

# Experimentelle Untersuchungen des Einflusses von verschiedenen Prozessparametern auf das Partikelwachstum bei der Wirbelschicht-Sprühgranulation

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

**Doktoringenieur**

**(Dr.-Ing.)**

von Dipl.-Ing. Torsten Hoffmann

geb. am 23.10.1981 in Haldensleben

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

Promotionskommission: Prof. Dr. Frank Beyrau (Vorsitz)

Prof. Dr.-Ing. habil. Evangelos Tsotsas (Gutachter)

Prof. Dr.-Ing. Mirko Peglow (Gutachter)

Jun.-Prof. Dr.-Ing. Andreas Bück (Gutachter)

eingereicht am: 18.08.2016

Promotionskolloquium am: 30.01.2017

# Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter in der Nachwuchsforschungsgruppe (*NaWiTec*) in der Zeit vom März 2008 bis Februar 2013 am Lehrstuhl für Thermische Verfahrenstechnik des Institutes für Verfahrenstechnik an der Otto-von-Guericke-Universität in Magdeburg. Die Nachwuchsforschungsgruppe ist ein Projekt der Innovationsinitiative „Unternehmen Region“ für die Neuen Länder. Ich bedanke mich hiermit für Finanzierung und Betreuung der Initiative durch das Bundesministerium für Bildung und Forschung.

Mein besonderer Dank gilt vornehmlich meinen Betreuern, Herrn Prof. Dr.-Ing. Evangelos Tsotsas, dem Leiter des Lehrstuhls für Thermische Verfahrenstechnik, Herrn Prof. Dr.-Ing. Mirko Peglow, dem technischen Geschäftsführer der IPT Pergande GmbH und Jun.-Prof. Dr.-Ing. Andreas Bück, dem aktuellen Leiter der Nachwuchsforschungsgruppe, die mir diese Arbeit ermöglicht haben und durch zahlreiche Diskussionen, Ratschläge und fachliche Hinweise zum Gelingen der Dissertation beigetragen haben.

Recht herzlich möchte ich mich bei auch bei meinen Kollegen Dr.-Ing. Mathias Dervede, Dr.-Ing. Neli Hampel, Dr.-Ing. Robert Hampel, Dr.-Ing. Matthias Börner, Dr.-Ing. Plamena Ihlow, Dipl.-Ing. Christian Fischer, Susanne Bögelsack und Dipl.-Ing. Franka Kretschmer, die Teil der *NaWiTec* und der *WiGraTec* Arbeitsgruppe waren, bedanken. Gleichwohl sei auch den anderen Mitarbeitern des Lehrstuhls Dipl.-Ing. Philipp Bachmann, Dipl.-Ing. Franziska Sondej, M. Sc. Christian Rieck, M. Sc. Lisa Mielke und M. Sc. Martin Schmidt für ihre Mithilfe gedankt. Weiterhin danke ich allen Studenten, die durch die Anfertigung von Studien- und Diplomarbeiten beziehungsweise Master- und Bachelorarbeiten an der Dissertation mitgewirkt haben.

Ebenso möchte ich Herrn Dipl.-Phys. Diethard Kürschner, Frau Chem.-Ing. Sabine Schlüsselburg sowie den kompetenten Mitarbeitern der IVT Werkstatt Herrn Gehrke, Herrn Ritzmann, Herrn Rusche und Herrn Blanke danken, ohne die der Erfolg der Arbeit nicht möglich gewesen wäre.

Aus tiefstem Herzen danke ich meiner Ehefrau Rußen Hoffmann für ihre großartige Motivation und intensive Unterstützung, die mir sehr bei der Vollendung dieser Arbeit geholfen haben.

Meinen ganz speziellen Dank richte ich an meine Eltern Regina und Reinhard Hoffmann für die jahrelange tatkräftige und moralische Unterstützung und die gegebene Möglichkeit des eingeschlagenen Bildungsweges.

# Kurzzusammenfassung

Die Wirbelschichtgranulation ist ein wichtiges Verfahren zur Herstellung von Produkten in partikulärer Form und findet in vielen Industriezweigen eine Anwendung. Neben der chemischen Industrie wird dieser technische Prozess auch häufig in der Lebensmittel- und Pharmaindustrie eingesetzt, da dieses Verfahren es ermöglicht, Produkte sehr schonend und mit definieren, vom Kunden gewünschten Eigenschaften zu erzeugen. Das Verfahren der Wirbelschicht kommt ohne bewegliche Teile aus und ist durch seine Kompaktheit geprägt. Alle notwendigen Prozessschritte wie Befeuchtung, Beschichtung, Durchmischung, Trocknung und Kühlung können im selben Apparat realisiert werden. Durch die Schlichkeit des Wirbelschichtapparates wird die Qualität des Produktes hauptsächlich durch die Auswahl der Prozessparameter bestimmt. Die Prozessgestaltung hat somit einen großen Einfluss auf die Produktqualität. Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich speziell mit dem Partikelwachstum beim Prozess der Wirbelschichtsprühgranulation. Ziel ist die Benennung der wichtigsten Einflussgrößen auf das Partikelwachstum und die Identifizierung des Zusammenhangs zwischen thermischen Prozessgrößen und der resultierenden Partikelstruktur.

Die vorliegende Dissertation umfasst die drei Themenschwerpunkte Modellierung des Partikelwachstums, experimentelle Untersuchungen der Wirbelschichtsprühgranulation und der anschließende Vergleich der Ergebnisse aus Experiment und Simulation.

Die mathematische Beschreibung des Partikelwachstumsprozesses bei der Wirbelschichtsprühgranulation erfolgt in dieser Arbeit durch die Verwendung von Populationsbilanzen. Dadurch wird die zeitliche Änderung der Partikelgröße beschrieben. Es werden sowohl der diskontinuierliche Prozess als auch der kontinuierliche Prozess mit interner und externer Klassierung modelliert. Ein wesentlicher Gesichtspunkt bei der Modellierung des Partikelwachstums ist die Kinetik der Populationsbilanz. Frühere Modelle für diese Dynamik gehen von einer Gleichverteilung der eingesprühten Flüssigkeit in der gesamten Wirbelschicht und der Bildung einer kompakten Granulathülle aus. Das daraus resultierende Partikelwachstum ist größenunabhängig. Daher wird ein erweitertes Modell vorgeschlagen, welches sowohl eine Unterteilung in funktionale Zonen (*Sprühzone* und *Trocknungszone*) als auch eine Differenzierung in größenunabhängigem und größenabhängigem Partikelwachstum bietet. Beide Herleitungen berücksichtigen dabei die mögliche Ausbildung einer porösen Granulathülle, wobei der Ansatz für das größenabhängige Partikelwachstum durch die Linearkombination verschiedener Wachstumskinetiken die bestmögliche Anpassung an die Gesamtwachstumsrate ermöglicht. Ein anderer wichtiger Bestandteil der Modellierung ist die Berücksichtigung der thermischen Trocknung, welche ebenfalls für den diskontinuierlichen und den kontinuierlichen Prozess beschrieben wird. Durch die zeitliche Beschreibung der Trocknung und der Einführung des dimensionslosen Trocknungspotenzials lässt sich

ein Zusammenhang zwischen den herrschenden Prozessbedingungen und der resultierenden Partikelstruktur, in Form der sich einstellenden Porosität der gebildeten Granulathülle, herstellen.

Bei den umfangreichen experimentellen Untersuchungen liegt das Hauptaugenmerk auf der Variation von Prozessparametern wie Gaseintrittstemperatur, Eindüsungsrate und Art des Primärmaterials. Als Primärmaterial wird sowohl unporöses (*Glas*) als auch poröses ( $\gamma$ -*Aluminiumoxid*) Material verwendet. Es zeigt sich, dass die Porositäten der Granulathülle für poröses Primärmaterial kleiner sind als für unporöses Primärmaterial. Außerdem wird die Anlagengröße zwischen Labormaßstab und Pilotmaßstab variiert, um einen möglichen Einfluss auf das Partikelwachstum zu bestimmen. Die experimentellen Untersuchungen zum kontinuierlichen Wirbelschichtgranulationsprozess dienen besonders zur Untersuchung der Prozessstabilität und ob sich diese durch die Variation von Prozessparametern beeinflussen lässt. Es wird gezeigt, dass die Prozessparameter die Prozessstabilität durch Oszillationen in der Partikelgrößenverteilung beeinflussen können. Aber nur im Fall der internen Klassierung hat dies auch negative Folgen auf die Produktqualität, für den Fall der externen Klassierung wirken sich die Oszillationen nicht auf die Produktqualität aus.

Der letzte Teil der vorliegende Dissertation vergleicht die Ergebnisse der durchgeführten experimentellen Untersuchungen mit entsprechenden Simulationen. Die für die Berechnung des Partikelwachstums benötigte Porosität der Granulathülle wird für die diskontinuierlichen Experimente mittels Röntgenmikrotomographmessungen bestimmt. Anschließend werden die gemessenen Werte mit dem dimensionslosen Trocknungspotenzial, welches die thermischen Prozessgrößen berücksichtigt, korreliert. Mit Hilfe dieser Korrelation wird dann die Porosität der Granulathülle für die kontinuierliche Granulation berechnet. Hierbei lässt sich feststellen, dass das berechnete Partikelwachstum sowohl für die diskontinuierlichen als auch für die kontinuierlichen Granulationsprozesse eine zufriedenstellende Übereinstimmung mit den gemessenen Ergebnissen liefert.

Die vorliegende Arbeit leistet einen Beitrag zur Verknüpfung von vorherrschenden Prozessbedingungen mit der daraus resultierenden Produktqualität und verbessert damit des Prozessverständnis der Wirbelschichtsprühgranulation. Der hier gezeigte Zusammenhang zwischen thermischen Prozessgrößen und der sich ergebenden Porosität der Granulathülle, welche das Partikelwachstum entscheidend beeinflusst, bietet eine gute Möglichkeit das Produkt gezielt an die vom Anwender gewünschte Funktionalität anzupassen.

# Abstract

Fluidized bed spray granulation is an important process for the production of particulate products and is used in many applications. In addition to the chemical industry, this technical process is also frequently used in food and pharmaceutical industries. Fluidized beds offer advantages as all necessary process steps like wetting, coating, mixing, drying and cooling can be realized in the same apparatus. Product quality is mainly determined by the selection of the process parameters, so operation design has a major impact on the product quality. The present work focuses on the the particle growth during fluidized bed spray layering. The objective is the identification of the main influencing factors on the particle growth and the identification of the relationship between thermal process variables and the resulting particle layer structure.

The presented thesis focuses on particle growth modeling, on experimental investigations of the fluidized bed spray layering and on the comparison between experimental and simulated results.

The mathematical modeling of the particle growth process in the fluidized bed spray granulation is performed in this work using population balances. This allows the description of the temporal evolution of the particle size distribution. Modeling is done for the discontinuous process and for the continuous process with internal and external classification. An important aspect in particle growth modeling are the kinetics of the population balance. Previous models of this dynamic behavior assume a uniform distribution of the sprayed liquid on all particles in the fluidized bed and they assume the formation of a compact particle shell. The resulting particle growth is size-independent that cannot describe all effects observed in experiments. Therefore, a more general model approach is proposed which offers a subdivision into functional zones (*spray zone* and *drying zone*) and a differentiation between size-dependent and size-independent particle growth. Both derivations take the possible formation of a porous particle shell into account. The approach of size-dependent particle growth expressed as the linear combination of different growth kinetics allows the best possible adaptation to the overall observed experimental growth rate. Another important part of the modeling is the inclusion of drying conditions which is also done for the discontinuous and the continuous process. Connecting the gas-side process conditions via the dimensionless drying potential with the resulting porosity of the particle shell, the growth of porous layers can be predicted.

The focus of the extensive experimental studies was on the variation of process parameters such as gas inlet temperature, spraying rate and type of primary material. Two different materials, non-porous (*glass*) and porous ( $\gamma$ -*alumina*), were used as primary materials. It was observed that the shell porosity of the granule for porous primary material is smaller than for non-porous primary material. In addition, the plant size was also varied between

laboratory scale and pilot scale to determine a possible influence on the particle growth. The experimental studies for the continuous fluidized bed spray granulation process concentrated especially on the identification of a possible influence on process stability. It is shown that the process parameters can affect the process stability by oscillations in the particle size distribution. In the case of internal classification, this has a negative impact on product quality, in the case of external classification the oscillations in the particle size distribution do not affect the product quality.

The last part of this thesis compares the results of the experimental studies with corresponding simulations. The shell porosity which is necessary for the calculation of the particle growth is determined for the batch experiments using X-ray micro tomography measurements. Afterward, the measured values are correlated with the dimensionless drying potential, which takes the thermal process variables into account. The shell porosity for the continuous experiments is later calculated using this correlation. It can be seen that the calculated particle growth for the batch and the continuous granulation process provides a satisfactory agreement with the measured results.

This work contributes to combine thermal process conditions with the resulting product quality, helping to improve the understanding of the fluidized bed spray layering process. The shown connection between thermal process variables and the resulting shell porosity of the particle shell, which affects the particle growth crucially, opens new routes to customize product quality of layered particles produced in fluidized beds.

# Inhaltsverzeichnis

<b>Vorwort</b>	<b>I</b>
<b>Kurzzusammenfassung</b>	<b>II</b>
<b>Abstract</b>	<b>IV</b>
<b>Inhaltsverzeichnis</b>	<b>VI</b>
<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>IX</b>
<b>Symbolverzeichnis</b>	<b>XV</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1 Allgemeines . . . . .	1
1.2 Stand des Wissens . . . . .	2
1.2.1 Prinzip der Wirbelschichtsprühgranulation . . . . .	3
1.2.2 Untersuchung von Mikroprozessen in der Wirbelschicht . . . . .	4
1.2.3 Modellierung von partikelbildenden Prozessen . . . . .	5
1.3 Motivation und Zielstellung . . . . .	6
<b>2 Modellierung der Wirbelschichtsprühgranulation</b>	<b>8</b>
2.1 Modellierung der Partikelpopulation . . . . .	8
2.1.1 Die allgemeine Populationsbilanz . . . . .	10
2.1.2 Die Populationsbilanz für Granulationsprozesse . . . . .	11
2.1.3 Kinetik der Populationsbilanz . . . . .	19
2.1.4 Simulationsergebnisse für das Partikelwachstum . . . . .	22
2.2 Modellierung der Trocknung . . . . .	28
2.2.1 Batch-Prozess . . . . .	29
2.2.2 Kontinuierlicher Prozess . . . . .	31
2.2.3 Berechnung der Trocknungsgeschwindigkeit . . . . .	33
2.2.4 Simulationsergebnisse für die Trocknung . . . . .	34
<b>3 Anlagen, Messmethoden und Materialien</b>	<b>37</b>

3.1	Wirbelschichtversuchsanlagen . . . . .	37
3.1.1	Wirbelschichtlaborgranulationsanlage WSA150 . . . . .	37
3.1.2	Wirbelschichtpilotgranulationsanlage WSA300 . . . . .	39
3.2	Messtechnik . . . . .	42
3.2.1	Messung von Partikelgrößenverteilungen . . . . .	42
3.2.2	Messung von Partikelporositäten . . . . .	44
3.2.3	Messung von Gasfeuchten . . . . .	47
3.3	Versuchsmaterialien . . . . .	50
3.3.1	Eigenschaften der Primärpartikel . . . . .	50
3.3.2	Beschichtungsmaterial . . . . .	53
<b>4</b>	<b>Experimentelle Untersuchungen</b>	<b>54</b>
4.1	Chargengranulation in der Wirbelschichtlaboranlage . . . . .	54
4.1.1	Versuchsreihe mit $\gamma$ -Aluminiumoxid als Ausgangsmaterial . . . . .	54
4.1.2	Versuchsreihe mit Glas als Ausgangsmaterial . . . . .	62
4.2	Chargengranulation in der Wirbelschichtpilotanlage . . . . .	69
4.3	Kontinuierliche Granulation mit interner Klassierung in der Wirbelschichtpilotanlage . . . . .	77
4.4	Kontinuierliche Granulation mit externer Klassierung in der Wirbelschichtpilotanlage WSA300 . . . . .	85
<b>5</b>	<b>Diskussion</b>	<b>101</b>
5.1	Untersuchung des Primärmaterialeinflusses . . . . .	101
5.2	Untersuchung des Einflusses der Anlagengröße . . . . .	103
5.3	Bestimmung der Porositätskorrelation . . . . .	104
5.4	Partikelwachstum bei der kontinuierlichen Granulation . . . . .	105
5.4.1	Berechnung der Porosität für die kontinuierliche Granulation . . . . .	105
5.4.2	Vergleich des Partikelwachstums aus Experiment und Simulation für die kontinuierliche Granulation . . . . .	106
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>111</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>115</b>
	<b>Lebenslauf</b>	<b>122</b>
	<b>Publikationsliste</b>	<b>123</b>
	<b>Anhang</b>	<b>126</b>
<b>A</b>	<b>Stoffwerte</b>	<b>126</b>
A.1	Stoffwerte der trockenen Luft . . . . .	126

A.2	Stoffwerte von Wasser . . . . .	128
A.3	Stoffwerte von Wasserdampf . . . . .	129
A.4	Anpassung von Antoine Konstanten . . . . .	130
<b>B</b>	<b>Kenngrößen der Wirbelschicht</b>	<b>131</b>
<b>C</b>	<b>Wärme- und Stoffübertragung in Wirbelschichten</b>	<b>133</b>
<b>D</b>	<b>Differentialgleichungen</b>	<b>135</b>
D.1	Modellierung der Partikelpopulation für die absatzweise Granulation . . . .	135
D.2	Modellierung der Partikelpopulation für die kontinuierliche Granulation . .	135
<b>E</b>	<b>Daten zur kontinuierlichen Granulation</b>	<b>136</b>

# Abbildungsverzeichnis

1.1	Fließfähigkeit von pulverförmigen Feststoffen . . . . .	1
1.2	Schematische Darstellung des Partikelwachstums . . . . .	3
1.3	Schematische Darstellung des Zusammenhanges zwischen Makro- und Mikroprozessen . . . . .	5
2.1	Schema des Zwei-Zonen-Modells mit Trocknungszone (links) und Sprühzone (rechts) . . . . .	13
2.2	Schematische Darstellung der Partikelströme am Sieb . . . . .	17
2.3	Schematische Darstellung der Partikelströme an der Mühle . . . . .	18
2.4	Oberflächenproportionale Flüssigkeitsfilmabscheidung . . . . .	19
2.5	Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Anzahldichteverteilung $q_0$ für die vier verschiedenen Wachstumsansätze ( $G_{\varepsilon,i}$ ), Ein-Zonen-Modell . . . . .	23
2.6	Vergleich der zeitlichen Entwicklung des mittleren Partikeldurchmessers $x_m$ für die vier verschiedenen Wachstumsansätze ( $G_{\varepsilon,i}$ ), Ein-Zonen-Modell . . . . .	24
2.7	Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen $\sigma$ für die vier verschiedenen Wachstumsansätze ( $G_{\varepsilon,i}$ ), Ein-Zonen-Modell . . . . .	24
2.8	Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen $\sigma$ für die vier verschiedenen Wachstumsansätze ( $G_{\varepsilon,i}$ ) mit $\alpha = 10\%$ und $\tau_\alpha = 1 s$ . . . . .	25
2.9	Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen $\sigma$ für die vier verschiedenen Wachstumsansätze ( $G_{\varepsilon,i}$ ) mit $\alpha = 1\%$ und $\tau_\alpha = 1 s$ . . . . .	26
2.10	Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen $\sigma$ für die vier verschiedenen Wachstumsansätze ( $G_{\varepsilon,i}$ ) mit $\alpha = 1\%$ und $\tau_\alpha = 0.1 s$ . . . . .	26
2.11	Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen $\sigma$ für die vier verschiedenen Wachstumsansätze ( $G_{\varepsilon,i}$ ) mit $\alpha = 10\%$ und $\tau_\alpha = 0.1 s$ . . . . .	27
2.12	Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen $\sigma$ für die vier verschiedenen Wachstumsansätze ( $G_{\varepsilon,i}$ ) mit $\alpha = 10\%$ und $\tau_\alpha = 0.5 s$ . . . . .	27

2.13	Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Anzahldichteverteilung $q_0$ für das Zwei-Zonen-Modell mit oberflächenproportionalem Wachstum, $\alpha = 10\%$ und $\tau_\alpha = 0.1 s$ . . . . .	35
2.14	Zeitliche Entwicklung der Gasbeladung für das Zwei-Zonen-Modell mit oberflächenproportionalem Wachstum, $\alpha = 10\%$ und $\tau_\alpha = 0.1 s$ . . . . .	35
2.15	Zeitliche Entwicklung der Feststoffbeladung für das Zwei-Zonen-Modell mit oberflächenproportionalem Wachstum, $\alpha = 10\%$ und $\tau_\alpha = 0.1 s$ . . . . .	36
2.16	Zeitliche Entwicklung der Gas- und Partikeltemperatur für das Zwei-Zonen-Modell mit oberflächenproportionalem Wachstum, $\alpha = 10\%$ und $\tau_\alpha = 0.1 s$ . . . . .	36
3.1	Fließbild der modifizierten Laborgranulationsanlage WSA150 . . . . .	38
3.2	Prozessraum der modifizierten Laborgranulationsanlage WSA150 . . . . .	39
3.3	Fließbild der halbtechnischen Pilotanlage WSA300 . . . . .	40
3.4	Prozessraum der halbtechnischen Pilotanlage WSA300 . . . . .	41
3.5	Funktionsschema des Camsizers (Quelle: RETSCH Technology GmbH) . . . . .	42
3.6	Festlegung des Partikeldurchmessers . . . . .	43
3.7	Desktop-Rasterelektronenmikroskop (Quelle: Phenom World B.V.) . . . . .	45
3.8	Messkammer mit Röntgenquelle und Detektor des Röntgenmikrotomographen (Dadkhah et al., 2012) . . . . .	46
3.9	Prinzipschema einer dreidimensionalen Röntgenmikrotomographenmessung (Dadkhah et al., 2012) . . . . .	46
3.10	Prinzipschema der Bestimmung der Porosität der Partikelhülle . . . . .	46
3.11	Röntgenmikrotomographenaufnahme von zwei mit Natriumbenzoat beschichteten Glaspartikeln . . . . .	47
3.12	Schema des Infrarotspektrometers zur Messung der Gasfeuchte (Hampel, 2010) . . . . .	48
3.13	Schema der Messapparatur zur Kalibrierung der Infrarotspektrometer (Hampel, 2010) . . . . .	49
3.14	Darstellung der Partikelgrößendichteverteilung für $\gamma$ -Aluminiumoxid und Glas . . . . .	51
3.15	Rasterelektronenmikroskopaufnahme eines $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikels . . . . .	52
3.16	Rasterelektronenmikroskopaufnahme eines Glaspartikels . . . . .	52
3.17	Darstellung der Partikelgrößendichteverteilung für Natriumbenzoat . . . . .	52
3.18	Rasterelektronenmikroskopaufnahme eines Natriumbenzoatpartikels . . . . .	53
4.1	Zeitlicher Verlauf der Gasaustrittstemperatur für die Versuche $E1$ , $E2$ und $E3$ . . . . .	57
4.2	Zeitlicher Verlauf der Gasaustrittsbeladung für die Versuche $E1$ , $E2$ und $E3$ . . . . .	57
4.3	Vergleich der dimensionslosen Trocknungspotenziale aus Experiment und Simulation für die erste Versuchsreihe mit $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikeln . . . . .	58
4.4	Partikelgrößenverteilungen zum Zeitpunkt $t = t_{end}$ für die Versuche $E1$ , $E5$ und $E9$ . . . . .	59

4.5	Partikelgrößenverteilungen zum Zeitpunkt $t = t_{end}$ für die Versuche $E3$ , $E5$ und $E7$ . . . . .	59
4.6	Übersicht von REM-Aufnahmen aus den Versuchen $E1$ bis $E9$ für typische Partikeloberflächenstrukturen . . . . .	60
4.7	Zusammenhang zwischen den dimensionslosen Trocknungspotenzialen und den gemessenen Porositäten der Partikelhülle für die erste Versuchsreihe mit $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikeln . . . . .	61
4.8	Partikelgrößenverteilungen für die Versuche $E1$ und $E9$ . . . . .	62
4.9	Partikelgrößenverteilungen für die Versuche $E3$ und $E7$ . . . . .	62
4.10	Zeitlicher Verlauf der Gasaustrittstemperatur für den Versuch $E11$ . . . . .	64
4.11	Zeitlicher Verlauf der Gasaustrittsbeladung für den Versuch $E11$ . . . . .	64
4.12	Vergleich der dimensionslosen Trocknungspotenziale aus Experiment und Simulation für die zweite Versuchsreihe mit Glaspartikeln . . . . .	65
4.13	Partikelgrößenverteilungen zum Zeitpunkt $t = t_{end}$ für die Versuche $E13$ und $E14$ . . . . .	66
4.14	Partikelgrößenverteilungen zum Zeitpunkt $t = t_{end}$ für die Versuche $E11$ und $E12$ . . . . .	66
4.15	Übersicht von REM-Aufnahmen aus den Versuchen $E10$ bis $E13$ für typische Partikeloberflächenstrukturen . . . . .	67
4.16	Zusammenhang zwischen den dimensionslosen Trocknungspotenzialen und den gemessenen Porositäten der Partikelhülle für die zweite Versuchsreihe mit Glaspartikeln . . . . .	68
4.17	Partikelgrößenverteilungen für die Versuche $E14$ und $E13$ . . . . .	69
4.18	Partikelgrößenverteilungen für die Versuche $E11$ und $E12$ . . . . .	69
4.19	Zeitlicher Verlauf der Gastemperatur für den Versuch $E17$ . . . . .	72
4.20	Zeitlicher Verlauf der Gasbeladung für den Versuch $E17$ . . . . .	72
4.21	Vergleich der dimensionslosen Trocknungspotenziale aus Experiment und Simulation für die dritte Versuchsreihe mit $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikeln . . . . .	73
4.22	Partikelgrößenverteilungen zum Zeitpunkt $t = t_{end}$ für die Versuche $E15$ , $E16$ und $E17$ . . . . .	74
4.23	Partikelgrößenverteilungen zum Zeitpunkt $t = t_{end}$ für die Versuche $E16$ und $E18$ . . . . .	74
4.24	Übersicht von REM-Aufnahmen aus den Versuchen $E15$ bis $E18$ für typische Partikeloberflächenstrukturen . . . . .	75
4.25	Zusammenhang zwischen den dimensionslosen Trocknungspotenzialen und den gemessenen Porositäten der Partikelhülle für die dritte Versuchsreihe mit $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikeln . . . . .	76
4.26	Partikelgrößenverteilungen für die Versuche $E15$ und $E17$ . . . . .	77
4.27	Partikelgrößenverteilungen für für die Versuche $E16$ und $E18$ . . . . .	77
4.28	Zeitlicher Verlauf der Gastemperatur für V1 . . . . .	79
4.29	Zeitlicher Verlauf der Gasbeladung für V1 . . . . .	79

4.30	Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen in der Wirbelschichtkammer für V1 . . . . .	80
4.31	Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen im Produktbehälter für V1	80
4.32	Zeitlicher Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers $x_m$ in der Schicht für V1 . . . . .	80
4.33	Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für V1 . . . . .	80
4.34	REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V1, $t_1 = 54 \text{ min}$ . . . . .	81
4.35	REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V1, $t_2 = 209 \text{ min}$ . . . . .	82
4.36	REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V1, $t_4 = 363 \text{ min}$ . . . . .	82
4.37	REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V1, $t_5 = 530 \text{ min}$ . . . . .	82
4.38	REM-Aufnahmen der Probe aus dem Produktbehälter und eines Einzelpartikels für V1, $t_3 = 282 \text{ min}$ . . . . .	83
4.39	REM-Aufnahmen der Probe aus dem Produktbehälter und eines Einzelpartikels für V1, $t_6 = 555 \text{ min}$ . . . . .	83
4.40	Zeitlicher Verlauf der Gastemperatur für V2 . . . . .	84
4.41	Zeitlicher Verlauf der Gasbeladung für V2 . . . . .	84
4.42	Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen in der Wirbelschichtkammer für V2 . . . . .	84
4.43	Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen im Produktbehälter für V2	84
4.44	Zeitlicher Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers $x_m$ in der Schicht für V2 . . . . .	85
4.45	Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für V2 . . . . .	85
4.46	Zeitlicher Verlauf der Gastemperatur für V3 . . . . .	87
4.47	Zeitlicher Verlauf der Gasbeladung für V3 . . . . .	87
4.48	Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen in der Wirbelschichtkammer für V3 . . . . .	88
4.49	Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen im Produktbehälter für V3	88
4.50	Zeitlicher Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers $x_m$ in der Schicht für V3 . . . . .	89
4.51	Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für V3 . . . . .	89
4.52	REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V3, $t_1 = 5 \text{ min}$ . . . . .	89
4.53	REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V3, $t_2 = 216 \text{ min}$ . . . . .	90

4.54	REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V3, $t_4 = 385 \text{ min}$ . . . . .	90
4.55	REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V3, $t_5 = 530 \text{ min}$ . . . . .	91
4.56	REM-Aufnahmen der Probe aus dem Produktbehälter und eines Einzelpartikels für V3, $t_3 = 374 \text{ min}$ . . . . .	91
4.57	Zeitlicher Verlauf der Gastemperatur für V4 . . . . .	92
4.58	Zeitlicher Verlauf der Gasbeladung für V4 . . . . .	92
4.59	Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen in der Wirbelschichtkammer für V4 . . . . .	93
4.60	Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen im Produktbehälter für V4 . . . . .	93
4.61	Zeitlicher Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers $x_m$ in der Schicht für V4 . . . . .	93
4.62	Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für V4 . . . . .	93
4.63	REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V4, $t_1 = 97 \text{ min}$ . . . . .	94
4.64	REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V4, $t_2 = 302 \text{ min}$ . . . . .	94
4.65	REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V4, $t_4 = 568 \text{ min}$ . . . . .	95
4.66	REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V4, $t_6 = 694 \text{ min}$ . . . . .	95
4.67	REM-Aufnahmen der Probe aus dem Produktbehälter und eines Einzelpartikels für V4, $t_3 = 303 \text{ min}$ . . . . .	96
4.68	REM-Aufnahmen der Probe aus dem Produktbehälter und eines Einzelpartikels für V4, $t_5 = 573 \text{ min}$ . . . . .	96
4.69	Zeitlicher Verlauf der Gastemperatur für V5 . . . . .	97
4.70	Zeitlicher Verlauf der Gasbeladung für V5 . . . . .	97
4.71	Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen in der Wirbelschichtkammer für V5 . . . . .	97
4.72	Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen im Produktbehälter für V5 . . . . .	97
4.73	Zeitlicher Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers $x_m$ in der Schicht für V5 . . . . .	98
4.74	Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für V5 . . . . .	98
4.75	Zeitlicher Verlauf der Gastemperatur für V6 . . . . .	99
4.76	Zeitlicher Verlauf der Gasbeladung für V6 . . . . .	99
4.77	Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen in der Wirbelschichtkammer für V6 . . . . .	99
4.78	Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen im Produktbehälter für V6 . . . . .	99

4.79	Zeitlicher Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers $x_m$ in der Schicht für V6 . . . . .	100
4.80	Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für V6 . . . . .	100
5.1	Vergleich der dimensionslosen Trocknungspotenziale mit den gemessenen Porositäten der Partikelhülle für verschiedene Ausgangsmaterialien . . . . .	102
5.2	Vergleich der dimensionslosen Trocknungspotenziale mit den gemessenen Porositäten der Partikelhülle für verschiedene Anlagengrößen . . . . .	103
5.3	Approximation der Messwerte für die Versuchsreihen mit $\gamma$ -Aluminiumoxid mittels Regressionsgeraden . . . . .	104
5.4	Darstellung der berechneten Porositäten der Partikelhülle für die dimensionslosen Trocknungspotenziale der kontinuierlichen Versuchsreihen . . . . .	106
5.5	Vergleich der zeitlichen Entwicklung des mittleren Partikeldurchmessers $x_m$ in der Schicht für den Versuch V1 und die entsprechende Simulation . . . . .	107
5.6	Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für den Versuch V1 und die entsprechende Simulation . . . . .	107
5.7	Vergleich der zeitlichen Entwicklung des mittleren Partikeldurchmessers $x_m$ in der Schicht für den Versuch V2 und die entsprechende Simulation . . . . .	107
5.8	Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für den Versuch V2 und die entsprechende Simulation . . . . .	107
5.9	Vergleich der zeitlichen Entwicklung des mittleren Partikeldurchmessers $x_m$ in der Schicht für den Versuch V3 und die entsprechende Simulation . . . . .	108
5.10	Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für den Versuch V3 und die entsprechende Simulation . . . . .	108
5.11	Vergleich der zeitlichen Entwicklung des mittleren Partikeldurchmessers $x_m$ in der Schicht für den Versuch V4 und die entsprechende Simulation . . . . .	109
5.12	Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für den Versuch V4 und die entsprechende Simulation . . . . .	109
5.13	Vergleich der zeitlichen Entwicklung des mittleren Partikeldurchmessers $x_m$ in der Schicht für den Versuch V5 und die entsprechende Simulation . . . . .	109
5.14	Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für den Versuch V5 und die entsprechende Simulation . . . . .	109
5.15	Vergleich der zeitlichen Entwicklung des mittleren Partikeldurchmessers $x_m$ in der Schicht für den Versuch V6 und die entsprechende Simulation . . . . .	110
5.16	Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für den Versuch V6 und die entsprechende Simulation . . . . .	110

# Symbolverzeichnis

## Lateinische Buchstaben

Symbol	Bedeutung	Einheit
A	Fläche	$m^2$
a	Filmstärke	$m$
$B_0$	Keimbildungsrate	$1/s$
b	Filmstärke	$m$
$C_B$	Parameter für die Zerkleinerungsenergie nach Bond	$m^{2,5}/s^2$
c	spezifische Wärmekapazität	$J/(kgK)$
c	Massenanteil gelösten Feststoffes	–
d	Durchmesser	$m$
d	Exponent der RRSB-Verteilung	–
e	interne Koordinate	
G	Wachstumsgeschwindigkeit	$m/s$
g	Gravitationskonstante	$m/s^2$
H	Höhe	$m$
H	Enthalpie	$J$
$\dot{H}$	Enthalpiestrom	$J/s$
$\Delta h_{v,0}$	spezifische Verdampfungsenthalpie bei 0°C	$J/kg$
K	Austragsfaktor	–
k	Konstante in Trennfunktion	–
L	Länge	$m$
M	Masse	$kg$
$\dot{M}$	Massenstrom	$kg/s$
$\tilde{M}$	Molare Masse	$kg/kmol$
N	Anzahl	–
n	Anzahldichte	$1/m$
$\dot{n}$	Anzahldichtestrom	$1/(ms)$
P	Wahrscheinlichkeitsfaktor	–
$P_N$	Quellterm	$1/s$
p	Druck	$bar$
$p_N$	Quelldichte	<i>von r und e abhängig</i>
Q	normierte Verteilungssumme	–
$\dot{Q}$	Wärmestrom	$J/s$
q	normierte Verteilungsdichte	$1/m$
$R_g$	spezifische Gaskonstante	$J/(kgK)$

Symbol	Bedeutung	Einheit
r	externe Koordinate	
S	Oberfläche des Kontrollvolumens	$m^2$
S	Sphärizität	–
T	Temperatur	$^{\circ}C, K$
T	Trennfunktion	–
t	Zeit	s
U	Umfang	m
u	Geschwindigkeit	m/s
$u_0$	Leerrohrgeschwindigkeit	m/s
V	Volumen	$m^3$
$W_m$	spezifische Zerkleinerungsenergie	J/kg
X	Beladung der Feststoffphase	kg/kg
x	Partikeldurchmesser	m
$x_T$	Trennkorndurchmesser	m
Y	Beladung der Gasphase	kg/kg
z	Höhenkoordinate	m

## Griechische Buchstaben

Symbol	Bedeutung	Einheit
$\alpha$	Wärmeübergangskoeffizient	$W/(mK)$
$\beta$	Stoffübergangskoeffizient	m/s
$\delta$	Diffusionskoeffizient	$m^2/s$
$\varepsilon$	Porosität	$m^3/m^3$
$\eta$	dimensionsloses Trocknungspotenzial	–
$\eta$	dynamische Viskosität	Pa s
$\vartheta$	Temperatur	$^{\circ}C$
$\kappa$	Flächenverhältnis zwischen Klassierrohr und Wirbelschicht	–
$\lambda$	Wärmeleitkoeffizient	$W/(mK)$
$\lambda$	Gewichtungsfaktor	–
$\mu$	Moment der Verteilung	–
$\nu$	kinematische Viskosität	$m^2/s$
$\dot{\nu}$	dimensionslose Trocknungsgeschwindigkeit	–
$\xi$	dimensionslose Partikelbeladung	–
$\rho$	Dichte	kg/ $m^3$
$\sigma$	Standardabweichung	m
$\tau$	Verweilzeit	s
$\Phi$	Transportterm	1/s
$\phi$	Transportdichte	von r und e abhängig
$\varphi$	Benetzungsgrad	–

## Indizes

Index	Bedeutung
app	Apparat
area	Fläche
bed	Wirbelschicht
c	Sehnenlänge
crit	kritischer Wert
dp	Taupunkt
dry	trocken
elu	Austragspunkt
Fe	Feret
g	Gas
hyg	hygroskopisch
i	Laufindex
in	Eintritt
j	Laufindex
class	Klassierrohr
l	Flüssigkeit
m	Mittelwert
max	Maximum
mf	Minimalfluidisierung
mill	Mühle
min	Minimum
nozzle	Zweistoffdüse
nuc	Keimbildung
os	Überkorn
out	Austritt
p	Partikel
prod	Produkt
ref	Referenz
s	Feststoff
sat	Sättigung
sh	Granulathülle
sus	Suspension
tot	gesamt
u	Umlauf
us	Unterkorn
v	Verdampfung, Dampf
w	Wasser
wet	benetzt
$\alpha$	Sprühzone
$1 - \alpha$	Trocknungszone
0	Anfang $t = 0$ , Anzahlbezogen
1	Längenbezogen
2	Flächenbezogen
3	Volumenbezogen

<b>Index</b>	<b>Bedeutung</b>
-	Mittelwert
~	molare Größe

## **Abkürzungen**

<b>Abkürzung</b>	<b>Bedeutung</b>
CCD	Charge coupled device
CFD	Computational fluid dynamics
DEM	Discrete element methode
FIR	Flow indication and recording
GPCG	Glatt powder coater granulator
IR	Infrarot
LED	Light emitting diode
MIR	moisture indication and recording
CT	Computertomographie
PIV	Particle image velocimetry
REM	Rasterelektronenmikroskop
RRSB	Rosin, Rammler, Sperling, Bennett
SPS	Speicherprogrammierbare Steuerung
TIR	Temperature indication and recording
WSA	Wirbelschichtanlage

# Kapitel 1

## Einleitung

### 1.1 Allgemeines

Feststoffe sind ein wichtiger Bestandteil in der verarbeitenden Industrie. Mit circa 60 % stellen sie über die Hälfte der hergestellten Produkte dar (Wintermantel, 1999). Sie dienen häufig als Ausgangsstoffe oder sind Zwischen- bzw. Endprodukte. Die Verwendung von Feststoffen stellt dabei gewisse Anforderungen an die technischen Prozesse wie Trocknung, Transport, Stofftrennung und -vermischung. Diese werden vor allem durch die unterschiedlichen charakteristischen Eigenschaften wie Größe, Feuchte, Oberflächestruktur, stoffliche Zusammensetzung, Porosität, Kompaktierungsgrad, Härte und Abrieb (*Friabilität*) der Feststoffe hervorgerufen. Bei falscher Auslegung von Apparaten und ungünstiger Auswahl an Rohstoffen kann es beispielsweise zu Brückenbildung in Vorratssilos, Verstopfungen in Förderleitungen und zu Staubexplosionen während des Produktionsprozesses kommen. Speziell die Eigenschaft der Partikelgröße des Feststoffes hat dabei einen entscheidenden Einfluss auf die Handlingeigenschaften wie Fließfähigkeit (Abbildung 1.1), Mischbarkeit oder Staubfreiheit. Neben der Partikelgröße ist die Partikelstruktur bzw. die Partikelporosität und Form entscheidend für die vom Verbraucher geforderten Produkteigenschaften. Sie beeinflussen unter anderem die Löslichkeit und Abriebfestigkeit des Substrates, welches in der Lebensmittel- und Pharmaindustrie von essenzieller Bedeutung ist (Morris, 1998).



**Abbildung 1.1:** Fließfähigkeit von pulverförmigen Feststoffen

Pulverförmige Feststoffe lassen sich durch Prozesse wie Kristallisation, Sprühtrocknung, Agglomeration und Granulation herstellen (Rumpf, 1958). Am häufigsten erfolgt hierbei das Überführen von Flüssigkeiten in partikuläre Feststoffe. Dies geschieht durch das Verdampfen des Lösungsmittels aus einer Lösung oder Dispersion. Bei der Sprühtrocknung wird die Flüssigkeit in einen leeren, mit heißem Gas durchströmten, Apparat gesprüht. Die so erzeugten Partikel hängen dadurch ausschließlich von der Anfangstropfengröße bzw. von der Feststoffmenge im einzelnen Tropfen ab. Es entstehen Pulver mit einer mittleren Partikelgröße von  $50\ \mu\text{m}$  bis  $300\ \mu\text{m}$ . Für die Produktion größerer Partikel wird deshalb häufig das Verfahren der Sprühwirbelschicht genutzt. Hier wird die Flüssigkeit auf eine primäre Partikelschüttung gedüst, die ebenfalls mit heißem Gas durchströmt wird. Durch das Durchströmen entgegengesetzt zur Schwerkraft befindet sich diese Partikelschüttung in einem Schwebestand und die Feststoffpartikel verhalten sich ähnlich wie eine Flüssigkeit. Erwähnung findet die Wirbelschichttechnik erstmals in den Arbeiten von Winkler (1926). Mit dem Verfahren der Wirbelschicht lassen sich recht unterschiedliche Prozesse realisieren. So differenziert man auf Grund von zahlreichen apparativen Modifikationen und Prozessbedingungen zwischen Agglomerations-, Coating- und Granulationsprozessen. Bei der Agglomeration von pulverförmigen Feststoffen bilden sich durch die Zugabe von binderhaltigen Lösungen Feststoffbrücken zwischen den einzelnen Primärpartikeln. Durch diese Verbindungen entstehen beerenförmige Agglomerate aus vielen Einzelpartikeln. Mit der Zugabemenge und Dauer lässt sich die gewünschte Agglomeratgröße variieren. Der Coating- und der Granulationsprozess gestalten sich ähnlich. Im Gegensatz zur Agglomeration findet hier aber keine Vernetzung der Primärpartikel statt, sondern die Einzelpartikel wachsen durch das schichtweise Auftragen bzw. Abscheiden von Sprühtropfen. Diese können entweder aus einer feststoffhaltigen Lösung, Suspension oder Schmelze bestehen. Beim Coating wird lediglich eine, im Vergleich zum Partikeldurchmesser, sehr dünne Schicht aufgetragen, während bei der klassischen Granulation der Durchmesserzuwachs durch die Beschichtung wesentlich größer sein kann. Außerdem unterscheidet man häufig auch die Art der zugegebenen Feststoffsubstanzen. Typisch für Coatingprozesse ist die Eindüsung von artfremden Materialien. Das Primärpartikel wird also mit einem anderen Feststoff als dem, aus dem es besteht, ummantelt. Im Granulationsprozess werden häufiger Flüssigkeiten eingesprüht, die denselben Feststoff enthalten wie die Primärkeime. Somit bestehen die Partikel nach dem Coatingprozess oft aus einem heterogenen Materialgefüge, wogegen die Partikel aus dem Granulationsprozess homogen sind. Somit wird am Ende neben den Prozessbedingungen und dem Apparatedesign auch durch die verwendeten Materialien die Produktqualität beeinflusst. Es gibt somit eine große Anzahl an Prozessvariablen, mit denen die Eigenschaften des Produkts gezielt verändert werden können. Allerdings stellt diese Vielfalt an Möglichkeiten auch eine Herausforderung bei der Charakterisierung der Verfahren dar.

## 1.2 Stand des Wissens

Die wissenschaftlichen Grundlagen für die in dieser Arbeit vorgestellten Untersuchungen lassen sich in drei Schwerpunkte einteilen:

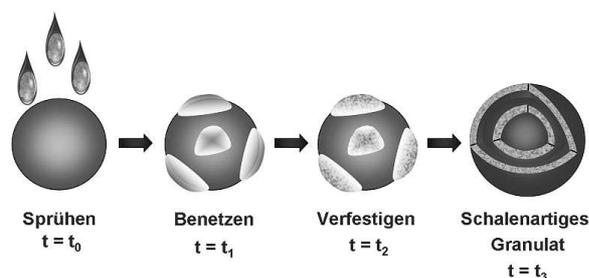
- Makroskopische Betrachtung des Wirbelschichtgranulationsprozesses
- Untersuchung von Mikroprozessen bei der Sprühgranulation

- Modellierung von einzelnen Vorgängen in der Wirbelschicht

Im Folgenden sollen die wichtigsten wissenschaftlichen Beiträge zu den genannten Schwerpunkten zusammengefasst werden.

### 1.2.1 Prinzip der Wirbelschichtsprühgranulation

Der Prozess der Wirbelschichtsprühgranulation ist durch die vielfach wiederkehrende Abfolge von Aufsprühen, Spreiten und Verfestigen von Flüssigkeitstropfen auf in der Schwebelagehaltene Partikel (*Keime*) gekennzeichnet (Uhlemann, 1990). Wenn ein Tropfen auf die Partikeloberfläche trifft, wird er durch das Spreiten zunächst aufgeweitet. Bei porösen Partikeln wird gleichzeitig auch immer ein Teil der Flüssigkeit durch Kapillarkräfte in die Poren der Feststoffoberfläche eingesaugt. Durch den intensiven Wärme- und Stofftransport in der Wirbelschicht beginnt der restliche Teil der Flüssigkeit sofort zu verdunsten, während der in den Poren enthaltene Teil erst später abtrocknen kann (Uhlemann und Mörl, 2000). Der bei der Verdunstung entstehende Wasserdampf wird durch die kontinuierliche Gasströmung in der Wirbelschicht abtransportiert. Durch diese sich ständig wiederholenden Mikroprozesse wachsen die Partikel der Wirbelschichtsprühgranulation schalenartig, wie in Abbildung 1.2 schematisch dargestellt ist.



**Abbildung 1.2:** Schematische Darstellung des Partikelwachstums

Zur Tropfenabscheidung gibt es bereits zahlreiche Untersuchungen. So untersuchten Link (1996) und Schlünder (1996) neben dem Mikroprozess der Tropfeneinsaugung auf porösen Tabletten auch die Benetzung von im Freistrahlschwebenden Einzelpartikeln. Dabei unterscheiden sie zwischen Kollision von Tropfen mit dem Partikel und einem Anhaften auf der Partikeloberfläche in Abhängigkeit von Betriebs- und Produktparametern. Sehr trockene Oberflächen verschlechtern die Benetzung, wogegen bei zu feuchten Oberflächen die Reflexion und Destruktion von Tropfen auftreten kann. Es bedarf also für ein optimales Partikelwachstum bei der Wirbelschichtsprühgranulation einer entsprechend günstigen Partikeloberflächenfeuchte. Dieses Optimum hängt letztendlich von der Trocknungs- und der Benetzungszeit ab, welche durch die Variation von Prozessparametern wie Luftertrittstemperatur, Eindüsungsrate und Feststoffkonzentration verändert werden können. Beide Prozesse laufen simultan ab und beeinflussen sich gegenseitig.

Durch die willkürliche Bewegung der Partikel in der gesamten Wirbelschicht kommt es auch zu einer willkürlichen Abscheidung der Sprühtropfen auf den Partikeln. Bei der makroskopischen Betrachtung der Wirbelschicht findet diese Benetzung aber nicht in der gesamten Schüttung statt. Viel mehr unterteilt sich das Wirbelbett in zwei Bereiche, in

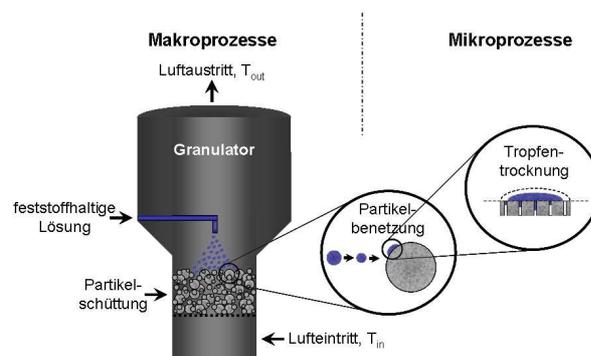
eine Benetzungszone (*Sprühzone*) und in einen Bereich, in dem die Partikel ausschließlich trocknen bzw. sich verfestigen (*Trocknungszone*). Die Zonen haben Einfluss auf das Partikelwachstum (Becher und Schlünder, 1998) und ihre Größe lässt sich ebenfalls durch die Variation von Prozessparametern wie Fluidisierungsluftvolumenstrom, Düsenanordnung (Maronga und Wnukowski, 2001) und Düsenhilfsluftvolumenstrom verändern. Weitere Phänomene, die abhängig von den Prozessparametern während der Wirbelschichtsprühgranulation auftreten können, sind die Neubildung, der Abrieb und der Bruch von Partikeln (Iveson et al., 2001; Antonyuk, 2006). Der Prozess der Wirbelschichtsprühgranulation stellt somit eine Herausforderung an die Auswahl der richtigen Prozessparameter dar (Guignon et al., 2003; Turton et al., 1999). Die Auswahl von geeigneten Parameterfenstern wird durch die komplexen Ansprüche der Industrie an die erzeugten Produkte vorgegeben. Eine gleichmäßige Beschichtung bei definierter Morphologie (Shelukar et al., 2000; Zank et al., 2001) unter Vermeidung von Overspray und hoher Partikelfeuchte (Ivanova et al., 2005; Hede et al., 2007) ist durch die Vielzahl an Prozessparametern und ihre unterschiedlichen Auswirkungen schwierig vorher zu bestimmen (Saleh et al., 1999). Die enge Verknüpfung zwischen den Mikroprozessen, wie Tropfenabscheidung und Tropfentrocknung, und der damit verbundenen Ausprägung der Morphologie der einzelnen Partikel mit den makroskopischen Größen (Hede et al., 2008), wie Verweilzeit und Ausdehnung von Sprüh- und Trocknungszone, zeigen die Notwendigkeit für ein genaues Verständnis dieser Zusammenhänge.

### 1.2.2 Untersuchung von Mikroprozessen in der Wirbelschicht

Die während der Sprühgranulation ablaufenden Prozesse sind sehr komplex. Deshalb versucht man die Komplexität durch die Betrachtung einzelner Phänomene zu beschreiben. So befassen sich einige Untersuchungen mit der Partikelbewegung im Prozess. Hier werden Einflüsse von verschiedenen Apparategeometrien, Düseneinbauten und Fluidisierungsbedingungen unter anderem mit Hilfe von Hochgeschwindigkeitsaufnahmen, PIV (*particle image velocimetry*), untersucht (Shelukar et al., 2000; Börner et al., 2013). Durch die Anwendung von numerischen Verfahren wie CFD (*computational fluid dynamics*) und DEM (*discrete element method*) lassen sich die Partikelbewegungen mathematisch beschreiben, um somit eine Abschätzung der Sprüh- und Trocknungszone machen zu können. Neben der bereits im Abschnitt 1.2.1 genannten Tropfenabscheidung, ist auch die Tropfen(vor)trocknung ein wichtiger Mikroprozess in der Sprühgranulation. Einige Arbeiten befassen sich stattdessen mit Untersuchungen an Einzeltropfen in einem akustischen Levitator (Sloth et al., 2006). Der Flüssigkeitstropfen einer Lösung wird in der Schwebelage gehalten und unter definierten Bedingungen getrocknet. Dieser Vorgang wird von einer Kamera aufgezeichnet und erlaubt damit die genaue Beobachtung des Prozesses. Während der Trocknung schrumpft der Tropfen anfangs, und die gelöste Feststoffkonzentration und damit auch die Viskosität des Tropfens steigen. Nach einer gewissen Zeit bleibt der Tropfendurchmesser stabil und es bildet sich an der Flüssigkeitsoberfläche eine vollständige Verkrustung. Es verdunstet aber weiterhin Flüssigkeit aus dem Tropfen. Diese tritt durch Poren in der Verkrustung nach außen. Es kann aber auch zum Aufbrechen der verkrusteten Tropfenoberfläche kommen. Die Tropfentrocknung endet letztendlich damit, dass der Tropfen nur noch aus Feststoff besteht. Übertragen auf die Wirbelschicht bedeutet das, dass für eine gute Granulation eine möglichst geringe Tropfenvortrocknung wichtig ist, da mit voranschreitender Trocknung die Spreitung des Tropfens auf der Partikeloberfläche durch die steigende Viskosität und die Zunahme der Tropfenverkrustung verschlechtert wird.

Im ungünstigsten Fall prallen die Sprühtropfen vom Partikel ab und werden durch den Fluidisierungsstrom aus der Wirbelschicht ausgetragen (*Overspray*). Somit hat neben den thermodynamischen Faktoren (Temperatur, Luftmengenstrom) auch die Düsenanordnung einen Einfluss.

Die gefundenen Zusammenhänge lassen sich aber nur teilweise bzw. nur unter gewissen Voraussetzungen auf den gesamten Wirbelschichtprozess übertragen. Die Prozessparameter beeinflussen immer nicht nur einzelne Mikroprozesse, sondern auch sich gegenseitig. So bewirkt eine Veränderung der Düsenposition nicht nur eine andere Tropfenvortrocknung, sondern auch eine Veränderung der gesamten Partikelbewegung in der Schüttung (Börner et al., 2013). Zusätzlich wird auch die Temperaturverteilung in der Wirbelschicht durch die Veränderung der Düsenposition beeinflusst (Heinrich et al., 2003). Somit ändern sich auch die Verweilzeiten und die Ausdehnungen von Sprüh- und Trocknungszone (Wnukowski und Setterwall, 1989; Maronga und Wnukowski, 1997; Maronga und Wnukowski, 1998). Für eine umfassende Modellierung aller Zusammenhänge ist die Kombination von Mikro- und Makroprozessen, wie in Abbildung 1.3 gezeigt, unabdingbar (Salman et al., 2007).



**Abbildung 1.3:** Schematische Darstellung des Zusammenhangs zwischen Makro- und Mikroprozessen

### 1.2.3 Modellierung von partikelbildenen Prozessen

Neben den voran genannten Einflussgrößen, wie Düsenposition und den thermodynamischen Faktoren, ist auch ausreichendes Verständnis über die Abhängigkeiten der stofflichen Eigenschaften für die Beschreibung der Wirbelschichtsprühgranulation essenziell (Chandran et al., 1990). Speziell die Kenntnis über die zeitlichen Verläufe der Partikeleigenschaften wie mittlere Partikelgröße und Breite der Partikelgrößenverteilung sind hierbei von besonderer Bedeutung (Heinrich et al., 2002b). Denn diese Eigenschaften beschreiben hauptsächlich die Produktqualität. Durch die genaue Kenntnis der makroskopischen und mikroskopischen Zusammenhänge in der Wirbelschichtsprühgranulation kann der Verlauf der Partikelgrößenverteilung abgeschätzt werden. Modellierungen von solchen partikelbildenen Prozessen können durch Populationsbilanzen dargestellt werden. Die Ursprünge der Beschreibung von Partikelgrößenverteilungen in Wachstumsprozessen kommen aus dem Bereich der Kristallisation (Randolph und Larson, 1988). Aber auch in anderen Prozessen lassen sich Populationsbilanzen verwenden. Ramkrishna und Fredrickson (2000) geben dazu einen Überblick. Für diskontinuierliche Granulationsprozesse lassen sich

Populationsansätze, wie sie von Kapur und Fuerstenau (1969) beschrieben werden, verwenden. In der jüngeren Vergangenheit wurde unter anderem durch Hounslow (1990) und Kumar et al. (2006) die Modellierung von Partikelbildungsprozessen mittels numerischer Lösungsmethoden stark weiterentwickelt. Vor allem die gleichzeitige Beschreibung mehrerer Partikeleigenschaften (Verteilung von Größe, Feuchte, Porosität) ist schwierig. Oft wird deshalb versucht die experimentelle Validierung nur durch mittelwertbasierte Ergebnisse zu erreichen. Ein weiterer Nachteil der Methode ist die experimentelle Bestimmung von empirischen Koeffizienten für die verschiedenen Kinetiken. Vor allem für Prozesse mit oszillierendem Verhalten, sprunghafter Parameteränderung oder beim An- und Abfahren ist es schwierig entsprechende Zusammenhänge zu erklären.

Als weitere Methode zur Beschreibung von eigenschaftsverteilten Systemen ist hier noch die Monte-Carlo-Methode zu nennen. Sie wurde erstmals von Metropolis und Ulam (1949) vorgeschlagen. Dabei kann man zwischen einer zeitlich gesteuerten und einer ereignisgesteuerten Beschreibung unterscheiden (Terrazas-Verlarde et al., 2009). Der Vorteil gegenüber der numerischen Lösung ist die Berücksichtigung von einzelnen Mikroprozessen. Allerdings besitzt diese Modellierung einen entscheidenden Nachteil, wenn es um die Regelung von partikelbildenden Prozessen mittels eines Prozessmodells geht. Für die Berücksichtigung der in einer Schüttung enthaltenen Partikel und ihrer Interaktionen benötigt die Berechnung mittels Monte-Carlo-Methode im Gegensatz zu makroskopischen Modellansätzen wesentlich mehr Rechenzeit. Deshalb wird in der vorgelegten Arbeit ausschließlich ein makroskopisches Populationsmodell vorgestellt, mit dessen Hilfe das Partikelwachstum und die Prozessdynamik der Wirbelschichtsprühgranulation beschrieben werden kann.

### 1.3 Motivation und Zielstellung

Die Entwicklung von partikulären Produkten mit speziellen Anwendungsaufgaben setzt ein hinreichendes Prozessverständnis der Wirbelschichtsprühgranulation voraus. Die Beschreibung der Zusammenhänge sämtlicher Mikro- und Makroprozesse ist bis jetzt noch nicht vollständig gelungen. Die Vielfalt von materialspezifischen und apparatetechnischen Einflüssen stellt dabei für die Modellierung der Wirbelschichtsprühgranulation eine Herausforderung dar. Die Wirbelschichtsprühgranulation ist ein Prozess zur Partikelformulierung, der sich aus den Teilschritten Benetzung und Trocknung zusammensetzt. Für diese Schritte besteht eine starke Abhängigkeit von den vorliegenden Prozessbedingungen, welche deshalb über diese beeinflusst werden können. Durch die gezielte Variation dieser Bedingungen lässt sich das Partikelwachstum der Granulate und somit auch die geforderte Produkteigenschaft verändern. Die Identifizierung der wichtigsten Einflussgrößen auf das Partikelwachstum und der Größe ihres Einflusses soll deshalb Ziel dieser Arbeit sein. Zusätzlich soll der Zusammenhang zwischen den thermodynamischen Größen und der Partikelstruktur beschrieben werden.

