



# Verweilzeitverhalten von partikulären Gütern in kontinuierlich betriebenen Wirbelschichttrinnen am Beispiel von Trocknung und Coating

## **Dissertation**

zur Erlangung des akademischen Grades

**Doktoringenieur  
(Dr.-Ing.)**

von Dipl.-Ing. Philipp Bachmann  
geb. am 28.02.1984 in Dresden

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

Promotionskommission: Prof. Dr.-Ing. Frank Beyrau (Vorsitz)  
Prof. Dr.-Ing. habil. Prof. h.c. Evangelos Tsotsas (Gutachter)  
Prof. Dr.-Ing. habil. Dr. h.c. Lothar Mörl (Gutachter)  
Prof. Dr.-Ing. Andreas Bück (Gutachter)

eingereicht am: 05.10.2019  
Promotionskolloquium am: 17.01.2020





---

# Kurzzusammenfassung

In der chemischen und pharmazeutischen Industrie werden zur Verarbeitung von partikulären Gütern, sowohl zu Zwischen- als auch Endprodukten mit definierten Eigenschaften, häufig Wirbelschichtanlagen eingesetzt. Derartige Anlagen sind geeignet beispielsweise die Handhabung von feinen Schüttgütern zu verbessern, indem die Partikelgröße beim Coating erhöht wird. Auch die Lagerstabilität von dispergierten Feststoffen kann erhöht werden, indem diesen gleichmäßig Feuchtigkeit durch Trocknung entzogen wird. Mit der diskontinuierlichen oder kontinuierlichen Verfahrensweise existieren zwei grundlegende Prozessmöglichkeiten, welche jeweils Vor- und Nachteile aufweisen. Auf der einen Seite ermöglicht der diskontinuierliche Prozess beispielsweise die Produktion von partikulären Gütern mit eng verteilten Zieleigenschaften. Dies ist beim kontinuierlichen Verfahren, auf Grund des Verweilzeitverhaltens der Partikel in der Wirbelschicht, kaum zu erreichen. Auf der anderen Seite ist die Produktion im kontinuierlichen Prozess kostengünstiger, da im stationären Betrieb kaum Stillstandzeiten anfallen. Auf Grund der geringeren Kosten und des hohen realisierbaren Durchsatzes ist die kontinuierliche Produktion besonders interessant und wird in der vorliegenden Arbeit genauer betrachtet. Die Herausforderung liegt darin, das Partikelverweilzeitverhalten derart zu beeinflussen, dass eine möglichst schmale Verteilung der Partikeleigenschaften im Endprodukt erreicht wird.

Diese Dissertation gliedert sich in sechs Kapitel. Kapitel 1 gibt eine Einleitung in die Wirbelschichttechnologie mit verschiedenen technischen Ausführungen. Darüber hinaus wird die Problematik der Verweilzeit der Partikel im kontinuierlichen Prozess genauer erläutert. Anschließend werden allgemeine Grundlagen zur Wirbelschichttrocknung und relevante Arbeiten aus der Literatur vorgestellt. Nachfolgend rückt die Ummantelung von partikulären Gütern, das sogenannte Coating, in den Fokus, wobei ein Einblick in den derzeitigen Stand des Wissens gegeben wird. Abschließend wird die Zielstellung der Arbeit definiert und sowohl auf die experimentelle Untersuchung als auch auf die mathematische Modellbildung und Simulation der drei Hauptaspekte – Verweilzeitverhalten, Trocknung und Coating – eingegangen.

In Kapitel 2 wird das experimentelle Setup behandelt. Hierbei wird zunächst die verwendete Anlagentechnik beschrieben und die eingesetzten Versuchsmaterialien vorgestellt. Im Anschluss wird die genutzte Messtechnik zur Analyse der partikulären Proben beleuchtet.

Kapitel 3 widmet sich dem Verweilzeitverhalten von Partikeln in Wirbelschichttrinnen. Zunächst wird die Vorgehensweise zur experimentellen Untersuchung der Verweilzeitverteilung beschrie-

---

ben und anschließend die unterschiedlichen Möglichkeiten der Auswertung der Messdaten aufgezeigt. Des Weiteren wird auf die experimentelle Variation von Betriebsparametern eingegangen und der Einfluss von internen Wehren untersucht. Daraufhin werden eine Korrelation für die dimensionslose Bodensteinzahl, abhängig von der gewählten Wehrkonfiguration, und eine Korrelation für die Bettmasse erstellt. Abschließend werden hieraus Verweilzeitverteilungen berechnet und mit den experimentell bestimmten Daten verglichen. Es ergibt sich eine gute Übereinstimmung von Experiment und Simulation. Demnach ist eine Vorhersage der Verweilzeitverteilung von Partikeln in der kontinuierlich betriebenen Wirbelschichttrinne möglich.

