

*Untersuchung der Strömungsverhältnisse in einem
Kristallisator mittels Kopplung zwischen
Numerischer Strömungsmechanik (CFD) und
Diskrete-Elemente-Methode (DEM)*

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

Doktoringenieurin

(Dr.-Ing.)

von

Kristin Kerst

geb. am 27. Oktober 1987 in Stendal

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

Promotionskommission:

Prof. Dr.-Ing. Dominique Thévenin (Vorsitz)

Priv.-Doz. Dr.-Ing. Gábor Janiga (Gutachter, Betreuer)

Prof. Dr.-Ing. Andreas Seidel-Morgenstern (Gutachter)

Prof. Dr.-Ing. André Katterfeld (Gutachter)

eingereicht am: 19. Juni 2019

Promotionskolloquium am: 1. Oktober 2019

Kurzfassung

Die Bevorzugte Kristallisation von Enantiomeren ist ein effizienter Trennprozess, der derzeit das Thema intensiver Forschungsarbeiten ist. Das Prinzip beruht auf dem Animpfen einer racemischen, übersättigten Lösung mit dem gewünschten Enantiomer, welches anschließend selektiv kristallisiert. Durch die Realisierung des Wirbelschichtprozesses in Rohrreaktoren können die Produkteigenschaften effektiv kontrolliert werden. In den Rohrreaktoren ergibt sich ein spezifisches, von der Geometrie abhängiges Geschwindigkeitsprofil innerhalb der Kristallisatoren, welches den klassierenden Abzug bestimmter Kristallgrößen bei gleichzeitiger Enantiomentrennung ermöglicht. Die Positionierung der verschiedenen Kristallfraktionen im Kristallisor ist dabei komplex und nicht-linear an die Strömungsverhältnisse gekoppelt.

In der vorliegenden Studie sollen CFD-DEM-Simulationen (CFD: Computational Fluid Dynamics; DEM: Discrete Element Method) zum Verständnis der Hydrodynamik beitragen und wertvolle Informationen über den Prozess liefern, wie den Austragungsanteil von Kristallen aus dem Kristallisor sowie Geschwindigkeiten von flüssiger Phase und Kristallen. Die CFD-DEM-Simulationen eines Einzelkristallisors berücksichtigen alle Wechselwirkungen, die zwischen Kristallen und fluider Phase auftreten können, was bei vielen Partikeln zu einem hohen Rechenaufwand führt. Im untersuchten Prozess sind mehrere Millionen Kristalle vorhanden und die Prozessdauer beträgt mehrere Stunden. Dementsprechend muss ein Kompromiss zwischen Anzahl simulierter Partikel und simulierter Rechenzeit gefunden werden. Die CFD-DEM Simulationen werden somit nicht dazu verwendet den gesamten Prozess zu simulieren, sondern kurze Zeitfenster des Prozesses im Detail zu untersuchen. Zur Modelvalidierung der verwendeten Simulationssoftware werden in einem speziell angefertigten Kristallisor aus Makrolon Kameramessungen der Geschwindigkeitsverteilung einzelner Partikel durchgeführt. Die Messergebnisse stimmen in guter Näherung mit den Simulationsergebnissen überein. Die so validierte Software wird anschließend für theoretische Studien verschiedener Prozessbedingungen und eine automatisierte, genetische Geometrieoptimierung genutzt.

Abstract

Preferential crystallization of enantiomers is an efficient separation process that is currently the topic of intensive research. The principle is based on seeding a racemic supersaturated solution with the desired enantiomer, which selectively crystallizes. Realizing a fluidized bed process in a tubular crystallizer, the product properties can be controlled effectively. Within the crystallizer equipped with a conical entrance section, a geometry-dependent velocity profile develops, which enables a classifying removal of certain crystal sizes while simultaneously separating the mixture of enantiomers. The positioning of the various crystal fractions in the crystallizer is complex and coupled non-linearly to the flow conditions.

In the present study, CFD-DEM simulations (CFD: Computational Fluid Dynamics; DEM: Discrete Element Method) contribute to the understanding of hydrodynamics and provide valuable information about the process, e.g. velocities of the liquid phase as well as the crystals and the proportion of crystals removed from the crystallizer. The CFD-DEM simulations of a single crystallizer consider all interactions that may occur between the crystals and the fluid phase. The computational time for the simulations increases with the number of simulated particles. In the examined process, several million crystals are present and the process lasts several hours. Accordingly, this required a compromise between the number of simulated particles and the computation time. Hence, the CFD-DEM simulations are not utilized to simulate the entire crystallization process, but to examine a short time frame in detail. To validate the model in the simulation software used, measurements of the velocity distribution of individual particles are carried out in a Makrolon crystallizer built specifically for this purpose. The measurement results agree with the simulation results to an acceptable approximation. The validated software was then employed for theoretical studies of various operating conditions and for an automated genetic-based geometry optimization.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Modellbeschreibung	7
2.1	Grundlagen der Diskrete-Elemente-Methode	7
2.2	Grundlagen der Numerischen Strömungssimulation	11
2.2.1	Erhaltungsgleichungen	11
2.2.2	Erhaltungsgleichungen in Anwesenheit eines Partikels	13
2.2.3	Widerstandskraft bei sphärischen Partikeln nach DiFelice	13
2.2.4	Widerstandskraft bei sphärischen Partikeln nach Schiller- Naumann	15
2.2.5	Widerstandskraft bei nicht-sphärischen Partikeln nach Haider- Levenspiel	15
2.2.6	Diskretisierungen	16
2.2.7	Gittergenerierung	17
2.2.8	Fehlerbetrachtung	18
2.3	Grundlagen der CFD-DEM-Kopplung	19
2.3.1	Modell von Richardson und Zaki	22
3	Simulationsumgebung	23
3.1	Beschreibung des Strömungsgebietes	24
3.1.1	Charakterisierung der Strömung	26
3.1.2	Abschätzung der Verweilzeit	26
3.2	Lösungsalgorithmus	27
3.3	Numerische Methoden und Gitterqualität	28
3.4	Zeitschrittabschätzung	29
3.4.1	Abschätzung des CFD-Zeitschrittes	29
3.4.2	Abschätzung des DEM-Zeitschrittes	30
3.5	Berechnungszeiten	30

3.6	Fehlerbetrachtung CFD	31
3.6.1	Iterationsfehler	32
3.6.2	Diskretisierungsfehler	36
3.6.3	Modellfehler	38
3.7	Simulation nicht-sphärischer Partikel	38
3.8	Simulation von Kohäsionseffekten	41
3.9	Anwendbarkeit von reduzierten CFD-DEM-Modellen	41
3.9.1	Simulation eines zentralen Ausschnitts des Kristallisators	42
3.9.2	Simulation eines Ausschnitts in Produktauslasshöhe	42
3.9.3	Anwendbarkeit der Ähnlichkeitstheorie	44
4	<i>Modellvalidierung und Kalibrierung</i>	48
4.1	Charakterisierung der verwendeten Glaspartikel	51
4.2	Sinkversuche	54
4.3	Rekonstruktion der minimalen und maximalen Partikelgeschwindigkeiten	58
4.4	Shadowgrafie-Messungen	60
4.4.1	Vergleich mit Simulationsergebnissen der Software StarCCM+	65
4.5	Kalibrierung der DEM-Parameter	66
4.5.1	Charakterisierung des Feststoffes	66
4.5.2	Wandreibung	69
4.5.3	Böschungswinkel	69
5	<i>Ergebnisse</i>	75
5.1	Identifizierung und Analyse von hydrodynamischen Störstellen inner- halb des Kristallisators	75
5.1.1	Produktabzugsstutzen	75
5.1.2	Konischer Teil im unteren Bereich des Kristallisators	77
5.2	Fluidisierung von Asparaginkristallen im Kristallisator	79
5.2.1	Vertikale Geschwindigkeiten der Kristalle	79
5.2.2	Relativgeschwindigkeiten der Kristalle	82
5.2.3	Zeitliche Entwicklung der CSD	85
5.2.4	Simulationen bei variierter Suspensionsdichte	86
5.2.5	Simulation von Asparaginkristallen mit Wachstum	91
5.2.6	Simulation von nicht-sphärischen Partikeln	94
5.3	Simulation von Guaifenesinkristallen in Lösung	98

5.4	Simulation eines zentralen Ausschnitts des Kristallisators	103
6	<i>CFD-basierte Geometrieoptimierung eines Wirbelschichtkristallisators</i>	109
6.1	Grundlagen der Optimierung	110
6.1.1	Genetische Optimierung	110
6.1.2	Designvariablen	111
6.1.3	Zielfunktion	113
6.1.4	Optimierungsprozess	114
6.2	Ergebnisse	115
7	<i>Zusammenfassung und Ausblick</i>	119

Nomenklatur und Abkürzungen

Lateinische Symbole

A	Querschnittsfläche	$[\text{m}^2]$
Ar	Archimedeszahl	$[-]$
$C_{d,0}$	Widerstandsbeiwert	$[-]$
Co	Courantzahl	$[-]$
c_n	Dämpfungskoeffizient in normaler Richtung	$[\frac{\text{kg}}{\text{s}}]$
c_t	Dämpfungskoeffizient in tangentialer Richtung	$[\frac{\text{kg}}{\text{s}}]$
D_{Krist}	Durchmesser des Kristallisators	$[\text{m}]$
d	Durchmesser	$[\text{m}]$
E	Elastizitätsmodul	$[\text{Pa}]$
e	Restitutionskoeffizient	$[-]$
\vec{F}_b	Körperkraft	$[\text{Pa}]$
F_c	Kontaktkraft	$[\text{Pa}]$
F_d	Widerstandskraft	$[\text{Pa}]$
F_{d0}	Widerstandskraft eines Einzelpartikels	$[\text{Pa}]$
\vec{F}_f	Kraft, die die Flüssigkeit auf die Partikel ausübt	$[\text{Pa}]$
\vec{F}_{ges}	Gesamtkraft	$[\text{Pa}]$
\vec{F}_n	Normalkraft	$[\text{Pa}]$
\vec{F}_t	Tangentialkraft	$[\text{Pa}]$
G	Schubmodul	$[\text{Pa}]$
g	Erdbeschleunigung	$[\frac{\text{kg}}{\text{m}^2}]$
H1	Variable, Höhe 1	$[\text{m}]$
H2	Variable, Höhe 2	$[\text{m}]$
H3	Variable, Höhe 3	$[\text{m}]$

h	Höhe im Kristallisator	[m]
I	Trägheitsmoment	[N · m]
i	Partikel	[–]
j	Partikel, Kontaktpartner zu Partikel i	[–]
k	Verhältnis von zwei Partikelgrößen	[–]
k_n	Federsteifigkeit, normal	[N · m]
k_t	Federsteifigkeit, tangential	[N · m]
L	Höhe des Wirbelbettes	[m]
M	Drehmoment	[N · m]
m_p	Partikelmasse	[kg]
N_p	Partikelanzahl	[–]
n	Exponent	[–]
\vec{n}	Normalenvektor	[–]
p	Druck	[Pa]
Q_3	Partikelgrößenverteilung	[–]
q_3	Partikelgrößenverteilungsdichtefunktion	[$\frac{1}{m}$]
R1	Variable, Radius 1	[m]
R2	Variable, Radius 2	[m]
$R_{f,p}$	Impulsaustausch zwischen Fluid und Partikeln	[N · m]
Re	Reynoldszahl	[–]
Re _{mf}	Reynoldszahl zur minimalen Fluidisierung	[–]
r	Partikelradius	[m]
T	Temperatur	[°C]
t	Zeit	[s]
\vec{t}	Tangentialvektor	[–]
t_{Rayleigh}	Rayleighzeit	[s]
t_{sink}	Sinkzeit	[s]
\dot{V}	Volumenstrom	[$\frac{m^3}{s}$]
V_{KM}	Volumen, das die Kontrollmasse einnimmt	[–]
v	Geschwindigkeit	[$\frac{m}{s}$]
v_i	Geschwindigkeit eines zusammenstoßenden Körpers	[$\frac{m}{s}$]
v_j	Geschwindigkeit eines zusammenstoßenden Körpers	[$\frac{m}{s}$]
v_m	mittlere Geschwindigkeit des Fluides	[$\frac{m}{s}$]
v_{mf}	minimale Fluidisierungsgeschwindigkeit	[$\frac{m}{s}$]

x	kartesische Koordinate in x-Richtung	[–]
y	kartesische Koordinate in y-Richtung	[–]
z	kartesische Koordinate in z-Richtung	[–]

Griechische Symbole

α	Porosität, Flüssigkeitsvolumenanteil	[–]
ΔP	Term des piezometrischen Druckverlustes	[Pa]
Δp	Druckverlust	[Pa]
Δt	Zeitschritt	[s]
Δv_n	Relativgeschwindigkeit am Kontaktpunkt (normal)	$[\frac{m}{s}]$
Δv_t	Relativgeschwindigkeit am Kontaktpunkt (tangential)	$[\frac{m}{s}]$
Δx	Gitterzelllänge	[m]
Δx_p	räumliche Überlappung der Partikel	[m]
ϵ_h	Diskretisierungsfehler	[–]
μ	dynamische Viskosität	[Pa · s]
μ_r	Rollreibungwert (auch Rollreibungsbeiwert, Rollwiderstandsbeiwert)	[–]
μ_p	Partikelreibungwert (auch Rollreibungskoeffizient der Coulombschen Reibung)	[–]
ν	kinematische Viskosität	$[\frac{m^2}{s}]$
ν	Poissonzahl	[–]
ρ	Dichte	$[\frac{kg}{m^3}]$
σ	Ordnung	
τ	Verweilzeit	[s]
τ	viskoser Teil des Spannungstensors	[–]
Φ	extensive Eigenschaft	[–]
ϕ	intensive Eigenschaft	[–]
χ	Faktor, zur Gitterverfeinerung	
Ψ	Sphärizität	[–]
ω	Rotationsgeschwindigkeit	$[\frac{rad}{s}]$

Subskripte

eq	equilibrium, dt.: Gleichgewicht
f	Fluid
fest	Feststoff
Guaif	Guaifenesin
ges	gesamt
<i>i</i>	Laufvariable
in	Einlass
<i>j</i>	Laufvariable
mag	Magnitude
max	Maximum
ns	nicht sphärisch
out	Auslass
p	Partikel
s	sphärisch
<i>x</i>	kartesische Koordinate in x-Richtung
<i>y</i>	kartesische Koordinate in y-Richtung
<i>z</i>	kartesische Koordinate in z-Richtung
rel	relativ

Abkürzungen

AOR	Angle of repose
CFD	Computational Fluid Dynamics
CSD	Crystal size distribution
DEM	Diskrete-Elemente-Methode
DPM	Diskrete-Phasen-Simulationen
FVM	Finite Volumen Methode
KM	Kontrollmasse
KV	Kontrollvolumen
PSD	Particle size distribution

Abbildungsverzeichnis

1.1	Problemstellungen und Projektziele von ENANTIOSIM.	2
1.2	Prinzip des kontinuierlichen Kristallisationsverfahrens für die Synthese eines gewünschten Enantiomers nach [12].	3
1.3	Versuchsstand am MPI Magdeburg von Herrn M.Sc. Jonathan Gänsch (AG Seidel-Morgenstern).	5
2.1	Schematische Darstellung von Partikel-Partikel Kontakten in normaler und tangentialer Richtung (nach [20]).	10
2.2	Schematische Darstellung des Einflusses des Verhältnisses zwischen dem Gitterzellenvolumen und dem Partikelvolumen auf die Porosität für ein grobes Gitter (oben) und ein feines Gitter (unten).	20
2.3	Schematische Darstellung der Modelle <i>centered</i> (links) und <i>divided</i> (rechts).	21
3.1	Kristallisatorgeometrie und blockstrukturiertes Rechengitter für das Setup 1, links: Gesamtansicht, rechts: Details.	25
3.2	Versuchskristallisatorgeometrie und blockstrukturiertes Rechengitter für das Setup 2, links: Gesamtansicht, rechts: Details.	25
3.3	Lösungsalgorithmus bei der CFD-DEM-Kopplung.	28
3.4	Berechnungszeit über der Anzahl von Prozessoren, die für die Kristallisatorberechnung verwendet werden.	31
3.5	Residuenverlauf für den Druck für die stationäre Berechnung des einphasigen Kristallisators.	33
3.6	Residuenverläufe für die Geschwindigkeit in x -, y - und z -Richtung für die stationäre Berechnung des einphasigen Kristallisators.	34
3.7	Residuenverlauf für den Druck für die instationäre Berechnung des zweiphasigen Kristallisators.	35

3.8	Residuenverläufe für die Geschwindigkeit in x -, y - und z -Richtung für die instationäre Berechnung des zweiphasigen Kristallisators.	35
3.9	Die für die Richardson-Extrapolation verwendeten blockstrukturierten Gitter im Querschnitt, links - größtes Gitter mit 30 080 Gitterzellen, mitte - zweitfeinstes Gitter mit 240 640 Zellen, rechts - feinstes Gitter mit 1 976 065 Gitterzellen.	36
3.10	Links - Nahansicht von Asparaginmonohydratkristallen [12]; rechts - Geometrieapproximierung durch sphärische Partikel, wie sie in der CFD-DEM-Simulation üblicherweise verwendet werden.	38
3.11	Komposit eines nicht-sphärischen Partikels aus fünf Kugeln und Originalform des Asparaginmonohydrat-Kristalls [21].	39
3.12	Zentraler Ausschnitt des Kristallisators mit blockstrukturiertem CFD-Gitter.	43
3.13	Ausschnitt des Kristallisators auf Produktauslasshöhe mit blockstrukturiertem CFD-Gitter.	44
3.14	Vergleich der gemittelten Vertikalgeschwindigkeit von fluidisierten Asparaginkristallen als Funktion ihrer radialen Position im Kristallisator - nicht-skalierte CFD-DEM-Simulation (rote Kreise) und skalierte CFD-DEM Simulation (blaue Sterne); die Fehlerbalken zeigen die Standardabweichung um den Mittelwert.	47
4.1	In-line-Messung im Kristallisator mittels FBRM-Sonde.	49
4.2	(a) - Experiment mit Glaspartikeln unterschiedlicher Farbe und Größe ($d_{m,violett} = 150 - 180 \mu\text{m}$; $d_{m,orange} = 90 - 125 \mu\text{m}$), (b) - CFD-DEM-Simulation mit 100,000 Partikeln nach einer physikalischen Zeit von 30 s, (c) - Anfang der CFD-DEM-Simulation $t = 2 \text{ s}$	49
4.3	Versuchskristallisator zur Modellvalidierung (Setup 2).	50
4.4	Gemessene kumulative Partikelgrößenverteilungsfunktion Q_3 der Glaspartikel.	51
4.5	Spärizitätsverteilung zwei verschiedener Glaspartikelfraktionen.	53
4.6	Sinkgeschwindigkeiten von Glaspartikeln in Wasser - Experiment und CFD-DEM-Simulation, $\nu (T = 15^\circ\text{C}) = 1,14 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	56
4.7	Sinkgeschwindigkeiten von Glaspartikeln in Wasser - Experiment und CFD-DEM-Simulation, $\nu (T = 20^\circ\text{C}) = 1 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	56

4.8	Sinkgeschwindigkeiten von Glaspartikeln in Wasser - Experiment und CFD-DEM-Simulation, $\nu (T = 5^\circ\text{C}) = 1,5 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	57
4.9	Sinkgeschwindigkeiten von Glaspartikeln in Wasser - Experiment, CFD-DEM-Simulation, $\nu (T = 15^\circ\text{C}) = 1,14 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$ und analytische Lösung.	57
4.10	Versuchskristallisator fokussiert auf einer Höhe von 0,5 m mit fluidisierten Partikeln, (a) - Trajektorien von drei beliebig ausgewählten Partikeln, (b) - fluidisierte Glaspartikel.	58
4.11	Geschwindigkeiten von fluidisierten Partikeln in Wasser - Experiment, Simulation und analytische Lösung.	59
4.12	Shadowgraphie-Versuchsaufbau für die Validierungsversuche im speziell designten Kristallisator (1), Dedocool-Wolframlichtkopf (2) mit optischer Diffusorplatte (3), Kamera (4), pumpengeförderter Wasserkreislauf (5), Durchflussmesser (6) und Wasserreservoir (7 und 8), Zeichnung von Dipl.-Ing. C. Roloff, LSS, ISUT, OvGU Magdeburg.	60
4.13	Gerät zur Kamerakalibrierung.	61
4.14	Gemessene Partikelvertikalgeschwindigkeit v_z als Funktion der radialen Position im Versuchskristallisator, die Größe der Markierung ist proportional zum quadrierten Durchmesser; (a) - die gestrichelte Linie stellt die analytische Lösung des erwarteten Hagen-Poiseuille Geschwindigkeitsprofil dar; (b) - Die Symbollinien stellen die quadratischen Fitkurven für Partikel dar mit 95 -100 μm (oberste Linie), 120 - 125 μm (mittlere Linie), 140 -155 μm (unterste Linie).	62
4.15	Simulierte Partikelvertikalgeschwindigkeit v_z als Funktion der radialen Position im Versuchskristallisator, die Größe der Markierung ist proportional zum quadrierten Durchmesser; (a) - die gestrichelte Linie stellt die analytische Lösung des erwarteten Hagen-Poiseuille Geschwindigkeitsprofil dar; (b) - Die Symbollinien stellen die quadratischen Fitkurven für Partikel dar mit 95 -100 μm (oberste Linie), 120 - 125 μm (mittlere Linie), 140 -155 μm (unterste Linie).	63

4.16	Vergleich der gemittelten Vertikalgeschwindigkeit v_z von fluidisierten Glasparkeln als Funktion ihrer radialen Position im Versuchskristallisator - Experiment (schwarze Kreuze), CFD-DEM Simulation (rote Kreise); die Fehlerbalken zeigen die Standardabweichung um den Mittelwert.	64
4.17	Vergleich der gemittelten Vertikalgeschwindigkeit v_z von fluidisierten Glasparkeln als Funktion ihrer radialen Position im Versuchskristallisator - Experiment (schwarze Kreuze), CFD-DEM-Simulation mittels OpenFOAM (rote Kreise) und CFD-DEM Simulation mittels StarCCM+ (blaue Sterne); die Fehlerbalken zeigen die Standardabweichung um den Mittelwert.	65
4.18	Gemessene CSD Funktion q_3 für die Asparaginmonohydrat-Kristalle (Messung 1) von Dipl.-Ing Antje Bartz.	67
4.19	Gemessene CSD Funktion q_3 für die Asparaginmonohydrat-Kristalle (Messung 2) von M.Sc. Jonathan Gaensch.	68
4.20	Experiment zur Bestimmung des statischen Böschungswinkels von Asparaginmonohydrat.	69
4.21	Böschungswinkelsimulationen des statischen Experiments für die DEM-Kalibrierung.	70
4.22	Versuchsaufbau für das Ausflussverhalten (links) und den daraus resultierenden Böschungswinkel (rechts) für 5 g Asparaginmonohydrat.	71
4.23	Böschungswinkelsimulationen aus dem dynamischen Experiment für die DEM-Kalibrierung.	72
4.24	Schnittpunkt der Konturlinien für die experimentell ermittelten Böschungswinkel für den statischen (rot) und dynamischen AOR (grün).	73
4.25	Vergleich von experimentell bestimmtem Böschungswinkel und DEM-Simulation.	73
4.26	Schnittpunkt der Konturlinien für die experimentell ermittelten Böschungswinkel für den dynamischen AOR (grün) und statischen AOR (Zylinderversuch, rot und Scherbox, blau).	74
4.27	Vergleich von experimentell bestimmtem statischen Böschungswinkel (Scherbox) und DEM-Simulation.	74

5.1	(a) - Geschwindigkeitsmagnituden in der zentralen Schnittebene des Kristallisators bei 180 s, (b) - Nahansicht der Geschwindigkeitsmagnituden im Kristallisator in mittlerer Höhe nahe der Produktabzugsstutzen, (c) - Nahansicht des Produktabzugsstutzens im Experiment mit Glaspartikeln als Tracer, (d) - Geschwindigkeitsmagnitude in der zentralen Ebene des Kristallisators mit geschlossenen Produktabzugsstutzen bei 180 s, (e) - Nahansicht des Geschwindigkeitsfeldes im Kristallisator mit geschlossenen Produktabzugsstutzen auf mittlerer Höhe nahe der Produktabzugsstutzen, (f) - Geschwindigkeitsmagnitude in der zentralen Ebene des Testkristallisators (Setup 2) bei 180 s.	76
5.2	Momentangeschwindigkeitsaufnahme zu einer Zeit von 180 s im unteren, konischen Teil des Kristallisators mit Kristallisatoreinlass und Anschlussstutzen, der den zentralen Kristallisator mit der Zerkleinerung verbindet, links - offener Anschlussstutzen, rechts - geschlossener Anschlussstutzen.	78
5.3	Momentangeschwindigkeitsaufnahme entlang der vertikalen Mittellinie innerhalb des Kristallisators, (gestrichelte Linie) - offener Anschlussstutzen, (durchgezogene Linie) - geschlossener Anschlussstutzen. . . .	79
5.4	Vertikale Kristallgeschwindigkeit v_z in Abhängigkeit von der Höhe im Kristallisator z und dem Kristalldurchmesser d für acht Klassen: 50, 65, 125, 165, 225, 265, 325 und 365 μm , Momentaufnahme bei einer physikalischen Zeit von 40 s	80
5.5	Vertikale Kristallgeschwindigkeit v_z in Abhängigkeit von der Höhe im Kristallisator z für acht Klassen: 50, 65, 125, 165, 225, 265 und 325 μm , Momentaufnahme bei einer physikalischen Zeit von 40 s	81

5.6	Vertikale Relativgeschwindigkeit fluidisierter Asparaginkristalle $v_{z,rel}$ in Abhängigkeit von ihrer radialen Position im Kristallisator R bei nicht aktivierter Zerkleinerung auf Höhe der Schnittebene des Produktabzugsstutzens ($z = 0,525$ m); die Größe der Marker der Kristalle ist quadratisch proportional zu ihrem Durchmesser. Die durchgezogenen Linien zeigen die linearen Fit-Kurven für Partikel von 50, 65, 125, 165, 225 und 265 μm (von der unteren Zeile bis zur oberen Zeile). Da es sehr wenige Partikel der Größe 325 μm und 365 μm gibt, sind diese nicht in die Analyse einbezogen.	82
5.7	Vertikale Relativgeschwindigkeit $v_{z,rel}$ fluidisierter Asparaginkristalle in Abhängigkeit von ihrer radialen Position im Kristallisator bei aktivierter Zerkleinerung auf Höhe der Schnittebene des Produktabzugsstutzens ($z = 0,525$ m); die Größe der Marker der Kristalle ist quadratisch proportional zu ihrem Durchmesser. Die durchgezogenen Linien zeigen die linearen Fit-Kurven für Partikel von 50, 65, 125, 165, 225 und 265 μm (von der unteren Zeile bis zur oberen Zeile). Da es sehr wenige Partikel der Größe 325 μm und 365 μm gibt, sind diese nicht in die Analyse einbezogen.	83
5.8	Geschwindigkeitsmagnituden und Druckfeld in Anwesenheit von Kristallen für den Fall einer aktivierten Zerkleinerung.	84
5.9	Geschwindigkeitsmagnituden und Druckfeld in Anwesenheit von Kristallen für den Fall einer nicht aktivierten Zerkleinerung.	85
5.10	Zeitliche Entwicklung der CSD auf Höhe des Produktabzugs.	86
5.11	Flüssigkeitsvolumenanteil im Kristallisator, Ausschnitt der vertikalen zentralen Schnittebene auf Höhe des Produktabzugsstutzens ($z = 0,525$ m) mit Darstellung fluidisierter Asparaginkristalle (weiße Punkte). Momentaufnahme bei einer physikalischen Zeit von 40 s, links - bei aktivierter Zerkleinerung, rechts - bei nicht aktivierter Zerkleinerung.	87
5.12	CFD-DEM-Simulation eines Ausschnitts in Produktabzugshöhe bei unterschiedlichen Suspensionsdichten zum Zeitpunkt $t = 30$ s, links - 10 000 Partikel, Mitte - 50 000 Partikel, rechts - 100 000 Partikel. Die Partikel sind nach ihrem Durchmesser eingefärbt.	89

5.13	CFD-DEM-Simulation eines Ausschnitts in Produktabzugshöhe bei den unterschiedlichen Suspensionsdichten zum Zeitpunkt $t = 30$ s, links - 10 000 Partikel, Mitte - 50 000 Partikel, rechts - 100 000 Partikel. Die Partikel sind nach der Geschwindigkeitsmagnitude eingefärbt.	90
5.14	Mittlere Partikelgeschwindigkeit v_{mittel} über die Zeit für die Partikelanzahlen 10 000 Partikel (schwarze Kreuze), 50 000 Partikel (rote Kreise), 100 000 Partikel (blaue Sterne).	90
5.15	Maximale Partikelgeschwindigkeit v_{max} über die Zeit für die Partikelanzahlen 10 000 Partikel (schwarze Kreuze), 50 000 Partikel (rote Kreise), 100 000 Partikel (blaue Sterne).	91
5.16	CFD-DEM-Simulation mit beschleunigtem Wachstum zum Zeitpunkt $t = 300$ s.	92
5.17	Links - eingefügter Massenstrom (schwarz) und Massenstrom, der den Kristallisator am unteren Auslass verlässt (rot) über die Zeit, rechts - Anzahl der Partikel, die eingefügt werden (schwarz) und aus dem Kristallisator austreten (rot) über die Zeit.	93
5.18	Zustand der Fluidisierung der Partikel in der Säule (Setup 2) nach 30 s physikalischer Zeit; links: sphärische Partikel; rechts: nicht-sphärischen Partikeln; in fünffacher Vergrößerung der tatsächlichen Partikelgröße [21].	94
5.19	Vertikale Partikelgeschwindigkeit v_z der 150 μm Kristalle und Kugeln [21].	95
5.20	Zustand der Fluidisierung von nicht-sphärischen Partikeln in der Säule (Setup 2) nach 30 s physikalischer Zeit in fünffacher Vergrößerung der tatsächlichen Partikelgröße; links: Partikel in zufälligen Richtungen initialisiert; rechts: Partikel längs der Strömungsrichtung initialisiert [21].	97
5.21	Gemessene CSD Function Q_3 für die Guaifenesin-Kristalle.	99
5.22	CFD-DEM-Simulation von fluidisierten Guaifenesin-Kristallen bei 36°C, 38 °C und 40°C und nicht aktivierter Zerkleinerung bei einer physikalischen Zeit von 32 s; Einfärbung der Kristalle nach Partikelradius und optische Vergrößerung um den fünffachen Partikelradius.	99

5.23	Zoomdarstellung der CFD-DEM-Simulation von fluidisierten Guaifenesin-Kristallen bei 36°C und nicht aktivierter Zerkleinerung bei einer physikalischen Zeit von 32 s; Einfärbung der Kristalle nach Partikelradius und optische Vergrößerung um den fünffachen Partikelradius.	100
5.24	Vergleich der vertikalen Geschwindigkeit, v_z , fluidisierter Guaifenesin-Kristalle in Abhängigkeit von ihrer radialen Position im Kristallisator bei 36°C, 38 °C und 40°C auf Höhe der Schnittebene des Produktabzugsstutzens ($z = 0,525\text{m}$); die Fehlerbalken indizieren die Standardabweichung um den Mittelwert.	101
5.25	Vertikale Geschwindigkeit, v_z , fluidisierter Guaifenesin-Kristalle in Abhängigkeit von ihrer radialen Position im Kristallisator bei 36°C auf Höhe der Schnittebene des Produktabzugsstutzens ($z = 0,525\text{m}$); die Größe der Marker der Kristalle ist quadratisch proportional zu ihrem Durchmesser.	102
5.26	Vertikale Geschwindigkeit, v_z , fluidisierter Guaifenesin-Kristalle in Abhängigkeit von ihrer radialen Position im Kristallisator bei 38°C auf Höhe der Schnittebene des Produktabzugsstutzens ($z = 0,525\text{m}$); die Größe der Marker der Kristalle ist quadratisch proportional zu ihrem Durchmesser.	102
5.27	Vertikale Geschwindigkeit, v_z , fluidisierter Guaifenesin-Kristalle in Abhängigkeit von ihrer radialen Position im Kristallisator bei 40°C auf Höhe der Schnittebene des Produktabzugsstutzens ($z = 0,525\text{m}$); die Größe der Marker der Kristalle ist quadratisch proportional zu ihrem Durchmesser.	103
5.28	Geschwindigkeitsmagnitude der fluiden Phase in der Versuchssäule bei einer Simulation ohne Partikel, links - dreidimensionale Simulation mit einer Einlassgeschwindigkeit von $0,192 \frac{\text{m}}{\text{s}}$, Mitte - Ausschnittsimulation (zweidimensional) mit einer Einlassgeschwindigkeit von $0,192 \frac{\text{m}}{\text{s}}$, rechts - Ausschnittsimulation (zweidimensional) mit einer Einlassgeschwindigkeit von $0,069 \frac{\text{m}}{\text{s}}$	105
5.29	Geschwindigkeitsprofile der dreidimensionalen Simulation und der zweidimensionalen Simulation mit ursprünglicher und angepasster Einlassgeschwindigkeit bei einer vertikalen Position in der Versuchssäule von links - 0,2 m, Mitte - 0,5 m, rechts - 0,8 m.	106

5.30	Vergleich der gemittelten Vertikalgeschwindigkeiten, v_z , von fluidisierten Glaspartikeln als Funktion ihrer radialen Position im Versuchskristallisator - Experiment (schwarze Kreuze), dreidimensionale CFD-DEM Simulation (blaue Sterne), Ausschnittssimulation (rote Kreise); die Fehlerbalken zeigen die Standardabweichung um den Mittelwert.	107
6.1	Die beiden Wirbelschichtkristallisatorgeometrien, die als Grenzfälle für die Geometrieoptimierung angenommen werden.	111
6.2	Die Abhängigkeiten der Variablen von der Zielfunktion und jeweils untereinander.	112
6.3	Plot der Variablen H2, H3 und R2 für 360 Individuen (18 Generationen), die Farbe der Marker gibt den Wert für die Zielfunktion an, die optimiert werden soll (gelb).	115
6.4	Plot der Variablen H2, H3 und R2 für 360 Individuen (18 Generationen), die Farbe der Marker gibt den Wert für die Zielfunktion an, die optimiert werden soll (gelb), Zoomdarstellung im Bereich H3 = 0,55 - 0,6 m.	116
6.5	Die Konfiguration 1 (links) und die Konfiguration 2 (rechts) bei einer physikalischen Zeit von $t = 60$ s.	117
6.6	Geometrische Konfiguration mit der besten Zielfunktion.	117
6.7	Absolute Anzahlverteilung der Kristalle, blau - Konfiguration 1, grün - Konfiguration 2, gelb - Konfiguration mit der besten Zielfunktion.	118

Tabellenverzeichnis

3.1	Die verwendeten numerischen Schemata.	29
3.2	Berechnungszeiten einiger ausgewählter Simulationen.	32
3.3	Die Konvergenzkriterien (Toleranzen) für die verwendeten Parameter Geschwindigkeit v und Druck p	33
3.4	Volumen, Fläche und Sphärizität einer Kugel und eines Kristallkom- posits.	40
3.5	Konfiguration der Solver für die Simulation sphärischer und nicht- sphärischer Partikel und Berechnungszeiten.	40
4.1	Größenbereiche, Absolutdichten und Schüttdichten der Glaspartikel- fraktionen).	52
4.2	DEM-Simulationsparameter für die Modellvalidierung in Setup 2.	53
4.3	Sinkgeschwindigkeiten von Glaspartikeln in Wasser - Experiment und CFD-DEM-Simulation.	55
4.4	Werte für Restitutionskoeffizient, Poisson-Zahl, Elastizitätsmodul und Schubmodul.	68
5.1	Feststoffvolumen, Lückenvolumen und Porosität bei Simulationen mit unterschiedlicher Partikelanzahl	88
5.2	Vergleich der vertikalen Partikelgeschwindigkeiten v_z von Kristallen und Kugeln sowie Berechnungszeiten für 10 000 Partikel [21].	96
5.3	Daten zu einer gesättigten Guaifenesinlösung bei unterschiedlichen Temperaturen.	98

Einleitung

Die Kristallisation ist ein sehr wichtiger Prozess in der chemischen, pharmazeutischen sowie Lebensmittelindustrie und ist seit Jahrzehnten das Thema intensiver Forschungsprojekte von [1] und [2]. In fest/flüssig-Kristallisatoren wird das Kristallwachstum stark von der Hydrodynamik beeinflusst. Studien darüber sind von [3, 4] veröffentlicht worden. Im Vergleich zu fest/gas-Wirbelschichten, die intensiv von [5] und [6] untersucht worden sind, sind Studien bezüglich fest/flüssig-Wirbelschichten relativ selten in der Fachliteratur zu finden [7].

In der vorliegenden Arbeit wird ein Wirbelschichtkristallisator untersucht, mit dem Ziel die Set-up- und Prozessbedingungen zu optimieren. Die Studie ist ein Teilprojekt des Forschungsprojektes „Modellgestützte Analyse und Synthese eines neuartigen vernetzten Prozesses zur kontinuierlichen Trennung von Enantiomeren (ENANTIOSIM)“ im Rahmen des DFG-Schwerpunktprogrammes „Dynamische Simulation vernetzter Feststoffprozesse - DynSim-FP (SPP 1679)“.

ENANTIOSIM besteht aus drei Gruppen, die eng zusammen arbeiten. Die AG Seidel-Morgenstern (Max-Planck-Institut für komplexe dynamische Systeme - MPI Magdeburg) beschäftigt sich mit der Trennung von Enantiomeren in gekoppelten Wirbelschichtkristallisatoren, die AG Janiga (Otto-von-Guericke Universität Magdeburg) untersucht die unbekannte Hydrodynamik sowie das unbekannte Fluidisierungsverhalten der Kristalle in einem Einzelkristallisator und die AG Mangold (Technische Hochschule Bingen) führt Simulationen im Anlagenkontext durch. Die Abb. 1.1 gibt

einen Überblick über die Problemstellungen einschließlich ihrer daraus resultierenden Projektziele.

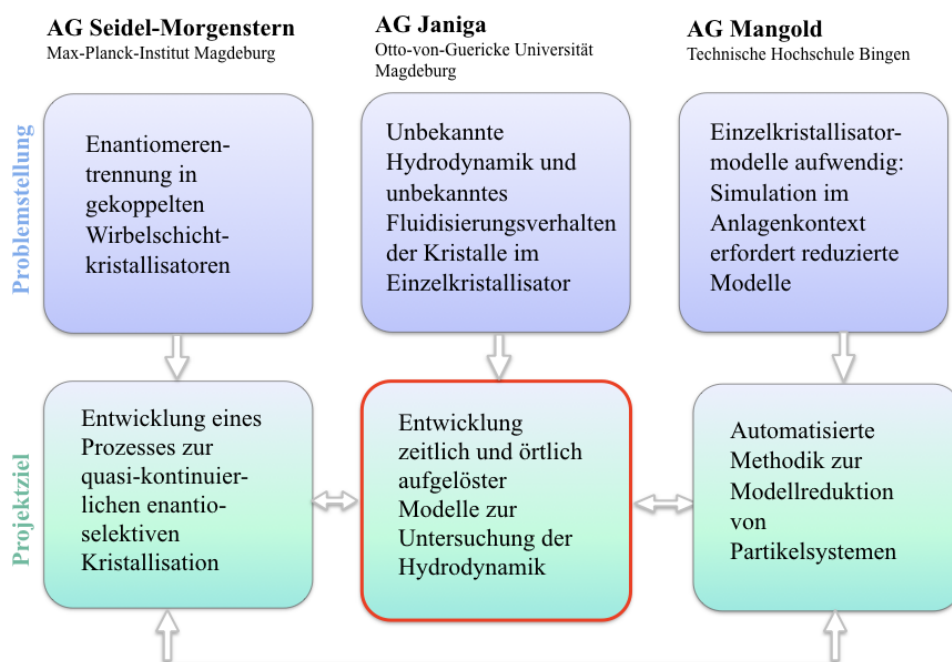


Abb. 1.1 – Problemstellungen und Projektziele von ENANTIOSIM.

Enantiomere sind chemische Moleküle, die sich räumlich wie Spiegelbilder zueinander verhalten. Sie haben identische physikochemische Eigenschaften, unterscheiden sich aber in ihrem Verhalten in einer chiralen Umgebung (bspw. in lebenden Organismen). Damit spielt die Verwendung von reinen Enantiomeren eine besonders wichtige Rolle in der Life-Science-Industrie. Unter bestimmten Bedingungen kann die Kristallisation für die Enantiomerenextraktion verwendet werden. Besonders vorteilhaft ist es dabei, dass die Kristallisation sowohl hochselektiv ist (was zu hohen Reinheiten führt) während gleichzeitig ein gezieltes Partikeldesign realisierbar ist. Zur Herstellung von Feinchemikalien werden in der Regel Batch-Prozesse eingesetzt. Um jedoch eine konstante Produktqualität zu gewährleisten und um gleichzeitig größere Produktionskapazitäten zu ermöglichen (z.B. um Aminosäuren zu produzieren),

können kontinuierliche Kristallisationsprozesse eine sehr attraktive Alternative sein. Die Entwicklung und Optimierung des Kristallisationsprozesses sind Gegenstand intensiver Forschungsaktivitäten [8, 9, 10, 11].

Der hier untersuchte Prozess in gekoppelten Wirbelschichtkristallisatoren zielt darauf ab die Synthese eines gewünschten Enantiomers als auch die Trennung von racemischen Mischungen durch selektive Kristallisation zu realisieren. Die Abb. 1.2 zeigt die Grundstruktur des Betriebsprozesses.

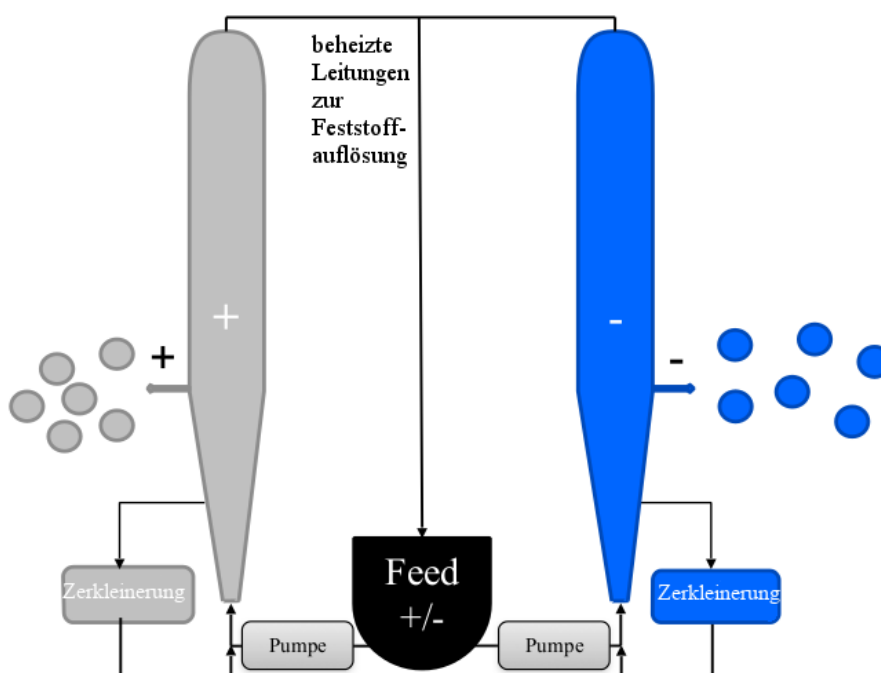


Abb. 1.2 – Prinzip des kontinuierlichen Kristallisationsverfahrens für die Synthese eines gewünschten Enantiomers nach [12].

Zwei identisch gebaute Kristallisatoren bilden den Hauptteil des Prozesses, der von [12, 13] und weiterführend von [14] untersucht worden ist. Die beiden Kristallisatoren sind parallel geschaltet und eine Reaktion läuft in beiden Kristallisatoren synchron ab. Dadurch können gleichzeitig zwei Austrittsströme erzeugt werden, welche jeweils nur ein einzelnes Enantiomer enthalten. Obwohl typischerweise nur eines der Enantiomere das Ziel ist, ist die kontinuierliche Herstellung des zweiten auch sehr attraktiv. Das Gegenenantiomer kann für andere Anwendungen verwendet werden (z. B. als Baustein für weitere chirale Moleküle) oder es kann racemisiert und recycelt werden. Die Kristallisatoren werden kontinuierlich mit einer gesättigten Lösung eines

racemischen Feststoffs über einen Feedtank versorgt. Der Einlass befindet sich am untersten Teil des Kristallisators. Um den Kristallisationsvorgang zu starten, werden feste Mengen an enantiomerreinen Impfkristallen anfänglich in jeden der beiden Kristallisatoren gegeben. Somit enthält ein Kristallisator zunächst das gewünschte Enantiomer, während der andere Kristallisator das Gegenenantomer enthält. Das selektive Wachstum der Impfkristalle reduziert die Übersättigung der Lösung in beiden Gefäßen. Die Lösung mit den verbleibenden Enantiomeren verlässt den Kristallisator an der Oberseite und wird über beheizte Leitungen (um sie aufzulösen) dem Vorratsbehälter zugeführt, bevor sie wieder zirkuliert. Währenddessen werden Kristalle einer bestimmten Größe als Suspension im mittleren Teil des Kristallisators abgezogen. Um sicherzustellen, dass der Prozess kontinuierlich abläuft, werden Kristalle unterhalb einer bestimmten Größe kontinuierlich zum oberen Auslass des Kristallisators transportiert, während Kristalle größerer Klassen, die auf den Boden des Kristallisators sinken, zum unteren Auslass des Kristallisators transportiert werden. Die Kristalle größerer Klassen werden in einem Ultraschallbad zerkleinert. In neueren Experimenten wurde das Ultraschallbad durch eine effizienter arbeitende Mühle ersetzt. Dies hat keinen Einfluss auf die in dieser Arbeit durchgeführten Simulationen des Einzelkristallisators. Die zerkleinerten Kristalle werden zurück in den Kristallisator transportiert und fungieren als Keime.

Wesentliche Vorteile des Verfahrens sind das Recycling sowohl von 1) dem unerwünschten Enantiomer als auch von 2) allen Kristallen, die sich nicht im Zielgrößenbereich (zu klein oder zu groß) befinden. Ferner erhöht die Verbindung der beiden Kristallisatoren in beiden Fällen die Wachstumsrate des gewünschten Enantiomers und unterdrückt die Tendenz zur unerwünschten Keimbildung des Gegenantomers.

Die Abb. 1.3 zeigt den Versuchsstand von Herrn M.Sc. Jonathan Gänsch (AG Seidel-Morgenstern) am MPI Magdeburg. Die Kristallisatoren sind markiert durch die gelben Rahmen. Der Feedtank befindet sich im unteren Bereich. Obwohl der Versuchsstand bereits in Betrieb ist, haben die erhaltenen Ergebnisse noch weiterhin Optimierungsbedarf. Ein großes Problem ist, dass die Position der Kristalle im Kristallisator als Funktion ihrer Größe nicht theoretisch vorhergesagt bzw. experimentell gemessen werden kann, aufgrund unbekannter Hydrodynamik sowie schlecht zu charakterisierendem Fluidisierungsverhalten, Begrenzung durch Opazität und Instrumentierung. Bedenkt man, dass experimentelle Messungen unter realen

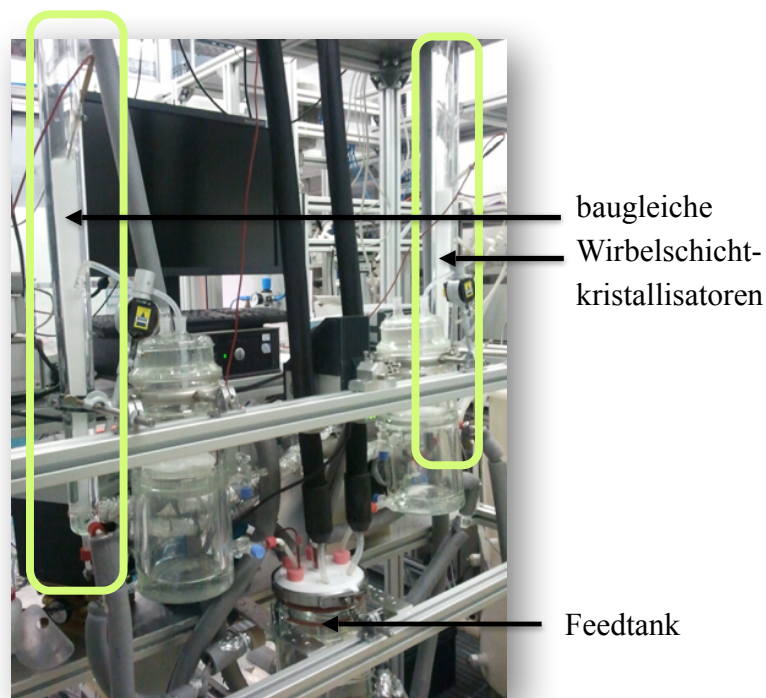


Abb. 1.3 – Versuchsstand am MPI Magdeburg von Herrn M.Sc. Jonathan Gänsch (AG Seidel-Morgenstern).

Bedingungen extrem schwierig durchführbar sind, liefern detaillierte Simulationen wertvolle Informationen, die zur Prozessverbesserung beitragen und die Tür für die Prozessoptimierung öffnen.