Der erste Teil der Arbeit behandelt die Modellierung zur Beschreibung der Wirbelschichtsprühgranulation. Dabei wird aufbauend auf den Arbeiten von Mörl und Heinrich (2001) das Partikelwachstum durch eindimensionale Populationsbilanzgleichungen beschrieben. Hierbei wird das bisherige Partikelwachstumsmodell derart verallgemeinert, dass Effekte wie z.B. unterschiedliche Porosität der Partikelhülle oder partikelgrößenabhängiges Wachstum berücksichtigt werden können. Wobei die Partikelgröße als verteilte und die Partikelporosität als auf Mittelwert bezogene Partikeleigenschaften in die Modellierung einfließen.

Für die Modellierung der Trocknung ist vor allem die Zusammenfassung verschiedener thermodynamischer Prozessparameter zu einer charakteristischen Größe zu nennen. Dadurch kann ein direkter Bezug zwischen Porosität der Granulathülle und den eingestellten Prozessparametern erstellt werden. Ziel der Modellierung ist es, durch die höhere Modellvariabilität die Beschreibung des realen Prozesses anhand von experimentellen Daten weiter zu verbessern.

Im zweiten Teil der Arbeit werden umfangreiche experimentelle Studien geschildert, mit Experimenten die sich teilweise über sehr lange Prozesszeiten erstrecken. Die Bestimmung der Partikelgrößenentwicklung im Verlauf des Granulationsprozesses ist dabei das Hauptaugenmerk. Zur Klärung des Einflusses von verschiedenen Prozessbedingungen werden zahlreiche Parametervariationen durchgeführt und in Bezug zum Verlauf der Partikelgröße gesetzt. Neben dem Chargenprozess werden auch Parametervariationen im kontinuierlichen Prozess mit interner Klassierung, sowie externem Sieb-Mahl-Kreislauf durchgeführt. Die Variation blieb auf Grund von anlagentechnischen Möglichkeiten auf ein begrenztes Parameterfenster beschränkt. Außer der Größenentwicklung der Partikel, wird auch die Struktur und die Porosität der gebildeten Granulate untersucht. Hierfür werden moderne Messtechniken wie Rasterelektronenmikroskopie und Röntgentomographie eingesetzt. Die Ergebnisse aus den experimentellen Untersuchungen sollen den Zusammenhang zwischen den Prozessbedingungen und der Produktqualität verdeutlichen.

Der letzte Teil beinhaltet die Gegenüberstellung von Ergebnissen aus der Modellierung und den durch die experimentellen Studien gewonnenen Daten. Durch den Vergleich soll das erweiterte Modell überprüft werden. Zudem sollen die gemessenen Produkteigenschaften durch empirische Gleichungen an die variierten Prozessbedingungen gekoppelt werden. Außerdem ist der Einfluss der verwendeten Materialien, sowie die Zusammenhänge zwischen Mikro- und Makroprozessen zu diskutieren. Die gewonnenen Ergebnisse können so zu einem besseren Prozessverständnis der Wirbelschichtsprühgranulation beitragen.

## Kapitel 2

# Modellierung der Wirbelschichtsprühgranulation

Die zur Sprühgranulation eingesetzte Wirbelschicht kann als disperses System aufgefasst werden. Die disperse Phase entspricht der Partikelschüttung und die kontinuierliche Phase dem einströmenden Gas. Die disperse Phase steht über ihre Grenzfläche im Stoff-, Energie- und Impulsaustausch mit der kontinuierlichen Phase. Beispiele für weitere disperse Systeme sind in Tabelle 2.1 aufgeführt.

**Tabelle 2.1:** Beispiele für disperse Systeme

Beispiel	Kontinuierliche Phase	Disperse Phase
Kristallisation	flüssig	fest
Emulsion	flüssig	flüssig
Blasensäule	flüssig	gasförmig
Wirbelschicht	gasförmig	fest

Die disperse Phase besteht aus der Gesamtheit von Individuen. Diese Individuen bilden eine Population mit unterschiedlichen und somit auch verteilten Eigenschaften. Dieser Eigenschaftsbezug kann hinsichtlich der Partikelgröße, -feuchtebeladung, -form oder -porosität erfolgen. Daher bietet es sich an, die zeitliche Änderung mit Populationsbilanzen zu beschreiben (Peglow et al., 2010).

### 2.1 Modellierung der Partikelpopulation

Partikeleigenschaften werden auch als Eigenschaftskordinaten bzw. interne Koordinaten ( $e$ ) bezeichnet. Der Ort der dispersen Phase im dreidimensionalen Raum wird durch externe Koordinaten ( $r$ ) erfasst. Zusammen mit den internen Koordinaten spannen sie den Eigenschaftsraum einer Population auf. Mittels der Anzahldichtefunktion  $n(t, r, e)$  lassen sich die Partikeleigenschaften mathematisch erfassen. Sie beschreibt in diesem Fall die Anzahl an Individuen zu einem Zeitpunkt  $t$  in einem Teilvolumen des Eigenschaftsraumes. Für die Gesamtzahl aller Individuen  $N(t)$  muss man über das Volumen des Eigenschaftsraumes

integrieren:

$$N(t) = \int_{V_r} \int_{V_e} n(t, r, e) dV_e dV_r. \quad (2.1)$$

Dabei hängt die Einheit der Anzahldichtefunktion  $n$  von der Anzahl und Art der internen und externen Koordinaten und der Zeit ab, entsprechend der Funktion:

$$n = n(t, r, e). \quad (2.2)$$

Für die Vergleichbarkeit unterschiedlich großer Systeme ist eine Normierung notwendig. Häufig wird dabei auf die Gesamtmenge des Systems normiert. Für ein örtlich konzentriertes System mit dem Partikeldurchmesser  $x$  als einzige (interne) Eigenschaftskordinate ergibt sich die normierte Anzahldichtefunktion  $q_0(t, x)$  wie folgt:

$$q_0(t, x) = \frac{n(t, x)}{N_{tot}} = \frac{n(t, x)}{\int_0^{\infty} n(t, x) dx}. \quad (2.3)$$

Neben der Partikelanzahl wird häufig auch auf die Partikelmasse normiert. Somit ergibt sich für die normierte Massendichteverteilung  $q_3(t, x)$ :

$$q_3(t, x) = \frac{x^3 n(t, x)}{M_{tot}} = \frac{x^3 n(t, x)}{\int_0^{\infty} x^3 n(t, x) dx}. \quad (2.4)$$

Für die analytische Lösung von Populationsbilanzen können Dichteverteilungen auch durch den zeitlichen Verlauf von Momenten charakterisiert werden. So ergibt sich für das vollständige  $i$ -te Moment einer Verteilung:

$$\mu_i = \int_0^{\infty} x^i n(t, x) dx. \quad (2.5)$$

Vollständigkeit bedeutet dabei die Integration über alle Partikelgrößen. Das  $i$  steht für eine Mengengröße und entspricht definierten skalaren Eigenschaften einer Verteilung (siehe Tabelle 2.2). Für die Gesamtanzahl und die Gesamtlänge aller Partikel stehen das nullte bzw. das erste Moment. Das zweite und das dritte Moment sind von der Form der Partikel abhängig. Unter der Annahme, dass die Partikel eine Kugelform besitzen, entspricht das zweite Moment der Gesamtoberfläche aller Partikel und das dritte Moment dem Gesamtvolumen aller Partikel. Bei bekannter Partikeldichte und Form lässt sich auch die Gesamtmasse einer Partikelverteilung aus dem dritten Moment berechnen:

$$M_{bed} = M_{tot} = \rho_p \frac{\pi}{6} \mu_3. \quad (2.6)$$

**Tabelle 2.2:** Bedeutung der Momente für kugelförmige Partikel

Mengenart	Moment	Bedeutung
0	$\mu_0$	$N_{tot} = \mu_0$
1	$\mu_1$	$L_{tot} = \mu_1$
2	$\mu_2$	$\sim A_{tot} = \pi\mu_2$
3	$\mu_3$	$\sim V_{tot} = \pi/6\mu_3$
3	$\mu_3$	$\sim M_{tot} = \pi/6\rho_p\mu_3$

Für die Darstellung von zeitlichen Entwicklungen einzelner Partikeleigenschaften werden häufig charakteristische Größen verwendet. So lässt sich zum Beispiel für die Partikelgrößenverteilung der Mittelwert der Verteilung aus dem Verhältnis zwischen erstem und nullem Moment ermitteln:

$$x_m = \frac{\int_0^{\infty} xn(x) dx}{\int_0^{\infty} n(x) dx} = \frac{\mu_1}{\mu_0}. \quad (2.7)$$

Auch die Standardabweichung einer Verteilung kann mit Hilfe der Momente ermittelt werden:

$$\sigma = \sqrt{\int_0^{\infty} (x - x_m)^2 n(x) dx} = \sqrt{\left[ \frac{\mu_2}{\mu_0} - \left( \frac{\mu_1}{\mu_0} \right)^2 \right]}. \quad (2.8)$$

Durch die Reduzierung von Verteilungen auf einzelne Größen lassen sich entsprechende Trends mathematisch einfacher beurteilen.

### 2.1.1 Die allgemeine Populationsbilanz

Die Populationsbilanz einer Anzahldichteverteilung lässt sich in klassischer Form einer Bilanzgleichung mit folgenden Worten ausdrücken:

$$\text{Akkumulation} = \text{Zuflüsse} - \text{Abflüsse} \pm \text{Quellen/Senken}.$$

Auf Basis dieser Formulierung können die Änderungen von Eigenschaftsverteilungen beschrieben werden. So ergibt sich für die Bilanzierung der Partikelanzahl  $N(t)$  für ein ortsfestes Kontrollvolumen:

$$\frac{dN(t)}{dt} = \Phi_N(t) + P_N(t). \quad (2.9)$$

Der Ausdruck  $\Phi_N(t)$  beschreibt einen Transportterm, der den Fluss durch die Oberfläche des betrachteten Kontrollvolumens quantifiziert. Die Quellen und Senken werden verallgemeinert in dem Term  $P_N(t)$  erfasst. Er berücksichtigt die Änderung der Partikelanzahl

$N(t)$  auf Grund von Entstehungs- und Abbauprozessen im Inneren des Kontrollvolumens. Bezieht man nun die einzelnen Terme auf entsprechende räumliche Größen erhält man ihre Dichten. Beim Bezug von  $P_N(t)$  auf das Volumen und  $\Phi_N(t)$  auf die Oberfläche des Kontrollvolumens, erhält man die Quelldichte  $p_N(t, r, e)$  und die Transportdichte  $\phi_N(t, r, e)$ . Wird jetzt die Gesamtanzahl der Partikel  $N(t)$  noch mit der Beziehung aus Gleichung (2.1) ersetzt, ergibt sich:

$$\frac{d}{dt} \left[ \int_{V_r} \int_{V_e} n(t, r, e) de dr \right] = - \int_{S_r} \int_{S_e} (\phi_N(t, r, e), \vec{n}) de dr + \int_{V_r} \int_{V_e} p_N(t, r, e) de dr. \quad (2.10)$$

$V_r$  und  $V_e$  beschreiben die Kontrollvolumina und  $S_r$  und  $S_e$  die Kontrollvolumenoberflächen. Im Oberflächenintegral steht das Skalarprodukt aus Transportdichte und dem Einheitsnormalenvektor  $\vec{n}$ , welcher senkrecht auf der Kontrollvolumenoberfläche steht. Wegen der Außenorientierung von  $\vec{n}$  muss ein negatives Vorzeichen berücksichtigt werden. Somit werden Zuflüsse positiv und Abflüsse negativ gezählt. Durch den Gaußschen Integralsatz kann das Oberflächenintegral in ein Volumenintegral überführt werden:

$$\int_{V_r} \int_{V_e} \frac{\partial}{\partial t} n(t, r, e) de dr = - \int_{V_r} \int_{V_e} \text{div } \phi_N(t, r, e) de dr + \int_{V_r} \int_{V_e} p_N(t, r, e) de dr. \quad (2.11)$$

Durch das Zusammenfassen der Volumenintegrale erhält man:

$$\int_{V_r} \int_{V_e} \left[ \frac{\partial}{\partial t} n(t, r, e) + \text{div } \phi_N(t, r, e) - p_N(t, r, e) \right] de dr = 0. \quad (2.12)$$

Zum Erfüllen der Bedingung muss der Integrand ebenfalls Null werden. Somit ergibt sich die lokale Formulierung der Populationsbilanz:

$$\frac{\partial}{\partial t} n(t, r, e) = - \text{div } \phi_N(t, r, e) + p_N(t, r, e). \quad (2.13)$$

Die Gleichung (2.13) lässt sich noch weiter vereinfachen, wenn ein örtlich konzentriertes System vorliegt und nur eine interne Koordinate betrachtet werden soll. Dann ergibt sich:

$$\frac{\partial}{\partial t} n(t, e) = - \frac{\partial}{\partial e} \phi_N(t, e) + p_N(t, e). \quad (2.14)$$

### 2.1.2 Die Populationsbilanz für Granulationsprozesse

In den folgenden Punkten werden wichtige Modellannahmen für die Modellierung des Granulationsprozesses erläutert.

1. Die Partikel während der Granulation werden als ideale Kugeln angesehen.
2. Der Granulationsprozess wird innerhalb eines Parameterfensters betrieben, in dem Phänomene wie Partikelbruch und Aggregation nur minimal auftreten und deshalb

vernachlässigt werden können. Lediglich Partikelwachstum und Keimbildung werden berücksichtigt.

3. Eine ungleichmäßige Verteilung der eingedüsten Flüssigkeit wird durch die Unterteilung der Schüttung in Sprüh- und Trocknungszone berücksichtigt.
4. Die Siebe, die für den kontinuierlichen Prozess mit einer externen Klassierung verwendet werden, sollen eine konstante Trennfunktion besitzen und keinen Partikelbruch verursachen.
5. Die im kontinuierlichen Prozess mit externer Klassierung verwendete Mühle soll unter der Erhaltung der Partikelmasse arbeiten.
6. Beim Partikelaustrag, der Partikelsichtung, der Partikelzerkleinerung und der Rückführung während der kontinuierlichen Granulation soll weder eine Änderung der Partikelfeuchte, noch eine Temperaturänderung auftreten.

### 2.1.2.1 Absatzweise Granulation

Unter Berücksichtigung der aufgeführten Modellannahmen, kann aus der allgemeinen Populationsbilanz (Gleichung (2.14)) eine Gleichung für die absatzweise Granulation abgeleitet werden. Dafür müssen die Transportdichte  $\phi_N$  und die Quelledichte  $p_N$  mathematisch beschrieben werden. Die Partikelgröße stellt für den Prozess des Partikelwachstums die charakteristische Größe dar. Sie kann sich sowohl positiv als auch negativ ändern. Demnach kann der Partikelwachstumsvorgang als konvektiver Transport entlang einer Eigenschaftskordinate verstanden werden, bei welcher der Partikeldurchmesser oder das Partikelvolumen als interne Koordinate dienen kann. In dieser Arbeit wurde der Partikeldurchmesser  $x$  als interne Eigenschaftskordinate gewählt. Die diskontinuierliche Wirbelschichtsprühgranulation kann also durch eine eindimensionale Populationsbilanzgleichung beschrieben werden.

Während der Granulation wachsen die Partikel mit einer spezifischen Geschwindigkeit  $\bar{G}$ . Damit kann die Transportdichte  $\phi_N$  ausgedrückt werden als:

$$\phi_N = \bar{G}n. \quad (2.15)$$

Die Quelledichte  $p_N$  wird Null gesetzt, da für die Batch-Granulation die Keimbildung vernachlässigt wird,

$$p_N = 0. \quad (2.16)$$

Somit ergibt sich folgende Differentialgleichung zur Beschreibung des Partikelwachstums:

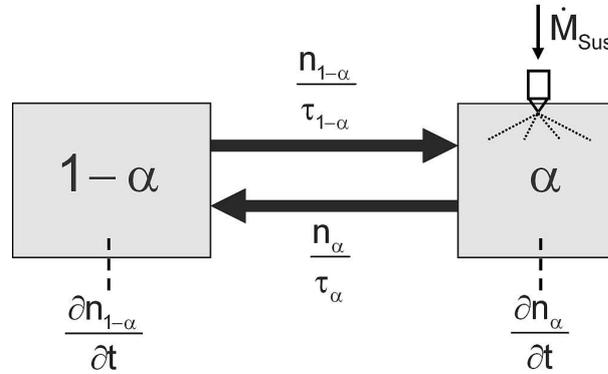
$$\frac{\partial n}{\partial t} = -\frac{\partial (\bar{G}n)}{\partial x}. \quad (2.17)$$

In bisherigen Populationsbilanzen (Heinrich, 2001) wurde bei der Modellannahme von einer homogenen Benetzung der ganzen Wirbelschicht ausgegangen. Lediglich eine unvollständige Verteilung der eingedüsten Flüssigkeit auf die Oberfläche des einzelnen Partikels wurde durch den Ausdruck des Benetzungsgrads  $\varphi$  berücksichtigt:

$$\varphi = \frac{A_{p,wet}}{A_{p,wet} + A_{p,dry}}. \quad (2.18)$$

Im vorliegendem Modell wird eine heterogene Flüssigkeitsverteilung durch die Einführung unterschiedlicher Zonen integriert. Die bisherige Annahme, dass in der gesamten Wirbelschicht eine Benetzung stattfindet, wird somit durch eine Benetzung in einer definierten Zone ersetzt.

Der Bilanzraum der Wirbelschicht wird in eine Sprühzone  $\alpha$ , in der die vollständige Benetzung der Partikeloberfläche stattfindet, und in eine Trocknungszone  $1 - \alpha$ , in der ausschließlich die Trocknung stattfindet, unterteilt (Hoffmann et al., 2011). Der Anteil der Sprühzone an der gesamten Wirbelschicht ist dabei frei wählbar. Dabei stehen  $\alpha$  und  $1 - \alpha$  für die jeweiligen Massenanteile der Partikel in den entsprechenden Zonen (siehe Abbildung 2.1).



**Abbildung 2.1:** Schema des Zwei-Zonen-Modells mit Trocknungszone (links) und Sprühzone (rechts)

Das Partikelwachstum tritt ausschließlich in der Sprühzone auf, während in der Trocknungszone nur eine Durchmischung stattfindet. Die Partikel können sich zwischen diesen beiden Zonen frei bewegen. Daraus ergeben sich zwischen der Sprüh- und der Trocknungszone Partikelströme und in den Zonen entsprechende Verweilzeiten für die Partikel. Die Verweilzeit in der Sprühzone wird im folgenden mit  $\tau_\alpha$  und die Verweilzeit in der Trocknungszone mit  $\tau_{1-\alpha}$  bezeichnet. Das Verhältnis der Verweilzeiten zu einander entspricht dem Verhältnis der jeweiligen Zonengrößen:

$$\frac{\tau_\alpha}{\tau_{1-\alpha}} = \frac{\alpha}{1-\alpha}. \quad (2.19)$$

Somit setzt sich die Populationsbilanz der Sprühzone aus dem Term für das Partikelwachstum und aus den Termen für die Zu- und Abflüsse der Partikel zusammen:

$$\frac{\partial n_\alpha}{\partial t} = -\frac{\partial (\bar{G}n_\alpha)}{\partial x} - \frac{n_\alpha}{\tau_\alpha} + \frac{n_{1-\alpha}}{\tau_{1-\alpha}}. \quad (2.20)$$

Alle Partikel, die nicht in der Sprühzone sind, befinden sich in der Trocknungszone. Somit ergibt sich für die Trocknungszone folgende Populationsbilanz:

$$\frac{\partial n_{1-\alpha}}{\partial t} = \frac{n_\alpha}{\tau_\alpha} - \frac{n_{1-\alpha}}{\tau_{1-\alpha}}. \quad (2.21)$$

Für beide Differentialgleichungen wird jeweils eine Anfangsbedingung benötigt. Die Anfangsbedingung wird durch eine Anzahldichteverteilung  $n_0(x)$  beschrieben, die auf beide Zonen wie folgt aufgeteilt werden muss:

$$n_\alpha(t=0, x) = \alpha n_0(x), \quad (2.22)$$

$$n_{\alpha-1}(t=0, x) = (1-\alpha) n_0(x). \quad (2.23)$$

Zusätzlich wird zur Lösung der Differentialgleichungen eine Randbedingung benötigt:

$$n_\alpha(t, x=0) = \frac{B_0}{\bar{G}(x_0)}. \quad (2.24)$$

$B_0$  beschreibt dabei die Bildung von Keimen pro Zeiteinheit. Unter der Bedingung, dass alle gebildeten Keime die Partikelgröße  $x_0$  besitzen, ergibt sich folgende Beziehung für die Keimbildungsrate:

$$B_0 = \left. \frac{dN_\alpha}{dt} \right|_{x_0} = \left. \frac{dN_\alpha}{dx} \frac{dx}{dt} \right|_{x_0} = (n_\alpha \bar{G})|_{x_0} \quad (2.25)$$

Die Keimbildung wird bei der absatzweisen Granulation null gesetzt. Über diese Randbedingung kann man aber die Bildung von Keimen im Modell generell berücksichtigen.

Die numerische Lösung der Differentialgleichungen wurde unter Verwendung eines ode45 Solvers in MATLAB durchgeführt. Zur Auflösung wird bei Gleichung (2.20) zwischen erstem und nachfolgenden Größenintervallen unterschieden (Anhang D.1). Außerdem wurde durch die Verwendung des Flux-Limiter Schemas von Koren (1993) der mathematische Effekt der numerischen Dispersion verhindert. Dieser würde zur Verfälschung der dargestellten Partikelgrößenverteilungen führen.

### 2.1.2.2 Kontinuierliche Granulation

Die für die absatzweise Granulation aufgestellten Populationsbilanzgleichungen (Gleichung (2.20) und (2.21)) lassen sich für den kontinuierlichen Prozess der Wirbelschichtsprühgranulation erweitern. Im Gegensatz zum Chargenprozess werden kontinuierlich Partikel entnommen und wieder zurückgeführt. Deshalb werden die Gleichungen um die Terme für Partikelaustrag  $\dot{n}_{\alpha,out}$  und Partikelrückführung  $\dot{n}_{\alpha,in}$  ergänzt. Man erhält folgende Populationsbilanz für die Sprühzone:

$$\frac{\partial n_\alpha}{\partial t} = -\frac{\partial (\bar{G}n_\alpha)}{\partial x} - \frac{n_\alpha}{\tau_\alpha} + \frac{n_{1-\alpha}}{\tau_{1-\alpha}} + \dot{n}_{\alpha,in} - \dot{n}_{\alpha,out}, \quad (2.26)$$

und für die Trocknungszone:

$$\frac{\partial n_{1-\alpha}}{\partial t} = \frac{n_\alpha}{\tau_\alpha} - \frac{n_{1-\alpha}}{\tau_{1-\alpha}} + \dot{n}_{1-\alpha,in} - \dot{n}_{1-\alpha,out}. \quad (2.27)$$

Ähnlich der Anfangsbedingungen für die absatzweise Granulation (Gleichung (2.22) und (2.23)) müssen beide Partikelströme jeweils auf die beiden Zonen aufgeteilt werden:

$$\dot{n}_{\alpha,in} = \alpha \dot{n}_{in}, \quad (2.28)$$

$$\dot{n}_{\alpha,out} = \alpha \dot{n}_{out}, \quad (2.29)$$

$$\dot{n}_{1-\alpha,in} = (1 - \alpha) \dot{n}_{in}, \quad (2.30)$$

$$\dot{n}_{1-\alpha,out} = (1 - \alpha) \dot{n}_{out}. \quad (2.31)$$

Im Folgenden wird gezeigt, wie die Partikelströme  $\dot{n}_{in}$  und  $\dot{n}_{out}$  für den kontinuierlichen Granulationsprozess mit interner und externer Klassierung berechnet werden können.

- **Kontinuierliche Granulation mit interner Klassierung**

Der Partikelaustrag bei der internen Klassierung wird durch ein in den Anströmboden integriertes Abzugsrohr realisiert. Durch dieses Rohr strömt beheizte Luft mit einer konstanten Geschwindigkeit. Im Modell, welches u.a. von Heinrich et al. (2002a) dargestellt wird, gelangen die Partikel der Wirbelschicht mit einer Wahrscheinlichkeit  $P$  in das Abzugsrohr. Die Partikel, deren Sinkgeschwindigkeit größer ist, als die Geschwindigkeit der im Rohr strömenden Luft, werden ausgetragen. Die restlichen Partikel werden umgehend zurück in die Wirbelschicht geführt. Die Trennkorngröße der Partikel  $x_T$  entspricht deren Sinkgeschwindigkeit, welche gleich der Luftgeschwindigkeit im Abzugsrohr ist. Dieser Vorgang wird mit einer Trennfunktion  $T$  beschrieben. Somit lässt sich die Anzahldichte der ausgetragenen Partikel mit

$$n_{out} = PTn \quad (2.32)$$

berechnen, und für den Partikelaustrag ergibt sich der Anzahldichtestrom

$$\dot{n}_{out} = \frac{dn}{dt} PT. \quad (2.33)$$

Die Wahrscheinlichkeit  $P$  und die Trennfunktion  $T$  werden wie folgt berechnet:

$$P = 1 - (1 - \kappa)^{\frac{\Delta t}{t_u}} \quad \text{mit : } \kappa = \frac{A_{class}}{A_{app}} = \frac{d_{class}^2}{d_{app}^2}, \quad (2.34)$$

$$T(x) = \frac{\exp\left(k \frac{x}{x_T}\right) - 1}{\exp\left(k \frac{x}{x_T}\right) + \exp(k) - 2}. \quad (2.35)$$

Die Trennfunktion stammt dabei von Lynch und Rao (1965). Dabei steht in Gleichung (2.34)  $\kappa$  für das Verhältnis zwischen Querschnittsfläche des Austragsrohrs ( $A_{class}$ ) und Querschnittsfläche der Wirbelschichtkammer ( $A_{app}$ ).  $t_u$  ist dabei die Umlaufzeit der Partikel in der Wirbelschicht und kann wie folgt geschätzt werden (Heinrich et al., 2002a):

$$t_u = \frac{2H_{bed} + d_{app}}{\bar{u}_p} \quad \text{mit : } \bar{u}_p \approx 1 \text{ ms}^{-1}. \quad (2.36)$$

Die Trennschärfe wird mit Hilfe des Parameters  $k$  (Gleichung (2.35)) eingestellt. Dieser wird je nach Klassierwirkung geschätzt. Je höher die Werte für den Parameter  $k$  gewählt werden, desto steiler verläuft die Trennkurve und desto besser ist die Trennung. Für die Trennfunktion des in dieser Arbeit beschriebenen Klassierrohrs wurde ein Wert von 9 für den Parameter  $k$  geschätzt.

Im kontinuierlichen Prozess mit interner Klassierung werden keine neuen Keime von außen in den Granulator gegeben,  $\dot{n}_{in} = 0$ . Die Zufuhr von Keimen zur Aufrechterhaltung der Kontinuität gelingt über die Staubrückführung aus dem Abluftzyklon, welcher dem Prozessraum nachgeschaltet ist. Staubpartikel (*Overspray*) werden so immer wieder zurückgeführt und können wieder am Partikelwachstumsprozess teilnehmen. Diese Keimbildung wird über die Randbedingung nach Gleichung (2.25) berücksichtigt. Die Partikelgröße  $x_0$  dieser Keime wird in allen weiteren Berechnungen mit einem Wert von 0,01 mm gewählt und entspricht damit der ersten Klasse der Diskretisierung. Auch hier gilt wieder die Annahme, dass alle zurückgeführten Staubpartikel die Partikelgröße  $x_0$  besitzen.

- ***Kontinuierliche Granulation mit externer Klassierung (Sieb-Mahl-Kreislauf)***

Der Partikelaustrag bei der externen Klassierung wird ebenfalls über ein im Anströmboden integriertes Abzugsrohr realisiert. Allerdings findet keine Klassierung im Abzugsrohr statt. Es wird lediglich über einen variablen Luftstrom die abgezogene Masse reguliert. Durch den variablen Abzug wird die Schichtmasse im Granulator konstant gehalten. Diese Ergänzung ist besonders für die Prozessstabilität von Bedeutung, denn so wird eine zu starke Abnahme der Schichtmasse durch unkontrollierten Abzug verhindert. Rechnerisch kann dieses Verhalten mit einem Austragsfaktor  $K$  nachempfunden werden:

$$K = 1 - \min\left(1, \frac{M_{bed,ref}}{M_{bed}}\right). \quad (2.37)$$

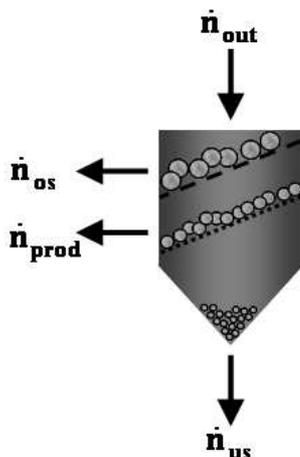
Für eine Bettmasse  $M_{bed} < M_{bed,ref}$  folgt  $K = 0$ , d.h. es werden keine Partikel abgezogen. Für den umgekehrten Fall bedeutet das  $K = 1 - \frac{M_{bed,ref}}{M_{bed}}$ . Somit lässt sich die Anzahldichte der ausgetragenen Partikel mit

$$n_{out} = Kn \quad (2.38)$$

berechnen. Der Anzahldichtstrom des Partikelaustrags ergibt sich zu:

$$\dot{n}_{out} = \frac{dn}{dt}K. \quad (2.39)$$

Der über das Abzugsrohr ausgetragene Partikelstrom wird durch ein zweistufiges Sieb in drei Fraktionen aufgeteilt. Die entsprechenden Anzahldichteströme sind in Abbildung 2.2 dargestellt. Partikel, die auf Grund ihrer Größe das erste Sieb nicht passieren, werden als Oberkornfraktion bezeichnet  $\dot{n}_{os}$ . Die Partikel, die das erste Sieb passieren, aber zu groß für das zweite Sieb sind, bilden die Produktfraktion  $\dot{n}_{prod}$ . Partikel, die beide Siebe passieren können, werden als Feinkornfraktion  $\dot{n}_{us}$  bezeichnet.



**Abbildung 2.2:** Schematische Darstellung der Partikelströme am Sieb

Die jeweilige Trennwirkung der beiden Siebe kann, ähnlich wie im klassierenden Abzugsrohr, mit Hilfe von Trennfunktionen (Gleichung (2.35)) beschrieben werden. Die Trennfunktion  $T$  gibt dabei an, mit welcher Wahrscheinlichkeit ein Partikel einer bestimmten Größe auf dem Sieb verbleibt. Somit ergibt sich die Wahrscheinlichkeit, dass ein Partikel das Sieb passiert, zu  $(1-T)$ . Für die einzelnen Partikelströme ergibt sich somit bei bekannter Trennfunktion:

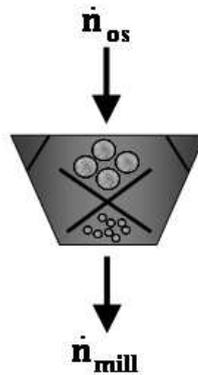
$$\dot{n}_{os} = T_1 \dot{n}_{out}, \quad (2.40)$$

$$\dot{n}_{prod} = (1 - T_1) T_2 \dot{n}_{out}, \quad (2.41)$$

$$\dot{n}_{us} = (1 - T_1) (1 - T_2) \dot{n}_{out}. \quad (2.42)$$

Für die in dieser Arbeit eingesetzten Siebe wurde, ähnlich wie schon bei der Separation mittels Klassierrohr, die Trennschärfe mit Hilfe des Parameters  $k$  (Gleichung (2.35)) eingestellt. Dieser wurde für alle Siebe mit einem Wert von 35 geschätzt.

Nach dem Sieb werden die drei Fraktionen unterschiedlich aufgeteilt. Die Produktfraktion entspricht der gewünschten Zielfraktion. Somit stellt sie das Produkt der gesamten kontinuierlichen Wirbelschichtsprühgranulation mit externer Klassierung dar. Die Oberkornfraktion wird auf eine Mühle gegeben (Abbildung 2.3).



**Abbildung 2.3:** Schematische Darstellung der Partikelströme an der Mühle

Das dort entstandene Mahlgut  $\dot{n}_{mill}$  wird zusammen mit der Unterkornfraktion des Siebs in den Prozessraum des Granulators zurückgeführt und kann erneut am Partikelwachstumsprozess teilnehmen. Die Beschreibung der Partikelzerkleinerung in der Mühle kann mit dem Gesetz von Bond beschrieben werden, da es für Partikelgrößen von 0,1 bis 50 mm anwendbar ist (Pahl, 1993). Für die spezifische Zerkleinerungsenergie  $W_m$  ergibt sich folgender Zusammenhang:

$$W_m = C_B \left( \frac{1}{\sqrt{x_{80,out}}} - \frac{1}{\sqrt{x_{80,in}}} \right). \quad (2.43)$$

$C_B$  ist nach Bond ein stoffabhängiger Anpassungsparameter. Für die meisten Zerkleinerungsgüter liegt dieser zwischen 400 und 600  $\text{m}^{2,5}/\text{s}^2$  (Zogg, 1993). Deshalb wird in den weiteren Berechnungen ein Mittelwert von 500  $\text{m}^{2,5}/\text{s}^2$  verwendet. Die in die Mühle eintretende Anzahldichteverteilung wird durch die Größe  $x_{80,in}$  charakterisiert. Durch Umstellen der Gleichung erhält man den Durchmesser  $x_{80,out}$  der austretenden Verteilung. Um aus dem charakteristischen Durchmesser eine vollständige Verteilung zu berechnen, muss eine Approximation gemacht werden. Dazu kann beispielsweise folgende RRSB-Verteilung verwendet werden:

$$Q_3(x) = 1 - \exp\left(-\frac{x}{x'}\right)^d. \quad (2.44)$$

$d$  ist ein Parameter für die Kurvengestalt, der vielfach zwischen 0,7 und 1,4 liegt (Tomas, 2015). In den weiteren Berechnungen wurde für den Parameter  $d$  der Wert von 1 gewählt, und  $x'$  wird wie folgt definiert:

$$Q_3(x = x') = 1 - \frac{1}{e} = 0,632. \quad (2.45)$$

Mit Hilfe der Gleichung

$$x' = -\frac{x_{80,out}}{(\ln 0.2)^{\frac{1}{d}}} \quad (2.46)$$

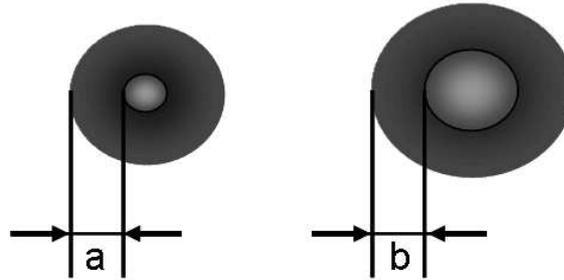
lässt sich der charakteristische Durchmesser  $x_{80,out}$  in  $x'$  umrechnen. Die normierte Massendichteverteilung  $q_3$  erhält man aus der Ableitung der Gleichung (2.44). Diese kann dann

in die benötigte Anzahldichteverteilung  $\dot{n}_{mill}$  umgerechnet werden. Somit ergibt sich der zurückgeführte Partikelstrom  $\dot{n}_{in}$  aus der Summe der Partikelströme von Unterkornfraktion und Mahlgut:

$$\dot{n}_{in} = \dot{n}_{mill} + \dot{n}_{us}. \quad (2.47)$$

### 2.1.3 Kinetik der Populationsbilanz

Die Kinetik der Populationsbilanz wird durch die spezifische Geschwindigkeit, mit der die Partikel während des Granulationsprozesses wachsen, ausgedrückt (siehe auch Gleichung (2.15)). Sowohl Mörl (1980) und Uhlemann (1990) als auch Heinrich (2001) treffen die Annahme, dass diese Wachstumsrate oberflächenproportional ist. Das bedeutet, dass die Abscheidung der eingedüsten Flüssigkeitstropfen auf dem Partikel proportional zur Partikeloberfläche erfolgt. Somit ist die Dicke des Flüssigkeitsfilms auf der Partikeloberfläche, wie in der Abbildung 2.4 gezeigt, für Partikel jeglicher Größe gleich ( $a = b$ ).



**Abbildung 2.4:** Oberflächenproportionale Flüssigkeitsfilmabscheidung

Daraus ergibt sich folgende Gleichung:

$$G = \frac{2 \dot{M}_{sus,s}}{\rho_s A_{bed}}. \quad (2.48)$$

Diese Annahme führt zu Wachstumsraten, die unabhängig von der Partikelgröße aber abhängig vom Massenstrom des eingesprühten Feststoffes  $\dot{M}_{sus,s}$ , der Feststoffdichte  $\rho_s$  und der Gesamtpartikeloberfläche  $A_{bed}$  sind. Des Weiteren wird der Aufbau einer kompakten Granulathülle angenommen. Die Aufbaugranulation mit poröser Granulathülle ist in diesem Ansatz nicht vorgesehen und soll deshalb in den folgenden Abschnitten hergeleitet werden. Die Integration der Porosität als variable Größe verbessert die Beschreibung des Wachstumsprozesses der Granulathülle und bietet somit ein genaueres Modell für den Granulationsprozess.

#### 2.1.3.1 Herleitung der Wachstumsrate für partikelgrößenunabhängiges Wachstum mit poröser Hülle

Bei Betrachtung des Partikeldurchmessers  $x$  als einzige interne Koordinate (siehe auch Gleichung (2.14)) lautet die Definition für Wachstumsrate:

$$G = \frac{dx}{dt}. \quad (2.49)$$

Für den Fall des partikelgrößenunabhängigen Wachstums ergibt sich daraus folgende Massenbilanz für ein Partikel:

$$\frac{dM_p}{dt} = \dot{M}_{sus,s} \frac{A_p}{A_{bed}}. \quad (2.50)$$

Durch Erweiterung ergibt sich folgender Ausdruck für die zeitliche Änderung der Partikelmasse:

$$\frac{dM_p}{dt} = \frac{dx}{dt} \cdot \frac{dM_p}{dx}. \quad (2.51)$$

Die Partikelmasse selbst setzt sich aus der Masse des Kerns  $M_{p,0}$  und der Masse der Hülle  $M_{sh}$  zusammen. Durch die zeitliche Betrachtung des Granulataufbaus während der absatzweisen Granulation entspricht die Kernmasse der Masse des Partikels zum Zeitpunkt  $t = 0$  und die Massenzunahme während der Granulation der Masse der bis zum jeweiligen Zeitpunkt angewachsenen Granulathülle:

$$M_p(t) = M_{p,0} + M_{sh}(t) = V_{p,0} \rho_{p,0} + (V_p(t) - V_{p,0}) \rho_{sh}. \quad (2.52)$$

An dieser Stelle lässt sich die Dichte der Granulathülle mit ihrer Porosität  $\varepsilon_{sh}$  in Beziehung setzen:

$$\rho_{sh} = (1 - \varepsilon_{sh}) \rho_s. \quad (2.53)$$

Somit ergibt sich für die Partikelmasse:

$$M_p = M_{p,0} + M_{sh} = V_{p,0} \rho_{p,0} + (V_p(t) - V_{p,0}) \rho_{sh}. \quad (2.54)$$

Unter der Annahme, dass die Porosität der Partikelhülle während des Granulationsprozesses konstant ist, ergibt sich für Gleichung (2.51):

$$\frac{dM_p}{dt} = G \left( \frac{\pi x^2}{2} (1 - \varepsilon_{sh}) \rho_s \right). \quad (2.55)$$

Ersetzt man nun den linken Ausdruck durch den rechten Teil der Gleichung (2.50), ergibt sich für die Wachstumsrate  $G_\varepsilon$ :

$$G_\varepsilon = \frac{2\dot{M}_{sus,s}}{\rho_s (1 - \varepsilon_{sh}) A_{bed}}. \quad (2.56)$$

Im Wesentlichen gleicht sie damit dem älteren Modellansatz (Gleichung (2.48)). Sie verfügt nun aber zusätzlich über den Parameter der Porosität für die Granulathülle  $\varepsilon_{sh}$ .

### 2.1.3.2 Herleitung der Wachstumsrate für partikelgrößenabhängiges Wachstum mit poröser Hülle

Die Annahme, dass die Dicke des Flüssigkeitsfilms, der auf der Partikeloberfläche abgeschieden wird, für Partikel jeglicher Größe gleich sein soll ( $a = b$ ) ist stark vereinfachend (siehe Abbildung 2.4). Wenn der Flüssigkeitsfilm auf kleineren Partikeln aber dicker ( $a > b$ ) ist als auf Größeren oder der umgekehrte Fall ( $a < b$ ) vorliegt, dann ergibt sich für die resultierende Wachstumsrate eine Abhängigkeit von der Partikelgröße. Vielfältige Ursachen können eine ungleichmäßige Tropfenabscheidung bewirken. Passieren z.B. große Partikel den Sprühkegel der Eindüsung (*Sprühzone*) mit der gleichen Geschwindigkeit wie kleinere Teilchen, so werden aufgrund der größeren Projektionsfläche mehr Tropfen abgeschieden. Das kann dazu führen, dass der Flüssigkeitsfilm auf der Oberfläche großer Partikel dicker ist ( $a < b$ ) und sie somit auch schneller wachsen als kleine Partikel.

Das Gegenteil trifft zu, wenn kleine Partikel aufgrund von Segregationseffekten sich im Wirbelbett überwiegend im oberen Teil aufhalten. Erfolgt nun die Eindüsung in Top-Spray Konfiguration, so passieren kleine Partikel häufiger den Sprühkegel der Düse. Dies führt dazu, dass der Flüssigkeitsfilm, der auf der Oberfläche kleiner Partikel abgeschieden wird, dicker ( $a > b$ ) ist und sie somit auch schneller wachsen. In diesem besonderen Fall würde das Partikelwachstum bei der Granulation zu einer nahezu ideal monomodalen Partikelgrößenverteilung führen, da diese kleinen Partikel solange schneller wachsen, bis sie den Partikeldurchmesser der größeren Partikel erreicht haben. Dieser Effekt tritt aber nur auf, wenn die Ausgangspartikel und die wachsende Granulathülle die gleiche Dichte haben. Sollte die Dichte der Hülle sich wesentlich von der des Ausgangsmaterials unterscheiden, wird sich keine monomodale Partikelverteilung einstellen.

Um die aufgeführten Fälle berücksichtigen zu können, wurde das bestehende Wachstumsmodell derart verallgemeinert, dass die Tropfenabscheidung auf dem Partikel nun proportional zu einem beliebigen Moment der Partikelgrößenverteilung erfolgt. Somit kann die Tropfenabscheidung wahlweise proportional zur Partikelanzahl ( $i = 0$ ), -länge ( $i = 1$ ), -oberfläche ( $i = 2$ ) oder zum Partikelvolumen ( $i = 3$ ) gesetzt werden. Diese Herangehensweise beinhaltet sowohl die Annahme des partikelgrößenunabhängigen Wachstums als auch die des partikelgrößenabhängigen Wachstums. Somit ergibt sich folgender verallgemeinerter Ansatz für die Massenbilanz des Einzelpartikels:

$$\frac{dM_p}{dt} = \dot{M}_{sus,s} \frac{x^i}{\mu_i} \quad (2.57)$$

An dieser Stelle wird der Ausdruck des Verhältnisses von  $A_p$  zu  $A_{bed}$  aus Gleichung (2.50) durch den allgemeineren Bezug der eingedüsten Feststoffmasse  $\dot{M}_{sus,s}$  zu einem beliebigen Moment der dispersen Phase ersetzt (siehe auch Gleichung (2.5)).

Das beliebige Moment der Dichteverteilung  $n$ , zu dem die Tropfenabscheidung proportional gesetzt werden kann, ist als

$$\mu_i = \int_0^{\infty} x^i n dx, \quad (2.58)$$

definiert, wobei  $x$  der Partikeldurchmesser ist. Analog der Herleitung für das partikelgrößenunabhängige Partikelwachstum ergibt sich für die Wachstumsrate des partikelgrößenabhängigen Wachstums:

$$G_{\varepsilon,i} = \frac{2\dot{M}_{sus,s}x^{i-2}}{\rho_s(1-\varepsilon_{sh})\pi\mu_i}. \quad (2.59)$$

Im Gegensatz zur Gleichung (2.56) tritt hier zusätzlich die Partikelgröße  $x$  auf, für die sich je nach Mengenart ( $i = 0..3$ ) eine andere Abhängigkeit der Wachstumsrate ergibt. Allgemein ist  $G_{\varepsilon,i} \sim x^{i-2}$ . Darüber hinaus ist die Ermittlung einer Gesamtwachstumsrate durch Linearkombination von verschiedenen Wachstumskinetiken möglich:

$$\bar{G}_\varepsilon = \sum_{i=0}^3 \lambda_i G_{\varepsilon,i}, \quad (2.60)$$

mit

$$\sum_{i=0}^3 \lambda_i = 1. \quad (2.61)$$

Der vereinfachte Fall des partikelgrößenunabhängigen Wachstums lässt sich für  $i = 2$  aus der verallgemeinerten Form ableiten. Wenn die Porosität der Granulathülle  $\varepsilon_{sh}$  zusätzlich auch noch null ist, entspricht die hergeleitete Wachstumskinetik exakt dem Ausdruck, der in dem alten Wachstumsansatz nach Uhlemann und Mörl (2000) verwendet wurde:

$$\bar{G}_{\varepsilon,i} = \frac{2\dot{M}_{sus,s}x^{i-2}}{\rho_s(1-\varepsilon_{sh})\mu_i} = \frac{2\dot{M}_{sus,s}}{\rho_s A_{ges}}. \quad (2.62)$$

Für alle anderen Fälle ( $i \neq 2$ ) hängt die Wachstumsrate von der Partikelgröße ab.

#### 2.1.4 Simulationsergebnisse für das Partikelwachstum

In diesem Abschnitt sollen zur besseren Veranschaulichung der Unterschiede zwischen den verschiedenen theoretischen Partikelwachstumsmodellen entsprechende Simulationsbeispiele dargestellt werden. Es werden sowohl für das Ein-Zonen-Modell als auch für das Zwei-Zonen-Modell alle vier Möglichkeiten für die unterschiedlichen Wachstumskinetiken ( $G_{\varepsilon,0}$  bis  $G_{\varepsilon,3}$ ) jeweils für den Batchprozess dargestellt. Als Ausgangsverteilung für die Partikelgröße wurde eine Normalverteilung gewählt. Die verwendeten Parameter sind in Tabelle 2.3 aufgeführt.

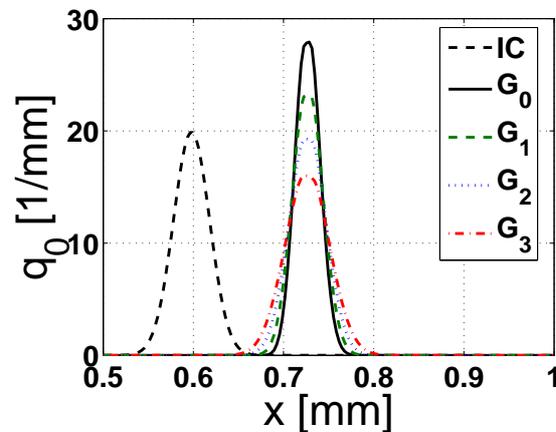
**Tabelle 2.3:** Simulationsparameter für das Partikelwachstum für den Batch-Prozess

Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Simulationszeit	$t$	2	$h$
Hold-up	$M_{bed}$	0,5	$kg$
Eindüsungsrate	$\dot{M}_{sus,s}$	0,8	$kg h^{-1}$
Porosität der Granulathülle	$\varepsilon_{sh}$	0	—
mittlerer Anfangsdurchmesser	$x_{m,0}$	0,62	$mm$
Anfangsstandardabweichung	$\sigma_0$	0,0209	$mm$

Weiterhin ist aufzuführen, dass die Größe der Sprühzone  $\alpha$  und die mittlere Verweilzeit in der Sprühzone  $\tau_\alpha$  für das Zwei-Zonen-Modell variiert wurden ( $\alpha = 1 - 10\%$ ) und ( $\tau_\alpha = 0.1 - 1 s$ ), um den Einfluss dieser Größen auf das Partikelwachstum genauer abzuschätzen.

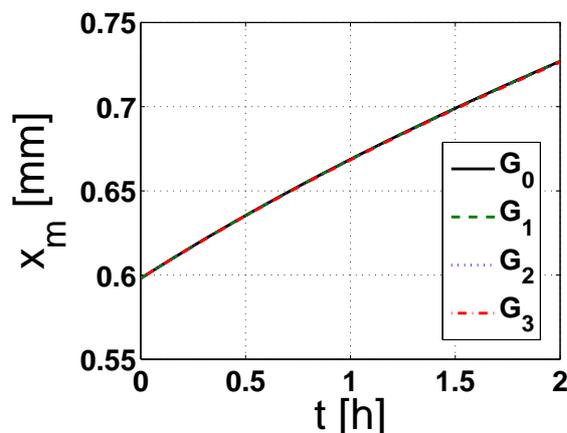
#### 2.1.4.1 Modellierung nach dem Ein-Zonen-Modell

Die Sprühzone im Ein-Zonen-Modell ( $\alpha = 100\%$ ) entspricht dem gesamten Wirbelbett und die Verweilzeit wird null gesetzt ( $\tau_\alpha = 0 s$ ). Aus Abbildung 2.5 kann man ganz klar erkennen, dass für alle vier verschiedenen Wachstumskinetiken ein deutliches Partikelwachstum stattfindet (*Rechtsverschiebung der Ausgangsverteilung*). Außerdem ist für die Endverteilung der Wachstumskinetiken  $G_{\varepsilon,0}$  und  $G_{\varepsilon,1}$  verglichen mit der Ausgangsverteilung eine Verengung der Verteilung zu beobachten. Für die Endverteilung der Wachstumskinetik  $G_{\varepsilon,2}$  ist keine Veränderung und für die Endverteilung der Wachstumskinetik  $G_{\varepsilon,3}$  eine Verbreiterung der Ausgangsverteilung zu erkennen. Das bedeutet, dass für  $G_{\varepsilon,0}$  und  $G_{\varepsilon,1}$  die kleineren Partikelfractionen in der Verteilung schneller wachsen als die größeren Fractionen und nach langer Zeit eine monomodale Verteilung asymptotisch entsteht. Für  $G_{\varepsilon,2}$  wird die Verteilung lediglich nach rechts verschoben. Das bedeutet, dass alle Partikel mit der gleichen Geschwindigkeit wachsen. Wenn die größeren Partikelfractionen der Verteilung schneller wachsen als die kleineren Fractionen, wird die Ausgangsverteilung immer breiter. Dies trifft auf die Wachstumskinetik  $G_{\varepsilon,3}$  zu.



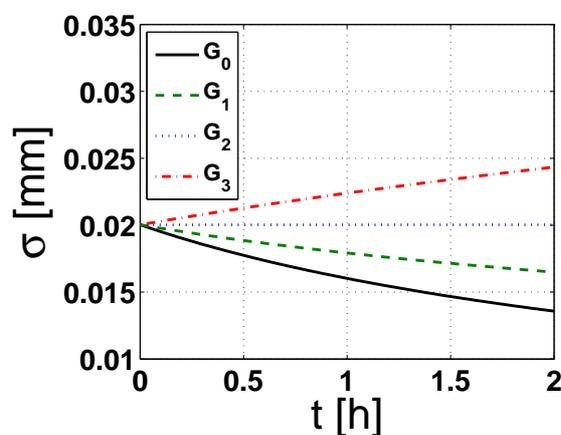
**Abbildung 2.5:** Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Anzahldichteverteilung  $q_0$  für die vier verschiedenen Wachstumsansätze ( $G_{\varepsilon,i}$ ), Ein-Zonen-Modell

Bei der Betrachtung des zeitlichen Verlaufs des mittleren Partikeldurchmessers (Abbildung 2.6), ist für alle vier verschiedenen Wachstumskinetiken die gleiche Entwicklung festzustellen. Ausgehend vom mittleren Anfangsdurchmesser ( $x_{m,0}$ ) ist ein stetiger Anstieg zu beobachten. Mit zunehmender Prozesszeit nimmt dieser Anstieg kontinuierlich ab. Diese Abnahme ergibt sich aus dem Verhältnis von eingedüstem Feststoff mit konstanter Rate und der zeitlichen Entwicklung der Volumenzunahme, in welche der Partikeldurchmesser in dritter Potenz eingeht.



**Abbildung 2.6:** Vergleich der zeitlichen Entwicklung des mittleren Partikeldurchmessers  $x_m$  für die vier verschiedenen Wachstumsansätze ( $G_{\epsilon,i}$ ), Ein-Zonen-Modell

Die Abbildungen 2.5 und 2.6 haben gezeigt, dass die Wahl der Wachstumskinetik hauptsächlich die Breite der Endverteilung beeinflusst. Die Breite einer Verteilung kann am einfachsten über den charakteristischen Faktor der Standardabweichung beschrieben werden, weshalb die Verläufe der Standardabweichung für alle vier Varianten der Wachstumskinetik in Abbildung 2.7 dargestellt sind. Analog zur Abbildung 2.5, wird die Breite der Verteilung für  $G_{\epsilon,0}$  und  $G_{\epsilon,1}$  kleiner, für  $G_{\epsilon,2}$  bleibt sie erhalten und für  $G_{\epsilon,3}$  nimmt sie zu.

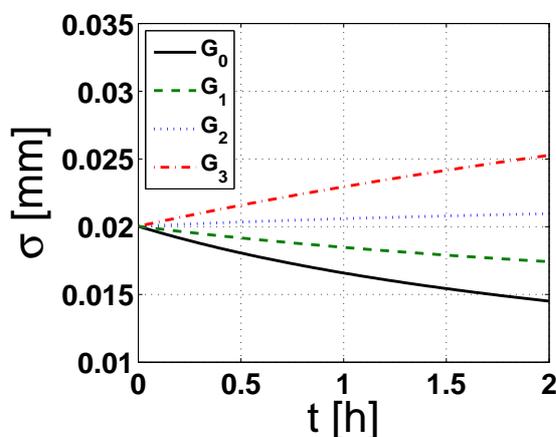


**Abbildung 2.7:** Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen  $\sigma$  für die vier verschiedenen Wachstumsansätze ( $G_{\epsilon,i}$ ), Ein-Zonen-Modell

Die Modellierung nach dem Ein-Zonen-Modell erlaubt lediglich durch die Wahl der unterschiedlichen Wachstumskinetiken bzw. einer linearen Kombination (siehe Gleichung (2.60)) eine Beschreibung der zeitlichen Entwicklung der Partikelgrößenverteilung im Prozess der Wirbelschichtsprühgranulation.

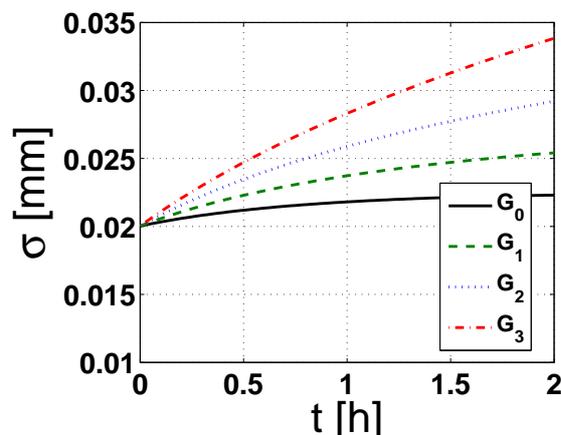
### 2.1.4.2 Modellierung nach dem Zwei-Zonen-Modell

Bei der Modellierung nach dem Zwei-Zonen-Modell wird das Wirbelbett in Sprühzone  $\alpha$  und in Trocknungszone  $1 - \alpha$  prozentual aufgeteilt. Außerdem wird die entsprechende mittlere Verweilzeit  $\tau_\alpha$  in der Sprühzone festgelegt. Analog zur Verweilzeit in der Sprühzone ergibt sich die mittlere Verweilzeit  $\tau_{1-\alpha}$  in der Trocknungszone. In den Abbildungen 2.8 bis 2.12 wird der zeitliche Verlauf der vier Wachstumskinetiken  $G_{\varepsilon,0}$  bis  $G_{\varepsilon,3}$  dargestellt, um den Einfluss der Sprühzonengröße und der mittleren Verweilzeit in der Sprühzone auf das Partikelwachstum abschätzen zu können. Ausgehend von einer großen Sprühzone ( $\alpha = 10\%$ ) und einer großen mittleren Verweilzeit ( $\tau_\alpha = 1$  s) wurde zwischen jeder Abbildung jeweils eine Größe hin zu einer kleinen Sprühzone ( $\alpha = 1\%$ ) und einer kleinen mittleren Verweilzeit ( $\tau = 0.1$  s) verändert.



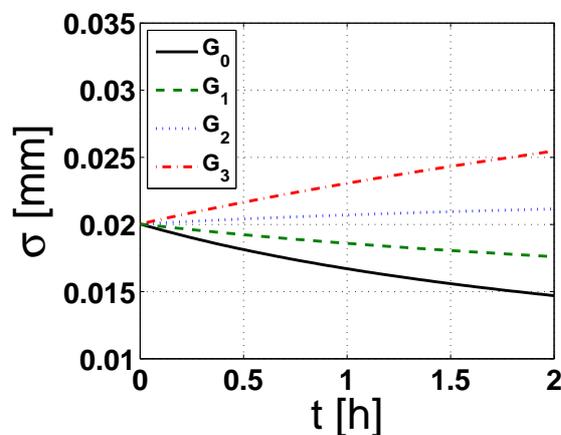
**Abbildung 2.8:** Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen  $\sigma$  für die vier verschiedenen Wachstumsansätze ( $G_{\varepsilon,i}$ ) mit  $\alpha = 10\%$  und  $\tau_\alpha = 1$  s

Beim Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilung für das Ein-Zonen-Modell (Abbildung 2.7) und der Entwicklung der Standardabweichung für das Zwei-Zonen-Modell mit großer Sprühzone und großer mittlerer Verweilzeit (Abbildung 2.8) erkennt man ähnliche Tendenzen. Für die zeitlichen Verläufe der Varianz der Partikelgrößenverteilung für die Partikelwachstumskinetiken  $G_{\varepsilon,0}$  und  $G_{\varepsilon,1}$  nimmt die Breite der Partikelgrößenverteilung, ähnlich wie für das Ein-Zonen-Modell, ab. Auch der Vergleich für die Entwicklung nach der Wachstumskinetik  $G_{\varepsilon,3}$  zeigt für beide Modelle mit dem Anstieg der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilung die gleiche Tendenz. Allerdings unterscheiden sich die Tendenzen für den Verlauf der Varianz nach der Wachstumskinetik  $G_{\varepsilon,2}$ . Im Zwei-Zonen-Modell bildet sich keine waagerechte Linie, sondern es zeigt sich ein leichter Anstieg. Das würde bedeuten, dass die größeren Fraktionen der Ausgangspartikelverteilung schneller wachsen und die Breite der Partikelgrößenverteilung mit steigender Prozesszeit zunimmt. Im Ein-Zonen-Modell verläuft die Standardabweichung der Partikelgrößenverteilung konstant. Das Partikelwachstum ist größenunabhängig und alle Partikel wachsen mit der gleichen Geschwindigkeit.