In Kapitel 4 wird die Trocknung von Partikeln in der Wirbelschichttrinne untersucht. Nach einer Erläuterung zur Durchführung von Trocknungsexperimenten werden theoretische Grundlagen dargestellt. Nachdem auf die Bestimmung der Feuchte von Einzelpartikeln eingegangen wurde, wird die experimentelle Variation von Betriebsparametern behandelt, durch die der Einfluss von Temperatur und unterschiedlicher Wehrkonfiguration auf das Trocknungsergebnis ermittelt wurde. Anschließend wird ein ausführlicher Einblick in die populationsdynamische Berechnung der Partikelfeuchte gegeben, wobei die Kopplung der in Kapitel 3 erstellten Korrelation der Verweilzeitverteilung mit dem Trocknungsmodell einen wesentlichen Gesichtspunkt darstellt. Diese erfolgt sowohl mit Hilfe eines Kaskadenmodells als auch über die Verweilzeitverteilung selbst. Anschließend werden die Ergebnisse miteinander verglichen. Darüber hinaus wird eine Studie durchgeführt, wobei die Variation der Simulationsparameter deren Einfluss auf das Trocknungsverhalten der Partikel erkennen lässt. Zuletzt werden die experimentellen Werte den aus der Simulation hervorgehenden Daten gegenübergestellt.

In Kapitel 5 wird das Partikelcoating in der Wirbelschichttrinne, die Ummantelung von Partikeln mit einem Feststoff, thematisiert. Zunächst findet eine Beschreibung zur experimentellen Durchführung statt. Im Folgenden wird die Analyse von Partikelproben zur Bestimmung der Verteilung von Schichtdicke und -porosität beschrieben. Dies erfolgt sowohl für Einzelpartikel als auch für die Verteilung über die gesamte Partikelpopulation. Einer experimentellen Parametervariation folgt die Beschreibung der Modellierung des Coatingprozesses mit Hilfe von Populationsbilanzgleichungen. Wie in Kapitel 4 erfolgt auch hier zwingend die Einbindung einer in Kapitel 3 korrelierten Verweilzeitverteilung eines beliebigen Prozesses, unter Annahme eines Kaskadenmodells. Nach einer Gegenüberstellung von experimentellen Ergebnissen und Simulationsdaten, findet abschließend eine Variation von Simulationsparametern statt.

Kapitel 6 fasst die experimentell bestimmten Effekten werden die Abhängigkeiten der berücksichtigten verteilten Partikeleigenschaften vom Partikelverweilzeitverhalten sowie die mathematische Modellbildung mittels Populationsbilanzen beurteilt. Abgeschlossen wird die Arbeit mit einem Ausblick auf nachfolgende Untersuchungen, sowohl experimenteller Art als auch zur Modellierung. Darüber hinaus werden eventuell notwendige Anpassungen der abgeleiteten Korrelationen an weitere Prozesse erläutert.

# Abstract

In pharmaceutical and chemical industry the conversion of particulate materials or powders into intermediates or final products, holding certain properties, is often conducted in fluidized beds. The general goal is usually to ease the handling during production, e.g. by increasing particle size via coating, or to increase storage stability of solids, by removing water or other solvents via fluidized bed drying.

There are discontinuous and continuous processes with different advantages and disadvantages. The former holds the advantage of a narrow property distribution, which hardly can be reached in a continuously conducted process, due to its residence time distribution (RTD). The latter, however, are cost efficient, since they have barely any dead-time in steady-state and low requirement of maintenance.

Due to its cost efficiency and the high output, and despite the lower product quality, the continuous process is highly aspired and therefore the focus of the present work. Hence, this thesis deals with horizontal fluidized beds and the general goal to minimize the negative effects of the residence time distribution on distributed particle properties.

This work consists of six chapters. Chapter 1 is introducing into fluidized bed technology and the variety of different plant designs. The problem of the influence of particle residence time behavior on product quality is illustrated before an overview of fluidized bed drying is given, including investigations from literature. Following, a summary of the coating process in horizontal fluidized beds is given together with the current state of the art. Concluding the chapter the overall aim of this work is defined, which is the experimental investigation as well as the mathematical modeling and the subsequent simulation of the three key topics - residence time behavior, drying and coating of particulate products in horizontal fluidized beds.

Chapter 2 describes the experimental background from plant design and used materials to techniques of measurement to analyse particulate samples. The latter include coulometry and NMR-spectroscopy, computed tomography and microscopy.

Chapter 3 covers the residence time behavior of particles in horizontal fluidized beds in detail. After a brief introduction to experimental conduction the different methods to analyze particle samples are explained. An experimental investigation has been conducted, varying the operating parameters in two different horizontal fluidized bed plants. In order to minimize particle dispersion and thus the variance of property distributions, internal baffles have been applied and their

---

effect is discussed. Based on the experimental data as well as on data from literature, a correlation for the dimensionless Bodenstein number is established, indicating the ratio of dispersion to convective particle transport. Therefore, the configuration with internal baffles is taken into account. Furthermore a correlation for the holdup mass is derived to calculate the mean residence time. From these correlations, residence time distributions are calculated and compared to experimentally determined RTDs, indicating a high agreement. This proves that the prediction of particle RTD in a given horizontal fluidized bed is possible.