Die Simulationen basieren auf der Kopplung von Numerischer Strömungsmechanik (Computational Fluid Dynamics: CFD) mit der Diskrete-Elemente-Methode (DEM). Solche gekoppelten CFD-DEM-Simulationen stellen einen vielversprechenden Ansatz für die Simulation von mehrphasigen Strömungen dar, wie sie bspw. von [15] und [16] durchgeführt worden sind. CFD-DEM Berechnungen gehören zu den sogenannten Vier-Wege-Kopplungsmethoden, was laut [17] bedeutet, dass:

1. das Fluid (kontinuierliche Phase) die Partikel beeinflusst,
2. die Partikel einen Einfluss auf das Fluid haben,
3. die Störung des Fluids durch ein Partikel sich lokal auf die Bewegung von anderen Partikeln auswirkt (eine Wirkung, die oft Partikel-Schwarmeffekt bezeichnet wird),
4. die Partikel untereinander sowie mit den geometrischen Wänden kollidieren können.

Der Vorteil von CFD-DEM Simulationen im Vergleich zu einfacheren mehrphasigen Modellen, bspw. den Diskrete-Phasen-Simulationen (DPM), ist, dass Partikel-Partikel-Wechselwirkungen direkt berücksichtigt werden, sowie die Strömungsänderungen aufgrund der Schwarmeffekte. Im hier betrachteten Wirbelschichtkristallisator machen sich diese Wechselwirkungen bemerkbar, da die Suspensionsdichte u.U. hoch ist, was die Notwendigkeit für CFD-DEM-Simulationen anstelle von anderen Modellen erklärt. Laut [18] sollten Partikel-Partikel-Wechselwirkungen berücksichtigt werden, sobald der Feststoffvolumenanteil höher als 0,0004 ist. Diese Bedingung ist hier eindeutig erfüllt.

Diese Arbeit enthält zunächst eine Beschreibung des verwendeten CFD-DEM-Modells. Anschließend werden die rechnerischen Details beschrieben. Um die CFD-DEM-Simulationen zu validieren, werden Validierungsexperimente durchgeführt. Dazu werden Versuche in einem speziell designten Versuchskristallisator unter Verwendung von Glaspartikeln mit einer bekannten, engen Partikelgrößenverteilung (PSD), anstelle von Kristallen mit einer breiten Kristallgrößenverteilung (CSD) durchgeführt. Kristallisatorbereiche mit ungünstigen hydrodynamischen Eigenschaften werden mittels einphasiger CFD-Simulationen identifiziert und Lösungsansätze dazu vorgeschlagen. Die validierten CFD-DEM-Simulationen liefern wertvolle Informationen zum Prozessverständnis, wie Geschwindigkeiten (sowohl absolut als auch relativ) und exakte Positionen der Kristalle im Kristallisator. Da solche Simulationen rechnerisch anspruchsvoll sind, muss ein Kompromiss zwischen der simulierten Prozesszeit und der Anzahl der simulierten Partikel gefunden werden. Folglich können nur ein paar Sekunden des Prozesses, der insgesamt mehrere Stunden dauert, nachgebildet werden. Die CFD-DEM-Simulationen werden nicht verwendet, um den gesamten Kristallisationsprozess zu simulieren, sondern ausgewählte Themen wie das Controlling und die Auswirkungen auf das Prozessergebnis zu untersuchen, wobei der Schwerpunkt auf den Details der Zweiphasenströmung liegt. Im letzten Kapitel der Arbeit wird eine automatisierte, genetische Geometrieoptimierung mittels der hauseigenen Software Opal++ durchgeführt [19].

Modellbeschreibung

In diesem Abschnitt wird das verwendete Modell beschrieben, welches auf der Kopplung zwischen der Numerischen Strömungssimulation (Computational Fluid Dynamics: CFD) mit der Diskrete-Elemente-Methode (DEM) basiert.

2.1 Grundlagen der Diskrete-Elemente-Methode

In der DEM werden die physikalischen Partikel als einzelne, abgeschlossene und diskrete Elemente betrachtet, wie es von [20] beschrieben wird. Die physikalischen Partikel werden in der Regel mathematisch als Kugeln betrachtet. Andere Formen können durch das Verbinden von sphärischen Partikeln prinzipiell dargestellt werden, jedoch auf Kosten eines deutlich höheren Rechenaufwands. Um die Berechnungszeit für die aktuellen CFD-DEM-Simulationen in einem realisierbaren Rahmen zu halten, werden alle Partikel als sphärisch angenommen. Eine Studie von [21] bestätigt, dass das Fluidisierungsverhalten nahezu unverändert bleibt, wenn nicht-kugelförmige Kristalle fluidisiert werden, während sich die erforderliche Berechnungszeit deutlich erhöht.

Das sogenannte *soft sphere contact*-Modell nach [22] basiert auf den Korrelationen von [23] und [24]. Im Gegensatz zum *hard sphere contact*-Modell sind bei dem *soft sphere contact*-Modell virtuelle Überlappungen der Partikel erlaubt. Die Partikelbewegung basiert bei der DEM auf dem Lagrangschen Ansatz, was bedeutet,

dass die Trajektorie jedes Partikels im System explizit durch die Verfolgung seiner Bewegung gelöst wird. Die entsprechende Impulsbilanz dient als Grundlage, um die translationale Beschleunigung jedes Partikels zu berechnen. Fasst man alle Kräfte, die auf ein Partikel wirken, zusammen, erhält man laut [25]:

$$\vec{F}_{\text{ges}} = \vec{F}_{\text{n}} + \vec{F}_{\text{t}} + \vec{F}_{\text{f}} + \vec{F}_{\text{b}}, \quad (2.1)$$

wobei \vec{F}_{n} die normale Kontaktkraft (auch Normalkraft), die bei der Abstoßung zwischen zwei Partikel wirkt, \vec{F}_{t} die tangentielle Kontaktkraft, die die elastische tangentielle Verformung der Partikeloberflächen und die Energiedissipation des tangentialen Kontaktes beschreibt, \vec{F}_{f} die Kraft, die die Flüssigkeit auf die Partikel ausübt und \vec{F}_{b} die Körperkraft, die die Schwerkraft sowie mögliche elektrostatische und magnetische Kräfte umfasst, darstellt. In den vorliegenden Simulationen beschreibt \vec{F}_{b} lediglich die Schwerkraft.

Die Basis für die Winkelbeschleunigung einer Kugel ist die entsprechende Impulsbilanz,

$$I^{(i)} \frac{d\vec{\omega}^{(i)}}{dt} = \overrightarrow{M}^{(ij)}, \quad (2.2)$$

wobei I das Trägheitsmoment, ω die Rotationsgeschwindigkeit des Partikels i , t die Zeit und M das Drehmoment am Kontaktpunkt zum Partikel j bezeichnen.

Die auf die beiden Kontaktpartner i und j wirkenden Kräfte bestehen, nach [26] und [20], aus den elastischen und unelastischen (Dämpfungs-) Komponenten. Die normale Kontaktkraft \vec{F}_{n} ist mit der Abstoßung zwischen den Partikeln assoziiert und kann durch die räumliche Überlappung zwischen den Partikeln Δx_{p} und der Relativgeschwindigkeit am Kontaktpunkt Δu_{n} erhalten werden:

$$\vec{F}_{\text{n}}^{(ij)} = (k_{\text{n}}^{(ij)} \Delta x_{\text{p}}^{(ij)} + c_{\text{n}}^{(ij)} \Delta v_{\text{n}}^{(ij)}) \vec{n}_{ij}. \quad (2.3)$$

Der erste Term der Gleichung ($k_{\text{n}}^{(ij)} \Delta x_{\text{p}}^{(ij)} \vec{n}_{ij}$) entspricht der Normalkraft nach Hertz. Der zweite Term der Gleichung stellt eine für die DEM notwendige Erweiterung dar, da in der Theorie von Hertz keine Dämpfung berücksichtigt wird, wie sie durch die Umwandlung von Energie in Wärme oder Geräusche entsteht. Die Koeffizienten $k_{\text{n}}^{(ij)}$ und $c_{\text{n}}^{(ij)}$ beschreiben die Federsteifigkeit sowie den Dämpfungskoeffizienten.

Da die Hertz-Theorie ausschließlich das Auftreten von Normalspannungen berücksichtigt, wird das Model um die Berücksichtigung von Tangentialkräften

erweitert. Die Tangentialkraft \vec{F}_t beschreibt die elastische tangentialen Verformung der Partikeloberflächen und die Energiedissipation des tangentialen Kontakts:

$$\vec{F}_t^{(ij)} = (k_t^{(ij)} \Delta x_p^{(ij)} + c_t^{(ij)} \Delta v_t^{(ij)}) \vec{t}_{ij} \leq \vec{F}_n^{(ij)} \mu_p \quad (2.4)$$

Der maximale Wert, den die Tangentialkraft erreichen kann, entspricht gemäß dem Coloumb'schen Gesetz, dem Produkt aus Normalkraft $\vec{F}_n^{(ij)}$ und Reibungskoeffizienten μ_p [27].

Das Modell von Hertz und Mindlin beinhaltet überwiegend bekannte Materialparameter. Die Komponenten der Kontaktkräfte sind abhängig von dem Partikelradius r , dem Elastizitätsmodul E , dem Schubmodul G und der Poisson-Zahl ν . Für die normale und tangentialen Federsteifigkeit gelten folgende Zusammenhänge [28]:

$$k_n = \frac{4}{3} E \sqrt{r}, \quad (2.5)$$

$$k_t = 8 G \sqrt{r \Delta x_p^{(ij)}}, \quad (2.6)$$

wobei gilt

$$\frac{1}{E} = \frac{1 - \nu_i^2}{E_i} + \frac{1 - \nu_j^2}{E_j}, \quad \frac{1}{G} = \frac{1 - \nu_i^2}{G_i} + \frac{1 - \nu_j^2}{G_j}, \quad \frac{1}{r} = \frac{1}{r_i} + \frac{1}{r_j}. \quad (2.7)$$

Für das Elastizitätsmodul wird ein nicht-realistischer Wert angenommen, was eine gebräuchliche Praxis in der DEM ist, um Berechnungszeit zu sparen [29]. Der Zusammenhang zwischen Elastizitätsmodul und Schubmodul wird durch die Poissonzahl definiert, die das Verhältnis der Längsdehnung zur Querdehnung beschreibt. Das Schubmodul wird zur Berechnung des Partikelkontaktes verwendet. In manchen Fällen sind nur Angaben zu dem Elastizitätsmodul vorhanden, bzw. umgekehrt. Je nachdem welches mathematische Modell für die Simulation eingesetzt wird, wird dieser Wert in den anderen umgerechnet. Das Schubmodul G wird dann folgendermaßen berechnet:

$$G = \frac{E}{2 + 2\nu}. \quad (2.8)$$

Der normale und der tangentialen Dämpfungskoeffizient sind zudem abhängig von der Partikelmasse m_p und dem Restitutionskoeffizienten e . Sie sind folgendermaßen

definiert:

$$c_n = -2 \sqrt{\frac{5}{6}} \frac{\ln e}{\sqrt{\ln^2 e + \pi^2}} \sqrt{2E \sqrt{r \Delta x_p^{(ij)}}} m_p, \quad (2.9)$$

$$c_t = -2 \sqrt{\frac{5}{6}} \frac{\ln e}{\sqrt{\ln^2 e + \pi^2}} \sqrt{8G \sqrt{r \Delta x_p^{(ij)}}} m_p, \quad (2.10)$$

mit

$$e = \frac{m_{p,i} m_{p,j}}{m_{p,i} + m_{p,j}}. \quad (2.11)$$

Der Restitutionskoeffizient e ist ein Maß für die erhalten gebliebene Energie nach einem Rückstoß [30] und nimmt einen Wert zwischen 0 (vollkommen plastischer Stoß) und 1 (vollkommen elastischer Stoß) an:

$$e = \frac{v'_i - v'_j}{v_i - v_j}, \quad (2.12)$$

wobei v_i und v_j die Geschwindigkeiten zweier zusammenstoßender Körper vor dem Stoß und v'_i bzw. v'_j die Geschwindigkeiten dieser Körper nach dem Stoß bezeichnen.

Die Abb. 2.1 zeigt eine schematische Darstellung von Partikel-Partikel Kontakten in normaler und tangentialer Richtung.

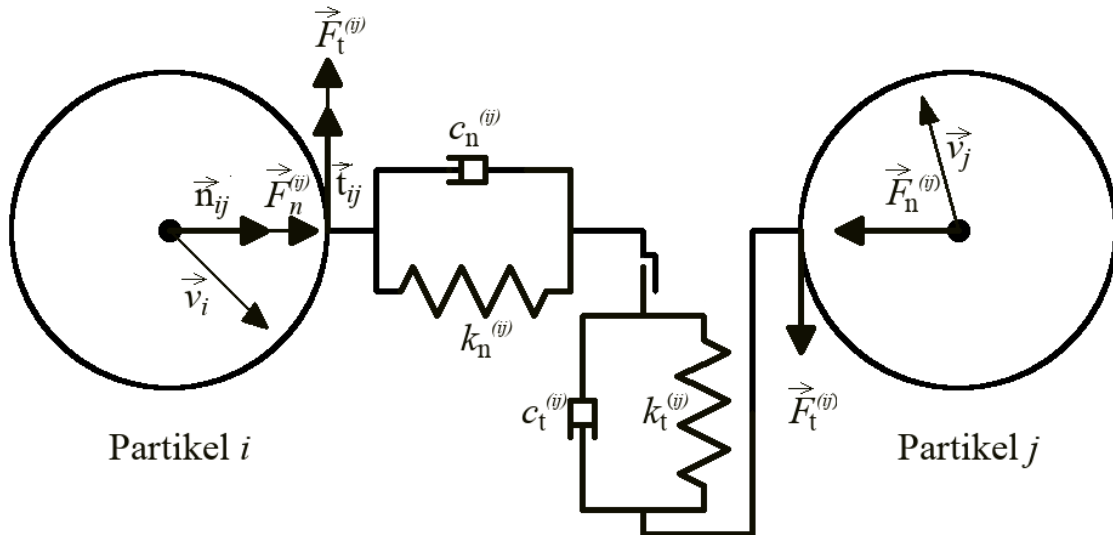


Abb. 2.1 – Schematische Darstellung von Partikel-Partikel Kontakten in normaler und tangentialer Richtung (nach [20]).

Im Modell von Hertz und Mindlin wird das Gleitverhalten und die Steifigkeit der Partikel berücksichtigt, allerdings nicht die Rollreibung der Partikel. Die Rollreibung ist laut [31] der Widerstand eines realen Korns gegen eine Rollbewegung, der auf Grund der nicht-kugelförmigen Kornform entsteht. Bei der DEM werden von [32] vier Klassen von Rollreibmodellen (A bis D) unterschieden. In der vorliegenden Arbeit wird das sehr verbreitete Rollreibmodell C verwendet. Das maximale Drehmoment $\overrightarrow{M_{\max}^{(ij)}}$ wird in diesem Modell limitiert durch den Rollwiderstand. Der Rollwiderstand entspricht dem Produkt aus der Normalkraft, dem Partikelradius und dem Rollreibungwert μ_r (auch Rollreibungsbeiwert oder Rollwiderstandskoeffizient):

$$\overrightarrow{M_{\max}^{(ij)}} \leq \mu_r r_p \overrightarrow{F_n^{(ij)}}. \quad (2.13)$$

Der Rollreibungwert ist experimentell nur unter großem Aufwand ermittelbar. Die Simulation eines statischen Zustands ist zur Kalibrierung des Rollreibungwertes notwendig, bei der der Böschungswinkel des Schüttgutes als Anpassungskriterium verwendet wird. Die Experimente zur Kalibrierung des Rollreibungwertes sind auch ein Bestandteil dieser Arbeit.

2.2 Grundlagen der Numerischen Strömungssimulation

2.2.1 Erhaltungsgleichungen

Die Grundgleichungen, die die Strömung von Fluiden und begleitende Prozesse beschreiben, sind die *Erhaltungsgleichungen*. Sie bilden die Basis der Numerischen Strömungssimulation.

Als Ausgangspunkt für die Herleitung der Erhaltungsgleichungen wird ein Kontrollvolumen betrachtet, welches durch das Fluid kontinuierlich durchströmt wird. Die Gesetze zur Massen- und Impulserhaltung¹ werden umformuliert und man erhält nach [33] die allgemeine Erhaltungsgleichung für intensive Eigenschaften in Integralform:

$$\Phi = \int_{V_{KM}} \rho \phi dV. \quad (2.14)$$

Eine beliebige extensive Eigenschaft Φ kann somit durch die Integration der entsprechenden intensiven Eigenschaft über das Kontrollvolumen (KV) dargestellt

¹auch als zweites newtonsches Axiom bezeichnet

werden, wobei V_{KM} für das Volumen steht, das die Kontrollmasse einnimmt.

Da die Herleitung der Massen- und Impulserhaltung vielfach in der Literatur zu finden ist [33], [34], [35], wird an dieser Stelle darauf verzichtet die Erhaltungsgleichungen komplett herzuleiten. Die wichtigsten Schritte werden kurz zusammengefasst:

- Die **Massenerhaltungs-Gleichung** (in der Strömungsmechanik auch einfach als *Kontinuitätsgleichung* bezeichnet) ergibt sich aus der Kontrollvolumen-Gleichung, indem man $\phi = 1$ setzt. Wendet man auf die sich ergebende Gleichung das Gauß-Theorem an und formt das Oberflächenintegral in ein Volumenintegral um, kann man die koordinatenfreie Differentialform der Kontinuitätsgleichung erhalten. Man kann die Form auf jedes beliebige Koordinatensystem umwandeln, z.B. als Schreibweise mit polar-zyklindrischen oder sphärischen Koordinaten. Hier dargestellt ist die Differentialform in kartesischer Form:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{(\partial \rho v_i)}{\partial x_i} = \frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{(\partial \rho v_x)}{\partial x} + \frac{(\partial \rho v_y)}{\partial y} + \frac{(\partial \rho v_z)}{\partial z} = 0. \quad (2.15)$$

- Es gibt mehrere Wege die **Impulserhaltungs-Gleichung** herzuleiten. Einer davon ist, dass man in der Kontrollvolumengleichung $\phi = u$ setzt. Man setzt die sich ergebende Gleichung mit den Kräften gleich, die auf das Fluid im Kontrollvolumen wirken. Dabei werden Oberflächen- und Volumenkräfte betrachtet. Die Oberflächenkräfte sind molekular gesehen die mikroskopischen Impulsflüsse durch die KV-Oberfläche. Für den Fall, dass die Flüsse nicht durch die Größen, deren Erhaltung die Gleichungen beschreiben, ausgedrückt werden können, ist das Gleichungssystem nicht geschlossen. Dies kann z.B. durch eine Vereinfachung umgangen werden. In vielen Fällen kann das Fluid als newtonsches Fluid² angenommen werden. Der in der Gleichung vorkommende Spannungstensor T stellt die molekulare Transportrate des Impulses dar. Für die Impulserhaltungs-Gleichung wird der viskose Teil des Spannungstensors verwendet. Wird auf die Gleichung wieder das Gauß-Theorem angewendet, lautet die Impulserhaltungs-Gleichung, geschrieben in Indexschreibweise für kartesische Koordinaten:

$$\frac{(\partial \rho v_i)}{\partial t} + \frac{(\partial \rho v_j v_i)}{\partial x_j} = \frac{\partial \tau_{ij}}{\partial x_j} - \frac{\partial p}{\partial x_i} + \rho g_i. \quad (2.16)$$

²Fluid, dessen Scherspannung proportional zur Schergeschwindigkeit ist

Dabei wird noch davon ausgegangen, dass die Schwerkraft die einzige Körperkraft ist. Die Komponente der Erdbeschleunigung g in Richtung der kartesischen Koordinate x_i wird durch g_i dargestellt.

2.2.2 Erhaltungsgleichungen in Anwesenheit eines Partikels

Um die Bewegung einer inkompressiblen Flüssigkeit mit Partikeln zu beschreiben, kann die Massenerhaltungsgleichung und die Impulserhaltungsgleichung wie folgt geschrieben werden [25]:

$$\frac{\partial(\rho_f \alpha_f)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_f \alpha_f v_f) = 0, \quad (2.17)$$

$$\frac{\partial(\rho_f \alpha_f v_f)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_f \alpha_f v_f v_f) = -\alpha_f \nabla p + R_{f,p} + \nabla \cdot (\alpha_f \tau_f), \quad (2.18)$$

wobei α_f die Porosität (Volumenanteil, der durch das Fluid besetzt ist) bezeichnet, ρ_f die Fluidichte, t die Zeit, v_f die Strömungsgeschwindigkeit, p den Druck, τ_f den Spannungstensor und $R_{f,p}$ den Impulsaustausch zwischen Fluid und Partikeln.

2.2.3 Widerstandskraft bei sphärischen Partikeln nach DiFelice

Ein Modell zur Berechnung der Widerstandskraft, die zwischen Fluid und Partikeln wirkt, wurde von [36] entwickelt und wird bei den CFD-DEM-Simulationen dieser Arbeit verwendet.

Dabei wird von einem Kräftegleichgewicht für ein Einzelpartikel in einer fluiden Umgebung ausgegangen.

$$-V \rho_p g + F_d + F_c - V \frac{dp}{dz} = 0, \quad (2.19)$$

wobei V das Partikelvolumen bezeichnet, ρ_p die Partikeldichte, g die Schwerkraft, F_d die Widerstandskraft und F_c die Kontaktkräfte. Der Ausdruck $-\frac{dp}{dz}$ ist die Druckgradientenkraft, die die Beiträge sowohl von der Flüssigkeit als auch von den Partikeln enthält.

Bei der Abwesenheit von anderen Partikeln ist die Widerstandskraft eines Einzelpartikels F_{d0} definiert als:

$$F_{d0} = C_{d0} \frac{\rho_f v^2}{2} \frac{\pi d^2}{4}, \quad (2.20)$$

wobei C_{d0} der Widerstandsbeiwert ist, ρ_f die Fluidichte und d der Partikeldurchmesser.

Für kugelförmige Partikel sind etablierte Korrelationen für den Widerstandsbeiwert verfügbar, wie z.B. von [37] vorgeschlagen:

$$C_{d0} = \left(0.63 + \frac{4.8}{\text{Re}^{0.5}} \right)^2, \quad (2.21)$$

wobei es sich um eine empirische Funktion in Abhängigkeit von der Reynoldszahl Re handelt. Die Reynoldszahl ist in diesem Fall definiert als:

$$\text{Re} = \frac{v_{\text{rel}} d_p}{\nu_f}, \quad (2.22)$$

wobei v_{rel} die Relativgeschwindigkeit $v_{\text{rel}} = v_f - v_p$ bezeichnet, d_p den Partikeldurchmesser und ν_f die Viskosität des Fluids.

Laut [36] kann die Wirkung der benachbarten Partikel auf die Widerstandskraft eines bestimmten Partikels nur in Abhängigkeit von der lokalen Porosität α berücksichtigt werden:

$$F_d = F_{d0} f(\alpha). \quad (2.23)$$

In dichten Partikelsystemen, bei denen Partikel-Partikel-Kontaktkräfte auftreten, führt die Wirkung der Reibungskraft zwischen Partikeln und Fluid zu Energieverlusten und als Folge davon zu einer Verringerung des Drucks in dem Fluid. Für dichte Partikelsysteme stehen zahlreiche Daten für den piezometrischen Druckverlust Δp zur Verfügung. Um Gl. (2.23) zu diesem Zweck anzuwenden, kann Gl. (2.19) umgeformt werden zu:

$$F_d - V \frac{dp}{dz} = V \rho_p g - F_c, \quad (2.24)$$

Die linke Seite der Gleichung repräsentiert die gegenseitige Fluid-Partikel-Wechselwirkungskraft, die auf die Partikel und (in entgegengesetzter Richtung) auf das Fluid wirkt. Somit kann die Impulsgleichung für ein Einheitsvolumen der Fluidphase geschrieben werden als:

$$-\alpha \rho g - \left(F_d - V \frac{dp}{dz} \right) \frac{1 - \alpha}{V} - \frac{dp}{dz} = 0. \quad (2.25)$$

Der piezometrische Druckgradient ist definiert als:

$$\frac{dP}{dz} = \frac{dp}{dz} + \rho g. \quad (2.26)$$

Die Umformung von Gl. (2.24) ergibt mit Gl. (2.26):

$$F_d = \frac{\pi d^3}{6} \left(\frac{\alpha}{1 - \alpha} \right) \frac{\Delta P}{L}, \quad (2.27)$$

wobei ΔP folgendermaßen definiert ist:

$$\Delta P = -L \frac{\Delta p}{dz}. \quad (2.28)$$

Einsetzen von Gl. (2.27) in Gl. (2.23) ergibt zusammen mit dem Ausdruck für F_{d0} (2.20):

$$f(\alpha) = \frac{4}{3C_{d0}} \frac{\alpha}{1 - \alpha} \frac{d\Delta p}{\rho u^2 L}. \quad (2.29)$$

2.2.4 Widerstandskraft bei sphärischen Partikeln nach Schiller-Naumann

Ein weiteres Modell, das in den CFD-DEM-Berechnungen dieser Arbeit verwendet wird um die Widerstandskraft zu berechnen, die zwischen Fluid und Partikeln wirkt, ist das Modell von [38]. Dabei sind die Korrelationen der Ähnlichkeitsmechanik in Abhängigkeit von der Reynoldszahl Re der dispersen Phase dargestellt [39]:

$$C_d = \begin{cases} \frac{24}{Re} (1 + 0,15 Re^{0,687}), & 0 < Re \leq 1000, \\ 0,44, & Re > 1000. \end{cases} \quad (2.30)$$

2.2.5 Widerstandskraft bei nicht-sphärischen Partikeln nach Haider-Levenspiel

Durch Einbezug der Sphärizität Ψ kann mit dem Ansatz nach Haider und Levenspiel [40] der Widerstandsbeiwert nicht-sphärischer Partikel berechnet werden. Die Sphärizität ist definiert als Verhältnis der Oberfläche einer volumengleichen Kugel zur Oberfläche eines nicht-sphärischen Partikels. Der Widerstandskoeffizient wird in Abhängigkeit der Reynoldszahl Re und der Sphärizität Ψ berechnet [39]:

$$C_d = \frac{24}{Re_p} (1 + A Re_p^B) + \frac{C}{(1 + \frac{D}{Re_p})}, \quad (2.31)$$

mit Gleichung 2.22 und

$$A = 8,1716e^{-4,0665\Psi}, \quad (2.32)$$

$$B = 0,0964 + 0,5565\Psi, \quad (2.33)$$

$$C = 73,690e^{-5,0746\Psi}, \quad (2.34)$$

$$D = 5,3780e^{6,2122\Psi}. \quad (2.35)$$

2.2.6 Diskretisierungen

Theoretisch kann durch die Navier-Stokes-Gleichungen eine Strömung vollständig beschrieben werden, d.h. auch mit den kleinsten Wirbeln und Turbulenzen. Sie bilden zusammen ein System von nichtlinearen partiellen Differentialgleichungen zweiter Ordnung und können deshalb im Allgemeinen nicht analytisch gelöst werden. Um die Gleichungen trotzdem lösen zu können, werden Annahmen zur Vereinfachung getroffen und Diskretisierungsmethoden angewandt. Die drei üblichen Diskretisierungsmethoden sind die Finite-Differenzen-Methode, Finite-Volumen-Methode und Finite-Elemente-Methode. In dieser Arbeit wird ausschließlich die Finite-Volumen-Methode (FVM) verwendet, die nach [33] folgendermaßen beschrieben wird:

Bei der FVM wird das Lösungsgebiet in eine endliche Anzahl nicht überlappender Kontrollvolumina (KV) unterteilt. Die Erhaltungsgleichungen werden dann in Integralform auf jedes KV angewendet.

Im Schwerpunkt eines jeden KV liegt der Rechenknoten, in dem die Variablenwerte berechnet werden. Um die Variablenwerte der KV-Oberfläche mittels der Knotenwerte (KV-Zentren) auszudrücken, wird Interpolation angewandt. Die Oberflächen- und Volumenintegrale werden dann mithilfe passender Quadraturformeln approximiert. Als Ergebnis erhält man für jedes KV eine algebraische Gleichung, in der die Variablen aus dem eigenem Rechenknoten sowie aus einigen Nachbar-KV vorkommen.

Der Vorteil der FVM besteht darin, dass sie für jeden Gittertyp, somit auch für komplexe Geometrien, geeignet ist. Das Gitter muss nicht auf ein Koordinatensystem bezogen werden, sondern wird nur durch die Oberflächen der Kontrollvolumina bestimmt.

Der Nachteil der FVM ist, dass Verfahren, die höher als zweiter Ordnung sind, vergleichsweise schwer zu entwickeln sind, besonders im Dreidimensionalen. Der Grund dafür sind die drei Approximationsstufen; Interpolation, Differenziation und Integration, die diese Methode verlangt.

2.2.7 Gittergenerierung

Für jedes im vorherigen Abschnitt 2.2.6 erwähnte Diskretisierungsmodell bildet das Gitter den Ausgangspunkt für die numerische Berechnung. Um das Gitter zu erstellen, wird das betrachtete geometrische Gebiet (entspricht dem Lösungsgebiet) in eine endliche Anzahl von kleinen Teilgebieten (Elemente, Kontrollvolumina usw.) unterteilt. Auf drei mögliche Gittertypen soll hier näher eingegangen werden:

- Ein **strukturiertes Gitter** besteht aus Sätzen von Gitterlinien, wobei sich die Mitglieder eines Satzes nicht kreuzen und jedes Mitglied eines anderen Satzes nur einmal schneiden. Somit ist es möglich die Linien eines gegebenen Satzes nacheinander zu nummerieren. Durch zwei (in 2D) oder drei Sätze (in 3D) lässt sich die Lage eines Gitterpunktes (oder Kontrollvolumens) im Lösungsgebiet eindeutig definieren.

Es ist die einfachste Gitterstruktur, da sie äquivalent zum kartesischen Gitter ist. Dabei hat jeder Punkt im Zweidimensionalen vier und im Dreidimensionalen sechs nächste Nachbarn. Betrachtet man die Indizes, unterscheidet sich der Index eines Nachbarkpunktes von P durch ± 1 vom entsprechenden Index von P. Durch diese Nachbarschaftsbeziehungen wird das Programmieren vereinfacht. Außerdem kann bei der Entwicklung der Lösungstechnik ausgenutzt werden, dass die Matrix des algebraischen Gleichungssystems eine reguläre Struktur besitzt.

Allerdings sind strukturierte Gitter nur in geometrisch relativ einfachen Lösungsgebieten einsetzbar. Außerdem kann es schwierig werden, die Verteilung der Gitterpunkte zu kontrollieren. Man kann schlecht in relevanten Bereichen verfeinern bzw. sind in nicht-relevanten Bereichen unnötig viele Gitterpunkte vorhanden. Oft entstehen dünne Gitterzellen, was sich negativ auf die Konvergenz der Rechnung auswirkt.

- Bei einem **blockstrukturierten Gitter** wird das Gitter in zwei oder mehrere Blöcke geteilt. Auf diese Weise können auch kompliziertere Geometrien vernetzt werden und es kann in relevanten Bereichen verfeinert werden.

Innerhalb eines jeden Blocks ist ein strukturiertes Gitter definiert. Die Struktur der Blöcke kann irregulär sein. Jedoch sollte auf die richtige Spezifizierung der internen Blockbeziehungen geachtet werden.

Die Gitterauflösungen der einzelnen Blöcke können auch unterschiedlich sein. Das Gitter ist dann noch flexibler, aber die Programmierung ist aufwendiger. Der Löser für das strukturierte Gitter kann dann blockweise angewendet werden. In dieser Arbeit werden ausschließlich blockstrukturierte Gitter zur Vernetzung des Wirbelschichtkristallisators verwendet.

- Für sehr komplizierte Geometrien werden zumeist **unstrukturierte Gitter** verwendet. Es sind die flexibelsten Gittertypen, da sie sich am besten an die Geometrie des Lösungsgebietes anpassen. Die Elemente bzw. KVn können eine beliebige Form haben und es können beliebig viele Nachbarelemente oder -punkte verwendet werden. Meistens werden Dreiecke oder Vierecke im Zweidimensionalen und Tetraeder oder Hexaeder im Dreidimensionalen verwendet, aber es können auch Polygone oder Polyeder sind möglich. Die Orthogonalität des Gitters kann zumindest teilweise erzwungen werden und die Streckungsfaktoren können leichter als bei blockstrukturierten Gittern kontrolliert werden. Außerdem ist es möglich das Gitter in relevanten Bereichen leicht zu verfeinern. In der Regel sind jedoch die Löser für die algebraischen Gleichungssysteme langsamer als für strukturierte Gitter.

2.2.8 Fehlerbetrachtung

Da numerische Ergebnisse stets Näherungen sind, gibt es immer Unterschiede zwischen den berechneten Ergebnissen und der Realität. Die Ursachen dafür resultieren aus jedem Teil des Prozesses, den man auf dem Weg zur numerischen Lösung durchläuft. Zusätzlich zu den Fehlern, die im Laufe der Entwicklung des Lösungsverfahrens, beim Programmieren³ oder bei der Festlegung der Randbedingungen auftreten können, beinhalten numerische Lösungen immer drei Arten von systematischen Fehlern:

- **Modellfehler**, die als Differenz zwischen der tatsächlichen Strömung und der genauen Lösung des mathematischen Modells definiert sind;
- **Diskretisierungsfehler**, definiert als die Differenz zwischen der genauen Lösung der Erhaltungsgleichungen und der genauen Lösung, der durch Diskretisierung dieser Gleichungen entstandenen algebraischen Gleichungssysteme;

³Bei der Verwendung eines validierten Programmes kann normalerweise davon ausgegangen werden, dass Programmierfehler ausgeschlossen werden.

- **Iterationsfehler**, definiert als die Differenz zwischen der iterativen und der genauen Lösung der algebraischen Gleichungssysteme.

2.3 Grundlagen der CFD-DEM-Kopplung

Bei der Kopplung zwischen der Diskrete-Elemente-Methode (DEM) und der Numerischen Strömungssimulation (Computational Fluid Dynamics: CFD) wird in der Praxis, wenn eine sehr große Anzahl von Partikeln simuliert wird (wie im vorliegenden Fall), ein so genannter nicht aufgelöster Ansatz verwendet [25]. In diesem Fall sind die Partikel viel kleiner als das Eulersche Gitter, das verwendet wird, um die Strömung zu berechnen. Folglich werden die einzelnen Partikel nicht explizit in der CFD-Simulation gelöst, jedoch durch die Porosität α_f (für die fluide Phase) oder $1 - \alpha_f$ (für die feste Phase) berücksichtigt, die für jede Gitterzelle des Eulerschen Gitters bestimmt wird.

Das Verhältnis vom Gitterzellenvolumen zum Partikelvolumen sollte zwischen 3 und 20 liegen. Das Verhältnis darf nicht kleiner als 3 sein, da in einer Gitterzelle eine maximale physikalische Porosität von 0,7 nicht überschritten werden darf. Für die Berechnung der Widerstandskraft verwendet der Solver einen Mittelwert für die Porosität in jeder Gitterzelle. Die Partikelvolumina werden dann über das Volumen von einer Gitterzelle gleichmäßig verteilt. Um eine hohe Genauigkeit der Berechnung zu erreichen, sollte das Verhältnis vom Gitterzellenvolumen zum Partikelvolumen nicht höher als 20 sein. Die Abb. 2.2 zeigt schematisch den Einfluss des Verhältnisses zwischen dem Gitterzellenvolumen und dem Partikelvolumen auf die Porosität für ein gröberes Gitter (oben) und ein feineres Gitter (unten).

Um die erforderlichen Berechnungsressourcen zu reduzieren, ist das Verhältnis zwischen dem Gitterzellenvolumen und dem Partikelvolumen des Eulerschen Gitters etwa 1000 in der vorliegenden Arbeit. Dieser Wert ist ungewöhnlich groß, was die Notwendigkeit einer ordnungsgemäßen Gitterunabhängigkeitsstudie sowie eine Modellvalidierung hervorhebt.

Um den Volumenanteil zu berechnen, ist es notwendig die Partikelvolumina (eine Lagrangsche Eigenschaft) auf das feste Eulersche Gitter der CFD-Berechnung zu übertragen. Drei Ansätze können in [41] dazu gefunden werden. Ein einfaches Modell, das als *centered* bezeichnet wird, ist es, alle Partikelvolumina zusammenzufassen, deren Zentrum in einer Gitterzelle liegen. Das Volumen wird dieser Gitterzelle

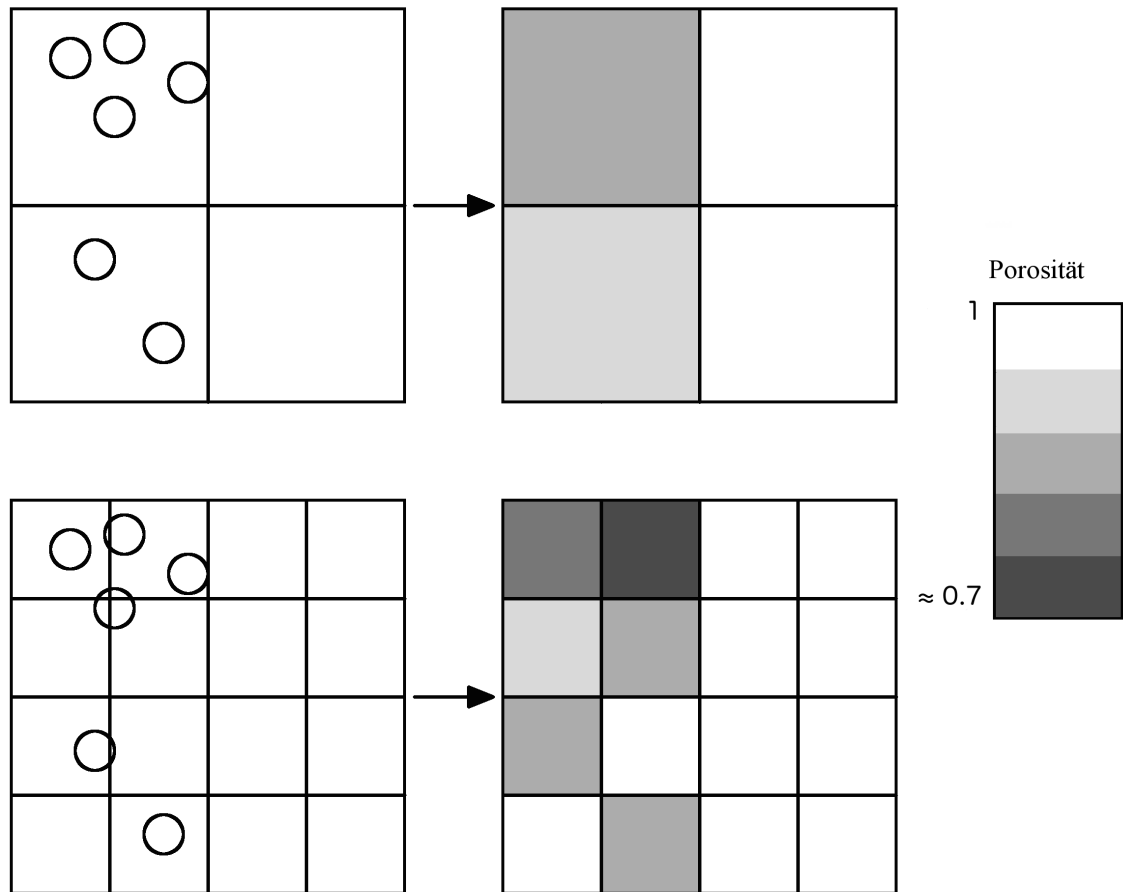


Abb. 2.2 – Schematische Darstellung des Einflusses des Verhältnisses zwischen dem Gitterzellenvolumen und dem Partikelvolumen auf die Porosität für ein grobes Gitter (oben) und ein feines Gitter (unten).

zugeordnet, was in der Abb. 2.3 (links) schematisch dargestellt ist.

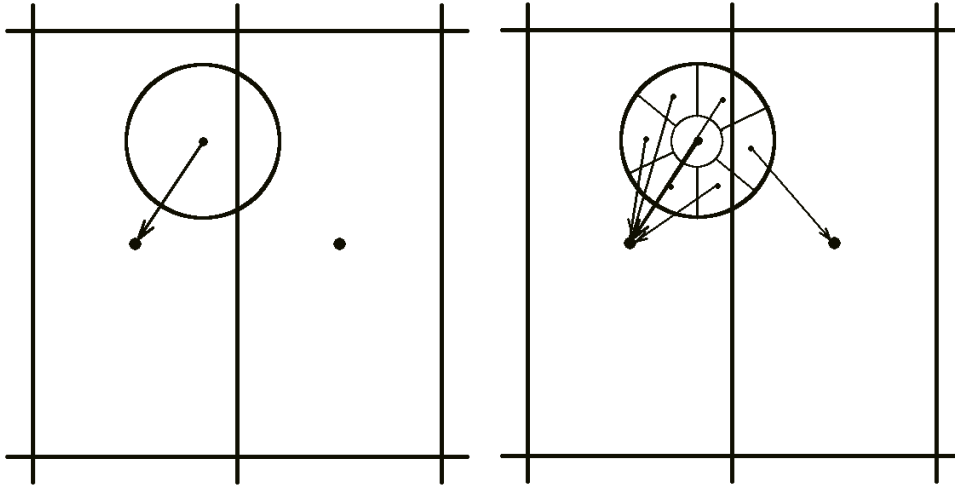


Abb. 2.3 – Schematische Darstellung der Modelle *centered* (links) und *divided* (rechts).

In einem anderen Modell, das als *divided* bezeichnet wird, wird das Volumen eines Partikels durch einen Algorithmus in mehrere Untervolumina zerlegt. Anhand der Lage des Untervolumenzentrums wird entschieden welcher Gitterzelle es zugeordnet wird (Abb. 2.3, rechts). Dieser Ansatz ist insbesondere dann genauer, wenn die Partikelvolumina in Bezug auf die Gitterzellengrößen groß sind. Jedoch erfordert die Berechnung dann auch mehr Berechnungszeit.

Da die Partikel im Verhältnis zu den Gitterzellen sehr klein sind, wird in den folgenden CFD-DEM-Berechnungen das erste Modell *centered* für die Berechnungen verwendet.

Diese beiden Modelle *centered* und *divided* sind geeignet für das beschriebene nicht aufgelöste Modell, bei dem das Partikelvolumen kleiner ist als das Gitterzellenvolumen. In Fällen, in denen das Partikelvolumen größer als die Gitterzellengröße ist, wird ein sogenanntes aufgelöstes Modell angewandt. Das Modell wird als *bigParticle* bezeichnet und eignet sich aufgrund des großen Rechenaufwands nur für Anwendungen mit sehr wenigen Partikeln [42].

2.3.1 Modell von Richardson und Zaki

Das Modell von Richardson und Zaki [43, 44] bezieht auch den Einfluss der Suspensionsdichte auf die mittlere Partikelgeschwindigkeit ein, die laut [12] hierbei definiert ist als:

$$v_p = \frac{\dot{V}}{A} - v_{\text{eq}*}, \quad (2.36)$$

wobei \dot{V} und A den Volumenstrom und die durchströmte Querschnittsfläche bezeichnen. Die Geschwindigkeit $v_{\text{eq}*}$ (eq für engl.: *equilibrium*), die notwendig ist, um die Partikel im Schwebezustand zu halten, ist definiert als:

$$v_{\text{eq}*} = v_{\text{eq}} \alpha^n. \quad (2.37)$$

Dabei ist v_{eq} die Fluidgeschwindigkeit, die notwendig ist, um ein Einzelpartikel im Schwebezustand zu halten:

$$v_{\text{eq}} = \frac{Re_{\text{eq}} \mu_f}{d \rho_f}, \quad (2.38)$$

mit

$$Re_{\text{eq}} = \left(-3.809 + (3.809^2 + 1.832 Ar^{0.5})^{0.5} \right)^2, \quad (2.39)$$

und

$$Ar = \frac{g d^3 \rho_f (\rho_p - \rho_f)}{\mu_f^2}. \quad (2.40)$$

Die Porosität α in Gleichung (2.37) wird potenziert mit dem Exponenten n , für den folgender Zusammenhang gilt:

$$\frac{4,8 - n}{n - 2,4} = 0,043 Ar^{0,57}. \quad (2.41)$$

Simulationsumgebung

In der aktuellen Arbeit wird der komplette dreidimensionale Wirbelbettkristallisator mit realen Abmaßen simuliert, da die Geometrie die Hydrodynamik und das Ergebnis des kontinuierlichen Prozesses direkt beeinflusst. In den CFD-DEM-Simulationen werden maximal 200 000 Partikel betrachtet. Obwohl dieser Wert sehr hoch ist, muss im Auge behalten werden, dass der reale Kristallisator typischerweise etwa 170 Millionen Kristalle enthält.

Die positive Seite ist, dass die Parallelisierung verwendet werden kann, um die Simulation spürbar zu beschleunigen. Die Verwendung von 64 anstelle von 8 Prozessoren reduziert die Berechnungszeit um einen Faktor von fast 5. Die negative Seite ist, dass die Parallelisierung nicht ausreicht, um den gesamten Prozess (mehrere Stunden) mit der realen Zahl von Partikeln zu simulieren. Unter Berücksichtigung der Ergebnisse dieses Kapitels kann abgeschätzt werden, dass eine solche Simulation auf einem Supercomputer mit hunderten von Prozessoren dennoch mehrere Jahre dauern würde. Wie im Folgenden dargestellt wird, ist es nicht notwendig den gesamten Prozess in all seiner Komplexität zu lösen, um nützliche Informationen aus solchen Simulationen zu erhalten. Schon die Simulation eines sehr kurzen Zeitrahmens des Prozesses (unter Vernachlässigung des Kristallwachstums) mit einer reduzierten Anzahl von Partikeln liefert sehr wichtige Informationen für das Prozessverständnis und die Prozessverbesserung.

Um Berechnungszeit einzusparen, werden die meisten durchgeführten CFD-DEM-

Simulationen systematisch mit den Druck- und Geschwindigkeitsfeldern von einer vorangegangenen CFD-Simulation im stationären Zustand für die kontinuierliche (flüssige) Phase ohne Partikel initialisiert.

Zunächst liegt der Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit auf der exakten Bestimmung der Kristallgeschwindigkeiten (sowohl absolut als auch relativ) und den Positionen innerhalb des Kristallisators als Funktion der Kristallgröße bei reduzierter Suspensionsdichte. Ein alternatives Modell für hohe Suspensionsdichten und Kristallwachstum, aber mit stark vereinfachten Gleichungen für die Hydrodynamik wird in einem Begleitprojekt betrachtet [45]. Die Kombination der Ergebnisse aus beiden Modellen wird letztlich die Prozessoptimierung ermöglichen.

3.1 Beschreibung des Strömungsgebietes

CFD-Simulationen liefern wertvolle Informationen über die Strömungsverhältnisse im untersuchten Kristallisator. Daher werden einphasige CFD-Simulationen zunächst nur für die kontinuierliche Flüssigphase durchgeführt und die Partikel vernachlässigt. Dies entspricht dem Anfangszustand des realen Kristallisationsprozesses, vor der Zugabe der Impfkristalle in den Kristallisator.

Zwei ähnliche Wirbelschichtkristallisatoren werden untersucht. Setup 1 entspricht der vollständigen dreidimensionalen Geometrie des Wirbelbettkristallisators mit realen Abmaßen. Das Gitter ist von Frau M.Sc. Patrícia Arányi mittels des Vernetzungstools ANSYS ICEM CFD erstellt worden. Das verwendete blockstrukturierte Rechengitter ist für das Setup 1 in der Abb. 3.1 dargestellt. Die Gesamtkristallisationshöhe beträgt 1,18 m und der Durchmesser des zentralen Kristallisators an der Produktauslassstutzens beträgt 0,03 m.

Das verwendete blockstrukturierte Rechengitter für das Setup 2 ist in der Abb. 3.2 dargestellt. Es ist mit dem in OpenFOAM integrierten Vernetzungstool *blockMesh* erstellt worden. Die Gesamtsäulenhöhe (ohne Anschlusschlauch) beträgt 1,04 m und der Durchmesser des zentralen Kristallisators an der Produktauslassstutzens beträgt 0,025 m.