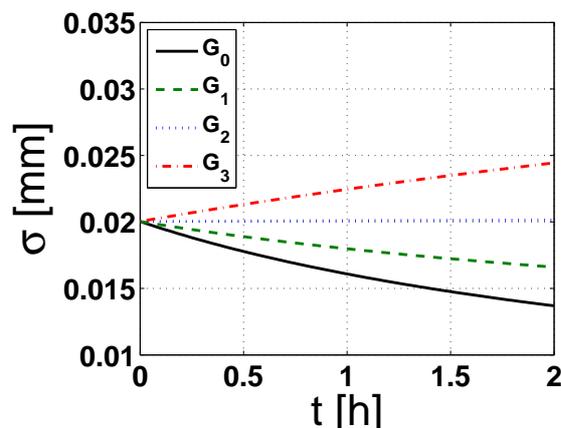
**Abbildung 2.9:** Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen  $\sigma$  für die vier verschiedenen Wachstumsansätze ( $G_{\varepsilon,i}$ ) mit  $\alpha = 1\%$  und  $\tau_\alpha = 1$  s

In Abbildung 2.9 sind die vier zeitlichen Verläufe der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilung für eine kleine Sprühzone und große mittlere Verweilzeit dargestellt. Für diese Parameterkonstellation zeigen alle vier Wachstumskinetiken einen Anstieg der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilung. Die Breite der Partikelgrößenverteilung nimmt also während des Wachstumsprozesses kontinuierlich zu.



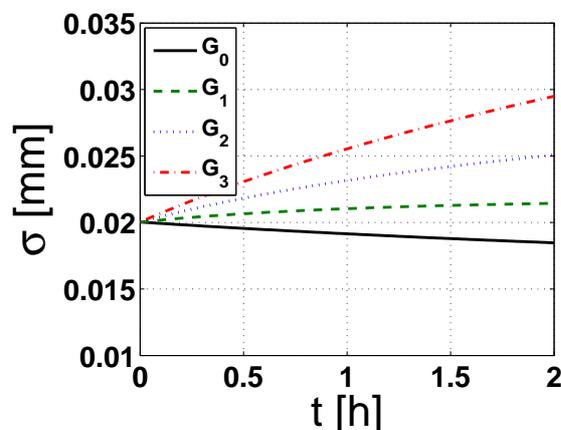
**Abbildung 2.10:** Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen  $\sigma$  für die vier verschiedenen Wachstumsansätze ( $G_{\varepsilon,i}$ ) mit  $\alpha = 1\%$  und  $\tau_\alpha = 0.1$  s

Für die Parameterkonstellation einer kleinen Sprühzone und einer kleinen mittleren Verweilzeit (Abbildung 2.10) zeichnet sich ein ähnlicher Verlauf für die Varianz der Partikelgrößenverteilung ab, wie für den Fall einer großen Sprühzone und einer großen Verweilzeit (Abbildung 2.8). Die Standardabweichungen der Partikelgrößenverteilung für die Wachstumskinetiken  $G_{\varepsilon,0}$  und  $G_{\varepsilon,1}$  nehmen ab, und für die Wachstumskinetiken  $G_{\varepsilon,2}$  und  $G_{\varepsilon,3}$  ist ein Anstieg der Standardabweichung zu erkennen.



**Abbildung 2.11:** Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen  $\sigma$  für die vier verschiedenen Wachstumsansätze ( $G_{\varepsilon,i}$ ) mit  $\alpha = 10\%$  und  $\tau_\alpha = 0.1$  s

Die Verläufe der Varianz für die Parameterkonstellation einer großen Sprühzone und einer kleinen mittleren Verweilzeit (Abbildung 2.11) sind nahezu identisch mit den Verläufen der Varianz für das Ein-Zonen-Modell (Abbildung 2.7). Die Breite der Partikelgrößenverteilung nimmt für die Wachstumskinetiken  $G_{\varepsilon,0}$  und  $G_{\varepsilon,1}$  ab und für  $G_{\varepsilon,3}$  zu. Für  $G_{\varepsilon,2}$  bleibt die Breite der Partikelgrößenverteilung erhalten.



**Abbildung 2.12:** Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen  $\sigma$  für die vier verschiedenen Wachstumsansätze ( $G_{\varepsilon,i}$ ) mit  $\alpha = 10\%$  und  $\tau_\alpha = 0.5$  s

In Abbildung 2.12 ist eine Parameterkonstellation dargestellt, bei der die Varianz der Partikelgrößenverteilung für die Wachstumskinetik  $G_{\varepsilon,0}$  abnimmt und für die anderen drei Wachstumsansätze ( $G_{\varepsilon,1}$  bis  $G_{\varepsilon,3}$ ) zunimmt.

Aus den gezeigten Abbildungen lässt sich folgendes ableiten:

Eine Vergrößerung der Sprühzone bewirkt eine Verschiebung der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen zu Verläufen, die denen des Ein-Zonen-Modells entspre-

chen. Ebenso bewirkt die Verringerung der mittleren Verweilzeit in der Sprühzone eine Verschiebung der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilung in Richtung des Ein-Zonen-Modells.

Des Weiteren kann man erkennen, dass schon ab einer Sprühzonengröße von 10 % und von einer mittleren Verweilzeit von 0.1 Sekunden die Wachstumskinetiken des Zwei-Zonen-Modells denen des Ein-Zonen-Modells entsprechen. Eine Vergrößerung der Sprühzone von über 10 % und eine Verringerung der mittleren Verweilzeit von unter 0.1 Sekunden bewirken keine weiteren Veränderungen der Wachstumskinetiken. Somit beinhaltet das Zwei-Zonen-Modell den Bereich für das Ein-Zonen-Modell, bietet aber die Möglichkeit, bei sehr kleinen Sprühzonen und größeren Verweilzeiten eine wesentlich bessere Beschreibung der Kinetik für das Partikelwachstum zu erreichen. Speziell die Breite der Partikelverteilung wird besser beschrieben als für das bisherige Ein-Zonen-Modell. Bisher konnten nur Partikelgrößenverteilungen beschrieben werden, die entweder ihre Breite während des Partikelwachstums beibehalten oder am Ende breiter werden als zu Beginn der Granulation. Mit dem Zwei-Zonen-Modell und der Kombination verschiedener Wachstumskinetiken können auch Partikelgrößenverteilungen dargestellt werden, die am Ende der Granulation schmaler sind als zu Beginn.

## 2.2 Modellierung der Trocknung

Der Begriff der Trocknung bezieht sich auf den Entzug von Wasser aus einem Feststoff. Für die Bestimmung dieses Wasseranteils gibt es eine Vielzahl an Möglichkeiten der Feuchtemessung bei verfahrenstechnischen Trocknungsprozessen (Freudenberger, 1989). Allgemein kann man zwei Arten der Trocknung unterscheiden. Zum einen kann man durch mechanische Kräfte die Flüssigkeit aus dem Feststoff treiben und zum anderen kann die Flüssigkeit durch Energiezufuhr und Überführung der Flüssigkeit in Dampf aus dem Feststoff transportiert werden (Krischer und Kast, 1992).

In dieser Arbeit wird ausschließlich die thermische Trocknung berücksichtigt. Bei der Überführung in den dampfförmigen Zustand unterscheidet man zwischen Verdampfung (reine Dampfatosphäre) und Verdunstung (Anwesenheit von Inertgas). In Tabelle 2.4 geben Gnielinski et al. (1993) eine Übersicht über die verschiedenen thermischen Trocknungsverfahren, indem sie nach der Art des Wärmeübergangs an den Feststoff unterteilen.

**Tabelle 2.4:** Übersicht verschiedener thermischer Trocknungsverfahren

Trocknungsverfahren	Wärmezufuhr durch
Kontakttrocknung	Kontakt mit heißen Flächen
Konvektionstrocknung	Heiße Luft oder andere Gase
Strahlungstrocknung	(Infrarot-)Strahlung
Heißdampftrocknung	Heißdampf
Dielektrische Trocknung	hochfrequentes elektrisches Wechselfeld

Für den Prozess der Wirbelschichtsprühgranulation kann eine Zuordnung zum Konvektionstrocknungsverfahren getroffen werden. Diese Art der Trocknung zeichnet sich hauptsächlich durch zwei charakteristische Abschnitte aus (Tsotsas und Mujumdar, 2007).

Zu Beginn der Trocknung steigt die Trocknungsgeschwindigkeit auf Grund der Feststoff-erwärmung rasch an. Darauf folgt eine Phase, in der die Trocknungsgeschwindigkeit konstant bleibt. Diesen Abschnitt bezeichnet man als ersten Trocknungsabschnitt. Die Trocknungsgeschwindigkeit ist in diesem Bereich nur von externen Prozessgrößen (Temperatur, Luftmassenstrom, relative Feuchte) abhängig (Tsotsas und Mujumdar, 2007). Die konstante Trocknungsgeschwindigkeit deutet darauf hin, dass an der Partikeloberfläche immer ausreichend Flüssigkeit für die Verdunstung zur Verfügung steht (Groenewold, 2004). Der Transport aus dem Partikelinneren an die Partikeloberfläche ist also schneller als der von der Partikeloberfläche in die Gasphase. An der Partikeloberfläche stellt sich die konstante Kühlgrenztemperatur bei entsprechendem Sattedampfdruck ein. Man spricht hier auch vom Zustand der adiabaten Sättigung. Der zweite Trocknungsabschnitt beginnt, wenn der Transport aus dem Partikelinneren an die Partikeloberfläche langsamer ist als die Verdunstung von der Partikeloberfläche in die Gasphase. Dieser Zustand tritt ein, wenn auf Grund von größer werdenden Transportwiderständen nicht mehr ausreichend Flüssigkeit für die Verdunstung in die Gasphase an die Partikeloberfläche geliefert werden kann. Zum Zeitpunkt des Übergangs zwischen dem ersten und dem zweiten Trocknungsabschnitt spricht man von der kritischen Gutsfeuchte  $X_{crit}$ . Wenn der Feststoff hygroskopisch ist, kann sich ein zusätzlicher dritter Trocknungsabschnitt ausbilden. Dabei wird die Trocknungsgeschwindigkeit abermals durch Absenkung des Dampfdrucks verringert. Am Ende der Trocknung stellt sich die Gleichgewichtsfeuchte  $X_{hyg}$  ein.

Die Modellierung der Trocknung erfolgt über die Bilanzierung der Massen und der Enthalpien für die Luft, den Feststoff und die darin enthaltenen Wasseranteile. Daraus lassen sich die zeitlichen Verläufe der Partikeltemperatur und der Flüssigkeitsbeladung berechnen. Diese Berechnung wird in den folgenden Abschnitten beschrieben.

### 2.2.1 Batch-Prozess

In den folgenden Punkten werden wichtige Modellannahmen für die Modellierung des Trocknungsvorgangs im Prozess der Wirbelschichtsprühgranulation erläutert.

1. Durch die verwendete Düse gelangt nur Flüssigkeit in die Wirbelschicht. Die Effekte durch den Eintrag der Hilfsluft werden auf Grund ihres sehr kleinen Anteils, verglichen mit dem Prozessluftstrom, vernachlässigt.
2. Die Wirbelschicht befindet sich in einem homogenen Fluidisierungszustand, d.h. das relative Lückenvolumen ist ortsunabhängig. Der negative Einfluss durch das Blasenverhalten in Wirbelschichten, wie er bei Tsotsas (1994) beschrieben wird, soll so klein sein, dass man ihn vernachlässigen kann. Es müssen somit keine Differentialgleichungen sowie Stoff- und Wärmeströme für die Blasenphase aufgestellt werden.
3. Die Luft durchströmt den Prozessraum der Wirbelschicht formell als Pfropfen. Die Gasströmung wird damit als ideale Kolbenströmung (*Plug Flow*) angesetzt. Eine Vermischung in axialer Richtung wird durch die Ansätze aus Anhang C dennoch indirekt berücksichtigt.
4. Die Wirbelschicht arbeitet adiabatisch. Die Wärmeverluste, welche in die Apparatewand und an die Umgebung abgegeben werden, sind vernachlässigbar klein.

5. Auf Grund der kleinen Partikelgrößen soll es innerhalb der Partikel keine Wärmeübergangswiderstände geben. Somit gibt es innerhalb der Partikel keinen Temperaturgradienten.
6. Der Verlauf der Trocknung und sich daraus ergebende Beladungsgradienten werden durch eine normierte Trocknungskurve berücksichtigt.
7. Der Wärmeübergang zwischen Anströmboden und kollidierenden Partikel bzw. zwischen Anströmboden und Prozessgasstrom wird nicht berücksichtigt.
8. Die gesamte durch die Düse eingebrachte Flüssigkeitsmenge soll zum Partikelwachstum beitragen. Ein Abfließen durch den Anströmboden oder ein Austrag von Einzeltropfen mit dem Abluftstrom (*Overspray*) soll nicht berücksichtigt werden.
9. Die auf ein Partikel aufgedüste Flüssigkeit verteilt sich gleichmäßig an der Oberfläche, das Auftreten unterschiedlicher Benetzungsgrade wird nicht berücksichtigt.
10. Während der Trennung, Zerkleinerung und dem Transport der ausgetragenen bzw. zurückgeführten Partikel sollen weder Feuchte- noch Temperaturänderungen auftreten.

### 2.2.1.1 Massenbilanz

Bei Betrachtung der Partikelphase als örtlich konzentriertes System ist für die Bilanzierung der Wassermasse eine Ortsabhängigkeit vernachlässigbar. Eine Änderung der Wassermasse des Partikels findet lediglich auf Grund des Verdunstungsstroms  $\dot{M}_v$  und des eingedüsten Flüssigkeitsstroms  $\dot{M}_{sus,l}$  statt. Für die Änderung der Partikelwassermasse ergibt sich damit die gewöhnliche Differentialgleichung:

$$\frac{dM_{w,p}}{dt} = -\dot{M}_v + \dot{M}_{sus,l}. \quad (2.63)$$

Im Gegensatz zur Bilanzierung der Partikelphase ist für die Gasphase sehr wohl eine Ortsabhängigkeit zu berücksichtigen. Zum einen wird die Wassermasse durch Verdunstung und zum anderen durch Konvektion transportiert. Somit ergibt sich für die zeitliche Änderung der Wassermasse in der Gasphase die partielle Differentialgleichung:

$$\frac{\partial M_{w,g}}{\partial t} = -\frac{\partial \dot{M}_{w,g}}{\partial z} dz + d\dot{M}_v. \quad (2.64)$$

Für die Beschreibung von Trocknungsprozessen werden häufig anstatt der Angabe der absoluten Wassermassen, Beladungswerte als Zusammensetzungsmaß angegeben. Die jeweilige Wassermasse einer Phase bezieht sich dabei auf die entsprechende Trockenmasse der Phase. Somit lassen sich die Beladung der Partikelphase  $X$  und die der Gasphase  $Y$  wie folgt ausdrücken:

$$X = \frac{M_{w,p}}{M_{p,dry}}, \quad (2.65)$$

$$Y = \frac{M_{w,g}}{M_{g,dry}}. \quad (2.66)$$

Die Trockenmasse für die Partikelphase  $M_{bed}$  kann aus dem dritten Moment der Anzahldichteverteilung berechnet werden (Gleichung (2.6)). Die Trockenmasse für die Gasphase wird aus dem Lückenvolumen der Wirbelschicht berechnet:

$$M_{g,dry} = \varepsilon \rho_g \frac{\pi}{4} d_{app}^2 H_{bed}. \quad (2.67)$$

### 2.2.1.2 Energiebilanz

Für die Energiebilanz wird analog zur Massenbilanz eine Unterteilung in Partikel- und Gasphase vorgenommen. Die Enthalpie für die Partikelphase setzt sich aus zwei Strömen zusammen. Zum einen aus dem Enthalpiestrom  $\dot{H}_v$ , welcher aus dem Verdunstungsmassen  $\dot{M}_v$  resultiert, und zum anderen aus dem zu berücksichtigenden Wärmestrom  $\dot{Q}$  der Gasphase:

$$\frac{dH_p}{dt} = -\dot{H}_v + \dot{Q}. \quad (2.68)$$

Zur Bilanzierung der Gasphase ist wieder eine ortsabhängige Betrachtung notwendig. Somit ergibt sich für die partielle Differentialgleichung:

$$\frac{\partial H_g}{\partial t} = -\frac{\partial \dot{H}_g}{\partial z} dz + d\dot{H}_v - d\dot{Q}. \quad (2.69)$$

Zur Berechnung der Enthalpie- und Wärmeströme muss die entsprechende Temperatur der Partikel- und Gasphase bekannt sein. Dabei setzt sich die Gesamtenthalpie jeder Phase aus den im trockenen und im feuchten Anteil enthaltenen Teilenthalpien zusammen. Bei bekannten Beladungen  $X$  und  $Y$  können aus den Enthalpien  $H_p$  und  $H_g$  die benötigten Temperaturen berechnet werden:

$$H_p = M_{p,dry} T_p (c_p + X c_w), \quad (2.70)$$

$$H_g = M_{g,dry} (c_{p,g} T_g + Y (c_{p,v} T_g + \Delta h_{v,0})). \quad (2.71)$$

Für die Austauschterme zwischen Partikel- und Gasphase werden folgende Ansätze verwendet:

$$\dot{Q} = \alpha A_{bed} (T_g - T_p), \quad (2.72)$$

$$\dot{H}_v = \dot{M}_v (c_{p,v} T_p + \Delta h_{v,0}). \quad (2.73)$$

Die Berechnung des Wärmeübergangskoeffizienten  $\alpha$  erfolgt nach dem Modell, welches von Groenewold und Tsotsas (1997) beschrieben und im Anhang C detailliert aufgeführt ist.

## 2.2.2 Kontinuierlicher Prozess

### 2.2.2.1 Massenbilanz

Für die dynamische Beschreibung der Massenbilanz für den kontinuierlichen Prozess wird analog zum Batch-Prozess in die Partikelphase und in die Gasphase unterteilt. Die Wassermasse der Partikelphase setzt sich nun aber zusätzlich zum Verdunstungsstrom  $\dot{M}_v$  und

dem eingedüsten Flüssigkeitstrom  $\dot{M}_{sus,l}$  auch noch aus den Wassermassen, welche durch die ausgetragen bzw. zurückgeführten Partikelströme transportiert werden, zusammen:

$$\frac{dM_{w,p}}{dt} = -\dot{M}_v + \dot{M}_{sus,l} - \dot{M}_{w,p,out} + \dot{M}_{w,p,in}. \quad (2.74)$$

Die Wassermassen für die ausgetragenen und die zurückgeführten Partikelströme lassen sich mittels ihrer Feststoffbeladung  $X$  wie folgt beschreiben:

$$\dot{M}_{w,p,out} = X \rho_p \frac{\pi}{6} \int_0^{\infty} x^3 \dot{n}_{out} dx, \quad (2.75)$$

$$\dot{M}_{w,p,in} = X \rho_p \frac{\pi}{6} \int_0^{\infty} x^3 \dot{n}_{in} dx. \quad (2.76)$$

Zur Bilanzierung der Gasphase für den kontinuierlichen Prozess gegenüber dem Batch-Prozess ergibt sich keine Änderung, da keine zusätzlichen Gasströme eingesetzt werden. Somit gelten für die Massenbilanz der Gasphase die selben Gleichungen wie für den Batch-Prozess.

### 2.2.2.2 Energiebilanz

Wie bereits in den vorherigen Abschnitten, wird auch für die Bilanzierung der Enthalpie für den kontinuierlichen Prozess eine Unterteilung in Partikel- und Gasphase vorgenommen. Um die Enthalpieänderung für die Partikelphase zu berechnen, müssen analog zur Berechnung der Massenbilanz für den kontinuierlichen Prozess die ausgetragenen und die rückgeführten Ströme berücksichtigt werden. Somit ergibt sich folgende Gleichung:

$$\frac{dH_p}{dt} = -\dot{H}_v + \dot{Q} - \dot{H}_{p,out} + \dot{H}_{p,in}. \quad (2.77)$$

Die Enthalpieströme  $\dot{H}_{p,out}$  und  $\dot{H}_{p,in}$  können durch folgende Gleichungen ausgedrückt werden:

$$\dot{H}_{p,out} = \rho_p \frac{\pi}{6} T_p (c_p + X c_w) \int_0^{\infty} x^3 \dot{n}_{out} dx, \quad (2.78)$$

$$\dot{H}_{p,in} = \rho_p \frac{\pi}{6} T_p (c_p + X c_w) \int_0^{\infty} x^3 \dot{n}_{in} dx. \quad (2.79)$$

Für die Beschreibung der Enthalpie der Gasphase werden, wie schon in der Beschreibung der Massenbilanz für Gasphase des kontinuierlichen Prozess, die selben Gleichungen wie für den entsprechenden Batch-Prozess übernommen.

### 2.2.3 Berechnung der Trocknungsgeschwindigkeit

Der zeitliche Verlauf der Trocknung und die damit verbundene Aufteilung in ersten und zweiten Trocknungsabschnitt ergeben für den Verlauf der Trocknungsrate folgende Gleichung:

$$\dot{M}_v = \rho_g \beta A_{bed} (Y_{sat} - Y) \dot{\nu}(\xi). \quad (2.80)$$

Die Trocknungsrate entspricht dabei dem bereits in den vorherigen Abschnitten aufgeführten Verdunstungsstrom  $\dot{M}_v$ . Die Dichte des Gases  $\rho_g$  und der Stoffübergangskoeffizient  $\beta$  werden nach Anhang C berechnet.  $A_{bed}$  entspricht in der Gleichung (2.80) der Gesamtpartikeloberfläche in der Wirbelschicht,  $Y$  der Gasbeladung bzw.  $Y_{sat}$  der Sättigungsbeladung (siehe Gleichung (A.55)). Für die normierte Trocknungskurve  $\dot{\nu}$  wird im ersten Trocknungsabschnitt der Wert 1 angenommen. Im zweiten Abschnitt kann sie über folgende Beziehung berechnet werden (Cunäus, 2011):

$$\dot{\nu} = \frac{p\xi}{1 + (p-1)\xi}. \quad (2.81)$$

Mit Hilfe des Parameters  $p$  kann die Krümmung der Trocknungskurve verändert und somit die Stärke der Absenkung der Trocknungsrate angepasst werden. Der Parameter  $p$  wurde in dieser Arbeit für alle verwendeten Materialien gleich 1 gesetzt. Für die normierte Feststoffbeladung ergibt sich folgende Beziehung:

$$\xi = \frac{X - X_{hyg}}{X_{crit} - X_{hyg}}. \quad (2.82)$$

Bei einer sehr niedrigen Eindüsungsrage stellt sich auch eine niedrige Feststoffbeladung ( $X \leq X_{crit}$ ) ein, da das eingedüste Wasser durch die hohe Aufnahmefähigkeit der trockenen Luft schnell verdunstet und nur sehr geringe Wassermengen vom Feststoff aufgenommen werden. Man bleibt somit im zweiten Trocknungsabschnitt und es ergeben sich in diesem Fall sehr kleine Werte für die Trocknungsrate, obwohl die Triebkraft der Luft Wasser aufzunehmen sehr hoch ist.

Eine weitere Größe für die Trocknung ist das dimensionslose Trocknungspotenzial:

$$\eta = \frac{Y_{sat} - Y_{out}}{Y_{sat} - Y_{in}}. \quad (2.83)$$

Es wird berechnet aus dem Differenzverhältnis der Gasbeladungen für den Austrittszustand zum Sättigungszustand und dem Eintrittszustand zum Sättigungszustand. Das dimensionslose Trocknungspotenzial  $\eta$  ist somit ein Maß zwischen noch möglicher Verdampfungsmenge zur maximal möglichen Verdampfungsmenge (Mörl, 2008). Findet keine Verdampfung statt, entspricht die Austrittsbeladung ( $Y_{out}$ ) der Eintrittsbeladung ( $Y_{in}$ ) und das Trocknungspotenzial beträgt eins. Wenn die maximal mögliche Menge verdunstet wird, entspricht die Austrittsbeladung ( $Y_{out}$ ) der Sättigungsbeladung ( $Y_{sat}$ ) und das dimensionslose Trocknungspotenzial wird null.

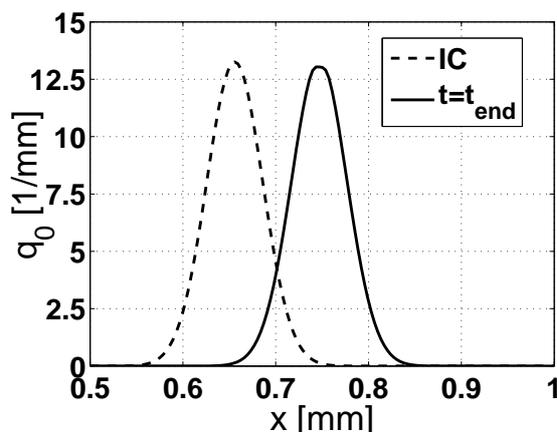
### 2.2.4 Simulationsergebnisse für die Trocknung

Hier sollen beispielhaft die charakteristischen Verläufe für die wichtigsten Parameter der Trocknung aufgezeigt werden. Für die Berechnung wurde das bereits vorgestellte Zwei-Zonen-Modell mit einer Sprühzone von 10 % und einer mittleren Verweilzeit von 0.1 s gewählt. Außerdem wurde für die Kinetik des Partikelwachstums oberflächenproportionales Wachstum ( $G_{\epsilon,2}$ ) angenommen. Alle verwendeten Prozessparameter sind in Tabelle 2.5 aufgeführt.

**Tabelle 2.5:** Simulationsparameter für die Trocknung

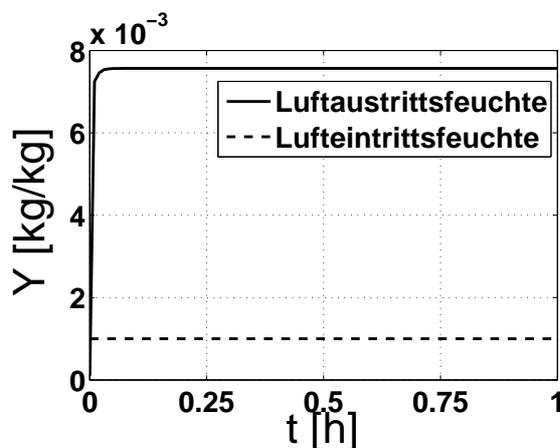
Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Simulationszeit	$t$	1	$h$
Hold-up	$M_{bed}$	0,5	$kg$
Gasmassenstrom	$\dot{M}_g$	75	$kg h^{-1}$
Eindüsungsrate	$\dot{M}_{sus,l}$	0,8	$kg h^{-1}$
Druck	$P$	1	$bar$
Apparatedurchmesser	$d_{app}$	0,15	$m$
Anfangsbeladung Partikel	$X_0$	0,001	$kg kg^{-1}$
Kritische Partikelbeladung	$X_{crit}$	0,18	$kg kg^{-1}$
Hygroskopische Partikeleladung	$X_{hyg}$	0,002	$kg kg^{-1}$
Eintrittsbeladung Gas	$Y_{in}$	0,001	$kg kg^{-1}$
Anfangstemperatur Partikel	$T_{p,0}$	80	$^{\circ}C$
Eintrittstemperatur Gas	$T_{g,in}$	80	$^{\circ}C$
Porosität der Granulathülle	$\epsilon_{sh}$	0	–
Krümmung der Trocknungskurve	$p$	1	–
Dichte des Kernmaterials	$\rho_p$	1280	$kg m^{-3}$
Dichte des Beschichtungsmaterials	$\rho_s$	1440	$kg m^{-3}$

Der Vergleich der Anfangsverteilung  $IC$  mit der Endverteilung  $t = t_{end}$  für das Partikelwachstum in Abbildung 2.13 zeigt, dass alle Partikelgrößen mit gleicher Geschwindigkeit wachsen, weil sich die Breite der Verteilung nicht verändert.



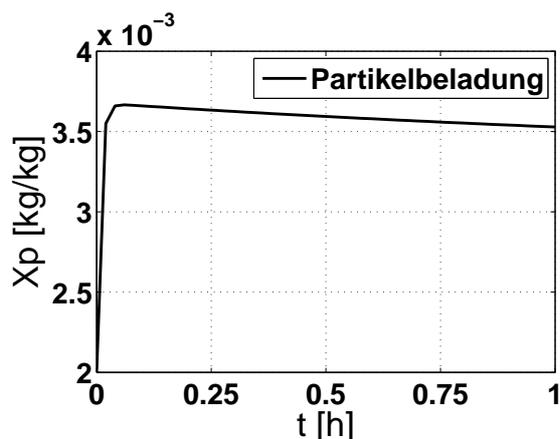
**Abbildung 2.13:** Vergleich der zeitlichen Entwicklung der Anzahldichteverteilung  $q_0$  für das Zwei-Zonen-Modell mit oberflächenproportionalem Wachstum,  $\alpha = 10\%$  und  $\tau_\alpha = 0.1 \text{ s}$

In Abbildung 2.14 sind die Verläufe für die Gasbeladung dargestellt. Mit Beginn der Eindüsung steigt die Beladung der Austrittsluft rasch auf einen Maximalwert an und verläuft dann konstant. Die vorgegebene Eintrittsbeladung der Fluidisierungsluft ändert sich nicht und bleibt über die gesamte Zeit konstant.



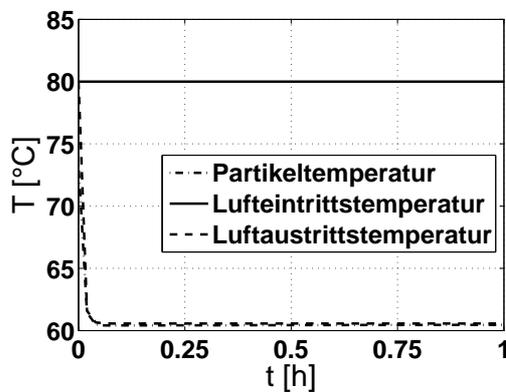
**Abbildung 2.14:** Zeitliche Entwicklung der Gasbeladung für das Zwei-Zonen-Modell mit oberflächenproportionalem Wachstum,  $\alpha = 10\%$  und  $\tau_\alpha = 0.1 \text{ s}$

Der Verlauf der Feststoffbeladung gestaltet sich zu Beginn ähnlich der Luftaustrittsbeladung. Mit Beginn der Eindüsung steigt die Beladung rasch auf einen Maximalwert an und sinkt dann leicht aber stetig ab. Das Absinken der Feststoffbeladung wird durch das Verhältnis der Wassermasse zur Trockenmasse (Gleichung (2.65)) im Prozess verursacht. Da die Differenz zwischen Eintritts- und Austrittsbeladung konstant bleibt, ist die Verdunstungsmenge und damit auch die Wassermenge im Prozess ebenfalls konstant. Die Trockenmasse, bedingt durch das Partikelwachstum, nimmt aber im zeitlichen Verlauf stetig zu. Deshalb verringert sich kontinuierlich die Feststoffbeladung.



**Abbildung 2.15:** Zeitliche Entwicklung der Feststoffbeladung für das Zwei-Zonen-Modell mit oberflächenproportionalem Wachstum,  $\alpha = 10\%$  und  $\tau_\alpha = 0.1 \text{ s}$

Mit Beginn der Eindüsung sinkt auch die Gasaustrittstemperatur rasch von ihrem Anfangswert auf einen Beharrungswert ab. Die Gaseintrittstemperatur bleibt über die gesamte Zeit konstant. Der Verlauf der Partikeltemperatur hängt von der Starttemperatur ab und ähnelt dem Verlauf der Gasaustrittstemperatur. Sie sinkt mit Beginn der Eindüsung rasch ab und verläuft dann konstant.



**Abbildung 2.16:** Zeitliche Entwicklung der Gas- und Partikeltemperatur für das Zwei-Zonen-Modell mit oberflächenproportionalem Wachstum,  $\alpha = 10\%$  und  $\tau_\alpha = 0.1 \text{ s}$

## Kapitel 3

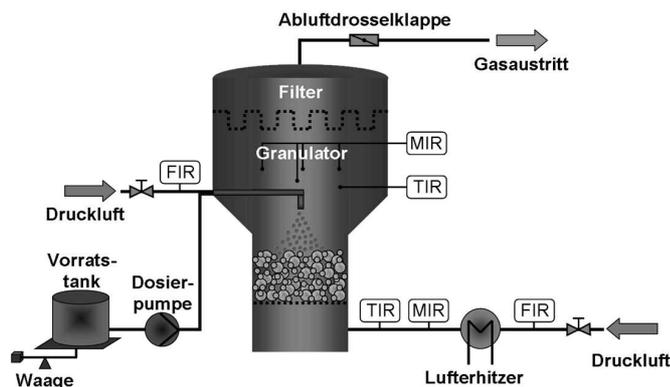
# Anlagen, Messmethoden und Materialien

### 3.1 Wirbelschichtversuchsanlagen

In der vorliegenden Arbeit wurden die experimentellen Untersuchungen in zwei Wirbelschichtanlagen unterschiedlicher Größe und Bedienungsmöglichkeit durchgeführt. In der genutzten Laborgranulationsanlage (*WSA 150*) lässt sich lediglich der diskontinuierliche Prozess realisieren, dafür bietet die Anlage aber eine sehr präzise Messtechnik. Die größere Pilotgranulationsanlage (*WSA 300*) bietet den Vorteil, dass sich mit ihr verschiedene Wirbelschichtprozesse realisieren lassen. Ihre größeren Dimensionen und auch die Bedienung über die Programmoberfläche einer speicherprogrammierbaren Steuerung (*SPS*) liegen dichter an der Wirbelschichtgranulation im industriellen Maßstab. Sie stellt aber durch die hohe Variabilität der Anlage und die größeren Stoffströme, die in den einzelnen Versuchen benötigt werden, einen höheren Zeit- und Arbeitsaufwand an den Benutzer für das Durchführen von Versuchen.

#### 3.1.1 Wirbelschichtlaborgranulationsanlage **WSA150**

Der erste Teil der Granulationsexperimente in dieser Arbeit wurde in der Laborwirbelschichtanlage *WSA 150* (Typ: GPCG 1.1, Firma Glatt) durchgeführt. Eine schematische Darstellung ist in Abbildung 3.1 zu finden.



**Abbildung 3.1:** Fließbild der modifizierten Laborgranulationsanlage WSA150

Die Versuchsanlage wurde sowohl apparativ als auch messtechnisch durch einige Umbauten modifiziert, um eine höhere Präzision der Messergebnisse zu erreichen. Die apparativen Änderungen umfassen sowohl die Wirbelschichtkammer als auch die Bereitstellung der Prozessluft.

Der ursprünglich konische Prozessraum wurde durch einen zylindrischen ersetzt. Dieser Zylinder besteht aus Polyacrylglas mit einem Innendurchmesser von 150 mm und einer Höhe von 450 mm. Nach unten wird er durch einen Sintermetallanströmboden aus Edelstahl mit einer Porengröße von  $100\ \mu\text{m}$  abgeschlossen. Nach oben wird der Prozessraum durch die Beruhigungszone, in welche ein Textildoppelkammerfilter mit einer Porengröße von  $7\ \mu\text{m}$  integriert ist, begrenzt. In der Beruhigungszone beträgt der Anlagendurchmesser 450 mm, dies führt zu einer Verringerung der Gasgeschwindigkeit und reduziert somit den Austrag von Partikeln aus dem Prozessraum. Der Druck in der Anlage kann mit Hilfe einer pneumatisch ansteuerbaren Drosselklappe variiert werden. Die gesamte Prozesskammer ist schwenk- und kippar gelagert, was eine schnellen Produktentnahme ermöglicht.

Als Prozessluft wird Druckluft verwendet, welche dem örtlichen Netz über eine entsprechende Messstrecke entnommen wird. Die Druckluft wird am Eintritt der Messstrecke für den Durchfluss durch einen Druckminderer von 4 auf 1 bar entspannt. Zur Einstellung des gewünschten Gasmassenstromes werden ein Nadelventil und ein Gasdurchflussmesser (Typ: F-106BI, Firma Bronkhorst-Mättig) verwendet, wobei über das Nadelventil der gewünschte Massenstrom eingestellt wird und über den Mass Flow Meter der entsprechende Massendurchfluss nach dem Prinzip der thermischen Massenflussmessung ermittelt wird. Nach der Messstrecke kann die Prozessluft mittels eines integrierten elektrischen Heizers auf Eintrittstemperaturen von max.  $100\ ^\circ\text{C}$  erwärmt werden. Der Heizer besitzt drei einzeln zuschaltbare Heizelemente, wobei eines regelbar und der Rest nur zu- und abschaltbar ist. Der für die Regelung verwendete Temperaturfühler befindet sich unmittelbar unterhalb des Anströmbodens.

Die Eindüsung in die Wirbelschichtkammer erfolgt in Top-Spray Konfiguration mittels einer außenmischenden Zweistoffdüse (Typ: 970/0 S4, Firma Düsen-Schlick GmbH). Dabei beträgt der Abstand der Düsenkappe vom Anströmboden 250 mm. Der Düsenvordruck der Zerstäubungsluft wird über einen Druckminderer der Versuchsanlage eingestellt und mittels eines weiteren Gasdurchflussmessers (Typ: F-112AC, Firma Bronkhorst-Mättig) erfasst. Der Düsenvordruck kann zwischen 1 und 3 bar variiert werden. Die eingedüste Lösung wird durch eine Kolbenschieberpumpe (Typ: LDP-31, Firma Labortechnik-Sewald) gefördert.

Die Dosierpumpe ermöglicht Förderraten von 50 ml/h bis 4900 ml/h und arbeitet pulsationsfrei. Die Bauform der Pumpe ermöglicht eine Fördergenauigkeit von 0.1 % der maximalen Förderleistung. Die Eindüsungsrate selbst, wird durch die gravimetrische Messung des Vorratsbehälters bestimmt.

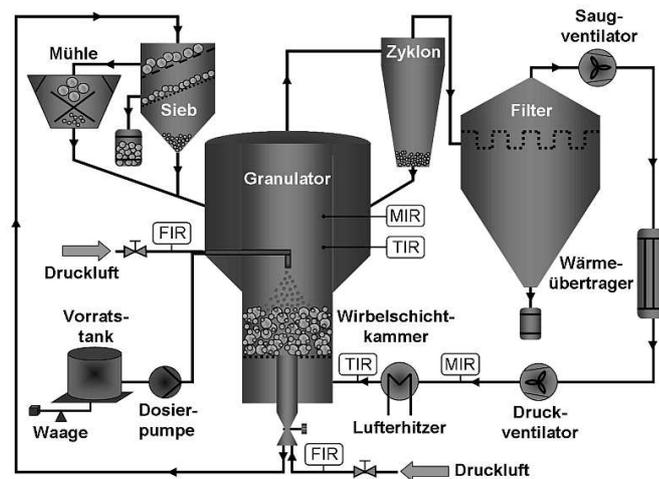


**Abbildung 3.2:** Prozessraum der modifizierten Laborgranulationsanlage WSA150

Für die Erfassung der Gasfeuchten am Eintritt und Austritt der Wirbelschicht wird das Messverfahren der Infrarot-Spektroskopie eingesetzt, welches im Abschnitt 3.2.3 genauer erläutert wird. Zur Erfassung aller relevanten Betriebsparameter wurde eine Reihe von zusätzlichen Sensoren an der Versuchsanlage installiert. Neben der Erfassung der Gaseintritts- und Gasaustrittstemperatur über Thermoelemente (Typ: K), wird der Absolutdruck vor dem Anströmboden und der Druckverlust über den Anströmboden und der Wirbelschicht gemessen. Die Abnahme des Druckniveaus erfolgt dabei über Ringleitungsstutzen, welche symmetrisch in horizontalen Ebenen am zylindrischen Teil der Anlage angebracht sind. Die analogen Messwertsignale sämtlicher Sensoren werden mittels eines Datenloggers (Typ: OMB-DAQ-56, Firma Omega) in digitale Signale umgewandelt. Diese digitalen Signale werden mittels der Messwerterfassungssoftware DasyLab auf dem PC in Form von Excel-Dateien aufgezeichnet. Die Messwerte lassen sich durch den verwendeten Datenlogger mit einer Taktrate von zwei Sekunden aufzeichnen.

### 3.1.2 Wirbelschichtpilotgranulationsanlage WSA300

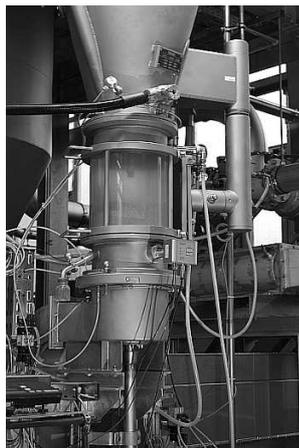
Der zweite Teil der Granulationsexperimente in dieser Arbeit wurde in einer halbtechnischen Pilotanlage WSA 300 (Firma IPT-Pergande) durchgeführt.



**Abbildung 3.3:** Fließbild der halbtechnischen Pilotanlage WSA300

In Abbildung 3.3 ist das Fließbild der halbtechnischen Versuchsanlage dargestellt. Die Anlage ist so konzipiert, dass sie sich sowohl für den diskontinuierlichen als auch für den kontinuierlichen Betrieb eignet. Die Versorgung der Wirbelschichtkammer mit Prozessluft wird über zwei Radialventilatoren (Typ: HRD 65FU-100, Firma Elektror Airsystems GmbH) realisiert. Jeweils ein Ventilator ist im Druckbetrieb und einer im Saugbetrieb. Somit kann sowohl der Luftmassenstrom als auch der Luftdruck in der Anlage über die Frequenzumrichtersteuerung beider Ventilatoren konstant geregelt werden. Der Massenstrom der Prozessluft wird mit einer Blendenmessstrecke ermittelt. Mit der Leistung der Ventilatoren lassen sich Gasgeschwindigkeiten im Granulator von bis zu  $3,5 \text{ m s}^{-1}$  erreichen. Für die Prozessluftführung im Kreislauf ist ein Wärmeübertrager (Typ: 450/225, Firma GEA) installiert, der die beladene Abluft abkühlt und dadurch gleichzeitig die Abluft entfeuchtet. Der Wärmeübertrager ist mit einem entsprechenden Kälteaggregat (Typ: 2ZI TAE EVO 121, Firma M.T.A. SRL Via Dell Artigianato) verbunden, über das die Abkühltemperatur im Wärmeübertrager geregelt wird. Zum Aufheizen der Prozessluft besitzt die Anlage einen 60 kW Elektroheizer (Typ: 15721, Firma Heatsystems). Die Wirbelschichtkammer hat einen Innendurchmesser von 300 mm und lässt sich im Ruhezustand zur Seite schwenken. Abgedichtet wird der schwenkbare Teil durch aufblasbare Dichtungen, die auf Grund ihres Materials eine maximale Betttemperatur von  $150 \text{ }^\circ\text{C}$  vorgeben. Nach unten wird die Wirbelschichtkammer durch einen Sintermetallboden aus Edelstahl mit einer Porengröße von  $100 \text{ }\mu\text{m}$  abgeschlossen. Oberhalb der Wirbelschichtkammer befindet sich eine Beruhigungszone, in welche die Rückführungen von Zyklon, Partikelsieb und Partikelmühle einmünden. An die Beruhigungszone schließt sich ein Abluftzyklon an, dessen Feststoffabscheidung wahlweise separat aufgefangen oder in den Prozessraum zurückgeführt werden kann. Nach dem Zyklon folgt ein Drahtkorbtexilfilter der den in der Abluft verbliebenen Feinstaub zurück hält. Im oberen Bereich der Wirbelschichtkammer befindet sich eine Zweistoffdüse (Typ: Mod. 940/6, Firma Schlick) in Top-Spray Konfiguration. Der Abstand zwischen der Düsenkappe und dem Anströmboden beträgt 400 mm. Die Hilfsluft der Zweistoffdüse wird aus dem Druckluftnetz entnommen und ist über einen Gasdurchflussregler (Typ: F-202AV, Firma Bronkhorst-Mättig) geregelt. Die Versorgung der Düse mit Suspensionslösung wird mit Hilfe einer Exzentrerschneckenpumpe (Typ:

AEB 4H12, Firma Allweiler) realisiert. Die Eindüsungsrates wird mit einem magnetisch-induktiven Durchflussmesser (Typ: MIK, Firma Kobold) erfasst. Zusätzlich befindet sich der Vorratstank (Inhalt:  $1\text{ m}^3$ ), aus dem die Suspensionslösung entnommen wird, auf Wägezellen (Typ: Siwax WL230, Firma Siemens), was eine gravimetrische Bestimmung der Eindüsung ebenfalls erlaubt. Für die Regelung der Dosierpumpe wird ausschließlich das Messsignal des magnetisch-induktiven Durchflussmessers genutzt. Für den Partikelaustrag aus dem Prozessraum befindet sich in der Mitte des Anstömbodens ein Austragsrohr, welches durch eine Schieberschleuse (Typ: EX04, Firma Orbinox) abgeschlossen wird.



**Abbildung 3.4:** Prozessraum der halbtechnischen Pilotanlage WSA300

Für die externe Klassierung wird der ausgetragene Feststoff mittels einer pneumatischen Förderleitung auf ein Taumelsieb (Typ: KTS-V 450/2, Firma GKM) gegeben. Die Grob- gutfraktion wird auf eine Schlagrotormühle (Typ: SR300, Firma Retsch) geleitet, wo die Partikel zerkleinert werden. Anschließend gelangen sie zurück in den Prozessraum. Das Produkt wird in einem separaten Behälter auf einer weiteren Wägezelle (Typ: Siwax WL260, Firma Siemens) aufgefangen. Die Feingutfraktion wird ebenfalls in die Wirbelschichtkammer zurückgeführt. Zwischen der pneumatischen Förderleitung, dem Taumelsieb, der Schlagrotormühle und der Rückführung in den Granulator befinden sich Doppelklappenschleusen, welche die einzelnen Anlagenteile voneinander trennen. Für die interne Klassierung wird Druckluft, welche über einen Gasdurchflussregler (Typ: F-203AV, Firma Bronkhorst-Mättig) geregelt wird, in das Austragsrohr geleitet. Zusätzlich lässt sich die Klassierluft mit einem weiteren Elektroheizer (Typ: 15722, Firma Heatsystems) erwärmen. Für die Erfassung der Wasserbeladung der Eintritts- und Austrittsluft aus der Wirbelschichtkammer wird ebenfalls wie in der Wirbelschichtlaborgranulationsanlage WSA150 das Messverfahren der Infrarot-Spektroskopie eingesetzt, welches im Abschnitt 3.2.3 genauer erläutert wird. Die Erfassung aller relevanten Betriebsparameter wurde durch zahlreiche Temperatur- und Drucksensoren an der Versuchsanlage realisiert. So werden die Gaseintritts- und Gasaustrittstemperatur, die Klassierlufttemperatur und die Temperatur nach dem Wärmeübertrager über Widerstandsthermometer (Typ: PT-100, Firma Temperature Products GmbH) aufgezeichnet. Des Weiteren wird der Differenzdruck zwischen Wirbelschichtkammer und Umgebung und der Druckverlust über den Anströmboden und die Wirbelschicht gemessen (Typ: BTEM, Firma Sensortech GmbH). Die Abnahme des Druckniveaus erfolgt dabei über Ringleitungsstützen, welche senkrecht

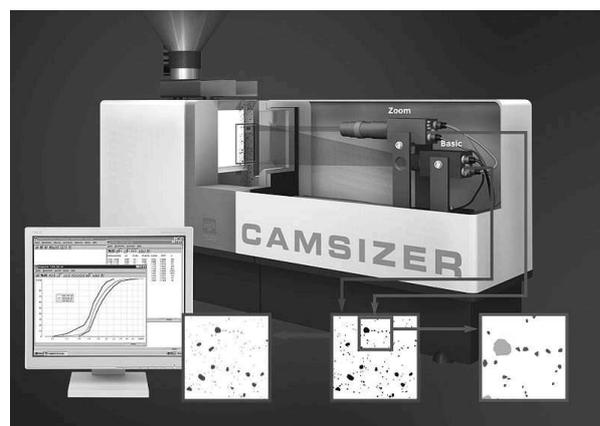
zur Strömungsrichtung am jeweiligen Messpunkt angebracht sind. Die zeitliche Auflösung der Messwerte liegt bei einer Sekunde. Für die kontinuierliche Messung der Partikelgröße in der Wirbelschichtkammer ist eine faseroptische Sonde (Typ: IPP 70-S, Firma Parsum) in die Wirbelschichtkammer integriert, welche die Sehnenlängenverteilung der Partikel direkt im Wirbelbett detektiert. Dadurch erhält man eine permanente Information über den Fortschritt des Partikelwachstums während der Granulation. Für die Regelung aller einzelnen Aggregate verfügt die Versuchsanlage über eine speicherprogrammierbare Steuerung (Typ: SPS 7, Firma Siemens). Somit werden wichtige Prozessparameter wie Schichttemperatur, Prozessgasmassenstrom und Eindüsungsrates durch die automatisierte Steuerung während des gesamten Prozesses konstant gehalten.

## 3.2 Messtechnik

In diesem Abschnitt werden die Messgeräte und Messmethoden beschrieben, die zur Bestimmung der untersuchten Prozessparameter und Partikeleigenschaften eingesetzt wurden. So wird die Bestimmung der Partikelgrößenverteilung und der Partikelporosität als wichtigste Partikeleigenschaften erläutert. Außerdem wird die Ermittlung der Gasfeuchten beschrieben, welche für die Beschreibung der Prozessparameter von großem Interesse ist. Auf eine Erläuterung konventioneller Messmethoden, die zur Ermittlung von Temperaturen und Drücken verwendet wurden, wird verzichtet und auf einschlägige Literatur hingewiesen.

### 3.2.1 Messung von Partikelgrößenverteilungen

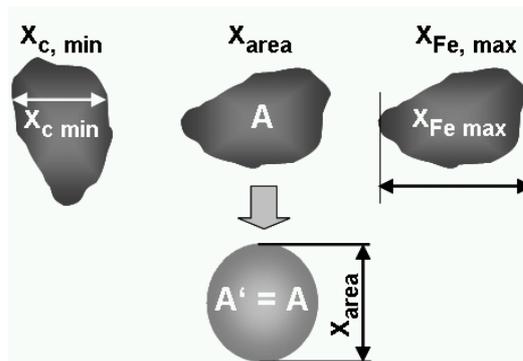
Die Bestimmung der Partikelgrößenverteilung als eine wichtige Partikeleigenschaft erfolgte ausschließlich offline. Die während der einzelnen Versuche erstellten Partikelproben wurden mit Hilfe eines digitalen Bildanalysegerätes (Typ: Camsizer, Firma Retisch Technologies GmbH) vermessen. Das Messgerät verwendet zwei Digitalkameras *CCD* (siehe Abbildung 3.5) zur Bildaufnahme von rieselfähigen Partikelschüttungen in einem Größenbereich von ca.  $30\ \mu\text{m}$  bis  $30\ \text{mm}$ .



**Abbildung 3.5:** Funktionsschema des Camsizers (Quelle: RETSCH Technology GmbH)

Die Proben werden in den Aufgabetrichter, welcher sich oben auf dem Gerät befindet, eingefüllt. Die Granulate werden über eine regulierbare Vibrationsrinne zum Messschacht transportiert und bewegen sich dann im freien Fall durch den Messschacht. Im Messschacht befindet sich die Fokusebene der Digitalkameras (Basic- und Zoom-Kamera), durch die die Granulate fallen. Auf der gegenüberliegenden Seite der Kameras ist eine LED-Lichtquelle (Light Emitting Diode) installiert, die ein homogenes Leuchtfeld erzeugt. Die Partikelgrößenbestimmung erfolgt durch die Photographie und die anschließende Analyse der Schattenprojektion der einzelnen Granulate, wobei die Basic-Kamera den Messbereich für große Partikel und die Zoom-Kamera für kleinere Partikel abdeckt. Doppelmessungen auf Grund der überlagerten Erfassungsbereiche werden rechnerisch korrigiert. Die maximale Bildrate beträgt 60 Bilder pro Sekunde. Die Menge der Aufgabeprobe kann die Genauigkeit des Messergebnisses beeinflussen und sollte deshalb eine gewisse Mindestanzahl an Partikeln aufweisen.

Bei der Auswertung der Aufnahmen der Schattenprojektionen der einzelnen Partikel (siehe Abbildung 3.6) können verschiedene Größenmaße (kleinste maximale Sehnenlänge  $x_{c,min}$ , Feret-Durchmesser  $x_{Fe,max}$  oder äquivalenter Durchmesser des projektionsflächengleichen Kreises  $x_{area}$ ) berücksichtigt werden.



**Abbildung 3.6:** Festlegung des Partikeldurchmessers

Für ideal sphärische Partikel würde sich für alle genannten Größenmaße die gleiche Verteilung ergeben. Allerdings beinhalten die Sehnenlänge und der Feret-Durchmesser nur eine eindimensionale Information vom Partikel, was bei stärkerem Abweichen von der idealen Kugelform zu größeren Unterschieden in der ermittelten Verteilung führt. Deshalb wurden sämtliche Messungen der Partikelgrößenverteilung mittels des Durchmessers  $x_{area}$  der kreisförmigen Projektionsfläche durchgeführt:

$$x_{area} = \sqrt{\frac{4}{\pi} A}. \quad (3.1)$$

Das Messergebnis des Camsizers liefert eine Häufigkeitsverteilung bezüglich der Partikelgröße. Diese Anzahlsummenverteilung  $Q_0(x_i)$  wird aus der Summe der Partikel  $N_i$  im entsprechenden Größenintervall und der Gesamtanzahl berechnet:

$$Q_0(x_i) = \frac{\sum_{i=1}^n N_i}{N_{tot}}. \quad (3.2)$$

Die Sphärizität der Partikel wird aus

$$S = 4\pi \frac{A}{U^2}, \quad (3.3)$$

mit der Projektionsfläche  $A$  und deren Umfang  $U$  bestimmt.

### 3.2.2 Messung von Partikelporositäten

Die Messung von Partikelporositäten kann durch verschiedene Messverfahren erzielt werden. Man kann die Verfahren nach dem Handling der Probe unterscheiden. Bei der Quecksilber-Intrusion und der Gasexpansions-Methode werden die Porenräume der Probe durch Hilfsmedien (Quecksilber bzw. ideales Gas) vollständig gefüllt. Durch die Bestimmung der Menge an Hilfsmedium wird das entsprechende Porenvolumen bestimmt. Die Rasterelektronenmikroskopie (*REM*) eignet sich für die Bestimmung von Porenstrukturen an Partikeloberflächen. Die Probe muss aber vor der Messung mit einer sehr dünnen elektrisch leitenden Schicht aus Edelmetall überzogen (*gesputtert*) werden. Ein Nachteil dieser Methoden ist, dass die Probe zwar mechanisch intakt bleibt aber nach ihrer Behandlung durch die Hilfsmedien (z.B. metallische Beschichtung) für viele andere Messungen unbrauchbar wird. Eine zerstörungsfreie Messmethode ist die Feinstrukturanalyse mittels Röntgentomographie (*Mikro-CT*). In den folgenden zwei Abschnitten werden die Messmethoden der Rasterelektronenmikroskopie und der Röntgentomographie genauer erklärt.

#### 3.2.2.1 Rasterelektronenmikroskopie

Die Rasterelektronenmikroskopie ist ein Messsystem zur optischen Analyse von Partikeln und Oberflächen im  $\mu\text{m}$ -Bereich. Mit ihrer Hilfe kann besonders die Morphologie von Oberflächen analysiert werden. Die Rasterelektronenmikroskopie wird deshalb für die Analyse massiver Proben vor allem in der Halbleiterphysik, der Nanotechnologie und der Biologie eingesetzt. Außerdem können aber auch Informationen über Stoffbrücken in Agglomeraten und über die Partikelgröße ermittelt werden. Der Vorteil der Rasterelektronenmikroskopie gegenüber der Lichtmikroskopie ist die viel bessere Vergrößerung und die größere Tiefenschärfe. Die Rasterelektronenmikroskopie basiert auf der Abrasterung der Probenoberfläche mittels eines fein gebündelten Strahls aus Primärelektronen. Die elektrische Spannung beträgt dabei 15 bis 25 kV. Die Fokussierung des Elektronenstrahls wird durch elektromagnetische Spulen realisiert. Während der Messung wird der Elektronenstrahl über die Oberfläche geführt (*abgerastert*). Parallel zu diesem Vorgang werden die aus der Probe austretenden Sekundärelektronen auf einem Detektor aufgefangen. Das Intensitätssignal vom Detektor wird durch entsprechende Elektronik in ein Grauwertbild umgerechnet und auf einem Bildschirm ausgegeben. Die maximale Auflösung ist dabei vom Elektronenstrahldurchmesser und vom Rückstreuverhalten der Probe abhängig. Die Messung erfolgt im Hochvakuum ( $10^{-7}\text{mbar}$ ), um eine Wechselwirkung von Atomen und Molekülen mit der Luft zu verhindern. Die Rasterelektronenmikroskopie stellt auf Grund des Messprinzips gewisse Anforderungen an die Probe. Die Probe muss durch Beschichtung der Oberfläche (*Sputtern*) mit einer sehr dünnen Platin-Palladium Schicht elektrisch leitfähig gemacht werden. Außerdem muss eine Verträglichkeit gegenüber dem Hochvakuum gegeben sein.