Chapter 4 addresses the particle drying in horizontal fluidized beds. After characterizing the experiments, the theoretical background is presented and the determination of single particle moisture content is highlighted. Subsequently, an experimental variation of operating parameters is presented to reveal their effects as well as the effects of internal baffles on the drying results and, moreover, on the distribution of particle moisture content. Using population balance equations, a mathematical model is derived considering the coupling with the correlations of Chapter 3 for different residence time distributions. For this purpose, a tank-in-series model and the correlated RTD itself are used. To understand the influence of parameters on the simulation results, a variation is conducted. In the end the experimentally obtained data are compared to the moisture content distributions from the simulation, indicating a fair agreement.

In Chapter 5 the particle coating process is investigated. At first the experimental conduction is introduced. Then the analysis of particles regarding the layer thickness distribution on a single particle and over the population is described. Additionally, the determination of the porosity distributed over the particle population is shown. After presenting various experiments with internal baffles, an insight is given to the mathematical modeling, focusing on the layer thickness distribution over the particle population. The main goal is to include the information from the residence time correlations of Chapter 3 into the coating model. This is realized using a tank-in-series model with reflux. After comparison of experiments and simulations, indicating a good agreement, a variation of simulation parameters is presented, revealing their influence on the coating layer thickness distribution.

Finally, Chapter 6 concludes the present work. Influences of operating parameters on the experimentally determined particle transport behavior as well as on the investigated particle property distributions are summarized. Furthermore a brief insight on the modeling of the latter is given, using population balance equations and diverse methods for the integration of the particle residence distribution, which was empirically correlated in Chapter 3.

The work is completed with an outlook concerning possible future investigations, the adjustment of the derived correlations to other processes, such as agglomeration, and suggestions for further experimental investigations and modeling further processes.



# Inhaltsverzeichnis

<b>Vorwort</b>	<b>I</b>
<b>Kurzzusammenfassung</b>	<b>III</b>
<b>Abstract</b>	<b>V</b>
<b>Inhaltsverzeichnis</b>	<b>VII</b>
<b>Nomenklatur</b>	<b>XI</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1 Allgemeines . . . . .	1
1.2 Einführung in die Wirbelschichttechnologie . . . . .	3
1.3 Unterschiedliche Ausführungen von Wirbelschichten . . . . .	3
1.4 Verweilzeitverhalten in Wirbelschichtrinnen . . . . .	6
1.5 Trocknung in Wirbelschichtrinnen . . . . .	10
1.6 Coating in Wirbelschichtrinnen . . . . .	13
1.7 Zielstellung . . . . .	19
<b>2 Experimentelles Setup</b>	<b>21</b>
2.1 Aufbau der verwendeten Wirbelschichtrinnen . . . . .	21
2.2 Verwendete Materialien . . . . .	23
2.3 Geräte und Messtechnik zur Partikelanalyse . . . . .	25
2.3.1 Coulometrie . . . . .	25
2.3.2 Kernspinresonanzspektroskopie - nuclear magnetic resonance (NMR) . . . . .	26
2.3.2.1 Kombination aus Coulometrie und Kernspinresonanzspektroskopie . . . . .	29
2.3.3 Micro-Computertomographie ( $\mu$ -CT) . . . . .	29
2.3.4 Kameraoptisches Messsystem zur Partikelgrößenbestimmung (Camsizer) . . . . .	31
2.3.5 Rasterelektronenmikroskopie (REM) . . . . .	32
<b>3 Verweilzeitverteilung in Wirbelschichtrinnen</b>	<b>33</b>
3.1 Durchführung von Verweilzeitexperimenten . . . . .	33
3.2 Berechnung und Auswertung von Verweilzeitverteilungen . . . . .	34
3.2.1 Momentenmethode . . . . .	36
3.2.2 Kaskadenmodell . . . . .	38
3.2.3 Dispersionsmodell . . . . .	39
3.2.4 Vergleich der Methoden zur Analyse von experimentellen Verweilzeitverteilungen . . . . .	42