3.1 Beschreibung des Strömungsgebietes

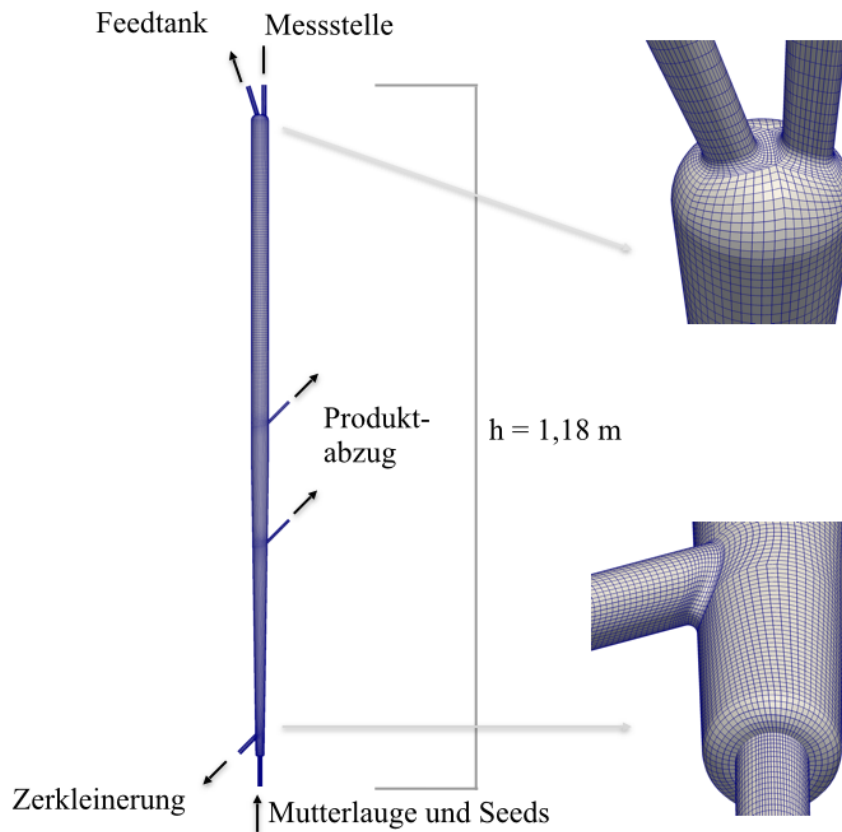


Abb. 3.1 – Kristallisatorgeometrie und blockstrukturiertes Rechengitter für das Setup 1, links: Gesamtansicht, rechts: Details.

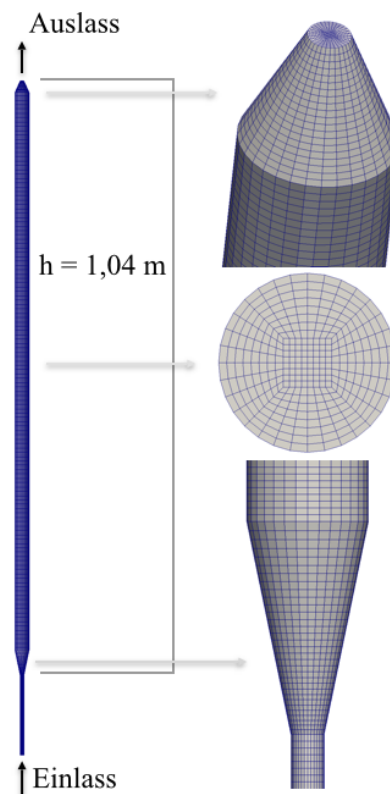


Abb. 3.2 – Versuchskristallisatorgeometrie und blockstrukturiertes Rechengitter für das Setup 2, links: Gesamtansicht, rechts: Details.

Die zweite Geometrie, die als Setup 2 bezeichnet wird, ist ähnlich wie die Geometrie in Setup 1, aber in der Größe etwas kleiner, vollständig zylindrisch anstelle von konisch, sowie etwas vereinfacht durch die Vernachlässigung von Anschlussstutzen. Das Setup 2 wird verwendet, um experimentelle Geschwindigkeitsmessungen durchzuführen, die mit Simulationsdaten verglichen werden.

3.1.1 Charakterisierung der Strömung

Die Flüssigkeit (kontinuierliche Phase) Wasser ist inkompressibel. Zudem ist die Strömung stets laminar, da die auf dem Durchmesser basierende Reynolds-Zahl in beiden Setups beim kleinsten Querschnitt (Einlass),

$$\text{Re} = \frac{v_f \cdot D_{\text{Krist}}}{\nu_f} = \frac{0,171 \frac{\text{m}}{\text{s}} \cdot 0,008\text{m}}{0,000001 \frac{\text{m}^2}{\text{s}}} = 1368, \quad (3.1)$$

ist und damit unterhalb des allgemein Wertes, der den Beginn des Übergangsgebietes von laminaren zu turbulenten Rohrströmungen charakterisiert. Im oberen Bereich ist die Reynolds-Zahl viel niedriger aufgrund des erhöhten Durchmessers und des Anschlussstutzens im unteren Bereich des Kristallisators zur Extraktion von Kristallen zur Zerkleinerung.

3.1.2 Abschätzung der Verweilzeit

Die Verweilzeit (oder auch Durchflusszeit) τ eines Fluidteilchens im Kristallisator wird verwendet um abzuschätzen nach welcher physikalischen Gesamtzeit sich ein quasi-stationärer Zustand der Strömung einstellt. Dieser lässt sich berechnen indem man das Kristallisatorvolumen durch den Volumenstrom teilt:

$$\tau = \frac{V}{\dot{V}} = \frac{5,3 \cdot 10^{-4} \text{m}^3}{2,5 \cdot 10^{-4} \frac{\text{m}^3}{\text{s}}} \approx 212 \text{ s.}$$

Beim Setup 2 sind die Volumenströme zur Fluidisierung von schwereren Glaspartikeln höher als im Vergleich zu Kristallen, weshalb sich eine kürzere Verweilzeit ergibt:

$$\tau = \frac{V}{\dot{V}} = \frac{5,3 \cdot 10^{-4} \text{m}^3}{8,6 \cdot 10^{-4} \frac{\text{m}^3}{\text{s}}} \approx 65 \text{ s.}$$

3.2 Lösungsalgorithmus

Für alle in dieser Arbeit diskutierten einphasigen Strömungssimulationen wird die C++-Open-Source-Software OpenFOAM (Open Field Operation and Manipulation [46]) verwendet. Es werden die Softwareversionen 2.2.1 und 3.0.x genutzt, weil die aktuellen Softwareversionen der Kopplungssoftware [41] auf ihnen basieren. Für die CFD-Simulationen wird hauptsächlich der transiente Solver *pisoFoam* verwendet. Dieser Solver basiert auf dem PISO Algorithmus (Pressure Implicit with Splitting of Operator), der eine Erweiterung des SIMPLE-Algorithmus (Semi-implicit method for pressure linked equations) ist, von [47] eingeführt und von [48] weiterentwickelt wurde. Neben *pisoFoam* wird für einige einphasige Simulationen der stationäre Solver *simpleFoam* verwendet, der auf dem SIMPLE-Algorithmus basiert.

Die gekoppelten CFD-DEM-Simulationen werden mit der Open-Source-Software CFDEMcoupling [41] durchgeführt. Die Software CFDEMcoupling wurde durch die Kombination von zwei bekannten bestehenden C++-Open-Source-Softwares entwickelt: OpenFOAM und LIGGGHTS (LAMMPS Improved for General Granular and Granular Heat Transfer Simulations, das auf LAMMPS basiert (Large Atomic and Molecular Massively Parallel Simulator) [28], einem Open-Source Software Code für Molekular Dynamik [49]; für DEM). Ein effizienter Algorithmus detektiert paarweise Interaktionskräfte, was wichtig ist, da dieser Schritt die meiste Berechnungszeit der DEM-Simulation in Anspruch nimmt. Die Lösung für die Mehrphasenströmung wird durch die Kombination der Berechnungen der Flüssigkeit (CFD) und der Partikel (DEM) unter Verwendung dieser zwei separaten Codes erhalten. Die Interaktion wird durch den Austausch von relevanten Informationen mit einem vorgegebenen Zeitschritt realisiert [50].

Der Lösungsalgorithmus, der innerhalb CFDEMcoupling angewandt wird, läuft wie folgt ab [25]:

1. Der DEM-Solver berechnet die Positionen und Geschwindigkeiten der Partikel.
2. Für jedes Partikel wird die entsprechende Zelle im CFD-Gitter bestimmt.
3. Für jede Zelle wird die Porosität sowie eine mittlere Partikelgeschwindigkeit bestimmt.
4. Auf Grundlage dieser Informationen kann der Impulsaustausch zwischen der fluiden Phase und der Feststoffphase ausgewertet werden.

5. Mit dem Impulsaustausch wird die Strömung der Flüssigkeit berechnet.
6. Die auf die Partikel wirkenden Fluidkräfte werden berechnet und an den DEM-Solver geschickt.
7. Die Prozedur beginnt erneut von 1.

Die Wechselwirkung wird durch den Austausch von Feldern in einem vorgegebenen Zeitintervall umgesetzt. Der Lösungsalgorithmus wird durch Abb. 3.3 veranschaulicht.

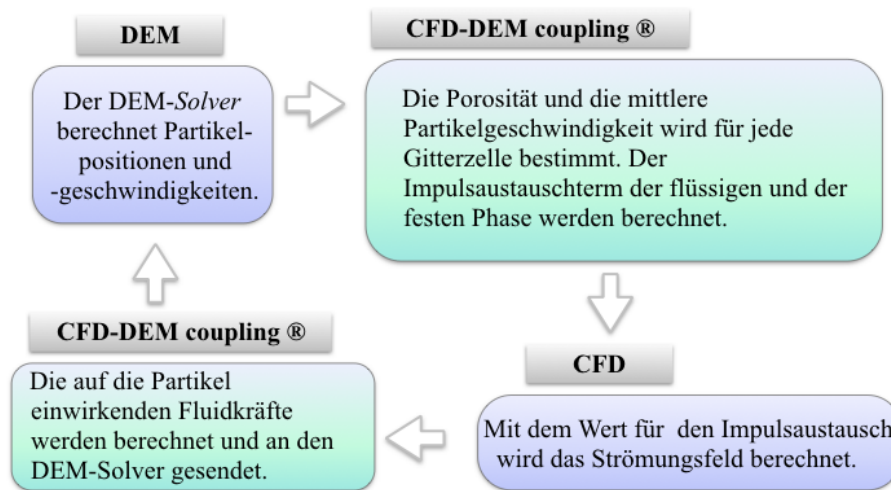


Abb. 3.3 – Lösungsalgorithmus bei der CFD-DEM-Kopplung.

Durch Message Passing Interface (MPI) Parallelisierung ist der Solver vollständig parallelisierbar.

3.3 Numerische Methoden und Gitterqualität

Nachdem die Navier-Stokes-Gleichungen, wie im Kapitel 2.2.6 beschrieben, diskretisiert werden, werden die Ableitungen und Integrale der Gleichungen mithilfe von entsprechenden Approximationen gelöst. Die bei der Simulation verwendeten Approximationsschemen sind in der Tab. 3.1 dargestellt.

Das *edge ratio* (dt. Kantenlängenverhältnis) ist das Verhältnis aus längster Kante der Zelle geteilt durch die Kürzeste. Ein Würfel besitzt ein *edge ratio* von 1. Das ma-

Tab. 3.1 – Die verwendeten numerischen Schemata.

Ausdruck	verwendetes Diskretisierungsschema
Zeitableitung	instationär, $\frac{\partial}{\partial t} \neq 0$ impliziter Euler
Gradienten ∇	2. Ordnung Gaußsche Integration
Divergenz $\nabla \cdot$	2.Ordnung Gaußsche Integration
Laplace ∇^2	2.Ordnung Gaußsche Integration

ximale *edge ratio* der Kristallisatorgitterzellen ist 14,4, was in diesem Fall vertretbar ist.

Die *skewness* (dt. Schräge), ist ein Maß für die geometrische Verzerrung einer Zelle. Im Idealfall hat die Zelle keine geometrische Verzerrung. Die *skewness* ist dann gleich 0. Der maximale Wert, den die *skewness* erreichen kann, liegt bei 1. Der kritische Bereich beginnt bei etwa 0,9. Die maximale *skewness* beträgt beim Kristallisatorgitter 0,873 und liegt somit unterhalb des kritischen Bereichs.

Ein weiteres Maß für die Abweichung vom der idealen Würfelgitterzelle ist die *non-orthogonality* (dt. Nicht-Orthogonalität), die sich auf die Abweichung der Parallelitäten der Flächennormalenvektoren bezieht. Die maximale *nonOrthogonalität* liegt bei 63,5 (durchschnittlich 11,7), was einem durchschnittlichen Wert entspricht und die Konvergenz der Berechnungen auch ohne die Verwendung von *nNonOrthogonalCorrectors* erzielt.

Die Anzahl der verwendeten Piso-Korrekturen beträgt 2, was der üblichen Anzahl entspricht.

3.4 Zeitschrittabschätzung

3.4.1 Abschätzung des CFD-Zeitschrittes

Um bei der Berechnung numerische Stabilität zu erreichen, ist es notwendig die Zeitschrittweite abzuschätzen. Die Abschätzung kann mithilfe der Courant-Friedrichs-Lewy-Zahl (oder auch Courant-Zahl) Co erfolgen, welche bei der Diskretisierung zeitabhängiger partieller Differentialgleichungen verwendet wird. Die Courant-Zahl

Co ist das Verhältnis zwischen dem Betrag der Geschwindigkeit $|v|$ durch eine Zelle, dem Zeitschritt Δt und der Zelllänge Δx entlang der Richtung der Geschwindigkeit:

$$\text{Co} = \frac{|v| \cdot \Delta t}{\Delta x}. \quad (3.2)$$

Die Courant-Bedingung sagt aus, dass das explizite Euler-Verfahren für $\text{Co} \leq 1$ stabil ist. Um dieses Kriterium auch zu erfüllen, werden die höchste auftretende Geschwindigkeit und die kleinste vorhandene Zellenlänge für die Berechnung verwendet.

Stellt man die Gleichung (3.2) nach Δt um und setzt die entsprechenden Werte ein, erhält man eine maximale Zeitschrittweite $\Delta t = 0,015$ s für das verwendete Berechnungsgitter. Für die durchgeführten Simulationen konvergierten die Berechnungen erst mit $\text{Co} \leq 0,01$. Der Zeitschnitt der einphasigen CFD-Rechnung liegt in den meisten Simulationen bei $\Delta t = 1 \cdot 10^{-3}$ s. Aufgrund ständiger Veränderung des Strömungsfeldes durch die Partikel, kann bei den gekoppelten CFD-DEM-Rechnungen prinzipiell keine Konvergenz erreicht werden. Bei einem CFD-seitigen Zeitschritt von $\Delta t = 1 \cdot 10^{-4}$ s laufen die gekoppelten Simulationen stabil.

3.4.2 Abschätzung des DEM-Zeitschrittes

Falls der DEM-Zeitschritt zu groß gewählt ist, können Überlappungen der Partikel bzw. Partikel-Wand-Überlappungen unerkannt bleiben. Grund dafür ist, dass dann ein Bewegungsschritt des Partikels berechnet wird, der zu groß ausfällt [22]. Erfahrungsgemäß ist die Simulation stabil bei einem DEM-Zeitschritt, der einen Wert zwischen 10 % bis 30 % der sogenannten Rayleigh-Zeit hat. Diese ist folgendermaßen definiert [5]:

$$t_{\text{Rayleigh}} = \frac{\pi r_{\text{p,min}} \sqrt{\frac{\rho_{\text{p}}}{G}}}{0,1631 \nu + 0,8766}. \quad (3.3)$$

Dabei bezeichnen $r_{\text{p,min}}$ den minimale Partikelradius, ρ_{p} die Feststoffdichte, G das Schermodul und ν die zugehörige Poisson-Zahl. Da die Partikeldurchmesser im Mikrometerbereich liegen, lag bei den durchgeführten Simulationen der DEM-Zeitschritt bei $\Delta t = 5 \cdot 10^{-7}$ s.

3.5 Berechnungszeiten

CFD-DEM Simulationen sind rechnerisch sehr anspruchsvoll, was entweder die Anzahl der simulierten Partikel oder die Dauer der Simulation begrenzt. Für CFD-DEM

Simulationen mit vielen Partikeln sind Parallelrechner absolut notwendig, da der Rechenaufwand für solche Simulationen, die serial berechnet werden, nicht mehr akzeptabel ist [51]. Der Vorteil von Parallelisierung für den relevanten Kristallisator in Setup 1 ist in der Abb. 3.4 dargestellt. Die angegebenen Berechnungszeiten (in Stunden) entsprechen einer realen Prozesszeit von nur 1 Sekunde.

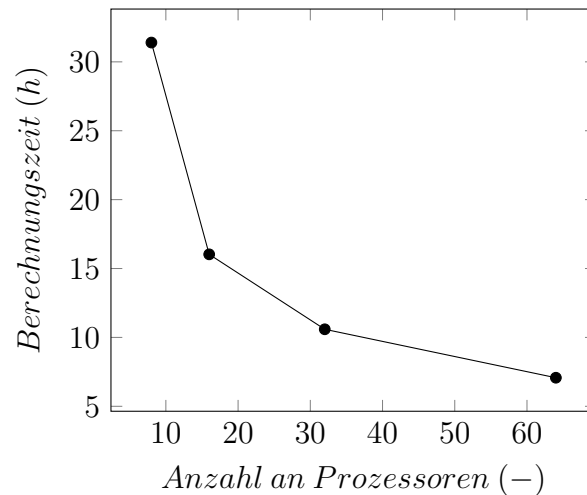


Abb. 3.4 – Berechnungszeit über der Anzahl von Prozessoren, die für die Kristallisatorberechnung verwendet werden.

Die Berechnungszeiten einiger ausgewählter Simulationen mit unterschiedlichen Partikelanzahlen sind in der Tab. 3.2 zusammengestellt.

Alle Simulationen im Originalmaßstab werden auf Linux-Clustern auf mindestens 8 Prozessoren (2100 Ghz / Quad-Prozessor mit High-Speed-Infiniband-Netzwerkverbindung: Ressource Karman) oder auf mindestens 8 Prozessoren (16 core-Nodes je 256GB, 2 x Xeon E5-2630v3 (Haswell) Prozessor: Ressource Neumann) durchgeführt.

3.6 Fehlerbetrachtung CFD

Die Abschätzung der im Abschnitt 2.2.8 beschriebenen Fehler soll in folgender Reihenfolge geschehen: Zuerst werden die Iterationsfehler, dann die Diskretisierungsfehler und schließlich die Modellfehler abgeschätzt. Jede dieser Fehlerarten sollte eine

Tab. 3.2 – Berechnungszeiten einiger ausgewählter Simulationen.

Simulation	physikal. Zeit	Berech- nungszeit	Berech- nungszeit/ 1s	Partikel- anzahl	Ressource (Prozessoren)
Säule fein	28 s	479,6 h	17,1 h	100 000	Karman (32 Kerne)
K-3d-ohne- renumberMesh	4 s	234,2 h	58,6 h	70 000	Karman (8 Kerne)
K-3d-ohne- renumberMesh- overrelaxation	4 s	235,2 h	58,8 h	70 000	Karman (8 Kerne)
K-3d- renumberMesh	4 s	231,6 h	57,9 h	70 000	Karman (8 Kerne)
K-3d- renumberMesh- cohesion	4 s	232,6 h	58,1 h	70 000	Karman (8 Kerne)
K-3d- renumberMesh	4 s	140,4 h	35,1 h	70 000	Karman (16 Kerne)
K-3d- renumberMesh	4 s	79,6 h	19,9 h	70 000	Neumann (16 Kerne)

Größenordnung kleiner als die Folgende sein, da sonst die Abschätzung der Fehler auf der nächsten Ebene nicht zuverlässig wird.

3.6.1 Iterationsfehler

Die diskretisierten Gleichungssysteme werden normalerweise iterativ gelöst. Um zu entscheiden wann der Iterationsprozess anhalten soll, wird ein Konvergenzkriterium (Toleranz) eingeführt. Beim Ergebnis jedes Iterationsschrittes werden dabei nicht die Absolutwerte für die gelösten Gleichungen betrachtet, sondern die Residuen¹ der einzelnen Parameter. Der Iterationsprozess wird solange fortgesetzt, bis das Niveau der Residuen um den Betrag der vorgegebenen Toleranzen reduziert worden ist oder die Rechnung durch Erreichen einer vorgegebenen Gesamtberechnungszeit gestoppt wird. Die Konvergenzkriterien der verwendeten Parameter Geschwindigkeit v und Druck p sind in Tabelle 3.3 zusammengestellt.

¹Als Residuum wird die Größe bezeichnet, um die eine Gleichung nicht erfüllt ist, wenn man eine Näherung der Lösung einsetzt; im Gegensatz zum Fehler, also den Abstand der Näherung zur Lösung.

Tab. 3.3 – Die Konvergenzkriterien (Toleranzen) für die verwendeten Parameter Geschwindigkeit v und Druck p .

Parameter	Toleranz
Druck p	10^{-5}
Geschwindigkeit v	10^{-5}

Für die einphasige CFD-Simulation werden die Konvergenzkriterien sogar bei einer stationären Simulation nach relativ wenigen Iterationen erreicht, wie durch Abb. 3.5 und Abb. 3.6 veranschaulicht wird.

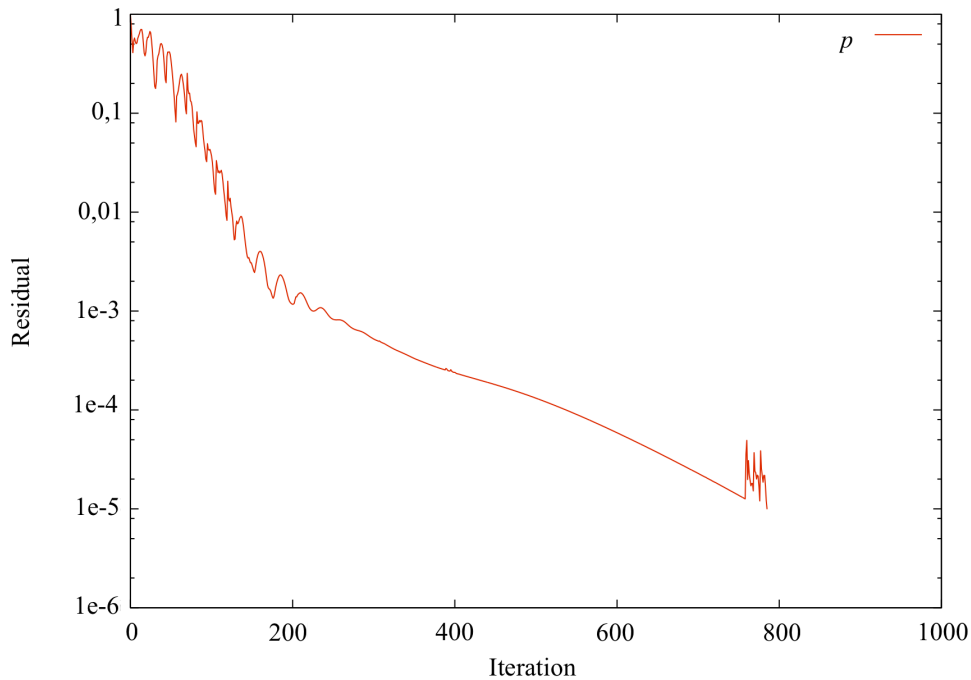


Abb. 3.5 – Residuenverlauf für den Druck für die stationäre Berechnung des einphasigen Kristallisators.

Die Residuen für den Druck und die Geschwindigkeit nehmen nach etwa 200 Iterationen stetig ab. Allerdings schwanken die Verläufe kurz vor Erreichen der Konvergenzkriterien noch einmal, was darauf hindeutet, dass das Strömungsfeld nicht komplett stationär ist, sondern Oszillationen vorhanden sind, was durch instationäre Simulationen auch bestätigt wird.

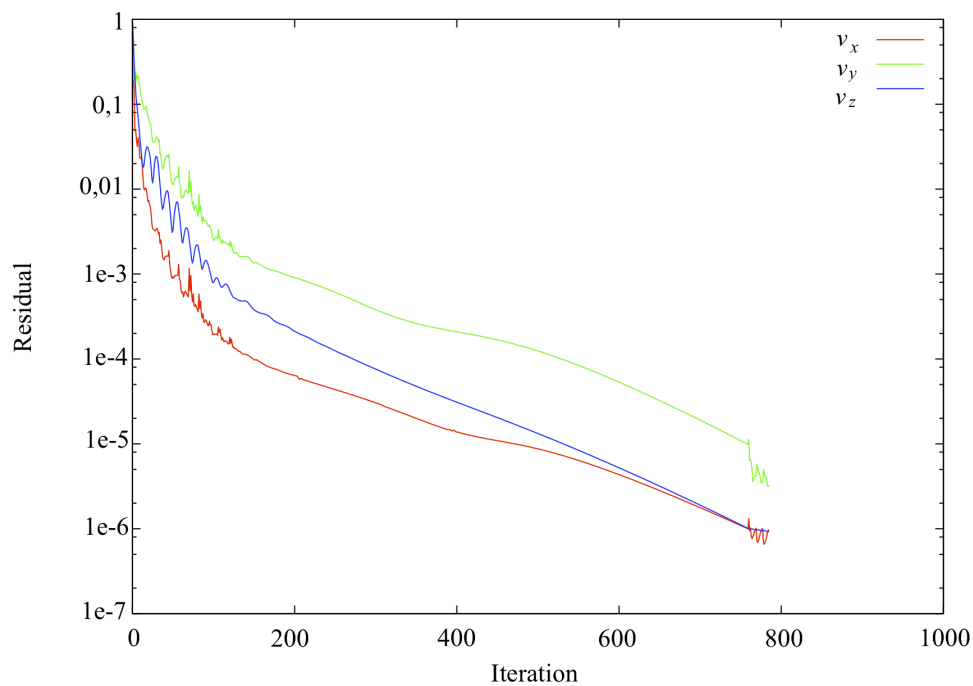


Abb. 3.6 – Residuenverläufe für die Geschwindigkeit in x -, y - und z -Richtung für die stationäre Berechnung des einphasigen Kristallisators.

Im Gegensatz zu einer einphasigen CFD-Simulation, wird bei einer zweiphasigen CFD-DEM-Simulation die Konvergenz niemals erreicht. Der Grund dafür ist, dass die Partikel ständig das Strömungsfeld stören. Die Residuen können nur über einen längeren Zeitraum beobachtet werden, wobei Schwankungen erlaubt sind, aber Divergenz ausgeschlossen werden muss. Die Residuenverläufe für den Druck und die Geschwindigkeit für die instationäre Berechnung des Kristallisators mit Kristallen sind in den Abbildungen 3.7 und 3.8 dargestellt.

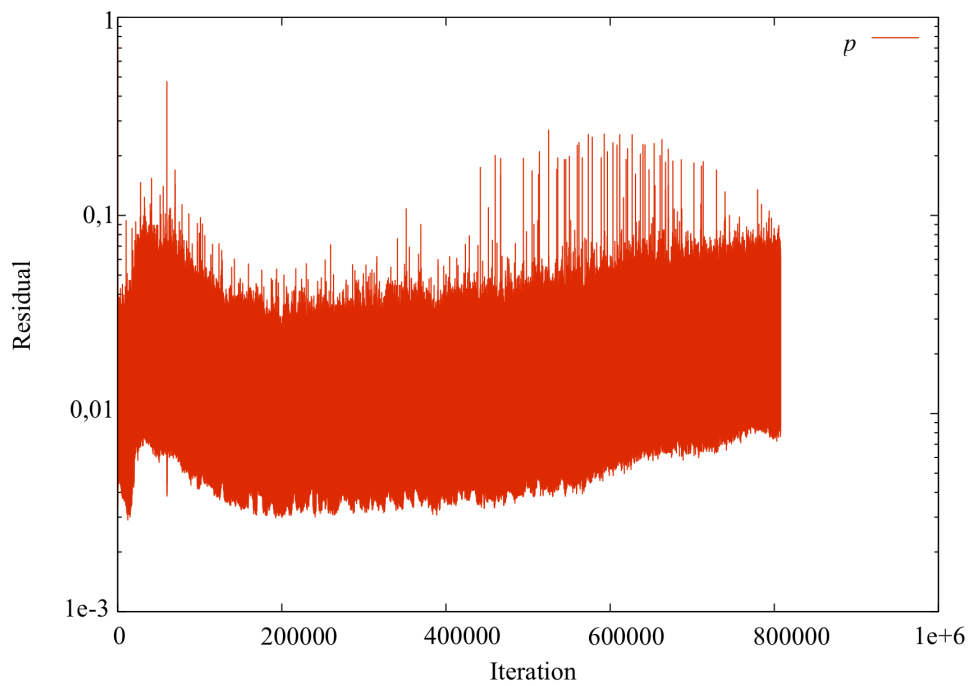


Abb. 3.7 – Residuenverlauf für den Druck für die instationäre Berechnung des zweiphasigen Kristallisators.

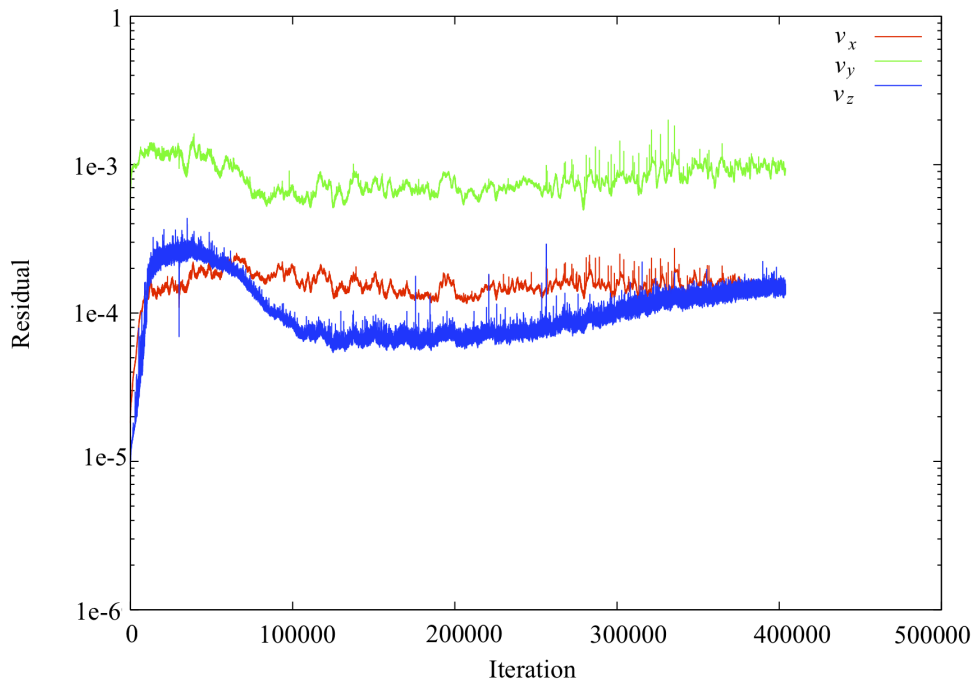


Abb. 3.8 – Residuenverläufe für die Geschwindigkeit in x -, y - und z -Richtung für die instationäre Berechnung des zweiphasigen Kristallisators.

3.6.2 Diskretisierungsfehler

Durch die Verfeinerung des Gitters kann der Diskretisierungsfehler in der Regel verringert werden. Im Idealfall wird das Gitter so weit verfeinert, dass bei der Berechnung eine gitterunabhängige Lösung erreicht wird. Der Diskretisierungsfehler wird nur für die einphasige CFD-Simulation abgeschätzt.

Im ersten Teil der Gitterunabhängigkeitsstudie wird der Diskretisierungsfehler durch die Richardson-Extrapolation abgeschätzt, wie in [33] beschrieben. Für die Abschätzung werden mindestens drei verschiedene Rechnungen auf unterschiedlich feinen Gittern benötigt. Die Lösungen sollen dabei monoton sein. Die Richardson-Extrapolation wird mithilfe der folgenden Gleichung durchgeführt:

$$\epsilon_h \approx \frac{\phi_1 - \phi_2}{\chi^\sigma - 1}. \quad (3.4)$$

Die Variablen ϕ_3 , ϕ_2 und ϕ_1 stellen eine ausgewählte Untersuchungsgröße des größten, des mittelfeinen und eine des feinsten Gitters dar. Die Ordnung σ ist folgendermaßen definiert:

$$\sigma = \frac{\log\left(\frac{\phi_2 - \phi_3}{\phi_1 - \phi_2}\right)}{\log \chi}, \quad (3.5)$$

wobei χ den Faktor bezeichnet, um den die Gitterdichte von einer Ebene zur nächsten erhöht wird (hier $\chi = 2$). In der Abb. 3.9 sind die für die Richardson-Extrapolation verwendeten blockstrukturierten Gitter dargestellt mit jeweils 30 080, 240 640, 1 976 065 Gitterzellen.

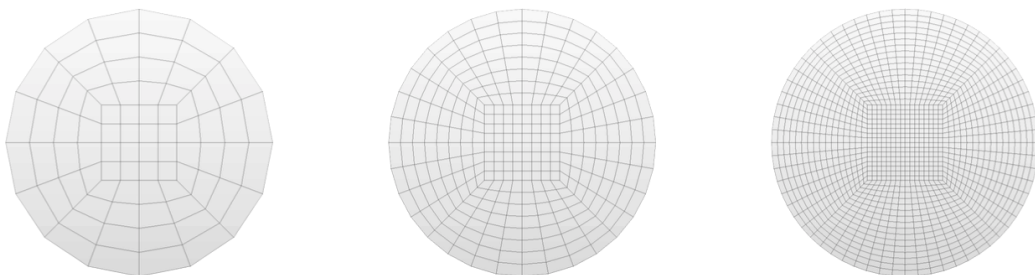


Abb. 3.9 – Die für die Richardson-Extrapolation verwendeten blockstrukturierten Gitter im Querschnitt, links - größtes Gitter mit 30 080 Gitterzellen, mitte - zweitfeinstes Gitter mit 240 640 Zellen, rechts - feinstes Gitter mit 1 976 065 Gitterzellen.

Da es sich um eine dreidimensionale Betrachtung handelt, verachtfacht sich die Anzahl der Gitterzellen bei jeder Verfeinerung. Das feinste Gitter beinhaltet bereits eine Gitterzellenanzahl von fast 2 Millionen. Es wird keine weitere Verfeinerung vorgenommen, denn erfahrungsgemäß ist der Fehler mit dieser hohen Anzahl bereits sehr gering und eine weitere Verdoppelung hätte eine Erhöhung der Gitterzellen auf über 15 Mio. zur Folge. Als Untersuchungsgröße ϕ wird die zeitlich gemittelte Geschwindigkeit über den Querschnitt bei einer Säulenhöhe von 0,5 m ausgewählt. Die ermittelten Geschwindigkeiten der konvergierten laminaren Strömungssimulationen betragen $v_{m,30080} = 0,0173751 \frac{\text{m}}{\text{s}}$, $v_{m,240640} = 0,0173856 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ und $v_{m,1976065} = 0,0173878 \frac{\text{m}}{\text{s}}$. Mit der Formel (3.4) ergibt sich ein Diskretisierungsfehler von 0,00006 %. Die ermittelte Geschwindigkeit mit dem feinsten Gitter plus 0,00006 % würde also einem gitterunabhängigeren Wert entsprechen. Demzufolge ist bei der Verwendung des feinsten Berechnungsgitters ein äußerst geringer Diskretisierungsfehler zu erwarten. Die Berechnung der Geschwindigkeit mit dem feinsten Gitter sollte nahezu gitterunabhängig sein.

Da die Berechnungszeiten bei der Kopplung mit der DEM allerdings äußerst lang sind (siehe Abschnitt 3.2) ist das feinste Gitter nicht zweckmäßig für die Berechnungen und es wird überprüft ob der Diskretisierungsfehler auch bei der Verwendung eines Gitters mit rund 250 000 Gitterzellen vertretbar ist. Dazu werden im zweiten Teil der Gitterunabhängigkeitsstudie systematische Simulationen von Setup 2 mit einem injizierten Volumenstrom von $25,1 \frac{\text{L}}{\text{h}}$ durchgeführt, bei denen das Gitter schrittweise verfeinert wird (30 080, 240 640 und 470 000 Gitterzellen). Es wird der relative Fehler bestimmt, der sich ergibt, wenn man die Lösung für die Untersuchungsgröße auf dem untersuchten Gitter mit der Lösung des feinsten Gitters (hier 470 000 Gitterzellen) ins Verhältnis setzt.

Im Vergleich zur Referenzlösung auf dem feinsten Gitter mit 470,000 Gitterzellen, hat die über den Querschnitt gemittelte Geschwindigkeit, die unter Verwendung des Gitters mit nur 30 080 Zellen erhaltenen wird, einen relativen Fehler von 2,6 %. Die Geschwindigkeit im Querschnitt wird bei einer Säulenhöhe von 0,5 m (halbe Höhe der Säule) bestimmt, auf dem Niveau, wo Partikel später in den begleitenden Validierungsexperimenten injiziert werden. Dieser Unterschied ist nicht sehr groß, aber immer noch zu groß für eine genaue Simulation. Unter Verwendung des Gitters mit 240 640 Zellen erhält man einen relativen Fehler von nur weniger als 0,2 % im Vergleich mit der Referenzsimulation auf dem feinsten Gitter, was vollständig

akzeptabel ist. Eine Gitterauflösung mit etwa 200 000 Zellen wird somit für die späteren Simulationen beibehalten. Die erhaltene Zellgröße wird dann identisch gehalten bei den Simulationen von Setup 1.

3.6.3 Modellfehler

Der am schwierigsten abzuschätzende auftretende Fehler ist wahrscheinlich der Modellfehler.

Es kann davon ausgegangen werden, dass die Geschwindigkeits- und Druckfelder für die einphasige Strömung mit hoher Genauigkeit vorausgesagt werden können, da sie der einer laminaren Rohrströmung gleicht.

Auf den Modellfehler, der sich bei der Berechnung der partikelbeladenen Strömung ergibt, wird im Kapitel noch genauer eingegangen.

3.7 Simulation nicht-sphärischer Partikel

Die Asparaginmonohydratkristalle, die in der Realität prismische Volumina haben (Abb. 3.10 (links)), werden in den CFD-DEM-Simulationen als Kugeln approximiert (Abb. 3.10 (rechts)), was den Rechenaufwand erheblich reduziert.

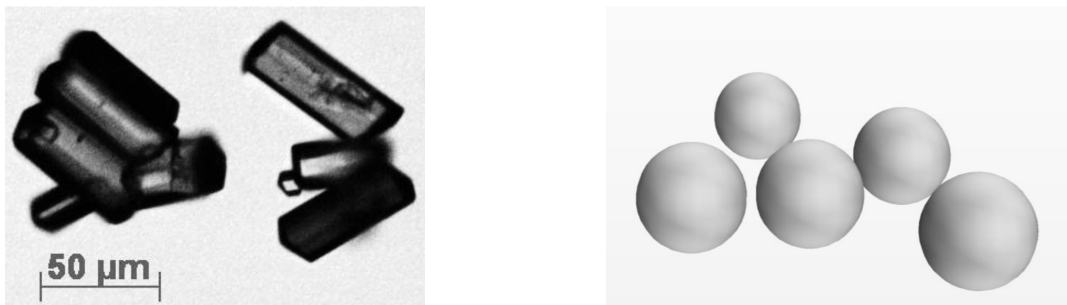


Abb. 3.10 – Links - Nahansicht von Asparaginmonohydratkristallen [12];
rechts - Geometrieapproximierung durch sphärische Partikel, wie
sie in der CFD-DEM-Simulation üblicherweise verwendet werden.

Durch CFD-DEM-Simulationen nicht-sphärischer Kristalle mittels der kommerziellen Software StarCCM+ wird überprüft, ob die Kugelform im Allgemeinen ausreichend ist bzw. durch ihre Einfachheit geeignet ist, auch komplexe Formen zu repräsentieren [21]. Zum direkten Vergleich wird dasselbe Setup wie für die

Simulation mit Kugeln aufgesetzt. Lediglich die Form der konstruierten Kristalle ist unterschiedlich sowie das verwendete Widerstandsmodell (Abschnitt 2.2.5). Als Vergleichskriterium dient die Kristallgeschwindigkeit.

Eine Kugel ist mathematisch gesehen die einfachste Form zur Darstellung eines Partikels. Die Angabe des Durchmessers bzw. Radius und die Mittelpunktkoordinaten reichen aus, um diese vollständig zu beschreiben. Nicht-sphärische Partikel werden dargestellt, indem mehrere sphärische Partikel eine CAD-Hülle füllen, die für die Darstellung einer Kristallform zuvor erstellt worden ist. Wird mehr als eine Kugel für den Bau eines nicht-sphärischen Partikels generiert (wie dies für die Nachbildung eines Asparaginkristalls der Fall ist), sind mehr Informationen notwendig und der Rechenaufwand steigt stark an. In der durchgeführten Untersuchung wird eine Minimalanzahl an Kugeln verwendet, die für das Füllen des Asparaginkristalls notwendig sind. In der Abb. 3.11 ist das nicht-sphärische Partikel (links) innerhalb der Originalform (Mitte links) und zum Vergleich die Originalform (Mitte rechts) sowie die Konturlinien (rechts) dargestellt.

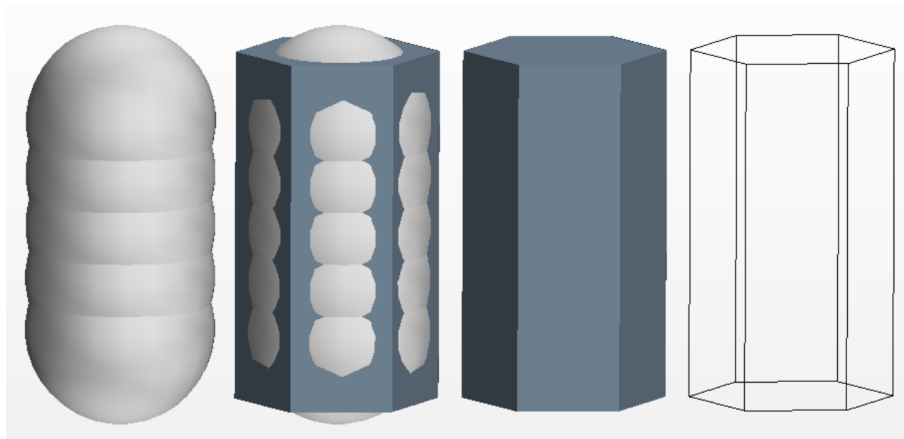


Abb. 3.11 – Komposit eines nicht-sphärischen Partikels aus fünf Kugeln und Originalform des Asparaginmonohydrat-Kristalls [21].

Eine nicht-kugelförmige Form kann hinreichend durch fünf verwendete Kugeln erstellt werden. Das nicht-sphärische Partikel hat eine Sphärizität $\Psi = 0.9$. Es wäre möglich noch mehr Partikel einzusetzen, um die Ecken besser aufzufüllen und die Oberfläche besser anzupassen, was sich allerdings negativ auf die Simulationszeit auswirkt. Das Volumen, die Fläche und die Sphärizität einer Kugel und eines

Kristallkomposits sind in der Tab. 3.4 zusammengestellt.

Tab. 3.4 – Volumen, Fläche und Sphärizität einer Kugel und eines Kristallkomposits.

	Kugel	Kristall	Relation
Volumen [m ³]	$1,77 \cdot 10^{-12}$	$1,76 \cdot 10^{-12}$	99,6 %
Fläche [m ²]	$7,07 \cdot 10^{-8}$	$7,83 \cdot 10^{-8}$	110,8 %
Sphärizität [-]	1	0,9	90, %
Durchmesser [μm]	230 (längster)	150	153,3 %

Die Kugeln der Kristallkomposite sind gleich groß und haben einen Durchmesser von 54.4 μm. Die längste Abmessung des Kristalls ist 230 μm. Das Volumen der Komposite stimmt zu 99.6 % mit einer Kugel überein, die einen Durchmesser von 150 μm hat. Die Fläche des Kristalls ist in diesem Fall rund 11 % größer.

Im Gegensatz zu den anderen CFD-DEM-Simulationen in dieser Arbeit, in denen stets eine Partikelgrößenverteilung angenommen wird, wird bei diesen Simulationen nur eine Partikelgröße verwendet. Insgesamt werden 10 000 Partikel simuliert. Für die DEM-seitige *skin* muss die längste Abmessung berücksichtigt werden, d.h für die sphärischen Partikel 150 μm und für die Kristallkomposite 230 μm. Die Angaben zu dem CFD- und DEM-Solver sowie die Berechnungszeiten sind in der Tab. 3.5 zu finden.

Tab. 3.5 – Konfiguration der Solver für die Simulation sphärischer und nicht-sphärischer Partikel und Berechnungszeiten.

	Sphärische Partikel (1 Kugel)	Nicht-spärische Partikel (5 Kugeln)	Nicht-spärische Partikel (18 Kugeln)
Widerstandsmodell	Schiller- Naumann 2.2.4	Haider- Levenspiel 2.2.5	Haider- Levenspiel 2.2.5
CFD-Zeitschritt [s]	10^{-3}	10^{-3}	10^{-3}
DEM-Zeitschritt [s]	10^{-6}	10^{-6}	10^{-6}
Berechnungszeit für 0,1 s physikal. Zeit [min]	25	40	60

3.8 Simulation von Kohäsionseffekten

Die Kohäsion (lat.: *cohaerere* zusammenhängen) wird auch als Zusammenhangskraft bezeichnet und umfasst sowohl chemische Bindungskräfte im Molekül, als auch physikalische (Van-der-Waals-)Kräfte, die innerhalb eines Stoffes wirken [52]. Sie wirken in Flüssigkeiten oder in Festkörpern und führen an den Oberflächen eines Stoffes zur Oberflächenspannung. Die Adhäsion (auch Anhangskraft) beruht hingegen auf Bindungskräften zwischen zwei unterschiedlichen Phasen.

Kohäsionskräfte können in den CFD-DEM-Simulationen durch das Modell von Johnson, Kendall und Roberts (*simplified JKR model - sjkr*) berücksichtigt werden. Wenn zwei Partikel in Kontakt sind, wird hierbei eine zusätzliche Normalkraft hinzugefügt, die dazu neigt, den Partikelkontakt zu halten [28].

Bei den Versuchen mit dem Stoffsystem Asparaginmonohydrat konnten bislang keine Kohäsionseffekte beobachtet werden, obwohl Kohäsion für gewöhnlich bei Partikeln zu beobachten ist, die kleiner als 100 μm sind. Um das Modell so vollständig wie möglich zu gestalten und weil keine wesentliche Einsparung von Berechnungszeit erfolgt, wenn Kohäsion vernachlässigt werden würde, wird in den CFD-DEM-Simulationen das Modell zur Berücksichtigung von Kohäsionen von Johnson, Kendall und Roberts (in LIGGGHTS: cohesion sjkr) verwendet.

3.9 Anwendbarkeit von reduzierten CFD-DEM-Modellen

Im untersuchten Prozess sind mehrere Millionen Kristalle vorhanden und die Prozessdauer beträgt mehrere Stunden. Dementsprechend musste ein Kompromiss zwischen der Anzahl simulierter Partikel und der simulierten Berechnungszeit gefunden werden. Die CFD-DEM-Simulationen werden somit nicht dazu verwendet, den gesamten Prozess zu simulieren, sondern können nur relativ kleine Zeitfenster des Prozesses im Detail abbilden.

Die Anzahl von 100 000 bis 200 000 Partikeln reichte aus, um die verwendete Software zuverlässig zu validieren und den Prozess bei geringen Suspensiondichten zu simulieren. Allerdings lagen die Simulationszeiten in diesem Fall im Wochenbereich. Für einige ausgewählte Simulation z.B. zur Modellvalidierung sind sehr lange Berechnungszeiten vertretbar. Für eine CFD-DEM-basierte geometrische Optimierung, bei der zahlreiche Individuen berechnet werden müssen, sind die Berechnungszeiten allerdings zu lang. Als eine Möglichkeit, um Berechnungszeiten bei den CFD-DEM-

Rechnungen einzusparen, wird lediglich ein Ausschnitt des Kristallisators simuliert. Dieser Ansatz wird auch bei der CFD-DEM-basierten geometrische Optimierung verwendet.

Allerdings sind auch bei einem sehr kleinen Ausschnitt im realen Kristallisator noch Millionen von Kristallen vorhanden. Da es derzeit außer Reichweite liegt die reale Anzahl von Partikeln bei hohen Suspensionsdichten zu simulieren, wird die sogenannte *Coarse graining*-Methode (dt.: grobe Körnung) auf ihre Eignung geprüft.

3.9.1 Simulation eines zentralen Ausschnitts des Kristallisators

Die Berechnungszeiten bei der dreidimensionalen CFD-DEM-Simulation des Kristallisators in realen Abmaßen liegen trotz Parallelisierung im Bereich von Wochen, wie im Abschnitt 3.2 erläutert worden ist. Um Berechnungszeit einzusparen wird ein Ansatz untersucht, bei dem lediglich ein zentraler Ausschnitt des Kristallisators simuliert wird. Bei dem Ausschnitt entsprechen Höhe und Breite des Kristallisators den realen Abmaßen, allerdings beträgt die Tiefe nur eine Gitterzelle (≈ 3 mm). Der Ausschnitt mit blockstrukturiertem CFD-Gitter ist in der Abb. 3.12 dargestellt.

Die grün markierten Flächen (Vorder- und Rückseite) haben periodische Randbedingungen für die CFD- und die DEM-Berechnung. DEM-seitig werden die Partikel, die die Grenzfläche des Simulationsgebietes überschreiten, an der gegenüberliegenden Fläche wieder ins Simulationsgebiet eingefügt. An diesen Grenzflächen existiert für die Strömung keine Wand, sondern eine unendliche Ausdehnung. Weil sich bei gleichem Volumenstrom ein verschiedenes Strömungsfeld zum dreidimensionalen Modell ergibt (aufgrund der unterschiedlichen Querschnittflächen), werden die Geschwindigkeitsprofile an unterschiedlichen Höhen im Kristallisator für das Ausschnittsmodell mit denen des dreidimensionalen Modells verglichen und die Volumenströme am Einlass (bzw. Einlassgeschwindigkeiten) angepasst. Die Simulationsergebnisse sind im Abschnitt 5.4 dargestellt.