**Abbildung 3.7:** Desktop-Rasterelektronenmikroskop (Quelle: Phenom World B.V.)

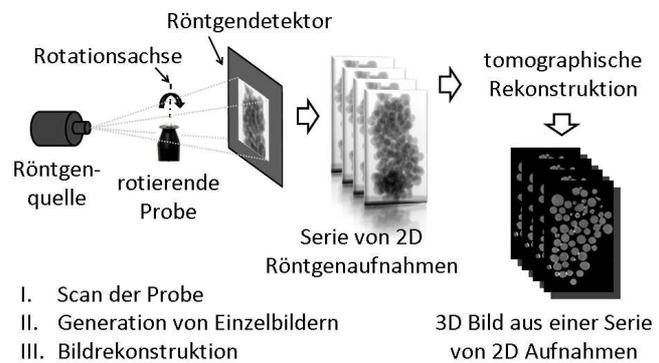
Das hier verwendete Rasterelektronenmikroskop (Typ: Desktop Pro, Firma Phenom World B.V.) besitzt eine 80 bis 100.000-fache Vergrößerung und eine Auflösung von bis zu 17 nm (siehe auch Abbildung 3.7). Die Vergrößerung ergibt sich dabei durch das Verhältnis zwischen der abgerasterten Probenoberfläche und der Detektorgröße (2048x2048).

### 3.2.2.2 Röntgentomographie

Mit der Röntgentomographie besteht die Möglichkeit neben Informationen über die Struktur an der Partikeloberfläche auch Informationen über das Partikelinnere zu erhalten. Somit lassen sich sehr gut Aussagen zur Beschichtungsqualität machen. Wichtige Parameter wie Dicke der Beschichtung, Verteilung der Beschichtungsdicke und Porosität der Beschichtung lassen sich mit der Röntgentomographie zerstörungsfrei ermitteln. Das Messprinzip basiert auf der Detektion von Intensitätsunterschieden der Röntgenstrahlung, die durch das Probematerial unterschiedlich stark absorbiert wurde. Zur Messung der Partikelstruktur wurde in dieser Arbeit der in Abbildung 3.8 gezeigte Röntgenmikrotomograph (Typ: CT Procon alpha 2000, Firma ProCon X-Ray GmbH) verwendet. Als charakteristische Größe wurde ausschließlich die Porosität der Granulathülle untersucht. Die Bestimmung der Partikelporosität läuft dabei in zwei Schritten ab. Im ersten Schritt wird eine Serie von Röntgenaufnahmen der Probe gemacht (siehe Abbildung 3.9). Durch die Projektion der zweidimensionalen Röntgenaufnahmen, welche aus verschiedenen Winkeln entstanden sind, kann mit Hilfe mathematischer Algorithmen eine dreidimensionale Abbildung (*Volumenbild*) der Probe erstellt werden. Für die Messung von Objekten mit einer geringen Dichte und hohen Porosität ist die Auswahl der Messparameter besonders wichtig. So wurde für die Messung eine hohe Anzahl an Drehschritten (circa 1400, Drehwinkel  $0,225^\circ$ ) und eine dreifache Aufnahme aus jeder Drehwinkelposition gewählt. Die hohe Anzahl an Drehwinkelpositionen verhindert das Entstehen von Artefakten und die Signalmittlung aus drei Aufnahmen reduziert das Rauschen der Messung. Wenn die Probe eine vollständige Rotation vollzogen hat, ist die Aufnahmeserie beendet. Da die Belichtungszeit für jede Aufnahme 2,5 s betrug, ergab sich eine Messzeit von etwa 4,5 Stunden. Die Auflösung lag somit unter einer Voxelgröße von  $1,2 \mu\text{m}$ . Ein derartiges Voxel kann man sich als dreidimensionales Pixel mit einer Kantenlänge von  $1,2 \mu\text{m}$  vorstellen. Die für die Erzeugung der Röntgenstrahlung nötige Spannung betrug 50 kV und die Stromstärke betrug  $160 \mu\text{A}$ . Im zweiten Schritt wird aus der dreidimensionalen Rekonstruktion (*Volumenbild*) der Röntgenaufnahme durch eine Reihe von verschiedenen Bildbearbeitungsschritten die Parti-

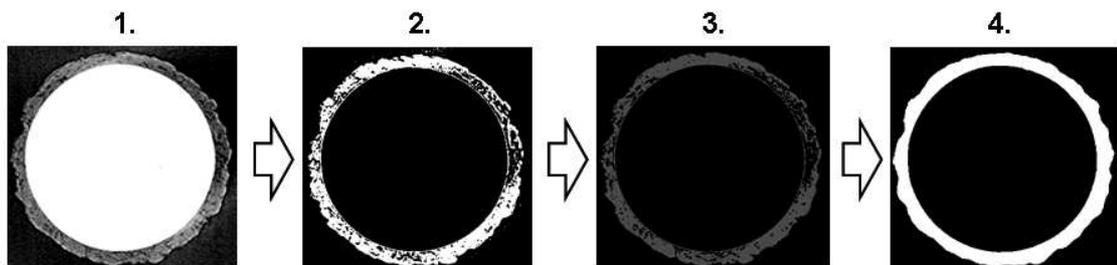


**Abbildung 3.8:** Messkammer mit Röntgenquelle und Detektor des Röntgenmikrotomographen (Dadkhah et al., 2012)



**Abbildung 3.9:** Prinzipschema einer dreidimensionalen Röntgenmikrotomographenmessung (Dadkhah et al., 2012)

kelporosität bestimmt. Hierfür wird eine Analysesoftware (*Mavi*) des Fraunhofer-Instituts für Technologie- und Wirtschaftsmathematik in Kaiserslautern verwendet. Die Software bietet auch die Möglichkeit nur definierte Bereiche der Röntgenaufnahme zu analysieren. In Abbildung 3.10 ist eine Bildserie der durchgeführten Zwischenstufen zur Bestimmung der Porosität der Partikelhülle dargestellt.

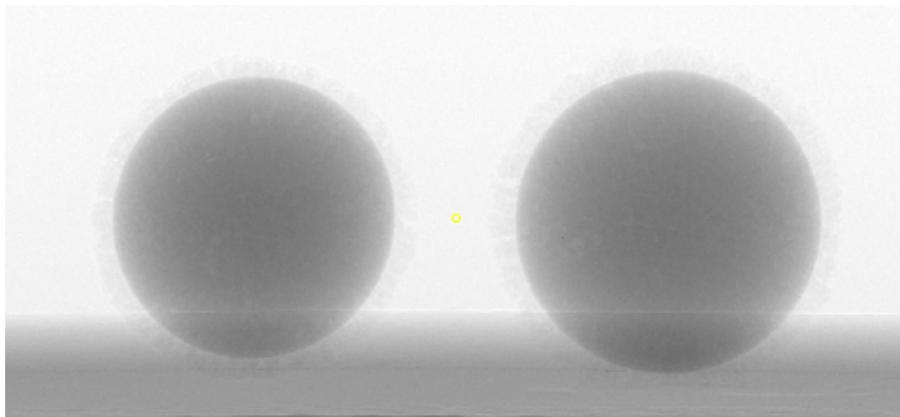


**Abbildung 3.10:** Prinzipschema der Bestimmung der Porosität der Partikelhülle

Im ersten Bearbeitungsschritt muss die Granulathülle vom Partikelkern separiert werden. Dazu wird ein Medianfilter verwendet, der die Grauwerte der einzelnen Voxel an die Umgebung des Voxel anpasst. Einzelne Voxel werden somit angepasst, eine Kantenglättung wird aber verhindert. Anschließend wird die Hülle vom Kern durch Segmentierung getrennt. Dies geschieht durch die Auswahl eines passenden Schwellwertbereichs, der nur den Kern des Granulats erfasst. Der erfasste Bereich wird binarisiert und kann dann vom Gesamtpartikel abgezogen werden. Somit steht ausschließlich die verbleibende Granulathülle für die Porositätsbestimmung zur Verfügung. Das Volumen des Feststoffes in der verbliebenen Hülle wird durch die Auszählung aller entsprechenden Voxel bestimmt. Die nächsten Operationsschritte schließen sämtliche Hohlräume in der Granulathülle. Bei den verwendeten Operationen werden Filter eingesetzt, die weniger destruktiv sind und die ursprüngliche

Größe, Form und Konvexität bewahren (Dadkhah et al., 2012). Die Filter benutzen dafür ein strukturierendes Element in Form einer Kugel, deren Größe vorher festgelegt wird. Nach dem Schließen aller Lücken wird das Volumen der Granulathülle erneut durch die Auszählung aller Voxel bestimmt. Durch Subtraktion beider Volumina erhält man das Lückenvolumen und somit die entsprechende Porosität.

Da die Messung auf Grund der vielen Drehwinkelpositionen sehr zeitaufwändig ist, werden immer gleichzeitig zwei Partikel aus einer Versuchsprobe im Röntgenmikrotomographen vermessen. Die Partikel liegen dabei in einer Ebene nebeneinander. Außerdem wird darauf geachtet, dass sich beide Partikel nicht berühren. Eine Aufnahme der Partikelpositionierung ist in Abbildung 3.11 gezeigt. Für beide Partikel wird die jeweilige Porosität der Granulathülle bestimmt und der entsprechende arithmetische Mittelwert für die jeweilige Versuchsprobe berechnet. Die Messergebnisse zeigen eine leichte Streuung, die mittlere Abweichung beträgt circa 2%, wobei sich die höchste Abweichung auf 4,28% beläuft.



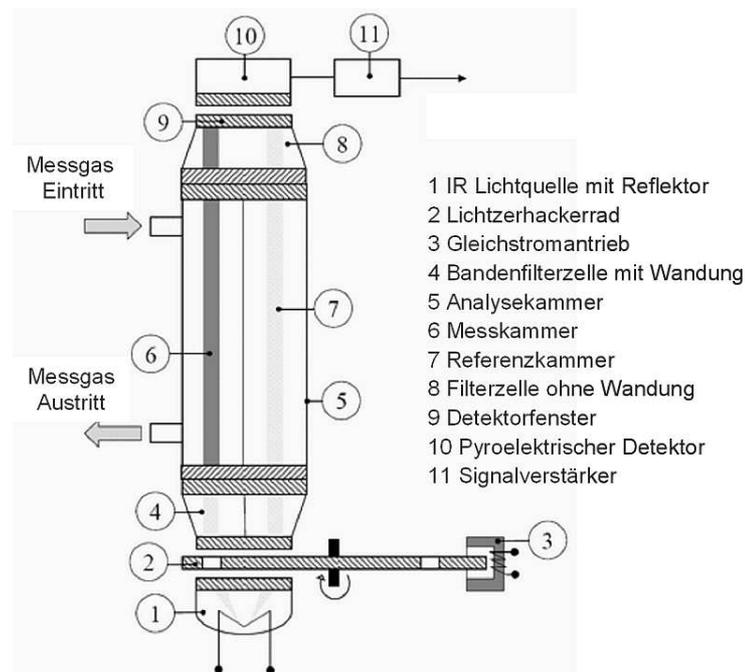
**Abbildung 3.11:** Röntgenmikrotomographenaufnahme von zwei mit Natriumbenzoat beschichteten Glaspartikeln

### 3.2.3 Messung von Gasfeuchten

Die Ermittlung der Gasfeuchte ist für die Beschreibung der vorliegenden Prozessbedingungen von zentraler Bedeutung. Prozessparameter wie Massenstrom der Fluidisierungsluft, Eindüsungsrate und Eintrittstemperatur haben alle einen direkten Einfluss auf die Gasfeuchte. Durch die Zusammenfassung der Prozessbedingungen in der Messgröße der Gasfeuchte können unterschiedliche Prozessparameterkombinationen direkt miteinander verglichen werden. Dadurch lassen sich Zusammenhänge zwischen Partikelwachstum und Prozessbedingungen besser erkennen. Für die Messung der Gasfeuchte existieren Messverfahren mit unterschiedlichen Zeitverzögerungen und Genauigkeiten. Zur kontinuierlichen Ermittlung mit hoher Genauigkeit wurde in dieser Arbeit eine Kombination zweier Messtechniken eingesetzt. Zum einen wurde für die hohe Flexibilität hinsichtlich der Prozessdynamik die Infrarotspektroskopie eingesetzt und zum anderen für eine möglichst genaue Messung die Taupunkt-Hygrometrie. Allerdings diente die Taupunkt-Hygrometrie lediglich zur Kalibrierung der Infrarotspektrometer (IR) und wurde im Vorfeld jeder IR-Messung durchgeführt.

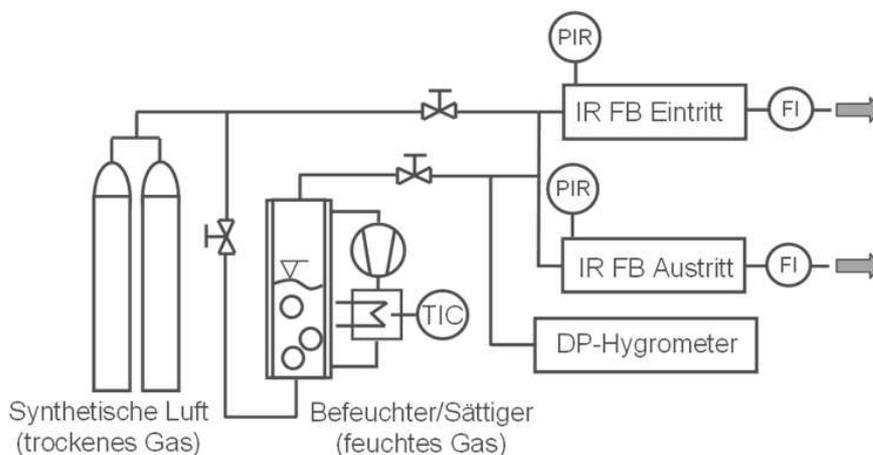
In der vorliegenden Arbeit wurden zwei Infrarotspektrometer (Typ: NGA 2000 MLT3, Firma Fisher-Rosemount) verwendet: Jeweils eines für die Gasfeuchtemessung der Zuluft

und eines für die Abluft. Die Absorptionsabhängigkeit von infrarotem Licht vom Wasserdampfgehalt des Gases dient hier als Messprinzip. Die Bestimmung der Gasfeuchten erfolgt dabei außerhalb der Versuchsanlage im Messgerät selbst. Die Luft strömt durch die Messzelle, welche mit infrarotem Licht durchleuchtet wird. Die Stärke der Absorption von infrarotem Licht ist dabei das Maß für die Bestimmung der Gaskonzentration. Das durch eine Heizspirale erzeugte infrarote Licht wird mit Hilfe von Reflektoren und Filtern durch die zweiteilige Messzelle geleitet (siehe Abbildung 3.12). Dies geschieht mittels eines Lichtzerhackerrades, welches sich mit konstanter Geschwindigkeit dreht. Somit wird abwechselnd infrarote Strahlung gleicher Intensität mal durch die Messseite und mal durch die Referenzseite geleitet. Wobei die Referenzseite mit Stickstoff gefüllt ist und lediglich durch die Messseite das zu analysierende Gas strömt. Anschließend durchläuft die infrarote Strahlung noch einen weiteren Filter, bevor sie von einem pyroelektrischen Detektor gemessen wird. Der Sensor vergleicht dabei die Intensitäten zwischen Mess- und Referenzseite und berechnet aus deren Differenz die entsprechende Volumenkonzentration und damit auch die Feuchte. Der Gasfluss aus der Versuchsanlage durch die Infrarotspektrometer selbst wird durch ein Druckgefälle zwischen Wirbelschichtanlage und Messgerät sichergestellt. Die Erzeugung dieses Druckgefälles kann entweder durch das Betreiben der Wirbelschichtanlage mit Überdruck oder, beim Betrieb der Anlage mit Unterdruck, durch den Einsatz von entsprechenden Gasförderpumpen erreicht werden. Für eine belastbare und reproduzierbare Messung sind der Gasdurchfluss und der Druck im Messgerät konstant zu halten. Dafür sind die IR-Spektrometer zusätzlich mit Regelventilen vor und nach der Messzelle ausgestattet. Außerdem befindet sich an jeder Messzelle ein Absolutdrucksensor und ein Glasrotameter mit Schwebekörper zur Durchflussbestimmung. Um ein vorzeitiges Auskondensieren von Feuchtigkeit in der Luft während der Messung zu verhindern sind sämtliche Leitungen zwischen der Versuchsanlage und den Messgeräten beheizt.



**Abbildung 3.12:** Schema des Infrarotspektrometers zur Messung der Gasfeuchte (Hampel, 2010)

Die Kalibrierung der Infrarotspektrometer wurde mittels eines Taupunkt-Hygrometers (Typ: OPTIDEW VISION, Firma Michell Instruments) durchgeführt und ist schematisch in Abbildung 3.13 dargestellt. Dies ist nötig, da die Gasfeuchte in der Messzelle des Infrarotspektrometers zum einen vom jeweiligen Druck im Messgerät abhängig ist und zum anderen der pyroelektrische Sensor einem latenten Drift unterliegt. Das Taupunkt-Hygrometer besteht im Wesentlichen aus einem temperierten Spiegel, dessen Oberfläche poliert oder metallisch bedampft ist. An der Spiegelunterseite befindet sich ein hochempfindlicher Temperatursensor. Der Spiegel kann mit Hilfe der ebenfalls an der Unterseite angebrachten Peltier-Elemente sowohl gekühlt als auch beheizt werden. Über der Spiegeloberseite befindet sich eine LED-Lichtquelle, welche den Spiegel mit gleich bleibender Intensität anstrahlt. Ebenfalls über dem Spiegel befinden sich zwei Photo-Sensoren, wobei einer die Intensität des reflektierten Lichts und der Andere die Streulichtintensität misst. Das zu messende Gas strömt über den Spiegel. Dieser wird soweit abgekühlt, bis es zur Kondensatbildung an der Spiegeloberseite kommt. Mit Hilfe der optischen Sensoren, die in einem Regelkreis mit den Peltier-Elementen des Spiegels verbunden sind, wird dieser Zustand eingestellt. Parallel dazu wird die Temperatur des Spiegels ermittelt, welche genau der Taupunkttemperatur des Gases entspricht. Mit Kenntnis des Gasdrucks im Messgerät und der ermittelten Taupunkttemperatur kann die absolute Feuchtebelastung des Gases berechnet werden.



**Abbildung 3.13:** Schema der Messapparatur zur Kalibrierung der Infrarotspektrometer (Hampel, 2010)

Die eigentliche Kalibrierung wird an zwei definierten Punkten durchgeführt. Dafür werden zwei unterschiedliche Gaszustände mittels einer Kalibriereinheit generiert. Hierzu wird als Kalibriergas synthetische Luft mit einer Stoffreinheit 5.0 eingesetzt. Der Wasseranteil dieser Luft liegt bei 5 ppm und wird deshalb zur Nullpunktkalibrierung verwendet. Der zweite Kalibrierpunkt wird durch die Befeuchtung der synthetischen Luft unter definierten Bedingungen in einem temperierten Gaswäscher eingestellt. Die konkrete Volumenkonzentration wird dabei direkt nach dem Gaswäscher mittels Taupunkt-Hygrometer, wie bereits vorher beschrieben, ermittelt. Für eine erfolgreiche Kalibrierung ist sicherzustellen, dass während der gesamten Prozedur stets der gleiche Druck und auch der gleiche Gasdurchfluss in den Infrarotspektrometern herrscht.

Die Gasbeladung der Luft  $Y$  wird mit Hilfe des Drucks  $p$  anhand der Taupunkttemperatur  $\vartheta_{dp}$  in Abhängigkeit des Satttdampfdrucks  $p_{sat}$  wie folgt bestimmt:

$$Y = \frac{\tilde{M}_w p_{sat}(\vartheta_{dp})}{\tilde{M}_g (p - p_{sat}(\vartheta_{dp}))}. \quad (3.4)$$

Der von der Taupunkttemperatur abhängige Satttdampfdruck wird nach der Antoine-Gleichung (siehe Gleichung (A.56)) ermittelt.

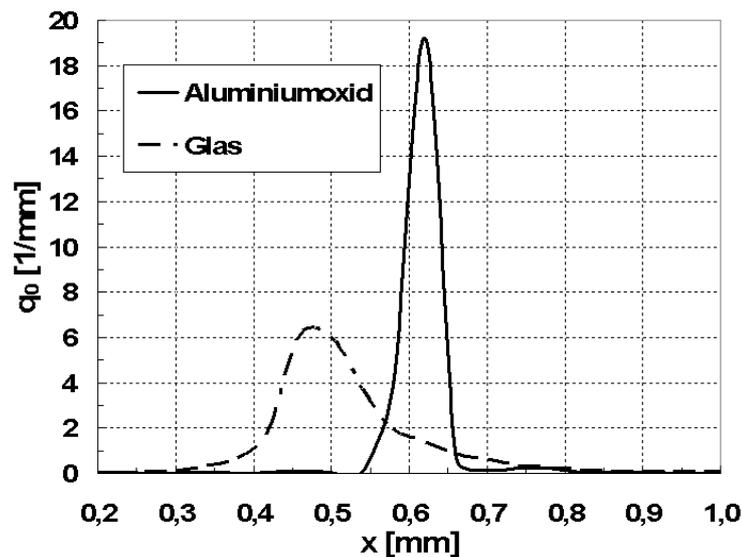
### 3.3 Versuchsmaterialien

Die unterschiedlichen Prozessvarianten erforderten unterschiedliche Versuchsmaterialien für die Granulationsversuche. Deshalb wurden drei unterschiedliche Feststoffe als Primärpartikel verwendet. Als Beschichtungsmaterial wurde aber für alle Versuche die gleiche Lösung für die Aufbaugranulation eingedüst.

#### 3.3.1 Eigenschaften der Primärpartikel

Bei der Prozessvariante der diskontinuierlichen Granulation wurden Versuche mit zwei verschiedenen Ausgangsmaterialien durchgeführt. Die zwei Materialien sollten sich deutlich voneinander abgrenzen, um deren Einfluss auf den Granulationsprozess abschätzen zu können. Neben porösem  $\gamma$ -Aluminiumoxid wurden deshalb unporöse Glaspartikel als Primärpartikel benutzt.

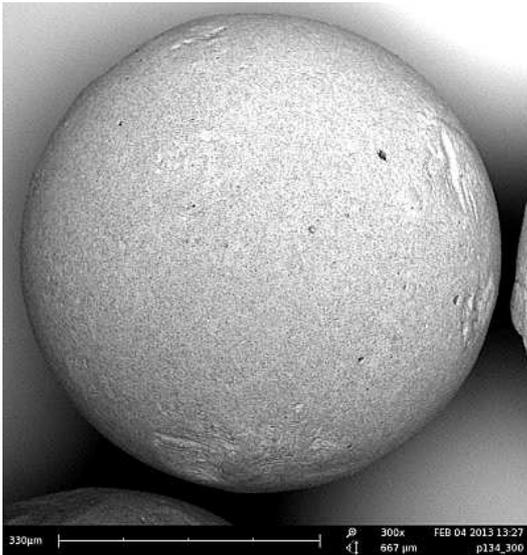
Das verwendete  $\gamma$ -Aluminiumoxid (Hersteller: Sasol Germany GmbH) besitzt eine Reinheit von circa 98 %. Es wird in der Industrie als Trägermaterial für Katalysatoren und als Adsorbens verwendet. Durch seinen Herstellungsprozess durch die Dehydratisierung von Aluminiumhydrat bei Temperaturen im Bereich von 450 bis 850 °C entsteht eine kubischraumzentrierte Kristallmodifikation (Holleman und Wiberg, 1985). Die gebildeten Kristalle werden dann zu Granulaten unterschiedlichster Größe geformt. Dies wird durch das Verfahren der Sprühgranulation und anschließender Sinterung erreicht. Die so gebildeten Partikel besitzen eine hohe Sphärizität von 0,97 und eine ebenfalls hohe Porosität von 67,4 %. Die wasserunlöslichen Partikel sind außerdem sehr hygroskopisch.



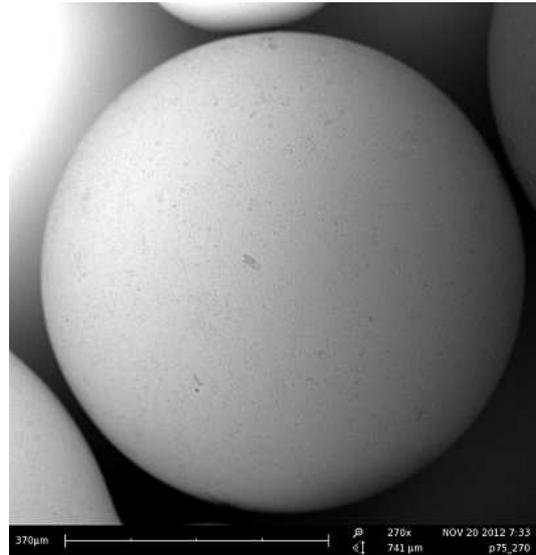
**Abbildung 3.14:** Darstellung der Partikelgrößendichteverteilung für  $\gamma$ -Aluminiumoxid und Glas

Die verwendeten Glaspartikel (Hersteller: Sigmund Lindner GmbH) werden in der Industrie häufig für die Oberflächenbearbeitung eingesetzt und sind aus Quarzsand hergestellt. Außer im mittleren Partikeldurchmesser gibt es Unterschiede in der Breite der Verteilungen für die beiden Stoffe. Die Standardabweichung für Glas ist wesentlich größer als die für  $\gamma$ -Aluminiumoxid. Die Partikelgrößenverteilungen der Primärpartikel aus  $\gamma$ -Aluminiumoxid und Glas sind in Abbildung 3.14 dargestellt. Die Sphärizität der Glaspartikel ist mit 0,94 ähnlich hoch wie die der  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikel. Beide Partikelmaterialien entsprechen der Gruppe *B* der Geldart-Klassifizierung für Gas-Feststoff-Wirbelschichten. Ihre Fluidisierung ist durch eine gute Durchmischung gekennzeichnet (Geldart, 1973). In den Abbildungen 3.15 und 3.16 werden REM-Aufnahmen von jeweils einem einzelnen Primärpartikel gezeigt. Auch in diesen Aufnahmen ist ein deutlicher Unterschied zwischen den zwei Materialien zu erkennen. Die Glaspartikel zeigen eine glattere Oberfläche, welche zudem keinerlei Poren aufweist. Die  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikel zeigen kleine Unebenheiten an der Oberfläche sowie einzelne Poren. In beiden Aufnahmen ist die nahezu ideale runde Form der Partikel ersichtlich.

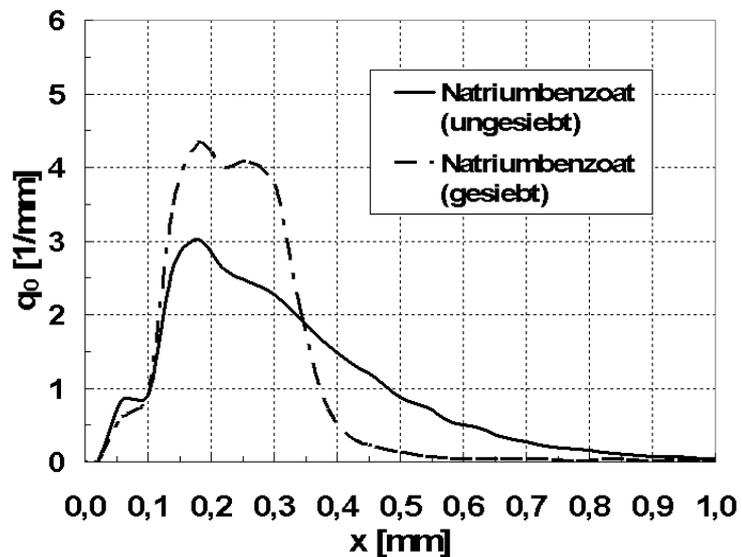
Für die kontinuierlichen Granulationsversuche sollten die Primärpartikel aus dem selben Material bestehen wie das Beschichtungsmaterial. Deshalb wurde ausschließlich Natriumbenzoat in granularer Form (Hersteller: DSM) als Primärpartikel für diese Versuche verwendet. Großtechnisch wird Natriumbenzoat häufig als Konservierungsstoff (E211) in der Lebensmittelindustrie eingesetzt. Es findet aber auch Anwendung in der Kosmetik- und in der Pharmaindustrie. Hergestellt wird das weiße organische Salz aus der Benzoesäure. Der Schmelzpunkt von Natriumbenzoat liegt bei  $420^\circ\text{C}$ , zudem besitzt Natriumbenzoat mit  $660\text{ gl}^{-1}$  eine sehr gute Wasserlöslichkeit (GESTIS-Stoffdatenbank, 2012). Die Ausgangsverteilung von granuliertem Natriumbenzoat ist sehr breit (siehe Abbildung 3.17), deshalb wurde die Breite der Ausgangsfraktion durch eine zusätzliche Siebung weiter verringert.



**Abbildung 3.15:** Raster-elektronenmikroskopaufnahme eines  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikels

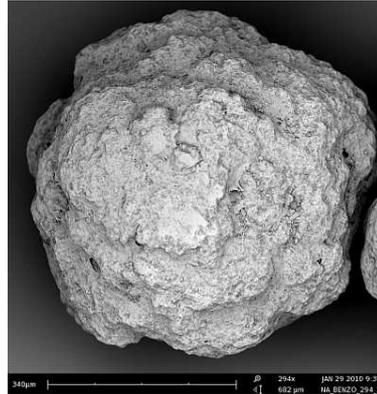


**Abbildung 3.16:** Raster-elektronenmikroskopaufnahme eines Glaspartikels



**Abbildung 3.17:** Darstellung der Partikelgrößendichteverteilung für Natriumbenzoat

In der Abbildung 3.18 wird analog zu den REM-Aufnahmen von  $\gamma$ -Aluminiumoxid und Glas ein Primärpartikel bestehend aus Natriumbenzoat gezeigt. Die Aufnahme zeigt, dass die Partikel ebenfalls eine recht runde Form aufweisen, allerdings beträgt ihre Sphärizität nur 0,92. Die Oberfläche ist geschlossen, zeigt aber verglichen mit den anderen beiden Materialien die größten Unebenheiten auf.



**Abbildung 3.18:** Rasterelektronenmikroskopaufnahme eines Natriumbenzoatpartikels

Die wichtigsten spezifischen Stoffeigenschaften der verwendeten Materialien für die Primärpartikel sind laut Herstellerdaten in der Tabelle 3.1 zusammengefasst.

**Tabelle 3.1:** Stoffeigenschaften der Primärpartikel ( $\gamma$ -Aluminiumoxid, Glas und Natriumbenzoat)

Eigenschaft	$\gamma - Al_2O_3$	Glas	$C_7H_5NaO_2$
Sauterdurchmesser [ $mm$ ]	0,61	0,50	0,33
Standardabweichung [ $mm$ ]	0,0164	0,0582	0,1321
Partikelsphärizität [-]	0,97	0,94	0,92
mittlerer Porendurchmesser [ $nm$ ]	4	-	-
Partikeldichte [ $kgm^{-3}$ ]	1280	2400	1440

### 3.3.2 Beschichtungsmaterial

Als Beschichtungsmaterial wurde für alle Experimente ausschließlich in Wasser gelöstes Natriumbenzoat verwendet. Die maximale Löslichkeit in Wasser liegt bei einem Massenanteil von circa 40 Ma-%. Um ein mögliches Auskristallisieren von Natriumbenzoat aus der Lösung zu vermeiden, wurde für alle Experimente der Massenanteil an Natriumbenzoat in der wässrigen Lösung auf 30 Ma-% festgelegt. Trotz des immer noch hohen Anteils an gelöstem Feststoff besitzt die Lösung eine ähnliche Viskosität wie Wasser. Mit Hilfe eines Höppler-Viskosimeters wurde eine Viskosität der Lösung von 4,4  $mPas$  (bei 20 °C) bestimmt. Eine Dichtebestimmung der Lösung ergab einen Wert von 1,130  $gcm^{-3}$  (bei 20 °C). Ein weiterer Vorteil der sehr guten Löslichkeit von Natriumbenzoat ist die einfache Reinigung von sämtlichen Maschinen- und Apparateanteilen, die mit der Lösung bzw. dem Feststoff während der Experimente in Kontakt gekommen sind.

## Kapitel 4

# Experimentelle Untersuchungen

Im Rahmen der hier vorgestellten Arbeit wurden umfangreiche experimentelle Untersuchungen zu einer Vielzahl unterschiedlicher Prozessvariationen durchgeführt. Es wurden sowohl der diskontinuierliche Granulationsprozess, als auch der kontinuierliche Granulationsprozess untersucht. In den diskontinuierlichen Versuchen soll hauptsächlich der Einfluss verschiedener Prozessparameter auf die Geschwindigkeit des Partikelwachstums untersucht werden. Speziell die thermischen Bedingungen sollen dabei im Fokus stehen. Ziel der kontinuierlichen Versuche ist es, mögliche Unterschiede in der zeitlichen Entwicklung der Partikelgrößenverteilung zwischen kontinuierlicher Granulation mit interner und externer Klassierung zu prüfen. Speziell das Auftreten von Oszillationen der Partikelgröße und die damit verbundene Prozessstabilität sind dabei von Interesse. Hierfür soll gezielt ein Prozessparameter während der Granulation sprunghaft geändert werden.

### 4.1 Chargengranulation in der Wirbelschichtlaboranlage

Die ersten zwei Versuchsreihen zur Untersuchung der diskontinuierlichen Granulation wurden in der Wirbelschichtlaboranlage *WSA 150* durchgeführt, da diese auf Grund ihrer Größe und Ausstattung verglichen mit der Wirbelschichtpilotanlage *WSA 300* die besseren Voraussetzungen bietet. Durch das Handhaben kleinerer Materialmengen und durch die kleineren Abmaße der Anlage können die Versuche schneller und mit einer höheren Genauigkeit durchgeführt werden.

#### 4.1.1 Versuchsreihe mit $\gamma$ -Aluminiumoxid als Ausgangsmaterial

In der ersten Versuchsreihe wird Natriumbenzoatlösung, die eine Zusammensetzung von 30 Ma-% besitzt, auf  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikel aufgedüst. Neben der Gaseintrittstemperatur wird auch die Eindüsungsrate variiert. Für jeden der zwei Parameter werden drei unterschiedliche Werte realisiert. Somit ergeben sich insgesamt neun verschiedene Versuchskonstellationen (*E1* bis *E9*) für die erste Versuchsreihe. Die Gaseintrittstemperatur wird von 50 °C über 80°C auf 95°C erhöht und die Eindüsungsrate von 500 g/h über 800 g/h auf 1100 g/h erhöht. Sämtliche anderen Versuchsparameter sind für alle Versuche der Reihe identisch und in Tabelle 4.1 aufgelistet. Eine Auswahl dieser Versuche ist bereits im Artikel Rieck et al. (2015) in der Fachzeitschrift *Powder Technology* erschienen. Dabei handelt es sich um die Versuche mit der sowohl höchsten, als auch mit der niedrigsten

Gaseintrittstemperatur und Eindüsungsrate ( $E1$ ,  $E3$ ,  $E7$  und  $E9$ ).

**Tabelle 4.1:** Versuchsparameter für Batch-Granulierung von  $\gamma$ -Aluminiumoxid mit Natriumbenzoat in der WSA150

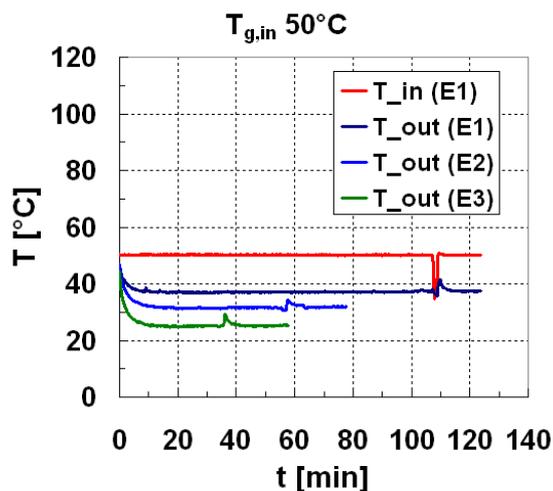
Parameter (konstant)	Symbol	Wert	Einheit
Hold-up	$M_{bed}$	0,5	$kg$
Fluidisierungsluftmassenstrom	$\dot{M}_g$	75	$kg\,h^{-1}$
Düsenluftmassenstrom	$\dot{M}_{g, nozzle}$	1,68	$kg\,h^{-1}$
Eindüsungsmasse	$M_{sus}$	1	$kg$
Feststoffanteil in der Suspension	$c_{sus}$	30	$ma\%$
Apparatedurchmesser	$d_{app}$	0,15	$m$
Anfangsfeuchtebeladung Partikel	$X_0$	0,001	$kg\,kg^{-1}$
Eintrittsfeuchtebeladung Gas	$Y_{in}$	0,001	$kg\,kg^{-1}$
mittlerer Anfangsdurchmesser	$x_{m,0}$	0,61	$mm$
Anfangsstandardabweichung	$\sigma_0$	0,0164	$mm$

Die Durchführung der Granulationsversuche gestaltet sich für alle Versuche in der gleichen Art und Weise. Vor jedem Versuch wird eine Kalibrierung der Gasfeuchtemesstechnik (Abschnitt 3.2.3) durchgeführt. Nach der Inbetriebnahme der Wirbelschichtanlage und der Messtechnik wird die Startmasse (0,5 kg) an Primärpartikeln in den Prozessraum vorgelegt. Mit Beginn der Fluidisierung wird die Anlage auf die entsprechende Gaseintrittstemperatur aufgeheizt. Nach dem sich in der Anlage eine konstante Eintrittstemperatur und Gaseintrittsfeuchte eingestellt hat, beginnt mit Start der Eindüsung die eigentliche Prozesszeit. Nach einigen Minuten stellen sich eine konstante Gasaustrittstemperatur und Gasaustrittsfeuchte ein, welche für alle Versuche in Tabelle 4.2 aufgeführt sind. Je nach Eindüsungsrate variiert die Dauer eines Versuchs. Der Versuch endet, wenn genau ein Kilogramm an Natriumbenzoatlösung eingedüst ist. Nach Beendigung der Eindüsung und nach kurzer Abkühlphase wird eine Produktprobe für die spätere Partikelgrößenanalyse aus dem Granulator entnommen.

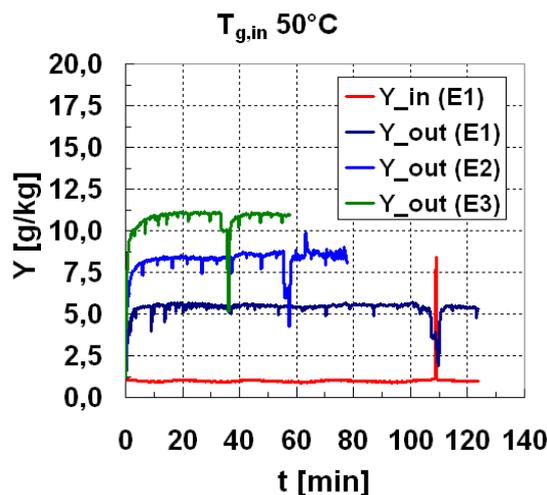
**Tabelle 4.2:** Messwerte (Experiment) für Batch-Granulierung von  $\gamma$ -Aluminiumoxid mit Natriumbenzoat in der WSA150

<i>Nr.</i>	$T_{g,in}$ [ $^{\circ}C$ ]	$T_{g,out}$ [ $^{\circ}C$ ]	$\dot{M}_{sus}$ [g/h]	$Y_{out}$ [kg/kg]	$Y_{in}$ [kg/kg]	$Y_{sat}$ [kg/kg]	$\eta$ [–]
E1	50	37,0	501	0,0056	0,0010	0,0135	0,63
E2	50	31,6	805	0,0083	0,0010	0,0135	0,42
E3	50	25,2	1121	0,0109	0,0010	0,0135	0,21
E4	80	65,8	504	0,0052	0,0010	0,0222	0,80
E5	80	58,4	801	0,0080	0,0010	0,0222	0,67
E6	80	51,4	1128	0,0107	0,0010	0,0222	0,54
E7	95	80,0	500	0,0053	0,0010	0,0269	0,83
E8	95	72,4	820	0,0081	0,0010	0,0269	0,73
E9	95	65,4	1084	0,0106	0,0010	0,0269	0,63

Beim Vergleich zwischen den einzelnen Versuchen fällt zum einen auf, dass durch die Erhöhung der Eindüsung bei gleich bleibender Gaseintrittstemperatur die Gasaustrittstemperatur entsprechend absinkt. Zum anderen ähneln sich die Werte für die Gasaustrittsbeladungen bei gleicher Eindüsungsrates, trotz unterschiedlicher Gaseintrittstemperaturen. Außerdem ist die Gaseintrittsbeladung für alle Versuche identisch, da die Fluidisierungsluft aus dem örtlichen Druckluftnetz entnommen wird. Des Weiteren sind die fast identischen Werte für das dimensionslose Trocknungspotenzial auffällig, die sich für die Versuche *E1*, *E5* und *E9*, trotz sehr unterschiedlicher Eintrittstemperaturen und Eindüsungsrates, ergeben. In den Abbildungen 4.1 und 4.2 sind exemplarisch die Gasaustrittstemperaturverläufe und Gasaustrittsfeuchteverläufe für alle Versuche bei 50°C Gaseintrittstemperatur dargestellt. Mit Beginn des Versuchs und einsetzender Eindüsung sinkt die Temperatur ab und die Gasbeladung der Abluft steigt. Nach circa zehn Minuten stellt sich jeweils ein konstanter Wert ein. Diese Werte sind in Tabelle 4.2 für alle Experimente der Versuchsreihe aufgeführt.



**Abbildung 4.1:** Zeitlicher Verlauf der Gasaustrittstemperatur für die Versuche E1, E2 und E3



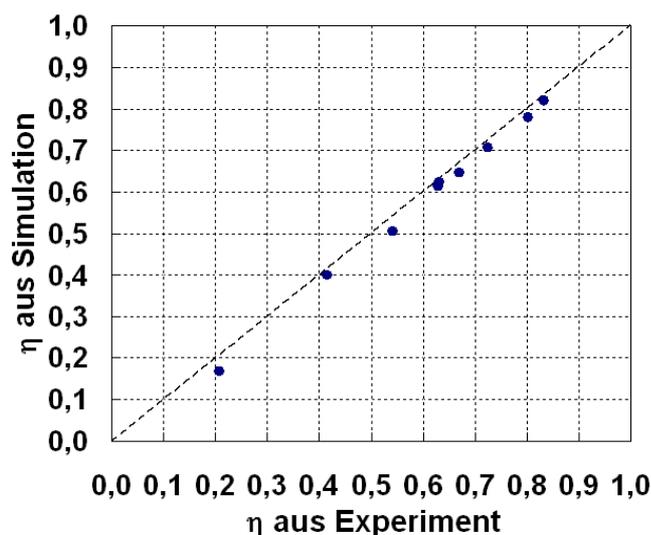
**Abbildung 4.2:** Zeitlicher Verlauf der Gasaustrittsbeladung für die Versuche E1, E2 und E3

Bei einigen Versuchen war es erforderlich, den Prozess kurzzeitig für die Reinigung der Zweistoffdüse zu unterbrechen. Dies erkennt man an den Unregelmäßigkeiten in den Verläufen für die Gasaustrittstemperatur und die Gasaustrittsbeladung (Abbildungen 4.1 und 4.1). Die Fluidisierung mit Prozessluft wurde kurz gestoppt, die Anlage geöffnet und die Zweistoffdüse von Anhaftungen befreit. Danach wurde die Anlage wieder geschlossen und mit dem Wiedereinschalten der Fluidisierung der Prozess fortgeführt. Während der Unterbrechungen kommt es zu Abweichungen vom sonst konstanten Verlauf. Diese Abweichungen wurden bei der Berechnung der Eindüsungsrates aus eingedüster Menge und Versuchsdauer berücksichtigt. Für alle durchgeführten Experimente wurden die theoretischen Verläufe für die Gasaustrittstemperatur und für die Gasaustrittsbeladung mit den experimentell bestimmten Eintrittsbedingungen berechnet. Die Simulationsergebnisse sind in der Tabelle 4.3 aufgeführt.

**Tabelle 4.3:** Berechnete Werte (Simulation) für Batch-Granulierung von  $\gamma$ -Aluminiumoxid mit Natriumbenzoat in der WSA150

Nr.	$T_{g,in}$ [°C]	$T_{g,out}$ [°C]	$\dot{M}_{sus}$ [g/h]	$Y_{out}$ [kg/kg]	$Y_{in}$ [kg/kg]	$Y_{sat}$ [kg/kg]	$\eta$ [-]
E1	50	37,9	501	0,0057	0,0010	0,0135	0,62
E2	50	31,9	805	0,0085	0,0010	0,0135	0,40
E3	50	25,6	1121	0,0114	0,0010	0,0135	0,17
E4	80	67,6	504	0,0057	0,0010	0,0222	0,78
E5	80	60,5	801	0,0085	0,0010	0,0222	0,65
E6	80	52,7	1128	0,0115	0,0010	0,0222	0,50
E7	95	82,4	500	0,0057	0,0010	0,0269	0,82
E8	95	74,7	820	0,0086	0,0010	0,0269	0,71
E9	95	69,3	1084	0,0110	0,0010	0,0269	0,61

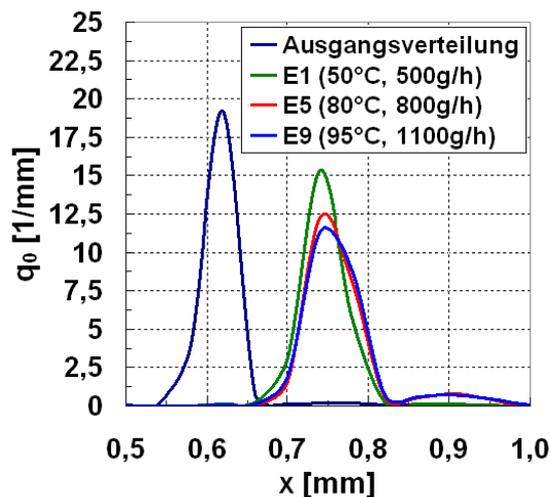
Der Vergleich zwischen den Werten aus den Experimenten und den Simulationen zeigt nur geringe Abweichungen. Allerdings liegen die Gasaustrittstemperaturen als auch die Gasaustrittsbeladungen aus den Simulationen leicht über denen aus den Experimenten (siehe Tabelle 4.3). Die etwas höheren Werte für die Gasaustrittsbeladungen führen dazu, dass das dimensionslose Trocknungspotenzial in den Simulationen knapp unter dem im Experiment liegt. Die Abweichungen für die Gasaustrittstemperatur zwischen Experiment und Simulation könnten auf Wärmeverluste zurückgeführt werden, die im Experiment auftreten, in der Simulation allerdings nicht berücksichtigt werden.



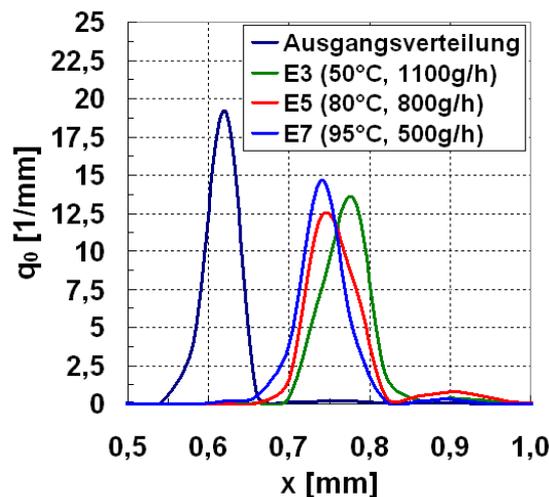
**Abbildung 4.3:** Vergleich der dimensionslosen Trocknungspotenziale aus Experiment und Simulation für die erste Versuchsreihe mit  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikeln

Zur Bewertung des Partikelwachstums wurden die Partikelgrößenverteilungen am Ende eines jeden Experiments mittels Camsizer (Abschnitt 4.3) bestimmt und mit der Partikelgrößenverteilung der vorgelegten Keime verglichen. Für alle Versuche ist eine deutliche Verschiebung der Ausgangsverteilung hin zu größeren Partikelklassen zu erkennen. Ebenso liegt in allen Fällen die Peakhöhe der Endverteilung unter der Höhe der Ausgangsverteilung. Das bedeutet, dass die Breite der Partikelgrößenverteilung im Laufe des Granulationsprozesses ständig zunimmt. In Abbildung 4.4 sind die Partikelgrößenverteilungen für die Experimente *E1*, *E5* und *E9* aufgetragen. Die Verschiebung der Ausgangsverteilung durch das Partikelwachstum ist für alle drei Experimente nahezu gleich. Das bedeutet, dass die Prozessbedingungen für das Partikelwachstum in den drei Experimenten, trotz unterschiedlicher Eindüsungsraten und Gaseintrittstemperaturen, ähnlich sind. Betrachtet man dazu die fast identischen Werte für das dimensionslose Trocknungspotenzial für diese drei Experimente, ergibt sich ein eindeutiger Zusammenhang. In der Abbildung 4.5 sind die Partikelgrößenverteilungen für die Experimente *E3*, *E5* und *E7* dargestellt. Hier erkennt man deutliche Unterschiede in der Verschiebung der Ausgangsverteilung durch das Partikelwachstum. Die größte Verschiebung der Partikelgrößenverteilung ergibt sich für das Experiment *E3* und die kleinste Verschiebung für das Experiment *E7*. Übertragen auf die Prozessbedingungen, unter denen das Partikelwachstum statt fand, bedeutet das, dass auch diese sich stark unterscheiden. Diesen Unterschied erkennt man auch wieder an

den Werten für das dimensionslose Trocknungspotenzial der jeweiligen Experimente.

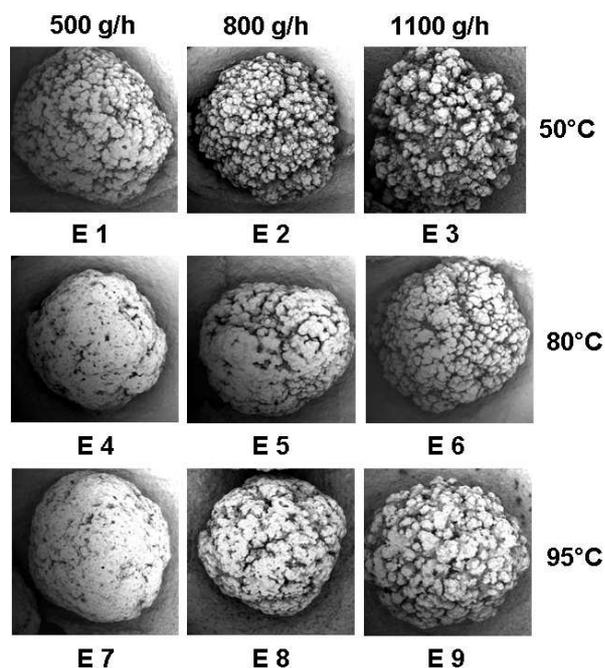


**Abbildung 4.4:** Partikelgrößenverteilungen zum Zeitpunkt  $t = t_{end}$  für die Versuche  $E1$ ,  $E5$  und  $E9$



**Abbildung 4.5:** Partikelgrößenverteilungen zum Zeitpunkt  $t = t_{end}$  für die Versuche  $E3$ ,  $E5$  und  $E7$

Der Vergleich der finalen Partikelgrößenverteilungen aus der ersten Versuchsreihe zeigt, dass trotz gleicher Ausgangspartikelgrößenverteilung, gleicher Anfangsmasse und identischer Eindüsungsmasse, allein durch die Variation der Eindüsungsrates und der Eintrittstemperatur unterschiedliche Partikelgrößen und somit unterschiedliche Wachstumsbedingungen erzeugt werden können. Mit dem Wert für das dimensionslose Trocknungspotenzial kann die Stärke des Partikelwachstums abgeschätzt werden. Je größer der Wert, desto kleiner ist das Wachstum. Die unterschiedlichen Wachstumsbedingungen führen zur Granulation von unterschiedlichen Partikelgrößen. Mit Hilfe von Rasterelektronenmikroskopaufnahmen (siehe Abschnitt 3.2.2.1) werden diese Unterschiede ebenfalls sehr eindeutig. In Abbildung 4.6 wird für alle Experimente der ersten Versuchsreihe jeweils eine Aufnahme von einem repräsentativen Einzelpartikel gezeigt. Man erkennt deutlich die für die Wirbelschichtsprühgranulation typische sphärische Partikelform. Am auffälligsten sind aber die Unterschiede in der Partikeloberflächenstruktur zwischen den einzelnen Aufnahmen. So erscheint die Partikeloberfläche mal sehr geschlossen und kompakt (Versuch  $E7$ ), mal erscheint sie rau und stark porös (Versuch  $E3$ ). Außerdem bestehen zwischen einigen Partikeloberflächen große Ähnlichkeiten (Versuche  $E1$ ,  $E5$  und  $E9$ ).



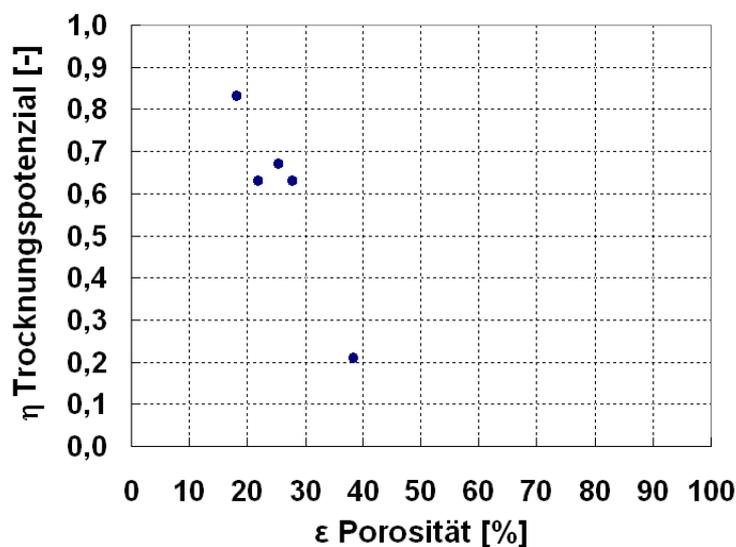
**Abbildung 4.6:** Übersicht von REM-Aufnahmen aus den Versuchen *E1* bis *E9* für typische Partikeloberflächenstrukturen

Mit den unterschiedlichen Partikelstrukturen lassen sich auch die unterschiedlichen Partikelgrößenverteilungen erklären. Die Versuche mit einem größeren Partikelwachstum weisen eine eindeutig porösere Partikelstruktur auf. Ebenso besitzen die Partikel bei ähnlichem Partikelwachstum, welches bei gleichen Werten für das dimensionslose Trocknungspotenzial auftritt, trotz unterschiedlicher Gaseintrittstemperaturen und Eindüsungsraten ähnliche Oberflächenstrukturen. Die genaue Bestimmung der Porosität der Granulathülle ist mit der Rasterelektronenspektroskopie nicht möglich. Deshalb wird mittels der Röntgentomographie (Abschnitt 3.2.2.2) die Bestimmung der Porosität der Partikelhülle durchgeführt. Da die Messmethode der Röntgentomographie sehr zeitaufwendig ist, wurden anhand der Rasterelektronenmikroskopaufnahmen nur fünf der neun Proben untersucht. Es wurden die vier Eckversuche (*E1*, *E3*, *E7* und *E9*) und der Zentrumsversuch (*E5*) für die Messung ausgewählt. Die Ergebnisse der Röntgentomographie sind in der Tabelle 4.4 aufgeführt.

**Tabelle 4.4:** Porositätsbestimmung für die Batch-Granulierung von  $\gamma$ -Aluminiumoxid mit Natriumbenzoat in der WSA150

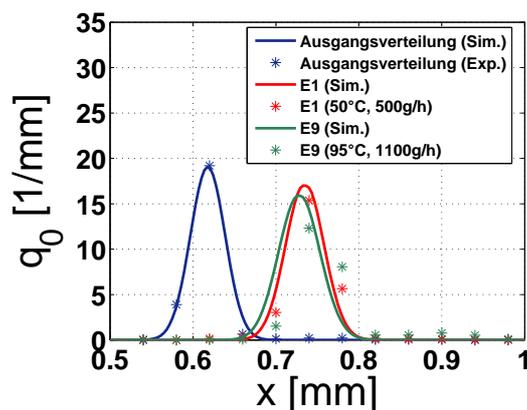
Versuchsbezeichnung	Porositätsmessung in %	Varianz in %
E1 (50°C, 500g/h)	21,9	0,53
E3 (50°C, 1100g/h)	38,3	2,80
E5 (80°C, 800g/h)	25,5	0,96
E7 (95°C, 500g/h)	18,3	0,21
E9 (95°C, 1100g/h)	27,9	4,28

Das Ergebnis der Röntgentomographie entspricht den Erwartungen aus den Rasterelektronenmikroskopaufnahmen. Das Partikel mit der rauhesten Oberfläche (*E3*) besitzt auch die größte Porosität und das mit der kompaktesten Oberfläche die kleinste Porosität (*E7*). Die Versuche *E1*, *E5* und *E9* mit ähnlicher Partikelstruktur zeigen leichte Abweichungen für den Wert der Porosität der Partikelhülle. In der Abbildung 4.7 wurden die Werte für das dimensionslose Trocknungspotenzial über die gemessene Porosität aufgetragen. Für die Versuche *E1*, *E3*, *E5*, *E7* und *E9* ergibt sich ein linearer Zusammenhang zwischen dem dimensionslosen Trocknungspotenzial und der Porosität der Partikelhülle. Mit sinkendem Trocknungspotenzial steigt die Porosität an.

