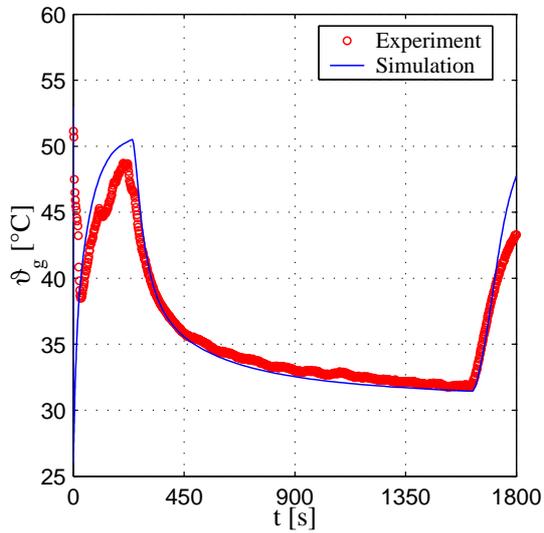


Abbildung G.73: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 270504A

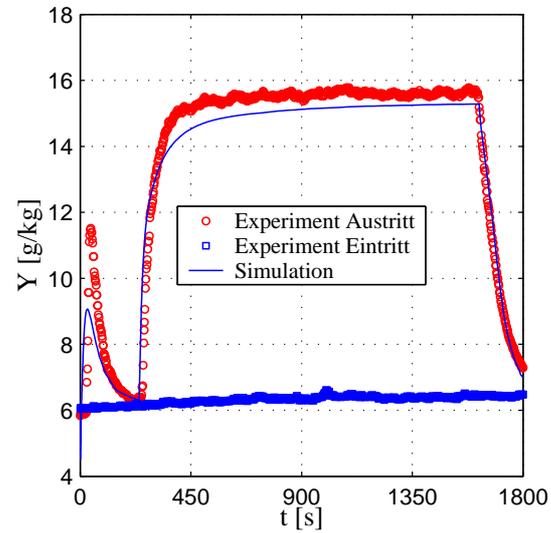


Abbildung G.74: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 270504A

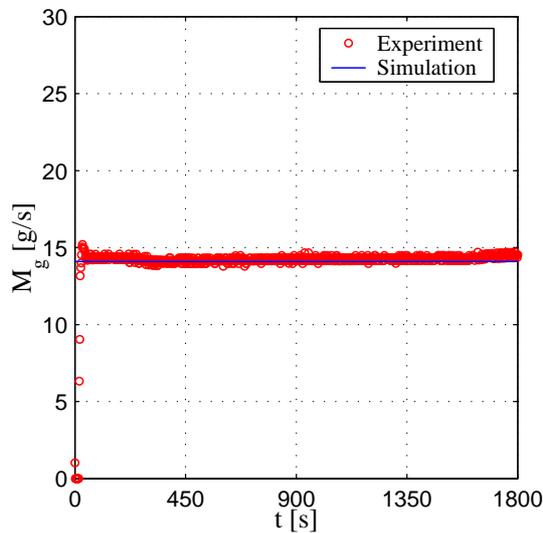


Abbildung G.75: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 270504A

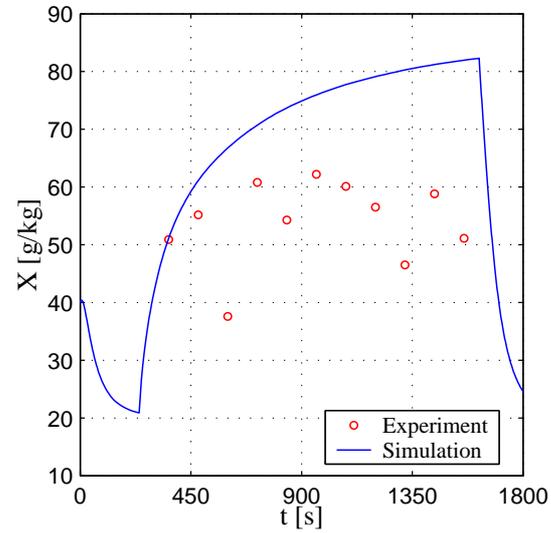


Abbildung G.76: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 270504A

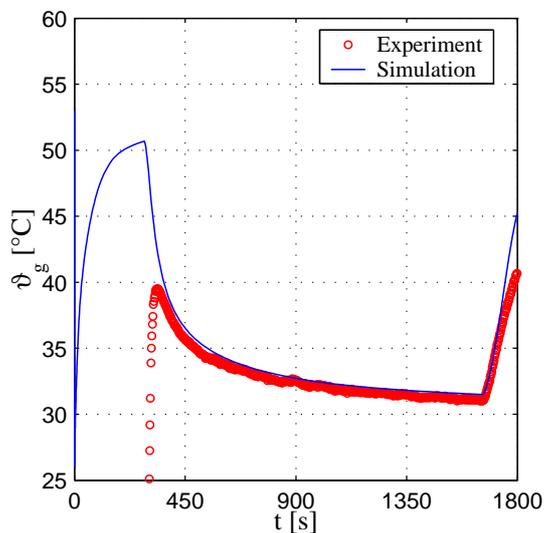


Abbildung G.77: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gastemperatur Versuch: 270504B

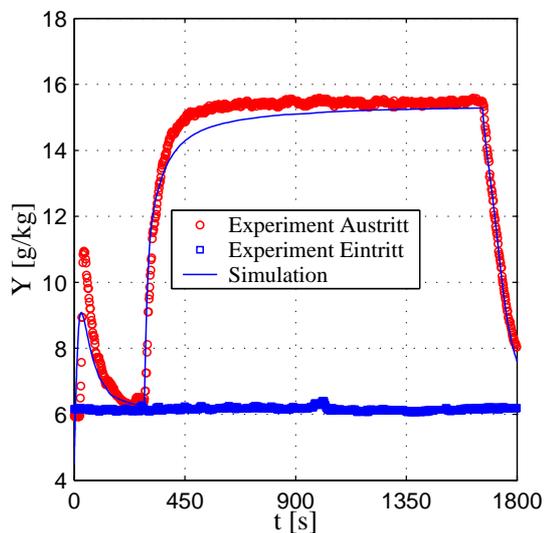