3.3	Experimentelle Parametervariation und Diskussion der Ergebnisse . . . . .	44
3.3.1	Einfluss der Prozessparameter auf die Verweilzeitverteilung . . . . .	44
3.3.2	Einfluss interner vertikaler Wehre . . . . .	48
3.3.2.1	Interne Wehre in Unterlaufkonfiguration . . . . .	48
3.3.2.2	Interne Wehre in Überlaufkonfiguration . . . . .	50
3.3.2.3	Einfluss nicht-äquidistanter Wehrplatzierung . . . . .	51
3.3.2.4	Einfluss von Partikelgrößenmischungen auf die Verweilzeitverteilung . . . . .	52
3.4	Herleitung spezifischer Korrelationen . . . . .	54
3.4.1	Korrelation der Bodensteinzahl ohne interne Wehre . . . . .	54
3.4.2	Korrelation der Bodensteinzahl mit internen Wehren . . . . .	61
3.4.2.1	Korrelation der Bodensteinzahl in Unterlaufkonfiguration . . . . .	61
3.4.2.2	Korrelation der Bodensteinzahl in Überlaufkonfiguration . . . . .	62
3.4.3	Korrelation der Bettmasse . . . . .	63
3.4.4	Berechnung einer beliebigen Verweilzeitverteilung . . . . .	67
<b>4</b>	<b>Trocknung in Wirbelschichttrinnen</b>	<b>69</b>
4.1	Durchführung von Trocknungsexperimenten . . . . .	69
4.2	Theoretische Grundlagen der Wirbelschichttrocknung . . . . .	70
4.3	Bestimmung der Einzelpartikelfeuchte . . . . .	71
4.4	Experimentelle Parametervariation und Diskussion . . . . .	73
4.4.1	Einfluss der Betriebstemperatur . . . . .	73
4.4.2	Einfluss der Austrittswehrhöhe . . . . .	73
4.4.3	Einfluss interner Einbauten . . . . .	75
4.4.4	Einfluss der Höhe des Unterlaufspaltes . . . . .	75
4.4.5	Einfluss der Betriebstemperatur mit internen Einbauten . . . . .	75
4.5	Modellierung der Trocknungsversuche . . . . .	76
4.5.1	Bilanzierung der dispersen Partikelphase . . . . .	77
4.5.2	Bilanzierung der Gasphase . . . . .	80
4.5.3	Bilanzierung der Apparatewand . . . . .	81
4.5.4	Stoff- und Wärmeübergang zwischen Suspensionsgas und Partikeln . . . . .	81
4.5.5	Stoff- und Wärmeübergang zwischen Suspensions- und Bypassgasphase . . . . .	84
4.5.6	Wärmeübergang zwischen Gas und Apparatewand . . . . .	85
4.5.7	Wärmeübergang zwischen Partikeln und Apparatewand . . . . .	86
4.6	Ergebnisse aus der Simulation . . . . .	86
4.6.1	Simulationsergebnisse des Kaskadenmodells . . . . .	86
4.6.2	Simulationsergebnisse nach Kopplung der Verweilzeitverteilung . . . . .	90
4.7	Variation der Simulationsparameter im Trocknungsmodell . . . . .	90
4.8	Validierung des Trocknungsmodells . . . . .	95
<b>5</b>	<b>Coating in Wirbelschichttrinnen</b>	<b>97</b>
5.1	Durchführung von Coatingversuchen . . . . .	97
5.2	Analyse von Coatingversuchen . . . . .	97
5.2.1	Bestimmung der Schichtporosität von Einzelpartikeln . . . . .	98
5.2.1.1	Mikroskopie und Gravimetrie . . . . .	98
5.2.1.2	Mikro-Computer-Tomographie ( $\mu$ -CT) . . . . .	99

5.2.2	Bestimmung der Verteilung der Schichtporosität über die Partikelpopulation	100
5.2.3	Bestimmung der Schichtdickenverteilung auf Einzelpartikeln mittels Mikro-Computertomographie . . . . .	100
5.2.4	Bestimmung der Schichtdickenverteilung über der Partikelpopulation . .	102
5.2.4.1	Mikroskopie . . . . .	102
5.2.4.2	Mikro-Computertomographie ( $\mu$ -CT) . . . . .	103
5.2.4.3	Camsizer . . . . .	103
5.2.4.4	Optischer Nachweis zur Güte der Partikelwaschung mittels REM	104
5.3	Modellierung der Coatingversuche . . . . .	104
5.4	Ergebnisse und Diskussion der Untersuchung des Coatingprozesses . . . . .	108
5.4.1	Experimentelle Parametervariation - Einfluss auf die Schichtdicke und -porosität . . . . .	108
5.4.2	Validierung des Coatingmodells . . . . .	114
5.4.3	Variation der Simulationsparameter im Coatingmodell . . . . .	121
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>129</b>
6.1	Zusammenfassung . . . . .	129
6.2	Ausblick . . . . .	133
<b>A</b>	<b>Messwerte und Simulationsergebnisse</b>	<b>135</b>
<b>B</b>	<b>Diskretisierung der Dispersions-Konvektions-Gleichung</b>	<b>147</b>
<b>C</b>	<b>Stoffdaten</b>	<b>151</b>
C.1	Berechnung Sattedampfdruck . . . . .	151
C.2	Berechnung Wärmeübergangskoeffizient . . . . .	151
<b>D</b>	<b>Abbildungen</b>	<b>153</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>156</b>
	<b>Studentische Arbeiten</b>	<b>167</b>
	<b>Veröffentlichungen</b>	<b>169</b>
	<b>Lebenslauf</b>	<b>171</b>



# Nomenklatur

## Lateinische Symbole

$A$	Fläche	$m^2$
$B$	Breite	m
$\vec{B}$	magnetisches Feld	T
$c$	spez. Wärmekapazität	J/kg/K
$C$	Massenbeladung	kg/kg
$\dot{C}$	Strom der Massenbeladung	kg/kg/s
$d$	Durchmesser	m
$D$	Dispersions-/Diffusionskoeffizient	$m^2/s$
$E$	normierte Massenbeladung	1/s
$f(x)$	beliebige Verteilungsfunktion	-
$g$	Erdbeschleunigung	$m/s^2$
$G$	Alterungs-/Wachstumsrate	s/s; m/s
$h$	Enthalpiedichte	J/s
$H$	Enthalpie	J
$H$	Höhe	m
$\dot{H}$	Enthalpiestrom	J/s
$k$	Exponent	-
$K$	Hilfsfunktion/Platzhalter	-
$L$	Länge	m
$m$	Massendichte	kg/s
$M$	Masse	kg
$M$	Moment	-
$\tilde{M}$	molare Masse	kg/kmol
$\dot{M}$	Massenstrom	kg/s
$n$	Anzahldichte	1/kg/kg; 1/m
$\dot{n}$	Anzahldichtestrom	1/kg/kg/s; 1/m/s