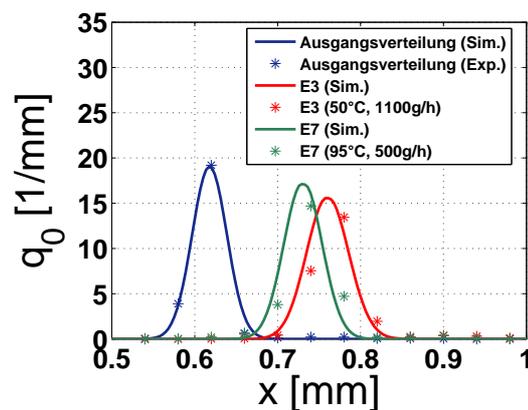


**Abbildung 4.7:** Zusammenhang zwischen den dimensionslosen Trocknungspotenzialen und den gemessenen Porositäten der Partikelhülle für die erste Versuchsreihe mit  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikeln

Mit dem im Abschnitt 2.1.2.1 beschriebenen Populationsbilanzmodell für die absatzweise Granulation und dem experimentell ermittelten Zusammenhang zwischen Porosität und dem dimensionslosen Trocknungspotenzial wurden die Versuche *E1* bis *E9* nachgerechnet. In den Abbildungen 4.8 und 4.9 sind die jeweiligen Ergebnisse aus Simulation und Experiment der vier Eckversuche *E1*, *E9*, *E3* und *E7* gegenübergestellt. Die Approximation der Ausgangsverteilung für die Partikelgröße zeigt eine gute Übereinstimmung mit der experimentellen Ausgangsverteilung. Gleiches gilt für die Endverteilungen der Partikelgröße. Auch hier trifft die Simulation die Endwerte gut. In Abbildung 4.8 liegen die Verteilungen von *E1* und *E9* aus der Simulation bei gleichen Partikelklassen wie die experimentell ermittelten Verteilungen. Neben der Peakhöhe der simulierten Verteilungen ähneln auch die Breiten der Partikelgrößenverteilungen denen aus dem Experiment. Ebenso ist der Abstand zwischen den zwei simulierten Endverteilungen ähnlich wie der Abstand der Endverteilungen aus den entsprechenden Experimenten. Für die dargestellten Verteilungen in Abbildung 4.9 ergibt sich ein ähnliches Bild. Nicht nur dass die simulierten Verteilungen bei gleichen Partikelklassen liegen sondern auch die Peakhöhe sowie die Breite der simulierten Partikelgrößenverteilungen denen, die experimentell gemessenen wurden, entsprechen.



**Abbildung 4.8:** Partikelgrößenverteilungen für die Versuche *E1* und *E9*



**Abbildung 4.9:** Partikelgrößenverteilungen für die Versuche *E3* und *E7*

Zusammenfassend für die erste Versuchsreihe ist zu sagen, dass das Modell durch die getroffenen Annahmen verglichen mit den Experimenten *E1* bis *E9* ein gleiches Partikelwachstum prognostiziert. Die Modellannahme geht von einem linearen Wachstum der Partikelhülle aus, bei dem der eingedüste Feststoff sich kontinuierlich an der Granulatoberfläche ablagert. Diese Ablagerung erfolgt je nach den gewählten Prozessbedingungen und dem daraus resultierenden dimensionslosen Trocknungspotenzial mit einer entsprechenden Porosität. Zur Validierung der Modellannahme wurden ausschließlich die Ausgangs- und die Endverteilungen der einzelnen Experimente verwendet und die Aussage zur Linearität des Wachstums der Partikelhülle anhand der vorhandenen Ergebnisse abgeschätzt.

#### 4.1.2 Versuchsreihe mit Glas als Ausgangsmaterial

In der ersten Versuchsreihe wurde als Primärmaterial  $\gamma$ -Aluminiumoxid verwendet, welches porös und hygroskopisch ist. Um zu prüfen, ob diese Eigenschaften des  $\gamma$ -Aluminiumoxids auf den Verlauf des Partikelwachstums während der Granulation einen Einfluss haben, werden in der zweiten Versuchsreihe unporöse, nicht hygroskopische Glaspartikel als Primärmaterial verwendet. Als Granulationsmaterial wird wiederum 30 Ma-% Natriumbenzoatlösung eingedüst. Ebenso wie in der ersten Versuchsreihe wird die Gaseintrittstemperatur und die Eindüsungsrate variiert. In der zweiten Versuchsreihe (*E10* bis *E13*) werden nur die Parameterkombinationen der vier Eckpunkte aus der ersten Versuchsreihe durchgeführt. Zusätzlich wird noch ein Wiederholungsversuch (*E14*) durchgeführt. Somit ergeben sich Gaseintrittstemperaturen von 50 °C und 95°C und Eindüsungsraten von 500 g/h und 1100 g/h. Da die Glaspartikel eine höhere Dichte als die  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikel besitzen, wird der Gasmassenstrom von 75 kg/h für die zweite Versuchsreihe auf 120 kg/h erhöht. Außerdem unterscheidet sich die Ausgangspartikelgrößenverteilung der Glaspartikel von jener der  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikel. Die Ausgangsverteilung für die Glaspartikel ist wesentlich breiter und der Mittelwert der Verteilung mit 0,49 mm etwas kleiner als der Mittelwert für die  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikel. Deshalb wird die Startmasse von 0,5 kg auf 1 kg erhöht. Alle anderen Versuchsparameter sind mit denen aus der ersten Versuchsreihe identisch und in Tabelle 4.5 aufgelistet. Auch bei dieser Versuchsreihe ist eine Auswahl von Versuchen bereits im Artikel Rieck et al. (2015) erschienen. Dabei handelt es sich um

die Versuche E10 bis E13.

**Tabelle 4.5:** Versuchsparameter für Batch-Granulierung von Glas mit Natriumbenzoat in der WSA150

Parameter (konstant)	Symbol	Wert	Einheit
Hold-up	$M_{bed}$	1	kg
Fluidisierungsluftmassenstrom	$\dot{M}_g$	120	kg h <sup>-1</sup>
Düsenluftmassenstrom	$\dot{M}_{g,nozzle}$	1,68	kg h <sup>-1</sup>
Eindüsungsmasse	$M_{sus}$	1	kg
Feststoffanteil in der Suspension	$c_{sus}$	30	ma%
Apparatedurchmesser	$d_{app}$	0,15	m
Anfangsfeuchtebelastung Partikel	$X_0$	0,001	kg kg <sup>-1</sup>
Eintrittsfeuchtebelastung Gas	$Y_{in}$	0,001	kg kg <sup>-1</sup>
mittlerer Anfangsdurchmesser	$x_{m,0}$	0,50	mm
Anfangsstandardabweichung	$\sigma_0$	0,0582	mm

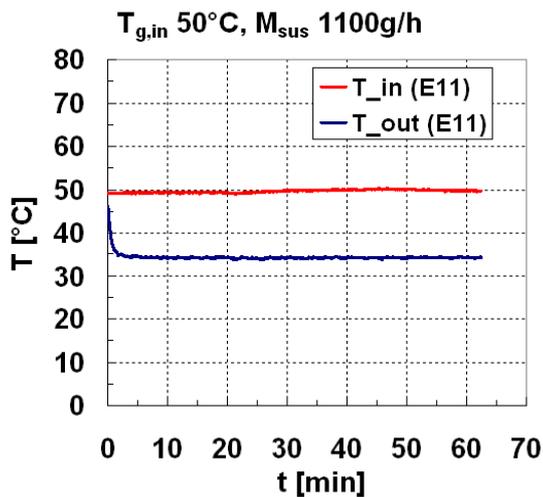
Auch die Durchführung der Experimente der zweiten Versuchsreihe gestaltet sich in gleicher Form wie in der ersten Versuchsreihe. Nach der Kalibrierung der Gasfeuchtemesstechnik (Abschnitt 3.2.3) und der Inbetriebnahme der Wirbelschichtanlage beginnt nach dem Erreichen der geforderten Gaseintrittstemperatur mit Start der Eindüsung das eigentliche Experiment. Nach wenigen Minuten stellen sich erneut eine konstante Gasaustrittstemperatur und Gasaustrittsfeuchte ein. Diese sind in Tabelle 4.6 aufgeführt. Auch diesmal ergibt sich die Versuchsdauer aus der Eindüsungsrate und der, mit einem Kilogramm für alle Versuche gleichen, Eindüsungsmasse. Ebenfalls wurde am Ende eines jeden Experiments eine Produktprobe für die Partikelgrößenanalyse entnommen.

**Tabelle 4.6:** Messwerte (Experiment) für Batch-Granulierung von Glas mit Natriumbenzoat in der WSA150

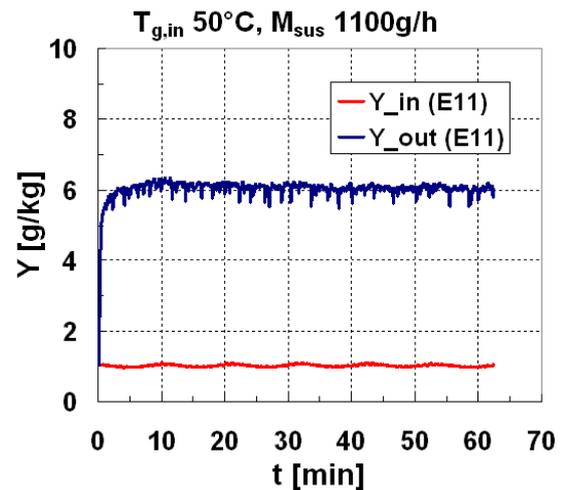
Nr.	$T_{g,in}$ [°C]	$T_{g,out}$ [°C]	$\dot{M}_{sus}$ [g/h]	$Y_{out}$ [kg/kg]	$Y_{in}$ [kg/kg]	$Y_{sat}$ [kg/kg]	$\eta$ [–]
E10	50	40,3	504	0,0038	0,0010	0,0135	0,78
E11	50	34,1	967	0,0061	0,0010	0,0135	0,59
E12	95	80,8	512	0,0036	0,0010	0,0269	0,90
E13	95	70,1	1277	0,0076	0,0010	0,0269	0,75
E14	50	40,8	500	0,0035	0,0010	0,0135	0,80

Die Messergebnisse für die Gasaustrittstemperaturen zeigen ähnliche Tendenzen wie bereits in der ersten Versuchsreihe. Bei gleich bleibender Gaseintrittstemperatur und Anstieg der Eindüsungsrate sinkt erwartungsgemäß die Gasaustrittstemperatur und die Gasaustrittsfeuchte erhöht sich. Vergleicht man die Gasaustrittsfeuchten bei unterschiedlichen Gaseintrittstemperaturen und gleichen Eindüsungsraten, kann man ähnliche Werte feststellen. Die Gaseintrittsfeuchten sind, da die Fluidisierungsluft auch für diese Versuchsreihe

aus dem lokalen Druckluftnetz entnommen wird, identisch. Des Weiteren fällt das nahezu gleiche dimensionslose Trocknungspotenzial, trotz unterschiedlicher Gaseintrittstemperaturen und Eindüsungsraten, für die Versuche *E10* und *E13* auf. Auch die Ergebnisse für den Wiederholungsversuch *E14* zeigen eine gute Übereinstimmung mit den Werten für das Experiment *E10*. In Abbildungen 4.10 und 4.11 sind exemplarisch die Temperaturverläufe und die Gasbeladungen für den Versuch *E11* dargestellt. Mit Beginn der Eindüsung sinkt die Gasaustrittstemperatur rasch ab und parallel dazu steigt die Gasaustrittsfeuchte ebenfalls rasch an. Nach circa fünf Minuten stellt sich für beide Messgrößen ein konstanter Wert ein. In der ersten Versuchsreihe stellte sich dieser erst nach etwa zehn Minuten ein. Dieser Zeitunterschied wird durch die unterschiedlichen Gasmassenströme in den zwei Versuchsreihen verursacht. Je höher der Gasdurchsatz in der Wirbelschichtanlage ist, desto schneller stellt sich der stationäre Zustand ein. Auch in dieser Versuchsreihe sind einige Unterbrechungen des Granulationsprozesses zur zwischenzeitlichen Düsenreinigung notwendig gewesen. Diese Unterbrechungen werden ebenfalls in der Bestimmung der gesamten Eindüsungsdauer berücksichtigt.



**Abbildung 4.10:** Zeitlicher Verlauf der Gasaustrittstemperatur für den Versuch *E11*



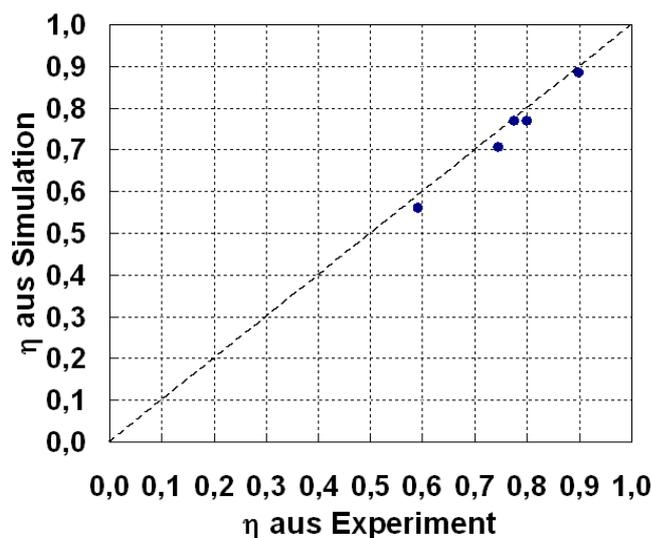
**Abbildung 4.11:** Zeitlicher Verlauf der Gasaustrittsbeladung für den Versuch *E11*

Analog zur ersten Versuchsreihe wurden auch für die zweite Versuchsreihe die theoretischen Verläufe für die Gasaustrittstemperatur und für die Gasaustrittsfeuchte berechnet. Diese Simulationsergebnisse sind in Tabelle 4.7 aufgeführt.

**Tabelle 4.7:** Berechnete Werte (Simulation) für Batch-Granulierung von Glas mit Natriumbenzoat in der WSA150

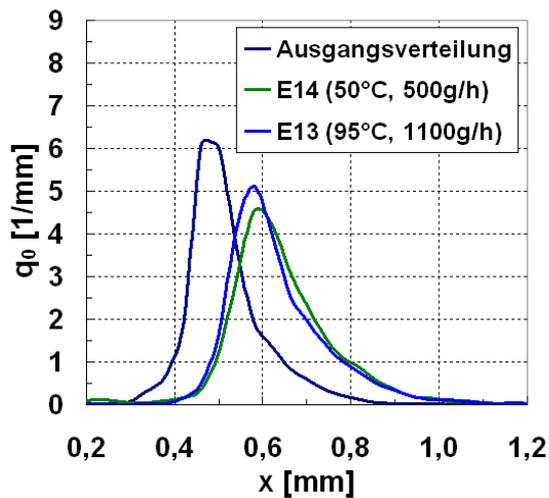
$Nr.$	$T_{g,in} [^{\circ}C]$	$T_{g,out} [^{\circ}C]$	$\dot{M}_{sus} [g/h]$	$Y_{out} [kg/kg]$	$Y_{in} [kg/kg]$	$Y_{sat} [kg/kg]$	$\eta [-]$
E10	50	42,4	504	0,0039	0,0010	0,0135	0,77
E11	50	35,7	967	0,0065	0,0010	0,0135	0,56
E12	95	86,9	512	0,0040	0,0010	0,0269	0,88
E13	95	74,8	1277	0,0086	0,0010	0,0269	0,71
E14	50	42,5	500	0,0039	0,0010	0,0135	0,77

Wie schon bei den Simulationsergebnissen für die erste Versuchsreihe gibt es nur geringe Abweichungen zu den experimentell gemessenen Werten. Auch hier liegen die Werte für die Gasaustrittstemperaturen und die Gasaustrittsfeuchten aus den Simulationen leicht über denen aus den Experimenten. Somit liegen die Werte für das dimensionslose Trocknungspotential in den Simulationen leicht unter denen aus den Experimenten (Abbildung 4.12).

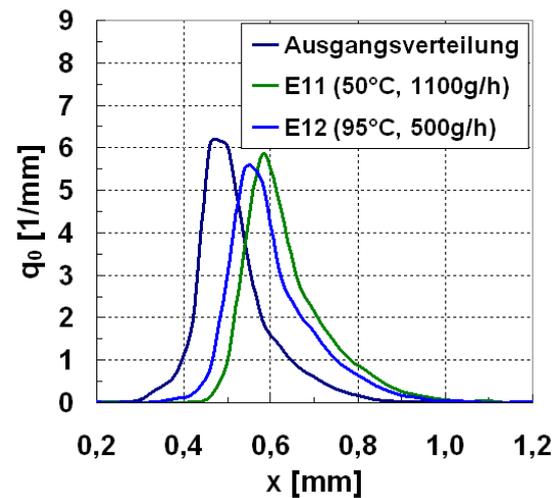
**Abbildung 4.12:** Vergleich der dimensionslosen Trocknungspotenziale aus Experiment und Simulation für die zweite Versuchsreihe mit Glaspartikeln

Die Bewertung des Partikelwachstums wurde wieder durch den Vergleich der jeweiligen Start- und Endverteilungen für die Partikelgröße durchgeführt. Zuerst lässt sich feststellen, dass für alle Experimente der zweiten Versuchsreihe ein klares Partikelwachstum, durch eine Rechtsverschiebung der Ausgangsverteilung hin zu größeren Partikelklassen, erkennbar ist. Auch die Breite aller Verteilungen war am Ende der Versuche größer als am Anfang, da die Peakhöhe der Partikelgrößenverteilung stets unter jener der Ausgangspartikelverteilung liegt. In der Abbildung 4.13 sind die Partikelgrößenverteilungen für die Experimente *E13* und *E14* dargestellt. Beide Verläufe für die Partikelgrößenverteilung

am Versuchsende sind sehr ähnlich. Das lässt vermuten, dass die Prozessbedingungen in beiden Fällen trotz unterschiedlicher Prozessparameter ähnlich sind. Dies erkennt man auch an den ähnlichen Werten für das dimensionslose Trocknungspotenzial. Die Partikelgrößenverteilungen für die Experimente *E11* und *E12* sind in Abbildung 4.14 dargestellt. Hier ist ein klarer Unterschied zwischen den beiden finalen Partikelgrößenverteilungen zu erkennen. Diese Ungleichheit findet man auch beim Vergleich der entsprechenden Werte für das dimensionslose Trocknungspotenzial wieder. Die Differenz der beiden Werte für die Versuche *E11* und *E12* ist in dieser Versuchsreihe die Größte.

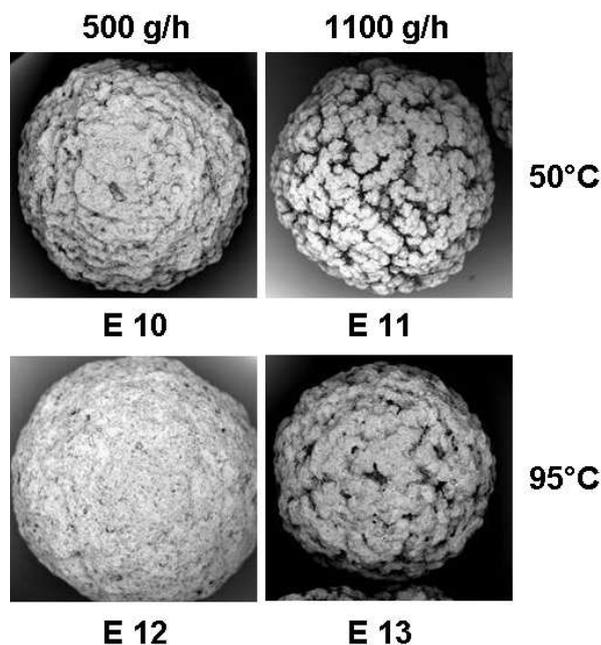


**Abbildung 4.13:** Partikelgrößenverteilungen zum Zeitpunkt  $t = t_{end}$  für die Versuche *E13* und *E14*



**Abbildung 4.14:** Partikelgrößenverteilungen zum Zeitpunkt  $t = t_{end}$  für die Versuche *E11* und *E12*

Für das Partikelwachstum in der zweiten Versuchsreihe lässt sich zusammenfassend sagen, dass trotz gleicher Ausgangspartikelgröße und gleicher Eindüsungsmasse allein die Variation der Gaseintrittstemperatur und der Eindüsungsrate zu einem unterschiedlichen Partikelgrößenwachstum führen. Es ist aber auch möglich bei verschiedenen Gaseintrittstemperaturen und Eindüsungsraten ähnliche Partikelwachstumsbedingungen zu realisieren. Genau wie in der ersten Versuchsreihe mit  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikeln zeigt sich für das Partikelgrößenwachstum der zweiten Versuchsreihe eine klare Abhängigkeit vom dimensionslosen Trocknungspotenzial des Granulatioesprozesses. Mit Hilfe von Rasterelektronenmikroskopaufnahmen (Abbildung 4.15) für die Experimente *E10* bis *E13* wird das unterschiedliche Partikelwachstum ebenfalls deutlich. Die Aufnahmen von repräsentativen Einzelpartikeln zeigen klar die Unterschiede in der Struktur der Granulathülle, die zu unterschiedlichen Partikelgrößen führen. Für den Versuch *E11* mit niedriger Gaseintrittstemperatur und hoher Eindüsungsrate ist die Partikeloberfläche sehr rau und porös. Dieser Versuch zeigt das größte Partikelwachstum. Bei hoher Gaseintrittstemperatur und niedriger Eindüsungsrate entstehen, wie in Versuch *E12*, sehr kompakte Partikeloberflächen. Der aufgedühte Feststoff liegt dabei kompakter und die Partikelhülle ist dadurch dünner als für raue und poröse Partikel. Dieser Unterschied im Aufbau der Granulathülle führt zu unterschiedlichen Partikelgrößen. Analog zur ersten Versuchsreihe zeigen die Partikel aus den Versuchen *E10* und *E13*, die ein ähnliches dimensionsloses Trocknungspotenzial aufweisen, ähnliche Partikeloberflächenstrukturen auf.



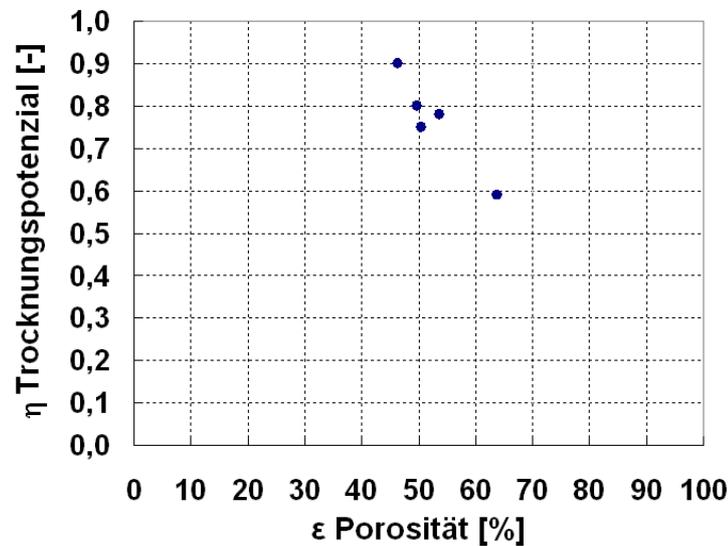
**Abbildung 4.15:** Übersicht von REM-Aufnahmen aus den Versuchen *E10* bis *E13* für typische Partikeloberflächenstrukturen

Die Rasterelektronenmikroskopaufnahmen liefern erste Hinweise für das unterschiedliche Partikelgrößenwachstum. Für die genaue Bestimmung der Porositäten der Granulathülle wird die in Abschnitt 3.2.2.2 beschriebene Röntgentomographie genutzt. Die Messergebnisse dieser Untersuchung sind in der Tabelle 4.8 für die zweite Versuchsreihe aufgeführt.

**Tabelle 4.8:** Porositätsbestimmung für die Batch-Granulierung von Glas mit Natriumbenzoat in der WSA150

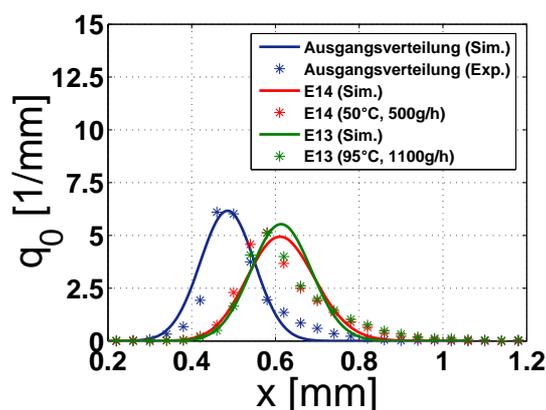
Versuchsbezeichnung	Porositätsmessung in %	Varianz in %
E10 (50°C, 500g/h)	53,7	2,99
E11 (50°C, 1100g/h)	63,8	2,18
E12 (95°C, 500g/h)	46,3	0,70
E13 (95°C, 1100g/h)	50,4	1,23
E14 (50°C, 500g/h)	49,7	1,65

Wie erwartet zeigt die Porositätsmessung für die rauesten Partikel mit 63,8% den höchsten Wert. Für die kompakten Partikel ergibt die Porositätsmessung einen Wert von 46,3 %. Die Porositätsmessung der Partikel mit ähnlicher Oberflächenstruktur ergibt ebenfalls ähnliche Werte. In der Abbildung 4.16 wurden die Werte für das dimensionslose Trocknungspotenzial über die gemessene Porosität aufgetragen. Mit sinkendem Trocknungspotenzial steigt die Porosität an.

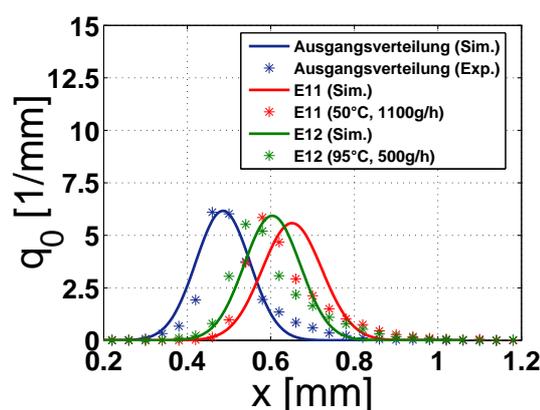


**Abbildung 4.16:** Zusammenhang zwischen den dimensionslosen Trocknungspotenzialen und den gemessenen Porositäten der Partikelhülle für die zweite Versuchsreihe mit Glaspartikeln

Für die Versuche *E10*, *E11*, *E12*, *E13* und *E14* ergibt sich ein linearer Zusammenhang zwischen dem dimensionslosen Trocknungspotenzial und der Porosität der Granulathülle. Mit dem im Abschnitt 2.1 beschriebenen Modellansatz für den Verlauf des Partikelwachstums und dem experimentell ermittelten Zusammenhang zwischen Porosität und dem dimensionslosen Trocknungspotenzial wurden alle Versuche der zweiten Versuchsreihe nachgerechnet. In den Abbildungen 4.17 und 4.18 sind die jeweiligen Ergebnisse aus Simulation und Experiment der Versuche *E11*, *E12*, *E13* und *E14* gegenübergestellt. Beim Vergleich zwischen den Partikelgrößenverteilungen für die Experimente und den entsprechenden Simulationen treten einige Abweichungen auf. Diese Abweichung entsteht dadurch, dass die Ausgangsverteilung in der Modellierung als normal verteilte Funktion angenommen wird. Für die real gemessenen Verteilungen im Experiment ist dies aber nicht ganz zutreffend. Diese Abweichung zieht sich dann durch den gesamten Granulationsprozess. Trotz dieser Abweichung wird das eigentliche Partikelwachstum sehr gut beschrieben. Dies erkennt man an der Rechtsverschiebung der Verteilung, die für das Experiment und die Simulation fast identisch ist. Auch die Höhen der Verteilungen zwischen den einzelnen Experimenten und den Simulationen ähneln sich sehr.



**Abbildung 4.17:** Partikelgrößenverteilungen für die Versuche *E14* und *E13*



**Abbildung 4.18:** Partikelgrößenverteilungen für die Versuche *E11* und *E12*

Zusammenfassend für die zweite Versuchsreihe ist zu sagen, dass das Partikelwachstum des Modells durch die getroffenen Annahmen verglichen mit den Experimenten *E10* bis *E14* zutreffend beschrieben wird. Der experimentell gewonnene Ansatz zur Beschreibung der Abhängigkeit der Porosität der Partikelhülle von den vorherrschenden thermischen Prozessbedingungen liefert gute Ergebnisse für die Modellierung des Partikelwachstums. Ebenfalls werden die in der ersten Versuchsreihe gemachten Beobachtungen hinsichtlich dem Auftreten unterschiedlich strukturierter Partikelhüllen in Abhängigkeit von den thermischen Prozessbedingungen erneut bestätigt. Der Trend, dass mit steigendem Trocknungspotenzial die Granulathülle glatter und kompakter wird, gilt für beide Versuchsreihen. Der Modellansatz des linearen Wachstums der Partikelhülle liefert ähnlich gute Ergebnisse wie schon in der ersten Versuchsreihe.

## 4.2 Chargengranulation in der Wirbelschichtpilotanlage

Die ersten zwei experimentellen Versuchsreihen wurden in der Wirbelschichtlaborgranulationsanlage *WSA150* (Abschnitt 3.1.1) durchgeführt. Mit der dritten experimentellen Versuchsreihe soll überprüft werden, ob sich die bisher gewonnenen Erkenntnisse auch auf größere Prozessanlagen übertragen lassen. Für das Scale-up wird eine Wirbelschichtpilotgranulationsanlage *WSA300* (Abschnitt 3.1.2) verwendet, deren Prozesskammerdurchmesser doppelt so groß ist, wie der Durchmesser der Wirbelschichtlaborgranulationsanlage *WSA150*. Zur besseren Vergleichbarkeit werden die identischen Versuchsmaterialien wie in der ersten Versuchsreihe verwendet. Es wird erneut Natriumbenzoatlösung mit einer Konzentration von 29,5 Ma-% auf  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikel gesprüht. Im Vergleich zu dem in der ersten Versuchsreihe verwendeten  $\gamma$ -Aluminiumoxid gibt es leichte Unterschiede für die Anfangswerte des mittleren Partikeldurchmessers und für die Standardabweichung der Anfangspartikelverteilung, welche in Tabelle 4.9 aufgeführt sind. Die Ursache dafür liegt in der Verwendung einer neuen Produktcharge des Herstellers (Sasol Germany GmbH). In dieser dritten Versuchsreihe werden die Prozessparameter Gaseintrittstemperatur und Flüssigkeitseindüsungsrate abermals unterschiedlich variiert. So wird jeweils ein Versuch bei einer Gaseintrittstemperatur von 80°C, 90°C und 100°C und einer Eindüsungsrate von

8,4 kg/h durchgeführt. Ein weiterer Versuch wird bei einer Gaseintrittstemperatur von 80°C und einer Eindüsungsrate von 7 kg/h durchgeführt. Somit ergeben sich für diese Versuchsreihe vier einzelne Experimente (*E15* bis *E18*). Die Prozessdurchführung in der größeren Versuchsanlage erfordert zusätzlich die Anpassung weiterer Prozessparameter. So wird die Startmasse auf 6 kg und die Eindüsungsmasse auf 12 kg erhöht, der Fluidisierungsluftmassenstrom beträgt jetzt 550 kg/h und der Düsenluftmassenstrom wurde ebenfalls auf 25,92 kg/h erhöht. In Tabelle 4.9 sind Prozessparameter, welche in allen Experimenten der dritten Versuchsreihe konstant gehalten wurden, aufgelistet.

**Tabelle 4.9:** Versuchsparameter für Batch-Granulierung von  $\gamma$ -Aluminiumoxid mit Natriumbenzoat in der WSA300

Parameter (konstant)	Symbol	Wert	Einheit
Hold-up	$M_{bed}$	6	kg
Fluidisierungsluftmassenstrom	$\dot{M}_g$	550	kg h <sup>-1</sup>
Düsenluftmassenstrom	$\dot{M}_{g, nozzle}$	25,92	kg h <sup>-1</sup>
Eindüsungsmasse	$M_{sus}$	12	kg
Feststoffanteil in der Suspension	$c_{sus}$	29,5	ma%
Apparatedurchmesser	$d_{app}$	0,3	m
Anfangsfeuchtebeladung Partikel	$X_0$	0,001	kg kg <sup>-1</sup>
mittlerer Anfangsdurchmesser	$x_{m,0}$	0,66	mm
Anfangsstandardabweichung	$\sigma_0$	0,0295	mm

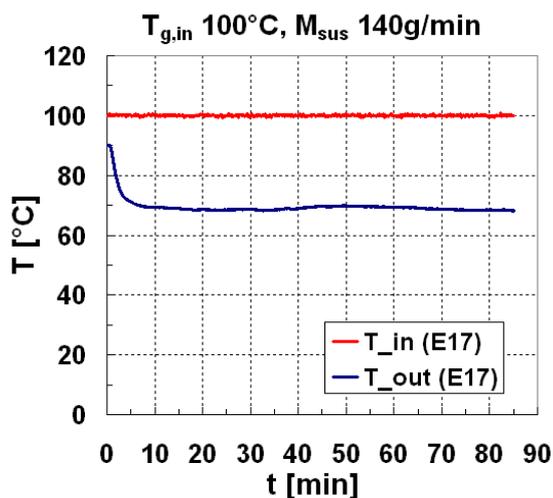
Bei der Durchführung der Versuche wurde trotz des etwas anderen Handlings der größeren Versuchsanlage darauf geachtet, die gleichen Teilschritte wie in den vorangegangenen Versuchsreihen einzuhalten. Nach der Kalibrierung der Feuchtemesstechnik und der Inbetriebnahme der Versuchsanlage wird der Prozessraum mit der Startmasse von 6 kg gefüllt. Nach dem Einschalten der Fluidisierung wird das Wirbelschichtbett auf die entsprechende Gaseintrittstemperatur aufgeheizt. Nach dem Erreichen einer konstanten Gaseintrittstemperatur und Gaseintrittsfeuchte beginnt mit dem Starten der Eindüsung der eigentliche Granulationsprozess. Nach kurzer Zeit stellen sich eine konstante Gasaustrittstemperatur und Gasaustrittsfeuchte ein, welche für alle Experimente der Reihe in Tabelle 4.10 aufgeführt sind. Die Versuchsdauer variiert zwischen 85 und 104 Minuten. Sie ergibt sich aus der Eindüsungsrate und der Eindüsungsmasse. Am Ende eines jeden Experiments wird eine Produktprobe für die Partikelgrößenanalyse aus dem Prozessraum entnommen.

**Tabelle 4.10:** Messwerte (Experiment) für Batch-Granulierung von  $\gamma$ -Aluminiumoxid mit Natriumbenzoat in der WSA300

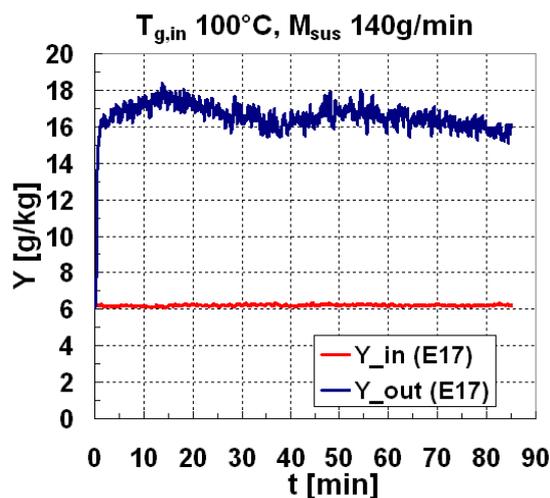
<i>Nr.</i>	$T_{g,in}$ [ $^{\circ}C$ ]	$T_{g,out}$ [ $^{\circ}C$ ]	$\dot{M}_{sus}$ [g/h]	$Y_{out}$ [kg/kg]	$Y_{in}$ [kg/kg]	$Y_{sat}$ [kg/kg]	$\eta$ [–]
E15	80	51,6	8334	0,0164	0,0061	0,0264	0,49
E16	90	59,6	8435	0,0164	0,0061	0,0294	0,56
E17	100	68,9	8531	0,0167	0,0062	0,0330	0,61
E18	80	55,7	6972	0,0154	0,0061	0,0264	0,54

Beim Vergleich zwischen den Messwerten von Versuch *E15* und Versuch *E18* fällt auf, dass bei gleicher Gaseintrittstemperatur durch die Erhöhung der Eindüsungsrate die Gasaustrittstemperatur, wie erwartet, absinkt und im Gegenzug die Gasaustrittsfeuchte dafür ansteigt. Außerdem ist die Gasaustrittsfeuchte für die Versuche *E15*, *E16* und *E17* trotz unterschiedlicher Gaseintrittstemperaturen in etwa gleich, da die Eindüsungsrate in allen drei Fällen ähnlich ist. Die Tendenzen der Messergebnisse aus dieser Versuchsreihe ähneln den der vorangegangenen Versuchsreihen. Weiterhin ist zu bemerken, dass auch in dieser Versuchsreihe die Gaseintrittsfeuchten einen fast identischen Wert aufweisen. Die Fluidisierungsluft wurde aber im Gegensatz zu den ersten zwei Versuchsreihen nicht aus dem lokalen Druckluftnetz entnommen, sondern durch einen Luftentfeuchter vorge-trocknet. Für das dimensionslose Trocknungspotenzial der Experimente *E15*, *E16* und *E17* zeigt sich, dass bei gleicher Eindüsungsrate und steigender Gaseintrittstemperatur das Potenzial leicht ansteigt. Gleiches gilt auch für die Gasaustrittstemperatur.

In den Abbildungen 4.19 und 4.20 sind exemplarisch die Verläufe für die Gasaustrittstemperatur und die Gasaustrittsfeuchte, sowie die jeweiligen Eintrittswerte vom Experiment *E17* dargestellt. Beide Messparameter erreichen nach kurzer Zeit den stationären Zustand. Während die Gasaustrittstemperatur mit Beginn der Eindüsung rasch absinkt, steigt die Gasaustrittsfeuchte im Gegenzug schnell auf einen konstanten Wert an. Auf Prozessunterbrechungen zur Düsenreinigung, wie sie bei den Experimenten in der Wirbelschichtlaborgranulationsanlage *WSA150* unvermeidlich waren, konnte in dieser Versuchsreihe auf Grund der höheren Düsenposition verzichtet werden.



**Abbildung 4.19:** Zeitlicher Verlauf der Gastemperatur für den Versuch *E17*



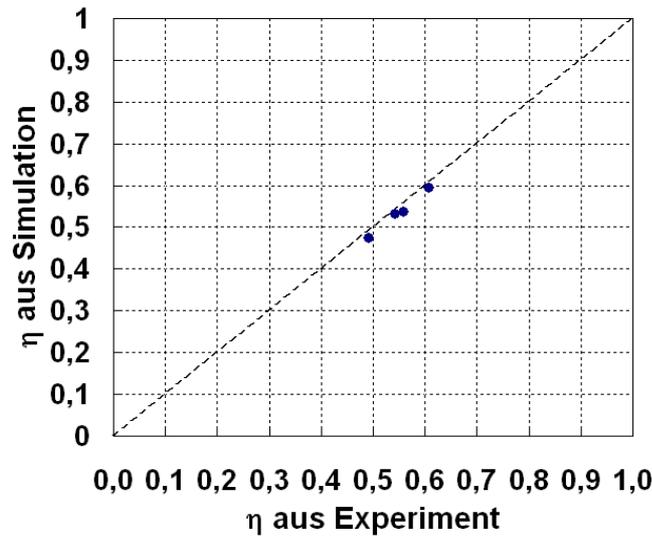
**Abbildung 4.20:** Zeitlicher Verlauf der Gasbeladung für den Versuch *E17*

Auch für die dritte Versuchsreihe wurden die theoretischen Verläufe für die Gasaustrittstemperaturen und für die Gasaustrittsfeuchten berechnet. Die Ergebnisse der einzelnen Simulationen sind in Tabelle 4.11 aufgeführt.

**Tabelle 4.11:** Berechnete Werte (Simulation) für Batch-Granulierung von  $\gamma$ -Aluminiumoxid mit Natriumbenzoat in der WSA300

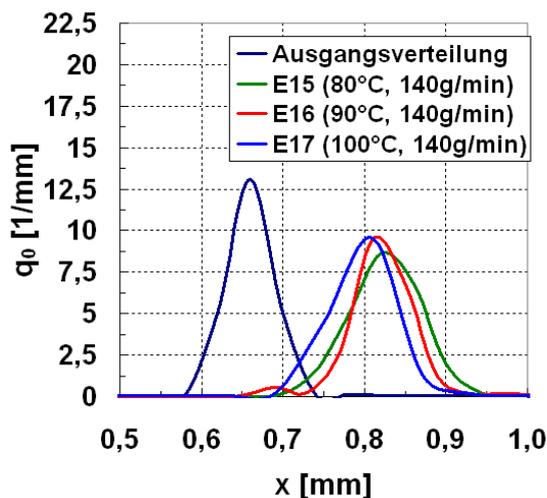
<i>Nr.</i>	$T_{g,in}$ [°C]	$T_{g,out}$ [°C]	$\dot{M}_{sus}$ [g/h]	$Y_{out}$ [kg/kg]	$Y_{in}$ [kg/kg]	$Y_{sat}$ [kg/kg]	$\eta$ [–]
E15	80	52,5	8334	0,0168	0,0061	0,0264	0,47
E16	90	61,9	8435	0,0169	0,0061	0,0294	0,54
E17	100	71,3	8531	0,0171	0,0062	0,0330	0,59
E18	80	56,8	6972	0,0156	0,0061	0,0264	0,53

Die Ergebnisse der dritten Versuchsreihe zeigen insgesamt eine ähnliche Tendenz wie bei den vorangegangenen Versuchsreihen. Die Abweichungen zwischen den Simulationsergebnissen und den experimentell gemessenen Werten sind gering (Abbildung 4.21). Teilweise liegen die Werte für die Gasaustrittstemperatur und die Gasaustrittsfeuchte in der Simulation leicht über den Werten aus den Experimenten.

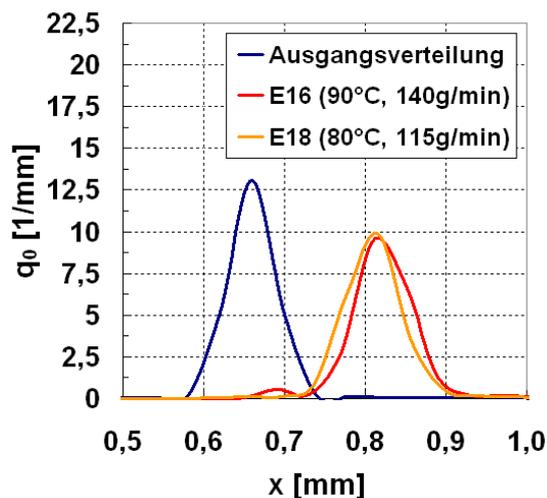


**Abbildung 4.21:** Vergleich der dimensionslosen Trocknungspotenziale aus Experiment und Simulation für die dritte Versuchsreihe mit  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikeln

Zur Bewertung des Partikelwachstums wurden wieder die Start- und die Endverteilungen für die Partikelgröße verglichen. Alle Experimente der dritten Versuchsreihe zeigen ebenfalls ein klares Partikelwachstum, welches man durch die eindeutige Rechtsverschiebung der Ausgangsverteilung hin zu größeren Partikelklassen erkennt. Auch die Breite aller Verteilungen war am Ende aller Experimente größer als am Anfang, da die Peakhöhe der Partikelgrößenverteilungen stets unter jener der Ausgangsverteilung liegt. In Abbildung 4.22 sind die Partikelgrößenverteilungen für die Experimente *E15*, *E16* und *E17* dargestellt. Zwischen den jeweiligen Endverteilungen für die Partikelgröße ist ein klarer Unterschied zu erkennen. Mit steigender Temperatur nimmt das Partikelwachstum ab und die Endverteilungen werden weniger weit zu größeren Partikelklassen verschoben. Auch in den Werten für das dimensionslose Trocknungspotenzial ist ein eindeutiger Unterschied zu erkennen. Mit steigender Temperatur nimmt das Trocknungspotenzial zu. Die Differenz der beiden Werte für die Versuche *E15* und *E17* ist in dieser Versuchsreihe die Größte. In Abbildung 4.23 sind die Partikelgrößenverteilungen für die Experimente *E16* und *E18* dargestellt. Die zwei Verläufe für die Partikelgrößenverteilung am Versuchsende zeigen eine gewisse Ähnlichkeit. Das lässt die Vermutung zu, dass die Prozessbedingungen in beiden Fällen, trotz unterschiedlicher Prozessparameter, ähnlich sind. Dies erkennt man auch an den fast identischen Werten für das dimensionslose Trocknungspotenzial.

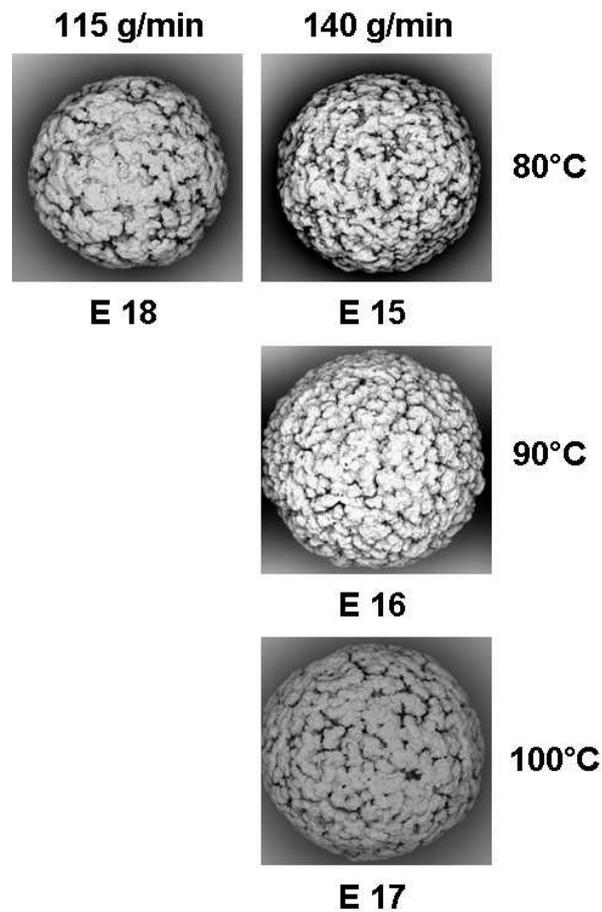


**Abbildung 4.22:** Partikelgrößenverteilungen zum Zeitpunkt  $t = t_{end}$  für die Versuche *E15*, *E16* und *E17*



**Abbildung 4.23:** Partikelgrößenverteilungen zum Zeitpunkt  $t = t_{end}$  für die Versuche *E16* und *E18*

Trotz der identischen Ausgangspartikelgröße und gleicher Eindüsungsmasse sind deutlich unterschiedliche Wachstumsraten allein durch die Variation der Gaseintrittstemperatur und der Eindüsungsraten zu erkennen (Abbildung 4.22). Es ist aber auch möglich, bei unterschiedlichen Gaseintrittstemperaturen und Eindüsungsraten ähnliche Partikelgrößen zu erreichen (Abbildung 4.23). Die Abhängigkeit des Partikelwachstums vom dimensionslosen Trocknungspotenzial wird auch in dieser Versuchsreihe bestätigt. Das unterschiedliche Partikelwachstum lässt sich auch durch Rasterelektronenmikroskopaufnahmen zeigen. In Abbildung 4.24 sind Aufnahmen von repräsentativen Einzelpartikeln für die Experimente *E15* bis *E18* gezeigt. Für das Experiment *E15* mit niedrigster Gaseintrittstemperatur und hoher Eindüsungsraten ist die Partikeloberflächenstruktur sehr rau und poröser als in den anderen Experimenten der Versuchsreihe. Gleichzeitig zeigt dieses Experiment das größte Partikelwachstum. Mit steigender Gaseintrittstemperatur wie in den Experimenten *E16* und *E17* nimmt die Rauigkeit ab, was man auch am geringeren Partikelwachstum in Abbildung 4.22 erkennt. Für die Experimente *E16* und *E18*, die ein ähnliches Partikelwachstum aufweisen, ähnelt sich auch die Partikeloberflächenstruktur.



**Abbildung 4.24:** Übersicht von REM-Aufnahmen aus den Versuchen *E15* bis *E18* für typische Partikeloberflächenstrukturen

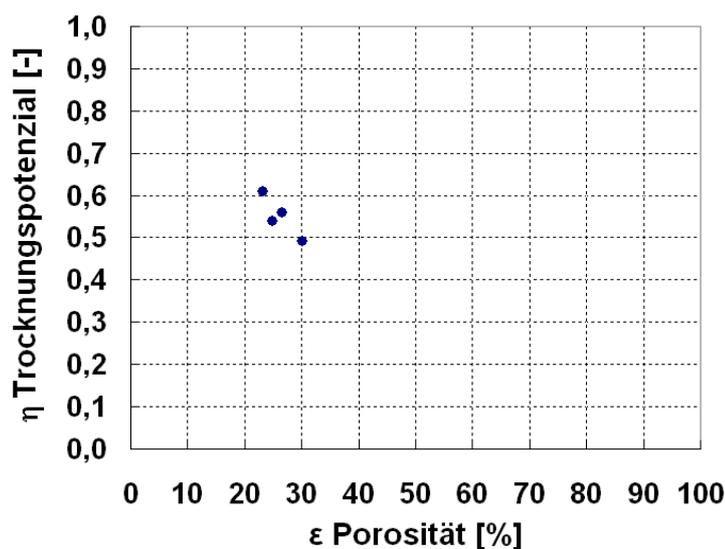
Die mit Hilfe der Rasterelektronenmikroskopaufnahmen beobachteten Strukturunterschiede führen zu einem unterschiedlichen Partikelgrößenwachstum. Für die genaue Bestimmung der Porositäten der Granulathülle wird die in Abschnitt 3.2.2.2 beschriebene Röntgentomographie genutzt. Die Messergebnisse dieser Untersuchung sind in der Tabelle 4.12 für die dritte Versuchsreihe aufgeführt.

**Tabelle 4.12:** Porositätsbestimmung für die Batch-Granulierung von  $\gamma$ -Aluminiumoxid mit Natriumbenzoat in der WSA300

Versuchsbezeichnung	Porositätsmessung in %	Varianz in %
E15 (80°C, 140g/min)	30,1	1,33
E16 (90°C, 140g/min)	26,6	1,44
E17 (100°C, 140g/min)	23,2	3,87
E18 (80°C, 115g/min)	24,9	1,90

Die Porositätsmessung für die rauesten Partikel aus Experiment *E15* haben mit 30,1 %

den höchsten Wert. Mit steigender Gaseintrittstemperatur sinkt der Wert für die Porositätsmessung auf 23,2 %. Die Porositätsmessung der Partikel mit ähnlicher Oberflächenstruktur ergibt ebenfalls ähnliche Werte. In der Abbildung 4.25 wurden die Werte für das dimensionslose Trocknungspotenzial über die gemessenen Porosität aufgetragen. Mit sinkendem Trocknungspotenzial steigt die Porosität an.



**Abbildung 4.25:** Zusammenhang zwischen den dimensionslosen Trocknungspotenzialen und den gemessenen Porositäten der Partikelhülle für die dritte Versuchsreihe mit  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikeln

Für die dritte Versuchsreihe ergibt sich ebenfalls ein linearer Zusammenhang zwischen dem dimensionslosen Trocknungspotenzial und der gemessenen Porosität der Granulathülle. Mit diesem Zusammenhang und dem in Abschnitt 2.1 beschriebenen Wachstumsmodell für die Partikelgröße wurde das Partikelwachstum für die Experimente *E15* bis *E18* nachgerechnet. In Abbildungen 4.26 und 4.27 sind die jeweiligen Ergebnisse aus der Simulation und aus dem entsprechenden Experiment gegenübergestellt. Die Ausgangsverteilung für die Partikelgröße zwischen Simulation und Experiment zeigt eine sehr gute Übereinstimmung, beim Vergleich der Endverteilungen zwischen Simulation und Experiment sind dagegen kleine Unterschiede zu erkennen. In beiden Abbildungen liegen die Verteilungen, die aus der Simulation berechnet werden, bei etwas kleineren Partikelklassen als die experimentell ermittelten Verteilungen. Auch beim Vergleich der Peakhöhen kann man kleine Abweichungen erkennen. Hier liegen die mit Hilfe der Simulation berechneten Werte leicht über den experimentell ermittelten Peakhöhen.

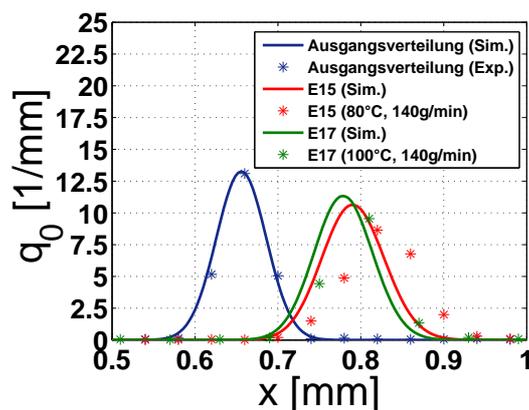


Abbildung 4.26: Partikelgrößenverteilungen für die Versuche *E15* und *E17*

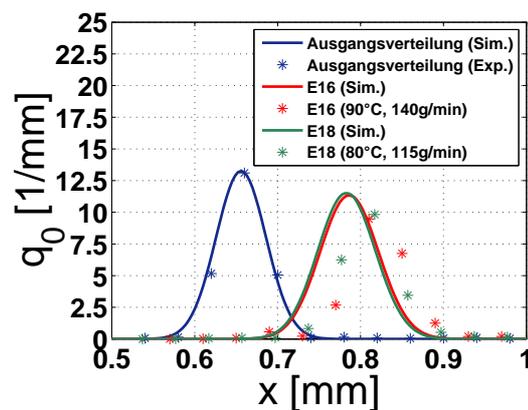


Abbildung 4.27: Partikelgrößenverteilungen für die Versuche *E16* und *E18*

Zusammenfassend für die dritte Versuchsreihe ist zu sagen, dass das Modell verglichen mit den Experimenten *E15* bis *E18* ein ähnliches Partikelwachstum beschreibt. Die Ergebnisse ähneln somit denen aus den ersten Versuchsreihen, und die Modellannahme eines linearen Wachstums der Partikelhülle, bei dem der eingedüστε Feststoff sich kontinuierlich an der Granulatoberfläche ablagert, wird dadurch erneut bestätigt. Auch die Annahme, dass die Ablagerung mit einer entsprechenden Porosität, je nach den gewählten Prozessbedingungen und dem daraus resultierenden Trocknungspotenzial, erfolgt, trifft erneut zu.

### 4.3 Kontinuierliche Granulation mit interner Klassierung in der Wirbelschichtpilotanlage

In der vierten Versuchsreihe wird die zeitliche Entwicklung der Partikelgröße für den Prozess der kontinuierlichen Wirbelschichtgranulation mit interner Klassierung untersucht. Vor allem die Stabilität des Prozesses steht dabei im Fokus. Außerdem wird die Auswirkung von einer sprunghaften Änderung der Eindüsungsrate auf die Produktqualität ermittelt. Bereits bei dem von Hampel et al. (2013) untersuchten kontinuierlichen Coatingprozess wird gezeigt, dass die Eindüsungsrate einen großen Einfluss auf das Prozessverhalten hat. In ihren Versuchen führt eine Erhöhung der Eindüsungsrate zum Anstieg der mittleren Partikelgröße, sowohl in der Wirbelschicht als auch im Produkt. Allerdings gibt es einige Unterschiede zwischen dem in dieser Arbeit untersuchten kontinuierlichen Granulationsprozess mit interner Klassierung und dem kontinuierlichen Pelletcoatingprozess. Wesentliche Unterschiede sind die Verwendung eines Wursterinsatzes, die Benutzung einer Zweistoffdüse in Bottom-Spray Konfiguration und die Verwendung einer externen Keimzugabe beim Pelletcoating. Außerdem wurde das Klassierrohr nicht direkt in den Anströmboden integriert, sondern extern über eine separate Partikelschleuse betrieben. Mit Hilfe der separaten Partikelschleuse wird der Partikelzufluss zum Klassierrohr reguliert. Die Höhe des Partikelzustroms beeinflusst das Klassierergebnis. Je höher die Zuflussrate ist, desto schlechter ist die Partikeltrennung. Zusätzlich lässt sich über diesen Abzug auch die Stabilität des Prozesses regeln, indem mehr oder weniger Material aus der Wirbelschicht abgeführt wird. Diese Möglichkeit der Prozessstabilisierung ergibt sich

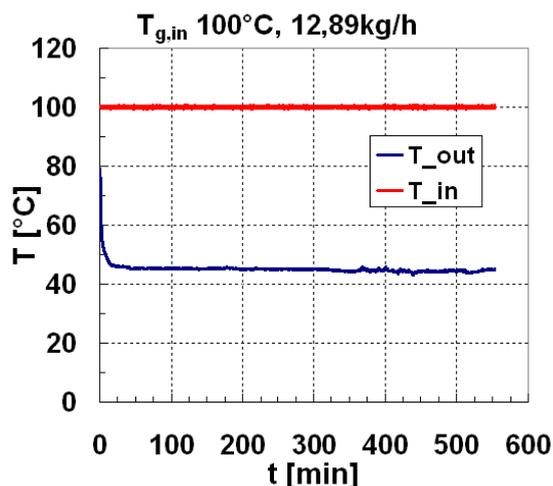
bei der internen Klassierung so nicht. Als eine Fortführung der hier gezeigten Versuche ist die Arbeit von Schmidt et al. (2015a) zu nennen. Er untersucht ebenfalls die Auswirkung von Klassiergeschwindigkeit, Eindüsungsrate, Gaseintrittstemperatur und Gasmassenstrom auf die Prozessstabilität. Speziell die Oversprayrate ist dabei entscheidend dafür, ob genug neue Keime intern generiert werden oder ob der Prozess instabil ist. Im Gegensatz zu den in dieser Arbeit durchgeführten Versuchen, wurde bei Schmidt et al. (2015a) jedoch die Auswirkung einer sprunghaften Prozessparameteränderung nicht untersucht. Die Experimente dieser Versuchsreihe werden in der in Abschnitt 3.1.2 beschriebenen Wirbelschichtpilotgranulationsanlage *WSA300* durchgeführt. Der kontinuierliche Wirbelschichtgranulationsprozess macht es erforderlich, dass Ausgangsstoff und eingedüστε Lösung aus dem selben Material bestehen. Deshalb wird Natriumbenzoat in fester Form als Ausgangsmaterial und 29,5 Ma-% Natriumbenzoatlösung als Beschichtungsmaterial verwendet. Die Durchführung der Granulationsexperimente beginnt immer mit einer Kalibrierung der Gasfeuchtemesstechnik (Abschnitt 3.2.3). Nach der Inbetriebnahme der Wirbelschichtanlage und der Messtechnik wird die Startmasse von 6 kg in den Prozessraum vorgelegt. Anschließend wird der Prozessraum mit Hilfe der pneumatischen Dichtungen verschlossen und die Fluidisierung gestartet. Mit Beginn der Fluidisierung können die elektrischen Heizungen für die Prozessluft und die Klassierluft eingeschaltet werden und die Anlage wird auf die entsprechende Gaseintrittstemperatur aufgeheizt. Nach dem sich in der Versuchsanlage eine konstante Gasaustrittstemperatur und Gasaustrittsfeuchte eingestellt hat, beginnt mit Start der Eindüsung die Prozesszeit des jeweiligen Experiments. Um die zeitliche Entwicklung der Partikelgröße zu erfassen, wird jeweils nach der Eindüsung einer Masse von 3 kg eine Probe aus der Wirbelschichtkammer entnommen. Zusätzlich zu diesen Proben werden in gewissen Zeitabständen auch Proben aus dem Produktbehälter entnommen. Diese Proben werden dann offline mit dem Camsizer (Abschnitt 3.2.1) vermessen. Mit dem Erreichen des Prozessendes werden die Dosierpumpe und die elektrischen Heizungen für Prozess- und Klassierluft gestoppt. Nach einer kurzen Abkühlphase wird dann die Fluidisierung beendet und die Wirbelschichtkammer entleert. In dieser Versuchsreihe wurden zwei Experimente mit unterschiedlichen Gasmassenströmen, Gaseintrittstemperaturen und Eindüsungsraten durchgeführt. Diese sind in Tabelle 4.13 aufgeführt, wobei im zweiten Experiment *V2* die Eindüsungsrate von 9,65 kg/h nach 262 Minuten sprunghaft auf 10,66 kg/h erhöht wurde. Außerdem gibt es leichte Unterschiede in der Ausgangsfraktion (siehe Tabelle 4.13) und es wurde der Klassierluftstrom von 12,38 kg/h im zweiten Experiment auf 23,22 kg/h erhöht.