3.9.2 Simulation eines Ausschnitts in Produktauslasshöhe

Prinzipiell ist es auch denkbar nur einen sehr kleinen Ausschnitt des Kristallisator mit hohen Suspensionsdichten zu simulieren, allerdings wären auch bei einem kleinen Ausschnitt noch Millionen Partikel vorhanden. Deshalb sind zwar Simulationen des relativ kleinen Kristallisatorausschnitts durchgeführt worden, jedoch bei geringeren

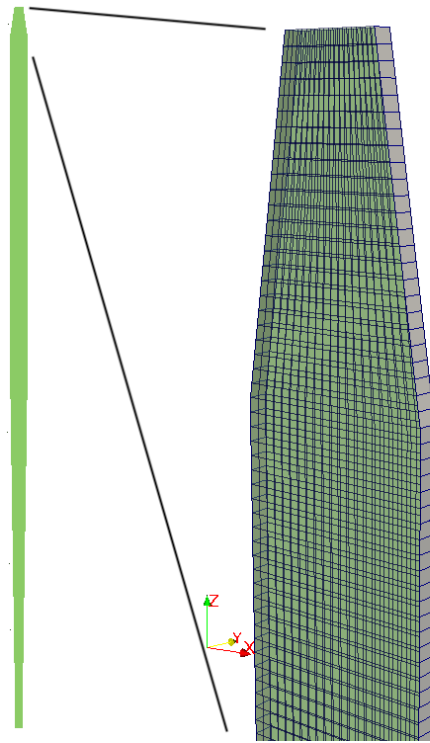


Abb. 3.12 – Zentraler Ausschnitt des Kristallisators mit blockstrukturiertem CFD-Gitter.

Suspensionsdichten als der realen Suspensionsdichte. Dadurch kann zumindest eine Tendenz der Partikeldynamik bei hohen Suspensionsdichten abgeleitet werden.

Bei dem simulierten Ausschnitt handelt es sich um den Bereich auf Höhe des Produktabzugsstutzens (Höhe x Breite x Tiefe $\approx 50 \text{ mm} \times 35 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$), wie in der Abb. 3.13 dargestellt.

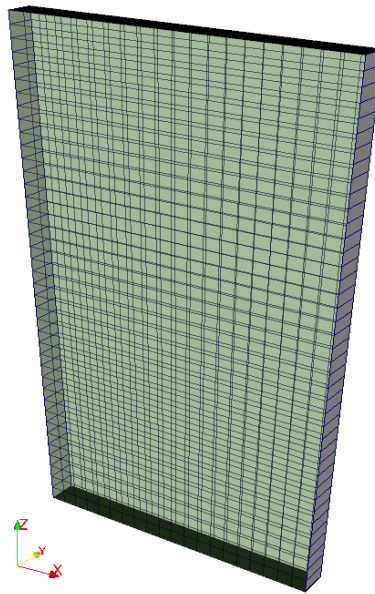


Abb. 3.13 – Ausschnitt des Kristallisators auf Produktauslasshöhe mit blockstrukturiertem CFD-Gitter.

Die grün markierten Flächen haben periodische Randbedingungen für die CFD- und die DEM-Berechnung, wie sie auch schon im vorangegangenen Abschnitt 3.9.1 verwendet worden sind. Die Einlass- und Auslassflächen sind schwarz markiert. Partikel, die diese Flächen überschreiten, werden gelöscht. Der Ansatz hat den Vorteil, dass im Simulationsgebiet nur in Schwebelage gebliebene Partikel verbleiben und zu leichte bzw. zu schwere Partikel, die auch im realen Kristallisator nach oben ausgetragen werden bzw. zu Boden sinken, nicht berücksichtigt werden. Ein Problem dieses Ansatzes ist, dass das darunter liegende Strömungsfeld nicht erfasst wird. Aus diesem Grund wird als Randbedingung am Einlass das Geschwindigkeitsprofil der einphasigen CFD-Simulation auf Höhe des Produktabzugsstutzens implementiert.

Es werden drei verschiedene Suspensionsdichten untersucht. Die Ergebnisse sind im Abschnitt 5.2.4 dargestellt.

3.9.3 Anwendbarkeit der Ähnlichkeitstheorie

Beim sogenannten *Coarse graining* wird die Partikelzahl bei gleichzeitiger Erhöhung des Partikeldurchmessers verringert. Das Ziel beim *Coarse graining* ist es dennoch, das echte Verhalten durch Anpassung der physikalischen Parameter beizubehalten. Zur

Validierung des *Coarse Graining*-Modells bedarf es adäquater Vergleichsexperimente, die das makroskopische Verhalten messbar widerspiegeln. Zudem ist die Kalibrierung der Parameter für die Anwendung von *Coarse Graining* bei Wirbelschichten ist sehr komplex und es gibt viele verschiedene Herangehensweisen [53, 54, 55, 56, 57, 58, 59, 60] und

Ein Ansatz zur Simulation von zweiphasigen Wirbelschichtprozessen wird von [61] vorgeschlagen. Die relevanten Größen bei diesem Ansatz sind der Partikeldurchmesser d_p , die kinematische Viskosität der Flüssigkeit ν_f und die Partikelfeststoffdichte ρ_p , die im Folgenden abgeschätzt werden.

Angenommen im Kristallisator befinden sich schätzungsweise $N_p = 170$ Millionen Partikel mit einem durchschnittlichen Sauter-Durchmesser von etwa $d_p = 200 \mu\text{m}$, was folgendem Feststoffvolumen entspricht:

$$V_{p,\text{ges}} = N_p \cdot \frac{1}{6} \pi d_p^3 \approx 8,9 \cdot 10^{-5} \text{m}^3. \quad (3.6)$$

Als realisierbare Anzahl an Partikeln die im Rahmen einer vorgegebenen Gesamtberechnungszeit von 60 s simuliert werden können, werden rund 20 000 angenommen. Das Volumen für ein neues Einzelpartikel beträgt dann $V_{p,\text{neu}} \approx 2,4 \cdot 10^{-9} \text{m}^3$. Der Durchmesser dieses neuen Einzelpartikels berechnet zu:

$$d_{p,\text{neu}} = \sqrt[3]{\frac{6 \cdot V_p}{\pi}} \approx 2 \text{mm}. \quad (3.7)$$

Der Parameter k beschreibt das Verhältnis von beiden Partikelgrößen (Index 1 - Experiment; Index 2, skalierte Simulation):

$$d_{p,2} = \zeta \cdot d_{p,1}, \quad (3.8)$$

und beträgt in diesem Fall $\zeta = 10$.

Zunächst wird davon ausgegangen, dass die Geschwindigkeit der minimalen Fluidisierung und die Reynoldszahl konstant sind:

$$v_{\text{mf},1} = v_{\text{mf},2} = \frac{\text{Re}_{\text{mf},1} \cdot \nu_{f,1}}{d_{p,1}} = \frac{\text{Re}_{\text{mf},2} \cdot \nu_{f,2}}{d_{p,2}}. \quad (3.9)$$

Damit ist die dynamische Viskosität des Fluids für die Simulation gegeben als:

$$\nu_{f,2} = \frac{d_{p,2}\nu_{f,1}}{d_{p,1}} = \zeta \cdot \nu_{g,1}. \quad (3.10)$$

Es wird angenommen, dass die Fluidichte in der Simulation konstant bleibt und gleich der des Experiments ist. Zur Berechnung der Partikeldichte kann die Archimedes-Zahl angewendet werden:

$$\frac{g \cdot d_{p,1} \cdot (\rho_{p,1} - \rho_{f,1})}{\nu_{f,1}^2 \cdot \rho_{f,1}} = \frac{g \cdot d_{p,2} \cdot (\rho_{p,2} - \rho_{f,2})}{\nu_{f,2}^2 \cdot \rho_{f,2}}. \quad (3.11)$$

Nach Vereinfachung und Verwendung des Verhältnisses ζ ergibt sich die folgende Gleichung:

$$\rho_{p,2} = \frac{\rho_{f,2}}{\zeta} \frac{\rho_{p,1} - \rho_{f,1}}{\rho_{f,1}} + \rho_{f,2}. \quad (3.12)$$

Es ergeben sich für:

$$d_2 = 10 d_1 \approx 2 \text{ mm}, \quad (3.13)$$

$$\nu_{f,2} = 10 \nu_{f,1} = 1 \cdot 10^{-5} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}, \quad (3.14)$$

$$\rho_{p,2} = 1,045 \rho_{f,2} = 1045 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}. \quad (3.15)$$

Eine CFD-DEM-Simulation mit diesen angepassten Stoffwerten mit 100 Partikeln und eine Vergleichssimulation mit 100 000 Partikeln mit realen Stoffparametern werden durchgeführt. Die Abb. 3.14 zeigt die gemittelte Vertikalgeschwindigkeit v_z von fluidisierten Asparaginkristallen als Funktion ihrer radialen Position im Kristallisator für die nicht-skalierte CFD-DEM-Simulation und die skalierte CFD-DEM Simulation gemittelt über die Zeitpunkte $t = 5 \text{ s}$, 10 s , 15 s und 20 s . Die Fehlerbalken zeigen die Standardabweichung um den Mittelwert.

Da nur sehr wenige skalierte Partikel fluidisiert werden, befinden sich zum einen Partikel nur im Kristallisatorzentrum (aufgrund der Initialisierung) und zum anderen gibt es einen auffälligen Wert bei $r \approx 3 \text{ mm}$, bei dem nur wenige Partikelgeschwindigkeiten einbezogen werden. Die Geschwindigkeiten stimmen aber tendenziell mit sehr guter Näherung überein. Allerdings sollte laut [61] das Verhältnis k zwischen dem gefälschten und dem realen Partikeldurchmesser niedriger als 3 sein, um ein ähnliches physikalisches Ergebnis zu erzielen wie in Wirbelschichten mit hohen Suspensionsdichten.

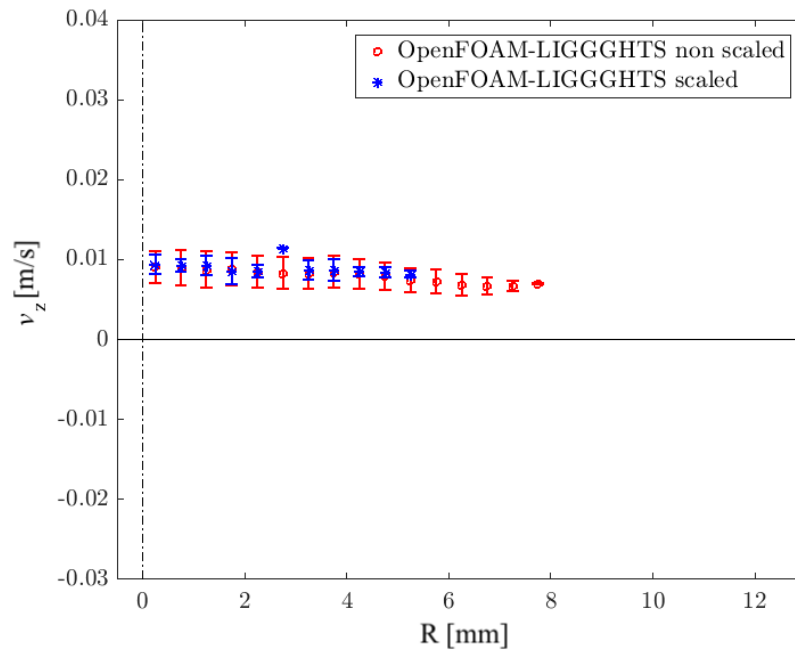


Abb. 3.14 – Vergleich der gemittelten Vertikalgeschwindigkeit von fluidisierten Asparaginkristallen als Funktion ihrer radialen Position im Kristallisator - nicht-skalierte CFD-DEM-Simulation (rote Kreise) und skalierte CFD-DEM Simulation (blaue Sterne); die Fehlerbalken zeigen die Standardabweichung um den Mittelwert.

Daher würde hier ein erweiterter *Coarse graining*-Ansatz erforderlich sein und es müssten wiederum aufwändige Validierungsversuche durchgeführt werden. Zudem erscheint das erweiterte *Coarse-graining*-Modell mit seiner großen Zahl an unbekannt Parametern auch ungeeignet für die geometrische Optimierung. Es wird daher in dieser Arbeit darauf verzichtet diesen Ansatz weiter zu verfolgen.

Modellvalidierung und Kalibrierung

Aufgrund der Komplexität des verwendeten Simulationsmodells ist eine geeignete Validierung des entwickelten Ansatzes unbedingt erforderlich. Allerdings hat sich die Identifizierung eines geeigneten Messverfahrens, um die Partikelgeschwindigkeiten zu ermitteln, als eine große Herausforderung erwiesen. Alle verfügbaren In-line Messsonden, die oft in Kristallisatoren verwendet werden (z.B. Endoskopie, Focused Beam Reflectance Measurement), beeinflussen merklich die Hydrodynamik im Kristallisator und werden daher nicht als zweckmäßig erachtet. Die Abb. 4.1 zeigt eine Focused-Beam-Reflectance-Measurement-Sonde, die in den Kristallisator hineinragt.

Da die Wände transparent (Glas) sind, wäre die Verwendung von nicht-intrusiven, bildbasierten Messtechniken von außen im Prinzip möglich. Die Abb. 4.2 (a) zeigt ein Experiment im Kristallisator mit Glaspartikeln unterschiedlicher Farbe und Größe ($d_{m,violett} = 150 - 180 \mu\text{m}$; $d_{m,orange} = 90 - 125 \mu\text{m}$). Die Abb. 4.2 (c) zeigt die CFD-DEM-Simulation zum Beginn ($t = 2 \text{ s}$) und die Abb. 4.2 (b) zeigt die CFD-DEM-Simulation nach 30 s. Vergleicht man die Abbildungen 4.2 (a) und 4.2 (b), so stellt man qualitativ eine gute Übereinstimmung fest. Der Separationsprozess großer und kleiner Partikel ist im Experiment und in der Simulation beobachtbar.

Doch mit dem realen Kristallisatordesign (Setup 1) erweist sich eine optische Outline-Messung zur Quantifizierung der Partikelgeschwindigkeiten als nicht anwendbar, da die Aufnahmen eine unzureichende Qualität aufgrund der starken Lichtbrechungen an der Kristallisatorwand aufweisen. Der Kristallisator besitzt einen

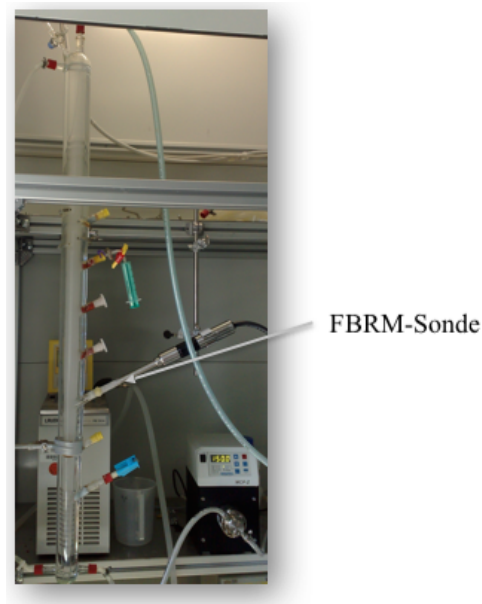


Abb. 4.1 – In-line-Messung im Kristallisator mittels FBRM-Sonde.



Abb. 4.2 – (a) - Experiment mit Glaspartikeln unterschiedlicher Farbe und Größe ($d_{m,violett} = 150 - 180 \mu\text{m}$; $d_{m,orange} = 90 - 125 \mu\text{m}$), (b) - CFD-DEM-Simulation mit 100,000 Partikeln nach einer physikalischen Zeit von 30 s, (c) - Anfang der CFD-DEM-Simulation $t = 2 \text{ s}$.

Doppelmantel, der für die Temperaturregelung verwendet wird. Demzufolge kommt es zur Lichtbrechung an vier stark gekrümmten Phasengrenzen (von außen nach innen: Luft - Glas - Wasser - Glas - Wasser), was zu einer nicht akzeptablen Verzerrung der Lichtstrahlen führt.

Um dieses Problem zu lösen, wird ein Versuchskristallisator gebaut, mit etwas kleineren Abmessungen, aber ähnlich denen des realen Kristallisators in Setup 1. Der Versuchskristallisator ist in der Abb. 4.3 gezeigt.

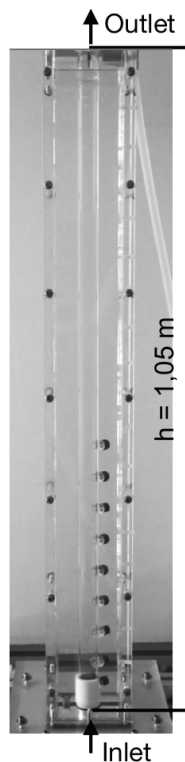


Abb. 4.3 – Versuchskristallisator zur Modellvalidierung (Setup 2).

Der speziell designte Kristallisator besteht aus einer einwandigen Säule aus Makrolon mit einem Innendurchmesser von 26 mm und einer Höhe von 1050 mm. Dieses zylindrische Rohr ist in einen umgebenden, transparenten rechteckförmigen Kanal mit einer Seitenbreite von 100 mm eingebettet. Der Raum zwischen der zylindrischen Säule und dem umgebenden Kanal ist mit Wasser gefüllt. Somit wird die Änderung des Brechungsindex nur auf die geringe Differenz zwischen dem Wasser und der dünnen Makrolonwand begrenzt (Brechungsindex Wasser: 1,33; Brechungsindex Makrolon: 1,59). Der große Unterschied zwischen dem Brechungsindex von Luft und

Makrolon spielt keine Rolle mehr, da die Kamera Bilder senkrecht zur Grenze des rechteckförmigen Mantels aufnimmt. Alles in allem wird auf diese Weise in Setup 2 eine ausgezeichnete Signalqualität erhalten.

4.1 Charakterisierung der verwendeten Glaspartikel

Um das experimentelle Arbeiten zu vereinfachen, werden inerte farbige Glaspartikel bei den Validierungsversuchen verwendet. Offensichtlich ist bei diesen Versuchen kein Partikelwachstum berücksichtigt, aber die Versuche sind zweckmäßig, um die Partikeltrajektorien zu überprüfen und zu quantifizieren, ob das numerische Modell in der Lage ist, das richtige Fluidisierungsverhalten zu reproduzieren.

Die Partikelgrößenverteilung (PSD) Q_3 der verwendeten Glaspartikel wird mittels des CAMSIZER XT (Retsch GmbH, Haan, Deutschland) vermessen und ist in der Abb. 4.4 dargestellt. Für die CFD-DEM-Simulation wird die gleiche in 22 gleichmäßig verteilte Klassen diskretisierte PSD verwendet.

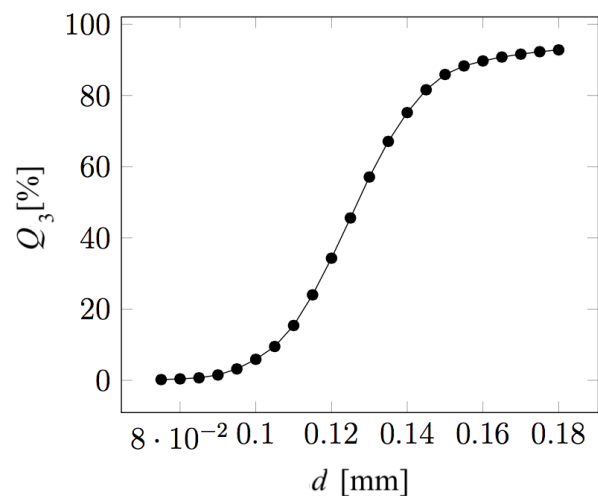


Abb. 4.4 – Gemessene kumulative Partikelgrößenverteilungsfunktion Q_3 der Glaspartikel.

Für einige Versuche werden zudem Glaspartikel unterschiedlicher Größen und Farbe verwendet. Es werden für zwei verschiedene Glaspartikelfractionen zwei Farben ausgewählt, die klar über den RGB-Farbraum (R: Rot, G: Grün, B: Blau) unterscheidbar sind, und zwar Grün und Rot. Die beiden Glaspartikelfractionen werden

4.1 Charakterisierung der verwendeten Glaspartikel

zuvor durch Siebung klassiert. Die vom Hersteller angegebene Absolutdichte der Glaspartikel beträgt $2500 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$ (Sigmund Lindner GmbH, Produktdatenblatt V20/2016). Um diese Angabe zu überprüfen, wird die Absolutdichte der Glaspartikel einmalig mittels des Dichtemessgerätes Minidens (Grabner Instruments, Wien, Österreich) bestimmt. Zudem wird der Vollständigkeit halber die Schüttdichte bestimmt. Die Ergebnisse der Dichtemessungen sind in der Tabelle 4.1 dargestellt.

Tab. 4.1 – Größenbereiche, Absolutdichten und Schüttdichten der Glaspartikelfraktionen).

Partikelfarbe	Grün	Rot
Größenbereich	90 - 125 μm	180 - 212 μm
Absolutdichte	2524 $\frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	2515 $\frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$
Abweichung von Herstellerangabe	0,96 %	0,60 %
Schüttdichte	1460 $\frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	1450 $\frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$

Die ermittelten Abweichungen der Absolutdichtewerte von den Herstellerangaben liegen unter einem Prozent, was als zufälliger Fehler gewertet wird. Für die CFD-DEM-Simulationen wird ein Feststoffdichtewert von $2500 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$ verwendet.

Die Sphärizität Ψ der Glaspartikel wird mit einem CAMSIZER XT (Retsch GmbH, Haan, Deutschland) bestimmt. Sie beträgt für die grünen (leichten) Partikel 94,7 % und für die roten (schweren) Partikel 90,4 %. Die Abweichungen von der Kugelform ($\Psi = 100 \%$) ergeben sich möglicherweise durch Partikelagglomerationen. Da die meisten Partikel eine Sphärizität von 100 % aufweisen, was in der Abb. 4.5 dargestellt ist, werden bei den Simulationen perfekt runde Partikel angenommen.

4.1 Charakterisierung der verwendeten Glaspartikel

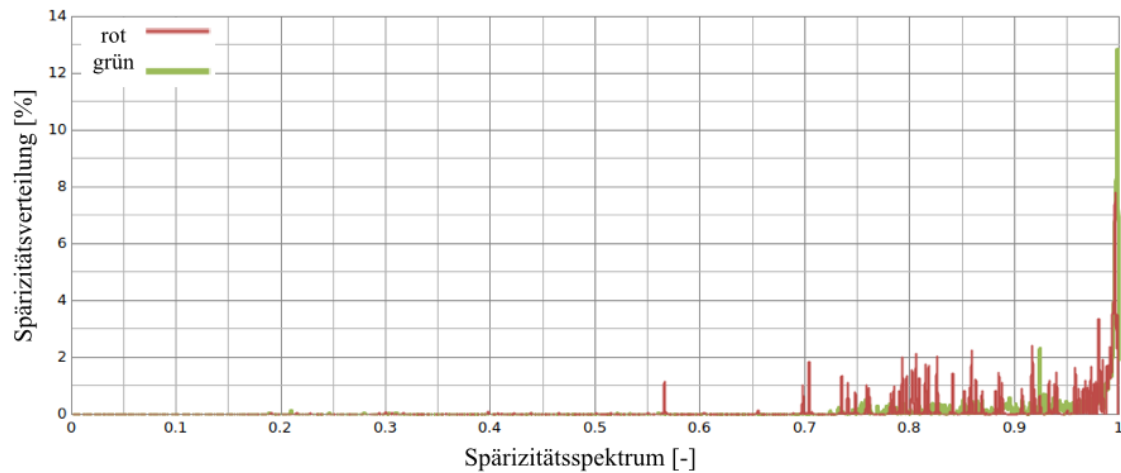


Abb. 4.5 – Spärizitätsverteilung zwei verschiedener Glaspartikelfraktionen.

Alle weiteren DEM-Simulationsparameter für die Modellvalidierung sind in der Tab. 4.2 zusammengestellt. Die DEM-Parameter (Elastizitätsmodul, Poisson-Zahl, Rollreibungskoeffizient, Wandreibungswert, Böschungswinkel und Restitutionskoeffizient) werden aus Erfahrungswerten abgeschätzt, weil in den Modellvalidierungsversuchen relativ geringe Suspensionsdichten vorliegen und somit wenige Partikelkontakte zu erwarten sind. Der Aufwand für eine vollständige experimentelle Bestimmung der DEM-Parameter wie für Asparaginmonohydrat wäre in diesem Fall unverhältnismäßig groß.

Tab. 4.2 – DEM-Simulationsparameter für die Modellvalidierung in Setup 2.

DEM-Zeitschritt	0,5 μ s
Elastizitätsmodul	10^7 Pa
Poisson-Zahl	0,3
Rollreibungskoeffizient	0,2
Wandreibungswert	0,13
Böschungswinkel	31°
Restitutionskoeffizient	0,2

4.2 Sinkversuche

Bei den Sinkversuchen fallen die Partikel durch den Versuchskristallisor ohne eine Anströmung von unten. Bei einer Höhe von 0,5 m wird die Partikelbewegung mit einer Kamera (EOS 600 D, Canon, Bildwechselfrequenz: 25 fps) aufgezeichnet. Die Partikelgeschwindigkeiten von 50 grünen und 50 roten Partikeln werden mittels der Open-Source-Software Kinovea rekonstruiert. Bei diesem Experimenten werden nur sehr wenige Partikel ($\approx 10\,000$; Suspensionsdichte $\approx 0,00048 < 0,001$) verwendet, um sicherzustellen, dass Partikelschwarmeffekte vernachlässigt werden können und eine CFD-DEM-Simulation mit sehr wenigen Partikeln für den Vergleich genutzt werden kann.

In der Tab. 4.3 sind die Sinkgeschwindigkeiten von grünen und roten Partikeln für das Experiment und die CFD-DEM-Simulation aufgelistet. Für die CFD-DEM-Simulation werden das Modell von [36] und das Modell von [62] zur Beschreibung der Widerstandskraft verglichen. Die kinematische Viskosität hat einen großen Einfluss auf die Sinkgeschwindigkeit, weshalb neben der Viskosität für Wasser mit einer Temperatur von 15°C [63] (reale Bedingung beim Experiment) noch die Viskositäten für 20°C und für 5°C für die CFD-DEM-Simulationen verwendet werden. Im Diagramm 4.6, 4.7 and 4.8 sind die Sinkgeschwindigkeiten für $T = 15^\circ\text{C}$, $T = 20^\circ\text{C}$ und $T = 5^\circ\text{C}$ dargestellt. Erwartungsgemäß nimmt die Sinkgeschwindigkeit mit abnehmender Viskosität zu. Mit dem Experiment stimmt die CFD-DEM-Simulation am besten überein, bei der das Widerstandsmodell von Di Felice verwendet wird, weshalb für weitere Simulationen dieses Modell verwendet wird.

Im Diagramm 4.9 sind zusammenfassend die Sinkgeschwindigkeiten dargestellt, die mit dem analytischen Modell von Richardson und Zaki und dem Widerstandsmodell von Di Felice (CFD-DEM-Simulation) ermittelt worden sind und die am besten mit dem Experiment übereinstimmen.

4.2 Sinkversuche

Tab. 4.3 – Sinkgeschwindigkeiten von Glaspartikeln in Wasser - Experiment und CFD-DEM-Simulation.

	t_{sink} ($d = 90 \mu\text{m}$)	t_{sink} ($d = 125 \mu\text{m}$)	t_{sink} ($d = 180 \mu\text{m}$)	t_{sink} ($d = 212 \mu\text{m}$)
Experiment ($T = 15^\circ\text{C}$)	86 s ($v = 0,007 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	40 s ($v = 0,015 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	28 s ($v = 0,021 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	22 s ($v = 0,027 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)
Simulation KochHill $\nu(T = 15^\circ\text{C})$ $= 1,14 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	65,5 s ($v = 0,00916 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	36,4 s ($v = 0,0165 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	19,4 s ($v = 0,0308 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	14,9 s ($v = 0,0402 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)
Simulation DiFeliceDrag Archimedes $\nu(T = 15^\circ\text{C})$ $= 1,14 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	72,8 s ($v = 0,00824 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	42,6 s ($v = 0,0141 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	23,7 s ($v = 0,0253 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	18,3 s ($v = 0,0327 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)
Simulation KochHill $\nu(T = 20^\circ\text{C})$ $= 1 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	57,7 s ($v = 0,0104 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	32,6s ($v = 0,0184 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	17,6 s ($v = 0,0341 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	14,0 s ($v = 0,0428 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)
Simulation DiFeliceDrag Archimedes $\nu(T = 20^\circ\text{C})$ $= 1 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	65,2 s ($v = 0,0092 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	38,7 s ($v = 0,0155 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	21,8 s ($v = 0,0275 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	16,9 s ($v = 0,0355 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)
Simulation KochHill $\nu(T = 5^\circ\text{C})$ $= 1,5 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	84,5 s ($v = 0,0071 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	45,8 s ($v = 0,0131 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	23,9 s ($v = 0,0251 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	17,5 s ($v = 0,0341 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)
Simulation DiFeliceDrag Archimedes $\nu(T = 5^\circ\text{C})$ $= 1,5 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	92,3 s ($v = 0,0065 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	52,6 s ($v = 0,0114 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	28,6 s ($v = 0,0210 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)	21,6 s ($v = 0,0278 \frac{\text{m}}{\text{s}}$)

4.2 Sinkversuche

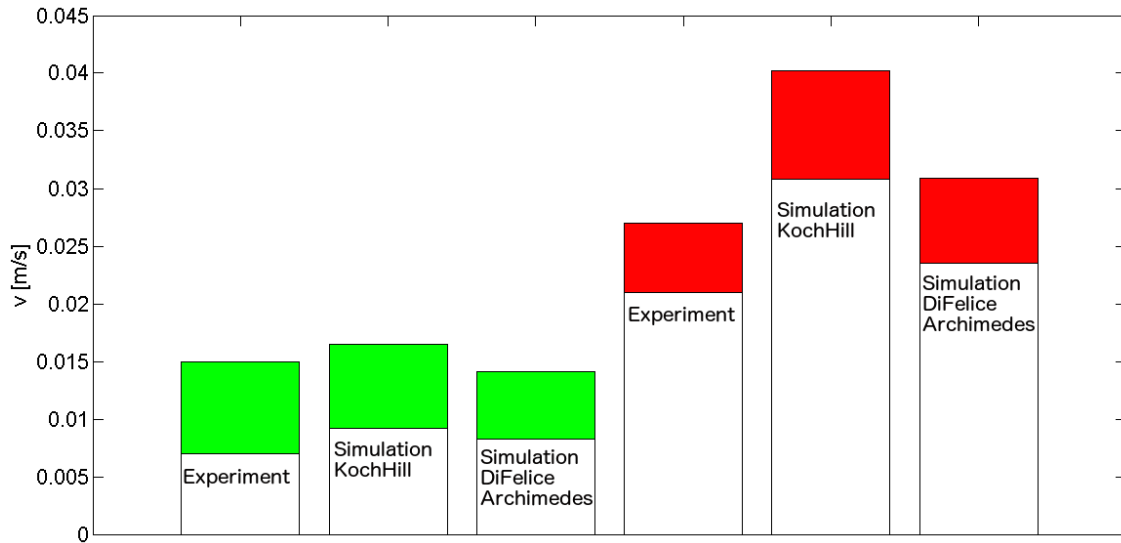


Abb. 4.6 – Sinkgeschwindigkeiten von Glaspartikeln in Wasser - Experiment und CFD-DEM-Simulation, $\nu (T = 15^\circ\text{C}) = 1,14 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$.

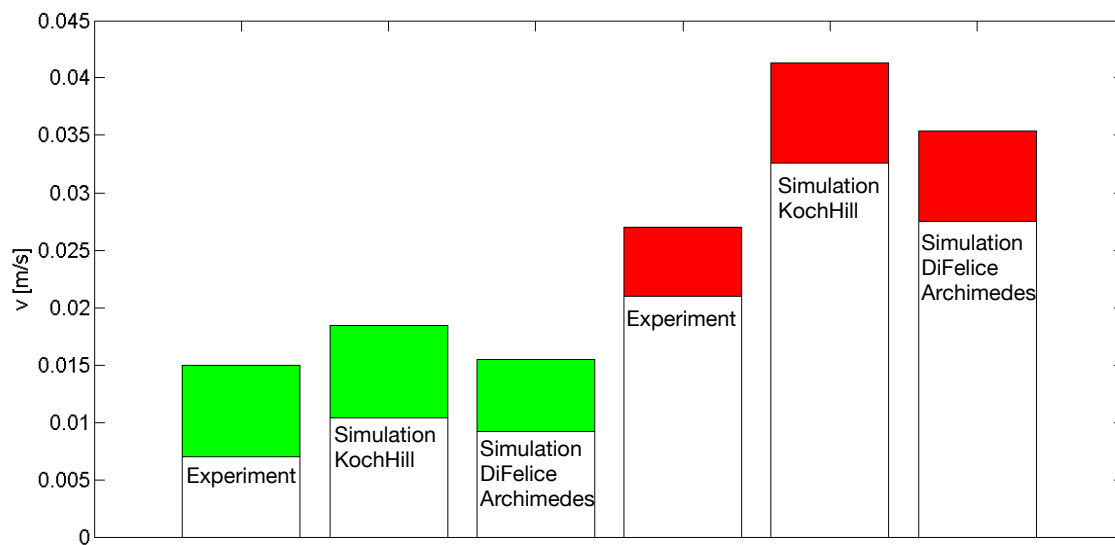


Abb. 4.7 – Sinkgeschwindigkeiten von Glaspartikeln in Wasser - Experiment und CFD-DEM-Simulation, $\nu (T = 20^\circ\text{C}) = 1 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$.

4.2 Sinkversuche

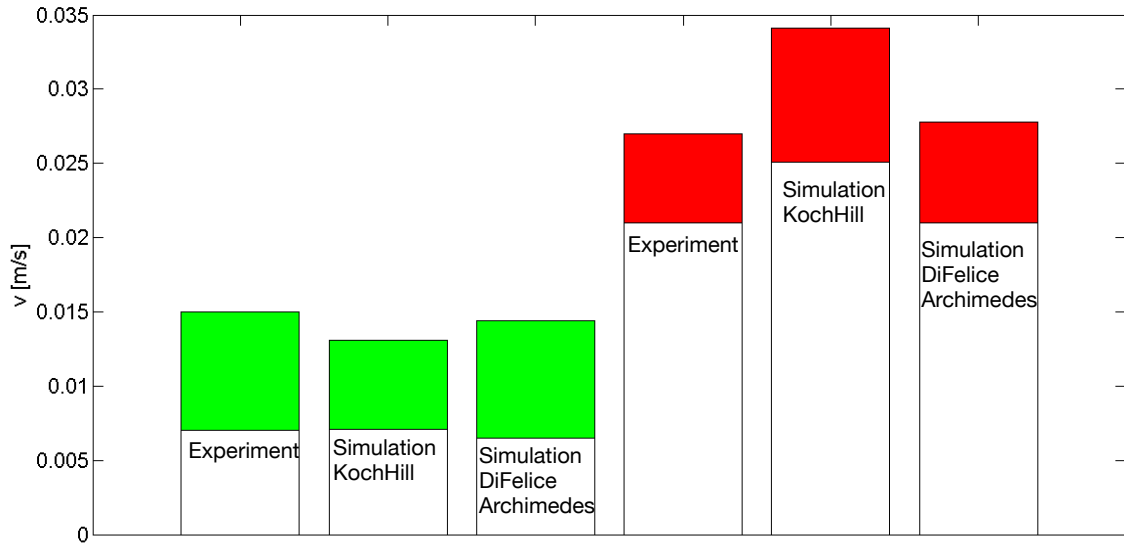


Abb. 4.8 – Sinkgeschwindigkeiten von Glaspartikeln in Wasser - Experiment und CFD-DEM-Simulation, ν ($T = 5^\circ\text{C}$) = $1,5 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$.

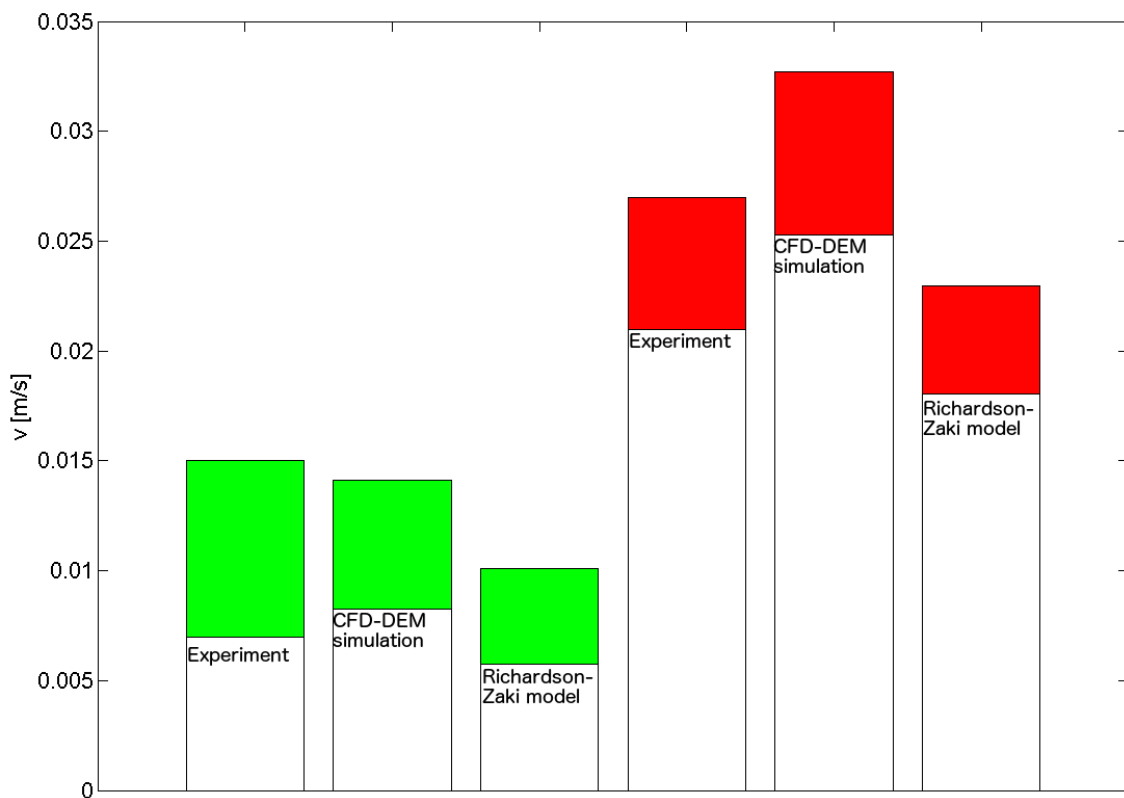


Abb. 4.9 – Sinkgeschwindigkeiten von Glaspartikeln in Wasser - Experiment, CFD-DEM-Simulation, ν ($T = 15^\circ\text{C}$) = $1,14 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$ und analytische Lösung.

4.3 Rekonstruktion der minimalen und maximalen Partikelgeschwindigkeiten

Als ersten Versuch, um die Glaspartikelgeschwindigkeiten im Versuchskristallisator im fluidisierten Zustand zu bestimmen, werden Kameramessungen (EOS 600 D, Canon) durchgeführt und 50 Partikelbahnlinien werden (wie bei den Sinkversuchen) aus einem Kameravideo (Bildwechselfrequenz: 25 fps) mittels der Open-Source-Software Kinovea rekonstruiert (Abb. 4.10 (a)). Die Kamera fokussiert die Säule auf einer Höhe von 0,5 m. Die vertikalen Partikelgeschwindigkeiten in der Säule reichen von $0,0187 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ (Maximalwert aufwärts) bis $-0,0140 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ (Maximalwert abwärts).

Für die äquivalente CFD-DEM-Simulation liegen die vertikalen Partikelgeschwindigkeiten im Bereich von $0,016 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ (aufwärts) bis $-0,0154 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ (abwärts). Die Abb. 4.10 (b) zeigt die Simulation im dem Bereich, in dem auch die Geschwindigkeiten ausgewertet werden, und zwar bei einer Säulenhöhe von 0,5 m. Das Diagramm 4.11 zeigt die Partikelgeschwindigkeiten von Experiment, CFD-DEM-Simulation und analytischer Lösung (Modell von Richardson und Zaki, Kapitel 2.3.1).

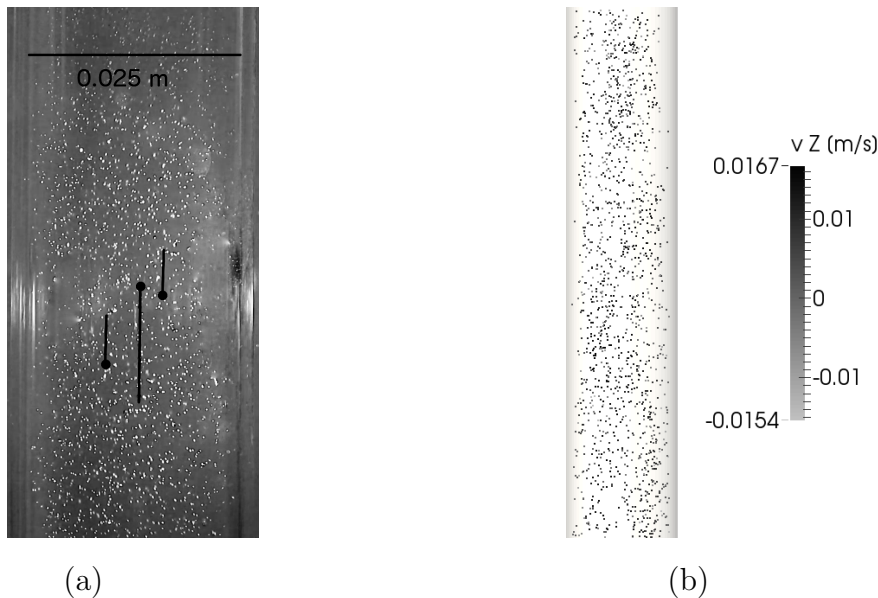


Abb. 4.10 – Versuchskristallisator fokussiert auf einer Höhe von 0,5 m mit fluidisierten Partikeln, (a) - Trajektorien von drei beliebig ausgewählten Partikeln, (b) - fluidisierte Glaspartikel.

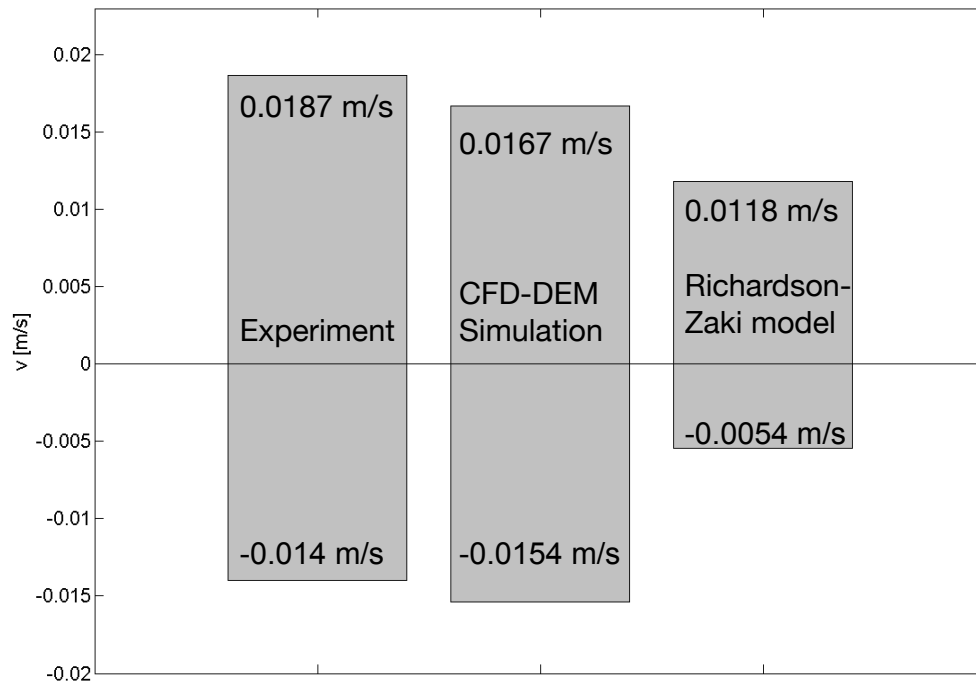


Abb. 4.11 – Geschwindigkeiten von fluidisierten Partikeln in Wasser - Experiment, Simulation und analytische Lösung.

Sowohl für die CFD-DEM-Simulation als auch für die analytische Lösung stimmen die Geschwindigkeiten der fluidisierten Partikel gut mit den im Experiment bestimmten überein. Die Ergebnisse des Richardson-Zaki-Modells weichen noch etwas mehr von den ermittelten experimentellen Geschwindigkeiten ab. Ein möglicher Grund ist, dass in diesem Modell kein Strömungsprofil berechnet wird ($v_F = \frac{\dot{V}}{A}$). Die Geschwindigkeiten bei der CFD-DEM-Simulation werden leicht unterschätzt.

Grund dafür könnte sein, dass im Experiment die grünen und roten Glaspartikel keinen homogenen Durchmesser (wie in der CFD-DEM-Simulation angenommen), sondern Verteilungen aufweisen. Um die Genauigkeit der Ergebnisse zu verbessern ist es deshalb notwendig eine CFD-DEM-Simulation durchzuführen, in der eine reale Verteilung der Glaspartikel implementiert ist. Weil die farbliche Unterscheidung keine Rolle mehr spielt, wird nur die monodisperse Verteilung von grünen Glaspartikel verwendet.

Um die Genauigkeit der experimentellen Ergebnisse zu verbessern, ist es notwendig die Anzahl der rekonstruierten Partikelgeschwindigkeiten (bisher 50) zu erhöhen und zu automatisieren. Zudem wird die Messgenauigkeit erhöht, indem ein Highspeedkamerasystem für die Aufnahmen verwendet wird und die s.g. Shadowgrafie-Technik

angewandt wird, die bei diesen Versuchen vielversprechend scheint. Die Vorgehensweise und Ergebnisse der Shadowgrafie-Messungen sind in [64] veröffentlicht worden.

4.4 Shadowgrafie-Messungen

Die Shadowgrafietechnik ist in der Lage Schwebeteilchen durch die Aufnahme ihrer Schattenbilder zu verfolgen. Der Shadowgraphy Messaufbau ist in der Abb. 4.12 dargestellt.

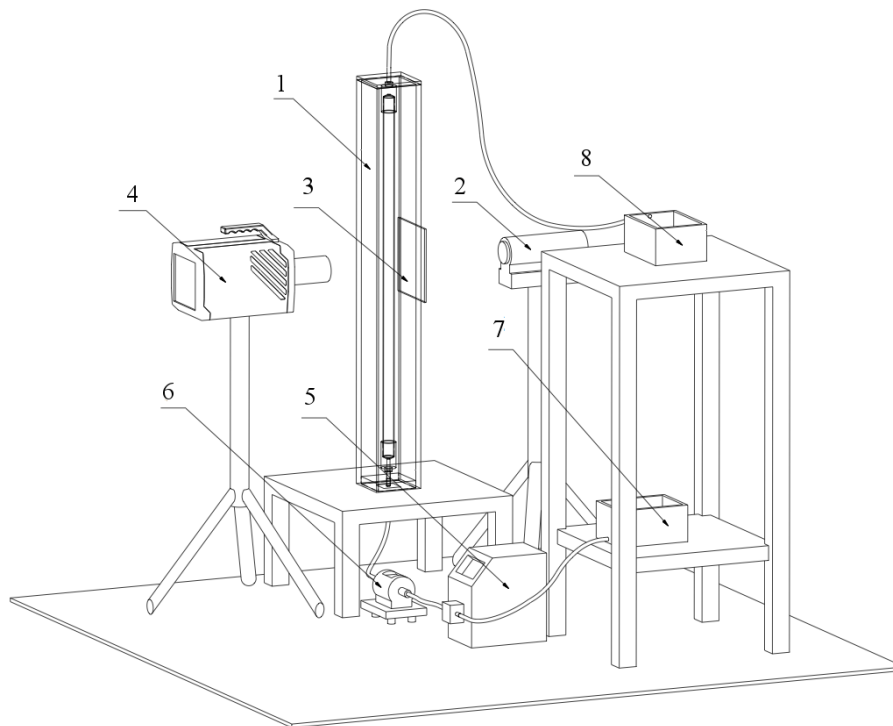


Abb. 4.12 – Shadowgraphie-Versuchsaufbau für die Validierungsversuche im speziell designten Kristallisator (1), Dedocool-Wolframlichtkopf (2) mit optischer Diffusorplatte (3), Kamera (4), pumpen-geförderter Wasserkreislauf (5), Durchflussmesser (6) und Wasserreservoir (7 und 8), Zeichnung von Dipl.-Ing. C. Roloff, LSS, ISUT, OvGU Magdeburg.

Der Kristallisator (1) ist mit einer Zahnradpumpe (ISMATEC ISM405A) (5) verbunden, um die Strömung in einer kontrollierten Art und Weise und konstant vom unteren (7) zum oberen Wasserreservoir (8) zu fördern. Der kontinuierliche Durch-

fluss wird durch einen Ultraschall-Durchflussmesser (Sonotec, Halle, Deutschland) (6) überwacht. Eine homogene Hintergrundbeleuchtung wird für die Partikelverfolgung durch einen Dedocool-Wolframlichtkopf (Dedotec, Ashley Falls, USA) (2) in Kombination mit einer optischen Diffusorplatte (3) realisiert. Eine Kamera (ImagerPro HS, LaVision, Göttingen, Deutschland) (4) erfasst die Partikelschatten in der zur Lichtquelle entgegengesetzten Richtung in der Mitte der Kristallisatorhöhe.