Abbildung G.78: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen Gasbeladung Versuch: 270504B

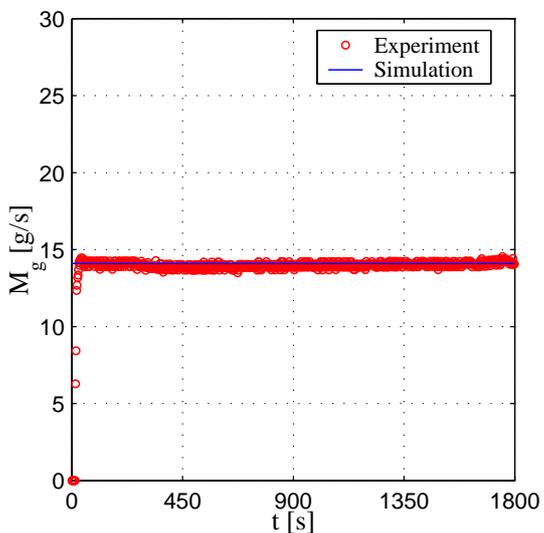


Abbildung G.79: Vergleich zwischen dem simulierten und gemessenen Gasmassendurchsatz Versuch: 270504B

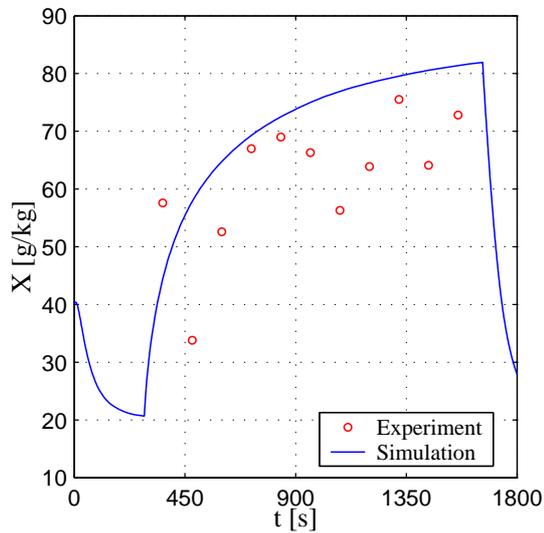


Abbildung G.80: Vergleich zwischen der berechneten und gemessenen mittleren Partikelbeladung Versuch: 270504B

Literaturverzeichnis

[Baskakov u. a. 1973]

BASKAKOV, H.A. ; BERG, B.V. ; VITT, O.K. ; FILIPPOVSKY, N.F. ; KIRAKOSYAN, V.A. ; GOLDOBIN, J.M. ; MASKAEV, V.K.: Heat transfer to objects immersed in fluidized beds . In: *Powder Technology* 8 (1973), S. 273–282