$N$	Anzahl	-
$\dot{N}$	Anzahlstrom	1/s
$p$	Druck	Pa
$q$	Massenanteil Partikel mit 1,8 mm	kg/kg
$Q$	elektrische Ladung	C
$Q$	normierte kumulative Verteilung	-
$\dot{Q}$	Wärmestrom	J/s
$r$	Wiederfindungsanteil	-
$R$	Rückflussparameter	-
$R^2$	Bestimmtheitsmaß	-
$s$	Schichtdicke	m
$t$	Zeit	s
$T$	Temperatur	K
$u$	Geschwindigkeit	m/s
$\bar{u}$	mittlere Geschwindigkeit	m/s
$v$	Anteil Bypassgas/Eindüsungszone	-
$V$	Volumen	m <sup>3</sup>
$x$	Ortskoordinate	m
$x$	zufallsverteilte Variable	-
$X$	Partikelbeladung	kg/kg
$Y$	Gasbeladung	kg/kg
$z$	Höhenkoordinate	m

## Griechische Symbole

$\alpha$	Wärmeübergangskoeffizient	W/m <sup>2</sup> /K
$\beta$	Stoffübergangskoeffizient	m/s
$\beta$	positive Wurzel der analytischen Lösung des Dispersionsmodells	-
$\gamma$	gyromagnetisches Verhältnis	A · s/kg
$\gamma$	Parameter	-
$\Gamma$	Gammafunktion	-
$\delta$	Parameter	m
$\Delta$	Differenz	-
$\varepsilon$	Porosität	-
$\zeta$	Abflussbeiwert	-

$\zeta$	dimensionslose Ortskoordinate	-
$\eta$	normiertes Trocknungspotential	-
$\eta$	normierte Feuchtebelastung	-
$\vartheta$	Temperatur	°C
$\theta$	dimensionslose Zeit	-
$\kappa$	Pulsationsfaktor	-
$\lambda$	Proportionalitätsfaktor	-
$\lambda$	Wärmeleitfähigkeit	W/m/K
$\mu$	unnormiertes r-tes Moment	m <sup>3r</sup>
$\nu$	kinematische Viskosität	m <sup>2</sup> /s
$\nu$	Resonanzfrequenz	Hz
$\dot{\nu}$	normierte Trocknungsgeschwindigkeit	-
$\rho$	Dichte	kg/m <sup>3</sup>
$\sigma$	Standardabweichung	s, kg/kg, m
$\sigma^2$	Varianz	s <sup>2</sup> , (kg/kg) <sup>2</sup> , m <sup>2</sup>
$\tau$	Verweilzeit	s
$\bar{\tau}$	mittlere Verweilzeit	s
$\Phi$	relative Luftfeuchtigkeit	-
$\psi$	Parameter	-
$\omega$	Eigenwert analyt. Lösung Dispersionsmodell	-

## Indizes

0	bezogen auf die Anzahl
1	bezogen auf die Länge
1,8mm	Partikel mit 1,8 mm Durchmesser
2	bezogen auf die Oberfläche
3	bezogen auf das Volumen
3,0mm	Partikel mit 3,0 mm Durchmesser
50	Medianwert
<i>app</i>	scheinbar (engl.: apparent)
<i>area</i>	flächenäquivalent
<i>B</i>	Gasblase
<i>b</i>	Bypassgasphase
<i>Bett</i>	Bett
<i>CSTR</i>	ideal durchmischter Rührkessel (engl.: continuously-stirred tank reactor)

<i>coat</i>	beschichtet (engl.: coated)
<i>dry</i>	trocken (engl.: dry)
<i>e</i>	Umgebung (engl.: environment)
<i>elu</i>	Austrag (engl.: elutriation)
<i>end</i>	Ende
<i>EP</i>	Einzelpartikel
<i>eq</i>	Gleichgewicht, Equilibrium
<i>Feststoff</i>	Feststoff
<i>G</i>	Gas
<i>geo</i>	geometrisch
<i>Hohlraum</i>	Hohlraum
<i>i</i>	ganzzahliger Laufindex
<i>in</i>	eintretend
<i>ini</i>	Anfang (engl.: initial)
<i>k</i>	ganzzahliger Laufindex
<i>kr</i>	kritisch
<i>lam</i>	laminar
<i>Lsg</i>	Lösung
<i>max</i>	maximal
<i>magn</i>	magnetisch
<i>mf</i>	Minimalfluidisation
<i>min</i>	minimal
<i>or</i>	Öffnung (engl.: orifice)
<i>opt</i>	optimal
<i>out</i>	austretend
<i>oW</i>	ohne Wehr
<i>P</i>	Partikel
<i>PBM</i>	Populationsbilanzmodell
<i>Puls</i>	Puls
<i>PSD</i>	Partikelgrößenverteilung (engl.: particle size distribution)
<i>Produkt</i>	Produkt
<i>Reflux</i>	Rückfluss
<i>RTD</i>	Verweilzeitverteilung (engl.: residence time distribution)
<i>RZ</i>	Richardson Zaki
<i>sat</i>	Sättigung