Vor der Messung müssen die Kamerabilder entzerrt und skaliert werden. Zu diesem Zweck wird ein Halbzylinder mit einem bekannten gedruckten Punktmuster (Abb. 4.13) hergestellt, in der wassergefüllten Säule positioniert und abgebildet.

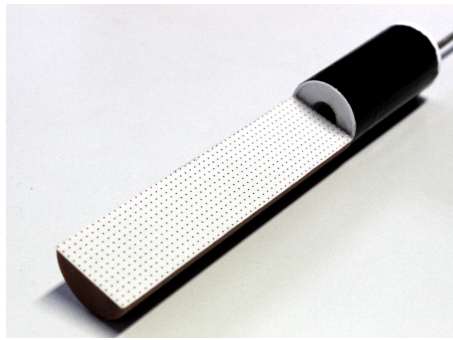


Abb. 4.13 – Gerät zur Kamerakalibrierung.

Alle Messungen erfolgen mit einem konstanten Volumenstrom von $25,1 \frac{\text{L}}{\text{h}}$. Eine Gesamtmasse von 2,5 mg Glaspartikeln, die etwa 100 000 Partikeln entspricht, wird auf mittlerer Höhe der Säule mittels einer Pipette eingespritzt. Nach der Injektion beginnt die manuelle Auslösung des Kamerasystems und die Messung, die für einen einzigen Durchlauf insgesamt 300 s dauert, wobei die Kamera alle 5 s Doppelbilder aufzeichnet.

Diese relativ lange Zeitverzögerung zwischen der Erfassung von zwei Bildpaaren erfolgt aufgrund der langsamen Partikelgeschwindigkeiten im Versuchskristallisator und verhindert die Überlagerung von demselben Partikel. Die Zeitverzögerung zwischen den Doppelbildern eines Paares wird auf 5 ms eingestellt, was eine Bildrate von 200 Hz ergibt, die eine zuverlässige Partikelverfolgung ermöglicht. Für die Nachbearbeitung und die Datennalyse wird das Partikel-Master-Shadowgraphy-Softwarepaket von DaVis 8.2 (LaVision, Göttingen, Deutschland) zur Partikelidentifizierung, Segmentierung, Größenbestimmung und Geschwindigkeitsschätzung verwendet.

Glaspartikel unter $100\ \mu\text{m}$ neigen gewöhnlich dazu zu agglomerieren. Für die Konsistenz der automatischen Verarbeitung werden alle verarbeiteten experimentellen Bilder manuell überprüft. Ein Grund ist, dass tatsächlich Partikel gefunden werden, die agglomerierten. Diese isolierten Agglomerate werden nicht in die Vergleiche eingeschlossen, da zu beobachten war, dass diese Agglomerate bereits während der Injektion gebildet werden und nicht aus Kollisionen im Versuchskristallisor resultierten.

In den Abbildungen 4.14 (Versuch) und 4.15 (CFD-DEM-Simulation) sind die vertikalen Geschwindigkeiten v_z aller fluidisierten Partikel, die in der Mitte der Höhe des Versuchskristallisors ($z = 0,5\ \text{m}$) beobachtet werden, über eine Gesamtdauer von $55\ \text{s}$ als Funktion ihrer radialen Position aufgetragen.

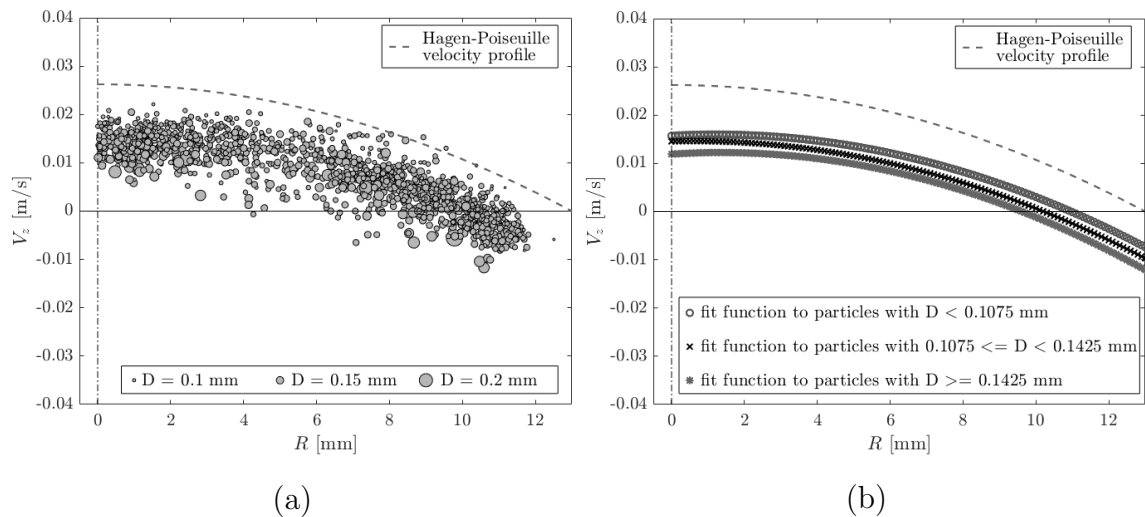


Abb. 4.14 – Gemessene Partikelvertikalgeschwindigkeit v_z als Funktion der radialen Position im Versuchskristallisor, die Größe der Markierung ist proportional zum quadrierten Durchmesser; (a) - die gestrichelte Linie stellt die analytische Lösung des erwarteten Hagen-Poiseuille Geschwindigkeitsprofil dar; (b) - Die Symbollinien stellen die quadratischen Fitkurven für Partikel dar mit $95 - 100\ \mu\text{m}$ (oberste Linie), $120 - 125\ \mu\text{m}$ (mittlere Linie), $140 - 155\ \mu\text{m}$ (unterste Linie).

4.4 Shadowgrafie-Messungen

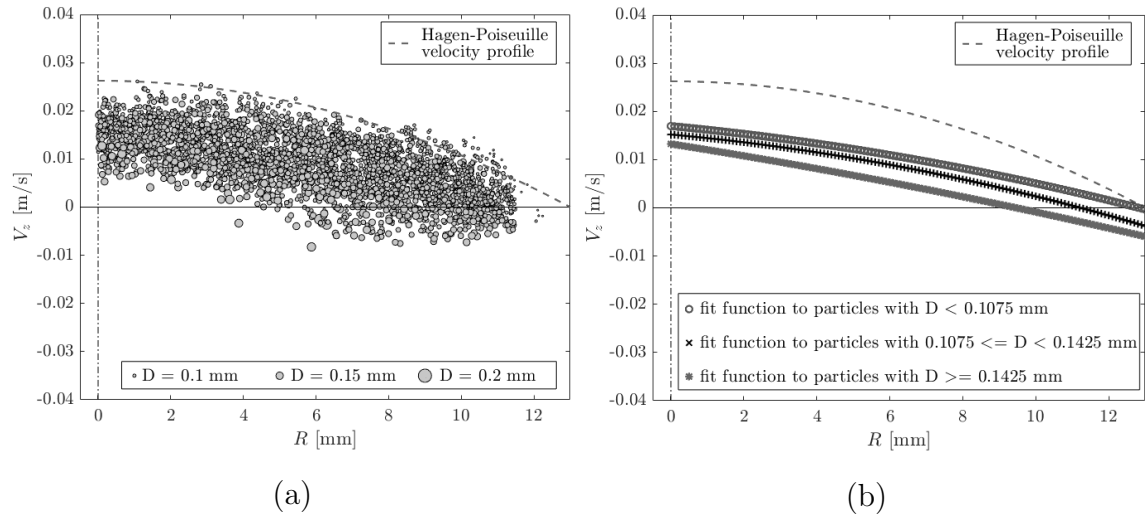


Abb. 4.15 – Simulierte Partikelvertikalgeschwindigkeit v_z als Funktion der radialen Position im Versuchskristallisator, die Größe der Markierung ist proportional zum quadrierten Durchmesser; (a) - die gestrichelte Linie stellt die analytische Lösung des erwarteten Hagen-Poiseuille Geschwindigkeitsprofil dar; (b) - Die Symbollinien stellen die quadratischen Fitkurven für Partikel dar mit 95 -100 μm (oberste Linie), 120 - 125 μm (mittlere Linie), 140 -155 μm (unterste Linie).

Die Größe der verwendeten Marker ist dabei proportional zum Quadrat der Durchmesser der Partikel, sodass es leicht möglich ist zwischen kleinen und großen Partikeln zu unterscheiden. Diese beiden Werte können verwendet werden, um das Fluidisierungsverhalten der Partikel in der Säule zu untersuchen. Von links nach rechts, von der Säulenachse in Richtung der Außenwand, können in beiden Abbildungen abnehmende Steiggeschwindigkeiten der Partikel beobachtet werden, die, wie erwartet, grob dem parabolischen Profil einer laminaren Strömung in einem zylindrischen Rohr folgen. Größere Partikel haben größtenteils niedrigere Geschwindigkeiten, während kleinere Partikel sowohl niedrige als auch hohe Geschwindigkeiten haben. Auffällige Ausreißer erscheinen nur an den beiden frühesten Zeitpunkten, wo der Einfluss der anfänglichen Partikelinjektion die Partikelbewegung dominiert.

Im Allgemeinen scheinen die Geschwindigkeiten der Partikel in der CFD-DEM-Simulation und dem Experiment sehr ähnlich zu sein. Diese Übereinstimmung kann mit Hilfe von Abb. 4.16 weiter quantifiziert werden, wobei die gemittelten Vertikalgeschwindigkeiten v_z von fluidisierten Glaspartikeln als Funktion ihrer radialen Position dargestellt ist (diskretisiert in Abständen von 0,25 mm).

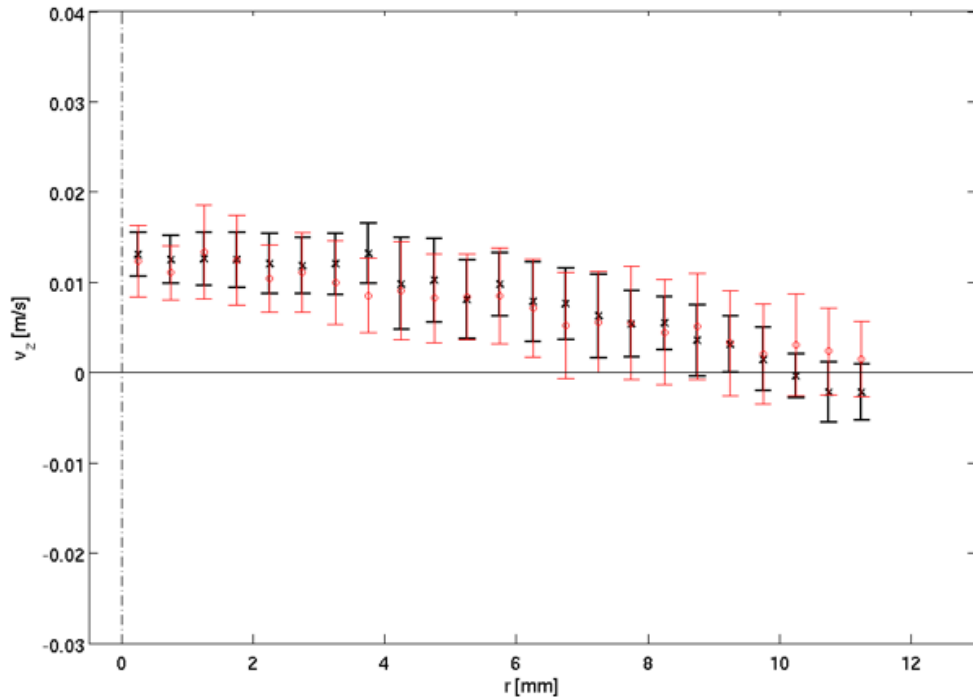


Abb. 4.16 – Vergleich der gemittelten Vertikalgeschwindigkeit v_z von fluidisierten Glaspartikeln als Funktion ihrer radialen Position im Versuchskristallisator - Experiment (schwarze Kreuze), CFD-DEM Simulation (rote Kreise); die Fehlerbalken zeigen die Standardabweichung um den Mittelwert.

Qualitativ sind die Trends identisch, vor allem in Bezug auf die vertikalen Geschwindigkeiten im Zentrum des Versuchskristallisators, wo die Partikel steigen. Um eine radiale Position von $\approx 9,5$ mm, beginnen einige Partikel die Richtung zu ändern (einige steigen, einige sinken), im Experiment wie in der Simulation. Quantitativ überlappen sich numerische und experimentelle Beobachtungen bei der Berücksichtigung der Standardabweichung. Numerische Diffusion könnte die stärkeren Unterschiede in Wandnähe erklären, da die Gitterwandaufösung einen hohen Einfluss hat, wie von [65] untersucht wurde. Um diesen Punkt zu prüfen, wären jedoch extrem zeitintensive Simulationen notwendig. Der Aufwand dafür wäre unverhältnismäßig hoch.

In Anbetracht der perfekten qualitativen Übereinstimmung, der genauen Identifizierung des Übergangs zwischen Aufwärts- und Abwärtsbewegung der Partikel und der akzeptablen quantitativen Übereinstimmung der Partikelgeschwindigkeiten, kann der entwickelte Ansatz für die Simulation des Kristallisators in Setup 1 eingesetzt werden.

4.4.1 Vergleich mit Simulationsergebnissen der Software StarCCM+

Die Ergebnisse der Shadowgrafie-Messungen werden auch mit den Ergebnissen der CFD-DEM-Simulation mittels der kommerziellen Software StarCCM+ 10.02 verglichen [21].

In der Abb. 4.17 sind sowohl die mit OpenFOAM als auch die mit StarCCM+ ermittelten Vertikalgeschwindigkeiten v_z der fluidisierten Glaspartikel dargestellt.

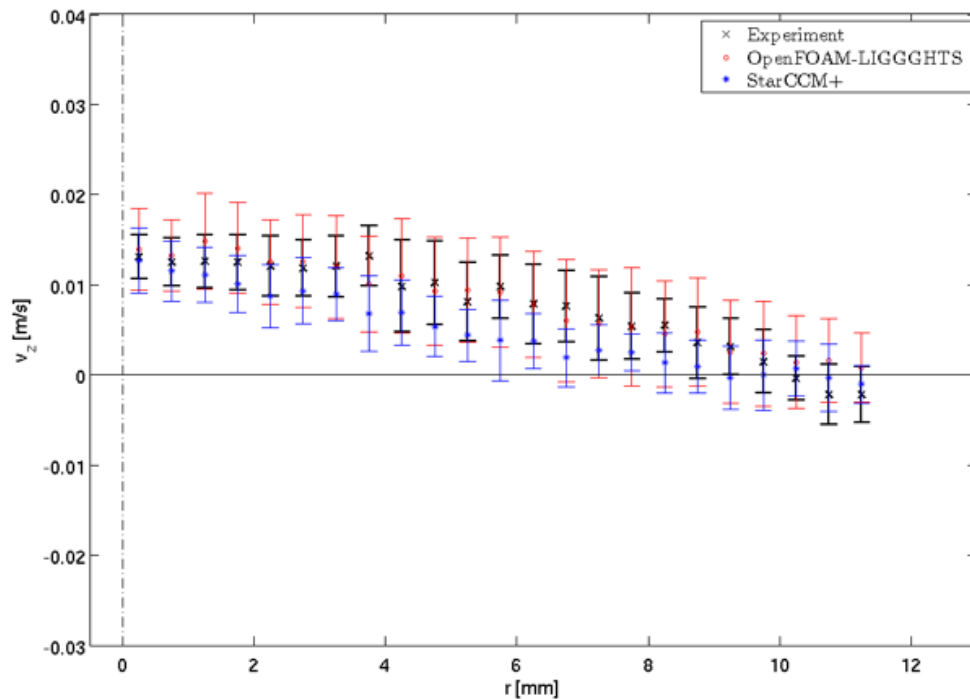


Abb. 4.17 – Vergleich der gemittelten Vertikalgeschwindigkeit v_z von fluidisierten Glaspartikeln als Funktion ihrer radialen Position im Versuchskristallisator - Experiment (schwarze Kreuze), CFD-DEM-Simulation mittels OpenFOAM (rote Kreise) und CFD-DEM Simulation mittels StarCCM+ (blaue Sterne); die Fehlerbalken zeigen die Standardabweichung um den Mittelwert.

Qualitativ ist die Übereinstimmung auch bei den Simulationsergebnissen von StarCCM+ gut. Quantitativ werden die Geschwindigkeiten in mittleren Bereich unterschätzt, dafür stimmen sie in Wandnähe eher mit dem Experiment überein.

Der Vergleich zeigt, dass die Partikelgeschwindigkeiten von beiden Softwares nicht identisch vorhergesagt werden. Ein Grund dafür könnte sein, dass unterschiedliche Widerstandmodelle bei den Simulationen verwendet werden. Bei der Simulation

mittels OpenFOAM wird das Widerstandsmodell von Di Felice verwendet, weil die experimentell bestimmten Sinkgeschwindigkeiten durch das Modell von Di Felice am besten vorhergesagt werden konnten, während bei der Simulation mittels StarCCM+ das Widerstandsmodell von Schiller und Naumann verwendet wird (Abschnitt 2.2.4). Die Unterschiede sind für dieses komplexe Problem insgesamt klein. Da eine Open-Source-Lösung angestrebt wird, werden alle folgenden Ergebnisse mit der Software CFDEMcoupling errechnet.

4.5 Kalibrierung der DEM-Parameter

Bestimmte für die DEM-Simulationen relevante Parameter, wie z. B. die Coulombsche Reibung (auch Partikelreibung genannt) und die Rollreibung können nicht direkt durch Messungen erhalten werden. Diese Parameter können nur durch Kalibrierungssimulationen erhalten werden. Dabei werden die relevanten Parameter solange systematisch variiert, bis das Verhalten des Schüttgutes dem simulierten Verhalten des Schüttgutes entspricht.

Bei den Kalibrierungssimulationen wird die *Coarse graining*-Methode angewandt, wie sie von [31] und [66] beschrieben wurde. Im Abschnitt 3.9.3 ist gezeigt worden, dass *Coarse graining*-Methoden bei den zweiphasigen Simulationen des Kristallisators nicht praktikabel sind, weil äußerst umfassende Validierungsversuche notwendig wären. Im Gegensatz dazu ist die hier verwendete *Coarse graining*-Methode für einphasige Simulationen schon sehr gut in der Praxis etabliert [67], [68]. Bei dem hier angewandten Ansatz werden Partikel vergrößert, um die Masse und die Eigenschaften vieler Partikel mit einem einzigen Partikel zu simulieren. Die Reibung zwischen der Wand und den Partikeln wird durch eine direkte Messung erhalten.

4.5.1 Charakterisierung des Feststoffes

Der eigentliche Prozess beinhaltet Asparaginmonohydrat-Kristalle im Kristallisator. Das Kristallschüttgut kann als relativ raue Oberfläche mit harten und scharfen Kanten beschrieben werden. Aufgrund dieser Kanten wird erwartet, dass der Reibungswiderstand zwischen den Partikeln hoch ist. Die scharfen Kanten der Kristalle sind in der Abb. 3.10 (links) deutlich zu sehen.

In dieser Arbeit werden zwei in unterschiedlichen Messungen bestimmte CSD des Produktes verwendet. Die ältere Bestimmung der CSD (Messung 1) erfolgte mittels

Siebklassierung und ist durch 8 Klassen diskretisiert. Die Verteilung der Kristalle q_3 ist in der Abb. 4.18 dargestellt. Die Kristallgrößen liegen im Bereich von 50 bis 365 μm . Diese Verteilung wird für alle Simulationen in Setup 1 verwendet.

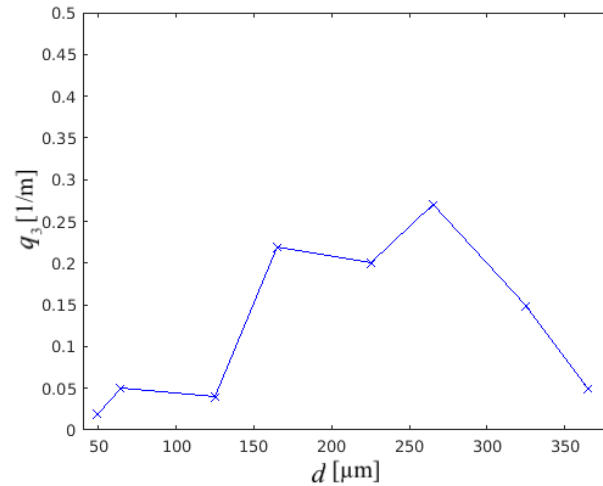


Abb. 4.18 – Gemessene CSD Funktion q_3 für die Asparaginmonohydrat-Kristalle (Messung 1) von Dipl.-Ing Antje Bartz.

Für alle Simulationen, die mit der CFD-DEM-basierten Geometrieoptimierung zusammenhängen, wird die neuere (und etwas breitere) CSD q_3 der Asparaginmonohydrat-Kristalle verwendet (Messung 2). Diese wird ebenfalls mittels Siebklassierung bestimmt und ist in Abbildung 4.19 dargestellt. Die Kristallgrößen liegen im Bereich von 45 bis 450 μm und sind durch 9 Klassen diskretisiert.

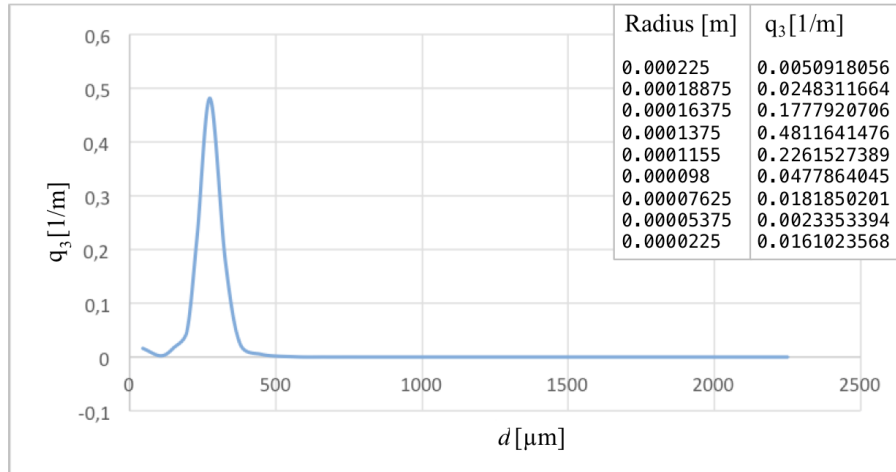


Abb. 4.19 – Gemessene CSD Funktion q_3 für die Asparaginmonohydrat-Kristalle (Messung 2) von M.Sc. Jonathan Gaensch.

Die Feststoffdichte der Asparaginmonohydratkristalle beträgt $1540 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$.

Der Restitutionskoeffizient (siehe Abschnitt 2.1) müsste für die verwendeten Partikel in Wasser bestimmt werden, was nur unter sehr hohem experimentellen Aufwand realisierbar wäre. Zudem ist kein großer Einfluss durch den Restitutionskoeffizienten durch den größeren Auftrieb in Wasser zu erwarten. Für die nicht-sphärischen Asparaginmonohydratkristalle wird ein sehr kleiner Wert von 0,2 angenommen. Die Poisson-Zahl ν hat ebenfalls keinen großen Einfluss bei den DEM Simulation. Bei der Anwendung des *Soft-sphere*-Ansatzes (Abschnitt 2.1) ist es eine weit verbreitete Praxis für das Elastizitätsmodul E und das Schubmodul G sehr kleine Werte anzunehmen, um die Berechnungszeit zu reduzieren. Die entsprechenden Werte sind in der Tab. 4.4 aufgeführt.

Tab. 4.4 – Werte für Restitutionskoeffizient, Poisson-Zahl, Elastizitätsmodul und Schubmodul.

Restitutionskoeffizient ν	0,2
Poisson-Zahl ν	0,3
Elastizitätsmodul E	$1 \cdot 10^7$ Pa
Schubmodul G	$2,6 \cdot 10^7$ Pa

4.5.2 Wandreibung

Der Wandreibungswert ist einer der Simulationsparameter, die durch direkte Messungen mit zwei separaten Methoden erhalten werden können. Die erste Messung wird durchgeführt, indem einfach die Neigung einer Ebene erhöht wird. Diese Methode bestimmt den Wert der Haftreibung, da nur der Wert der ersten Bewegung erfasst wird. Für die Simulation eines kontinuierlichen Schüttgutstroms ist die Gleitreibung wichtiger. Dieser Wert wird mit einer Jenike-Scherzelle gemessen [69] und beträgt in drei verschiedenen Messungen (mit nassem Material) 0,34523, 0,34261 und 0,34698, woraus sich ein mittlerer Wert von 0,34494 ergibt.

4.5.3 Böschungswinkel

Als einer der wichtigsten Tests für die Kalibrierung der Simulation ist der Böschungswinkel (engl.: *angle of repose*, Abk.: AOR) in der Abb. 4.20 dargestellt. Zur Bestimmung des AOR wird das Schüttgut in einen Zylinder (Durchmesser ≈ 100 mm, Volumen $\approx 1,5$ dm³) gefüllt, der dann mit einer definierten Geschwindigkeit von $8 \frac{\text{mm}}{\text{s}}$ nach oben bewegt wird. Der Böschungswinkel wird mittels Bildanalyse bestimmt und beträgt bei drei Messungen 35° , 35° und 36° , woraus sich ein durchschnittlicher Wert von $35,3^\circ$ ergibt.



Abb. 4.20 – Experiment zur Bestimmung des statischen Böschungswinkels von Asparaginmonohydrat.

Der Rollreibungsbeiwert μ_r muss aus Kalibrierungssimulationen ermittelt werden (wiederum diejenigen mit dem sich bewegenden Zylinder). Dafür werden die Parameter variiert bis das beobachtete Verhalten des Schüttgutes in der Simulation korrekt wiedergegeben wird. In der Abb. 4.21 sind die AOR-Werte aus Simulationen mit systematischer Variation der Partikelreibung und der Rollreibung dargestellt. Die Variation der Partikelreibung und der Rollreibung führt zu Konturlinien mit unterschiedlichen Reibwerten, aber demselben AOR. Die Vorgehensweise entspricht der von [31] vorgestellten Methode.

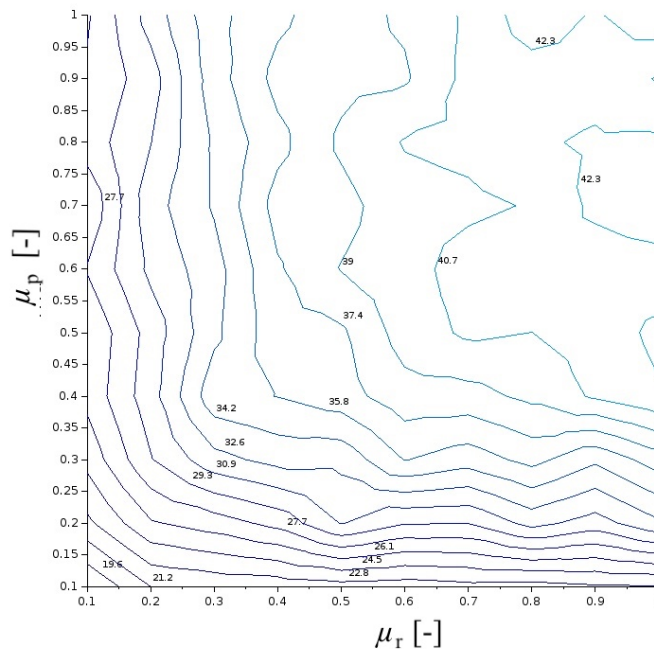


Abb. 4.21 – Böschungswinkelsimulationen des statischen Experiments für die DEM-Kalibrierung.

Der Zielwinkel von $35,3^\circ$ führt zu einer unendlichen Anzahl von Parameterkombinationen aus Partikelreibung und Rollreibung. Diese Parameter können anhand der entsprechenden Konturlinie identifiziert werden. Aus der Kornformanalyse in der Abb. 3.10 (links) ist ersichtlich, dass die Rollreibung aufgrund der sehr unregelmäßig geformten Partikel höher sein muss als die Coulombsche Reibung. Basierend auf diesen Informationen wird der Parametersatz in der Abb. 4.21 auf die untere Hälfte

des Diagramms reduziert. Um den korrekten Parametersatz zu identifizieren, ist ein zweiter Versuch erforderlich. Daher wird der Materialausflussprozess aus einem Trichter verwendet, um den dynamischen AOR zu messen. Das Experiment ist in der Abb. 4.22 gezeigt.

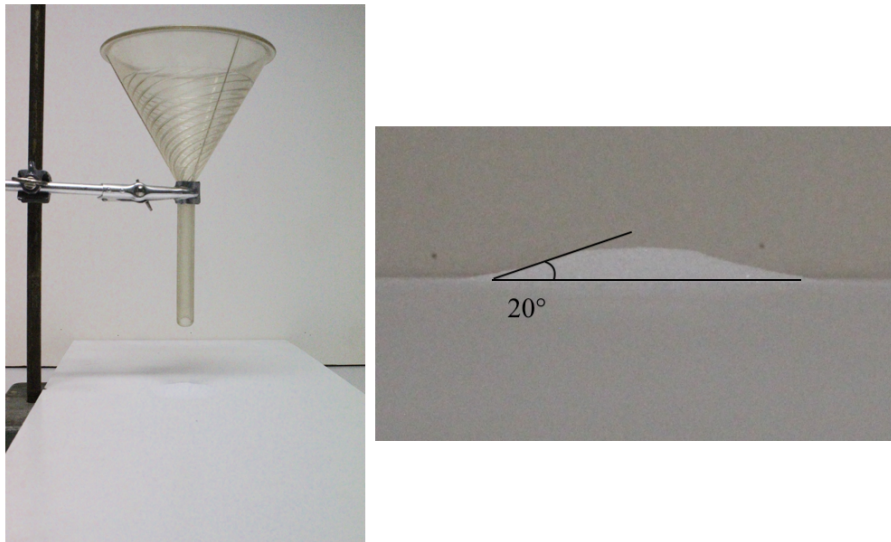


Abb. 4.22 – Versuchsaufbau für das Ausflussverhalten (links) und den daraus resultierenden Böschungswinkel (rechts) für 5 g Asparaginmonohydrat.

Der Trichter wird dabei 50 mm über dem Boden angeordnet und mit 5 g Asparaginmonohydrat gefüllt. Innerhalb von weniger als 3 Sekunden durchlief das gesamte Asparaginmonohydrat den Trichter, der den Materialfluss leitete. Die resultierenden AOR betragen 20° , 20° und 19° und der Durchschnitt $19,7^\circ$. Somit war der dynamische Winkel niedriger als der statische AOR. Die Simulation wird unter Verwendung eines Satzes von 100 Parameterkombinationen durchgeführt, was zu dem in der Abb. 4.23 gezeigten Diagramm führt.

Um die beste Kombination zu finden, die die Anforderungen beider Experimente erfüllt, wird der Schnittpunkt der Konturlinien für die experimentell ermittelten Böschungswinkel (statisch und dynamisch) von dem Diagramm 4.21 und dem Diagramm 4.23 betrachtet. Der Schnittpunkt ist in der Abb. 4.24 gezeigt.

Die Kalibrierungssimulationen führten zu einer Gleitreibung der Partikel μ_p von 0,425 und einer Rollreibung μ_r von 0,375. Das resultierende Ergebnis wird mit der Testmessung für den statischen AOR in der Abb. 4.25 verglichen.

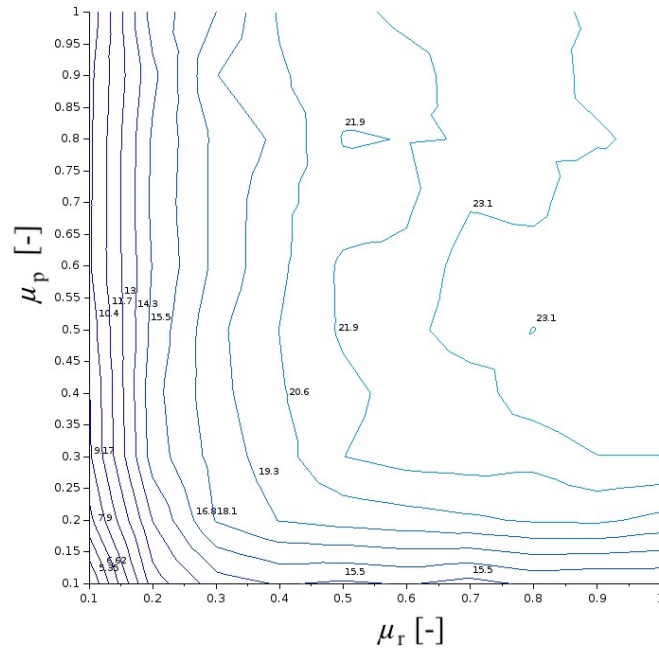


Abb. 4.23 – Böschungswinkelsimulationen aus dem dynamischen Experiment für die DEM-Kalibrierung.

In einer neueren erweiterten Studie zur Bestimmung der Partikelrollreibung und -gleitreibung wird der Böschungswinkel mittels einer Scherbox bestimmt [68]. Entsprechend dieser vorgeschlagenen Praxis wird eine Scherbox aus Glas mit den Abmaßen 5 cm x 5 cm x 2 cm mit Asparaginmonohydrat gefüllt und in drei Versuchen der resultierende statische AOR bestimmt (35° , 34° und 35°). Die Simulation mit den gleichen Randbedingungen wird unter Verwendung eines Satzes von 100 Parameterkombinationen durchgeführt.

Analog zu dem vorangegangenen Vergleich (Abb. 4.24) wird die Konturlinie in dem ermittelten Diagramm gekennzeichnet (Abb. 4.26), wobei ein Toleranzbereich von $\pm 1^\circ$ zugelassen wird, da die Konturlinien andernfalls keinen Schnittpunkt aufweisen. Im Diagramm überschneiden sich die Konturlinien an zwei Bereichen: $(\mu_p: 0,6; \mu_r: 0,325)$, $(\mu_p: 0,4; \mu_r: 0,325)$. Unter Berücksichtigung der vorangegangenen Untersuchungen (einschließlich Kornformanalyse) werden die Werte für die Partikelgleitreibung ($\mu_p = 0,425$) und die -rollreibung ($\mu_r = 0,375$) bestätigt. Das resultierende Ergebnis wird mit der Testmessung für den statischen AOR (Scherbox) in der Abb. 4.27 verglichen.

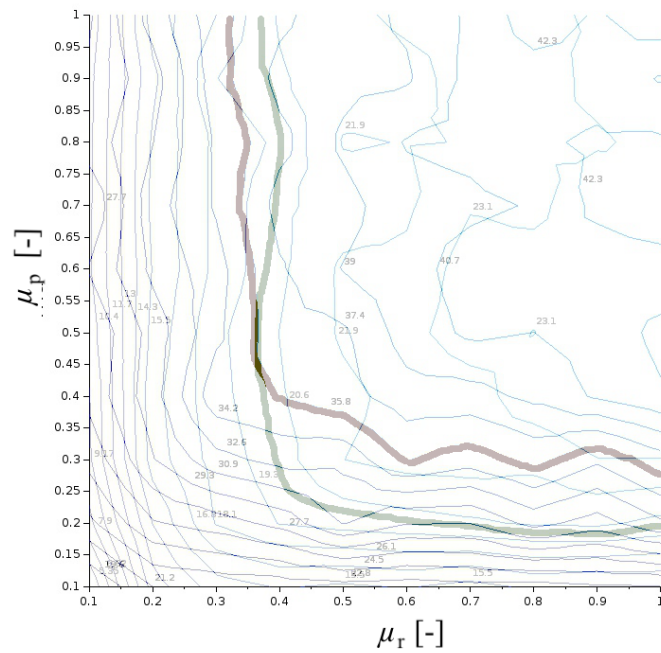


Abb. 4.24 – Schnittpunkt der Konturlinien für die experimentell ermittelten Böschungswinkel für den statischen (rot) und dynamischen AOR (grün).

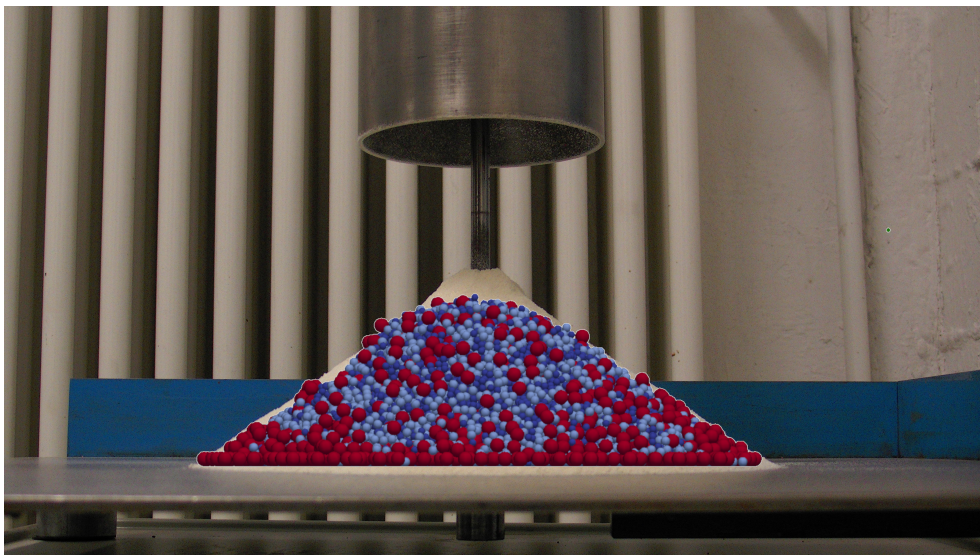


Abb. 4.25 – Vergleich von experimentell bestimmtem Böschungswinkel und DEM-Simulation.

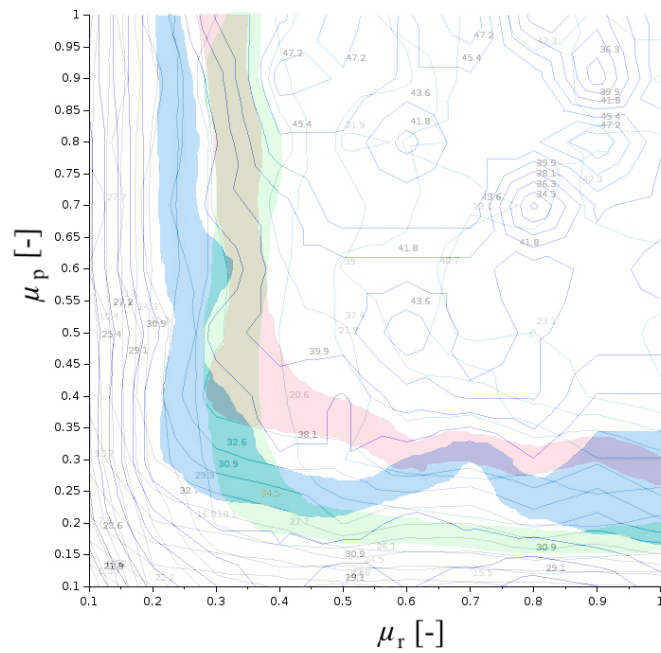


Abb. 4.26 – Schnittpunkt der Konturlinien für die experimentell ermittelten Böschungswinkel für den dynamischen AOR (grün) und statischen AOR (Zylinderversuch, rot und Scherbox, blau).

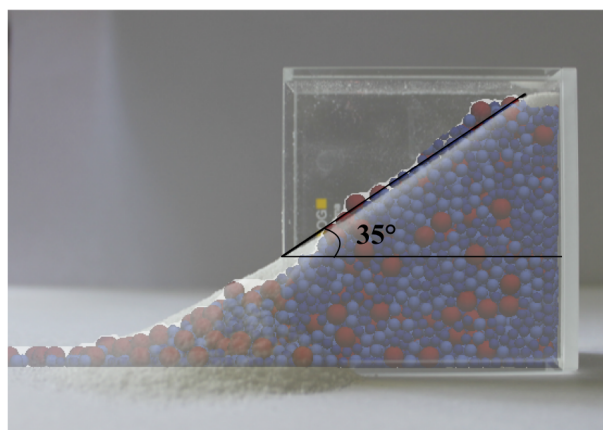


Abb. 4.27 – Vergleich von experimentell bestimmtem statischen Böschungswinkel (Scherbox) und DEM-Simulation.

Ergebnisse

5.1 Identifizierung und Analyse von hydrodynamischen Störstellen innerhalb des Kristallisators

Als Ausgangspunkt für die Identifizierung von hydrodynamischen Störstellen im Kristallisator bieten einphasige CFD-Simulationen nützliche Informationen, entsprechend der Bedingungen die herrschen, bevor die Kristallkeime injiziert werden. Die gesamte physikalische Simulation für die reine CFD-Simulation umfasst 180 s, was der Durchflusszeit von zwei Flüssigkeitsmassen durch den Kristallisator bei hohen Volumenströmen entspricht.

5.1.1 Produktabzugsstutzen

Die mittels CFD ermittelten Geschwindigkeiten (Magnitude) im gesamten Kristallisator sind in der Abb. 5.1(a) dargestellt. Die Abb. 5.1 (b) zeigt die mittlere vertikale Ebene, die die Produktabzugsstutzen schneidet, bei einer physikalischen Zeit von 180 s (Ende der Simulation). Wie erwartet werden aufgrund der reduzierten Durchmesser, die höchsten Geschwindigkeitsmagnituden am Kristallisatoreingang und -ausgang gefunden, während die niedrigsten Geschwindigkeitsmagnituden in der oberen Hälfte des Kristallisators gefunden werden, die auf der Ebene der Produktabzugsstutzen beginnt. Es ist in der Abb. 5.1 (b) erkennbar, dass die Produktabzugsstutzen lokal zu

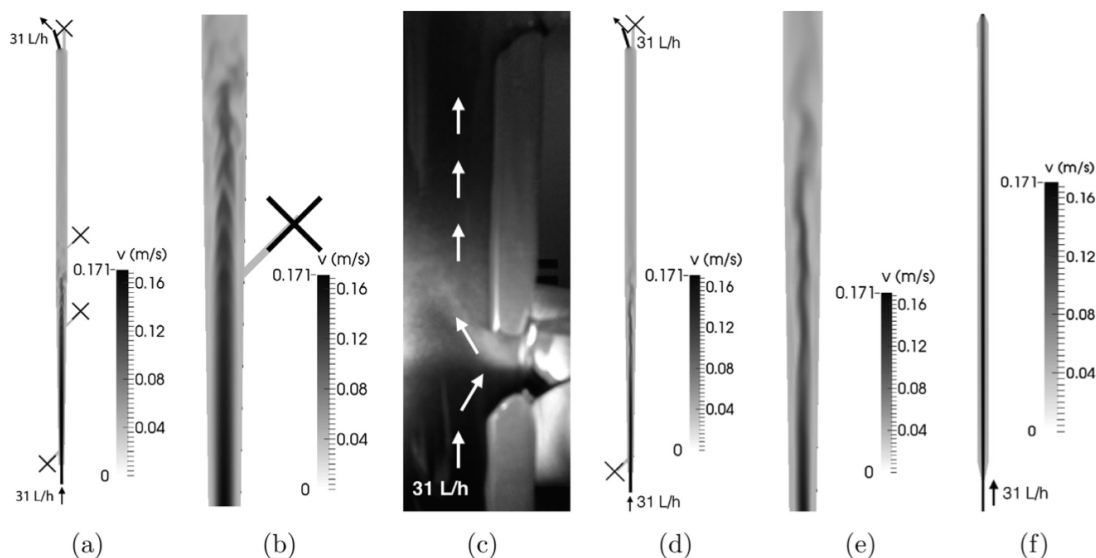


Abb. 5.1 – (a) - Geschwindigkeitsmagnituden in der zentralen Schnittebene des Kristallisators bei 180 s, (b) - Nahansicht der Geschwindigkeitsmagnituden im Kristallisator in mittlerer Höhe nahe der Produktabzugsstutzen, (c) - Nahansicht des Produktabzugsstutzens im Experiment mit Glaspartikeln als Tracer, (d) - Geschwindigkeitsmagnituden in der zentralen Ebene des Kristallisators mit geschlossenen Produktabzugsstutzen bei 180 s, (e) - Nahansicht des Geschwindigkeitsfeldes im Kristallisator mit geschlossenen Produktabzugsstutzen auf mittlerer Höhe nahe der Produktabzugsstutzen, (f) - Geschwindigkeitsmagnituden in der zentralen Ebene des Testkristallisators (Setup 2) bei 180 s.

einer Strömungsverzerrung führen, und zwar stromabwärts von der Verbindung mit dem zentralen Kristallisator. Großskalige Strukturen erscheinen dort und führen zu instationären Strömungseigenschaften, bevor sie dissipiert werden und die Strömung weiter nach oben zu einem vollständig laminaren Strömungszustand zurückkehrt. Diese inhomogene Strömung ist ein unerwünschtes Merkmal für den betrachteten Prozess.

Um dieses Problem zu untersuchen, werden Experimente im Kristallisator in realen Größendimensionen (Setup 1) mit farbigen, monodispersen Glaspartikeln durchgeführt, die eine direkte Visualisierung der Bahnlinien erlauben. Die Glaspartikel werden durch einen Produktabzugsstutzen mit einer Spritze injiziert. Die Abb. 5.1 (c) zeigt eine Nahansicht des Produktauslasstutzens bei einem solchen Experiment. Selbst wenn die Produktabzugsstutzen während des Prozesses geschlossen sind, wirken sie immer noch als eine plötzliche Zunahme des Strömungsquerschnitts auf dieser Höhe, was zu einer Verringerung der Strömungsgeschwindigkeit führt und

Rezirkulationszonen hinter den Düsen induzieren. Dies führt zu einer signifikanten Änderung in der Wirbelschichthöhe. Nachdem dieses Problem identifiziert worden ist, ist ein neues Dichtungssystem für die Produktabzugsstutzen entwickelt worden, sodass die lokale Strömung völlig ungestört bleibt, wenn die Produktabzugsstutzen geschlossen sind.

Ein perfektes Abdichtungssystem würde die Düsen für das geschlossene Gehäuse bündig abschließen und jegliche Querschnittsänderung ausschließen. Um dies zu untersuchen, wird eine Simulation in einer Geometrie mit vollständig geschlossenem Produktabzugsstutzen (äquivalent zu einem Fall ohne Produktabzugsstutzen) durchgeführt, die in der Abb. 5.1 (d) und (e) dargestellt ist. Wenn man die Abbildungen (e) und (b) miteinander vergleicht, kann eine Abnahme der Geschwindigkeit nahe der Wand erkannt werden. Zudem ist das Strömungsprofil in e) mehr parabolisch und sieht eher wie ein laminares Profil im Vergleich zu b) aus. Dennoch erscheinen wieder Wirbelstrukturen (Oszillationen) im zentralen Teil des Kristallisators. Eine Ursache könnte die Verbindung zum unteren Auslass zur Zerkleinerung sein, da in der ansonsten äquivalenten Geometrie von Setup 2 die Strömung stabil laminar ist (Abb. 5.1 (f)). Diese erste Studie zeigt, wie CFD geholfen hat im Wirbelschichtkristallisor auftretende Probleme zu identifizieren und zu lösen.

5.1.2 Konischer Teil im unteren Bereich des Kristallisators

Ein weiterer sehr kritischer Bereich im Kristallisor ist der untere konische Bereich, in dem der zentrale Kristallisor durch den Anschlussstutzen, der zur Zerkleinerung führt, verbunden ist. Dieser liegt in unmittelbarer Nähe zum Einlass (Abb. 5.2) wo ein Volumenstrom von $31 \frac{L}{h}$ in den zentralen Kristallisor injiziert wird. Zugleich wird davon ausgegangen, dass während des normalen Betriebs ein Volumenstrom von $22 \frac{L}{h}$ (mehr als 70 % der injizierten Menge) den Kristallisor zur Zerkleinerung entweicht. Dies führt zu einem extrem hohen Geschwindigkeitsgradienten im unteren Teil des Kristallisators, da sich große Durchflussmengen in nahezu entgegengesetzter Richtungen in dieser Region bewegen. Dies ist in der Abb. 5.2 (links) dargestellt, die die Magnitude des Geschwindigkeitsfeldes im unteren Teil des Kristallisators zeigt. Ein großer Teil der injizierten Lösung wird abgelenkt und entweicht dem Kristallisor sofort in Richtung der Zerkleinerung, ohne am Prozess teilzunehmen (short-cut), was starke Auswirkungen auf die Prozesseffizienz hat.