[Bathen u. Breitbach 2001]

BATHEN, D. (Hrsg.) ; BREITBACH, M. (Hrsg.): *Adsorptionstechnik*. 1. Auflage. Berlin : Springer-Verlag, 2001

[Bauer u. a. 1993]

BAUER, K.H. (Hrsg.) ; FRÖMMING, K.H. (Hrsg.) ; FÜHRER, C. (Hrsg.): *Pharmazeutische Technologie*. 4. Auflage. New York : Georg Thieme Verlag Stuttgart, 1993

[Bleck 1970]

BLECK, R.: A fast, approximate method for integrating the stochastic coalescence equation. In: *Journal of Geophysics Research* 75 (1970), S. 5165–5171

[Bramley u. a. 1996]

BRAMLEY, A.S. ; HOUNSLOW, M.J. ; RYALL, R.L.: Aggregation during precipitation from solution: A method for extracting rates from experimental data. In: *Journal of colloid and interface science* 183 (1996), S. 155–165

[Brunauer u. a. 1938]

BRUNAUER, S. ; EMMIT, P.H. ; TELLER, E.: Adsorption of gases in multimolecular layers. In: *Journal of the American Chemical Society* 20 (1938), S. 309–319

[Burgschweiger 2000]

BURGSCHWEIGER, J.: Modellierung des statischen und dynamischen Verhaltens von kontinuierlich betriebenen Wirbelschichttrocknern / VDI-Verlag. Düsseldorf : VDI-Verlag, 2000 (665). – VDI-Fortschrittsbericht, Reihe 3. ISBN 3-18-366503-4

[Churchill u. Chu 1975]

CHURCHILL, S.W. ; CHU, H.H.S.: Correlating Equations for Laminar and Turbulent Free Convection from a Horizontal Cylinder. In: *International Journal of Heat Mass and Transfer* 18 (1975), S. 1049–1053

[Dennis 1977]

DENNIS, J.E.: Nonlinear Least Squares. In: *State of the Art in Numerical Analysis* (1977), S. 269–312

[Ding u. a. 2004]

DING, A. ; BIGGS, C.A. ; HOUNSLOW, M.J.: Population balance model selection for activated sludge flocculation modelling. In: *Proceedings 2nd International Conference on Population Balance Modelling* (2004)

[Ennis 1996]

ENNIS, B.J.: Agglomeration and size enlargement - Session summary paper. In: *Powder Technology* 88 (1996), S. 203–225

[Ennis u. a. 1990]

ENNIS, B.J. ; TARDOS, G. ; PFEFFER, R.: The influence of viscosity on the strength of an axially strained pendular liquid bridge. In: *Chemical Engineering Science* 45 (1990), Nr. 10, S. 3071–3088

[Ennis u. a. 1991]

ENNIS, B.J. ; TARDOS, G. ; PFEFFER, R.: A microlevel-based characterization of granulation phenomena. In: *Powder Technology* 65 (1991), S. 257–272

[Geldart 1973]

GELDART, D.: Types of gas fluidization. In: *Powder Technology* 7 (1973), S. 285–292

[Gluba u. Antkowiak 1988]

GLUBA, T. ; ANTKOWIAK, W.: Auswirkung von Benetzung auf die Abriebfestigkeit von Granalien. In: *Aufbereitungstechnik* (1988), Nr. 2, S. 76–80

[Glück 1986]

GLÜCK, B. (Hrsg.): *Zustands- und Stoffwerte - Wasser, Dampf, Luft - Verbrennungsrechnung*. 3. Auflage. Berlin : VEB Verlag für Bauwesen, 1986

[Gnielinski 1980]

GNIELINSKI, V.: Kapitel: Wärme- und Stoffübertragung in Festbetten. 9. Auflage. Düsseldorf : VDI-Verlag, 1980. – VDI-Wärmeatlas. – Gf1–Gf3 S. ISBN 3-540-41201-8

[Gore u. a. 1985]

GORE, A.Y. ; MCFARLAND, D.W. ; BATUYIOS, N.H.: Fluid-bed granulation: Factors affecting the process in laboratory development and production scale-up. In: *Pharm Tech* 9 (1985), S. 114–122

[Groenewold u. Tsotsas 1997]

GROENEWOLD, H. ; TSOTSAS, E.: A new model for fluidized bed drying. In: *Drying technology* 15 (1997), Dezember, Nr. 1, S. 1687–1698

[Groenewold u. Tsotsas 1998]