<i>s</i>	Suspensionsgasphase
<i>Schicht</i>	Schicht
<i>Signal</i>	Signal
<i>Sp</i>	Sprühzone
<i>Spalt</i>	Spalt
<i>tot</i>	total/gesamt
<i>th</i>	theoretisch
<i>tracer</i>	Spurstoff (engl.: tracer)
<i>turb</i>	turbulent
<i>Tr</i>	Trocknungszone
<i>Unter</i>	Unterlauf
<i>Ueber</i>	Überlauf
<i>vap</i>	Verdampfung (engl.: vaporization)
<i>W</i>	Wasser
<i>Wand</i>	Wand
<i>wash</i>	gewaschen (engl.: washed)
<i>Wehr</i>	Wehr
<i>wet</i>	feucht (engl.: wet)
<i>WSR</i>	Wirbelschichtrinne

## Abkürzungen

CFD	computational fluid dynamics
CSTR	ideal durchmischer Rührkessel (engl.: continuously-stirred tank reactor)
DEM	Diskrete Elemente Methode
FID	freier Induktionszerfall (engl.: free induction decay)
LTD	Schichtdickenverteilung (engl.: layer thickness distribution)
NMR	Kernspinresonanzspektroskopie (engl.: nuclear magnetic resonance)
NTU	Anzahl von Übertragungseinheiten (engl.: number of transfer units)
PFTR	ideale Kolbenströmung (engl.: plug-flow tubular reactor)
PSD	Partikelgrößenverteilung (engl.: particle sizedistribution)
REM	Rasterelektronenmikroskop
RTD	Verweilzeitverteilung (engl.: residence time distribution)
TA	Trocknungsabschnitt
WSR	Wirbelschichtrinne
$\mu$ -CT	Mikrocomputertomograph

## Dimensionslose Kennzahlen

<b>Kennzahl</b>	<b>Bedeutung</b>
Ar	Archimedeszahl
Bo	Bodensteinzahl
Le	Lewiszahl
Nu	Nusseltzahl
Pr	Prandlzahl
Re	Reynoldszahl
Sc	Schmidtzahl
Sh	Sherwoodzahl



# 1 Einleitung

## 1.1 Allgemeines

In der Lebensmittelindustrie sowie der chemischen oder pharmazeutischen Industrie müssen partikuläre Güter zur Weiterverarbeitung oder zur finalen Anwendung häufig bearbeitet oder umgewandelt werden. Hierbei kann es sich um sehr unterschiedliche Ausgangsbedingungen, bspw. um Partikelgröße oder -feuchte handeln, wobei die Zielsetzungen der Modifikationen divers sind. Gegenstand solcher Prozesse können unter anderem feine Stäube oder grobe Partikel mit unterschiedlichen Feuchtebeladungen sein. Bei einem Anwendungsfeld dieser Breite existiert eine Vielzahl an Verfahren mit unterschiedlichen charakteristischen Anforderungen an Produkt und Prozess.

Bei der Trocknung von partikulären Gütern werden, je nach Qualitätsanspruch an das fertige Produkt oder nach spezifischen Anforderungen des Edukts, unterschiedliche Apparate- und Anlagenausführungen genutzt. Für besonders feine Partikel, welche in Lösung oder Suspension vorliegen, werden häufig Sprühtrockner verwendet. Darin wird eine Flüssigkeit versprüht und das Lösungsmittel durch einen temperierten Gasstrom verdampft, wodurch der trockene, feindisperse Feststoff zurückbleibt.

Für anspruchsvolle partikuläre Produkte, bei denen beispielsweise bereits bei geringer Beanspruchung mechanischer Abrieb entsteht, können Bandtrockner eingesetzt werden. Hierbei kann das zu trocknende Gut entweder konvektiv mithilfe eines Gasstroms durch das perforierte Transportband oder mit Heizern durch Strahlung getrocknet werden, wobei der mögliche Feststoffdurchsatz von wenigen Gramm bis hin zu einigen Tonnen pro Stunde variieren kann.

Partikelschüttungen werden des Weiteren oft in Teller- oder Trommeltrocknern verarbeitet. Der Vorteil dieser Apparate liegt in den unterschiedlichen Dimensionen, in welchen sie gebaut werden können und somit im variablen Feststoffdurchsatz. In diesen robusten Prozessen werden für thermostabile Materialien üblicherweise Gasbrenner zur Trocknung eingesetzt. Bei thermolabilen Gütern kommen Lüfter mit Heizern zum Einsatz, welche sensibel auf den stabilen Temperaturbereich des Produktes abgestimmt werden können. Granulation, Ummantelung/Coating oder Agglomeration von Partikeln können mit diesen Anlagen realisiert werden, indem Suspensionen, Lösungen oder Schmelzen über Düsen in das System eingebracht werden.