**Tabelle 4.13:** Versuchsparameter für kontinuierliche Granulierung mit interner Klassierung von Natriumbenzoat mit Natriumbenzoat

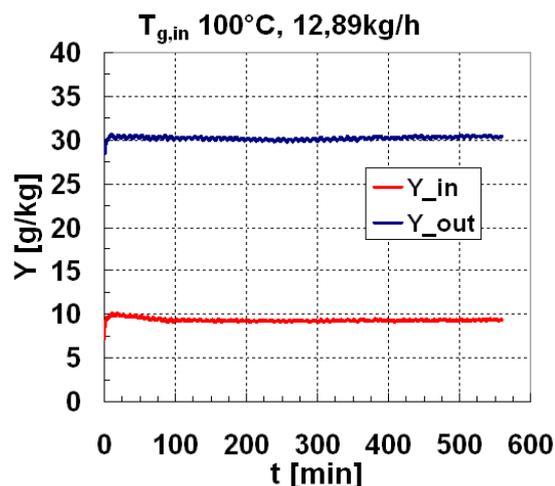
Bez.	$\dot{M}_{sus}$ [kg/h]	$\dot{M}_g$ [kg/h]	$T_{g,in}$ [°C]	$x_{m,0}$ [mm]	$\sigma_0$ [mm]	$t_{tot}$ [s]
V1	12,89	400	100	0,25	0,0985	33480
V2	9,65/10,66	350	90	0,17	0,1226	23700

Im ersten Experiment der Versuchsreihe wurden die Prozessparameter konstant gehalten, dies sieht man an den Temperaturverläufen. Die Gaseintrittstemperatur blieb über die gesamte Prozesszeit konstant. Die Gasaustrittstemperatur sank mit Beginn der Eindüsung

ab, stellte sich aber nach wenigen Minuten ebenfalls auf einen konstanten Wert (siehe Abbildung 4.28) ein. Die Verläufe für die Gasfeuchten gestalteten sich ähnlich. Die Gaseintrittsfeuchte blieb über die gesamte Versuchszeit nahezu konstant. Die Gasaustrittsfeuchte stieg mit Beginn der Eindüsung rasch an und verlief nach wenigen Minuten ebenfalls konstant.

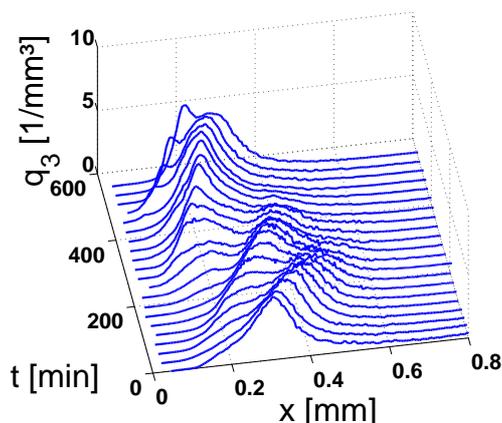


**Abbildung 4.28:** Zeitlicher Verlauf der Gastemperatur für V1

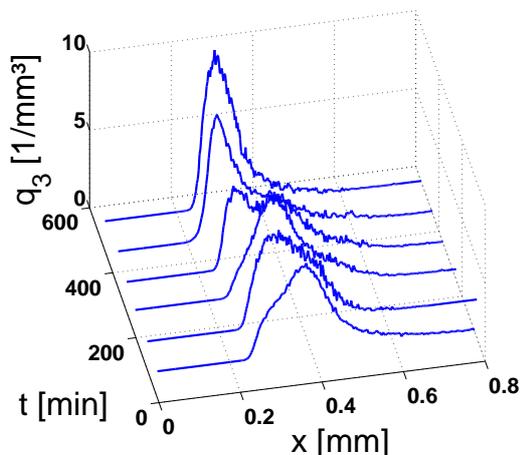


**Abbildung 4.29:** Zeitlicher Verlauf der Gasbeladung für V1

Im Gegensatz zum konstanten Verlauf der Prozessparameter ergibt sich für die zeitliche Entwicklung der Partikelgröße in der Wirbelschichtkammer ein anderer Trend. Wie man in Abbildung 4.30 sehr gut erkennt, treten im Laufe des Experiments mehrere Schwankungen in der Partikelgrößenverteilung auf. Außerdem kann man erkennen, dass so gut wie keine Partikel größer als 0,6 mm sind, da die Wahrscheinlichkeit, dass die Partikel über das Klassierrohr ausgetragen werden, mit der Partikelgröße zunimmt. Beim Wachstum der Partikelgrößenverteilung kommt es zu bestimmten Zeitpunkten vermehrt zur Bildung von kleinen Partikelfraktionen. Dies tritt immer dann auf, wenn vermehrt Partikel die Austragsgröße erreicht haben und über das Klassierrohr ausgetragen werden. Daraufhin sinkt die Schichtmasse ab und der Abstand zwischen Wirbelschicht und Zweistoffdüse, welche sich in Top-Spray Konfiguration befindet, erhöht sich. Dies wiederum bewirkt einen Anstieg der Oversprayrate und es kommt zu einer erhöhten Keimbildung. Dieser Effekt wird auch bei Vreman et al. (2009) und Schmidt et al. (2015a) beschrieben. Mit der Bildung von neuen Partikelfraktionen wird der kontinuierliche Prozess aufrechterhalten. Die Partikel, welche die Austragsgröße erreicht haben, verlassen den Prozess und werden durch die neu gebildeten Partikel ersetzt. Beim Vergleich der Verläufe für die Partikelgrößenverteilung für die Wirbelschichtkammer (Abbildung 4.30) und den Produktbehälter (Abbildung 4.31) fällt auf, dass die Oszillation der Partikelgröße, wie sie in der Wirbelschichtkammer auftritt, im Produktbehälter kaum erkennbar ist.

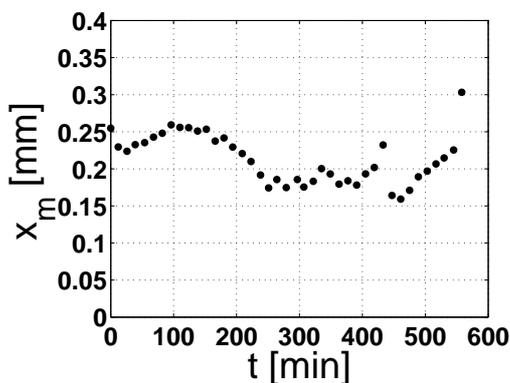


**Abbildung 4.30:** Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen in der Wirbelschichtkammer für V1

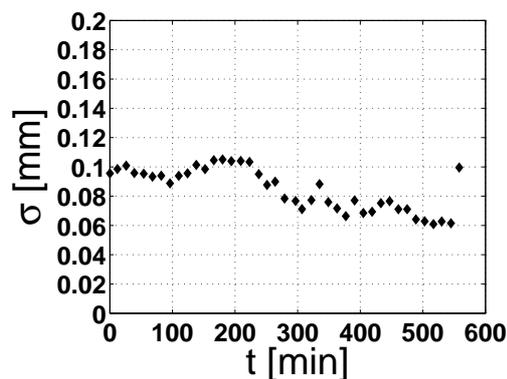


**Abbildung 4.31:** Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen im Produktbehälter für V1

Zur besseren Darstellung des Partikelwachstums wurden die Verläufe des mittleren Partikeldurchmessers (Abbildung 4.32) und der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen (Abbildung 4.33) über die Zeit aufgetragen. Dadurch lassen sich die Schwankungen während der Wachstumsphasen genauer bestimmen und beschreiben. Auch die Geschwindigkeit des Partikelwachstums lässt sich so besser beurteilen. Der mittlere Partikeldurchmesser pendelt von 0,25 mm zu Beginn der kontinuierlichen Granulation auf circa 0,18 mm nach etwa 250 Minuten. Dann verläuft er bis etwa 400 Minuten annähernd konstant. Im späteren Verlauf pendelt er dann wieder stärker zwischen 0,15 mm und 0,24 mm. Am Ende des Versuchs V1 liegt der Wert dann bei 0,3 mm. Die Standardabweichung der Partikelgrößenverteilung liegt zu Beginn bei 0,1 mm und sinkt nach etwa 250 Minuten auf einen Wert um die 0,07 mm ab. Im weiteren Verlauf pendelt sich der Wert dann auf 0,06 mm ein. Allerdings liegt der Wert am Ende des Versuchs wieder bei 0,1 mm.

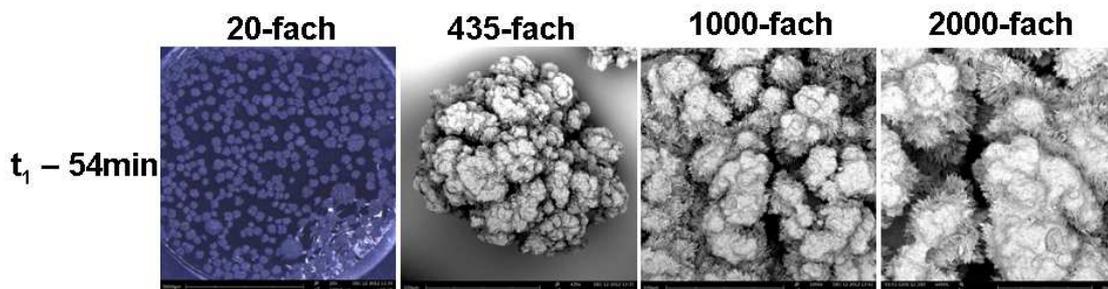


**Abbildung 4.32:** Zeitlicher Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers  $x_m$  in der Schicht für V1



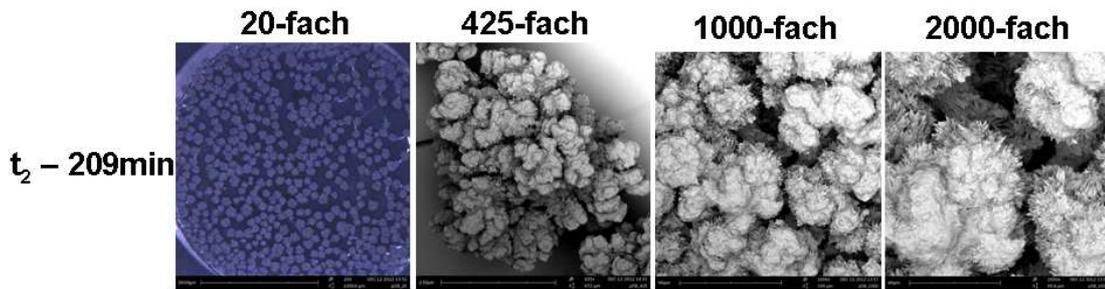
**Abbildung 4.33:** Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für V1

Anhand des zeitlichen Verlaufs der Prozessparameter und der Entwicklung der Partikelgrößenverteilung in der Wirbelschichtkammer kann man Rückschlüsse auf die Prozessstabilität ziehen. Zur Beurteilung der Produktqualität wird die zeitliche Entwicklung der Partikelgrößenverteilung im Produktbehälter genutzt. Außerdem sind von ausgewählten Versuchsproben Rasterelektronenmikroskopaufnahmen angefertigt worden. Es wurden die Proben nach 54, 209, 363 und 530 Minuten aus der Wirbelschichtkammer und die Proben nach 282 und 555 Minuten aus dem Produktbehälter gewählt. Diese dienen ebenfalls zur Beurteilung der Produktqualität und der Prozessstabilität. Die vier Bilder zu jeder der Abbildungen 4.34 bis 4.39 zeigen jeweils verschiedene Vergrößerungen der einzelnen Proben. Insgesamt weisen alle Proben eine ähnliche Struktur auf. Die Partikeloberfläche erscheint rau und porös und es sind sehr viele nadelförmige Strukturen zu erkennen. Anhand der 20-fachen Vergrößerungen kann man gut die Homogenität der Partikelgrößenverteilung in der Probe bewerten. Hier sind unterschiedliche Verteilungen zwischen den einzelnen Proben erkennbar. Durch die Darstellung von charakteristischen Einzelpartikeln lassen sich Aussagen zur Partikelstruktur und Oberfläche treffen, welche die Produktqualität mitbestimmen. Die Abbildungen der Einzelpartikel werden zusätzlich durch Darstellungen der 1000-fachen und 2000-fachen Vergrößerung ergänzt. Anhand dieser Darstellungen lassen sich besonders Details der Oberflächenstruktur der Partikel erkennen und bewerten. In Abbildung 4.34 kann man in der 20-fachen Vergrößerung viele größere und nur einige kleine Partikel erkennen. Außerdem sind vereinzelt Agglomerate zu erkennen.



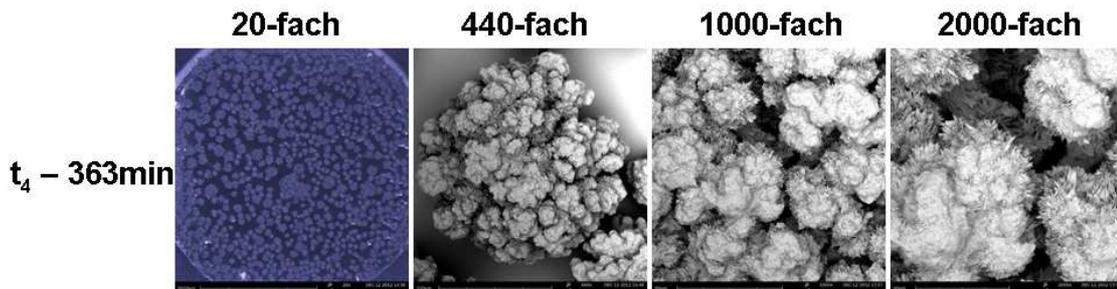
**Abbildung 4.34:** REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V1,  $t_1 = 54 \text{ min}$

In Abbildung 4.35 kann man in der 20-fachen Vergrößerung fast ausschließlich größere Partikel erkennen. Die Verteilung wirkt sehr homogen.



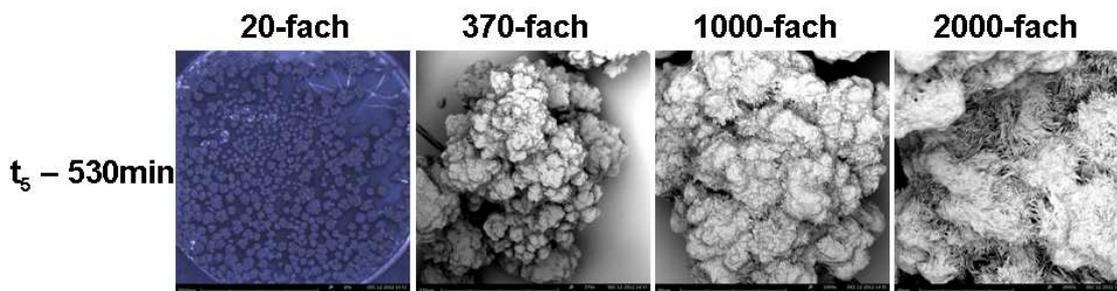
**Abbildung 4.35:** REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V1,  $t_2 = 209 \text{ min}$

In Abbildung 4.36 kann man in der 20-fachen Vergrößerung viele kleine und große Partikel erkennen.



**Abbildung 4.36:** REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V1,  $t_4 = 363 \text{ min}$

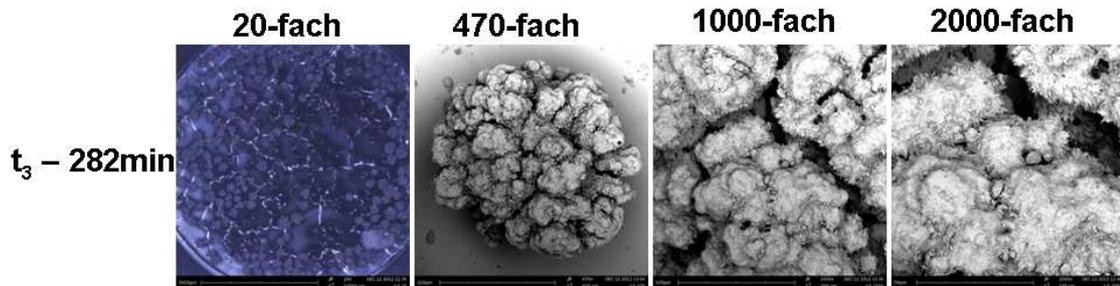
In Abbildung 4.37 kann man in der 20-fachen Vergrößerung viele sehr große und sehr kleine Partikel erkennen. Die Verteilung wirkt bimodal.



**Abbildung 4.37:** REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V1,  $t_5 = 530 \text{ min}$

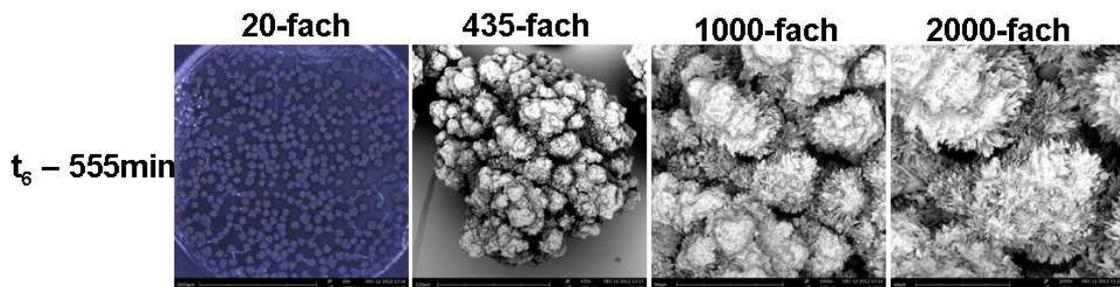
Die Rasterelektronenmikroskopaufnahmen für die Proben aus dem Produktbehälter unterscheiden sich vor allem durch das Fehlen von kleinen Partikeln. In Abbildung 4.38 kann

man in der 20-fachen Vergrößerung fast nur sehr große Partikel erkennen. Außerdem sind auch vereinzelt Agglomerate zu erkennen.



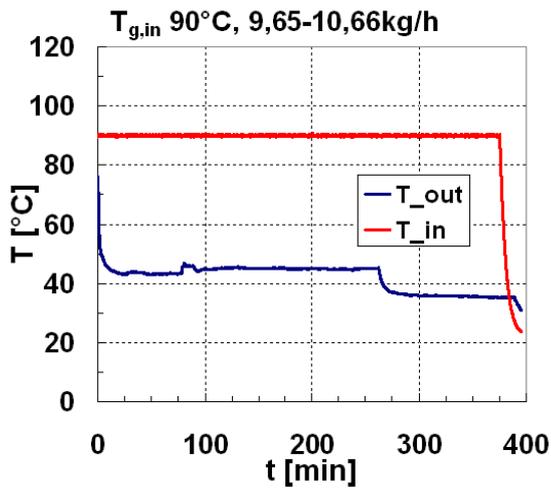
**Abbildung 4.38:** REM-Aufnahmen der Probe aus dem Produktbehälter und eines Einzelpartikels für V1,  $t_3 = 282 \text{ min}$

In Abbildung 4.39 kann man in der 20-fachen Vergrößerung fast nur große Partikel erkennen. Außerdem wirkt die Partikelgrößenverteilung sehr homogen.

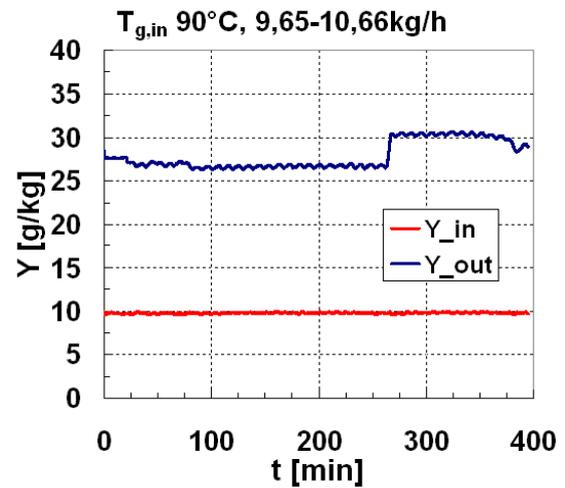


**Abbildung 4.39:** REM-Aufnahmen der Probe aus dem Produktbehälter und eines Einzelpartikels für V1,  $t_6 = 555 \text{ min}$

Im zweiten Experiment der Versuchsreihe soll die Auswirkung einer sprunghaften Veränderung eines Prozessparameters auf die Prozessstabilität untersucht werden. Dazu wurde nach 262 Minuten, nachdem der Prozess den stationären Zustand erreicht hatte, die Eindüsungsrates von anfangs 9,65 kg/h auf 10,66 kg/h erhöht. Die sprunghafte Änderung erkennt man sehr gut an den Verläufen für die Gasaustrittstemperatur und die Gasaustrittsfeuchte in Abbildung 4.40 und 4.41. Zum Zeitpunkt der Erhöhung der Eindüsung kommt es zu einem erneuten Absinken der Gasaustrittstemperatur. Nach wenigen Minuten stellt sich ein konstanter Wert ein, der unter dem vorherigen Wert liegt. Für die Gasaustrittsfeuchte verhält es sich genau umgekehrt. Es kommt mit Erhöhung der Eindüsung zu einem Anstieg der Gasaustrittsfeuchte. Auch hier stellt sich nach wenigen Minuten ein konstanter Wert ein, der jetzt aber über dem zuvor ermittelten Wert liegt.

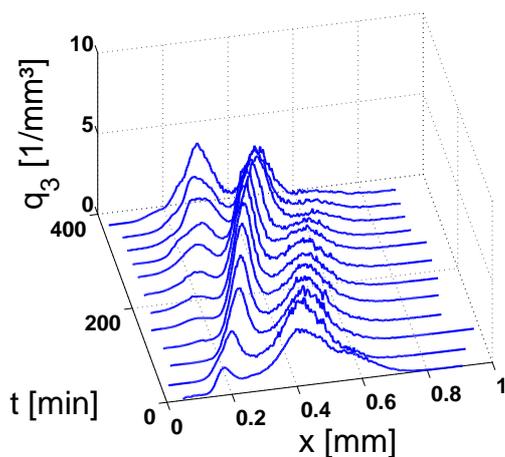


**Abbildung 4.40:** Zeitlicher Verlauf der Gastemperatur für V2

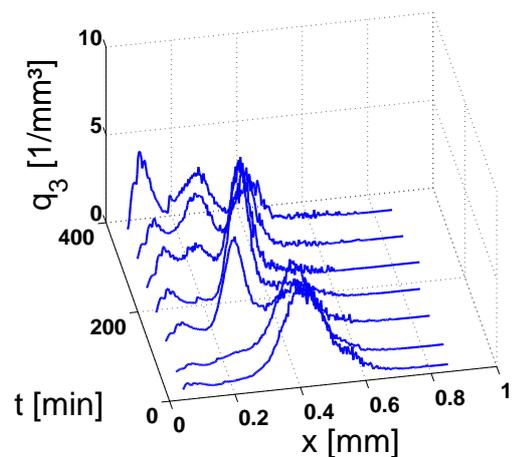


**Abbildung 4.41:** Zeitlicher Verlauf der Gasbeladung für V2

Die zeitliche Entwicklung der Partikelgröße im zweiten Experiment gestaltet sich ähnlich wie im ersten Experiment. Im Verlauf der Partikelgrößenverteilung in der Wirbelschichtkammer treten erneut Schwankungen auf. Allerdings sind die einzelnen Peaks hier noch ausgeprägter als im ersten Experiment der Versuchsreihe (vergleiche Abbildungen 4.30 und 4.42). Die maximale Partikelgröße liegt im zweiten Experiment über 0,6 mm aber unter 0,7 mm. Dies war zu erwarten, da der Klassierluftstrom im zweiten Experiment fast doppelt so hoch war als im ersten Experiment. Die zeitliche Entwicklung der Partikelgröße im Produktbehälter zeigt ebenfalls ein oszillatorisches Verhalten. Der Verlauf der Schwankungen erfolgt in den gleichen Abständen wie in der Wirbelschichtkammer. Weiterhin ist mit zunehmender Prozesszeit ein kontinuierlicher Anstieg der Partikelfraktionen kleiner als 0,2 mm zu erkennen.

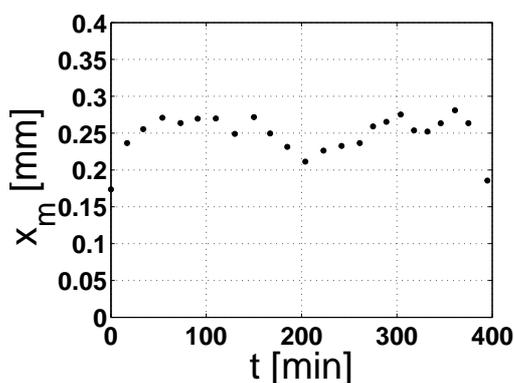


**Abbildung 4.42:** Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen in der Wirbelschichtkammer für V2

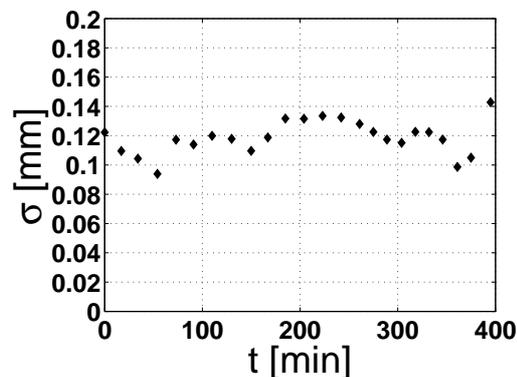


**Abbildung 4.43:** Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen im Produktbehälter für V2

Auch für dieses Experiment wurde zur besseren Darstellung des Partikelwachstums der Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers (Abbildung 4.44) und die Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen (Abbildung 4.45) über die Zeit aufgetragen. Der mittlere Partikeldurchmesser steigt rasch von anfangs 0,175 mm auf bis zu 0,25 mm. Die Werte für die Standardabweichung schwanken leicht um 0,12 mm.



**Abbildung 4.44:** Zeitlicher Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers  $x_m$  in der Schicht für V2



**Abbildung 4.45:** Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für V2

Zusammenfassend für die vierte Versuchsreihe ist zu sagen, dass die zeitliche Entwicklung der Partikelgrößenverteilung von den gewählten Prozessparametern abhängt und dies Auswirkung auf die Prozessstabilität haben kann. Während des Prozesses kommt es zu Oszillationen in der Partikelgrößenverteilung, welche sich teilweise auch auf die Produktfraktion übertragen. Eine Schwankung in der Produktfraktion beeinflusst die Produktqualität negativ und ist daher unerwünscht. Die sprunghafte Änderung der Eindüsungsrates hatte keine erkennbaren Auswirkungen auf die Produktqualität.

#### 4.4 Kontinuierliche Granulation mit externer Klassierung in der Wirbelschichtpilotanlage WSA300

Die fünfte Versuchsreihe untersucht die zeitliche Entwicklung der Partikelgröße während der kontinuierlichen Wirbelschichtsprühgranulation mit externer Klassierung für unterschiedliche Prozessbedingungen. Es werden die Gaseintrittstemperatur, die Eindüsungsrates und der Gasmassenstrom variiert. Zusätzlich soll auch die Prozessstabilität betrachtet werden. Wie schon in der vorherigen Versuchsreihe werden dazu sprunghafte Änderungen der Eindüsungsrates vorgenommen. Als weiteres Kriterium für die Produktqualität wurde neben der Partikelgröße, auch die Partikelstruktur mittels Rasterelektronenmikroskopaufnahmen untersucht. Als eine Weiterführung der hier gezeigten Versuche ist die Arbeit von Schmidt et al. (2015b) zu nennen. Schmidt untersucht ebenfalls die Prozessstabilität bei der kontinuierlichen Wirbelschichtsprühgranulation mit externer Klassierung. Allerdings finden bei ihm keine Variationen und keine sprunghaften Änderungen der Prozessparameter statt, sondern nur die Drehzahl der Mühle wird variiert. Die experimentellen Ergebnisse zeigen dabei kaum einen Einfluss auf die Prozessstabilität, was vor allem an der verwen-

deten Schlagrotormühle liegt. Diese zeigt trotz steigender Rotordrehzahl nur eine mäßige Zerkleinerung. Aus der aufgegebenen monomodalen Partikelgrößenverteilung wird durch die Zerkleinerung eine bimodale Partikelgrößenverteilung. Der so generierte Anteil an neuen Partikelkeimen ist zu gering, um eine signifikante Auswirkung auf die Prozessstabilität zu haben. Im Gegensatz zu Schmidt et al. (2015b) wird in allen hier gezeigten Versuchen die Drehzahl der Mühle konstant gehalten.

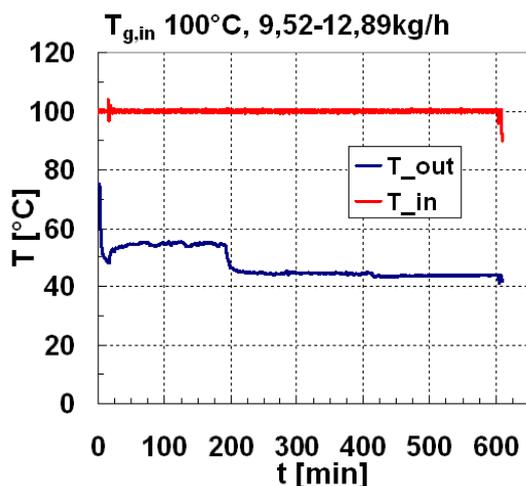
Alle Versuche der fünften Versuchsreihe wurden in der in Abschnitt 3.1.2 beschriebenen Wirbelschichtgranulationsanlage *WSA300* durchgeführt. Analog zur vierten Versuchsreihe wurden Natriumbenzoat in fester Form als Ausgangsmaterial und 29,5 Ma-% Natriumbenzoatlösung als Beschichtungsmaterial verwendet. Der Prozessschritt der externen Klassierung wurde durch eine Taumelsiebmaschine mit zwei unterschiedlichen Siebböden und eine drehzahlvariable Schlagrotormühle realisiert. In den ersten drei Experimenten der Versuchsreihe wurden ein Sieb mit 0,6 mm Maschenweite für das Oberkorn und ein Sieb mit 0,4 mm Maschenweite für das Unterkorn gewählt. Im letzten Experiment der Reihe wurde anstatt des 0,6 mm Siebs ein 0,5 mm Sieb verwendet, um eine möglichst enge Produktfraktion zu erhalten. Die Drehzahl der Schlagrotormühle wurde in allen vier Experimenten konstant gehalten. Sie betrug in allen Experimenten 4050 U/min (Frequenzumrichter 50 %), was einer Rotorumfangsgeschwindigkeit von 29 m/s entspricht. Sowohl das Unterkorn vom Sieb, als auch das Mahlgut aus der Schlagrotormühle werden kontinuierlich in den Granulator zurückgeführt. Die Versuchsdurchführung gestaltet sich ähnlich wie in der vierten Versuchsreihe. Nach der Kalibrierung der Gasfeuchtemesstechnik (Abschnitt 3.2.3) und der Inbetriebnahme der Wirbelschichtanlage samt Messtechnik wurde die Startmasse von 6 kg in den Prozessraum vorgelegt. Nach dem Abdichten der Wirbelschichtkammer wurde die Fluidisierung gestartet und mit Hilfe der elektrischen Heizung die Prozessluft auf die entsprechende Gaseintrittstemperatur aufgeheizt. Parallel dazu wurde der externe Sieb-Mahl-Kreislauf gestartet. Für die kontinuierliche Materialentnahme aus dem Granulator und die Zuführung zum Sieb-Mahl-Kreislauf wird ähnlich wie für die interne Klassierung ein Abzugsrohr im Anströmboden verwendet. Im Gegensatz zur internen Klassierung, wo ein konstanter Luftstrom im Abzugsrohr eingestellt wird, ist der Luftstrom bei der externen Klassierung variabel. So können sowohl große als auch kleine Partikel aus dem Granulator abgezogen werden. Der Luftstrom wird über einen Mass-flowcontroller geregelt. Als Stellgröße dient bei der externen Klassierung die Schichtmasse im Granulator, welche aus dem Druckverlust über das gesamte Wirbelbett berechnet wird. Während der Experimente wird die Schichtmasse im Granulator konstant gehalten, so dass mal mehr und mal weniger Material aus der Wirbelschichtkammer abgezogen wird, je nachdem wieviel Material aus dem Sieb-Mahl-Kreislauf zurück in den Granulator geführt wird. Nachdem sich in der Versuchsanlage eine konstante Gasaustrittstemperatur und Gasaustrittsfeuchte eingestellt hat, beginnt mit dem Start der Eindüsung die jeweilige Prozesszeit der einzelnen Experimente. Für die Messung der zeitlichen Entwicklung der Partikelgrößenverteilung werden in definierten Abständen (nach einer Eindüsungsmasse von jeweils 3 kg) Proben aus der Wirbelschichtkammer entnommen. Des Weiteren werden in gewissen Zeitabständen auch Proben aus dem Produktbehälter entnommen. Alle Proben werden offline mit dem Camsizer (Abschnitt 3.2.1) vermessen. Mit dem Erreichen des Prozessendes wird die Eindüsung, die elektrische Heizung der Prozessluft und der externe Sieb-Mahl-Kreislauf gestoppt. Nach einer kurzen Abkühlphase wird die Fluidisierung beendet und die Wirbelschichtkammer entleert. In dieser Versuchsreihe wurden vier Experimente bei unterschiedlichen Eindüsungsraten, Gasmassenströmen und Gaseintrittstemperaturen durchgeführt, welche in Tabelle 4.14 aufgelistet sind. Auch in dieser

Versuchsreihe gibt es Unterschiede in der Partikelgrößenverteilung des Ausgangsmaterial. Diese sind ebenfalls in Tabelle 4.14 aufgeführt. In den ersten zwei Experimenten der Versuchsreihe wurden sprunghafte Änderungen der Eindüsungsrate vorgenommen. Im ersten Experiment wird die Eindüsung von 9,52 kg/h nach 190 Minuten auf 12,98 kg/h erhöht. Im zweiten Experiment der Reihe wird die Eindüsungsrate von 13,19 kg/h nach 500 Minuten auf 22,98 kg/h erhöht. In den letzten zwei Experimenten der Versuchsreihe findet keine sprunghafte Veränderung statt und die Eindüsungsraten sind konstant.

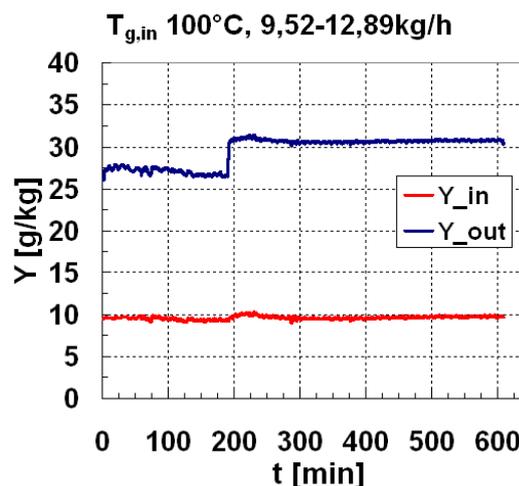
**Tabelle 4.14:** Versuchsparameter für kontinuierliche Granulierung mit externer Klassierung von Natriumbenzoat mit Natriumbenzoat

Bez.	$\dot{M}_{sus}$ [kg/h]	$\dot{M}_g$ [kg/h]	$T_{g,in}$ [°C]	$x_{m,0}$ [mm]	$\sigma_0$ [mm]	$t_{tot}$ [s]
V3	9,52/12,98	400	100	0,33	0,1732	36300
V4	13,19/22,98	500	120	0,25	0,1013	43080
V5	19,16	450	180	0,30	0,1184	75420
V6	18,30	450	185	0,26	0,1156	29100

Im ersten Experiment der Versuchsreihe soll die Auswirkung einer sprunghaften Veränderung der Eindüsungsrate auf den Verlauf der Partikelgrößenverteilung untersucht werden. Die sprunghafte Änderung kann man sehr gut an den Verläufen für die Gasaustrittstemperatur und die Gasaustrittsfeuchte in Abbildungen 4.46 und 4.47 erkennen. Während die Gaseintrittstemperatur und die Gaseintrittsfeuchte konstant verlaufen, kommt es bei der Gasaustrittstemperatur zu einem Abfall und bei der Gasaustrittsfeuchte zu einem Anstieg nach 190 Minuten.



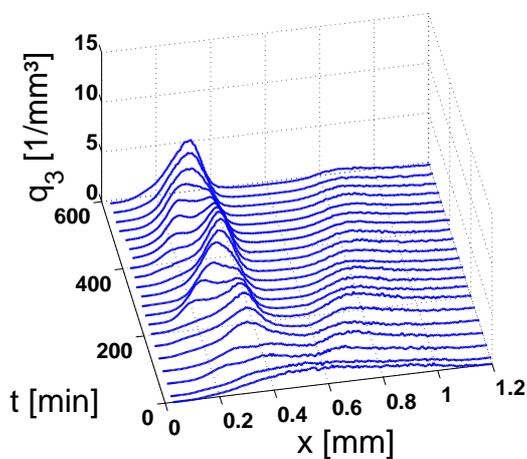
**Abbildung 4.46:** Zeitlicher Verlauf der Gastemperatur für V3



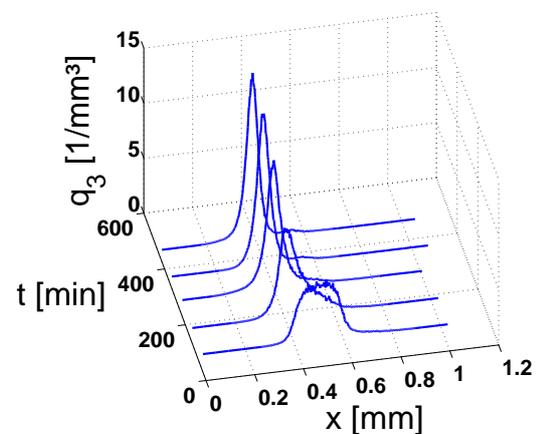
**Abbildung 4.47:** Zeitlicher Verlauf der Gasbeladung für V3

Die zeitliche Entwicklung der Partikelgrößenverteilung in der Wirbelschichtkammer (Abbildung 4.48) zeigt, verglichen mit den Experimenten für die kontinuierliche Wirbelschicht-

granulation mit interner Klassierung, einen etwas anderen Verlauf. Man erkennt deutlich, dass die Partikelfraktionen im Bereich von 0,4 mm bis 0,6 mm im Laufe des Experiments vollständig verschwinden, da diese Fraktionen der Produktgröße entsprechen und über die Siebmaschine kontinuierlich ausgetragen werden. Im Bereich zwischen 0 und 0,4 mm sieht man, ähnlich wie in der vierten Versuchsreihe, Oszillationen in der Partikelgrößenverteilung. Oberhalb von 0,6 mm ist auch noch ein kleiner Anteil an Partikeln zu erkennen. Hier handelt es sich um Partikel, die über die Zielgröße der Produktfraktion hinausgewachsen sind, in der Mühle jedoch nicht ausreichend zerkleinert wurden. Die zeitliche Entwicklung der Partikelgrößenverteilung im Produktbehälter (Abbildung 4.49) liegt genau im Bereich der zwei eingesetzten Siebe, wobei mit zunehmender Prozesszeit die Verteilung immer schmaler wird.

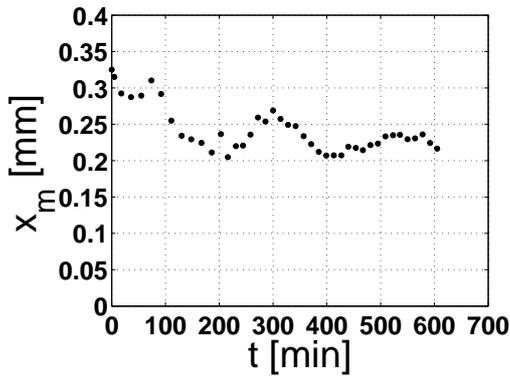


**Abbildung 4.48:** Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen in der Wirbelschichtkammer für V3

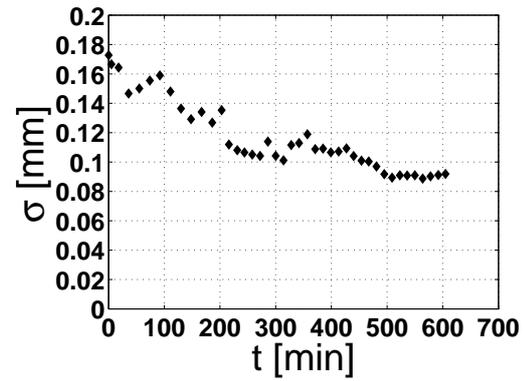


**Abbildung 4.49:** Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen im Produktbehälter für V3

Zur besseren Darstellung des Partikelwachstums für das Experiment V3 wurde der Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers (Abbildung 4.50) und die Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen (Abbildung 4.51) über die Zeit aufgetragen. Der mittlere Partikeldurchmesser sinkt von anfangs 0,325 mm auf bis zu 0,2 mm und pendelt sich dann auf diesen Wert ein. Die Werte für die Standardabweichung sinken kontinuierlich von 0,175 mm auf 0,09 mm und bleiben zum Ende des Experiments konstant auf diesem Wert.

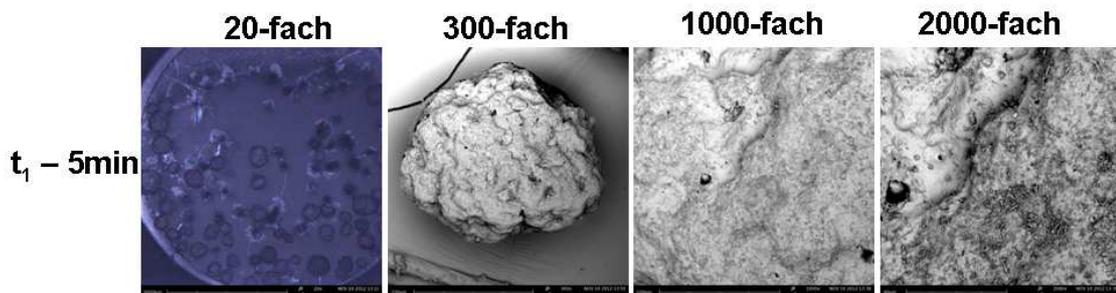


**Abbildung 4.50:** Zeitlicher Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers  $x_m$  in der Schicht für V3



**Abbildung 4.51:** Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für V3

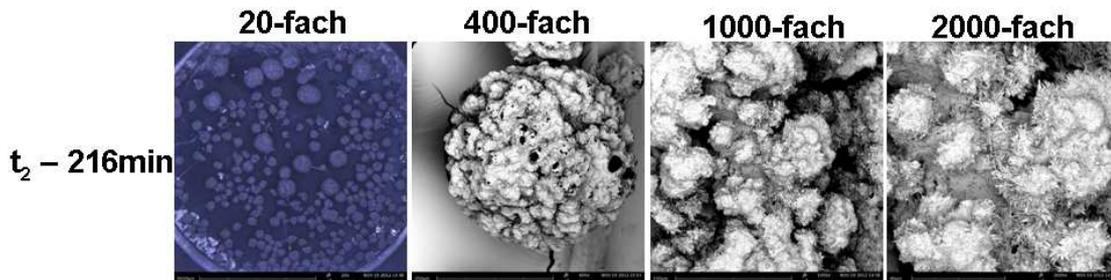
Wie schon in der Versuchsreihe der kontinuierlichen Wirbelschichtsprühgranulation mit interner Klassierung wurden in der aktuellen Versuchsreihe mit externer Klassierung von ausgewählten Versuchsproben Rasterelektronenmikroskopaufnahmen angefertigt. Dies wurde sowohl für Proben aus der Wirbelschichtkammer, als auch für Proben aus dem Produktbehälter gemacht. In diesem Experiment wurden vier Proben nach 5, 216, 385 und 550 Minuten aus der Wirbelschichtkammer und eine nach 374 Minuten aus dem Produktbehälter entnommen. Die Abbildungen 4.52 bis 4.56 zeigen in jeweils unterschiedlichen Vergrößerungen Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer, sowie eines charakteristischen Einzelpartikels. Mit Hilfe dieser Abbildungen lassen sich Aussagen zur Homogenität der Partikelgrößenverteilung und zur Oberflächenstruktur der Partikel ableiten. In Abbildung 4.52 ist bei 20-facher Vergrößerung die sehr breite anfängliche Partikelgrößenverteilung ersichtlich. Die Einzelpartikel sind sehr kompakt und weisen nahezu keine Hohlräume auf.



**Abbildung 4.52:** REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V3,  $t_1 = 5 \text{ min}$

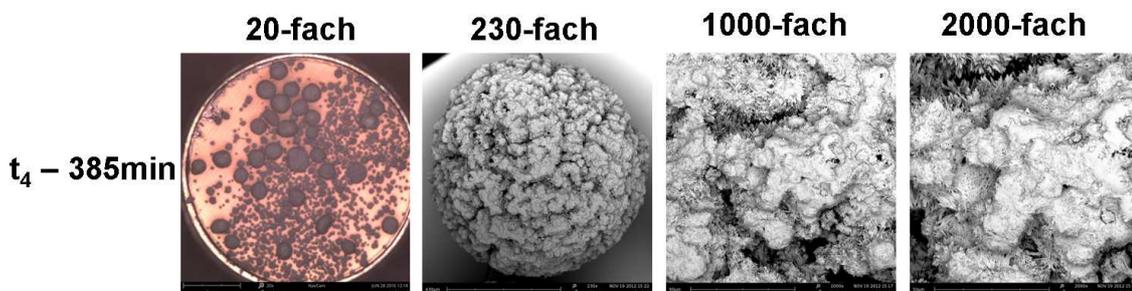
In der Partikelprobe, welche nach 216 Minuten entnommen wurde, existieren neben einigen sehr großen Partikeln auch viele kleinere Partikel, was man deutlich in der Rasterelektronenmikroskopaufnahme mit 20-facher Vergrößerung in Abbildung 4.53 erkennen kann. Dies stellt somit eine Veränderung zur Rasterelektronenmikroskopaufnahme mit 20-facher

Vergrößerung in Abbildung 4.52 da. Dort existieren nicht so viele kleine Partikel. Auch die Partikeloberfläche in Abbildung 4.53 erscheint rauer als die in der Probe nach 5 Minuten. Verglichen mit der Rasterelektronenmikroskopaufnahme für das Einzelpartikel in Abbildung 4.52, weist die Oberfläche mehr Hohlräume und Spalten auf.



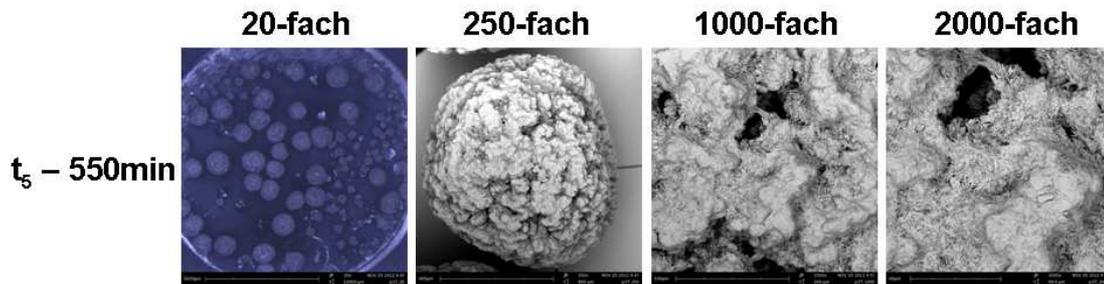
**Abbildung 4.53:** REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V3,  $t_2 = 216 \text{ min}$

Für die Probe nach 385 Minuten, welche in Abbildung 4.54 dargestellt ist, ändert sich die Oberflächenstruktur etwas. Die Oberfläche weist weniger Hohlräume auf und erscheint etwas kompakter als nach 216 Minuten. In der Rasterelektronenmikroskopaufnahme mit 20-facher Vergrößerung sind neben großen Partikeln auch viele kleine Partikel zu erkennen, diese bimodale Verteilung zeigt auch die Messung der Partikelgrößenverteilung mittels Camsizer in Abbildung 4.48 für die Probe nach 385 Minuten.



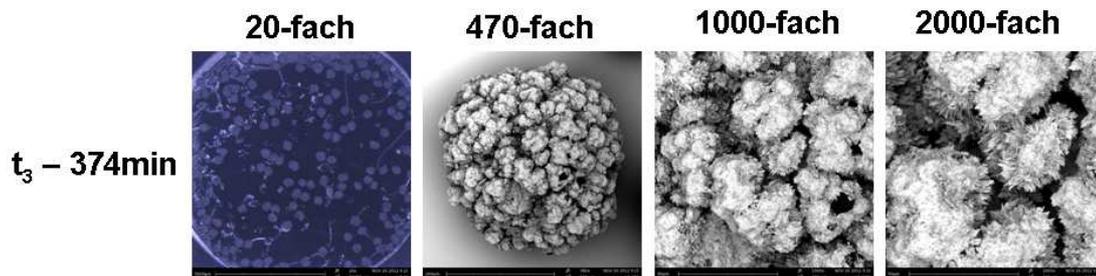
**Abbildung 4.54:** REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V3,  $t_4 = 385 \text{ min}$

In Abbildung 4.55 kann man neben sehr großen Partikeln auch wieder kleine Partikel feststellen. Die Oberflächenstruktur der Partikel ähnelt denen nach 385 Minuten. Die Partikeloberflächen sind eher geschlossen und weisen wenigen Hohlräume verglichen mit der Partikeloberfläche für das in Abbildung 4.53 gezeigte Einzelpartikel.



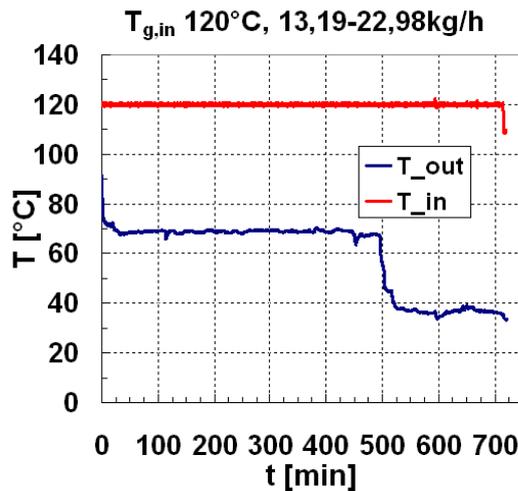
**Abbildung 4.55:** REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V3,  $t_5 = 530 \text{ min}$

Die Probe, die nach 374 Minuten aus dem Produktbehälter entnommen wurde (Abbildung 4.56), weist eine sehr schmale Partikelgrößenverteilung auf. Die Partikel besitzen annähernd die gleiche Größe. Die Partikelgröße selbst liegt, verglichen mit den anderen Rasterelektronenmikroskopaufnahmen des Experiments, im mittleren Bereich. Die Partikeloberfläche ist rau und porös. Außerdem sind viele Hohlräume und nadelförmige Strukturen zu erkennen.

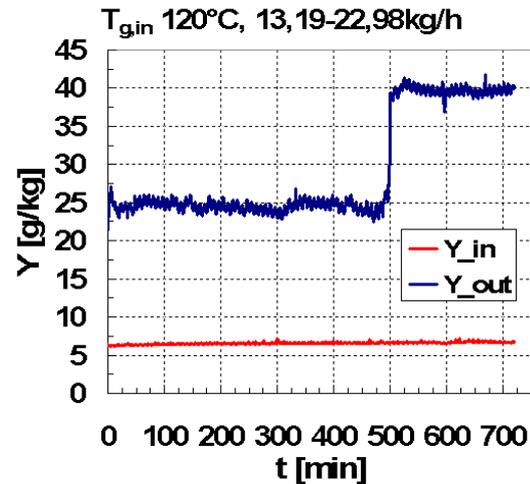


**Abbildung 4.56:** REM-Aufnahmen der Probe aus dem Produktbehälter und eines Einzelpartikels für V3,  $t_3 = 374 \text{ min}$

Im zweiten Experiment der Versuchsreihe soll ebenfalls der Einfluss einer sprunghaften Änderung der Eindüsungsrates auf den zeitlichen Verlauf der Partikelgrößenverteilung untersucht werden. Im Unterschied zum ersten Experiment wird die sprunghafte Erhöhung der Eindüsung erst nach 500 Minuten vorgenommen und die Eindüsungsrates von 13,19 kg/h auf 22,98 kg/h fast verdoppelt. Diese Änderung kann man sehr gut im Verlauf der Gasaustrittsfeuchte (Abbildung 4.58) erkennen. Während die Gaseintrittsfeuchte und die Gaseintrittstemperatur konstant verlaufen, kommt es bei der Gasaustrittstemperatur zu einem Abfall und bei der Gasaustrittsfeuchte zu einem Anstieg nach circa 500 Minuten.

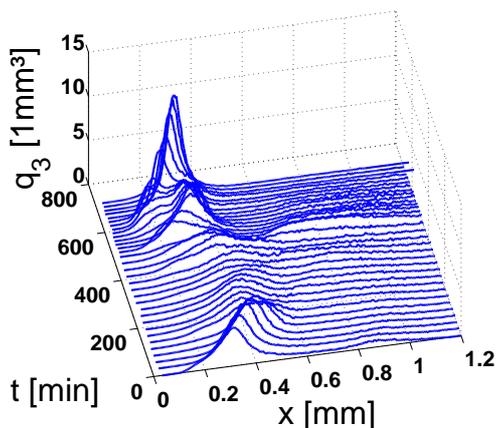


**Abbildung 4.57:** Zeitlicher Verlauf der Gastemperatur für V4

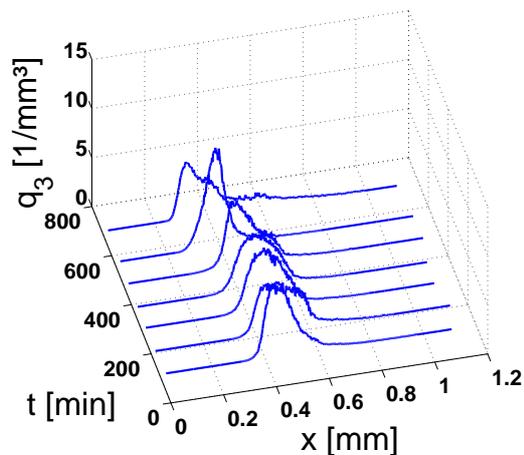


**Abbildung 4.58:** Zeitlicher Verlauf der Gasbeladung für V4

Die zeitliche Entwicklung der Partikelgrößenverteilung in der Wirbelschichtkammer (Abbildung 4.59) zeigt, verglichen mit dem ersten Experiment der Versuchsreihe, einen etwas anderen Verlauf. Man erkennt deutlich, dass die Partikelfraktionen in den ersten 200 Minuten des Experiments rasch anwachsen. Das liegt zum einen an der höheren Eindüsungsrates (siehe Tabelle 4.14), zum anderen an der kleineren und engeren Ausgangsfraktion. Nach 200 Minuten stellt sich ein stabiler Zustand in der Partikelgrößenverteilung im Granulator ein. Allerdings erscheinen im Gegensatz zum ersten Experiment der Versuchsreihe hier auch Partikelfraktionen im Bereich von 0,4 mm bis 0,6 mm. Mit Erhöhung der Eindüsung nach 500 Minuten ändert sich auch die Partikelgrößenverteilung im Granulator. Nun treten im Bereich zwischen 0 und 0,4 mm Oszillationen der Partikelfraktionen auf und im Bereich von 0,4 mm bis 0,6 mm verschwindet der Fraktionsanteil vollständig. Kurz nach der Eindüsungserhöhung ist oberhalb von 0,6 mm auch noch ein kleiner Anteil an Partikeln zu erkennen, der aber nach 600 Minuten verschwunden ist. Hier handelt es sich um Partikel, die über die Zielgröße der Produktfraktion hinausgewachsen sind, in der Mühle jedoch nicht ausreichend zerkleinert wurden. Die zeitliche Entwicklung der Partikelgrößenverteilung im Produktbehälter (Abbildung 4.60) liegt genau im Bereich der zwei eingesetzten Siebe, wobei die Verteilung bis zum Zeitpunkt der Eindüsungserhöhung gleich bleibt, anschließend etwas schmaler und am Ende breiter wird.