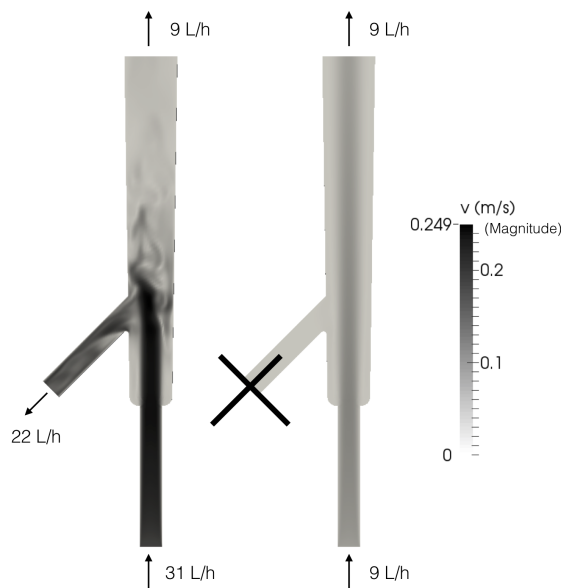


Abb. 5.2 – Momentangeschwindigkeitsaufnahme zu einer Zeit von 180 s im unteren, konischen Teil des Kristallisators mit Kristallisatoreinlass und Anschlussstutzen, der den zentralen Kristallisator mit der Zerkleinerung verbindet, links - offener Anschlussstutzen, rechts - geschlossener Anschlussstutzen.

Abb. 5.2 (links) zeigt, dass große Wirbelstrukturen in der Nähe des Anschlussstutzen zur Zerkleinerung auftreten, wenn der Betrieb des Systems wie geplant durchgeführt wird. Dies bedeutet, dass instationäre Strömungsstörungen im unteren Teil des Kristallisators zu erwarten sind. Um diesen Punkt zu untersuchen, wird in einer zweiten Simulation angenommen, dass der Anschlussstutzen, der zur Zerkleinerung führt, nun geschlossen ist und nur die Differenz zwischen den beiden Volumenströmen injiziert wird: $9 \frac{\text{L}}{\text{h}}$ ($= 31 \frac{\text{L}}{\text{h}} - 22 \frac{\text{L}}{\text{h}}$). Wie erwartet, erhält man unter diesen Bedingungen eine äußerst regelmäßige, laminare Strömung, was zeigt, dass für die beobachteten Strömungsinstabilitäten die Anschlussstutzen zur Zerkleinerung verantwortlich sind. Um die beobachtete Differenz zu quantifizieren, sind die Geschwindigkeiten entlang der vertikalen Mittelachse des Kristallisators im Vergleich in der Abb. 5.3 dargestellt.

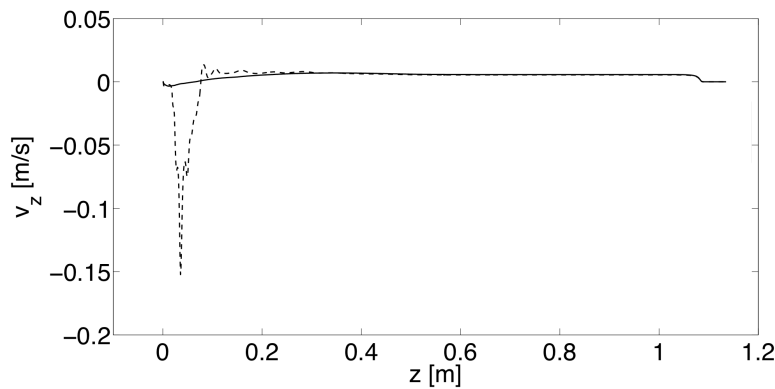


Abb. 5.3 – Momentangeschwindigkeitsaufnahme entlang der vertikalen Mittellinie innerhalb des Kristallisators, (gestrichelte Linie) - offener Anschlussstutzen, (durchgezogene Linie) - geschlossener Anschlussstutzen.

Offensichtlich unterscheiden sich die beiden Kurven deutlich im unteren, konischen Teil des Kristallisators. Mit einer aktivierten Zerkleinerung treten signifikant höhere Geschwindigkeitsspitzen und Gradienten bis zu einer Höhe von 0,3 m auf, mit viel komplexeren hydrodynamischen Eigenschaften, wie sie durch die oszillierende Kurve dargestellt ist. Im oberen Bereich werden die zwei Kurven jedoch identisch. Dies zeigt, dass bei den reduzierten Modellen der AG Mangold [45] das Vorhandensein des Anschlussstutzens zur Zerkleinerung vernachlässigt werden kann, wenn sich die Studien auf den zentralen Teil des Kristallisators konzentrieren, wo die Produktextraktion stattfindet. Wenn hingegen versucht wird, die Strömungsverhältnisse in dem unteren Teil des Kristallisators zu verbessern, müssen mindestens die unteren 0,3 m des zentralen Kristallisators in vollem Umfang berücksichtigt werden.

5.2 Fluidisierung von Asparaginkristallen im Kristallisator

5.2.1 Vertikale Geschwindigkeiten der Kristalle

Die Abb. 5.4 zeigt die vertikale Kristallgeschwindigkeit v_z in Abhängigkeit von der vertikalen Position im Kristallisator z und dem Kristalldurchmesser d bei einer physikalischen Zeit von 40 s. Bei dieser Simulation ist die Zerkleinerung aktiviert und der Produktabzugstutzen geschlossen. Über die gesamte Simulationszeit werden 100 000 Kristalle bei einer Höhe von $h = 0,2$ m - 0,3 m kontinuierlich eingefügt.

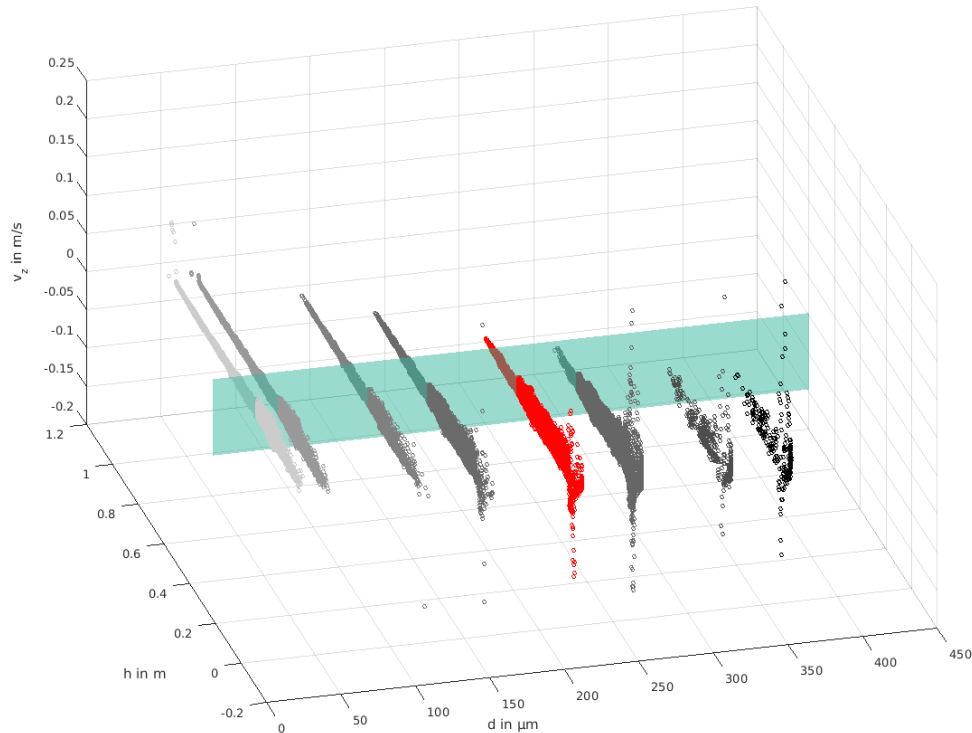


Abb. 5.4 – Vertikale Kristallgeschwindigkeit v_z in Abhängigkeit von der Höhe im Kristallisator z und dem Kristalldurchmesser d für acht Klassen: 50, 65, 125, 165, 225, 265, 325 und 365 μm , Momentaufnahme bei einer physikalischen Zeit von 40 s

Die grüne Ebene stellt die Position des Produktabzugsstutzens bei einer Höhe von $z = 0,525$ m dar. Sieben der acht Partikelklassen sind in grau dargestellt (50, 65, 125, 165, 265, 325 und 365 μm). Die Klasse mit dem Durchmesser 225 μm ist rot dargestellt, da es sich hierbei um die Kristallfraktion mit dem gewünschten Zieldurchmesser handelt.

Eine zweidimensionale Darstellung in der die vertikale Geschwindigkeit über die Höhe im Kristallisator aufgetragen ist zeigt die Abb. 5.5. Es ist zu erkennen, dass die Partikel mit geringerem Durchmesser (50 und 65 μm) eher im oberen Teil der Kristallisators fluidisiert werden. Die Geschwindigkeiten liegen in einem engen Wertebereich und weisen sowohl positive als auch negative Werte auf, was durch das Strömungsprofil zu erklären ist. Im mittleren Teil des Kristallisators werden die Kristalle eher nach oben befördert und in Wandnähe sinken sie eher nach unten (siehe Abschnitt 4.4). Bei den beiden kleinsten Durchmessern (50 und 65 μm) treten die höheren vertikalen Geschwindigkeiten bei der Höhe $h \leq 1$ m aufgrund des

5.2 Fluidisierung von Asparaginkristallen im Kristallisator

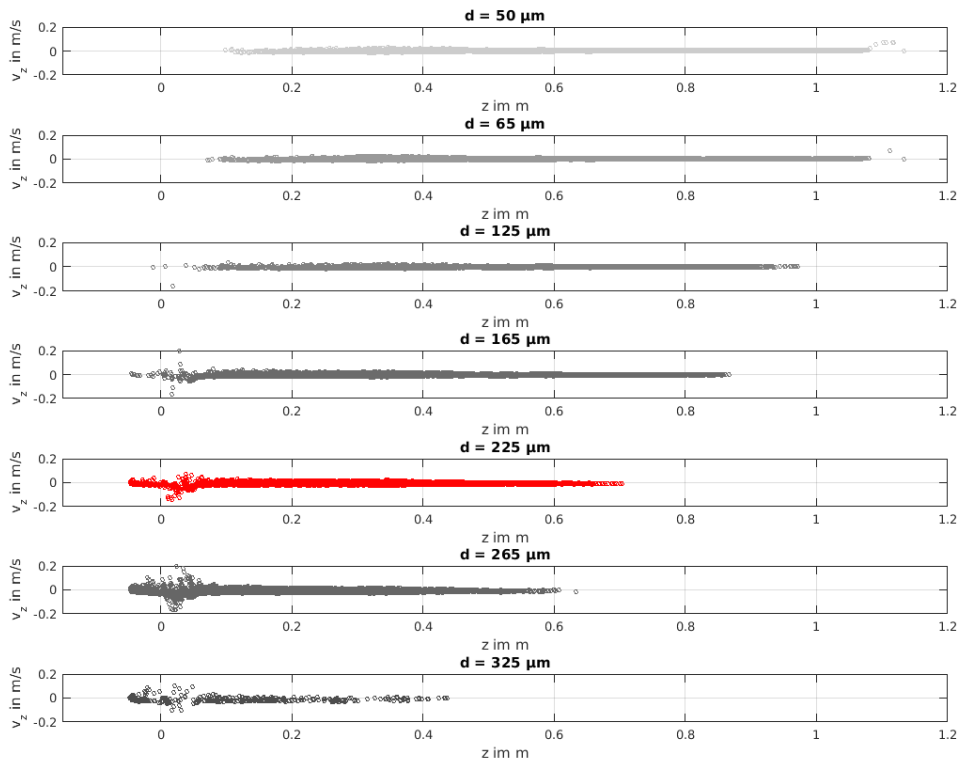


Abb. 5.5 – Vertikale Kristallgeschwindigkeit v_z in Abhängigkeit von der Höhe im Kristallisator z für acht Klassen: 50, 65, 125, 165, 225, 265 und 325 μm , Momentaufnahme bei einer physikalischen Zeit von 40 s

Auslasses im oberen Bereich des Kristallisators auf. Mit zunehmendem Durchmesser werden die Partikel eher im unteren Bereich des Kristallisators fluidisiert und weisen auch negative Geschwindigkeiten auf. Der breitere Wertebereich ist durch den Einfluss des Einlasses und der Zerkleinerung zu erklären was im Einklang mit den Ergebnissen im Abschnitt 5.1.2 ist. Anhand der Abb. 5.4 kann man ableiten, dass nur Partikel mit geringem Durchmesser den Kristallisator am oberen Auslass verlassen und nur Partikel mit sehr großem Durchmesser im unteren Bereich des Kristallisators verweilen bzw. am Auslass zur Zerkleinerung ausgetragen werden. Dies ist positiv hinsichtlich des Klassiereffektes im Kristallisator zu beurteilen. Allerdings wird durch die Darstellung auch deutlich, dass bei einem Produktabzug (auf Höhe des Abzugsstutzens) zusätzlich zu Partikeln mit gewünschtem Durchmesser ($d = 225 \mu\text{m}$) auch viele andere Partikelgrößen vorhanden sind. Hier besteht also noch Optimierungsbedarf hinsichtlich der Klassierung im Kristallisator.

5.2.2 Relativgeschwindigkeiten der Kristalle

Die Abbildungen 5.6 und 5.7 stellen die vertikale Relativgeschwindigkeit $v_{z,\text{rel}} = v_{z,\text{fluid}} - v_{z,\text{crystal}}$ der fluidisierten Asparaginkristalle in Abhängigkeit von ihrer radialen Position in dem Kristallisator R dar, und zwar bei einem Betrieb mit einer aktivierten Zerkleinerung bzw. einer nicht aktivierten Zerkleinerung. Die Rela-

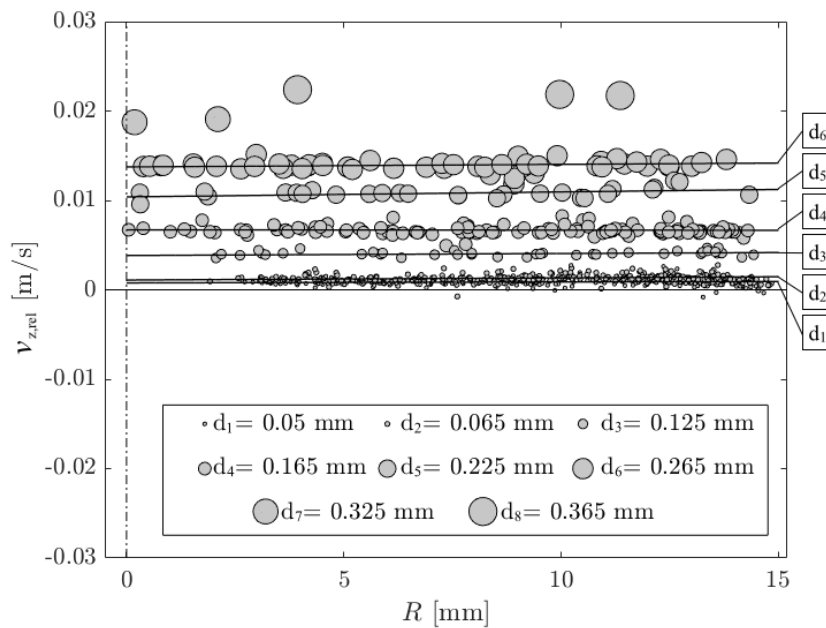


Abb. 5.6 – Vertikale Relativgeschwindigkeit fluidisierter Asparaginkristalle $v_{z,\text{rel}}$ in Abhängigkeit von ihrer radialen Position im Kristallisator R bei nicht aktivierter Zerkleinerung auf Höhe der Schnittebene des Produktabzugsstutzens ($z = 0,525$ m); die Größe der Marker der Kristalle ist quadratisch proportional zu ihrem Durchmesser. Die durchgezogenen Linien zeigen die linearen Fit-Kurven für Partikel von 50, 65, 125, 165, 225 und 265 μm (von der unteren Zeile bis zur oberen Zeile). Da es sehr wenige Partikel der Größe 325 μm und 365 μm gibt, sind diese nicht in die Analyse einbezogen.

tivgeschwindigkeit der Kristalle ist eine der wichtigsten physikalischen Größen für den Prozess, da das Kristallwachstum davon direkt beeinflusst wird [3, 4]. Die Relativgeschwindigkeiten der Kristalle als Funktion ihrer radialen Position im Kristallisator sind in den Abbildungen 5.6 und 5.7 auf Höhe des Produktabzugsstutzens ($z = 0,525$ m) dargestellt. Die Größe eines jeden Markers ist hierbei proportional zum Quadrat des Durchmessers eines Partikels. Diese Ergebnisse werden bei einer

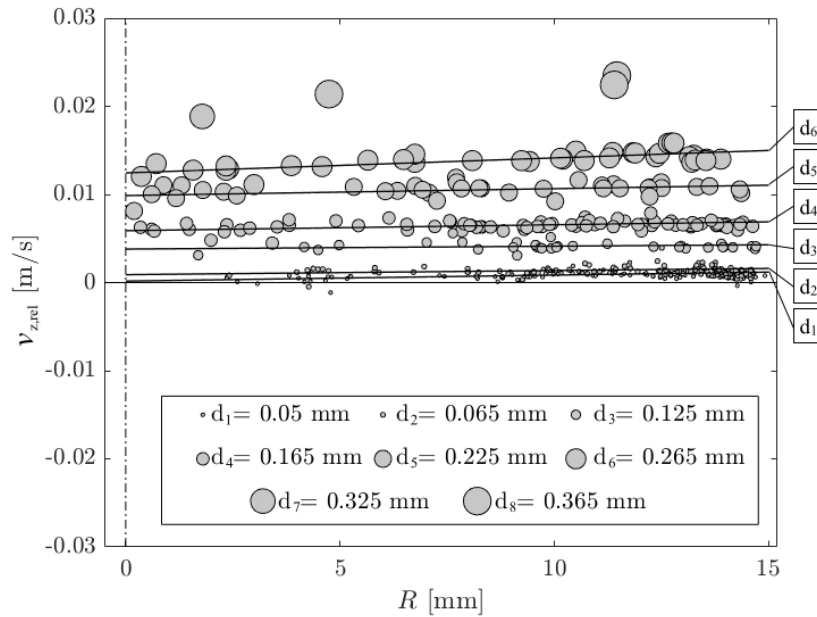


Abb. 5.7 – Vertikale Relativgeschwindigkeit $v_{z,\text{rel}}$ fluidisierter Asparaginkristalle in Abhängigkeit von ihrer radialen Position im Kristallisator bei aktivierter Zerkleinerung auf Höhe der Schnittebene des Produktabzugsstutzens ($z = 0,525$ m); die Größe der Marker der Kristalle ist quadratisch proportional zu ihrem Durchmesser. Die durchgezogenen Linien zeigen die linearen Fit-Kurven für Partikel von 50, 65, 125, 165, 225 und 265 μm (von der unteren Zeile bis zur oberen Zeile). Da es sehr wenige Partikel der Größe 325 μm und 365 μm gibt, sind diese nicht in die Analyse einbezogen.

physikalischen Zeit von 15 s aufgetragen. Die durchgezogenen Linien zeigen die linearen Fit-Kurven für Partikel mit $d = 50, 65, 125, 165, 225$ und 265 μm (von der unteren Linie bis zur oberen Linie). Da es sehr wenige Partikel der Größe 325 μm und 365 μm gibt, sind diese nicht in die Analyse einbezogen.

Die meisten großen Kristalle (über 265 μm) sinken in beiden Fällen nach unten und nur wenige große Kristalle erscheinen auf dieser Ebene nach 10 s. Im Gegensatz dazu sind Kristalle unterhalb dieser kritischen Größe fluidisiert und zeigen daher charakteristische vertikale Relativgeschwindigkeiten als Funktion des Kristalldurchmessers. Die größten Kristalle zeigen die höchste vertikale Relativgeschwindigkeit. Diese Relativgeschwindigkeit nimmt mit abnehmendem Durchmesser ab. So können Kristallfraktionen mit identischem Kristalldurchmesser durch die Relativgeschwindigkeit identifiziert werden, unter der Bedingung, dass die Partikel sphärisch sind und die Fluidgeschwindigkeit genau bekannt ist. Zudem wird beobachtet, dass die vertikale Relativgeschwindigkeit v_z der Kristalle an dieser Position durch das Öffnen oder

Schließen des Zugangs zur Zerkleinerung nicht merklich beeinflusst wird, wodurch die Abb. 5.3 bestätigt wird.

Die entsprechenden Geschwindigkeits- und Druckfelder für den Fall einer aktivierten Zerkleinerung sowie einer nicht aktivierten Zerkleinerung in Anwesenheit von 100 000 Kristallen sind in der Abb. 5.8 und 5.9 dargestellt. Wie erwartet sind

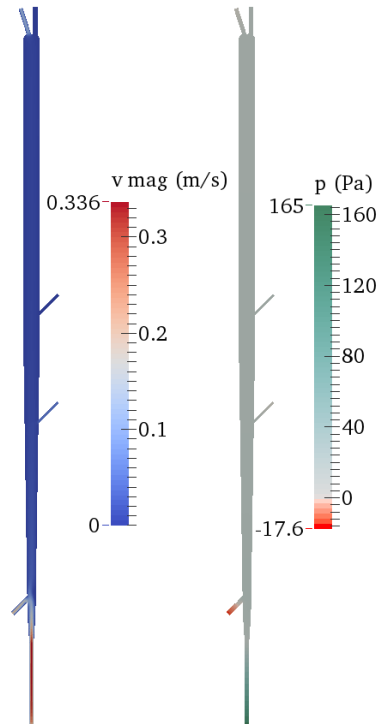


Abb. 5.8 – Geschwindigkeitsmagnituden und Druckfeld in Anwesenheit von Kristallen für den Fall einer aktivierten Zerkleinerung.

die maximalen Geschwindigkeitsmagnituden im Fall einer aktivierten Zerkleinerung größer ($v_{\text{mag,max}} = 0,336 \frac{\text{m}}{\text{s}}$) als bei der nicht aktivierten Zerkleinerung ($v_{\text{mag,max}} = 0,0998 \frac{\text{m}}{\text{s}}$). Allerdings sind die Geschwindigkeitsmagnituden im oberen Kristallisatorbereich gleich (wie im Fall ohne Kristalle, siehe Abschnitt 5.1.2). Die Druckfelder unterscheiden sich insofern, dass die Maxima und Druckdifferenzen unterschiedlich sind. Zudem entsteht im Fall der aktivierten Zerkleinerung ein Unterdruck und zwar direkt am Auslassstutzen zur Zerkleinerung.

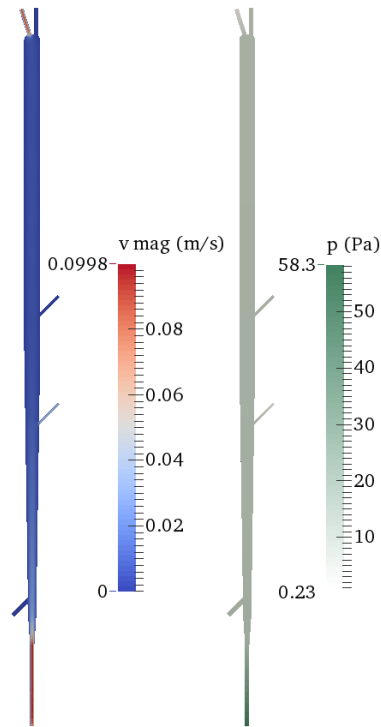


Abb. 5.9 – Geschwindigkeitsmagnituden und Druckfeld in Anwesenheit von Kristallen für den Fall einer nicht aktivierten Zerkleinerung.

5.2.3 Zeitliche Entwicklung der CSD

Ein weiterer wichtiger Punkt ist es abzuklären, ab welchem Zeitpunkt die CSD auf Höhe des Abzugsstutzens annähernd konstant bleibt. Dazu werden die Kristalle in der Nähe des Kristallisatoreinlasses bei einer Höhe von $h = 0,15 - 0,2$ m initialisiert und über einen Zeitraum von 180 s fluidisiert. Zum Zeitpunkt $t = 0$ s befinden sich auf Höhe des Produktauslasses demzufolge noch keine Partikel. Im Abstand von 30 s werden die Verteilungen bestimmt und sind in der Abb. 5.10 dargestellt.

Man erkennt, dass zum Zeitpunkt $t = 30$ s noch sehr wenige Kristalle mit großem Durchmesser in Produktauslassnähe sind (rote Kreuze). Nach 60 s befinden sich wesentlich mehr größere Kristalle in Produktauslassnähe (magenta Kreuze). Besonders der Anteil an Kristallen mit einem Durchmesser von $d = 166 \mu\text{m}$ ist angestiegen. Im weiteren zeitlichen Verlauf schwanken die Verläufe etwas, allerdings sind keine wesentlichen Veränderungen zu beobachten. Die Schwankungen der CSD lassen sich darauf zurückführen, dass es sich um Momentaufnahmen handelt, bei denen etwa 200 Partikel berücksichtigt werden. Um eine aussagekräftigere Verteilung zu erhalten, wird diese bei den weiterführenden Optimierungssimulationen über sechs Zeitpunkte gemittelt.

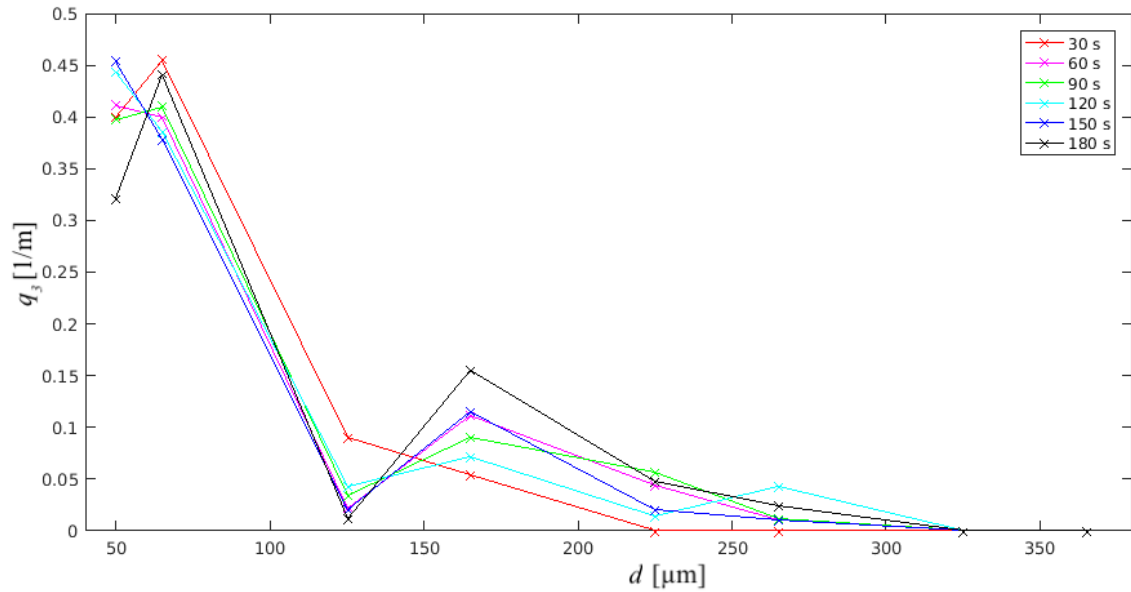


Abb. 5.10 – Zeitliche Entwicklung der CSD auf Höhe des Produktabzugs.

Insbesondere die CSD bei $t = 150$ s ist sehr ähnlich zu der CSD bei $t = 60$ s. Eine Gesamtsimulationszeit von $t_{\text{ges}} = 60$ s sollte demzufolge ausreichen, um eine relativ konstante CSD am Produktauslass zu erreichen, unter der Voraussetzung einer konstanten Initialisierung der Kristalle am Einlass und ohne Berücksichtigung von Wachstum. Über einen längeren Zeitraum betrachtet, ist es möglich, dass noch mehr Partikel in der Nähe des Produktauslasses angehäuft werden, weil sie in Schwebelage gehalten werden. Allerdings würden noch längere Simulationen die realisierbare Berechnungszeit bei den Optimierungssimulationen übersteigen.

5.2.4 Simulationen bei variiertem Suspensionsdichte

Als klassifizierendes Maß für den tatsächlich vorliegenden Flüssigkeitsraum im Kristallisator dient die Porosität α (auch Flüssigkeitsvolumenanteil oder Lückenvolumenanteil, engl.: voidage fraction). Sie ist eine dimensionslose Messgröße und stellt das Verhältnis von Flüssigkeitsvolumen zu Gesamtvolumen eines Stoffes oder Stoffgemisches dar. Die mittlere Porosität im Kristallisator berechnet sich demnach nach folgender Formel:

$$\alpha = \frac{V_{\text{Krist}} - V_{\text{Feststoff}}}{V_{\text{Kristallisator}}}$$

Fluidisiert man 100 000 Kristalle, die einen Durchmesser $d = 150 \mu\text{m}$ haben, würde

sich der folgende Flüssigkeitsvolumenanteil ergeben:

$$\alpha = \frac{5,3 \cdot 10^{-4} \text{m}^3 - 1,8 \cdot 10^{-7} \text{m}^3}{5,3 \cdot 10^{-4} \text{m}^3} = 0,9997.$$

Laut [18] sollten Partikel-Partikel-Wechselwirkungen ab einem Flüssigkeitsvolumenanteil kleiner als 0,9996 berücksichtigt werden. Diese Bedingung ist hier global nicht ganz erfüllt, aber lokal schon, wenn man berücksichtigt, dass die Kristalle im Kristallisator nicht gleichverteilt sind und die lokalen Flüssigkeitsvolumenanteile teilweise höher liegen als der mittlere Flüssigkeitsvolumenanteil.

In der Abb. 5.11 ist der Flüssigkeitsvolumenanteil im Kristallisator (Ausschnitt der vertikalen zentralen Schnittebene auf Höhe des Produktabzugsstutzens, $z = 0,525$ m) dargestellt, bei nicht aktivierter bzw. aktivierter Zerkleinerung.

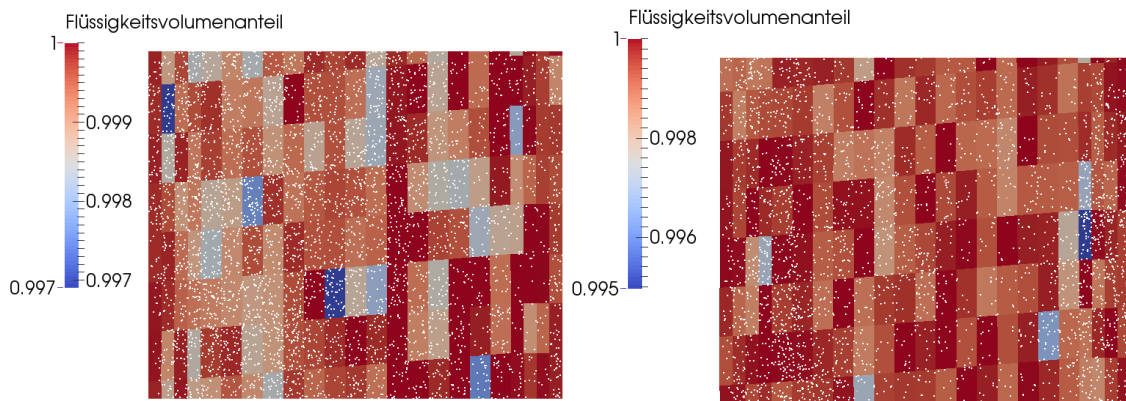


Abb. 5.11 – Flüssigkeitsvolumenanteil im Kristallisator, Ausschnitt der vertikalen zentralen Schnittebene auf Höhe des Produktabzugsstutzens ($z = 0,525$ m) mit Darstellung fluidisierter Asparaginkristalle (weiße Punkte). Momentaufnahme bei einer physikalischen Zeit von 40 s, links - bei aktivierter Zerkleinerung, rechts - bei nicht aktivierter Zerkleinerung.

Die weißen Punkte stellen die Asparaginkristalle dar. Dabei wird das Volumen jedes Partikels auf die Zelle veranschlagt, in der sich das Zentrum des Partikels befindet (siehe Abschnitt 2.3). Die Werte liegen im Bereich zwischen 0,997 (für den Fall der nicht aktivierten Zerkleinerung) bzw. 0,995 (für den Fall der aktiven Zerkleinerung) und 1 (keine Anwesenheit von Partikeln in der jeweiligen Gitterzelle). Die Abweichungen zum berechneten mittleren Flüssigkeitsvolumenanteil ergeben sich

daraus, dass der lokale Flüssigkeitsvolumenanteil im zentralen Teil des Kristallisators höher ist als im oberen Bereich des Kristallisators. Zu beachten ist außerdem, dass es sich bei den Darstellungen um Momentaufnahmen bei einem Zeitpunkt von 40 s handelt und sich den Flüssigkeitsvolumenanteil an jeder Position des Kristallisators, durch die Partikelbewegung bedingt, ständig ändert. Pro Sekunde erfolgen in dieser Simulation etwa 2000 Partikelkontakte.

Mit steigender Suspensionsdichte erhöht sich nicht nur die Anzahl der Kollisionen zwischen den Partikeln, sondern, laut der Kontinuitätsgleichung, auch die Geschwindigkeit der Partikel. Hält man in der Kontinuitätsgleichung ($Q = A \cdot v$) den Volumenstrom der Flüssigkeit konstant, sollte sich für die Geschwindigkeit ein höherer Wert ergeben, wenn die Querschnittsfläche verringert wird, durch eine höhere Anzahl von Partikeln. Demzufolge ergibt sich nicht nur für die Flüssigkeit eine höhere Geschwindigkeit, sondern auch für die Partikel.

Um die Abhängigkeit bei den CFD-DEM-Simulationen zu überprüfen, werden drei Simulationen mit unterschiedlichen Suspensionsdichten durchgeführt. Dazu wird das in Abschnitt 3.9.2 beschriebene Ausschnittsmodell verwendet, um den Rechenaufwand überschaubar zu halten.

Es werden jeweils 10 000, 50 000 und 100 000 Partikel eingefügt. Das Volumen des Ausschnitts (Summe aus Partikelvolumen und Flüssigkeitsvolumen) beträgt $4,482 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3$. Mit dem jeweiligen Feststoffvolumen ergeben sich die entsprechenden Lückenvolumen und Porositäten, die in der Tab. 5.1 zusammengestellt sind.

Tab. 5.1 – Feststoffvolumen, Lückenvolumen und Porosität bei Simulationen mit unterschiedlicher Partikelanzahl

Partikelanzahl [-]	10 000	50 000	100 000
$V_{\text{fest}} [\text{m}^3]$	$2,236 \cdot 10^{-8}$	$1,102 \cdot 10^{-7}$	$2,198 \cdot 10^{-7}$
$V_f [\text{m}^3]$	$4,460 \cdot 10^{-6}$	$4,372 \cdot 10^{-6}$	$4,262 \cdot 10^{-6}$
$\alpha \left[\frac{\text{m}^3}{\text{m}^3}\right]$	0,9950	0,9754	0,9510

Im Kristallisator mit realen Abmaßen würde ein Flüssigkeitsvolumenanteil von 0,9510 einer Partikelanzahl von rund 11 800 000 entsprechen. Eine Simulation mit einer physikalischen Gesamtzeit von 30 s würde eine wochenlange Berechnungszeit in Anspruch nehmen. Die Abb. 5.12 zeigt die CFD-DEM-Simulation eines Ausschnitts in Produktabzugshöhe bei unterschiedlichen Suspensionsdichten zum Zeitpunkt

$t = 30$ s. Die Partikel sind dabei nach ihrem Durchmesser eingefärbt. Bei höheren

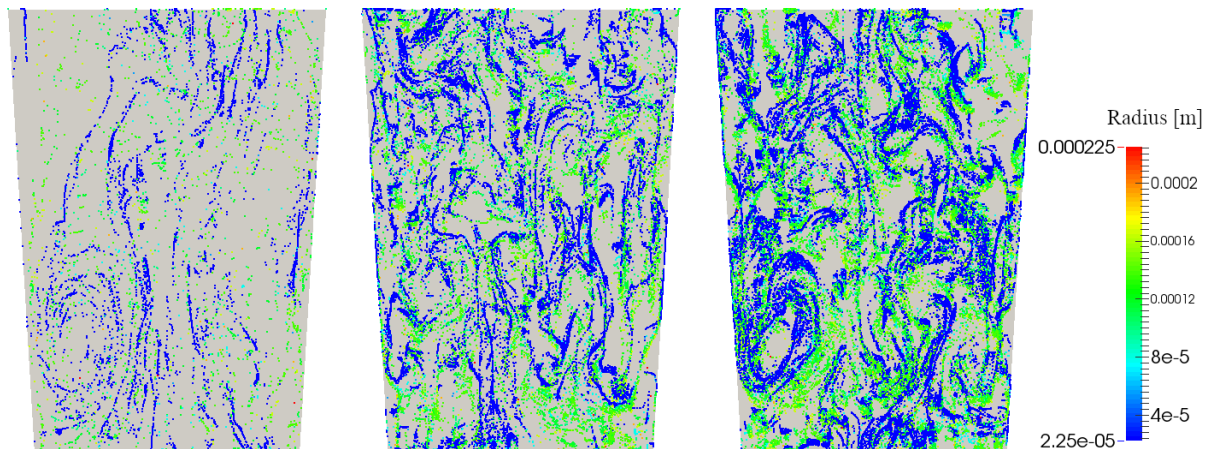


Abb. 5.12 – CFD-DEM-Simulation eines Ausschnitts in Produktabzugshöhe bei unterschiedlichen Suspensionsdichten zum Zeitpunkt $t = 30$ s, links - 10 000 Partikel, Mitte - 50 000 Partikel, rechts - 100 000 Partikel. Die Partikel sind nach ihrem Durchmesser eingefärbt.

Suspensionsdichten werden Partikelformationen sichtbar, die sich längs der Strömung ausrichten (mittleres Bild) oder Wirbel bilden sich aus (rechtes Bild), obwohl in diesem Fall kein Turbulenzmodell (da, $Re < 1000$) berücksichtigt wird.

Die Partikel sind in der Abb. 5.13 für unterschiedliche Suspensionsdichten nach der Geschwindigkeitsmagnitude eingefärbt. Bei hoher Suspensionsdichte (Abb. 5.13, rechts) weisen die Partikel auch in Wandnähe höhere Geschwindigkeiten auf. Die Partikelgeschwindigkeiten scheinen mit höheren Suspensionsdichten zu steigen. Quantifizieren lässt sich dies zum Beispiel mittels graphischer Darstellung der mittleren bzw. maximalen Partikelgeschwindigkeit über die Zeit (Abb. 5.14 und Abb. 5.15). Berücksichtigt werden dabei die Geschwindigkeiten aller Partikel im Simulationsgebiet. Die mittlere Partikelgeschwindigkeit v_{mittel} liegt in allen drei Fällen zu Beginn der Simulation bei etwa $0,009 \frac{\text{m}}{\text{s}}$. Dann steigt sie in allen drei Fällen (bei 10 000 Partikel auf etwa $0,016 \frac{\text{m}}{\text{s}}$, bei 50 000 Partikel auf etwa $0,0195 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ und bei 100 000 Partikel auf etwa $0,0235 \frac{\text{m}}{\text{s}}$) und schwankt über die gesamte Simulationszeit. Es ist deutlich erkennbar, dass die Geschwindigkeiten bei höheren Suspensionsdichten deutlich über den Geschwindigkeiten bei niedrigen Suspensionsdichten liegen. Das gleiche Phänomen ist zu beobachten, wenn man die Verläufe über die Zeit für die maximalen Partikelgeschwindigkeiten in der Abb. 5.15 betrachtet. Zu Beginn

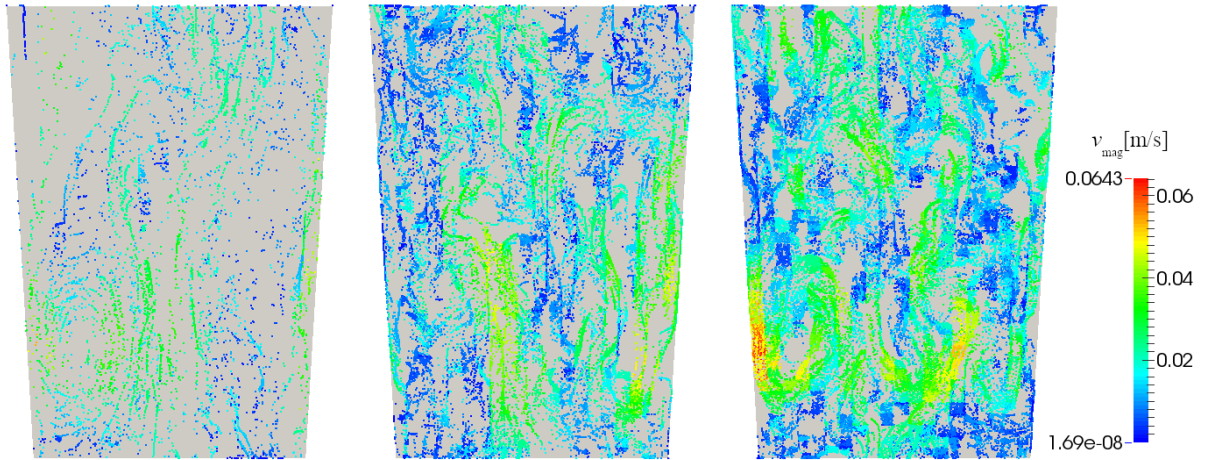


Abb. 5.13 – CFD-DEM-Simulation eines Ausschnitts in Produktabzugshöhe bei den unterschiedlichen Suspensionsdichten zum Zeitpunkt $t = 30$ s, links - 10 000 Partikel, Mitte - 50 000 Partikel, rechts - 100 000 Partikel. Die Partikel sind nach der Geschwindigkeitsmagnitude eingefärbt.

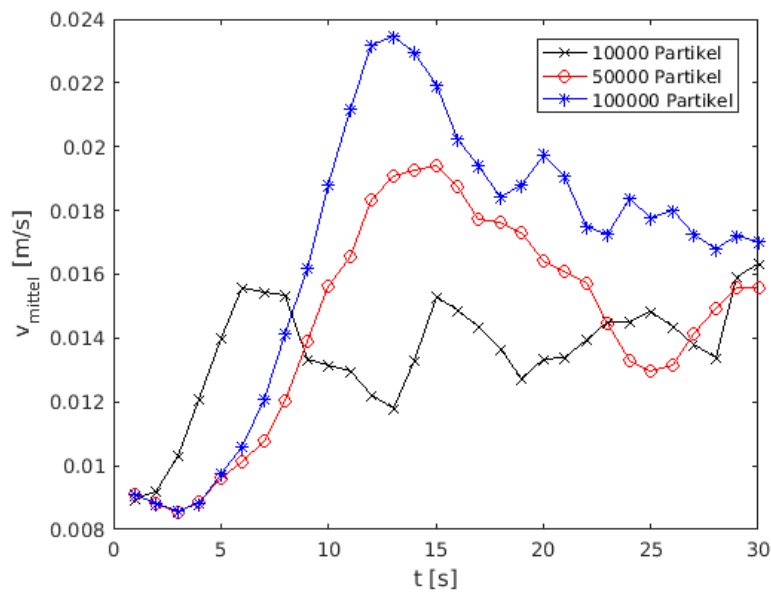


Abb. 5.14 – Mittlere Partikelgeschwindigkeit v_{mittel} über die Zeit für die Partikelanzahlen 10 000 Partikel (schwarze Kreuze), 50 000 Partikel (rote Kreise), 100 000 Partikel (blaue Sterne).

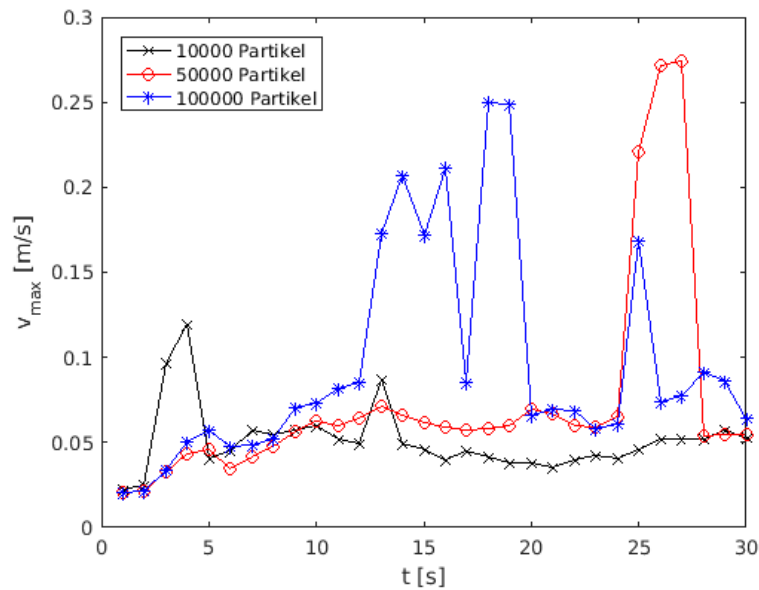


Abb. 5.15 – Maximale Partikelgeschwindigkeit v_{\max} über die Zeit für die Partikelanzahlen 10 000 Partikel (schwarze Kreuze), 50 000 Partikel (rote Kreise), 100 000 Partikel (blaue Sterne).

der Simulation liegen die maximalen Partikelgeschwindigkeiten v_{\max} bei etwa $0,02 \frac{\text{m}}{\text{s}}$. Danach schwanken die Verläufe. Besonders auffällig sind sehr hohe maximale Geschwindigkeiten, die bei hohen Suspensionsdichten erreicht werden, die auf die starken lokalen Schwankungen der Suspensionsdichte im Wirbelbett zurückzuführen sein könnten. Zusammenfassend kann man feststellen, dass das CFD-DEM-Modell bei zunehmenden Suspensionsdichten den Anstieg von Partikelgeschwindigkeiten wiedergibt.

5.2.5 Simulation von Asparaginkristallen mit Wachstum

Allein die Variation der Betriebsbedingungen beeinflusst die Prozessleistung erheblich, weshalb CFD-DEM-Simulationen zunächst ausschließlich ohne Wachstum durchgeführt worden sind. Die Temperatur- und Konzentrationsgradienten der flüssigen Phase werden konstant gehalten, da schon allein bei dieser Annahme wertvolle Prozessinformationen erhalten werden und bislang keine erweiterte Implementierung in der verwendeten Software (CFDEMcoupling [41]) verfügbar war. Einfache Wachstumskinetiken können aber prinzipiell für die Kristalle DEM-seitig vorgegeben werden. Das lineare Wachstum, das bei der Simulation vorgegeben wird, beträgt $3,4 \frac{\mu\text{m}}{\text{s}}$. Dabei handelt es sich nicht um eine realistische Wachstumsrate, sondern

das Kristallwachstum wird stark beschleunigt, um deutliche Veränderungen in der begrenzten Simulationszeit beobachten zu können. Bei einer realistischen Wachstumsrate von etwa $0,0133 \frac{\mu\text{m}}{\text{s}}$ würden die Kristalle nach 300 s Simulationszeit nur etwa $4 \mu\text{m}$ wachsen. Um eine Simulation über eine längere Zeitspanne ($\Delta t = 300 \text{ s}$) realisieren zu können, wird eine Simulation mit Wachstum mit dem Ausschnittsmodell realisiert, das im Abschnitt 3.9.1 beschrieben worden ist.

Zu Beginn der Simulation liegt der Bereich der CSD bei $d = 45 \dots 450 \mu\text{m}$. Sie entspricht in dieser Simulation der in Messung 2 bestimmten CSD (siehe Abb. 4.19).

Die Abb. 5.16 zeigt die CFD-DEM-Simulation mit Wachstum zum Zeitpunkt $t = 300 \text{ s}$ wobei die Partikel nach ihrem Durchmesser eingefärbt sind. Dargestellt ist der untere Bereich des Kristallisators, wobei der weiße Rahmen den Bereich der Partikelinitialisierung markiert. Es werden kontinuierlich 100 Partikel pro s eingefügt. Die Partikel sind zur besseren Erkennbarkeit in dieser Abbildung dreifach vergrößert worden.

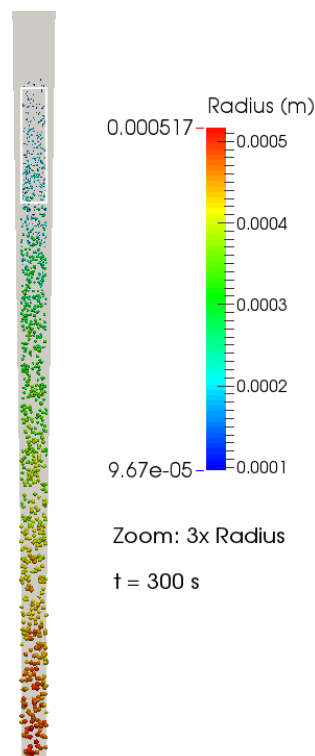


Abb. 5.16 – CFD-DEM-Simulation mit beschleunigtem Wachstum zum Zeitpunkt $t = 300 \text{ s}$.

5.2 Fluidisierung von Asparaginkristallen im Kristallisator

Die Kristalle wachsen über die gesamte Simulationszeit von $190\ \mu\text{m}$ auf bis zu $1032\ \mu\text{m}$. Der klassierende Effekt nach der Kristallgröße im Kristallisator ist gut erkennbar. Das stark beschleunigte Wachstum führt dazu, dass auch die anfänglich kleinen Kristalle schnell zu Boden sinken.

Die Abb. 5.17 links zeigt den eingefügten Massenstrom und den Massenstrom, der den Kristallisator am unteren Auslass verlässt über die Zeit. Die Abb. 5.17 rechts zeigt die Anzahl der Partikel, die eingefügt werden und diejenigen, die aus dem Kristallisator austreten über die Zeit.