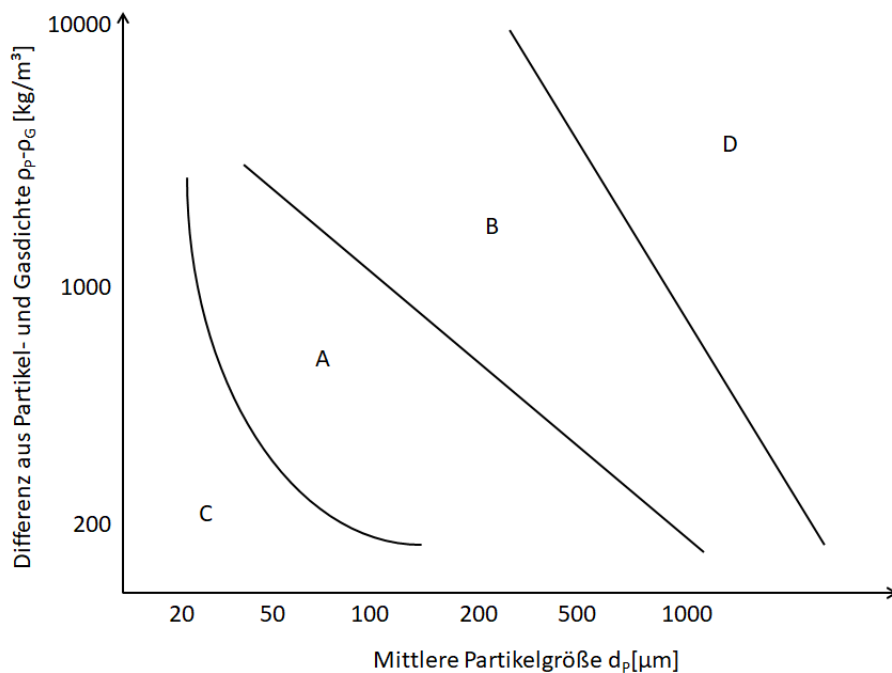


Abbildung 1.1: Diagramm zur Partikelklassifizierung nach Geldart (1973).

Wenn ein intensiver Wärme- und Stofftransport für die Verarbeitung notwendig ist, können Wirbelschichtapparate eingesetzt werden. Hierbei wird eine Partikelschüttung vertikal von einem Gas durchströmt und somit fluidisiert. Mit diesem Prinzip lässt sich eine verhältnismäßig kleine Bauweise des Prozessraums umsetzen. Das Verfahren der Wirbelschicht ist dabei begrenzt durch die Partikelgröße und -dichte, da sich zu feine Stäube oder zu große Partikel nicht mehr oder nur unter hohem Energieaufwand fluidisieren lassen. Die Klassifizierung nach Geldart (1973) eignet sich zur Einordnung unterschiedlicher Materialien und Partikelgrößen, indem die Partikel in verschiedene Bereiche abhängig von Partikelgröße und der Differenz aus Partikel- und Fluidichte eingeteilt werden, wie in Abbildung 1.1 veranschaulicht wird.

Partikelschüttungen aus den Gruppen B und D lassen sich meist problemlos fluidisieren, wohingegen für Partikel der Gruppe C eine Fluidisierung nicht möglich ist. Partikel der Gruppe A lassen sich teilweise fluidisieren, jedoch muss hierfür häufig etwa eine Strahlschicht oder ein Steigrohr mit erhöhter Gasgeschwindigkeit, also Sonderausführungen einer Wirbelschicht, eingesetzt werden.

Aufgrund der genannten Eigenschaften und der vielseitigen Einsatzmöglichkeiten hinsichtlich der umsetzbaren Prozesse, seien es Granulation, Ummantelung/Coating oder Agglomeration, wird zunehmend auf die Wirbelschichttechnologie zurückgegriffen.

## 1.2 Einführung in die Wirbelschichttechnologie

Grundsätzlich wird bei der Wirbelschichttechnologie ein partikuläres Gut durch einen aufwärts gerichteten Gasstrom in einen fluidisierten Zustand versetzt. Dies geschieht in einem Reaktor, welcher nach unten mit einer perforierten oder gesinterten Gasverteilerplatte begrenzt ist. Die Begrifflichkeit des fluidisierten Zustandes ergibt sich aus den im Prozess fluid- oder flüssigkeits-ähnlichen Eigenschaften des Feststoff-Gas-Gemisches. Durch den Wärme- und Stoffaustausch zwischen partikulärer Phase und der Gasphase erfolgt die Trocknung des fluidisierten Feststoffes. Eine weitere Verarbeitungsmöglichkeit ist das Einbringen von flüssigen Medien, wie Schmelzen, Suspensionen oder Lösungen, über eingebaute Düsen. Hierbei verfestigt sich die Schmelze bzw. verdampft das Lösungsmittel aus Suspension oder Lösung, wobei sich die enthaltenen Feststoffe auf den wirbelnden Kernpartikeln absetzen und diese somit ein schichtweises Wachstum erfahren. Beim Einbringen von kerneigenem Material handelt es sich um Granulation. Bei der Zuführung von kernfremden Materialien spricht man von Ummantelung bzw. Coating. Werden Bindemittel in die fluidisierte Schicht eingedüst, welche die Kernpartikel nicht ummanteln, können Feststoffbrücken zwischen Kernpartikeln gebildet werden, womit ein Partikelwachstum generiert wird. Bei diesem Prozess spricht man von Agglomeration.