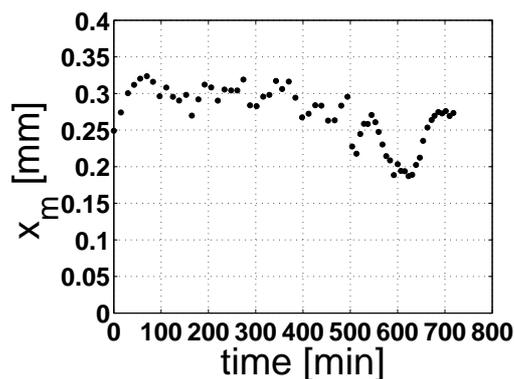


**Abbildung 4.59:** Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen in der Wirbelschichtkammer für V4

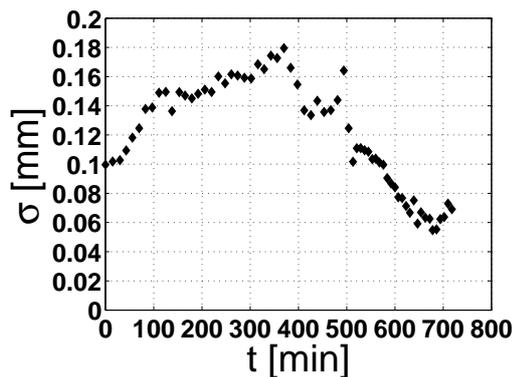


**Abbildung 4.60:** Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen im Produktbehälter für V4

Auch für dieses Experiment wurde zur besseren Darstellung des Partikelwachstums der Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers (Abbildung 4.61) und die Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen (Abbildung 4.62) über die Zeit aufgetragen. Der mittlere Partikeldurchmesser steigt rasch von anfangs 0,25 mm auf bis zu 0,325 mm und pendelt sich dann auf einen Wert von 0,3 mm ein. Zwischen der Zeit von 500 Minuten bis circa 600 Minuten sinkt der mittlere Partikeldurchmesser auf einen Wert von 0,2 mm ab, steigt dann aber wieder rasch auf einen Wert von 0,275 mm an. Die Werte für die Standardabweichung steigen anfangs kontinuierlich von 0,1 mm auf bis zu 0,18 mm nach 400 Minuten. Danach fallen die Werte für die Standardabweichung bis auf 0,05 mm. Zum Ende des Versuchs steigen sie wieder leicht auf 0,07 mm an.



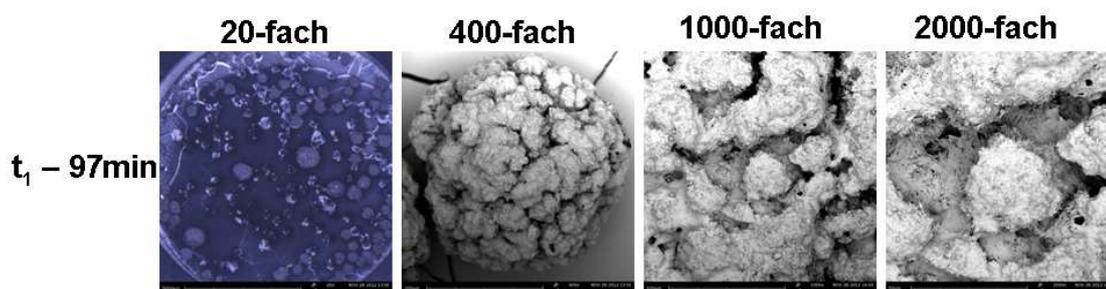
**Abbildung 4.61:** Zeitlicher Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers  $x_m$  in der Schicht für V4



**Abbildung 4.62:** Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für V4

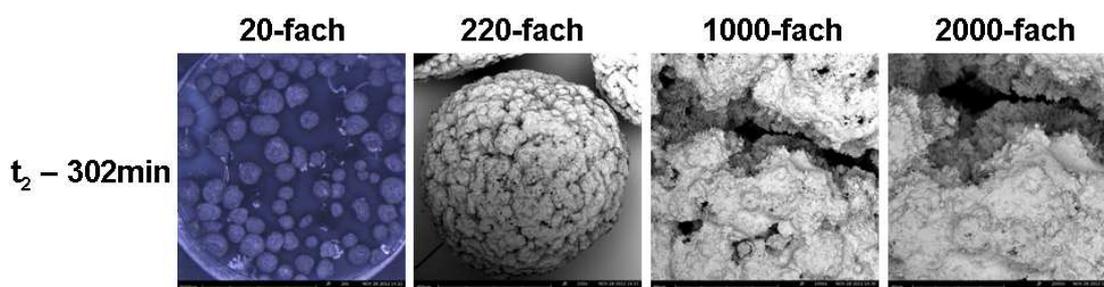
Erneut wurden zur besseren Beurteilung der Produktqualität Rasterelektronenmikroskopaufnahmen von ausgewählten Versuchsproben angefertigt, mit denen sich Aussagen zur

Homogenität der Partikelgrößenverteilung und zur Oberflächenstruktur der Partikel ableiten lassen. In diesem Experiment wurden vier Proben nach 97, 302, 568 und 694 Minuten aus der Wirbelschichtkammer und zwei Proben nach 303 und 573 Minuten aus dem Produktbehälter entnommen. Die Abbildungen 4.63 bis 4.68 zeigen jeweils die Probe in 20-facher Vergrößerung, ein unterschiedlich vergrößertes ganzes Einzelpartikel, sowie die Partikeloberfläche in 1000-facher und in 2000-facher Vergrößerung. In Abbildung 4.63 kann man bei 20-facher Vergrößerung neben vielen gleich großen Partikeln mittlerer Größe auch einige sehr große Partikel feststellen. Die Einzelpartikel erscheinen kompakt, weisen aber einige Hohlräume auf.



**Abbildung 4.63:** REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V4,  $t_1 = 97 \text{ min}$

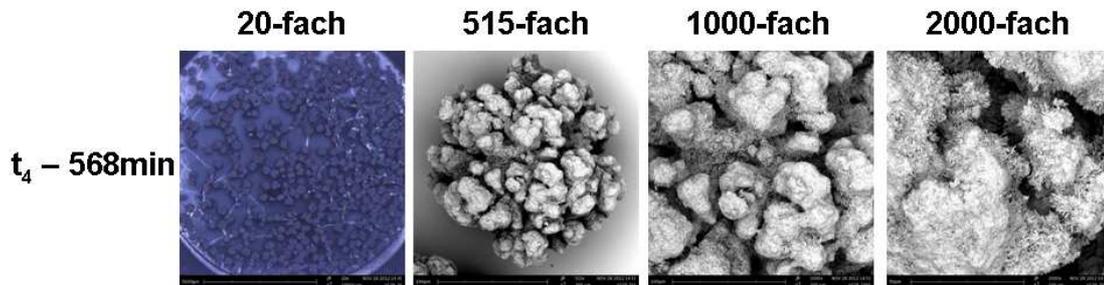
In Abbildung 4.64 erkennt man sehr viele große Partikel und einige mittlere Partikel. Die Form der Partikel ähnelt denen nach 97 Minuten, allerdings sind weniger Hohlräume vorhanden und die Oberfläche ist geschlossener.



**Abbildung 4.64:** REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V4,  $t_2 = 302 \text{ min}$

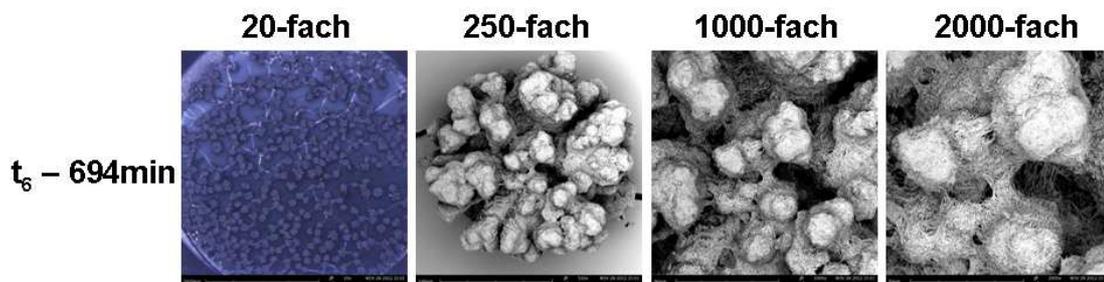
Die Probe nach 568 Minuten (Abbildung 4.65) zeigt eine deutlich veränderte Oberflächenstruktur im Vergleich zur Oberflächenstruktur in den Abbildungen 4.63 und 4.64 für die Proben nach 97 und 302 Minuten. In der Darstellung des Einzelpartikels ist die Partikeloberfläche sehr porös, mit vielen Hohlräumen. Die Oberfläche erscheint insgesamt offener. Die Form der Partikel weicht mehr von einer Kugelform ab und weist dendritische Strukturen auf. Außerdem ist die Größe der Einzelpartikel verglichen mit den vorherigen Proben sichtlich kleiner. Dies zeigt gut das Bild mit 20-facher Vergrößerung, wo sehr viele kleine

Partikel erkennbar sind. Dies wiederum entspricht auch der Partikelgrößenverteilung nach 568 Minuten in Abbildung 4.59.



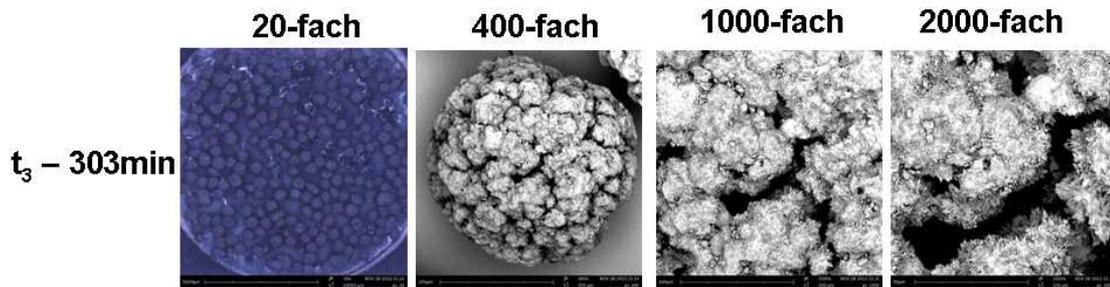
**Abbildung 4.65:** REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V4,  $t_4 = 568 \text{ min}$

Die Messergebnisse für die Probe nach 694 Minuten (Abbildung 4.66) sind ähnlich zu denen der Probe nach 568 Minuten. Die Probe zeigt viele kleine Partikel mit ähnlicher Größe, was auch der Partikelgrößenverteilung in Abbildung 4.59 entspricht. Weiterhin ähnelt auch die Partikelform der aus der Probe nach 568 Minuten und zeigt dendritische Strukturen. Die Partikeloberfläche erscheint sehr porös und sie weist viele Hohlräume auf.



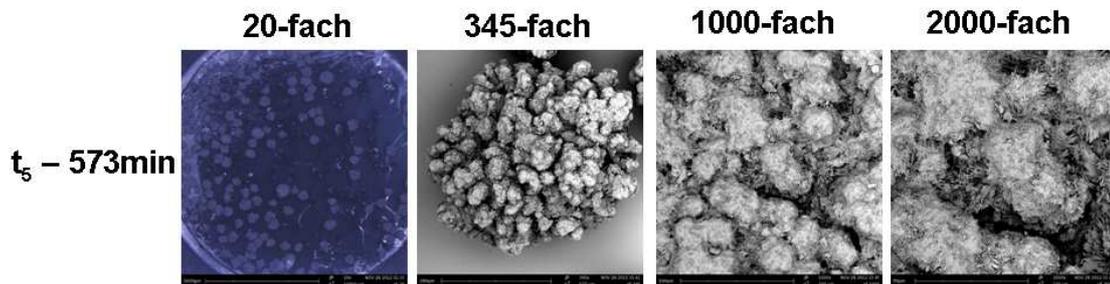
**Abbildung 4.66:** REM-Aufnahmen der Probe aus der Wirbelschichtkammer und eines Einzelpartikels für V4,  $t_6 = 694 \text{ min}$

Die Probe, die nach 303 Minuten aus dem Produktbehälter genommen wurde (Abbildung 4.67), weist eine homogene Partikelgrößenverteilung auf. Die Partikel besitzen eine, verglichen mit der Probe die nach 302 Minuten aus der Wirbelschicht entnommen wurde, mittlere Größe. Die Form der Partikel ist kompakt und kugelig. Die Partikeloberfläche ist eher geschlossen und weist nur wenige Hohlräume auf.



**Abbildung 4.67:** REM-Aufnahmen der Probe aus dem Produktbehälter und eines Einzelpartikels für V4,  $t_3 = 303 \text{ min}$

In Abbildung 4.68 kann man bei 20-facher Vergrößerung nur Partikel mittlerer Größe erkennen. Die Form der Partikel, die nach 573 Minuten aus dem Produktbehälter entnommen wurden, ähnelt sehr der Form der Partikel, die nach 568 Minuten aus dem Granulator entnommen wurden. Die Partikeloberfläche ist sehr porös und insgesamt lassen sich dendritische Strukturen erkennen, so dass die Partikelform mehr von der Kugelform abweicht als die Form der Partikel aus der Probe, die nach 303 Minuten aus dem Produktbehälter entnommen wurde.



**Abbildung 4.68:** REM-Aufnahmen der Probe aus dem Produktbehälter und eines Einzelpartikels für V4,  $t_5 = 573 \text{ min}$

Im dritten Experiment der Versuchsreihe soll ausschließlich die Prozessstabilität bei konstant bleibenden Prozessparametern untersucht werden. Dafür wurde die Prozesszeit auf 1250 Minuten (ca. 21 Stunden) verlängert. Außerdem wurde die Eintrittstemperatur mit  $180^\circ\text{C}$  deutlich höher gewählt, als in den vorherigen Experimenten der Versuchsreihe. Auf Grund der sehr hohen Eintrittstemperatur konnte mit  $19,16 \text{ kg/h}$  eine ebenfalls hohe Eindüsungsrates gewählt werden. Den konstanten Verlauf der Versuchsparameter erkennt man sehr gut in der Abbildung 4.69 für die Gastemperaturen und in der Abbildung 4.70 für die Gasfeuchten. Mit dem Start der Eindüsung zu Beginn des Experiments fällt die Gasaustrittstemperatur und die Gasaustrittsfeuchte steigt auf jeweils einen konstant Wert.

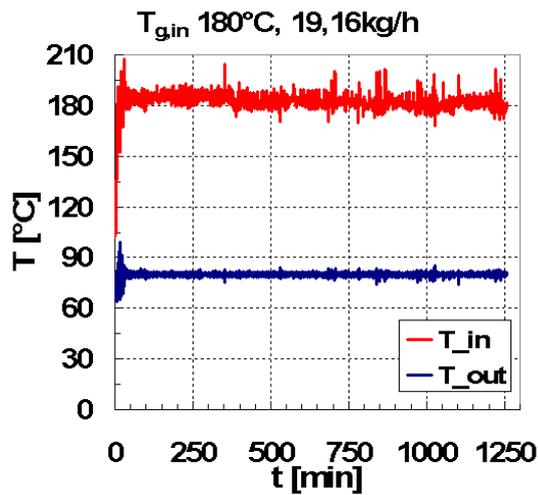


Abbildung 4.69: Zeitlicher Verlauf der Gastemperatur für V5

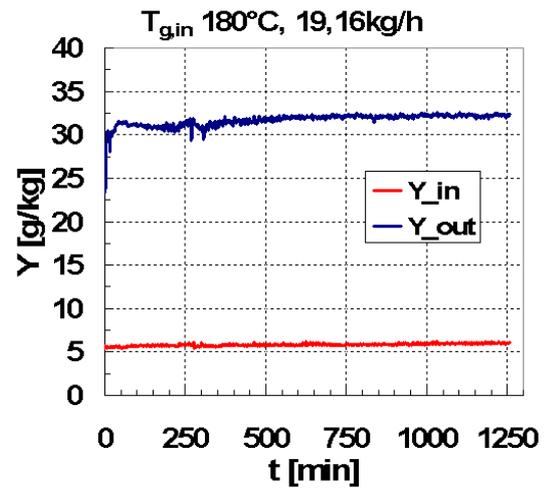


Abbildung 4.70: Zeitlicher Verlauf der Gasbeladung für V5

Durch die Wahl der höheren und konstanten Prozessparameter ergeben sich, verglichen mit den ersten zwei Experimenten der Versuchsreihe, Unterschiede in der zeitlichen Entwicklung der Partikelgrößenverteilung in der Wirbelschichtkammer (Abbildung 4.71). Nach circa 250 Minuten sind die Partikelfraktionen im Bereich von 0,5 mm bis 0,6 mm vollständig verschwunden und es stellt sich ein stabiler Zustand im Granulator ein. Außerdem treten nur ganz geringe Schwankungen auf. Die zeitliche Entwicklung der Partikelgrößenverteilung im Produktbehälter (Abbildung 4.72) verläuft wie in den vorherigen Versuchen ohne Schwankungen im Größenbereich der zwei eingesetzten Siebe.

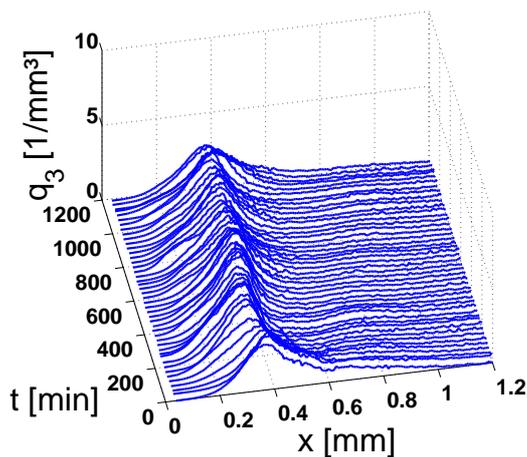


Abbildung 4.71: Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen in der Wirbelschichtkammer für V5

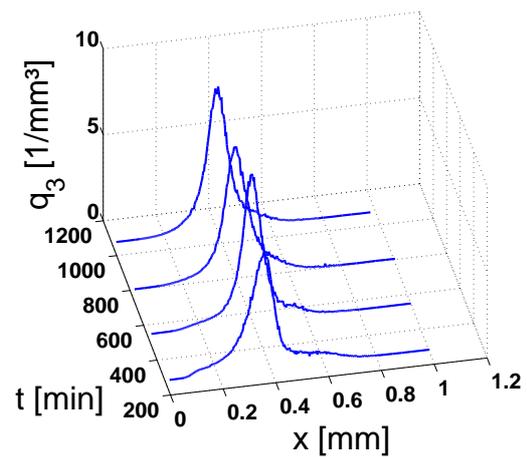
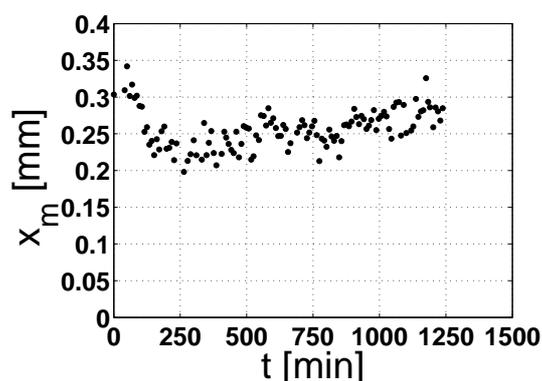


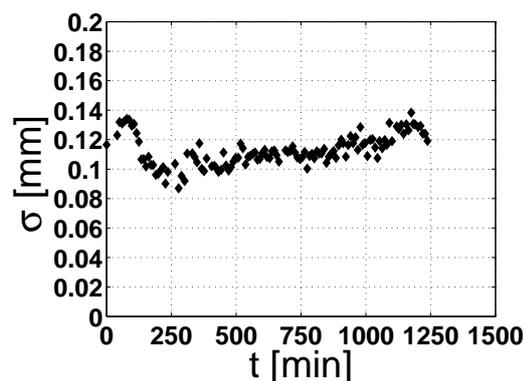
Abbildung 4.72: Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen im Produktbehälter für V5

Erneut wurden zur besseren Darstellung des Partikelwachstums während des Experiments der Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers (Abbildung 4.73) und die Standardabweichung

chung der Partikelgrößenverteilungen (Abbildung 4.74) über die Zeit aufgetragen. Der mittlere Partikeldurchmesser fällt von anfangs 0,3 mm auf bis zu 0,2 mm. Nach 250 Minuten beginnt der mittlere Partikeldurchmesser dann aber langsam wieder anzusteigen. Am Ende des Experiments, nach 1250 Minuten, hat der mittlere Partikeldurchmesser einen Wert von 0,29 mm erreicht. Ein ähnlicher Trend lässt sich auch für die Werte der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilung erkennen. Der für die Standardabweichung gemessene Wert fällt von anfangs 0,12 mm auf circa 0,09 mm ab. Ab Minute 250 der Prozesszeit steigt der Wert ebenfalls langsam an und erreicht am Ende des Experiments nach 1250 Minuten wieder einen Wert von 0,12 mm.



**Abbildung 4.73:** Zeitlicher Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers  $x_m$  in der Schicht für V5



**Abbildung 4.74:** Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für V5

Im letzten Experiment der Versuchsreihe soll erneut ausschließlich die Prozessstabilität bei konstant bleibenden Prozessparametern untersucht werden. Die Prozesszeit beträgt nun nur noch 485 Minuten. Die Eintrittstemperatur wurde auf 185°C nochmals leicht erhöht. Mit 18,30 kg/h wurde die Eindüsungsrate etwas niedriger als im dritten Experiment der Versuchsreihe gewählt. Des Weiteren wurde ein Sieb mit einer Maschenweite von 0,5 mm, anstatt wie bisher von 0,6 mm, eingesetzt, um möglichst eine noch engere Produktfraktion zu erhalten. Dass die Versuchsparameter konstant gehalten werden, erkennt man gut in der Abbildung 4.75 für die Gastemperaturen und in der Abbildung 4.76 für die Gasfeuchten. Mit dem Start der Eindüsung zu Beginn des Experiments fällt die Gasaustrittstemperatur und die Gasaustrittsfeuchte steigt auf jeweils einen konstant Wert.

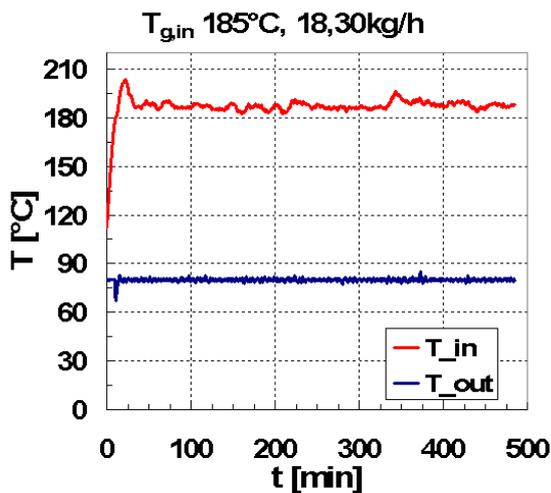


Abbildung 4.75: Zeitlicher Verlauf der Gastemperatur für V6

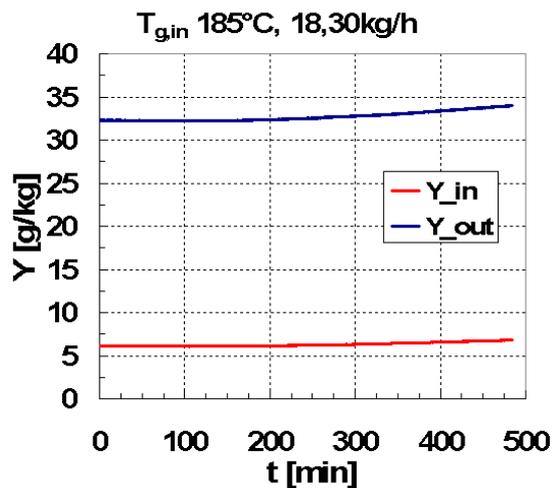


Abbildung 4.76: Zeitlicher Verlauf der Gasbeladung für V6

Auf Grund der ähnlich wie in Experiment V5 gewählten Prozessparameter, ergeben sich auch ähnliche Verläufe für die zeitliche Entwicklung der Partikelgrößenverteilung sowohl in der Wirbelschichtkammer (Abbildung 4.77), als auch im Produktbehälter (Abbildung 4.78). In der Wirbelschichtkammer sind die Partikelfraktionen im Bereich über 0,5 mm nach circa 200 Minuten vollständig verschwunden und es stellt sich ein stabiler Zustand im Granulator ein. Mit zunehmender Prozesszeit ist eine leichte Verschiebung der Partikelgrößenverteilungen hin zu größeren Partikeldurchmessern festzustellen. Die zeitliche Entwicklung der Partikelgrößenverteilung im Produktbehälter verläuft wie in den vorherigen Versuchen ohne Schwankungen im Bereich der zwei eingesetzten Siebe, allerdings ist die Verteilung auf Grund des kleiner gewählten Siebs etwas enger als im vorherigen Experiment.

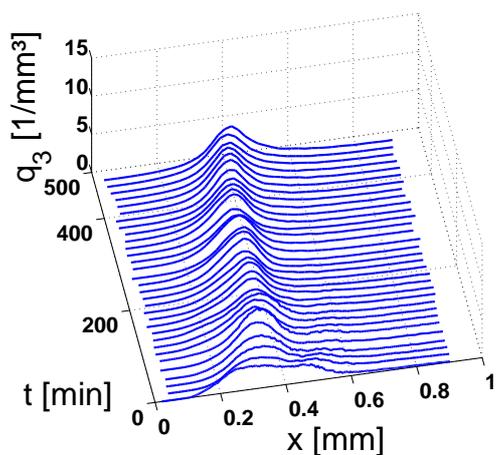


Abbildung 4.77: Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen in der Wirbelschichtkammer für V6

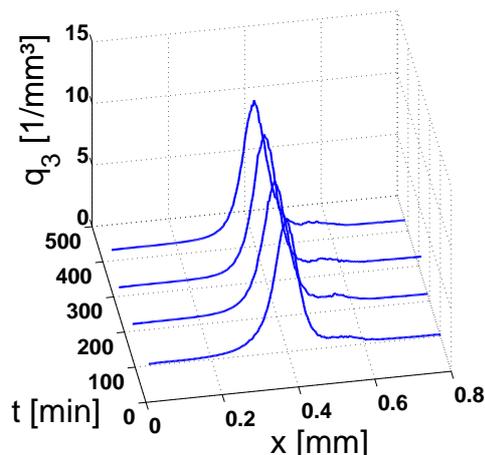
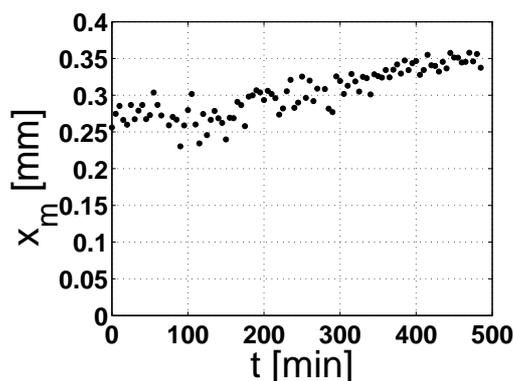
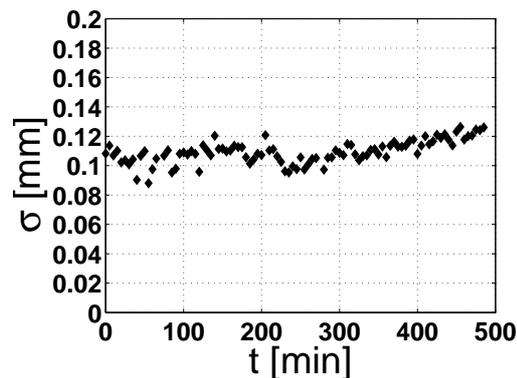


Abbildung 4.78: Zeitlicher Verlauf der Partikelgrößenverteilungen im Produktbehälter für V6

Analog zu den vorangegangenen Versuchen wurde auch für dieses Experiment zur besseren Darstellung des Partikelwachstums der Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers (Abbildung 4.79) und die Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen (Abbildung 4.80) über die Zeit aufgetragen. Der mittlere Partikeldurchmesser steigt kontinuierlich von anfangs 0,25 mm auf bis zu 0,35 mm nach 485 Minuten an. Ein ähnlicher Trend lässt sich auch für die Werte der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilung erkennen. Zu Beginn liegt der Wert für die Standardabweichung bei 0,11 mm und steigt dann ebenfalls sehr leicht an. Nach 485 Minuten, am Ende des Versuchs, liegt der Wert für die Standardabweichung der Partikelgrößenverteilung bei 0,13 mm.



**Abbildung 4.79:** Zeitlicher Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers  $x_m$  in der Schicht für V6



**Abbildung 4.80:** Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für V6

Zusammenfassend für die letzte Versuchsreihe ist zu sagen, dass die zeitliche Entwicklung der Partikelgrößenverteilung, ähnlich wie bereits in der vierten Versuchreihe gezeigt, von den gewählten Prozessparametern abhängt und diese Auswirkung auf die Prozessstabilität haben kann. Allerdings wirken sich bei der externen Klassierung die Oszillationen in der Partikelgrößenverteilung im Prozess nicht auf die Produktfraktion aus. So findet bei der kontinuierlichen Wirbelschichtsprühgranulation mit externer Klassierung keine erkennbar negative Beeinflussung der Produktqualität statt.

# Kapitel 5

## Diskussion

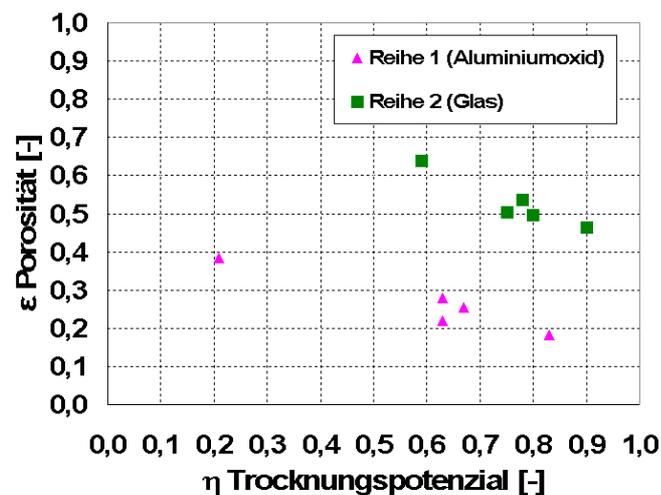
Ziel der Arbeit war die Identifikation von Prozessgrößen, die das Partikelwachstum beeinflussen. In diesem Kapitel sollen zunächst die Ergebnisse aus Kapitel 4 der Versuchsreihen für die Chargengranulation diskutiert werden. Speziell soll der Zusammenhang zwischen dimensionslosem Trocknungspotenzial, welches sich aus den gewählten Prozessparametern ergibt, und der dafür gemessenen Porosität der Granulathülle dargestellt werden. Dabei wird besonders der Einfluss der unterschiedlichen Primärmaterialien ( $\gamma$ -Aluminiumoxid und Glas) beleuchtet. Außer den verschiedenen Primärmaterialien wird auch die Änderung der Anlagengröße durch Gegenüberstellung der ersten und der dritten Versuchsreihe aus Kapitel 4 diskutiert. Anschließend wird für die Versuchsreihen der diskontinuierlichen Granulation jeweils eine Approximation der Versuchsergebnisse mittels einer linearen Gleichung dargestellt. Daraus folgend wird die Berechnung der Porositäten für die Granulathülle für die Versuche mit kontinuierlicher Prozessführung beschrieben.

### 5.1 Untersuchung des Primärmaterialeinflusses

Die Quantifikation des Einflusses des Primärmaterials auf das Partikelwachstum wird anhand der experimentellen Daten vorgenommen. Hierfür werden die Messergebnisse für die Porosität der Granulathülle und die gemessenen Werte für das dimensionslose Trocknungspotenzial aus der ersten und der zweiten Versuchsreihe herangezogen. Die einzelnen Werte sind in Abbildung 5.1 grafisch dargestellt. Allgemein ist festzustellen, dass mit steigendem Trocknungspotenzial für beide Versuchsreihen die Porosität der Granulathülle ähnlich sinkt. Allerdings liegen die Messwerte für die Porosität der Granulathülle für die Versuchsreihe, welche Glas als Primärmaterial verwendet, über denen der Versuchsreihe, die  $\gamma$ -Aluminiumoxid als Primärmaterial verwendet. Diese Abweichung könnte durch die unterschiedlichen Primärmaterialien hervorgerufen werden. Speziell die Oberflächen der Primärpartikel unterscheiden sich stark. Die poröse Partikeloberfläche des  $\gamma$ -Aluminiumoxids lässt die Möglichkeit zu, dass sich sowohl aufgedüστε Lösung, als auch Feststoff in den Poren der Partikel ansammeln kann. Die unporöse Oberfläche der Glaspartikel lässt dies dagegen nicht zu. Dieser Unterschied beeinflusst die Bildung der Granulathülle.

Des Weiteren liegen auch die Werte für das dimensionslose Trocknungspotenzial im Durchschnitt für die Versuchsreihe, welche Glas als Primärmaterial verwendet, über denen aus der Versuchsreihe, welche  $\gamma$ -Aluminiumoxid als Primärmaterial verwendet. Dieser Unter-

schied ergibt sich trotz identischer Eindüsungsraten und identischer Gaseintrittstemperaturen. Der Grund für den Unterschied im Trocknungspotenzial resultiert aus den unterschiedlichen Gasmassenströmen, die zur Fluidisierung des jeweiligen Primärmaterials nötig waren. Die unterschiedliche Fluidisierung erfolgte auf Grund der verschiedenen Feststoffdichten der Primärmaterialien. Deshalb liegen die Messwerte für die Gasfeuchtebeladung der Abluft für die Experimente mit höherem Gasmassenstrom trotz gleicher Eindüsungsrates und Gaseintrittstemperatur unter denen mit niedrigem Gasmassenstrom. Dieser Unterschied führt in der Berechnung des dimensionslosen Trocknungspotenzials nach Gleichung (2.83) zu leicht größeren Werten.

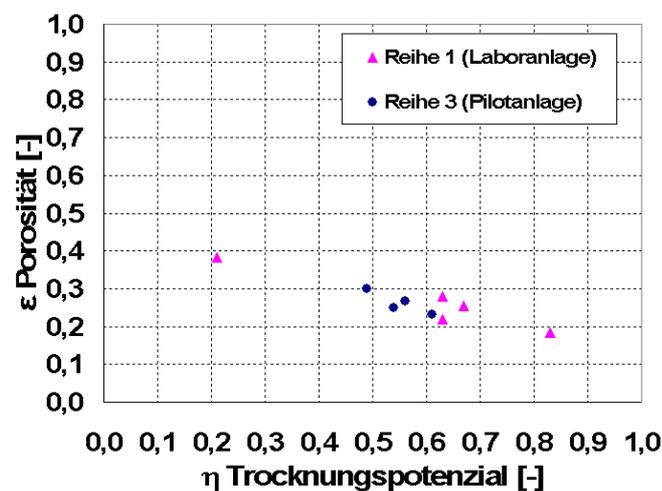


**Abbildung 5.1:** Vergleich der dimensionslosen Trocknungspotenziale mit den gemessenen Porositäten der Partikelhülle für verschiedene Ausgangsmaterialien

Insgesamt ist also festzustellen, dass das Primärmaterial einen Einfluss auf das Partikelwachstum hat. Die Unterschiede zwischen erster und zweiter Versuchsreihe resultieren sowohl aus den unterschiedlichen Kernmaterialien (porös und unporös), als auch aus den unterschiedlichen Gasmassenströmen, welche in den Versuchsreihen eingesetzt wurden. Weiter ist auch ersichtlich, dass für beide Versuchsreihen mit steigendem Trocknungspotenzial die Porosität der Granulathülle linear abnimmt. Somit liegen sowohl die Messwerte der Versuchsreihe, welche  $\gamma$ -Aluminiumoxid als Primärmaterial verwendet, als auch die Messwerte der Versuchsreihe, welche Glaspartikel als Primärmaterial verwendet, auf einer abfallenden Gerade. Allerdings liegt die Gerade für die Messwerte der Glaspartikel über der Geraden der  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikel. Bereits in Rieck et al. (2015) wird ein solcher Zusammenhang gezeigt. Es werden somit der Einfluss des Partikelwachstums auf die Trocknungsbedingungen und auch die Auswirkung der Trocknungsbedingungen auf das Partikelwachstum berücksichtigt. Diese Form der Kopplung beziehungsweise Rückkopplung stellt eine Verbesserung der bisherigen Wachstumsmodelle nach Uhlemann (1990), Mörl (1980) als auch Heinrich (2001) für die Wirbelschichtsprühgranulation dar.

## 5.2 Untersuchung des Einflusses der Anlagengröße

Zur Bestimmung des Einflusses der Anlagengröße auf das Partikelwachstum werden die experimentellen Daten aus der ersten und der dritten Versuchsreihe herangezogen. In Abbildung 5.2 wurden die Messwerte für die Porosität der Granulathülle über das dimensionslose Trocknungspotenzial aufgetragen. Die Messwerte für die Porosität der Granulathülle für die Versuchsreihe, die in der Pilotanlage (*WSA300*) durchgeführt wurde, liegen enger zusammen als die Messwerte für die Versuchsreihe, welche in der Laboranlage (*WSA150*) statt fand. Der geringere Abstand zwischen den Messwerten für die Pilotanlage ist durch die gewählten Prozessparameter zu erklären. So wurde die Gaseintrittstemperatur hier nur von 80°C bis 100°C anstatt wie in der Laboranlage von 50°C bis 95°C variiert. Auch die Variation der Eindüsungsrates fiel in der Pilotanlage geringer aus. Die Eindüsungsrates wurde lediglich von 5,9 kg/h auf 7,9 kg/h erhöht, was einer Erhöhung von 34 % entspricht. Im Gegensatz dazu fiel die Variation der Eindüsungsrates in der Laboranlage von 0,5 kg/h auf 1,1 kg/h, was einer Erhöhung von 120 % entspricht, deutlich größer aus. Der Grund für die enge Variation der Prozessparameter und der daraus resultierenden engeren Verteilung der Versuchsergebnisse ist dem Arbeitsbereich der Pilotanlage geschuldet. Speziell die an der Pilotanlage installierte Dosierpumpe ist hier als beeinflussender Faktor zu nennen. Sie ist für deutlich höhere Eindüsungsrates ausgelegt, so dass sich die Arbeitsbereiche der Labor- und der Pilotanlage nur begrenzt überlagern. Versuche mit einer Gaseintrittstemperatur unter 80°C waren bei der kleinstmöglichen Eindüsungsrates von 5,9 kg/h nicht möglich, da es während der Granulation zur Überfeuchtung und damit zu einer starken Agglomeration im Wirbelbett gekommen ist.



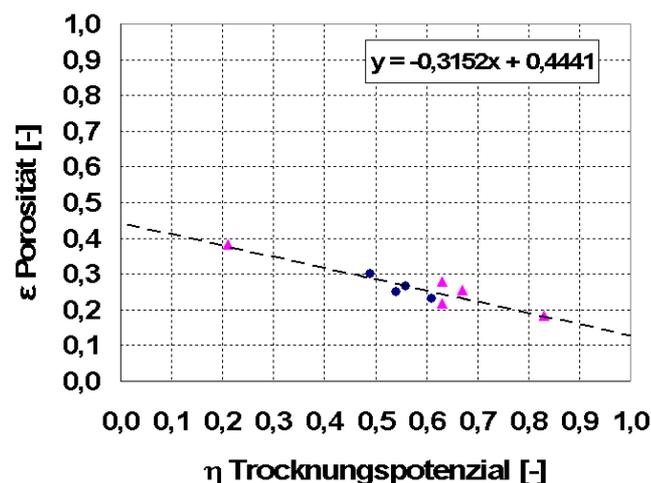
**Abbildung 5.2:** Vergleich der dimensionslosen Trocknungspotenziale mit den gemessenen Porositäten der Partikelhülle für verschiedene Anlagengrößen

In der Abbildung 5.2 ist klar erkennen, dass für beide Versuchsreihen die Porosität der Granulathülle mit steigendem Trocknungspotenzial abnimmt. Die Messwerte für die Pilot- und für die Laborgranulationsanlage liegen dabei auf einer abfallenden Geraden. Aus dem Verlauf der Messdaten wird deutlich, dass die Anlagengröße keinen Einfluss auf das Partikelwachstum hat. Die Unterschiede zwischen erster und dritter Versuchsreihe resultieren

lediglich aus den unterschiedlichen Arbeitsbereichen der Anlagen. Durch den Arbeitsbereich ist die Variationsspanne der Prozessparameter vorgegeben. Aus den gewählten Prozessparametern ergeben sich die entsprechenden Prozessgrößen, aus denen sich dann das dimensionslose Trocknungspotenzial bestimmen lässt.

### 5.3 Bestimmung der Porositätskorrelation

Für die Berechnungen des Partikelgrößenwachstums der Chargengranulation in den Versuchen *E1* bis *E18*, welche in den Abschnitten 4.1 und 4.2 beschrieben wurden, wurden die Porositäten der Granulathüllen verwendet. Diese wurden mittels der Röntgentomographie bestimmt. In den Abschnitten 5.1 und 5.2 wurde zudem gezeigt, dass ein linearer Zusammenhang zwischen dem dimensionslosen Trocknungspotenzial und der Porosität der Granulathülle besteht. Dieser Zusammenhang ist unabhängig von der Anlagengröße, lediglich die Art des Primärmaterials hat einen Einfluss auf diesen linearen Verlauf. In Abbildung 5.3 sind erneut die Messwerte für die erste und die dritte Versuchsreihe mit  $\gamma$ -Aluminiumoxid als Primärmaterial dargestellt.



**Abbildung 5.3:** Approximation der Messwerte für die Versuchsreihen mit  $\gamma$ -Aluminiumoxid mittels Regressionsgeraden

Diese Werte wurden durch eine Ausgleichsgerade (Gleichung (5.1)) beschrieben. Mit Hilfe dieser Approximation kann die Porosität der Granulathülle  $\varepsilon_{sh}$  bei bekanntem dimensionslosem Trocknungspotenzial  $\eta$  auch ohne aufwändige Röntgentomographiemessungen für die Berechnung des Partikelgrößenwachstums bestimmt werden:

$$\varepsilon_{sh} = -0,3152 \eta + 0,4441. \quad (5.1)$$

Durch den in Gleichung (5.1) beschriebenen Zusammenhang lässt sich die Entwicklung der Partikelgröße während der Wirbelschichtsprühgranulation bereits anhand der gewählten Prozessbedingungen abschätzen. Die hier gezeigte Korrelation weicht geringfügig von der bei Rieck et al. (2015) angegebenen Korrelation für die Beschichtung von  $\gamma$ -Aluminiumoxid

mit Natriumbenzoat ab. Dies kann auf die Berechnung des dimensionslosen Trocknungspotenzials  $\eta$  mit Hilfe der Sättigungsbeladung  $Y_{sat}$  zurückgeführt werden. Bei Rieck et al. wird die Sättigungsbeladung vom Gasaustrittszustand anstatt, wie in dieser Arbeit, vom Eintrittszustand der Fluidisierungsluft berechnet.

## 5.4 Partikelwachstum bei der kontinuierlichen Granulation

In diesem Abschnitt werden die im Kapitel 4 gezeigten Versuchsergebnisse für die kontinuierliche Granulation mit entsprechenden Berechnungen für das im Abschnitt 2.1 beschriebene Populationsbilanzmodell verglichen. Dabei wird die zeitliche Entwicklung der Partikelgröße sowohl für die kontinuierliche Granulation mit interner als auch mit externer Klassierung gezeigt. Eine Tabelle über alle Messwerte der einzelnen kontinuierlichen Versuche findet sich im Anhang E.1.

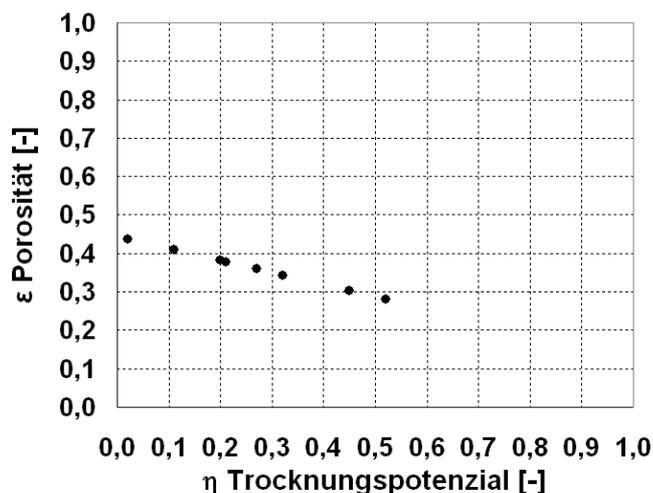
### 5.4.1 Berechnung der Porosität für die kontinuierliche Granulation

Die für die Berechnung des Partikelgrößenwachstums bei der kontinuierlichen Granulation nötige Porosität der Granulathülle wurde im Gegensatz zur diskontinuierlichen Granulation nicht experimentell bestimmt, sondern mit der in Abschnitt 5.3 formulierten Korrelation berechnet. Diese Korrelation wurde für die Beschichtung von  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikeln mit Natriumbenzoatlösung erstellt, ein möglicher Einfluss durch die Verwendung von Natriumbenzoat als Primärmaterial anstatt  $\gamma$ -Aluminiumoxid wurde hier nicht berücksichtigt. Für die Berechnung der Porosität wurde für die verschiedenen Prozesszustände in den Versuchen V1 bis V6 das entsprechende dimensionslose Trocknungspotenzial  $\eta$  berechnet und in der Tabelle 5.1 aufgeführt.

**Tabelle 5.1:** Trocknungspotenziale für die Versuche der kontinuierlichen Granulation

Versuchsbezeichnung	Klassierungsart	$T_{g,in}$ [ $^{\circ}C$ ]	$\dot{M}_{sus}$ [ $kg/h$ ]	$\eta$ [–]
V1	intern	100	12,89	0,21
V2	intern	90	9,65 - 10,66	0,27 - 0,11
V3	extern	100	9,52 - 12,89	0,32 - 0,20
V4	extern	120	13,19 - 22,98	0,45 - 0,02
V5	extern	180	19,15	0,52
V6	extern	185	18,29	0,52

Die nach Gleichung (5.1) berechneten Porositäten für die Granulathülle wurden in Abbildung 5.4 über das entsprechende dimensionslose Trocknungspotenzial aufgetragen. Die berechneten Porositäten reichen dabei von 28,0% bis 43,8%.



**Abbildung 5.4:** Darstellung der berechneten Porositäten der Partikelhülle für die dimensionslosen Trocknungspotenziale der kontinuierlichen Versuchsreihen

Mit den so bestimmten Porositäten für die Partikelhülle lässt sich mit dem vorgestellten Populationsbilanzmodell der zeitliche Verlauf der Partikelgröße während der kontinuierlichen Wirbelschichtsprühgranulation berechnen.

#### 5.4.2 Vergleich des Partikelwachstums aus Experiment und Simulation für die kontinuierliche Granulation

Für die Überprüfung des im Abschnitt 2.1.2.2 vorgestellten Populationsbilanzmodells werden in diesem Abschnitt die zeitliche Entwicklung der Partikelgröße aus der Simulation und dem entsprechenden Experiment gegenübergestellt. Alle für die Berechnung genutzten Parameter finden sich im Anhang E.2.

Mit den in Experiment V1 gewählten Prozessparametern und interner Klassierung wurde der theoretische Verlauf des Partikelwachstums zuerst berechnet. Zur besseren Darstellung wurden die Verläufe des mittleren Partikeldurchmessers (Abbildung 5.5) und der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen (Abbildung 5.6) über die Zeit aufgetragen. Beim Vergleich zwischen Simulation und Experiment für den mittleren Partikeldurchmesser liegen die Tendenzen ähnlich, allerdings weist die Simulation nicht ganz so starke Schwankungen auf und pendelt sich am Ende des Versuchs auf einen nahezu konstanten Wert ein. Der Vergleich für die Standardabweichung zeigt ebenfalls eine gute Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment. Auch hier sind die Schwankungen im zeitlichen Verlauf für das Experiment größer als in der Simulation.

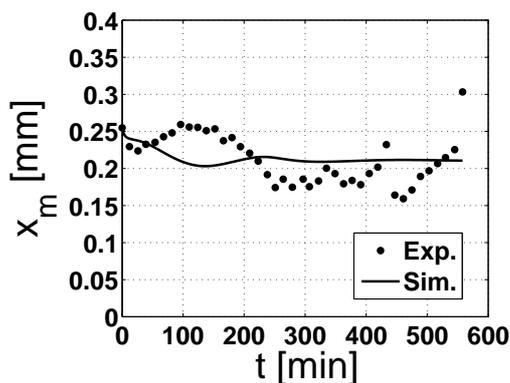


Abbildung 5.5: Vergleich der zeitlichen Entwicklung des mittleren Partikeldurchmessers  $x_m$  in der Schicht für den Versuch V1 und die entsprechende Simulation

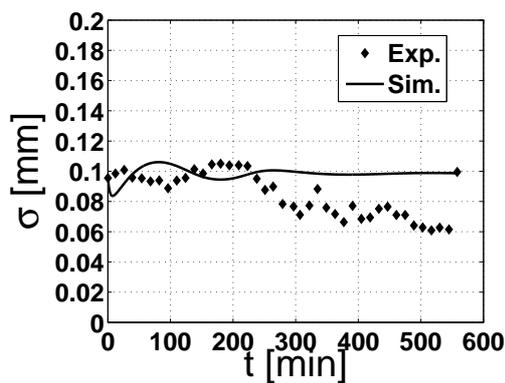


Abbildung 5.6: Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für den Versuch V1 und die entsprechende Simulation

Für das Experiment V2 liegen beim Vergleich zwischen Simulation und Experiment für den mittleren Partikeldurchmesser die Tendenzen ähnlich, beide zeigen einen leichten Anstieg (Abbildung 5.7). Der Vergleich für die Standardabweichung zeigt ebenfalls eine gute Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment, allerdings zeigen die Werte für die Standardabweichung im Experiment leichte Schwankungen, wogegen die Werte für die Standardabweichung in der Simulation konstant verlaufen (Abbildung 5.8).

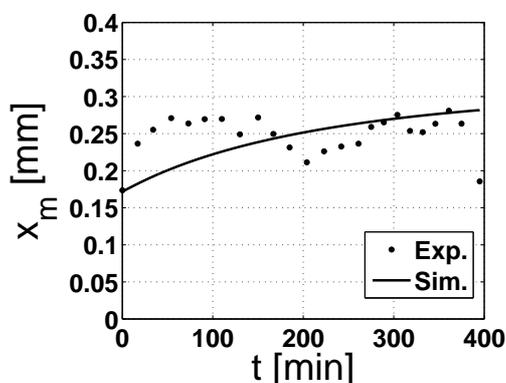


Abbildung 5.7: Vergleich der zeitlichen Entwicklung des mittleren Partikeldurchmessers  $x_m$  in der Schicht für den Versuch V2 und die entsprechende Simulation

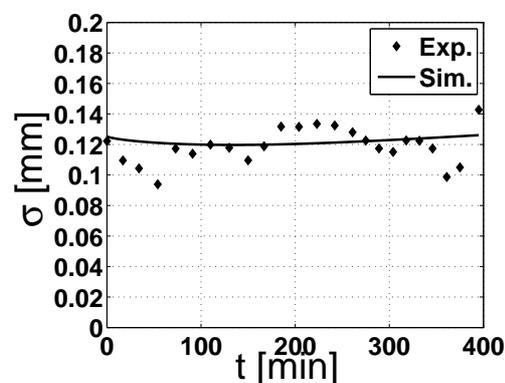
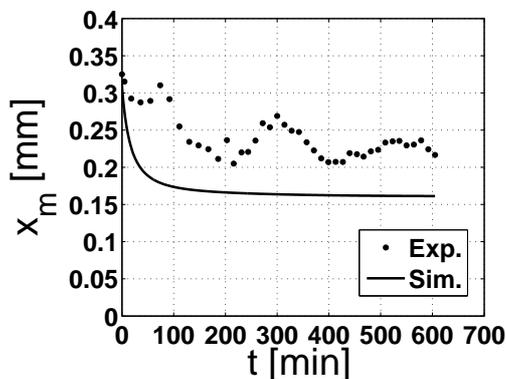


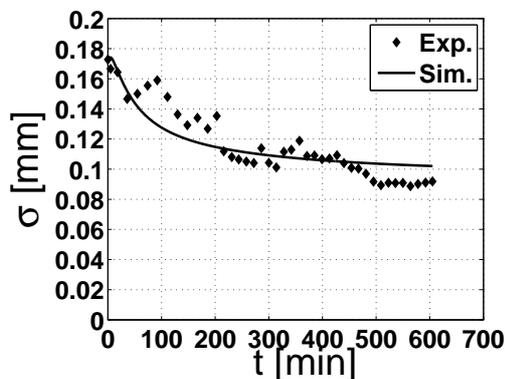
Abbildung 5.8: Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für den Versuch V2 und die entsprechende Simulation

Für die gewählten Prozessparameter im Experiment V3 und externe Klassierung zeigen beim Vergleich zwischen Simulation und Experiment für den mittleren Partikeldurchmesser (Abbildung 5.9) beide Verläufe zum Anfang des Versuchs eine kontinuierliche Abnahme. Im späteren Verlauf stellen sich in beiden Fällen konstante Werte ein. Allerdings liegen die Werte für die Simulation leicht unter denen aus dem Experiment. Auch beim

Vergleich der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilung aus Experiment und Simulation ist ein abnehmender Verlauf zu erkennen (Abbildung 5.10). Im Gegensatz zum mittleren Partikeldurchmesser besteht hier keine Abweichung zwischen Simulation und Experiment, beide Verläufe sind fast identisch.

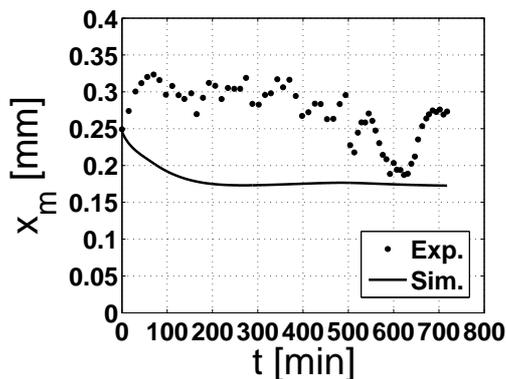


**Abbildung 5.9:** Vergleich der zeitlichen Entwicklung des mittleren Partikeldurchmessers  $x_m$  in der Schicht für den Versuch *V3* und die entsprechende Simulation

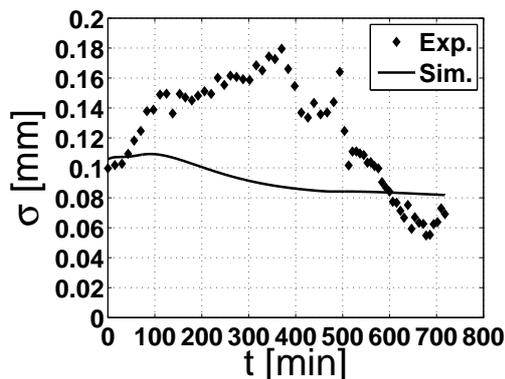


**Abbildung 5.10:** Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für den Versuch *V3* und die entsprechende Simulation

Analog zum vorangegangenen Versuch wurde auch für das Experiment *V4* der theoretische Verlauf des Partikelwachstums ebenfalls für die kontinuierliche Granulation mit externer Klassierung berechnet. Zur besseren Vergleichbarkeit wurden ebenfalls nur die Verläufe des mittleren Partikeldurchmessers (Abbildung 5.11) und der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilung (Abbildung 5.12) über die Zeit aufgetragen. Der Vergleich zwischen Simulation und Experiment für den Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers zeigt keine gute Übereinstimmung. Während die Werte in der Simulation anfangs leicht absinken und später nach circa 200 Minuten konstant verlaufen, zeigen die experimentellen Werte einen anderen Verlauf. Anfangs steigen sie leicht an, dann bleiben sie bis circa 500 Minuten annähernd konstant. Im späteren Verlauf nimmt die Schwankung der Werte leicht zu. Ähnliches ist auch im Diagramm für die Standardabweichung der Partikelgrößenverteilung zu sehen. Die Werte für die Simulation sind anfangs konstant, fallen aber nach circa 200 Minuten leicht ab. Nach circa 500 Minuten stellt sich wieder ein konstanter Verlauf ein. Die experimentellen Werte zeigen zu Beginn des Versuchs einen Anstieg und liegen über denen aus der Simulation. Nach etwa 500 Minuten fallen die experimentellen Werte und nähern sich wieder denen aus der Simulation an.

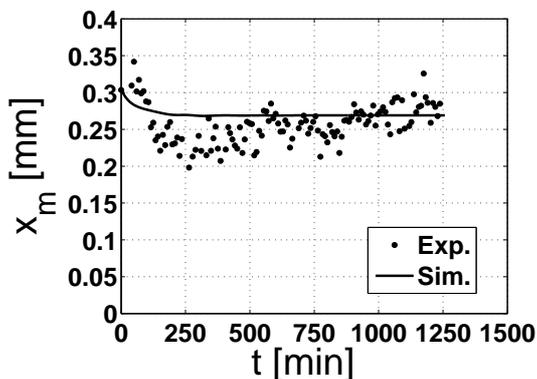


**Abbildung 5.11:** Vergleich der zeitlichen Entwicklung des mittleren Partikeldurchmessers  $x_m$  in der Schicht für den Versuch V4 und die entsprechende Simulation

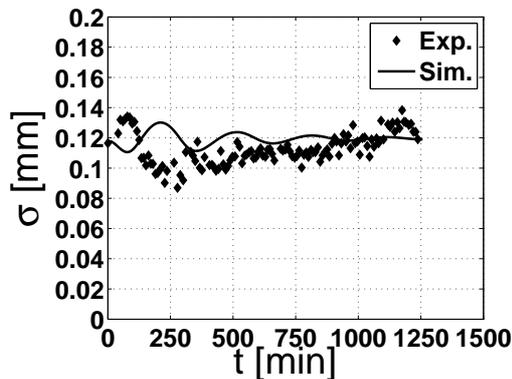


**Abbildung 5.12:** Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für den Versuch V4 und die entsprechende Simulation

Der Vergleich zwischen Simulation und Experiment zeigt für Experiment V5 eine sehr gute Übereinstimmung. In beiden Fällen sinkt der mittlere Partikeldurchmesser (Abbildung 5.13) mit Beginn des Experiments ab. Nach circa 250 Minuten verläuft der mittlere Partikeldurchmesser in der Simulation konstant, wobei sich im Verlauf des mittleren Partikeldurchmessers im Experiment ein ganz leichter Anstieg abzeichnet. Auch beim Vergleich der Verläufe für die Standardabweichung aus Simulation und Experiment wird eine sehr gute Übereinstimmung erzielt (Abbildung 5.14). Zu Anfang des Experiments schwanken beide Verläufe leicht, werden aber nach circa 250 Minuten zunehmend konstant.