GROENEWOLD, H. ; TSOTSAS, E.: Predicting apparent Sherwood numbers for fluidized beds. In: *Drying '98 - Proceedings of 11th International Drying Symposium A* (1998), S. 192–199

[Henneberg 2004]

HENNEBERG, M.: *Untersuchung des Flüssigkeitseintrages auf die Temperaturverteilung in Gas/Feststoff-Wirbelschichten*. Deutschland, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, Diss., 2004

[Hilligardt u. Werther 1986]

HILLIGARDT, K. ; WERTHER, J.: Local bubble gas hold-up and expansion of gas/solid fluidized beds. In: *German Chemical Engineering* 9 (1986), S. 215–221

[Hounslow 1990a]

HOUNSLOW, M.J.: *A discretized population balance for simultaneous nucleation, growth and aggregation*, University of Adelaide, Diss., März 1990

[Hounslow 1990b]

HOUNSLOW, M.J.: Nucleation, growth, and aggregation rates from steady-state experimental data. In: *AIChE - Journal* 36 (1990), November, Nr. 11, S. 1748–1752

[Hounslow u. a. 2001]

HOUNSLOW, M.J. ; PEARSON, J. M. K. ; INSTONE, T.: Tracer studies of high shear granulation: II. population balance modeling. In: *AIChE - Journal* 47 (2001), September, Nr. 9, S. 1984–1999

[Hounslow u. a. 1988]

HOUNSLOW, M.J. ; RYALL, R.L. ; MARSHALL, V.R.: A discretized population balance for nucleation, growth and aggregation. In: *AIChE - Journal* 38 (1988), November, Nr. 11, S. 1821–1832

[Hulburt u. Katz 1964]

HULBURT, H.M. ; KATZ, S.: Some problems in particle technology. A statistical mechanical formulation. In: *Chemical Engineering Science* 19 (1964), Nr. 1, S. 555–578

[Ihlow 2003]

IHLOW, M.: *Beitrag zur Adsorption in flüssigkeitsbedüsten Wirbelschichten*. Deutschland, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, Diss., 2003

[Ihlow u. a. 2002]

IHLOW, M. ; HEINRICH, S. ; HENNEBERG, M. ; PEGLOW, M. ; MÖRL, L.: Probleme bei der Flächenberechnung in flüssigkeitsbedüsten Wirbelschichten. In: *Chemie Ingenieur Technik* 73 (2002), Nr. 3, S. 197–202

[Ilievski u. Hounslow 1995]

ILIEVSKI, D. ; HOUNSLOW, M.J.: Agglomeration during precipitations: II. Mechanism deduction from tracer data. In: *AIChE - Journal* 41 (1995), November, Nr. 3, S. 525–535

[Iveson 2002]

IVESON, S.M.: Limitations of one-dimensional population balance model of wet granulation processes. In: *Powder Technology* 124 (2002), S. 219–229

[Iveson u. Litster 1998]

IVESON, S.M. ; LITSTER, J.D.: Growth regime map of liquid-bound granules. In: *AIChE - Journal* 44 (1998), Juli, Nr. 7, S. 1510–1518

[Kapur 1972]

KAPUR, P.C.: Kinetics of granulation by non-random coalescence mechanism. In: *Chemical Engineering Science* 27 (1972), S. 1863–1869

[Krauss 1994]

KRAUSS, R.: Kapitel: Stoffwerte von Luft. 9. Auflage. Düsseldorf : VDI-Verlag, 1994. – VDI-Wärmeatlas. – Dbb1–Dbb13 S. ISBN 3-540-41201-8

[Kumar u. Ramkrishna 1996a]

KUMAR, S. ; RAMKRISHNA, D.: On the solution of population balance equations by discretization - I. A fixed pivot technique. In: *Chemical Engineering Science* 51 (1996), Nr. 8, S. 1311–1332

[Kumar u. Ramkrishna 1996b]

KUMAR, S. ; RAMKRISHNA, D.: On the solution of population balance equations by discretization - II. A moving pivot technique. In: *Chemical Engineering Science* 51 (1996), Nr. 8, S. 1333–1342

[Litster u. a. 1995]

LITSTER, J.D. ; SMIT, D.J. ; HOUNSLOW, M.J.: Adjustable discretized population balance for growth and aggregation. In: *AIChE - Journal* 41 (1995), März, Nr. 3, S. 591–603

[Lucas u. Luckas 1994]