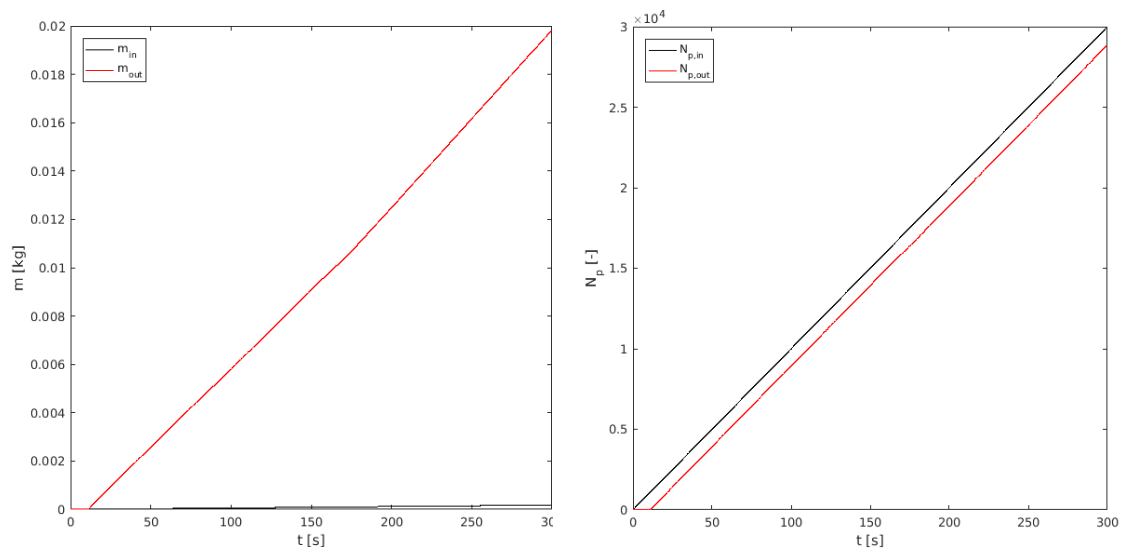


Abb. 5.17 – Links - eingefügter Massenstrom (schwarz) und Massenstrom, der den Kristallisator am unteren Auslass verlässt (rot) über die Zeit, rechts - Anzahl der Partikel, die eingefügt werden (schwarz) und aus dem Kristallisator austreten (rot) über die Zeit.

Die Abb. 5.17 links lässt erkennen, dass die Masse der Kristalle in 300 s annähernd linear wächst um fast 20 g. Die Abb. 5.17 rechts zeigt, dass alle eingefügten Partikel den Kristallisator mit einem Zeitversatz vor ca. 10 s wieder verlassen.

Insbesondere die Start-CSD und die vorgegebene Wachstumskinetik beeinflussen die Ergebnisse entscheidend. Bisher ist es DEM-seitig nicht möglich automatisch die gleiche Masse an ausgetragenen Kristallen direkt wieder in den Prozess aufzunehmen. Eine gewünschte Masse kann im Kristallisator nur konstant gehalten werden, indem die Masse zunächst bilanziert wird und anschließend die Einfügerate angepasst wird.

Zusammenfassend kann man sagen, dass CFD-DEM-Simulationen mit Wachstum prinzipiell möglich sind, wie hier gezeigt worden ist. Allerdings gibt es noch viel Untersuchungspotential, da die Simulation des gesamten Prozesses sehr rechenintensiv und komplex ist.

5.2.6 Simulation von nicht-sphärischen Partikeln

In diesem Abschnitt wird analysiert, wie das Fluidisierungsverhalten von nicht-sphärischen Partikeln (Abschnitt 3.7) im Vergleich zu sphärischen Partikeln ist und ob sphärische Partikel die Kristalle realitätsnah substituieren können [21].

Der Zustand der Fluidisierung von sphärischen und nicht-sphärischen Partikel im Bereich des Einlasses ist in der Abb. 5.20 zu sehen.

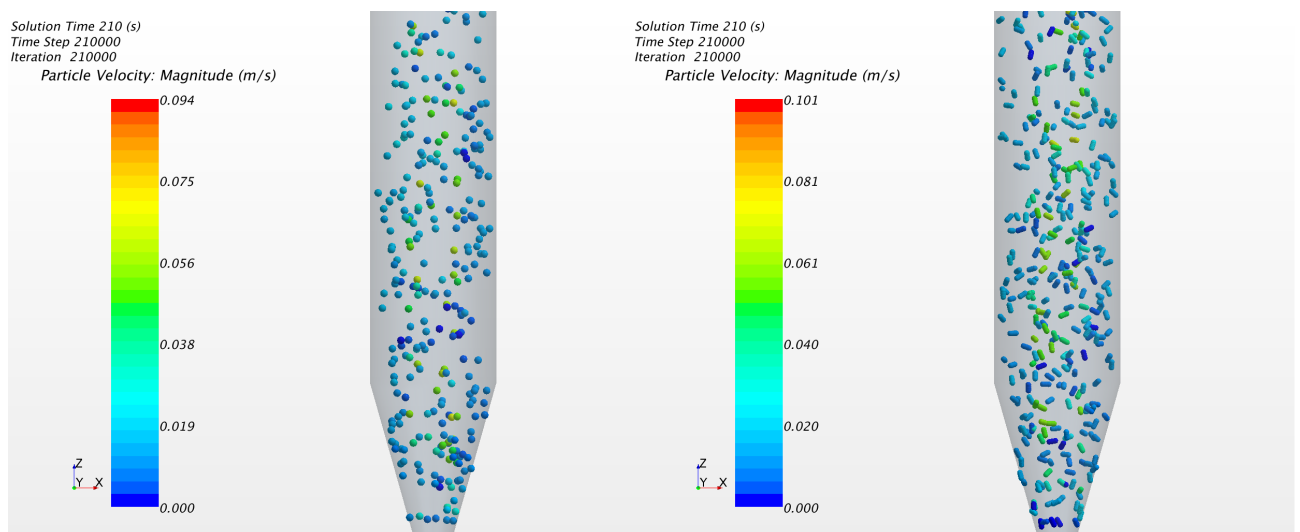


Abb. 5.18 – Zustand der Fluidisierung der Partikel in der Säule (Setup 2) nach 30 s physikalischer Zeit; links: sphärische Partikel; rechts: nicht-sphärischen Partikeln; in fünffacher Vergrößerung der tatsächlichen Partikelgröße [21].

Qualitativ ist ein ähnliches Fluidisierungsverhalten erkennbar, da sich die Ausbreitungsradien für die beiden Fälle kaum unterscheiden. Die Kristallanzahl ist durch Austrag am oberen Kristallisatorauslass zu 32 % und die Anzahl der Kugeln ist zu 35 % dezimiert worden. Die Abnahme der Partikel in beiden Simulationen ist damit fast gleich.

Werden die z -Partikelgeschwindigkeiten der Kristallsimulation mit der Kugelsimulation über die Zeit verglichen, ergibt sich der in der Abb. 5.19 dargestellte Verlauf. Die Indizes ns stehen für nicht-sphärisch bzw. s für sphärische Partikel. Die gemessene

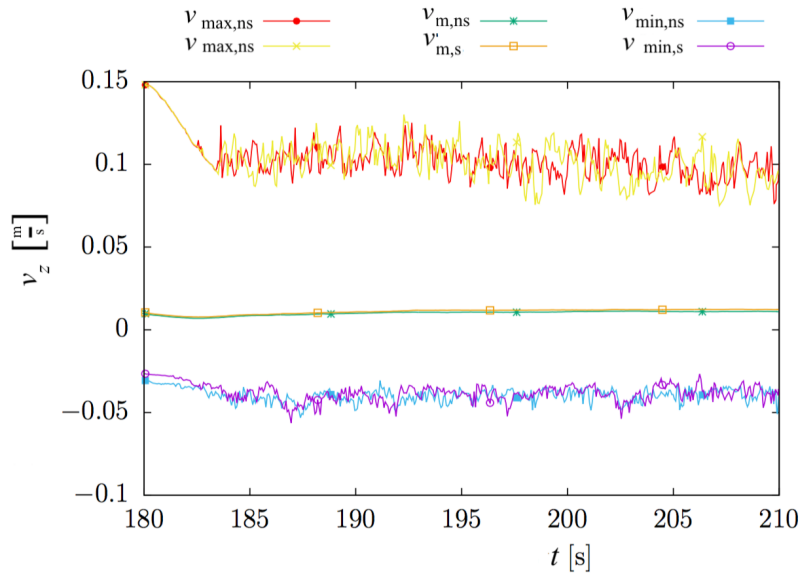


Abb. 5.19 – Vertikale Partikelgeschwindigkeit v_z der $150 \mu\text{m}$ Kristalle und Kugeln [21].

nen vertikalen Partikelgeschwindigkeiten v_z zeigen ein nahezu kongruentes Verhalten im Durchschnitt ($v_{m,ns}$ und $v_{m,s}$). Die Minimal- ($v_{min,ns}$ und $v_{min,s}$) und Maximalgeschwindigkeiten ($v_{max,ns}$ und $v_{max,s}$) schwanken zwar unterschiedlich, bewegen sich jedoch in einem ähnlichen bzw. fast gleichem Spektrum. Die Verläufe können als gleich angesehen werden. Die Betrachtung der gemittelten Partikelgeschwindigkeiten in der Tab. 5.2 bestätigt das Fließverhalten aus der Abb. 5.19. Dieses Resultat wird auch durch die Fachliteratur gestützt: Die Studie von [70] zeigt gleiche Partikelgeschwindigkeiten bei Simulation mit sphärischen und nicht-sphärischen Partikeln.

Die gemittelte Durchschnittsgeschwindigkeit der Asparaginkugeln ist 10 % höher als die der Asparaginkristalle. Der Durchschnittswert der Maximumgeschwindigkeiten ist quasi identisch und die durchschnittliche Minimumgeschwindigkeit der Kugeln ist etwa 4 % höher als die der Kristalle. Über die 30 s Simulationszeit lässt sich erkennen, dass die Geschwindigkeit im Durchschnitt konstant bleibt und die Extremwerte um einen Durchschnitt schwanken und nicht mehr fallen oder steigen. Die Simulation

Tab. 5.2 – Vergleich der vertikalen Partikelgeschwindigkeiten v_z von Kristallen und Kugeln sowie Berechnungszeiten für 10 000 Partikel [21].

	Durchschnitt	Maximum	Minimum	Berechnungszeit
Kugel	0.0111 $\frac{\text{m}}{\text{s}}$	0.1032 $\frac{\text{m}}{\text{s}}$	-0.0381 $\frac{\text{m}}{\text{s}}$	125 h
Kristall	0.0101 $\frac{\text{m}}{\text{s}}$	0.1030 $\frac{\text{m}}{\text{s}}$	-0.0397 $\frac{\text{m}}{\text{s}}$	200 h
Relation	0,91	1,00	1,04	1,6

mit nicht-sphärischen Partikeln dauerte 200 h, diejenige mit sphärischen Partikeln nur 125 h insgesamt und war damit mehr als ein Drittel schneller. Um einen aussagekräftigen Vergleich zuzulassen, variiert bei den Berechnungen ausschließlich die Partikelform und das Widerstandsmodell (Haider-Levenspiel und Schiller-Naumann). Der verwendete Löser, die Randbedingungen, sowie die Anzahl der Partikel werden nicht verändert.

Die in diesen Untersuchungen gewonnenen Ergebnisse lassen Rückschlüsse darauf zu, dass das Partikelverhalten in diesem Fall zwar nicht identisch ist, jedoch aufgrund der festgelegten Bedingungen sehr ähnlich ist. Die am Max-Planck-Institut verwendete Kristallform (Abschnitt 3.7) weicht nur relativ gering von einem nicht-sphärischen Partikel ab, da ihre Sphärizität $\Psi = 0,9$ sehr nahe an 1 liegt. Dennoch ist die Oberfläche größer, welche zur Berechnung der Widerstandskraft in der Software verwendet wird. Würden Kristallformen mit noch geringerer Sphärizität $\Psi \leq 0,9$ simuliert werden, müssten diese im Einzelfall geprüft werden. Es lässt sich feststellen, dass der Nutzen der Einsparung an Simulationszeit als viel wertvoller eingestuft werden kann, als dass ein Zugewinn durch präziseres Partikelverhalten aufgrund genauerer Oberflächen zu erreichen wäre.

Der Zustand der Fluidisierung von nicht-sphärischen Partikel im Bereich des Auslasses, bei unterschiedlicher initialen Ausrichtung, ist in der Abb. 5.20 zu sehen. Die geometrische Form des Auslasses ist zum Zeitpunkt der Untersuchung noch abweichend von der in Abschnitt 3.1 dargestellten Geometrie gewesen. Die Abmaße der Säule sind allerdings identisch. Man erkennt deutlich, dass sich die Partikel, die in zufälligen Richtungen initialisiert werden, auch nach 30 s Simulationszeit in keine einheitlichen Richtung ausrichten. Im Gegensatz dazu ändern die Partikel, die längs der Strömungsrichtung initialisiert werden, ihre Ausrichtung hauptsächlich im Zentrum der Säule auch nach 30 s nicht.

Da die Gesamtsimulationszeit auf 30 s beschränkt ist, ist noch nicht klar welche Tendenz generell bei der Ausrichtung der Partikel besteht. In der Fachliteratur sind

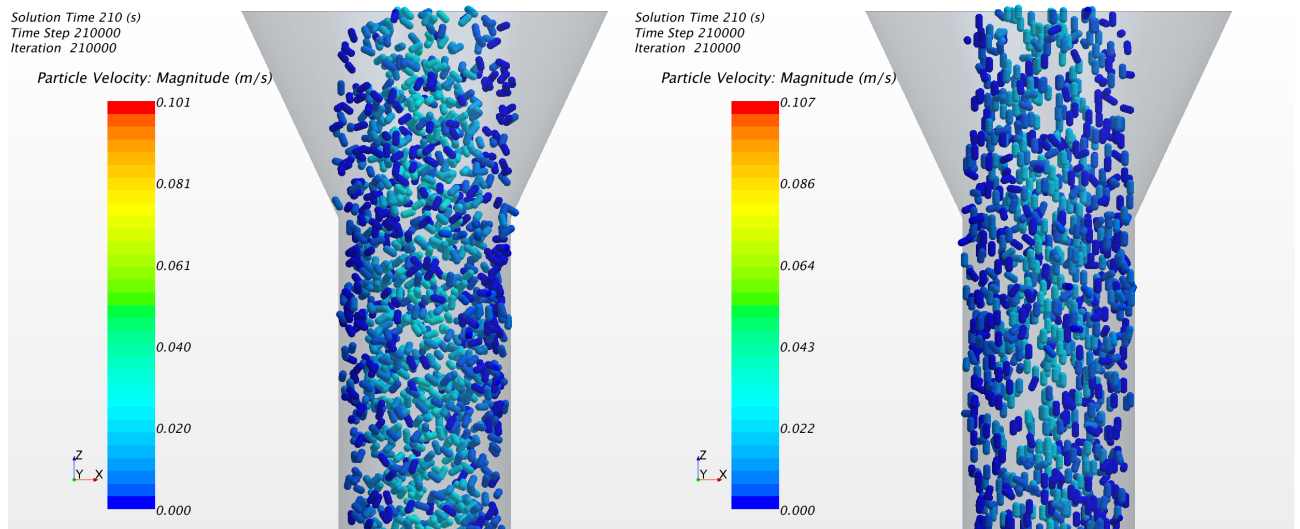


Abb. 5.20 – Zustand der Fluidisierung von nicht-sphärischen Partikeln in der Säule (Setup 2) nach 30 s physikalischer Zeit in fünffacher Vergrößerung der tatsächlichen Partikelgröße; links: Partikel in zufälligen Richtungen initialisiert; rechts: Partikel längs der Strömungsrichtung initialisiert [21].

sowohl Studien zu finden, bei der sich die Kristalle längs der Strömungsrichtung ausrichten, als auch Studien, bei denen sich die Kristalle im Strömungsfeld drehen. Beispielsweise richten sich bei den Simulationen von [71] die Partikel längs der Strömungsrichtung aus und minimieren damit ihren Strömungswiderstand. Hingegen drehen sich bei den Simulationen von [70] die Partikel im Strömungsfeld und maximieren damit ihren Auftrieb.

Um das auftretende Phänomen abschließend zu klären, wird ein Fallversuch mit nadelförmigen Partikeln in der Säule (Setup 2) durchgeführt. Dabei wird beobachtet, dass sich die Partikel in der Strömung drehen. Es kommt zu häufigen Wandkontakten und eine Ausrichtung senkrecht zur Fallrichtung wird von den Partikeln bevorzugt. Der Fallversuch ist 20 mal durchgeführt worden und die nadelförmigen Partikel sind in jedem Fall längs zur Fallrichtung in die Strömung initialisiert worden.

Bei den Simulationen spielt das verwendete Widerstandsmodell von Haider und Levenspiel bei der Ausrichtung der Partikel in der Strömung wahrscheinlich eine entscheidende Rolle. Dieses Modell berücksichtigt die bevorzugte Längsausrichtung in der Strömung nicht.

5.3 Simulation von Guaifenesinkristallen in Lösung

Zusätzlich zu Simulationen mit dem Stoffsystem Asparaginmonohydrat und Wasser sind Simulationen mit einem zweiten Stoffsystem (Guaifenesin und Wasser) durchgeführt worden. Die Kristalle werden im Kristallisator fluidisiert wie in Setup 1 (Abschnitt 3.1). Die für die Simulation verwendeten experimentell bestimmten Daten einer gesättigten Guaifenesinlösung bei unterschiedlichen Temperaturen sind in der Tab. 5.3 zusammengefasst. Für die durchgeführten Simulationen wird die Verteilung

Tab. 5.3 – Daten zu einer gesättigten Guaifenesinlösung bei unterschiedlichen Temperaturen.

Temperatur	36°C	38°C	40°C
Dichte der Lösung	$1,0281 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$	$\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$	$1,1085 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$
dynamische Viskosität	1,2072 mPa·s	1,0705 mPa·s	3,2802 mPa·s
kinematische Viskosität	$1,1742 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	$3,0356 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	$2,9591 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$
Dichte des Feststoffs	1,2 - 1,3 $\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$	1,2 - 1,3 $\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$	1,2 - 1,3 $\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$

durch 29 Klassen approximiert. Die Summenverteilung Q_3 und die Dichteverteilung q_3 der Guaifenesin-Kristalle (CSD) wird durch optische Messung mit einem CAM-SIZER XT (Retsch GmbH, Haan, Deutschland) bestimmt und ist in der Abb. 5.21 dargestellt. Als weitere DEM-Parameter werden diejenigen von Asparagin angenommen, da die Simulationen in dieser Studie bei geringen Suspensionsdichten erfolgen und der Aufwand für Kalibrierungsversuche unverhältnismäßig groß wäre.

Die Abb. 5.22 zeigt die CFD-DEM-Simulation von fluidisierten Guaifenesin-Kristallen bei 36°C, 38°C und 40°C und nicht aktivierter Zerkleinerung bei einer physikalischen Zeit von 32 s. Die Kristalle sind dabei eingefärbt nach Partikelradius und zur besseren Sichtbarkeit um den fünffachen Partikelradius vergrößert dargestellt. Zu Beginn der Simulation ($t = 0$ s) sind die Kristalle im oberen Bereich des Kristallisator initialisiert (Abb. 5.22 links).

5.3 Simulation von Guaifenesinkristallen in Lösung

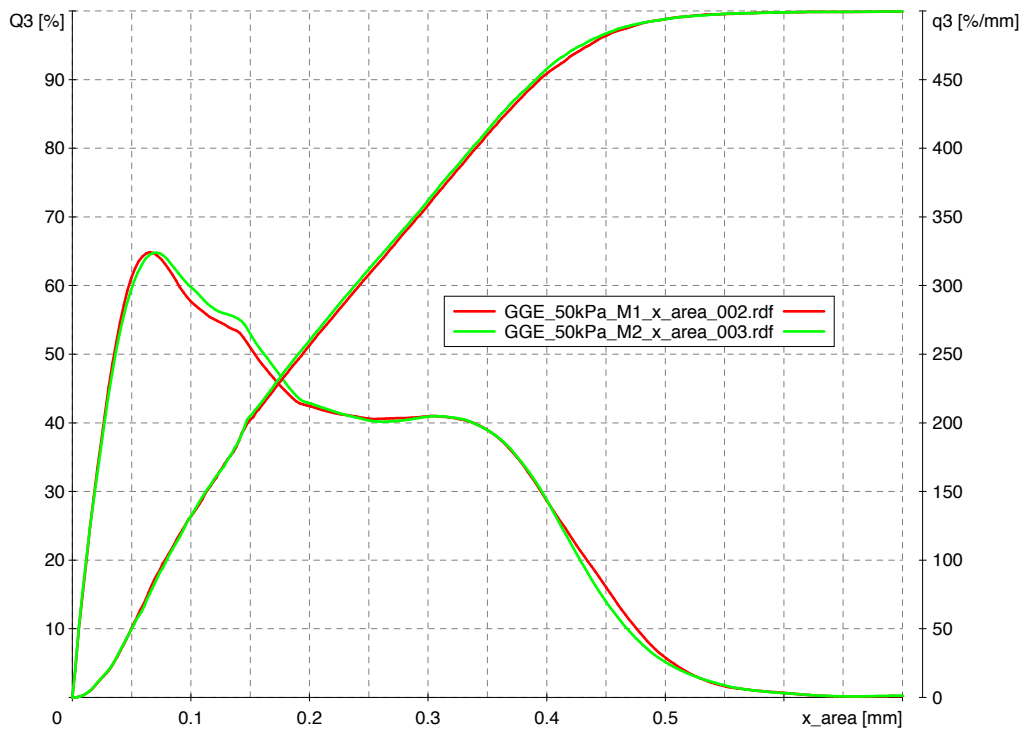


Abb. 5.21 – Gemessene CSD Function Q_3 für die Guaifenesin-Kristalle.

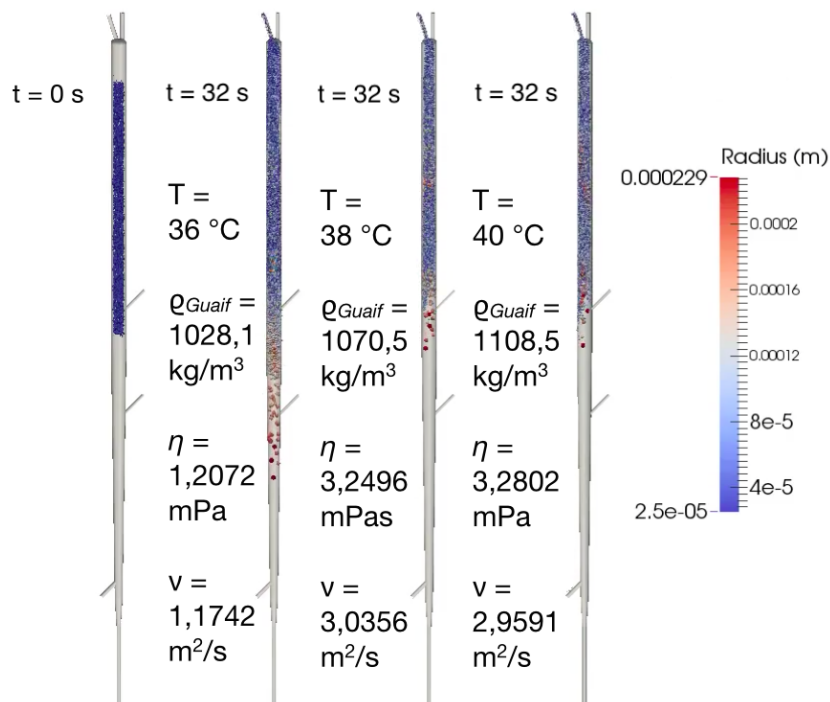


Abb. 5.22 – CFD-DEM-Simulation von fluidisierten Guaifenesin-Kristallen bei 36°C, 38 °C und 40°C und nicht aktivierter Zerkleinerung bei einer physikalischen Zeit von 32 s; Einfärbung der Kristalle nach Partikelradius und optische Vergrößerung um den fünffachen Partikelradius.

Beim Vergleich der drei Simulationsergebnisse stellt man fest, dass die Kristalle mit steigender Temperatur eher dazu tendieren nach oben zu steigen. Grund dafür ist die vergrößerte Auftriebskraft, die aus der verringerten Differenz zwischen Feststoffdichte und Fluiddichte resultiert.

Eine vergrößerte Darstellung der CFD-DEM-Simulation von fluidisierten Guaifenesin-Kristallen bei 36°C zeigt die Abb. 5.23. Bei einer animierten Darstellung ist deutlich

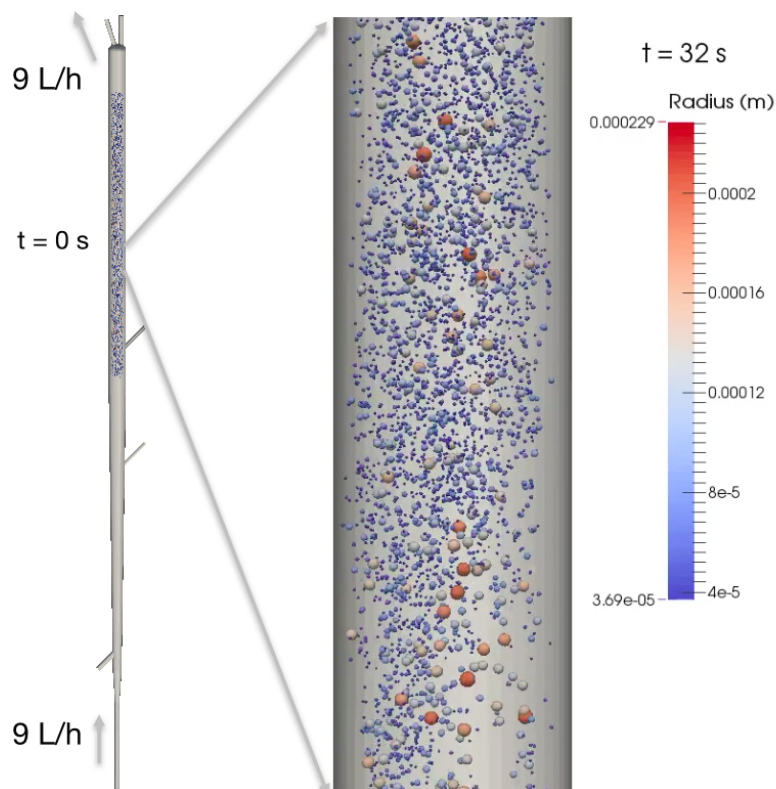


Abb. 5.23 – Zoomdarstellung der CFD-DEM-Simulation von fluidisierten Guaifenesin-Kristallen bei 36°C und nicht aktivierter Zerkleinerung bei einer physikalischen Zeit von 32 s; Einfärbung der Kristalle nach Partikelradius und optische Vergrößerung um den fünffachen Partikelradius.

zu erkennen, dass kleinere Partikel tendentiell nach oben ausgetragen werden und größere Partikel vorwiegend in der Schwebelage gehalten werden.

Da in Experimenten häufig eine Austragung von Guaifenesin-Kristallen (auch bei geringen Fluidisationsgeschwindigkeiten) beobachtet wurde, ist vor allem die vertikale Geschwindigkeit der fluidisierten Guaifenesin-Kristalle von großem Interesse.

5.3 Simulation von Guaifenesinkristallen in Lösung

Die Abb. 5.24 zeigt die vertikalen Geschwindigkeiten v_z der fluidisierten Guaifenesin-Kristalle in Abhängigkeit von ihrer radialen Position im Kristallisator bei jeweils 36°C, 38°C und 40°C, bei nicht aktivierter Zerkleinerung auf Höhe der Schnittebene des Produktabzugsstutzens ($z = 0,525\text{m}$). Die Fehlerbalken indizieren die Standardabweichung um den Mittelwert. Die Darstellung lässt darauf schließen, dass die Kristalle

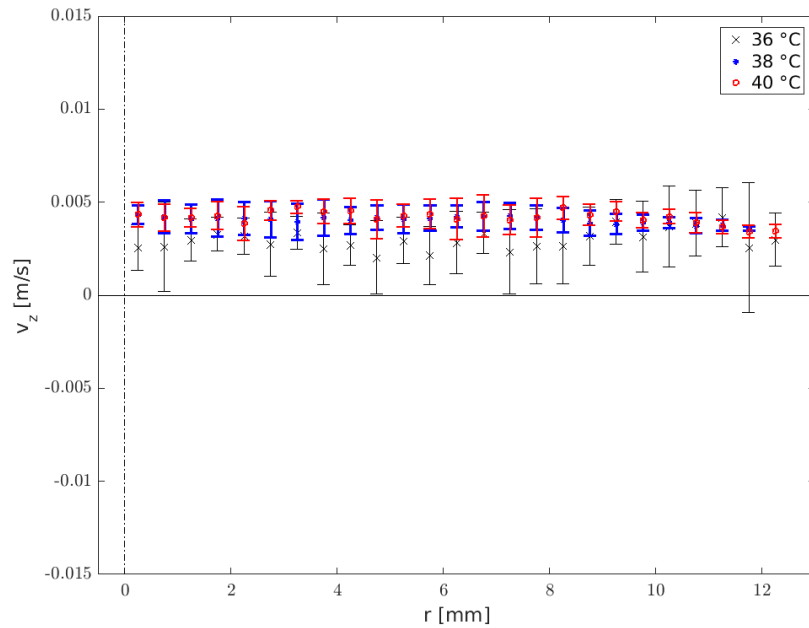


Abb. 5.24 – Vergleich der vertikalen Geschwindigkeit, v_z , fluidisierter Guaifenesin-Kristalle in Abhängigkeit von ihrer radialen Position im Kristallisator bei 36°C, 38 °C und 40°C auf Höhe der Schnittebene des Produktabzugsstutzens ($z = 0,525\text{m}$); die Fehlerbalken indizieren die Standardabweichung um den Mittelwert.

tendenziell bei allen drei Temperaturen nach oben bewegt werden. Im Experiment ist allerdings zu beobachten, dass auch einige Kristalle im Kristallisator bleiben. Dies ist für die Simulation erst erkennbar, wenn nicht die Standardabweichung der Geschwindigkeiten betrachtet wird, sondern die vertikalen Geschwindigkeiten für einzelne Kristalle. Dazu zeigen die Abbildungen 5.25, 5.26 und 5.27 die vertikalen Geschwindigkeiten v_z der fluidisierten Guaifenesin-Kristalle in Abhängigkeit von ihrer radialen Position im Kristallisator bei jeweils 36°C, 38°C und 40°C auf Höhe der Schnittebene des Produktabzugsstutzens ($z = 0,525\text{m}$). Die Größe der Marker der Kristalle ist dabei quadratisch proportional zu ihrem Durchmesser.

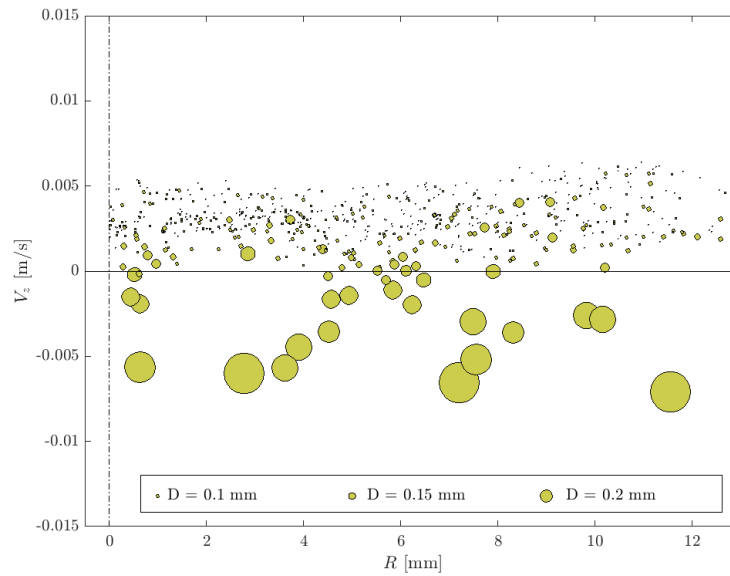


Abb. 5.25 – Vertikale Geschwindigkeit, v_z , fluidisierter Guaifenesin-Kristalle in Abhängigkeit von ihrer radialen Position im Kristallisor bei 36°C auf Höhe der Schnittebene des Produktabzugsstutzens ($z = 0,525\text{m}$); die Größe der Marker der Kristalle ist quadratisch proportional zu ihrem Durchmesser.

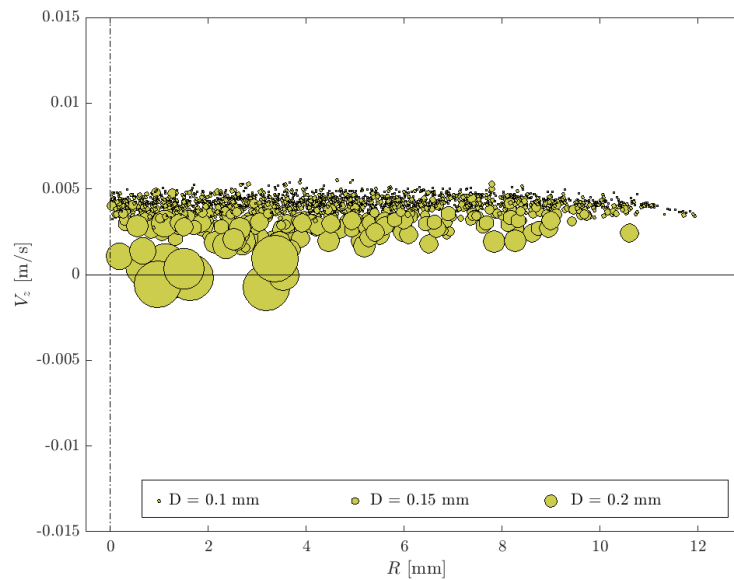


Abb. 5.26 – Vertikale Geschwindigkeit, v_z , fluidisierter Guaifenesin-Kristalle in Abhängigkeit von ihrer radialen Position im Kristallisor bei 38°C auf Höhe der Schnittebene des Produktabzugsstutzens ($z = 0,525\text{m}$); die Größe der Marker der Kristalle ist quadratisch proportional zu ihrem Durchmesser.

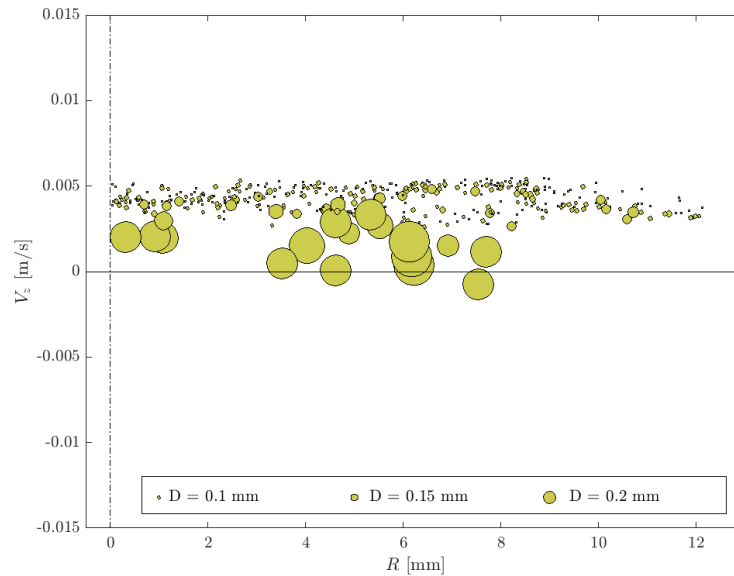


Abb. 5.27 – Vertikale Geschwindigkeit, v_z , fluidisierter Guaifenesin-Kristalle in Abhängigkeit von ihrer radialen Position im Kristallisator bei 40°C auf Höhe der Schnittebene des Produktabzugsstutzens ($z = 0,525$ m); die Größe der Marker der Kristalle ist quadratisch proportional zu ihrem Durchmesser.

Am stärksten erfolgt die Aufwärtsbewegung bei einer Temperatur von 40°C, aufgrund des verminderten Dichteunterschieds und der vergrößerten Auftriebskraft. Bei der geringsten Temperatur von 36°C verbleiben noch relativ viele große Kristalle im Kristallisator. Die Untersuchungen zeigen, dass der Temperatureinfluss auf das Fluidisierungsverhalten der Kristalle einen relativ starken Einfluss hat. Weiterhin muss bedacht werden, dass bei dem Simulationsmodell die Kristallform der Guaifenesinkristalle durch Kugeln approximiert worden ist. Im Gegensatz zu den im Abschnitt 5.2.6 untersuchten Asparaginkristallen (Sphärizität $\Psi \leq 0,9$) weichen die nadelförmigen Guaifenesinkristalle stark von der Kugelfom ab. Es ist also zu erwarten, dass die Widerstandskraft der Kristalle in der Realität noch größer ist.

5.4 Simulation eines zentralen Ausschnitts des Kristallisators

Zur Berechnungszeiteinsparung wird insbesondere für die automatisierte genetische Optimierung der Kristallisatorgeometrie ein vereinfachtes Modell verwendet, das unter Abschnitt 3.9.1 beschrieben worden ist. Die Untersuchungen zu diesem Modell erfolgten in der Versuchssäule (Setup 2), die auch für die Modellvalidierung verwendet

wurde (Kapitel 4).

Die Einlassgeschwindigkeit (bzw. der Volumenstrom) muss bei diesem Modell angepasst werden (siehe Kapitel 3.9.1). Bei der Anpassung der Einlassgeschwindigkeit sind die horizontalen Geschwindigkeitsprofile der einphasigen CFD-Simulation bei unterschiedlichen vertikalen Positionen der Versuchssäule verglichen worden, die in der Abb. 5.28 als horizontale Linien eingezeichnet sind. Die Höhen betragen 0,2 m, 0,5 m und 0,8 m über dem Einlass der Versuchssäule.

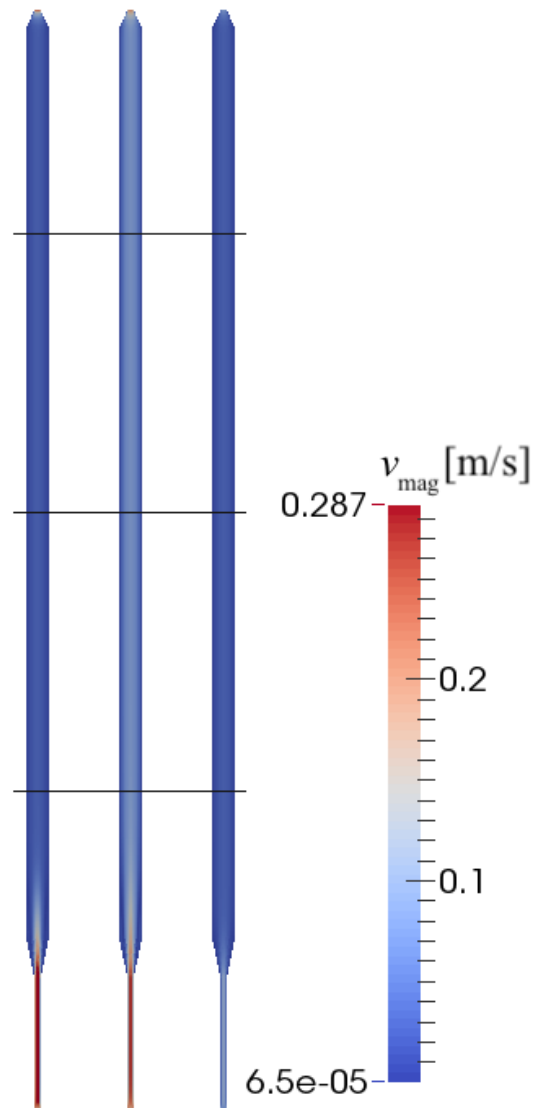


Abb. 5.28 – Geschwindigkeitsmagnitude der fluiden Phase in der Versuchssäule bei einer Simulation ohne Partikel, links - dreidimensionale Simulation mit einer Einlassgeschwindigkeit von $0,192 \frac{m}{s}$, Mitte - Ausschnittssimulation (zweidimensional) mit einer Einlassgeschwindigkeit von $0,192 \frac{m}{s}$, rechts - Ausschnittssimulation (zweidimensional) mit einer Einlassgeschwindigkeit von $0,069 \frac{m}{s}$.

Die Abb. 5.29 zeigt die Geschwindigkeitsprofile der dreidimensionalen Simulation und der zweidimensionalen Simulation mit ursprünglicher und angepasster Einlassgeschwindigkeit.

5.4 Simulation eines zentralen Ausschnitts des Kristallisators

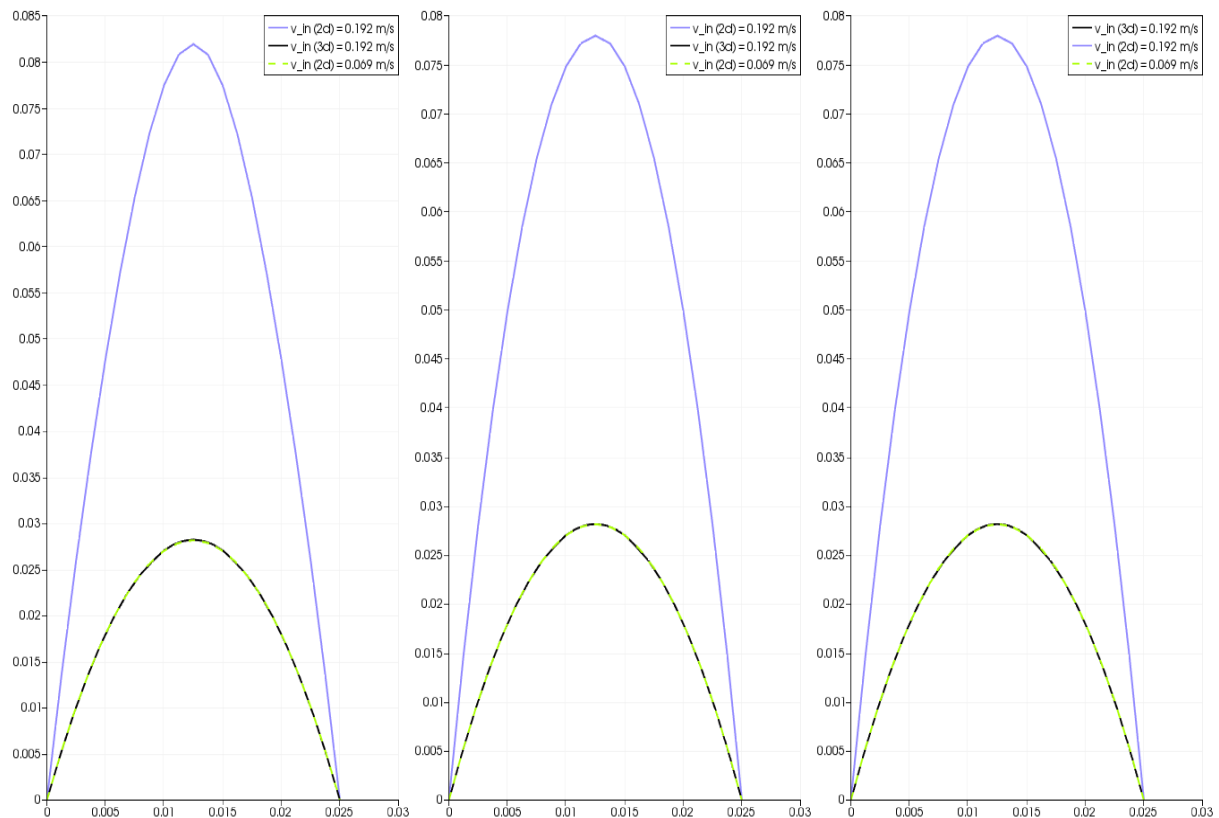


Abb. 5.29 – Geschwindigkeitsprofile der dreidimensionalen Simulation und der zweidimensionalen Simulation mit ursprünglicher und angepasster Einlassgeschwindigkeit bei einer vertikalen Position in der Versuchssäule von links - 0,2 m, Mitte - 0,5 m, rechts - 0,8 m.

Eine Einlassgeschwindigkeit, die 36 % der ursprünglichen Einlassgeschwindigkeit entspricht, ergab beim Vergleich mit den Geschwindigkeitsprofilen der dreidimensionalen Simulation die beste Übereinstimmung. Bei einer ursprünglichen Einlassgeschwindigkeit von $0,192 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ entspricht dies einer angepassten Einlassgeschwindigkeit von $0,069 \frac{\text{m}}{\text{s}}$.

Für alle drei Höhen sind die Tendenzen ähnlich. Die Werte für die Maxima der Profile sind nahezu identisch, was darauf zurückzuführen ist, dass die Versuchssäule an allen drei Höhen den gleichen Querschnitt aufweist. Die Profile der ursprünglichen dreidimensionalen Simulation (schwarz) haben eine perfekte Übereinstimmung zu den Profilen der zweidimensionalen Simulationen mit angepassten Einlassgeschwindigkeiten (grün gestrichelt). Die Profile der zweidimensionalen Simulationen mit nicht-angepassten Einlassgeschwindigkeiten weichen wesentlich davon ab. Ihre Maxima sind etwa dreimal so groß.

Da die einphasige CFD-Simulation noch keine Information darüber liefert wie sich die Partikel bei der Ausschnittsimulation verhalten, werden die gemittelten Vertikalgeschwindigkeiten v_z von fluidisierten Glaspartikeln verglichen. Die Referenz sind dabei die experimentell ermittelten Geschwindigkeiten (Abb. 4.16), die über mehrere Zeitpunkte gemittelt worden sind. Die Abb. 5.30 zeigt den Vergleich der gemittelten Vertikalgeschwindigkeit v_z für das Experiment, für die dreidimensionale CFD-DEM Simulation und für die Ausschnittsimulation.

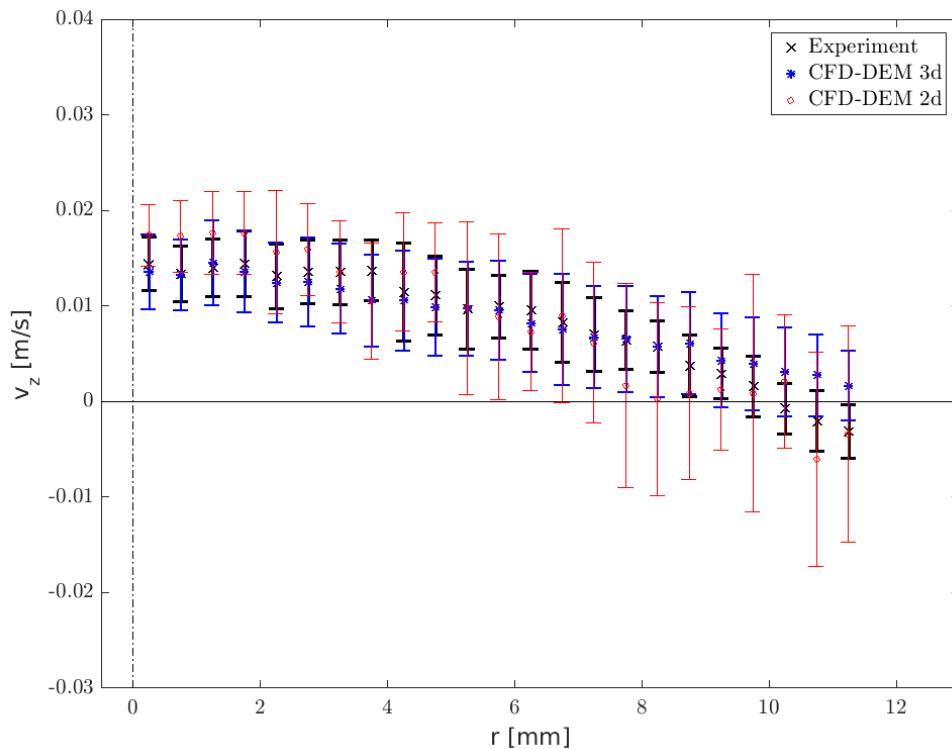


Abb. 5.30 – Vergleich der gemittelten Vertikalgeschwindigkeiten, v_z , von fluidisierten Glaspartikeln als Funktion ihrer radialen Position im Versuchskristallisor - Experiment (schwarze Kreuze), dreidimensionale CFD-DEM Simulation (blaue Sterne), Ausschnittsimulation (rote Kreise); die Fehlerbalken zeigen die Standardabweichung um den Mittelwert.

Im Zentrum der Versuchssäule werden die Partikelgeschwindigkeiten durch das Ausschnittsmodell etwas überschätzt. Auffällig ist, dass die Standardabweichungen größer werden, je näher die Partikel in Wandnähe rücken. Bei dem vorletzten Fehlerbalken in Wandnähe scheint die Abweichung vom Experiment stark, allerdings

befanden sich in diesem Bereich wenige Partikel. Durch das dreidimensionale Modell werden die Geschwindigkeiten in Wandnähe eher überschätzt. Das zweidimensionale Modell trifft mit dem Mittelwert zum Teil perfekt das Experiment, wie zum Beispiel direkt in Wandnähe, allerdings sind die Schwankungen größer. Jedoch überdecken sich die Fehlerbalken in jedem Fall und die Tendenzen sind absolut identisch. Daher kann das Ausschnittsmodell sicher für die weiterführenden Optimierungssimulationen verwendet werden.