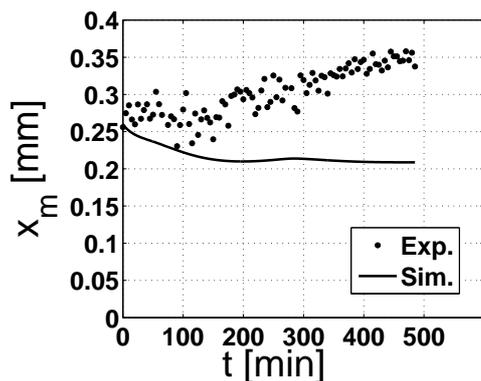
**Abbildung 5.13:** Vergleich der zeitlichen Entwicklung des mittleren Partikeldurchmessers  $x_m$  in der Schicht für den Versuch V5 und die entsprechende Simulation



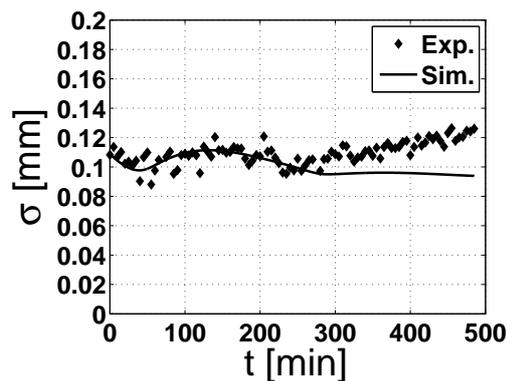
**Abbildung 5.14:** Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für den Versuch V5 und die entsprechende Simulation

Analog zu den vorangegangenen Versuchen wurde auch das Experiment V6 analysiert. Die Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment für den mittleren Partikeldurchmesser ist anfangs noch gut, verschlechtert sich aber mit steigender Prozesszeit (Abbildung

5.15). Die Werte für die Simulation liegen unter denen des Experiments und sinken leicht ab. Nach 200 Minuten bleiben sie konstant. Die Werte aus dem Experiment verlaufen anfangs konstant und steigen nach etwa 200 Minuten leicht an. Beim Vergleich der Verläufe für die Standardabweichung aus Simulation und Experiment ist die Übereinstimmung besser (Abbildung 5.16). Zu Anfang des Experiments schwanken beide Verläufe leicht, werden aber nach circa 200 Minuten zunehmend konstant. Allerdings steigen die Werte aus dem Experiment ab diesem Zeitpunkt leicht an, wogegen die Werte aus der Simulation konstant bleiben.



**Abbildung 5.15:** Vergleich der zeitlichen Entwicklung des mittleren Partikeldurchmessers  $x_m$  in der Schicht für den Versuch V6 und die entsprechende Simulation



**Abbildung 5.16:** Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht für den Versuch V6 und die entsprechende Simulation

Trotz der Verwendung von unterschiedlichen Versuchsmaterialien zeigen die experimentellen Daten für die kontinuierliche Wirbelschichtgranulation mit interner und externer Klassierung und die entsprechenden Simulationen eine gute Übereinstimmung. Das Partikelwachstum beziehungsweise das Wachstum der Granulathülle lässt sich mit Hilfe der in Abschnitt 5.3 aufgestellten Porositätskorrelation berechnen. Allerdings wurden viele Parameter in den Versuchen variiert und die Empfindlichkeit des Wachstumsmodells auf einzelne Parameter wurde nicht weiter untersucht.

# Kapitel 6

## Zusammenfassung

In der feststoffverarbeitenden Industrie spielt häufig nicht nur die Produktmenge eine Rolle, sondern auch die Produktqualität, welche für den am Markt erzielbaren Produktpreis ausschlaggebend ist. Die Technologie der Wirbelschicht bietet ein Verfahren, das ohne bewegliche Teile auskommt. Alle notwendigen Prozessschritte, wie zum Beispiel Befeuchtung, Beschichtung, Trocknung und Kühlung lassen sich im selben Apparat realisieren. Die gewünschte Produktqualität lässt sich so in einem einzigen Produktionsschritt erreichen. Durch die Schlichtheit des Wirbelschichtapparats konzentriert sich die Prozessgestaltung hauptsächlich auf die Auswahl der Prozessparameter. Daher ist es von hohem Interesse, den Einfluss von verschiedenen Prozessparametern auf den Wirbelschichtprozess, speziell auf das Partikelwachstum, zu charakterisieren. Ziel dieser Arbeit ist die Definition der wichtigsten Einflussgrößen auf das Partikelwachstum für den Prozess der Wirbelschichtsprühgranulation. Zusätzlich wird der Zusammenhang zwischen den thermodynamischen Größen und der daraus resultierenden Partikelstruktur beschrieben. Die vorliegende Arbeit gliedert sich in die drei Themenschwerpunkte Modellierung, experimentelle Untersuchung und Vergleich von entsprechenden Ergebnissen aus Experiment und Simulation.

**Kapitel 1** dieser Arbeit gibt einen Überblick über den aktuellen Stand des Wissens, wobei eine Einteilung in drei Schwerpunkte vorgenommen wird. Anhand von relevanter Literatur wird das Prinzip der Wirbelschichtsprühgranulation erläutert. Des Weiteren wird durch die Schilderung von einzelnen Mikroprozessen, die während der Wirbelschichtsprühgranulation ablaufen, die Komplexität des Verfahrens dargestellt. Dabei werden Methoden aus der Literatur beschrieben, welche zum Beispiel die Partikelbewegungen im Prozess erfassen, und auch Untersuchungen, die am Einzeltropfen durchgeführt werden. Darüber hinaus wird in diesem Kapitel ein Überblick über die Modellierung von partikelbildenden Prozessen in der Wirbelschicht gegeben. Aus diesem Zusammenhang wird die vorliegende Arbeit motiviert und das Ziel der durchgeführten experimentellen Untersuchungen genannt.

Neben der experimentellen Untersuchung kann der Prozess des Partikelwachstums in der Wirbelschichtsprühgranulation auch durch etablierte theoretische Modelle erfasst werden. Die Beschreibung der Wirbelschichtsprühgranulation mit entsprechenden mathematischen Modellen erfolgt im **Kapitel 2**. Zur Beschreibung von zeitlichen Änderungen in verteilten dispersen Systemen werden Populationsbilanzen verwendet. Für die Anwendung der allgemeinen Populationsbilanz, in der neben Zu- und Abflüssen auch Quellen und Sen-

ken berücksichtigt werden, auf den Granulationsprozess, ist es notwendig, gewisse Modellannahmen zu treffen. So wird die Beschreibung der Partikelphase auf Basis reinen Wachstums und unter Ausschluss von Aggregation und Bruch durchgeführt. Für die diskontinuierliche Wirbelschichtsprühgranulation wird außerdem der Quell- bzw. Senkenterm vernachlässigt. Zusätzlich findet eine Unterteilung des Bilanzraums in zwei Zonen statt, um die Auswirkung von einer heterogenen Flüssigkeitsverteilung berücksichtigen zu können. Für die kontinuierliche Granulation wird sowohl ein Modellansatz für die interne Klassierung als auch für die externe Klassierung vorgestellt. In einem weiteren Abschnitt wird die Kinetik der Populationsbilanz beschrieben. Dabei wird einerseits das von Uhlemann und Mörl beschriebene partikelgrößenunabhängige Wachstum und andererseits auch ein partikelgrößenabhängiges Wachstum hergeleitet. Wobei sich das partikelgrößenunabhängige Wachstum aus der verallgemeinerten Form für das partikelgrößenabhängige Wachstum ableiten lässt. Beide Herleitungen berücksichtigen die mögliche Ausbildung einer porösen Granulathülle, allerdings bietet der Ansatz für das partikelgrößenabhängige Wachstum durch die Linearkombination verschiedener Wachstumskinetiken die bestmögliche Anpassung an eine Gesamtwachstumsrate. Zur besseren Veranschaulichung der verschiedenen Ansätze für das Partikelwachstum wurden Simulationsergebnisse sowohl für das Ein-Zonen-Modell, als auch für das Zwei-Zonen-Modell präsentiert.

Neben der Beschreibung des Partikelwachstums ist auch die Modellierung der Trocknung Inhalt in diesem Kapitel, wobei ausschließlich die thermische Trocknung berücksichtigt wird. Auch für die Modellierung des Trocknungsprozess müssen gewisse Modellannahmen getroffen werden. So erfolgt die Berechnung der Verläufe für die Luft- und Partikeltemperatur, sowie für die Luft- und Partikelbeladung aus der Bilanzierung der Massen und der Enthalpien für die Luft, den Feststoff und das darin enthaltene Wasser. Die Bilanzierung wird für den diskontinuierlichen und auch für den kontinuierlichen Prozess dargestellt. Der zeitliche Verlauf der Trocknung wird durch die Berechnung der Trocknungsgeschwindigkeit beschrieben, wobei zwischen dem ersten und dem zweiten Trocknungsabschnitt unterschieden wird. Zudem wird auch das dimensionslose Trocknungspotenzial erläutert, welches als Maß zwischen der noch möglichen Verdampfungsmenge zur maximal möglichen Verdampfungsmenge steht.

Die für diese Arbeit genutzten Versuchsanlagen, die eingesetzten Messmethoden für die Bestimmung der Partikelgrößenverteilung, der Partikelporosität und der Gasfeuchte, sowie die verwendeten Versuchsmaterialien werden in **Kapitel 3** aufgeführt. Es werden zwei unterschiedliche Anlagengrößen verwendet, eine kleinere Laborgranulationsanlage und eine größere Pilotgranulationsanlage. Die Ermittlung der Partikelgrößenverteilung erfolgt ausschließlich offline mittels digitalem Bildanalysegerät und die Messung der Partikelporosität erfolgt mittels Röntgentomographie. Als weitere die Partikelstruktur charakterisierende Messmethode wird die Rasterelektronenmikroskopie beschrieben. Neben der Bestimmung von Partikeleigenschaften wird auch die Messung der Gasfeuchte zur Beschreibung der vorliegenden Prozessbedingungen aufgezeigt. Zudem werden in diesem Kapitel die verwendeten Versuchsmaterialien ( $\gamma$ -Aluminiumoxid, Glas und Natriumbenzoat) hinsichtlich ihrer Partikelgrößenverteilung, Porosität und Partikeloberfläche charakterisiert.

In **Kapitel 4** werden die durchgeführten experimentellen Versuche detailliert beschrieben. Das Hauptaugenmerk bei den Experimenten war die Variation von Prozessparametern wie Eintrittstemperatur der Fluidisierungsluft, Eindüsungsrates der Natriumbenzoatlösung und die Art des Primärmaterials. Weitere Versuchsreihen mit unterschiedlichen Anlagengrößen dienen zur Identifikation des Einflusses der Anlagendimension auf das Partikelwachstum.

Auch die Übertragung auf den kontinuierlichen Prozess mit interner und externer Klassierung wird durch entsprechende Versuchsreihen untersucht.

Zunächst werden zwei Versuchsreihen in der kleineren Laborgranulationanlage beschrieben. Dabei wird jeweils die Eintrittstemperatur der Fluidisierungsluft und die Eindüsungsrates der Natriumbenzoatlösung variiert. Der Unterschied zwischen den zwei Versuchsreihen besteht in der Art des Primärmaterials. In der ersten Versuchsreihe werden poröse  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikel verwendet und in der zweiten Versuchsreihe unporöse Glaspartikel. Die Ergebnisse für die zwei Versuchsreihen zeigen, dass in Abhängigkeit der gewählten Prozessparameter unterschiedliche Partikelhüllen auftreten können. Die Ablagerung des eingedüsten Feststoffs erfolgt also abhängig von den vorherrschenden Prozessbedingungen, welche sich durch die Einführung des dimensionslosen Trocknungspotenzials in einem Parameter zusammenfassen lassen. Aus den Vergleichen der einzelnen Versuche lässt sich der Trend ableiten, dass mit Anstieg des dimensionslosen Trocknungspotenzials die Ausprägung der Granulathüllen kompakter und glatter erscheint. Die Porosität der Granulathülle nimmt ab. Am Ende jeder Versuchsreihe werden die zeitlichen Entwicklungen der Partikelgrößenverteilung aus Experiment und Simulation miteinander verglichen. Dabei zeigt die modellbasierte Berechnung eine sehr gute Übereinstimmung mit dem experimentell bestimmten Partikelwachstum.

Die Durchführung der dritten Versuchsreihe dient zur Untersuchung des Einflusses der Anlagengröße auf das Partikelwachstum. In der größeren Pilotgranulationsanlage werden erneut diskontinuierliche Granulationsversuche durchgeführt, bei denen die Eintrittstemperatur der Fluidisierungsluft und die Eindüsungsrates der Natriumbenzoatlösung variiert werden. Analog zur ersten Versuchsreihe werden poröse  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikel als Primärmaterial verwendet. Die gewählten Prozessparameter orientieren sich an den ersten zwei Versuchsreihen. Die Ergebnisse dieser Versuchsreihe bestätigen die bereits in den ersten zwei Versuchsreihen erkennbaren Zusammenhänge. Die Ausbildung der Granulathülle wird durch die vorherrschenden Prozessparameter beeinflusst. Je größer das dimensionslose Trocknungspotenzial, desto kompakter und unporöser ist die Granulathülle. Der Vergleich für die zeitlichen Entwicklungen der Partikelgrößenverteilung aus Experiment und Simulation zeigt ebenfalls eine gute Übereinstimmung.

In den letzten zwei Versuchsreihen steht der Prozess der kontinuierlichen Wirbelschichtsprühgranulation mit interner und externer Klassierung im Fokus. Auch für diese Prozessform wird durch die Variation von Prozessparametern deren Einfluss auf das Partikelwachstum untersucht, wobei besonders die Auswirkung auf die Prozessstabilität von Interesse ist. Alle kontinuierlichen Versuche werden mit Natriumbenzoat durchgeführt, sowohl als Primärmaterial als auch als eingedüsten Feststoff. Dies ist für den Prozess der kontinuierlichen Granulation erforderlich. Es zeigt sich, dass für den kontinuierlichen Granulationsprozess mit interner Klassierung die Prozessparameter die Prozessstabilität durch Oszillationen in der Partikelgrößenverteilung beeinflussen können. Diese Schwankungen wirken sich bei der internen Klassierung auch auf die Produktfraktion aus, was sich wiederum negativ auf die Produktqualität auswirkt. Bei der kontinuierlichen Granulation mit externer Klassierung zeigt sich ebenfalls, dass sich die Prozessparameter die Prozessstabilität beeinflussen. Allerdings wirken sich die Oszillationen der Partikelgrößenverteilung im Granulator nicht auf die Produktfraktion und damit auf die Produktqualität aus.

**Kapitel 5** diskutiert die Ergebnisse der durchgeführten experimentellen Versuche und vergleicht diese mit entsprechenden Simulationen. Zunächst wird der Einfluss des Primärmaterials auf das Partikelwachstum durch den Vergleich der gemessenen Porositäten der

Granulathülle aus der ersten und der zweiten Versuchsreihe dargelegt. Es zeigt sich, dass bei einem porösen Primärmaterial wie  $\gamma$ -Aluminiumoxid die Porositäten der Granulathülle kleiner sind als bei einem unporösen Primärmaterial wie Glas. Ebenfalls wird der Einfluss der Anlagengröße durch die Gegenüberstellung der gemessenen Porositäten der Granulathülle aus der ersten und der dritten Versuchsreihe geschildert. Hierbei zeigt sich, dass die Anlagengröße keinen Einfluss auf das Partikelwachstum hat. Der durch die experimentellen Untersuchungen identifizierte Zusammenhang zwischen dimensionslosem Trocknungspotenzial, welches die verschiedenen Prozessparameter berücksichtigt, und der Porosität der Granulathülle, welche die zeitliche Entwicklung der Partikelgrößenverteilung im Prozess beschreibt, wird durch die Bestimmung einer Porositätskorrelation wiedergegeben. Mit Hilfe der aufgestellten Korrelation kann die Porosität der Granulathülle aus den gewählten Prozessparametern über das dimensionslose Trocknungspotenzial berechnet werden. Die aufwändigen Röntgentomographiemessungen entfallen. Im letzten Abschnitt des Kapitels wird die Porositätskorrelation bei der Berechnung der Porosität der Granulathülle für die durchgeführten kontinuierlichen Wirbelschichtversuche angewendet. Somit lässt sich die zeitliche Entwicklung der Partikelgrößenverteilung mit dem eingeführten Populationsmodell auch für den kontinuierlichen Granulationsprozess vorhersagen. Der Vergleich für das Partikelwachstum zwischen Experiment und Simulation zeigt eine gute Übereinstimmung und legt damit nahe, dass die zuvor mittels Korrelation berechneten Porositäten für die Granulathülle im Modell, denen aus dem Experiment entsprechen.

Allerdings soll an dieser Stelle nochmals erwähnt werden, dass die Trocknungsmodellannahme einer gleichmäßigen Flüssigkeitsverteilung an der Partikeloberfläche in der Eindüsungzone eine starke Vereinfachung ist und sich physikalisch nicht begründen lässt. Viel mehr ist davon auszugehen, dass eine Teilbenetzung stattfindet. Durch die Einführung eines Benetzungsgrades auf der Partikeloberfläche ließen sich diese physikalischen Vorgänge besser beschreiben. Hierfür sind aber fundierte Kenntnisse über die Teilschritte der Benetzung nötig. Dabei reicht die Kenntnis über einzeln Teilschritte nicht aus, sondern es muss die gesamte Historie des Flüssigkeitstropfens berücksichtigt werden, angefangen von der Entstehung des Tropfens über die Schrumpfung, den Zeitpunkt des Auftreffens auf die Partikeloberfläche, die Spreitung auf dem Partikel bis hin zur Teileinsaugung und Verfestigung. Diese Vorgänge hängen von einer Vielzahl an Faktoren ab (u.a. von der Eindüsungsrage, dem Düsendruck, der Form des Sprühkegels, der Gaseintrittstemperatur, der Konzentration des Feststoffs in der Lösung, dem Abstand der Düse zur Wirbelschicht und dem Material der Partikel) und lassen sich deshalb nur sehr schwierig quantifizieren.

Ausblickend bietet die Berücksichtigung der Ausbildung einer porösen Granulathülle bei der Wirbelschichtsprühgranulation im Bereich der Modellierung des Partikelwachstums weiteres Verbesserungspotenzial. Die Modellierung einer veränderlichen Porosität in Abhängigkeit von der Schichtdicke verspricht gegenüber der bisherigen Verwendung einer ortsunabhängigen Porosität eine allgemeingültigere Beschreibung des Partikelwachstums. Dies kann vor allem bei sehr dicken Partikelhüllen eine genauere Abschätzung liefern.

# Literaturverzeichnis

- Antonyuk S. (2006) Deformations- und Bruchverhalten von kugelförmigen Granulaten bei Druck- und Stoßbeanspruchung Ph.D. diss., Otto-von-Guericke Universität Magdeburg.
- Becher R. D., Schlünder E. U. (1998) Fluidized bed granulation - The importance of a drying zone for the particle growth mechanism. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* Vol. 37: p. 1–6.
- Börner M., Peglow M., Tsotsas E. (2013) Derivation of parameters for a two compartment population balance model of Wurster fluidised bed granulation. *Powder Technology* Vol. 238: p. 122–131.
- Chandran A. N., Rao S. S., Varma Y. B. G. (1990) Fluidized bed drying of solids. *AIChE Journal* Vol. 36: p. 29–38.
- Cunäus U. (2011) Populationsdynamische Beschreibung der kontinuierlichen Wirbelschicht Ph.D. diss., Otto-von-Guericke Universität Magdeburg.
- Dadkhah M., Peglow M., Tsotsas E. (2012) Characterization of the internal morphology of agglomerates produced in a spray fluidized bed by X-ray tomography. *Powder Technology* Vol. 228: p. 349–358.
- Freudenberger A. (1989) Möglichkeiten der Feuchtemessung bei verfahrenstechnischen Trocknungsprozessen. *Chemie Ingenieur Technik* Vol. 61: p. 953–957.
- Geldart D. (1973) Types of gas fluidization. *Powder Technology* Vol. 7: p. 285–292.
- GESTIS-Stoffdatenbank GdDGU (2012) Natriumbenzoat.
- Glück B. (1986) *Zustands- und Stoffwerte - Wasser, Dampf, Luft - Verbrennungsrechnung* 3. VEB-Verlag für Bauwesen, Berlin, Germany.
- Gnielinski V., Mersmann A., Thurner F. (1993) *Verdampfung, Kristallisation, Trocknung* Vieweg Teubner Verlag, Wiesbaden, Germany.
- Groenewold H. (2004) Wirbelschichttrocknung mit indirekter Beheizung Ph.D. diss., Otto-von-Guericke Universität Magdeburg.
- Groenewold H., Tsotsas E. (1997) A new model for fluid bed drying. *Drying Technology* Vol. 15: p. 1687–1698.
- Guignon B., Regalado E., Duquenoy A., Dumoulin E. (2003) Helping to choose operating parameters for a coating fluid bed process. *Powder Technology* Vol. 130: p. 193–198.

- Hampel N., Bück A., Peglow M., Tsotsas E. (2013) Continuous pellet coating in a Wurster fluidized bed process. *Chemical Engineering Science* Vol. 86: p. 87–98.
- Hampel R. (2010) Beitrag zur Analyse von kinetischen Einflüssen auf die Wirbelschicht-Sprühagglomeration Ph.D. diss., Otto-von-Guericke Universität Magdeburg.
- Hede P. D., Bach P., Jensen A. D. (2007) Small-scale top-spray fluidised bed coating: Granule impact strength, agglomeration tendency and coating layer morphology. *Powder Technology* Vol. 176: p. 156–167.
- Hede P. D., Bach P., Jensen A. D. (2008) Top-spray fluid bed coating: Scale-up in terms of relative droplet size and drying force. *Powder Technology* Vol. 184: p. 318–332.
- Heinrich S. (2001) *Modellierung des Wärme- und Stoffübergangs sowie der Partikelpopulationen bei der Wirbelschicht-Sprühgranulation* VDI-Fortschrittbericht, Reihe 3, 675, VDI-Verlag, Düsseldorf.
- Heinrich S., Blumschein J., Henneberg M., Ihlow M., Peglow M., Mörl L. (2003) Study of dynamic multi-dimensional temperature and concentration distributions in liquid-sprayed fluidized beds. *Chemical Engineering Science* Vol. 58: p. 5135–5160.
- Heinrich S., Peglow M., Ihlow M., Henneberg M., Mörl L. (2002a) Analysis of the start-up process in continuous fluidized bed spray granulation by population balance modelling. *Particulate Processes* Vol. 57: p. 4369–4390.
- Heinrich S., Peglow M., Mörl L. (2002b) Unsteady and steady-state particle size distributions in batch and continuous fluidized bed granulation systems. *Drying 2000: Selected Papers from the 12th International Symposium IDS2000* Vol. 86: p. 223–231.
- Hoffmann T., Peglow M., Tsotsas E. (2011) Prozessdynamik der Wirbelschichtgranulierung. *Chemie Ingenieur Technik* Vol. 83: p. 658–664.
- Holleman A. F., Wiberg E. (1985) *Lehrbuch der Anorganischen Chemie* Verlag Walter de Gruyter, Berlin, Germany 91.-100. Auflage.
- Hounslow M. J. (1990) A discretized population balance for continuous systems at steady state. *AIChE Journal* Vol. 36: p. 106–116.
- Ivanova E., Teunou E., Poncelet D. (2005) Encapsulation of water sensitive products: Effectiveness and assessment of fluid bed dry coating. *Journal of Food Engineering* Vol. 71: p. 223–230.
- Iveson S. M., Litster J. D., Hapgood K., Ennis B. J. (2001) Nucleation, growth and breakage phenomena in agitated wet granulation processes: A review. *Powder Technology* Vol. 117: p. 3–39.
- Kapur P. C., Fuerstenau D. W. (1969) Coalescence model for granulation. *Industrial and Engineering Chemistry, Process Design and Devices* Vol. 8: p. 56–62.
- Koren B. (1993) A robust upwind discretization method for advection, diffusion and source terms In *Numerical Methods for Advection-Diffusion Problems*, pp. 117–138. Vieweg, Wiesbaden, Germany.

- Krauss R. (1994) Stoffwerte von Luft In *VDI-Wärmeatlas*, pp. 148–163. Springer-Verlag, Berlin, Germany.
- Krischer O., Kast W. (1992) *Die wissenschaftlichen Grundlagen der Trocknungstechnik* Springer-Verlag, Berlin, Germany.
- Kumar J., Peglow M., Warnecke G., Heinrich S., Mörl L. (2006) A discretized model for tracer population balance equation: Improved accuracy and convergence. *Computers & Chemical Engineering* Vol. 30: p. 1278–1292.
- Link K. C. (1996) Untersuchung der Granulatbildung an einer frei schwebenden Einzelpartikel Ph.D. diss., Karlsruher Institut für Technologie.
- Lynch A. J., Rao T. C. (1965) Digital computer simulation of comminution systems. *Proc. 8th Commonw. Min. and Met. Congr. Australia and New Zealand* Vol. 6: p. 597–606.
- Maronga J. S., Wnukowski P. (1998) The use of humidity and temperature profiles in optimizing the size of fluidized bed in a coating process. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* Vol. 37: p. 423–432.
- Maronga S. J., Wnukowski P. (1997) Modelling of the three-domain fluidized-bed particulate coating process. *Chemical Engineering Science* Vol. 52: p. 2915–2925.
- Maronga S. J., Wnukowski P. (2001) Growth kinetics in particle coating by top-spray fluidized bed systems. *Advanced Powder Technology* Vol. 12: p. 371–391.
- Martin H. (1994) Wärmeübertragung in Wirbelschichten In *VDI Wärmeatlas*, pp. Mf1–Mf8. VDI-Verlag.
- Metropolis N., Ulam S. (1949) The Monte Carlo method. *Journal of the American Statistical Association* Vol. 44: p. 335–341.
- Mörl L. (1980) Granulatwachstum bei der Wirbelschichtgranulationstrocknung unter Berücksichtigung sich neu bildender Keime. *Zeitschrift Technische Hochschule Magdeburg* Vol. 24: p. 13–18.
- Mörl L. (2008) *Trocknungstechnik: Otto-von-Guericke Universität Magdeburg, Vorlesungsskript*.
- Morris K. R., Nail S. L., Peck G. E., Byrn S. R., Griesser U. J., Stowell J. G., Hwang S. J., Park K. (1998) Advances in pharmaceutical materials and processing. *Pharmaceutical Science & Technology Today* Vol. 1: p. 235–245.
- Pahl M. H. (1993) *Zerkleinerungstechnik* Verlag TÜV Rheinland, Köln, Germany.
- Peglow M., Bück A., Dervedde M. (2010) Einführung in die Modellierung mit Populationsbilanzen: Otto-von-Guericke Universität Magdeburg, Vorlesungsskript.
- Ramkrishna D., Fredrickson A. G. (2000) *Population balances: Theory and applications to particulate systems in engineering* Academic Press, New York, USA.
- Randolph A. D., Larson M. A. (1988) *Theory of particulate processes* Academic Press, New York, USA.

- Reid R. C., Prausnitz J. M., Poling B. E. (1987) *The properties of gases and liquids* McGraw-Hill Book Co., New York, USA.
- Rieck C., Hoffmann T., Bück A., Peglow M., Tsotsas E. (2015) Influence of drying conditions on layer porosity in fluidized bed spray granulation. *Powder Technology* Vol. 272: p. 120–131.
- Rumpf H. (1958) Grundlagen und Methoden des Granulierens. *Chemie Ingenieur Technik* Vol. 30: p. 144–158.
- Saleh K., Cherif R., Hemati M. (1999) An experimental study of fluidized-bed coating: Influence of operating conditions on growth rate and mechanism. *Advanced Powder Technology* Vol. 10: p. 255–277.
- Salman A. D., Hounslow M. J., Seville J. P. K. (2007) Granulation In *Handbook of Powder Technology*, Vol. 11, pp. 3–1390. Elsevier Science B.V.
- Schlünder E. U. (1996) A new method for the characterisation of the wettability of powders. *Chemical Engineering & Technology* Vol. 19: p. 432–437.
- Schmidt M., Bück A., Tsotsas E. (2015a) Experimental investigation of process stability of continuous spray fluidized bed layering with internal separation. *Chemical Engineering Science* Vol. 126: p. 55–66.
- Schmidt M., Rieck C., Bück A., Tsotsas E. (2015b) Experimental investigation of process stability of continuous spray fluidized bed layering with external product separation. *Chemical Engineering Science* Vol. 137: p. 466–475.
- Shelukar S., Ho J., Zega J., Roland E., Yeh N., Quiram D., Nole A., Katdare A., Reynolds S. (2000) Identification and characterization of factors controlling tablet coating uniformity in a Wurster coating process. *Powder Technology* Vol. 110: p. 29–36.
- Sloth J., Kiil S., Jensen A. D., Andersen S. K., Jørgensen K., Schiffter H., Lee G. (2006) Model based analysis of the drying of a single solution droplet in an ultrasonic levitator. *Chemical Engineering Science* Vol. 61: p. 2701–2709.
- Terrazas-Velarde K., Peglow M., Tsotsas E. (2009) Stochastic simulation of agglomerate formation in fluidized bed spray drying: A micro-scale approach. *Chemical Engineering Science* Vol. 64: p. 2631–2643.
- Tomas J. (2015) Mechanische Verfahrenstechnik: Otto-von-Guericke Universität Magdeburg, Vorlesungsskript.
- Tsotsas E. (1994) From single particle to fluid bed drying kinetics. *Drying Technology* Vol. 12: p. 1401–1426.
- Tsotsas E., Mujumdar A. S. (2007) *Modern drying Technology Vol.1* Wiley-VCH Verlag, Weinheim, Germany.
- Turton R., Tardos G. I., Ennis B. J. (1999) Fluidized bed coating and granulation In *Fluidization, Solids Handling, and Processing*, pp. 331–434. Noyes Publications.
- Uhlemann H. (1990) Kontinuierliche Wirbelschicht-Sprühgranulation. *Chemie Ingenieur Technik* Vol. 62: p. 822–834.

- Uhlemann H., Mörl L. (2000) *Wirbelschicht-Sprühgranulation* Springer-Verlag, Berlin, Germany.
- Vreman A., Lare C., Hounslow M. (2009) A basic population balance model for fluid bed spray granulation. *Chemical Engineering Science* Vol. 64: p. 4389–4398.
- Wagner W., Kruse A. (1998) *Properties of water and steam, The industrial standard IAPWS-IF97* Springer-Verlag, Berlin, Germany.
- Winkler F. (1926) Verfahren zur Herstellung von Wasserglas(patent).
- Wintermantel K. (1999) Process and product engineering: Achievements, present and future challenges. *Process and Product Development* Vol. 77: p. 175–188.
- Wnukowski P., Setterwall F. (1989) The coating of particles in a fluidized bed (residence time distribution in a system of two coupled perfect mixers). *Chemical Engineering Science* Vol. 44: p. 493–505.
- Zank J., Kind M., Schlünder E. U. (2001) Particle growth and droplet deposition in fluidised bed granulation. *Powder Technology* Vol. 120: p. 76–81.
- Zogg M. (1993) *Einführung in die Mechanische Vverfahrenstechnik* B. G. Teubner Verlag, Stuttgart, Germany.

# Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die von mir eingereichte Dissertation zum Thema:

**”Experimentelle Untersuchungen des Einflusses von verschiedenen  
Prozessparametern auf das Partikelwachstum bei der  
Wirbelschichtsprühgranulation”**

selbständig und nur unter Nutzung der von mir angegebenen Literatur sowie der Hinweise meiner Betreuer angefertigt habe.

Dipl.-Ing. Torsten Hoffmann

27. Mai 2017



# Lebenslauf

Name	Torsten Hoffmann
Geburtsdatum	23. Oktober 1981
Geburtsort	Haldensleben
Staatsangehörigkeit	deutsch
Familienstand	ledig
Dienstadresse	Otto-von-Guericke Universität Magdeburg FVST / TVT
Telefon	+ 49-391-67-12778
Email	torsten.hoffmann@ovgu.de
<b>Schulbildung</b>	
07/1988–06/1992	Grundschule Uthmöden
07/1992–06/2000	Friedrich-Ludwig-Jahn Gymnasium Haldensleben
06/2000	Abitur
<b>Wehrdienst</b>	
11/2000–12/2000	Grundwehrdienst in Storkow
01/2001–08/2001	Grundwehrdienst in Havelberg
<b>Studium</b>	
10/2001–02/2008	Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg Studium der Verfahrenstechnik Abschluss: Diplomingenieur (Dipl.-Ing.)
<b>Berufliche Tätigkeit</b>	
03/2008–02/2013	Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg Institut für Verfahrenstechnik Lehrstuhl für Thermische Verfahrenstechnik InnoProfile-Nachwuchsforschergruppe NaWiTec Wissenschaftlicher Mitarbeiter
seit 11/2013	Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg Institut für Verfahrenstechnik Lehrstuhl für Thermische Verfahrenstechnik InnoProfile-Verbundprojekt NaWiTec/Energie Wissenschaftlicher Mitarbeiter

# Publikationsliste

## Wissenschaftliche Artikel in internationalen Fachzeitschriften

Hoffmann T., Hailu Bedane A., Peglow M., Tsotsas E., Jacob M. (2011) Particle-gas mass transfer in spouted bed with adjustable air inlet. *Drying Technology* Vol. 29 (Issue 3): 257-265

Hoffmann T., Peglow M., Tsotsas E. (2011) Prozessdynamik der Wirbelschichtgranulierung. *Chemie Ingenieur Technik* Vol. 83 (Issue 5): 658-664

Rieck C., Hoffmann T., Bück A., Peglow M., Tsotsas E. (2015) Influence of drying conditions on layer porosity in fluidized bed spray granulation. *Powder Technology* Vol. 272: 120-131

Hoffmann T., Schmidt M., Rieck C., Bück A., Peglow M., Tsotsas E. (2015) Prediction of shell porosities in continuous fluidized bed spray granulation. *Drying Technology* Vol. 33 (Issue 13): 1662-1670

## Publizierte Kongressbeiträge (International)

Hoffmann T., Peglow M., Tsotsas E. (2010) Dynamics of particle growth in fluidized bed. *6th World Congress on Particle Technology* Nürnberg, Germany

Hoffmann T., Peglow M., Tsotsas E. (2010) Investigation of process dynamics in fluidized bed. *17th International Drying Symposium* Magdeburg, Germany

Hoffmann T., Bachmann P., Peglow M., Tsotsas E. (2011) Investigation of growth kinetics in fluidized bed spray granulation. *5th International Granulation Workshop* Lausanne, Switzerland

Hoffmann T., Peglow M., Tsotsas E. (2012) Influence of process parameters on the particle surface structure in fluidized bed spray granulation. *18th International Drying Symposium* Xiamen, China

Hoffmann T., Peglow M., Tsotsas E. (2013) Particle formation in fluidized bed spray granulation. *International Congress on Particle Technology* Nürnberg, Germany

Hoffmann T., Rieck C., Bück A., Peglow M., Tsotsas E. (2014) Influence of drying conditions on the product quality during continuous fluidized bed spray granulation. *19th International Drying Symposium* Lyon, France

Schmidt M., Hoffmann T., Bück A., Tsotsas E. (2014) Experimental investigation of continuous fluidized bed spray granulation with internal classification. *7th World Congress on Particle Technology* Beijing, China

Hoffmann T., Rieck C., Bück A., Peglow M., Tsotsas E. (2014) Influence of granule porosity during fluidized bed spray granulation. *7th World Congress on Particle Technology* Beijing, China

Mielke L., Hoffmann T., Peglow M., Henneberg M., Bück A., Tsotsas E. (2015) Experimental investigation of continuous fluidized bed spray granulation with internal classification. *7th International Granulation Workshop* Sheffield, Great Britain

## Posterbeiträge (International)

Hoffmann T., Hailu Bedane A., Peglow M., Tsotsas E., Jacob M. (2009) Particle-gas mass transfer in spouted bed with adjustable air inlet. *9th International Symposium on Agglomeration* Sheffield, Great Britain

Hoffmann T., Peglow M., Tsotsas E. (2011) Investigation of growth kinetics in fluidized bed spray granulation. *8th European Congress of Chemical Engineering* Berlin, Germany

Hoffmann T., Peglow M., Tsotsas E. (2013) Investigation of the particle surface structures in fluidized bed spray granulation. *6th International Granulation Workshop* Sheffield, Great Britain

## Studentische Arbeiten

Die folgende Übersicht listet studentische Arbeiten auf, die durch den Autor der vorliegenden Dissertation direkt betreut oder aktiv begleitet wurden. Die in den studentischen Arbeiten erzielten Ergebnisse haben zum Gelingen der Dissertation beigetragen.

### **Hailu, A.**

*Particle-gas mass transfer in a spouted bed dryer with controllable air inlet*

Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 2008

Masterarbeit

### **Bachmann, P.**

*Untersuchung von Partikelgrößenverteilungen bei der Wirbelschichtsprühgranulation*

Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 2011

Diplomarbeit

### **Gonzales, V.**

*Residence time distribution in horizontal fluidized beds*

Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 2011

Masterarbeit

**Görs, E.**

*Untersuchung der Auswirkung von Prozessparameter-  
variationen auf die Partikelstruktur in der  
Wirbelschichtsprühgranulation*

Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 2012  
Studienarbeit

**Stoyanova, P.**

*Charakterisierung von Partikeln aus dem Granulations-  
prozess in der Wirbelschicht hinsichtlich ihrer  
Festigkeit und Partikelgröße für den Teilprozess  
der Mahlung in einer Schlagrotormühle*

Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 2012  
Bachelorarbeit

**Rieck, C.**

*Modellierung des Partikelwachstums für den Prozess  
der Wirbelschichtsprühgranulation für unterschiedliche  
Prozessbedingungen*

Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 2013  
Masterarbeit

# Anhang A

## Stoffwerte

### A.1 Stoffwerte der trockenen Luft

*Mittlere Molare Masse* (Krauss, 1994)

$$\tilde{M}_g = 28,96 \text{ kg kmol}^{-1} \quad (\text{A.1})$$

*Spezifische Gaskonstante* (Krauss, 1994)

$$R_g = 287,22 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1} \quad (\text{A.2})$$

*Spezifische Wärmekapazität* (Glück, 1986)

$$c_{p,g} = A + B \vartheta + C \vartheta^2 + D \vartheta^3 \quad (\text{A.3})$$

$$A = +1,006256 \quad (\text{A.4})$$

$$B = +2120536 \cdot 10^{-6} \quad (\text{A.5})$$

$$C = +4,180195 \cdot 10^{-7} \quad (\text{A.6})$$

$$D = -1,521916 \cdot 10^{-10} \quad (\text{A.7})$$

Einheit:  $\text{kJ kg}^{-1} \text{K}^{-1}$

Gültigkeitsbereich:  $-20^\circ\text{C} \leq \vartheta \leq 200^\circ\text{C}$ ;  $1 \text{ MPa}$

Maximaler Fehler: 0,05%

*Dichte* (Glück, 1986)

$$\rho_g = \frac{p}{R_g (\vartheta + 273,15)} \quad (\text{A.8})$$

Einheit:  $\text{kg m}^{-3}$

*Dynamische Viskosität* (Glück, 1986)

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

$$A = +1,705568 \cdot 10^{-5} \quad (\text{A.10})$$

$$B = +4,511012 \cdot 10^{-8} \quad (\text{A.11})$$

$$C = -8,766234 \cdot 10^{-12} \quad (\text{A.12})$$

$$D = -3,382035 \cdot 10^{-15} \quad (\text{A.13})$$

Einheit:  $kg\ m^{-1}s^{-1}$

Gültigkeitsbereich:  $-20^\circ C \leq \vartheta \leq 200^\circ C$ ;  $p = 0,1\ MPa$

Maximaler Fehler: 0,6%

**Kinematische Viskosität** (Glück, 1986)

$$\nu_g = A + B \vartheta + C \vartheta^2 + D \vartheta^3 \quad (\text{A.14})$$

$$A = +1,337125 \cdot 10^{-5} \quad (\text{A.15})$$

$$B = +8,454018 \cdot 10^{-8} \quad (\text{A.16})$$

$$C = +1,232143 \cdot 10^{-10} \quad (\text{A.17})$$

$$D = -3,348214 \cdot 10^{-14} \quad (\text{A.18})$$

Einheit:  $m^2s^{-1}$

**Wärmeleitfähigkeit** (Glück, 1986)

$$\lambda_g = A + B \vartheta + C \vartheta^2 + D \vartheta^3 \quad (\text{A.19})$$

$$A = +24,5211 \cdot 10^{-3} \quad (\text{A.20})$$

$$B = +7,501414 \cdot 10^{-5} \quad (\text{A.21})$$

$$C = -2,593344 \cdot 10^{-8} \quad (\text{A.22})$$

$$D = +5,292884 \cdot 10^{-11} \quad (\text{A.23})$$

Einheit:  $W\ m^{-1}K^{-1}$

Gültigkeitsbereich:  $-20^\circ C \leq \vartheta \leq 200^\circ C$ ;  $p = 0,1\ MPa$

Maximaler Fehler: 0,08%

**Prandtl-Zahl** (Glück, 1986)

$$Pr_g = A + B \vartheta + C \vartheta^2 + D \vartheta^3 \quad (\text{A.24})$$

$$A = +0,702 \quad (\text{A.25})$$

$$B = -2,629487 \cdot 10^{-4} \quad (\text{A.26})$$

$$C = +1,055288 \cdot 10^{-6} \quad (\text{A.27})$$

$$D = -1,522436 \cdot 10^{-9} \quad (\text{A.28})$$

Einheit: –

## A.2 Stoffwerte von Wasser

*Mittlere Molare Masse* (Wagner und Kruse, 1998)

$$\tilde{M}_w = 18,0153 \text{ kg kmol}^{-1} \quad (\text{A.29})$$

*Spezifische Gaskonstante* (Wagner und Kruse, 1998)

$$R_w = 461,519 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1} \quad (\text{A.30})$$

*Dichte* (Glück, 1986)

$$\rho_{w,l} = A + B \vartheta + C \vartheta^2 \quad (\text{A.31})$$

$$A = +1006 \quad (\text{A.32})$$

$$B = +0,26 \quad (\text{A.33})$$

$$C = -0.0022 \quad (\text{A.34})$$

$$(\text{A.35})$$

Einheit:  $\text{kg m}^{-3}$

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

Maximaler Fehler: 0,16%

*Spezifische Wärmekapazität* (Glück, 1986)

$$c_{p,w,l} = A + B \vartheta + C \vartheta^2 + D \vartheta^3 \quad (\text{A.36})$$

$$A = +4,174785 \quad (\text{A.37})$$

$$B = +1,785308 \cdot 10^{-5} \quad (\text{A.38})$$

$$C = -5,097403 \cdot 10^{-7} \quad (\text{A.39})$$

$$D = +4,216721 \cdot 10^{-8} \quad (\text{A.40})$$

Einheit:  $kJ\ kg^{-1}K^{-1}$

Gültigkeitsbereich:  $10^{\circ}C \leq \vartheta \leq 200^{\circ}C$ ;  $p = 0,1\ MPa$

Maximaler Fehler: 0,43%

### A.3 Stoffwerte von Wasserdampf

*Mittlere Molare Masse* (Glück, 1986)

$$\tilde{M}_v = 18,02\ kg\ kmol^{-1} \quad (A.41)$$

*Spezifische Wärmekapazität* (Glück, 1986)

$$c_{p,v} = A + B\vartheta + C\vartheta^2 + D\vartheta^3 \quad (A.42)$$

$$A = +1,862 \cdot 10^3 \quad (A.43)$$

$$B = +2,858485 \cdot 10^{-1} \quad (A.44)$$

$$C = +6,148483 \cdot 10^{-4} \quad (A.45)$$

$$D = -2,060606 \cdot 10^{-7} \quad (A.46)$$

Einheit:  $J\ kg^{-1}K^{-1}$

Gültigkeitsbereich:  $25^{\circ}C \leq \vartheta \leq 400^{\circ}C$ ;  $100\ Pa \leq p \leq 1000\ Pa$

Maximaler Fehler: 0,06%

*Wärmeleitfähigkeit* (Glück, 1986)

$$\lambda_v = A + B\vartheta + C\vartheta^2 + D\vartheta^3 \quad (A.47)$$

$$A = +0,0170 \quad (A.48)$$

$$B = +5,698384 \cdot 10^{-5} \quad (A.49)$$

$$C = +1,2971172 \cdot 10^{-7} \quad (A.50)$$

$$D = -9,131313 \cdot 10^{-11} \quad (A.51)$$

Einheit:  $W\ m^{-1}K^{-1}$

Gültigkeitsbereich:  $25^{\circ}C \leq \vartheta \leq 400^{\circ}C$ ;  $100\ Pa \leq p \leq 1000\ Pa$

Maximaler Fehler: 0,14%

*Diffusionskoeffizient in der Luft* (Reid et al., 1987)

$$\delta_{v,g} = \frac{0,00143 (\vartheta + 273,15)^{1,75} \left[ \frac{1}{\overline{M}_v} + \frac{1}{\overline{M}_g} \right]^{\frac{1}{2}}}{p \sqrt{2} \left[ (\sum \nu_v)^{\frac{1}{3}} + (\sum \nu_g)^{\frac{1}{3}} \right]^2} \quad (\text{A.52})$$

$$\nu_v = 13,1 \text{ (für Wasser)} \quad (\text{A.53})$$

$$\nu_g = 19,7 \text{ (für Luft)} \quad (\text{A.54})$$

Einheit:  $cm^2 s^{-1}$ ;  $p = bar$

## A.4 Anpassung von Antoine Konstanten

Die Sättigungsbeladung  $Y_{sat}$  lässt sich mit Hilfe des Sattedampfdruckes wie folgt berechnen:

$$Y_{sat} = 0,622 \frac{p_{sat}}{p - p_{sat}}. \quad (\text{A.55})$$

Für die Berechnung des Sattedampfdruckes in der Einheit  $mbar$  gilt die Antoine-Gleichung:

$$p_{sat} = \exp \left( A - \frac{B}{C + \vartheta} \right). \quad (\text{A.56})$$

Die Werte für die Konstanten  $A, B$  und  $C$  für den eingeschränkten Temperaturbereich von  $0...50^\circ C$  sind von Glück (1986) angegeben mit:

**Tabelle A.1:** Konstanten der Antoine-Gleichung

Konstante	Wert
A	23,621
B	4065 °C
C	236,2506 °C

## Anhang B

# Kenngrößen der Wirbelschicht

Der Existenzbereich einer Wirbelschicht ist von den Feststoff- und Fluideigenschaften abhängig. Die Grenzen dieses Bereiches sind durch den Wirbelpunkt (Minimalfluidisierung, Lockerungspunkt) und den Austragspunkt gekennzeichnet. Für Gas-Feststoffwirbelschichten lassen sich die herrschenden Strömungsbedingungen mit Hilfe der Archimedes-Zahl  $Ar$  ausdrücken. Sie stellt das Verhältnis zwischen Auftriebs- und Reibungskraft da:

$$Ar = \frac{gx_p^3(\rho_p - \rho_g)}{\nu_g^2 \rho_g}. \quad (\text{B.1})$$

Für die Reynoldszahlen am Wirbelpunkt  $Re_{mf}$  und am Austragspunkt  $Re_{elu}$  findet man in der Literatur (Martin, 1994) folgende Gleichungen:

$$Re_{mf} = 42.9(1 - \varepsilon_{mf}) \left( \sqrt{\left(1 + \frac{\varepsilon_{mf}^3}{(1 - \varepsilon_{mf})^2} \frac{Ar}{3214}\right)} - 1 \right), \quad (\text{B.2})$$

$$Re_{elu} = \sqrt{\frac{4}{3}Ar}. \quad (\text{B.3})$$

Für die Berechnung der Reynoldszahl an einem Betriebspunkt der Wirbelschicht ergibt sich folgende Beziehung:

$$Re = \frac{u_0 x_p}{\nu_g}. \quad (\text{B.4})$$

Das Lückenvolumen der Wirbelschicht unterliegt bei der Steigerung der Leerrohrgeschwindigkeit  $u_0$  einer stetigen Erhöhung. Die Berechnung dieses Expansionsverhaltens benötigt die Kenntnis der Schichtporosität  $\varepsilon$ . Diese kann empirisch durch

$$\varepsilon = \frac{V_g}{V_p + V_g} = \left( \frac{18 Re + 0,36 Re^2}{Ar} \right)^{0,21} \quad (\text{B.5})$$

bestimmt werden. Ist die Gasgeschwindigkeit kleiner als die Minimalfluidisierungsgeschwindigkeit kann die Porosität der Wirbelschicht mit der einer monodispersen Kugelschüttung  $\varepsilon_{mf} \approx 0.4$  gleichgesetzt werden. Für den Feststoffvolumenanteil  $\varepsilon_p$  in der Wirbelschicht ergibt sich somit:

$$\varepsilon_p = 1 - \varepsilon. \quad (\text{B.6})$$

Mit bekannter Schichtporosität lässt sich bei ebenfalls bekannter Apparategeometrie und Bettmasse  $M_{bed}$  die Höhe der fluidisierten Schicht aus folgender Gleichung berechnen:

$$H_{bed} = \frac{4 M_{bed}}{(1 - \varepsilon) \rho_p \pi d_{app}^2}. \quad (\text{B.7})$$

## Anhang C

# Wärme- und Stoffübertragung in Wirbelschichten

In dieser Arbeit wird das von Gronenewold und Tsotsas (1997) beschriebene Modell verwendet. Für den Stoffübergang in der Wirbelschicht muss die Strömungsveränderung durch die Partikelpackung gegenüber dem Leerrohr berücksichtigt werden. Dafür wird die *Reynolds-Zahl* nach Gleichung (B.2) durch die Porosität ( $\varepsilon_{mf} = 0,4$ ) der Schüttung am Minimalfluidisationspunkt dividiert.

$$Re_\varepsilon = \frac{Re_{mf}}{\varepsilon_{mf}}. \quad (C.1)$$

Da der Druckverlust während der Fluidisierung im Existenzbereich der Wirbelschicht annähernd als konstant betrachtet werden kann, dient  $Re_\varepsilon$  als charakteristische Größe für die Anströmung während des gesamten Prozess. Mit der konstanten *Schmidt-Zahl*

$$Sc = \frac{\nu_g}{\delta_g}, \quad (C.2)$$

ergeben sich somit die *Sherwood-Zahlen* für den laminaren Bereich:

$$Sh_{lam} = 0,664 Re_\varepsilon^{\frac{1}{2}} Sc^{\frac{1}{3}}, \quad (C.3)$$

und für den turbulenten Bereich:

$$Sh_{turb} = \frac{0,037 Re_\varepsilon^{0,8} Sc}{1 + 2,443 Re_\varepsilon^{-0,1} (Sc^{\frac{2}{3}} - 1)}. \quad (C.4)$$

Mit Hilfe der Gleichungen (C.3) und (C.4) wird die *Sherwood-Zahl* für die Einzelpartikel berechnet:

$$Sh_p = 2 + \sqrt{Sh_{lam}^2 + Sh_{turb}^2}. \quad (C.5)$$

Die *Sherwood-Zahl* der Wirbelschicht ergibt sich wie folgt:

$$Sh_{bed} = (1 + 1,5(1 - \varepsilon_{mf})) Sh_p. \quad (C.6)$$

Daraus wird eine scheinbare, die axiale Dispersion in der Gasphase berücksichtigende, *Sherwood*-Zahl berechnet:

$$Sh'_{bed} = \frac{Re_\varepsilon Sc}{\left(\frac{6}{x_p} h_{bed} (1 - \varepsilon_{bed})\right)} \ln \left( 1 + \frac{Sh_{bed} \left(\frac{6}{x_p} (1 - \varepsilon_{bed})\right)}{Re_\varepsilon Sc} \right). \quad (C.7)$$

Die Werte für die Nusselt-Zahl werden aus der Analogie zwischen Wärme- und Stoffübergang berechnet:

$$Nu = Sh'_{bed} Le^{-\frac{1}{3}}, \quad (C.8)$$

$$Le = \frac{\lambda_g}{c_g \rho_g \delta_g}. \quad (C.9)$$

Die Wärme- und Stoffübergangskoeffizienten werden wie folgt berechnet:

$$\alpha = \frac{Nu'_{bed} \lambda_g}{x}, \quad (C.10)$$

$$\beta = \frac{Sh'_{bed} \delta_g}{x}. \quad (C.11)$$

## Anhang D

# Differentialgleichungen

Die in dieser Arbeit vorgestellten Differentialgleichungen für die einzelnen Modellfälle wurden wie folgt diskretisiert:

### D.1 Modellierung der Partikelpopulation für die absatzweise Granulation

$$\frac{dn_{\alpha,1}}{dt} = -\frac{(\bar{G}n_{\alpha})_1 - B_0}{\Delta x} - \frac{n_{\alpha,1}}{\tau_{\alpha}} + \frac{n_{1-\alpha,1}}{\tau_{1-\alpha}} \quad (\text{D.1})$$

$$\frac{dn_{\alpha,i}}{dt} = -\frac{(\bar{G}n_{\alpha})_i - (\bar{G}n_{\alpha})_{i-1}}{\Delta x} - \frac{n_{\alpha,i}}{\tau_{\alpha}} + \frac{n_{1-\alpha,i}}{\tau_{1-\alpha}} \quad (\text{D.2})$$

$$\frac{dn_{1-\alpha,i}}{dt} = \frac{n_{1-\alpha,i}}{\tau_{\alpha}} + \frac{n_{1-\alpha,i}}{\tau_{1-\alpha}} \quad (\text{D.3})$$

### D.2 Modellierung der Partikelpopulation für die kontinuierliche Granulation

$$\frac{dn_{\alpha,1}}{dt} = -\frac{(\bar{G}n_{\alpha})_1 - B_0}{\Delta x} - \frac{n_{\alpha,1}}{\tau_{\alpha}} + \frac{n_{1-\alpha,1}}{\tau_{1-\alpha}} + \dot{n}_{\alpha,in,1} - \dot{n}_{\alpha,out,1} \quad (\text{D.4})$$

$$\frac{dn_{\alpha,i}}{dt} = -\frac{(\bar{G}n_{\alpha})_i - (\bar{G}n_{\alpha})_{i-1}}{\Delta x} - \frac{n_{\alpha,i}}{\tau_{\alpha}} + \frac{n_{1-\alpha,i}}{\tau_{1-\alpha}} + \dot{n}_{\alpha,in,i} - \dot{n}_{\alpha,out,i} \quad (\text{D.5})$$

$$\frac{dn_{1-\alpha,i}}{dt} = \frac{n_{1-\alpha,i}}{\tau_{\alpha}} - \frac{n_{1-\alpha,i}}{\tau_{1-\alpha}} + \dot{n}_{1-\alpha,in,i} - \dot{n}_{1-\alpha,out,i} \quad (\text{D.6})$$

## Anhang E

# Daten zur kontinuierlichen Granulation

E.1 zeigt die Messwerte für die kontinuierlichen Granulationsversuche mit interner und externer Klassierung.

**Tabelle E.1:** Messwerte für Conti-Granulierung von Natriumbenzoat mit Natriumbenzoat in der WSA300

<i>Nr.</i>	$T_{g,in}$ [ $^{\circ}C$ ]	$T_{g,out}$ [ $^{\circ}C$ ]	$\dot{M}_{sus}$ [ $kg/h$ ]	$Y_{out}$ [ $kg/kg$ ]	$Y_{in}$ [ $kg/kg$ ]	$Y_{sat}$ [ $kg/kg$ ]
V1	100	45,1	12,89	0,0301	0,0092	0,0356
V2	90	45,2	9,65	0,0266	0,0097	0,0327
V2	90	35,7	10,66	0,0302	0,0097	0,0327
V3	100	54,8	9,52	0,0274	0,0095	0,0359
V3	100	43,9	12,98	0,0306	0,0095	0,0359
V4	120	69,0	13,19	0,0252	0,0066	0,0401
V4	120	36,8	22,98	0,0296	0,0066	0,0401
V5	180	77,8	19,15	0,0322	0,0057	0,0607
V6	185	79,7	18,29	0,0333	0,0062	0,0631

Die Tabelle E.2 zeigt die berechneten Werte für die kontinuierlichen Granulationsversuche mit interner und externer Klassierung.

**Tabelle E.2:** Simulationsergebnisse für die Konti-Granulierung von Natriumbenzoat mit Natriumbenzoat in der WSA300

<i>Nr.</i>	$T_{g,in}$ [ $^{\circ}C$ ]	$T_{g,out}$ [ $^{\circ}C$ ]	$\dot{M}_{sus}$ [kg/h]	$Y_{out}$ [kg/kg]	$Y_{in}$ [kg/kg]	$Y_{sat}$ [kg/kg]	$\eta$ [-]
V1	100	42,5	12,89	0,0321	0,0092	0,0356	0,13
V2	90	40,8	9,65	0,0292	0,0097	0,0327	0,15
V2	90	35,9	10,66	0,0312	0,0097	0,0327	0,07
V3	100	56,9	9,52	0,0263	0,0095	0,0359	0,36
V3	100	32,1	12,98	0,0324	0,0095	0,0359	0,13
V4	120	70,3	13,19	0,0252	0,0066	0,0401	0,44
V4	120	37,0	22,98	0,0389	0,0066	0,0401	0,04
V5	180	95,3	19,15	0,0372	0,0057	0,0607	0,43
V6	185	98,4	18,29	0,0379	0,0062	0,0631	0,44

In der Tabelle E.3 sind die Simulationsparameter für die Berechnung des Partikelwachstums für den kontinuierlichen Granulationsprozess mit interner Klassierung aufgelistet.

**Tabelle E.3:** Parameter für die kontinuierliche Granulierung mit interner Klassierung

Parameter (konstant)	Symbol	Wert	Einheit
Hold-up	$M_{bed}$	6	kg
Düsenluftmassenstrom	$\dot{M}_{g,nozzle}$	25,92	kg $h^{-1}$
Feststoffanteil in der Suspension	$c_{sus}$	29,5	ma%
Apparatedurchmesser	$d_{app}$	0,3	m
Anfangsfeuchtebelastung Partikel	$X_0$	0,001	kgkg $^{-1}$

In der Tabelle E.3 sind die Simulationsparameter für die Berechnung des Partikelwachstums für den kontinuierlichen Granulationsprozess mit externer Klassierung aufgelistet.

**Tabelle E.4:** Parameter für die kontinuierliche Granulierung mit externer Klassierung

Parameter (konstant)	Symbol	Wert	Einheit
Hold-up	$M_{bed}$	6	kg
Düsenluftmassenstrom	$\dot{M}_{g,nozzle}$	25,92	kg $h^{-1}$
Feststoffanteil in der Suspension	$c_{sus}$	29,5	ma%
Apparatedurchmesser	$d_{app}$	0,3	m
Anfangsfeuchtebelastung Partikel	$X_0$	0,001	kgkg $^{-1}$