LUCAS, K. ; LUCKAS, M.: Kapitel: Berechnung von Stoffeigenschaften. 9. Auflage. Düsseldorf : VDI-Verlag, 1994. – VDI-Wärmeatlas. – Da1–Da12 S. ISBN 3-540-41201-8

[Martin 1994]

MARTIN, H.: Kapitel: Wärmeübergang in Wirbelschichten. 9. Auflage. Düsseldorf : VDI-Verlag, 1994. – VDI-Wärmeatlas. – Mf1–Mf8 S. ISBN 3-540-41201-8

[May 1959]

MAY, W.G.: Fluidized bed reactor studies. In: *Chemical Engineering Programm* 55 (1959), S. 40–56

[van Meel 1958]

MEEL van: Adiabatic convection batch drying with re-circulation of air. In: *Chemical Engineering Science* 9 (1958), S. 36–44

[Molerus 1982]

MOLERUS, O.: Interpretation of geldart's type A, B, C and D powders by taking into account interparticle cohesion forces. In: *Powder Technology* 33 (1982), S. 81–87

[Mörl u. a. 1977]

MÖRL, L. ; MITTELSTRASS, M. ; SACHSE, J.: Zum Kugelwachstum bei der Wirbelschichttrocknung von Suspensionen und Lösungen. In: *Chemische Technik* 29 (1977), Nr. 10, S. 540–541

[Ormos u. a. 1973]

ORMOS, Z. ; PATAKI, K. ; B.CSUKAS: Studies on granulation in a fluidized bed II. The effects of the amount of the binder on the physical properties of granules formed in a fluidized bed. In: *Hungarian Journal of Industrial Chemistry* 1 (1973), S. 307–312

[Ramkrishna 2000]

RAMKRISHNA, D. (Hrsg.): *Population balances - Theory and applications to particulate systems in engineering*. 1. Auflage. New York : Academic Press, 2000

[Randolph u. Larson 1971]

RANDOLPH, A.D. (Hrsg.) ; LARSON, M.A. (Hrsg.): *Theory of particulate processes*. 1. Auflage. New York : Academic Press, 1971

[Reh 1977]

REH, L.: Trends in Research and Industrial Application of Fluidization. In: *Verfahrenstechnik* 11 (1977), S. 381–384

[Richardson u. Zaki 1954]

RICHARDSON, J.F. ; ZAKI, W.F.: Sedimentation and Fluidization: Part I. In: *Transactions of the Institution of Chemical Engineers* 32 (1954), S. 35–53

[Rumpf 1959]

RUMPF, H.: Das Granulieren von Stäuben und die Festigkeit der Granulate. In: *Staub* 5 (1959), S. 150–160

[Rumpf 1974]

RUMPF, H.: Die Wissenschaft des Agglomerierens. In: *Chemie Ingenieur Technik* 46 (1974), Nr. 1, S. 1–11

[Rumpf u. Hermann 1970]

RUMPF, H. ; HERMANN, W.: Eigenschaften, Bindungsmechanismen und Festigkeit von Agglomeraten. In: *Aufbereitungstechnik* (1970), Nr. 11, S. 117–127

[Sastry 1975]

SASTRY, K.V.S: Similarity size distribution of agglomerates during their growth by coalescence in granulation or green pelletization. In: *International Journal of Mineral Processing* 2 (1975), S. 187–203

[Schaafsma 2000]

SCHAAFSMA, S.: *Down-scaling of a fluidised bed agglomeration process*, Rijksuniversiteit Groningen, Diss., September 2000

[Schirmer 1938]

SCHIRMER, R.: Die Diffusionszahl von Wasserdampf-Luftgemischen und die Verdampfungsgeschwindigkeit. In: *VDI Beiheft Verfahrenstechnik* (1938), S. 170

[Schubert 1973]

SCHUBERT, H.: Kapillardruck und Zugfestigkeit von feuchten Haufwerken aus körnigen Stoffen. In: *Chemie Ingenieur Technik* 45 (1973), Nr. 6, S. 396–401

[Schubert 1979]

SCHUBERT, H.: Grundlagen des Agglomerierens. In: *Chemie Ingenieur Technik* 51 (1979), Nr. 4, S. 266–277

[Schubert 1982]

SCHUBERT, H. (Hrsg.): *Kapillarität von porösen Feststoffsystemen*. 1. Auflage. Berlin : Springer-Verlag, 1982

[Schubert 1990]

SCHUBERT, H.: Instantisieren pulverförmiger Lebensmittel. In: *Chemie Ingenieur Technik* 62 (1990), Nr. 11, S. 892–906