CFD-basierte Geometrieoptimierung eines Wirbelschichtkristallisators

Die Ziele des in Kapitel 1 beschriebenen Prozesses sind es:

- die Produktivität bzw. Produktausbeute zu verbessern
- die Reinheit des Produktes zu maximieren und
- eine gewünschte CSD (mit möglichst großen Enantiomerkristallen und enger Verteilung) zu erhalten.

Die Optimierung des Prozesses kann mit Modellen unterschiedlicher Komplexität durchgeführt werden. Die Stärke eindimensionaler Simulationen ist die zugehörige kurze Rechenzeit, die mit der Echtzeit-Prozesssteuerung kompatibel ist [72]. Der Nachteil solcher Simulationen ist, dass sie keine detaillierten Informationen über die Hydrodynamik und die CSD liefern.

Komplexere CFD-DEM-Modelle können die CSD innerhalb des Kristallisators zusammen mit dem Geschwindigkeitsprofil identifizieren. Jedoch ist der zugehörige Rechenaufwand zu hoch, um den gesamten Prozess zu simulieren, der Millionen von Kristallen während Stunden einbezieht. Die fortgeschrittenen Modelle ersetzen somit nicht die eindimensionalen Simulationen, sondern liefern ergänzende Informationen.

Da allein schon durch die Variation der Betriebsbedingungen die Prozessleistung beeinflusst, sind CFD-DEM-Simulationen zunächst in einer bereits bestehenden, bewährten Geometrie durchgeführt worden (Kapitel 5). Bei der Geometrieoptimierung werden Volumenstrom (Referenz der originalen experimentellen Geometrie mit $\dot{V} = 9 \frac{\text{L}}{\text{h}}$, $v_{\text{out}} = 0,012 \frac{\text{m}}{\text{s}}$) und Produktabzugshöhe ($z = 0,525 \text{ m}$) konstant gehalten.

Für die automatisierte genetische Optimierung der Wirbelschichtkristallisatorgeometrie wird die in-house entwickelte Software Opal++ eingesetzt [19], [73].

6.1 Grundlagen der Optimierung

6.1.1 Genetische Optimierung

Genetische Algorithmen sind semi-stochastische Methoden und basieren auf einer Analogie zur natürlichen Selektion. Jedes Design wird als ein Individuum mit Gleitkommazahl-codierten oder binär codierten Variablen (auch als Gene bezeichnet) betrachtet. In der durchgeführten Optimierung werden nur Gleitkommazahl-codierte Variablen verwendet. Eine Population setzt sich aus einer bestimmten Anzahl an Individuen zusammen. Basierend auf dieser Population wird ein neuer Satz von Designs (Nachkommen) mit einem Satz genetischer Operatoren (z. B. Mutation, Kreuzung) erzeugt. Da die besten Individuen bevorzugt werden, wird sich die Population zu besseren Lösungen entwickeln.

Es gibt viele verschiedene Optimierungsalgorithmen. Hier wird der s.g. *GENETIC1*-Algorithmus nach [73] verwendet. Bei diesem Algorithmus enthält jede Generation eine konstante Anzahl von Individuen. Zur Auswahl der Individuen wird ein Vergleich zwischen zwei Zyklen verwendet. Die Konfiguration mit dem besseren Wert der Zielfunktion wird für die Kreuzung ausgewählt. Es wird die gleiche Kreuzung wie bei dem Optimierungsalgorithmus *NSGAI1* : *Non dominating Sorting Genetic Algorithm – II* verwendet, der in [74] beschrieben worden ist.

Es können mehrere Ziele gleichzeitig optimiert werden (*Multi-objective optimization*) oder nur eine Zielfunktion (*Single-objective optimization*), wie bei der folgenden Optimierung. Oft müssen einige zusätzliche Einschränkungen, die so genannten *Constraints*, einhalten werden. Da es sich hier um ein Optimierungsproblem mit nur drei unabhängigen Variablen und einer Zielfunktion handelt, sind keine zusätzlichen *Constraints* notwendig.

6.1.2 Designvariablen

Die beiden Grenzfälle für die Geometrieoptimierung sind an die Wirbelschichtkristallisatorgeometrien angelehnt, die von [72] untersucht worden sind. Diese beiden Wirbelschichtkristallisatorgeometrien sind in Abb. 6.1 dargestellt.

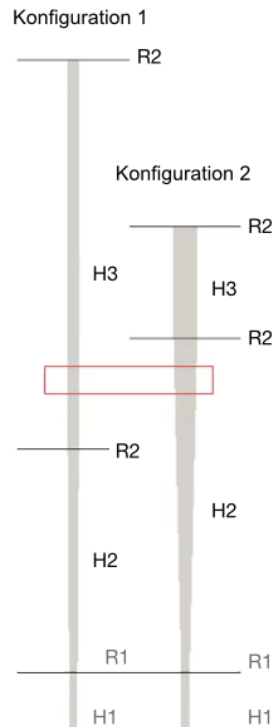


Abb. 6.1 – Die beiden Wirbelschichtkristallisatorgeometrien, die als Grenzfälle für die Geometrieoptimierung angenommen werden.

Die eine Kristallisatorgeometrie ist relativ hoch gebaut und mit geringem Durchmesser und die andere Kristallisatorgeometrie verfügt über eine geringe Höhe und einen großen Durchmesser.

Die drei Variablen, die optimiert werden sollen, sind die Höhen H2 und H3 sowie der Radius R2 (angegeben in m), wobei gilt:

$$H2 \in [0, 4; 0, 6]$$

$$H3 \in [0, 2; 0, 7]$$

$$R2 \in [0, 01; 0, 021].$$

6.1 Grundlagen der Optimierung

Die Variablen Höhe H1 und Radius R1 werden hier konstant gehalten bei 0,01 m und 0,0075 m. Alle drei Variablen werden simultan optimiert und sind voneinander unabhängig, was durch Abb. 6.2 ersichtlich wird. Im unteren linken Bereich der

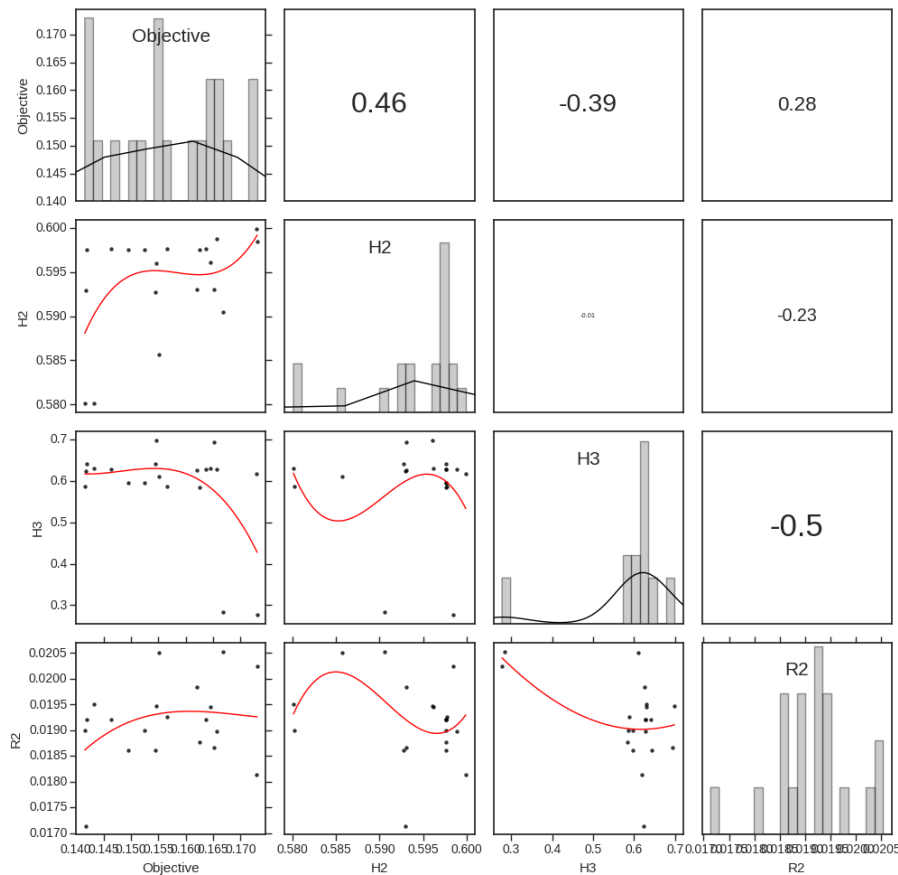


Abb. 6.2 – Die Abhängigkeiten der Variablen von der Zielfunktion und jeweils untereinander.

Darstellung erkennt man die Abhängigkeiten der Variablen von der Zielfunktion und jeweils untereinander. Die Abhängigkeiten werden für die letzte berechnete Generation (Generation 18) überprüft, die Generation, die im Rahmen der Rechenkapazität in rund 3 Monaten (mit Wartezeiten) berechnet werden konnte. Im oberen rechten Bereich der Darstellung sind die Koeffizienten für die linearen Fitkurven angegeben. Die Koeffizienten geben keine Auskunft darüber wie stark die Parameter von der Zielfunktion und untereinander abhängig sind. Allerdings würde ein Koeffizient in der Nähe der Wertes 1 auf eine lineare Abhängigkeit zwischen zwei Parametern untereinander Auskunft geben, welche dann durch einen Parameter bei der Optimierung

ersetzt werden sollte. Dies ist hier allerdings nicht der Fall.

6.1.3 Zielfunktion

Ziel ist es die CSD der Produktes so zu optimieren, dass möglichst große Enantiomerkristallen mit enger Verteilung vorhanden sind. Die Anzahl der Kristalle im Produkt mit großem Durchmesser (größer als $100\ \mu\text{m}$) soll also erhöht werden. Kristalle mit zu großem Durchmesser (größer als $266\ \mu\text{m}$) verbleiben in jedem Fall aufgrund des klassierenden Effektes im unteren Bereich des Kristallisators und werden somit nicht in der Formulierung der Zielfunktion berücksichtigt.

Betrachtet wird die Anzahl der Kristalle N mit einem Durchmesser $d > 100\ \mu\text{m}$ und die Gesamtanzahl der Kristalle N_{ges} und zwar im Bereich des Produktauslasses ($z = 0,5\ \text{m} \dots 0,55\ \text{m}$). Der Bereich des Produktauslasses ist in Abbildung 6.1 rot gekennzeichnet. Offensichtlich handelt es sich bei dem Optimierungsproblem um ein Maximierungsproblem:

$$\frac{N(d > 100\mu\text{m})}{N_{ges}} \rightarrow \max. \quad (6.1)$$

Da sich in diesem Bereich zu einem beliebigen Zeitpunkt zwischen 40 und 60 s nur ca. 250 Kristalle befinden, wird das Ergebnis für verschiedene Zeitpunkte gemittelt. Bis zum Zeitpunkt $t = 30\ \text{s}$ sind noch keine Kristalle im betrachteten Produkt-auslassbereich vorhanden, weil die Kristalle bei der Simulation im unteren Bereich des Kristallisators initialisiert werden und erst langsam mit der Strömung in den oberen Bereich strömen. Ab dem Zeitpunkt $t = 40\ \text{s}$ werden die Kristallanzahlen im Abstand von 4 s betrachtet, da somit ausgeschlossen wird, dass Kristalle doppelt gezählt werden. Damit ist also $t = 40\ \text{s}$ der erste betrachte Zeitpunkt, $t = 44\ \text{s}$ der zweite betrachte Zeitpunkt, $t = 48\ \text{s}$ der dritte betrachtete Zeitpunkt, usw. bis zum Ende der Simulation zum Zeitpunkt $t = 60\ \text{s}$. Somit ergibt sich die Zielfunktion zu:

$$\frac{N_i(d > 100\mu\text{m})}{N_{ges,i}} \rightarrow \max, \quad (6.2)$$

mit $i = 1, \dots, 6$. Die Variablen N und N_{ges} werden auch als *derived variables* bezeichnet, weil ihr Wert selbst nicht direkt vom Optimierungsprozess verwendet wird.

6.1.4 Optimierungsprozess

Die verwendete Software OPAL++ ist ein objektorientiertes Optimierungssystem, das an der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg entwickelt wurde. OPAL++ ist grundsätzlich darauf ausgelegt mehrere Ziele zu optimieren, allerdings kann auch *Single-objective optimization* damit realisiert werden. Die Software unterstützt die parallele Ausführung sowohl auf der Evaluierungs- als auch auf der CFD-Ebene.

Alle Einstellungen, die z.B. die Optimierungsdefinitionen, Simulationsauswertung, usw. betreffen, sind in einer Skriptdatei gespeichert. Diese Datei wird der Software angegeben, die die parallele Ausführung auf MPI-Basis (Message Passing Interface) durchführt. Ein einzelner Knoten (Master-Knoten) führt alle Operationen der Genetischen Optimierung aus, erzeugt neue Individuen und sendet sie an die Arbeiter-Knoten.

Die parallelisierte Optimierung ist auf dem Rechencluster der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg (Neumann) mit 16 bis 20 Knoten (16 core-Nodes je 256GB, 2 x Xeon E5-2630v3 Haswell-Prozessoren) durchgeführt worden.

Da die Rechenzeit für ein einzelnes Individuum bei der genetischen Optimierung im Stundenbereich liegen sollte, ist es notwendig gewesen einen Kompromiss zwischen Anzahl simulierter Partikel und simulierter Rechenzeit zu finden. Es wird deshalb das unter Abschnitt 5.4 beschriebene Ausschnitts-Modell angewendet.

Ein wichtiger Teil des Optimierungsprozesses ist die Definition der Bewertungskette für die einzelnen Individuen. Nachdem eine neue Generation erstellt worden ist, wird für jedes Individuum folgender Ablauf durchgeführt:

- Senden des Individuums zur Bewertung an nächsten freien Arbeitsknoten
- Änderung des vorbereiteten ANSYS ICEM CFD -Templates (.tcl-Skript) mit den entsprechenden Werten der Designvariablen
- Erstellen des Berechnungsgitters in ICEMCFD und Überprüfung der Qualität (wenn das Netz nicht erfolgreich erstellt werden kann, wird das Individuum ungültig und es erfolgt keine Bewertung)
- Durchführung der gekoppelten CFD-DEM-Berechnung mittels CFDEMcoupling (OpenFOAM-LIGGGHTS)
- Berechnung der Zielfunktion.

Pro Generation sind 20 Individuen und die entsprechenden Zielfunktionen vollautomatisiert berechnet worden. Insgesamt sind bei dieser Optimierung 360 Individuen (18 Generationen) bewertet worden. Die Berechnungszeit für ein Individuum auf einem Knoten lag in etwa zwischen 16 und 42 Stunden.

6.2 Ergebnisse

Die Abb. 6.3 zeigt den Plot der Variablen H2, H3 und R2 für die 360 Individuen. Die Farbe der Marker gibt den Wert für die Zielfunktion an, die optimiert werden soll (gelb). Zur besseren Orientierung sind Verlängerungslinien eingezeichnet. Man erkennt, dass Individuen mit besonders guter Zielfunktion, dann erreicht werden, wenn H2 und R2 groß werden. Die Zielfunktion scheint relativ unabhängig von H3 zu sein.

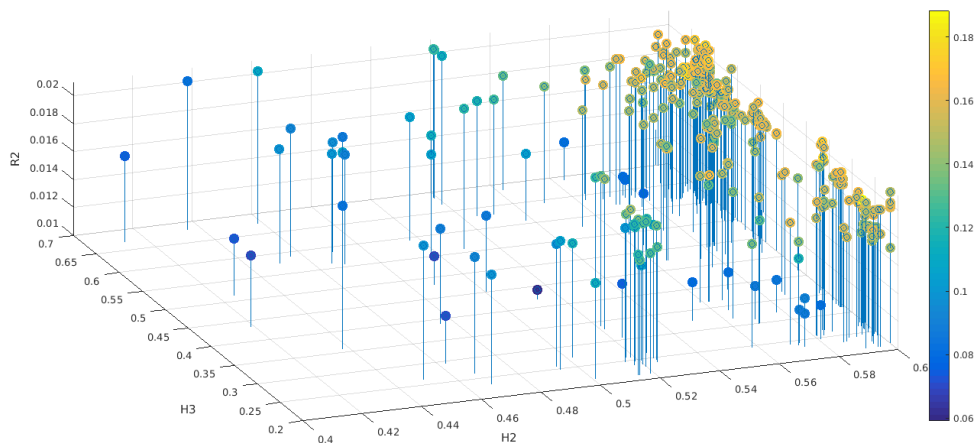


Abb. 6.3 – Plot der Variablen H2, H3 und R2 für 360 Individuen (18 Generationen), die Farbe der Marker gibt den Wert für die Zielfunktion an, die optimiert werden soll (gelb).

Die Abb. 6.4 zeigt den gleichen Plot der Variablen H2, H3 und R2, allerdings gezoomt im Bereich $H3 = 0,55 - 0,6$ m. Der rote Kreis markiert das Individuum mit der höchsten Zielfunktion.

Die Abb. 6.5 zeigt die beiden Konfigurationen, die sich mit ihren Designvariablen besonders stark voneinander unterscheiden, also die beiden Grenzfälle (siehe Abb.

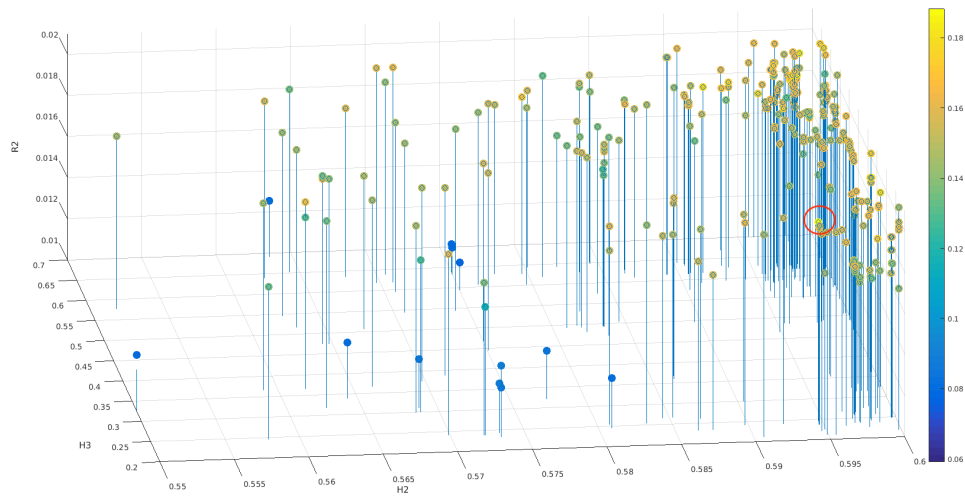


Abb. 6.4 – Plot der Variablen H2, H3 und R2 für 360 Individuen (18 Generationen), die Farbe der Marker gibt den Wert für die Zielfunktion an, die optimiert werden soll (gelb), Zoomdarstellung im Bereich $H3 = 0,55 - 0,6$ m.

6.1) bei einer physikalischen Zeit von $t = 60$ s. Die Zielfunktion der Konfiguration 1 beträgt 5,96 % und ihre Variablenwerte liegen bei $H2 = 0,4$ m, $H3 = 0,7$ m und $R2 = 0,01$ m. Die Zielfunktion der Konfiguration liegt bei 17,37 % und ihre Variablenwerte betragen $H2 = 0,6$ m, $H3 = 0,2$ m und $R2 = 0,021$ m.

Die Abb. 6.6 zeigt die Konfiguration mit der besten Zielfunktion. Sie beträgt 18,83 % und ist somit um 1,46 % verbessert worden im Vergleich zur Konfiguration 2. Dieser Wert scheint zunächst klein. Allerdings wird durch die systematische Optimierung zum einen nachgewiesen, dass es ein Optimum im vorgegebenen Variablenbereich gibt und zum anderen die Konfiguration 2 bestätigt, die von [72] als optimierte Geometrie vorgeschlagen wurde. Dies wird deutlich, wenn man die Variablen der optimierten Konfiguration betrachtet $H2 = 0,5947$ m, $H3 = 0,2444$ m und $R2 = 0,0196$ m, die mit ihren Werten nahe den Variablenwerten der Konfiguration 2 liegen.

In der Abb. 6.7 sind die Anzahlverteilungen der beiden Konfigurationen, die als Grenzfälle angenommen werden und die optimierte Konfiguration dargestellt und deren Zielfunktionen. Bei der optimierten Konfiguration sind nicht nur die meisten größten Partikel vorhanden, sondern auch die meisten Kristalle, was darauf hindeutet, dass bei dieser Konfiguration die meisten Partikel in Schwebelage gehalten werden, was für den Prozess gewünscht ist.

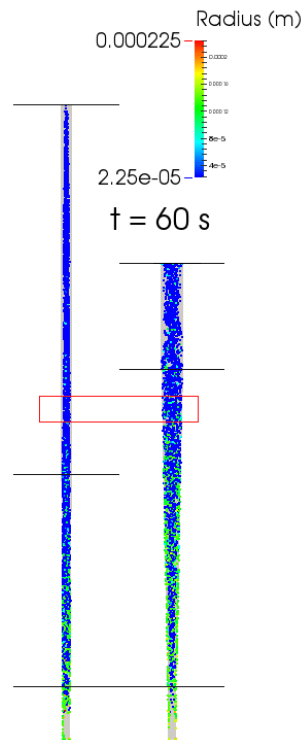


Abb. 6.5 – Die Konfiguration 1 (links) und die Konfiguration 2 (rechts) bei einer physikalischen Zeit von $t = 60$ s.

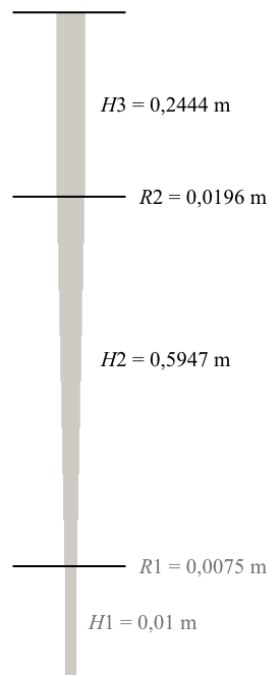


Abb. 6.6 – Geometrische Konfiguration mit der besten Zielfunktion.

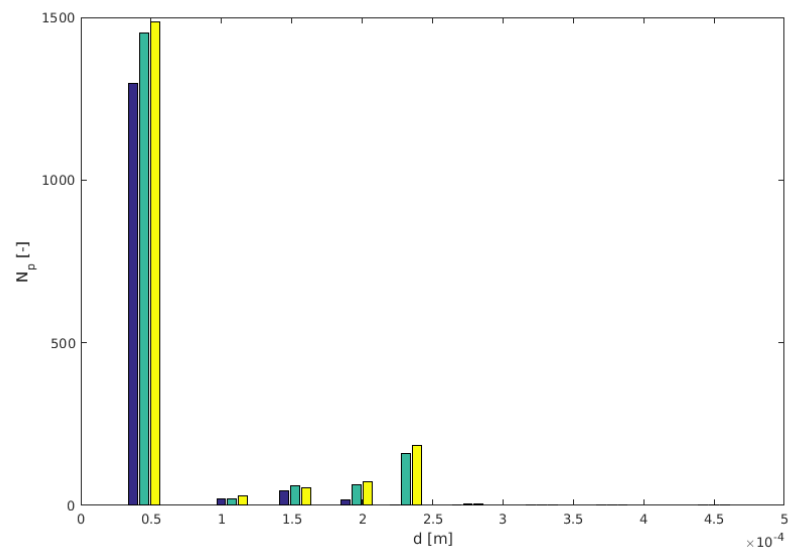


Abb. 6.7 – Absolute Anzahlverteilung der Kristalle, blau - Konfiguration 1, grün - Konfiguration 2, gelb - Konfiguration mit der besten Zielfunktion.

Die Tatsache, dass die optimierte Konfiguration ähnlich zu Konfiguration 2 ist, könnte darauf hinweisen, dass der gewählte Parameterbereich zu klein ist. Eine neue Optimierung mit einem breiteren Parameterbereich (mit größeren zulässigen Werten für H_2 und R_2) wäre interessant, konnte aber aus Zeitgründen nicht mehr durchgeführt werden.

Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde ein Wirbelschichtkristallisator mittels gekoppelter CFD-DEM-Simulationen untersucht. Die Untersuchung bestand aus den folgenden Einzelschritten:

1. Für das Strömungsgebiet des Kristallisators wurde ein entsprechendes Berechnungsgitter generiert. Das Strömungsgebiet wurde charakterisiert und die Verweilzeit des Fluids wurde abgeschätzt. Der *solver* für eine einphasige Simulation wurde ausgewählt und die entsprechenden Randbedingungen und physikalischen Eigenschaften wurden implementiert. Die Konvergenzkriterien wurden für die einphasige Simulation vollständig erfüllt. Ein zweites Berechnungsgitter wurde generiert, das für einen Versuchskristallisator (mit ähnlichen Abmaßen des ursprünglichen Kristallisators, aber etwas vereinfachter) zur Modellvalidierung verwendet wurde. Mittels dieses Gitters wurde eine Gitterunabhängigkeitsstudie durchgeführt. Diese bestimmte das geeignete Gitter für die Hauptsimulationen, welches den besten Kompromiss zwischen Genauigkeit und effizienter Berechnungszeit darstellte.
2. Es erfolgte eine Studie zur Kalibrierung der DEM-Parameter des Feststoffes Asparaginmonohydrat, wobei die Partikelreibung und die Rollreibung mittels eines Böschungswinkelversuches bestimmt wurde. Die Bestimmung der Wandreibung erfolgte mittels einer Jenike-Scherzelle.

3. Zur Validierung des gekoppelten CFD-DEM-Modells wurden Versuche mit Glasperlen in einem speziell designten Kristallisator durchgeführt. Zunächst wurden Sinkversuche durchgeführt, anhand derer das geeignete Widerstandsmodell ausgewählt wurde. Zudem wurden die Sinkgeschwindigkeiten und die Geschwindigkeiten der fluidisierten Partikel mit den Ergebnissen des Modells von Richardson und Zaki verglichen, welche die in guter Näherung übereinstimmten. Die Geschwindigkeitsschwankungen der fluidisierten Partikel sind beim Modell von Richardson und Zaki geringer, weil kein Strömungsprofil erfasst wird, welches sich dann direkt auf die Partikelgeschwindigkeit auswirkt. Unter Berücksichtigung von 100 000 Partikeln zeigten die Vergleiche mit experimentellen High-Speed-Kameraaufnahmen, dass CFD-DEM-Simulationen gut dazu geeignet sind die Partikelpositionen und -geschwindigkeiten vorherzusagen. Insbesondere wird der Übergangspunkt zwischen den Partikeln, die zum oben liegenden Auslass transportiert werden (im Bereich der zentralen Kristallisatorachse), und Kristallen, die nach unten sinken (in der Nähe der Wände), durch die Simulation gut reproduziert.
4. Um kritische hydrodynamische Bereiche im Kristallisator zu identifizieren, wurden einphasige CFD-Simulationen durchgeführt. Diese zeigten, dass der ursprüngliche Produktabzugsstutzen einen negativen Einfluss auf die lokale Hydrodynamik hatte. Dieses Problem wurde durch eine entsprechende Konstruktionsänderung gelöst. Zusätzlich tritt im unteren Bereich des Kristallisators der Zuflussstrom mit dem Auslass zur Zerkleinerung zusammen, was zu Strömungsschwankungen führt. Durch die CFD-Simulationen konnte nachgewiesen werden, dass sich die komplexen Strömungsbedingungen, die im unteren Bereich des Kristallisators vorherrschen, nicht merklich auf das Prozessergebnis über $z \geq 0,3$ m auswirken. In der Nähe des Produktauslasses sollten die reduzierten Modelle demnach in der Lage sein, eine genaue Schätzung zu liefern. Diese Beobachtung wird für die aktuelle Geometrieoptimierung verwendet und unterstützt die eindimensionalen Modelle der AG Mangold.
5. Der reale Prozess beinhaltet Millionen von Kristallen im Mikrometerbereich und ist damit eine große Herausforderung für die Simulation mittels Kopplung zwischen CFD und DEM. Das Hauptproblem bei der Simulation war es einen Kompromiss zwischen simulierter Partikelanzahl und Berechnungszeit zu finden. 100 000 Partikel reichten aus, um das verwendete Modell zu validieren.

Es ist dabei ein guter Kompromiss zwischen Rechendauer und simulierter physikalischer Zeit entstanden, da die Simulation etwa eineinhalb Monate rechnete, um 60 s physikalischer Zeit zu simulieren. Bei den Simulationen des Kristallisators mit realen Abmaßen wurde im Vergleich zum realen Prozess ebenfalls eine reduzierte Suspensionsdichte angenommen. Für Simulationen mit hohen Suspensionsdichten wurde ein Ausschnittsmodell des Kristallisators mit periodischen Randbedingungen entwickelt. Bei der geometrischen Optimierung, bei der zahlreiche Individuen berechnet werden müssen, musste die Berechnungszeit von mehreren Tagen auf Stunden reduziert werden. Dies erfolgte mittels eines Ausschnittsmodells des Kristallisators.

6. Das validierte CFD-DEM-Modell wurde verwendet, um die Geschwindigkeit und die Positionen der Asparagin-Kristalle innerhalb des Kristallisators mit realen Abmaßen zu bestimmen. Dies sind zwei wesentliche Parameter bei der Steuerung des Prozesses. Es wurden Simulationen mit variiertem Suspensionsdichte durchgeführt, die zeigten, dass die Suspensionsdichte einen Einfluss auf die Geschwindigkeit hat. Durch die kurzen realisierbaren Berechnungszeiten würden sich die Simulationsergebnisse mit realistischen Kristallwachstumsraten nur äußerst geringfügig von den Simulationsergebnissen ohne Berücksichtigung von Wachstum unterscheiden, weshalb Wachstum bei den meisten Simulationen vernachlässigt wurde. In einem Fallbeispiel wurde eine stark beschleunigte Wachstumsrate implementiert, um zu prüfen wie sich die Partikeldynamik verändert. Wäre der gesamte Prozess bereits berechenbar, durch größere Rechenleistung, wäre eine Berücksichtigung von Kristallwachstum bereits möglich. Die Simulation von nicht-sphärischen Asparaginkristallen zeigte, dass die Partikelform in dem Prozess nur einen sehr geringen Einfluss auf die Partikelgeschwindigkeit hat. Wenn die Stoffwerte bekannt sind, ist die Berücksichtigung einer konstanten Temperatur im Kristallisator bei den Simulationen möglich. Bei der Simulation von Guafenesinkristallen in Lösung zeigte sich, dass die Temperatur bei diesem Stoffsystem einem sehr großen Einfluss hat.
7. Es wurde für die Kristallisatorgeometrie eine genetische Optimierung mittels der In-house-Software Opal++ realisiert. Es erfolgte dabei die vollautomatisierte, parallelisierte Berechnung von 360 Individuen und deren entsprechenden Zielfunktionen, inklusive einer Gittergenerierung und einer Gitterüberprüfung. Dabei stellte sich eine kürzere und breitere Geometrie als vorteilhaft heraus.

Ein großer Vorteil von Simulationen ist es im Idealfall einen Prozess kostengünstig und schnell zu testen. Die bisherigen Rechenleistungen, die zur Verfügung stehen, reichten jedoch nicht aus, um den Kristallisationsprozess mit realer Kristallanzahl und über eine längere Zeit, relativ zeitnah mittels CFD-DEM-Simulationen abzubilden. Allerdings steigen die Rechnerleistungen enorm und somit könnte auch dieser Prozess, der heute noch nicht vollständig berechenbar ist, in einigen Jahren mittels CFD-DEM-Kopplung vollständig berechenbar sein.

Das verwendete validierte CFD-DEM-Modell ist ein detailliertes und genaues Modell zur Simulation partikelbeladener Strömungen. Dennoch können komplexe Prozessziele wie die Produktivität und die Reinheit nur unter Berücksichtigung von Konzentrationsgradienten innerhalb der flüssigen Phase oder reaktiver Strömungen optimiert werden. Diese Modellerweiterungen standen bei der Anfertigung dieser Arbeit noch nicht zur Verfügung, könnten aber in Zukunft in das Modell implementiert werden.

Insbesondere die automatisierte Optimierung mit OPAL++ birgt großes Potential. Schon allein durch Erweiterung des Parameterbereichs könnten neue Erkenntnisse gewonnen werden. Zudem könnte das Optimierungsmodell erweitert werden z.B. durch eine veränderliche Produktabzugshöhe, einen veränderlichen Volumenstrom oder durch die Einbeziehung weiterer Parameter.

Literaturverzeichnis

- [1] REINHOLD, A. ; BRIESEN, H.: High dimensional population balances for the growth of faceted crystals: Combining Monte Carlo integral estimates and the method of characteristics. In: *Chemical Engineering Science* 127 (2015), S. 220–229
- [2] OCHSENBEIN, D. R. ; SCHORSCH, S. ; SALVATORI, F. ; VETTER, T. ; MORARI, M. ; MAZZOTTI, M.: Modeling the facet growth rate dispersion of β -glutamic acid - Combining single crystal experiments with nD particle size distribution data. In: *Chemical Engineering Science* 133 (2015), S. 30–43
- [3] ASHRAF ALI, B. ; JANIGA, G. ; TEMMEL, E. ; SEIDEL-MORGENSTERN, A. ; THÉVENIN, D.: Numerical analysis of flow characteristics and crystal motion in a batch crystallizer. In: *Journal of Crystal Growth* 372 (2013), S. 219–229
- [4] ASHRAF ALI, B. ; BÖRNER, M. ; PEGLOW, M. ; JANIGA, G. ; SEIDEL-MORGENSTERN, A. ; THÉVENIN, D.: Coupled computational fluid dynamics-discrete element method simulations of a pilot-scale batch crystallizer. In: *Crystal Growth and Design* 15 (2015), S. 145–155
- [5] FRIES, L. ; ANTONYUK, S. ; HEINRICH, S. ; DOPFER, D. ; PALZER, S.: Collision dynamics in fluidised bed granulators: A DEM-CFD study. In: *Chemical Engineering Science* 98 (2013), S. 298–310
- [6] CHEN, Y. ; LIM, C. J. ; GRACE, J. R. ; ZHANG, J. ; ZHAO, Y. ; ZHENG, C.: Characterization of pressure fluctuations from a gas-solid fluidized bed by structure density function analysis. In: *Chemical Engineering Science* 129 (2015), S. 156–167

-
- [7] QIU, L. ; WU, C.: A hybrid DEM/CFD approach for solid-liquid flows. In: *Journal of Hydrodynamics* 26 (2014), S. 19–25
- [8] QAMAR, S. ; GALAN, K. ; ELSNER, M.-P. ; HUSSAIN, I. ; SEIDEL-MORGENSTERN, A.: Theoretical investigation of simultaneous continuous preferential crystallization in a coupled mode. In: *Chemical Engineering Science* 98 (2013), S. 25–39
- [9] LORENZ, H. ; SEIDEL-MORGENSTERN, A.: Processes to separate enantiomers. In: *Angewandte Chemie International Edition* 53 (2014), S. 1218–1251
- [10] FAYZULLIN, R.R. ; LORENZ, H. ; BREDIKHINA, Z.A. ; BREDIKHIN, A.A. ; SEIDEL-MORGENSTERN, A.: Solubility and some crystallization properties of conglomerate forming chiral drug guaifenesin in water. In: *Journal of Pharmaceutical Sciences* 10 (2014), S. 3176–3182
- [11] EICKE, M. J. ; LEVILAIN, G. ; SEIDEL-MORGENSTERN, A.: Efficient resolution of enantiomers by coupling preferential crystallization and dissolution. In: *Crystal Growth and Design* 13 (2013), S. 1638–1648
- [12] BINEV, D.: *Continuous fluidized bed crystallization*. Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, Diss., 2015
- [13] BINEV, D. ; SEIDEL-MORGENSTERN, A. ; LORENZ, H.: Continuous separation of isomeres in fluidized bed crystallizers. In: *Crystal Growth and Design* 16 (2016), S. 1409–1419
- [14] TEMMEL, E. ; EISENSCHMIDT, H. ; LORENZ, H. ; SUNDMACHER, K. ; SEIDEL-MORGENSTERN, A.: A short-cut-method for the quantification of crystallization kinetics - Part 1: Method development. In: *Crystal Growth and Design* 16 (12) (2016), S. 6743–6755
- [15] HARRIS, C. K. ; ROEKAERTS, D. ; ROSENDAL, F. J. J. ; BUITENDIJK, F. G. J. ; DASKOPOULOS, Ph. ; VREENEGOR, A. J. N. ; WANG, H.: Computational fluid dynamics for chemical reactor engineering. In: *Chemical Engineering Science* 51 (1996), S. 1569–1594

-
- [16] FRIES, L. ; ANTONYUK, S. ; S.HEINRICH ; PALZER, S.: DEM-CFD modeling of a fluidized bed spray granulator. In: *Chemical Engineering Science* 66 (2011), S. 2340–2355
- [17] CROWE, C. T.: *Multiphase flow handbook*. Taylor and Francis Boca Raton USA, ISBN 9780849312809, 2005
- [18] SOMMERFELD, M. ; WACHEM, B. van ; OLIEMANS, R.: Best practice guidelines for computational fluid dynamics of dispersed multi-phase flows. In: *ERCOFTAC* ISBN: 978-91-633-3564-8 (2008)
- [19] DARÓCZY, L. ; JANIGA, G. ; THÉVENIN, D.: Systematic analysis of the heat exchanger arrangement problem using multi-objective genetic optimization. In: *Energy* 65 (2014), S. 364–373
- [20] MÜLLER, P. ; TOMAS, J.: Simulation and calibration of granules using the discrete element method. In: *Particuology* 12 (2014), S. 40–43
- [21] REEH, A.: *Simulation eines kontinuierlichen flüssig-fest Kristallisators mittels CFD-DEM Kopplung in StarCCM+ (Masterarbeit)*. Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 2016
- [22] CUNDALL, P. A. ; STRACK, O. D. L.: A discrete numerical model for granular assemblies. In: *Géotechnique*, 29(1) 29(1) (1979), S. 47–65
- [23] HERTZ, H.: Über die Berührung fester elastischer Körper. In: *J. Reine Angew. Math.* 92 (1882), S. 156–171
- [24] MINDLIN, R.D.: Compliance of elastic bodies in contact. In: *J. Appl. Mech.* 16 (1949), S. 259–268
- [25] GONIVA, C. ; KLOSS, C. ; DEEN, N. G. ; KUIPERS, J. A. M. ; PIRKERS, S.: Influence of rolling friction on single spout fluidized bed simulation. In: *Particuology* 10 (2012), S. 582–591
- [26] SALIKOV, V. ; ANTONYUK, S. ; HEINRICH, S. ; SUTKAR, V.S. ; DEEN, N.G. ; KUIPERS, J.A.M.: Characterization and CFD-DEM modelling of a prismatic spouted bed. In: *Powder Technology* 270 (2015), S. 622–636

-
- [27] POPOV, V. L.: *Kontaktmechanik und Reibung. Ein Lehr- und Anwendungsbuch von der Nanotribologie bis zur numerischen Simulation*. Berlin u.a. : Springer, 2009
- [28] KLOSS, C. ; AIGNER, A. ; AMBERGER, S. ; GONIVA, C.: *LIGGGHTS User Manual*, online 2019. – www.cfdem.com/media/DEM/docu/Manual.html
- [29] BLAIS, B. ; LASSAIGNE, M. ; GONIVA, C. ; FRADETTE, L. ; BERTRANDA, F.: Development of an unresolved CFD-DEM model for the flow of viscous suspensions and its application to solid-liquid mixing. In: *Journal of Computational Physics* 318 (2016), S. 201–221
- [30] STROPPE, Heribert: *Physik für Studierende der Natur- und Ingenieurwissenschaften, Edition 15*. Carl Hanser Verlag, 2011
- [31] WENSRICH, C. M. ; KATTERFELD, A.: Rolling friction as a technique for modelling particle shape in DEM. In: *Powder Technology* 217 (2012), S. 409–417
- [32] AI, J. ; CHEN, J.-F. ; ROTTER, J. M. ; OOI, J. Y.: Assessment of rolling resistance models in discrete element simulations. In: *Powder Technology* 206 (2011), S. 269–282
- [33] FERZIGER, J. H. ; PERIĆ, M.: *Numerische Strömungsmechanik*. Berlin Heidelberg New York : Springer Verlag, 2002
- [34] OERTEL, H. ; LAURIEN, E.: *Numerische Strömungsmechanik*. Braunschweig/Wiesbaden : Vieweg Verlag, 2003
- [35] LECHERER, Stefan: *Numerische Strömungsberechnung*. Wiesbaden : Vieweg+Teubner, 2009
- [36] DI FELICE, R.: The voidage function for fluid-particle interaction systems. In: *International Journal of Multiphase Flow* 20(1) (1993), S. 153–159
- [37] DALLAVALLE, J. M.: *Micromeritics : the technology of fine particles*. Pitman Publishing Corporation, 1948

- [38] SCHILLER, L. ; NAUMANN, A.: Über die grundlegenden Berechnungen der Schwerkraftsaufbereitung. In: *Zeitschrift des Vereins deutscher Ingenieure* 77(12) (1933), S. 318–320
- [39] *StarCCM+ User Guide.* : *StarCCM+ User Guide*, 2015. – Version 10.02,
- [40] HAIDER, A. ; LEVENSPIEL, O.: Drag coefficient and terminal velocity of spherical and nonspherical particles. In: *Powder Technology* 58(1) (1989), S. 63–70
- [41] GONIVA, C. ; KLOSS, C.: *CFDEMcoupling Documentation.* online 2016. – www.cfdem.com
- [42] HAGER, A. ; KLOSS, C. ; PIRKER, S. ; GONIVA, C.: Parallel open source CFD-DEM for resolved particle-fluid interaction. In: *Journal of Energy and Power Engineering* 7 (2013), S. 1705–1712
- [43] RICHARDSON, J. F. ; ZAKI, W. N.: Sedimentation and fluidisation Part 1. In: *Trans. Inst. Chem. Eng.* 32 (1954), S. 35–53
- [44] GIBILARO, L. G.: *Fluidization Dynamics.* Oxford, UK : Butterworth-Heinemann, 2001
- [45] MANGOLD, M. ; KHLOPOV, D. ; DANKER, G. ; PALIS, S. ; SVJATNYJ, V. ; KIENLE, A.: Development and nonlinear analysis of dynamic plant models in ProMoT/Diana. In: *Chemie Ingenieur Technik* 86 (2014), S. 1107–1116
- [46] OPENFOAM: *User Guide.* online 2016. – openfoam.org
- [47] ISSA, R. I.: Solution of the implicitly discretised fluid flow equations by operator-splitting. In: *Journal of Computational Physics* 62 (1986), S. 40–65
- [48] JASAK, H.: *Error Analysis and Estimation for the Finite Volume Method with Applications to Fluid Flows.* Imperial College London, Diss., 1996
- [49] SANDIA NATIONAL LABORATORIES: *LAMMPS Molecular Dynamics Simulator.* online 2016. – lammeps.sandia.gov
- [50] GONIVA, C. ; KLOSS, C. ; HAGER, A. ; PIRKERS, S.: An open source CFD-DEM perspective. In: *Proceedings of OpenFOAM-Workshop Gothenburg* (2010), S. 22–24

-
- [51] WU, C. L. ; AYENIA, O. ; BERROUK, A. S. ; NANDAKUMARA, K.: Parallel algorithms for CFD-DEM modeling of dense particulate flows. In: *Chemical Engineering Science*, 118, 221-244 118 (2014), S. 221–244
- [52] FRITZ, A. H. ; SCHULZE, G.: *Fertigungstechnik*. Berlin : Springer Verlag, 2012
- [53] BÖRNER, M.: *Feststoffdynamik und Partikelverweilzeit am Beispiel der Top-Spray Wirbelschichtgranulation*. Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, Diss., 2013
- [54] BIERWISCH, C. S.: *Numerical Simulations of Granular Flow and Filling*. Albert-Ludwigs-Universität Freiburg, Diss., 2009
- [55] HILTON, J. E. ; CLEARY, P. W.: Comparison of non-cohesive resolved and coarse grain DEM models for gas flow through particle beds. In: *Applied Mathematical Modelling* 38(17-18) (2014), S. 4197–4214
- [56] CLEARY, P. W. ; SAWLEY, M. L.: DEM modelling of industrial granular flows: 3D case studies and the effect of particle shape on hopper discharge. In: *Applied Mathematical Modelling* 26(2) (2002), S. 89–111
- [57] SAKAI, M. ; KOSHIZUKA, S.: Large-scale discrete element modeling in pneumatic conveying. In: *Chemical Engineering Science* 64(3) (2009), S. 533–539
- [58] SAKAI, M. ; TAKAHASHI, H. ; PAIN, C. C. ; LATHAM, J.-P. ; XIANG, J.: Study on a large- scale discrete element model for fine particles in a fluidized bed. In: *Advanced Powder Technology* 23(5) (2012), S. 673–681
- [59] LINK, J. M. ; GODLIEB, W. ; TRIPP, P. ; DEENA, N. ; HEINRICH, S. ; J. KUIPERS, M. S. ; PEGLOW, M.: Comparison of fibre optical measurements and discrete element simulations for the study of granulation in a spout fluidised bed. In: *Powder Technology* 189 (2009), S. 202–217
- [60] MAIO, F. P. D. ; RENZO, A. D.: Verification of scaling criteria for bubbling fluidized beds by DEM-CFD simulation. In: *Powder Technology* 248 (2013), S. 161–171
- [61] HEINRICH, S. ; DOSTA, M. ; ANTONYUK, S.: Multiscale Analysis of a Coating Process in a Wurster Fluidized Bed Apparatus. In: *Advances in Chemical Engineering* 46 (2015), S. 83–135

- [62] KOCH, D. L. ; HILL, R. J.: Inertial effects in suspension and porous-media flows. In: *Annual Reviews of Fluid Mechanics* 33 (2001), S. 619–647
- [63] VEREIN DEUTSCHER INGENIEURE (VDI-GVC): *VDI - Wärmeatlas. Recherchieren - Berechnen - Konstruieren*. Berlin, Heidelberg : Springer Verlag, 8. Auflage, 1997
- [64] KERST, K. ; ROLOFF, C. ; MEDEIROS DE SOUZA, L. ; BARTZ, A. ; SEIDEL-MORGENSTERN, A. ; THÉVENIN, D. ; JANIGA, G.: CFD-DEM simulations of a fluidized bed crystallizer. In: *Chemical Engineering Science* 165 (2017), S. 1 – 13
- [65] PADDING, J. ; DEEN, N. ; PETERS, E. ; KUIPERS, J.: Euler-Lagrange modeling of the hydrodynamics of dense multiphase flows. In: *Advances in Chemical Engineering* 46 (2015), S. 137–191
- [66] OTTO, H. ; KERST, K. ; ROLOFF, C. ; JANIGA, G. ; KATTERFELD, A.: CFD-DEM simulation and experimental investigation of the flow behavior of lunar regolith JSC-1A. In: *Particuology* 40 (2018), S. 34–43
- [67] ROESSLER, T. ; RICHTER, C. ; KATTERFELD, A. ; WILL, F.: Development of a standard calibration procedure for the DEM parameters of cohesionless bulk materials - part I: Solving the problem of ambiguous parameter combinations. In: *Powder Technology* 343 (2019), S. 803–812
- [68] ROESSLER, T. ; KATTERFELD, A.: Scaling of the angle of repose test and its influence on the calibration of DEM parameters using upscaled particles. In: *Powder Technology* 330 (2018), S. 58–66
- [69] JENIKE, A.: *Storage and flow of solids*. University of Utah, Salt Lake City, USA, Diss., 1970
- [70] MARCHIOLI, C. ; FANTONI, M. ; SOLDATI, A.: Orientation, distribution, and deposition of elongated, inertial fibers in turbulent channel flow. In: *Physics of Fluids* 22 (3) (2010)
- [71] REDLINGER-POHN, J. D. ; JAGIELLO, L. A. ; BAUER, Wolfgang ; RADL, Stefan: Mechanistic understanding of size-based fiber separation in coiled tubes. In: *International Journal of Multiphase Flow* 83 (2016), S. 239–253

- [72] MANGOLD, M. ; KHLOPOV, D. ; TEMMEL, E. ; LORENZ, H. ; SEIDEL-MORGENSTERN, A.: Modelling geometrical and fluid-dynamic aspects of a continuous fluidized bed crystallizer for separation of enantiomers. In: *Chemical Engineering Science* 60 (2017), S. 281–290
- [73] DARÓCZY, László: *OPAL++ command line interface manual*. 2017
- [74] DEB, K. ; PRATAP, A. ; AGARWAL, S. ; MEYARIVAN, T.: A fast and elitist multi-objective genetic algorithm: NSGA-II. In: *IEEE Transactions on Evolutionary Computation* 6 (2002), S. No. 2

Schriftliche Erklärung

Ich erkläre hiermit, dass ich die vorliegende Arbeit ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Gedanken sind als solche kenntlich gemacht.

Insbesondere habe ich nicht die Hilfe einer kommerziellen Promotionsberatung in Anspruch genommen. Dritte haben von mir weder unmittelbar noch mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen.

Die Arbeit wurde bisher weder im Inland noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form als Dissertation eingereicht und ist als Ganzes auch noch nicht veröffentlicht.

Magdeburg, 18. Oktober 2019

Danksagung

Für die finanzielle Unterstützung der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) im Rahmen des Forschungsprogramms SPP 1679 „Dynamische Simulation vernetzter Feststoffprozesse“ und die finanzielle Unterstützung des Landes Sachsen-Anhalt für meine Promotion bedanke ich mich sehr.