[Scott 1968]

SCOTT, W.T.: Analytic studies of cloud droplet coalescence I. In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 25 (1968), S. 54–65

[Shampine u. Hosea 1996]

SHAMPINE, L.F. ; HOSEA, M.E.: Analysis and implementation of TR-BDF2. In: *Applied Numerical Mathematics* (1996), Nr. 20

[Shampine u. Reichelt 1997]

SHAMPINE, L.F. ; REICHELT, M.W.: The MATLAB ODE Suite. In: *SIAM - Journal on Scientific Computing* 18 (1997), S. 1–22

[Shi 1997]

SHI, D.: Fluidodynamik und Wärmeübergang in einer zirkulierenden Wirbelschicht / VDI-Verlag. Düsseldorf : VDI-Verlag, 1997 (466). – VDI-Fortschrittsbericht, Reihe 3

[Tan u. a. 2004]

TAN, H.S. ; SALMAN, A.D. ; HOUNSLOW, M.J.: Kinetics of fluidised bed melt granulation IV. Selecting the breakage model. In: *Powder Technology* 144 (2004), S. 65–83

[Thurn 1970]

THURN, U.: *Mischen, Granulieren und Trocknen pharmazeutischer Grundstoffe in heterogenen Wirbelschichten*, ETH Zürich, Diss., 1970

[Uhlemann u. Mörl 2000]

UHLEMANN, H. (Hrsg.) ; MÖRL, L. (Hrsg.): *Wirbelschicht-Sprühgranulation*. 1. Auflage. Berlin : Springer-Verlag, 2000

[Wagner u. Kruse 1998]

WAGNER, W. (Hrsg.) ; KRUSE, A. (Hrsg.): *Properties of water and steam. The industrial standard IAPWS-IF97*. 3. Auflage. Berlin : Springer-Verlag, 1998

[Walcher 1989]

WALCHER, W.: *Praktikum der Physik*. 1. Auflage. Stuttgart : B.G. Teubner, 1989. – Forschungsbericht

[Waldie 1991]

WALDIE, B.: Growth mechanism and the dependence of granule size on drop size in fluidized-bed granulation. In: *Chemical Engineering Science* 46 (1991), Nr. 11, S. 2781–2785

[Watano u. a. 1996]

WATANO, S. ; FUKUSHIMA, T. ; MIYANAMI, K.: Heat transfer and rate of granule growth in fluidized bed granulation. In: *Chemical and Pharmaceutical Bulletin* 44 (1996), S. 572–576

[Winkler 1926]

WINKLER, F.: Verfahren zum Herstellen von Wasserglas. In: *Patentschrift* DE 437 (1926)

[Wynn 1996]

WYNN, E.: Improved accuracy and convergence of discretized population balance of Lister et al. In: *AIChE - Journal* 42 (1996), November, Nr. 7, S. 2084–2086

Lebenslauf

Name	Mirko Peglow
Geburtsdatum	13. November 1974
Geburtsort	Magdeburg
Schulbildung	
1981-1986	Wolodja-Dubinin POS Magdeburg
1986-1989	Anna-Seghers POS Magdeburg
1989-1992	Spezialschule für naturwissenschaftlich-technische Richtung Werner-von-Siemens Gymnasium Magdeburg
1992-1993	Immanuel-Kant Gymnasium Magdeburg
Wehrdienst	
1993-1994	Grundwehrdienst
Studium	
1994-2000	Otto-von Guericke Universität Magdeburg, Studium zum Dipl.-Wirtsch.-Ing. Verfahrens- und Energietechnik
Tätigkeit nach dem Studium	
06/2000-10/2000	Otto-von Guericke Universität Magdeburg, Lehrstuhl Systemverfahrenstechnik, Wissenschaftlicher Mitarbeiter
10/2000-10/2001	Niigata-Universität Japan, Forschungsaufenthalt
10/2001-10/2004	Otto-von Guericke Universität Magdeburg, Lehrstuhl Chemischer Apparatebau, Wissenschaftlicher Mitarbeiter
11/2004	Mitarbeiter am Fraunhofer-Institut IFF Magdeburg
04/2005	Otto-von Guericke Universität Magdeburg, Lehrstuhl Thermische Verfahrenstechnik, Oberassistent
Auszeichnungen	
2000	Fakultätspreis für Verfahrens- und Systemtechnik der Otto-von-Guericke Universität Magdeburg 2000
2000	Forschungsstipendium des Japanischen Bildungsministeriums Monbusho