Die Geschichte der Wirbelschichttechnologie reicht nahezu ein Jahrhundert zurück und hat ihren Ursprung in der Optimierung des Haber-Bosch Prozesses zur großtechnischen Herstellung von Ammoniak. Um ein reines Synthesegas zu erzeugen nutzte Winkler (1922) einen Wirbelschichtapparat, den sogenannten Winkler-Generator, zur Vergasung feinkörniger Braunkohle.

Es folgten weitere Prozessentwicklungen auf Grundlage der Wirbelschichttechnik wie das Fluid Catalytic Cracking, welches von Mitarbeitern der Standard Oil of New Jersey Company 1940 patentiert wurde und der Umwandlung langkettiger Erdölfraktionen in kurzkettige Olefine und Benzin zur militärischen Versorgung im zweiten Weltkrieg diente (Campbell u. a. (1948)).

Viele weitere Verfahren folgten über die Jahre von der Kalzinierung von Kalkstein (Barret (1949)), der Polymerisierung beispielsweise von Ethylen zu Polyethylen als thermoplastischer Kunststoff (Ziegler u. a. (1955, 1960); Natta und Mazzanti (1962)), der Agglomeration von löslichem Kaffee (Davies u. a. (1973)), der Granulation von Harnstoff (Niks u. a. (1980)) oder zur Trocknung partikulärer Feststoffe (Hertz (1975)).

## 1.3 Unterschiedliche Ausführungen von Wirbelschichten

Es bedarf unterschiedlichster Verfahren und Anlagen für die diversen Anforderungen an verschiedene Prozesse. Grundsätzlich können Wirbelschichtprozesse jedoch in zwei Kategorien eingeteilt werden - einerseits die kontinuierliche und andererseits die diskontinuierliche Verfahrensweise. Im diskontinuierlichen Fall wird die partikuläre Schüttung vor Beginn des Prozesses

der Wirbelkammer zugeführt und nach Prozessende zeitgleich aus der Wirbelschicht entfernt. In diesem Fall verbleiben alle Partikel exakt dieselbe Zeit im Prozessraum.

Der Vorteil einer solchen Prozessführung liegt in der einheitlichen Prozesszeit der einzelnen Partikel und in der Möglichkeit einzelne Chargen klar voneinander zu trennen. Ersteres begünstigt das Bestreben einheitlicher Eigenschaften aller Partikel, wie etwa einer einheitlichen Austrittsfeuchte bei der Trocknung oder Partikelgröße bei der Granulation, der Agglomeration oder dem Coating. Letzteres ist gerade bei Pharmaprodukten von Vorteil, da jede Charge auf die besonders hohen Vorgaben und Auflagen untersucht werden kann. Konnten bestimmte Qualitätsmerkmale nicht eingehalten werden, kann die gesamte Charge verworfen oder überarbeitet werden, bevor sie in den Handel gerät.

Der Nachteil bei dieser Verfahrensweise liegt in Stillstandszeiten zwischen den einzelnen Chargen und der damit verbundenen Arbeitskraft, beispielsweise zum Befüllen, Entleeren oder Reinigen des Wirbelschichtreaktors. Darüber hinaus müssen für hohe Feststoffdurchsätze mehrere oder sehr große Apparate genutzt werden, was sowohl mit erhöhtem Arbeitsaufwand als auch mit erhöhten Investitions- und Betriebskosten verbunden ist.

Im kontinuierlichen Fall werden Partikel fortwährend der Wirbelkammer zugeführt und gleichzeitig aus dem System abgezogen. Dies führt dazu, dass Partikel, welche zeitgleich in das System eintreten, dieses zu unterschiedlichen Zeitpunkten wieder verlassen. Die hierdurch entstehende verteilte Partikelverweilzeit wirkt sich direkt auf die erzeugten Partikeleigenschaften aus und führt ihrerseits zu deren Verteilung. Partikel, welche mit derselben Feuchte oder Größe dem System zugeführt wurden, werden dieses aufgrund ihrer unterschiedlichen Prozessverweildauer mit unterschiedlicher Feuchte oder Größe verlassen. Diese verteilten Partikeleigenschaften können zu großen Problemen bei der Lagerung, Weiterverarbeitung oder finalen Anwendung führen. Bei der Lagerung von getrockneten Lebensmitteln können einige wenige zu feuchte Partikel zu Schimmel oder bakteriellem Befall führen und diese verderben. Zu feuchte oder kleine Partikel können Anbackungen und Verstopfungen von Rohrleitungen und Förderbändern verursachen oder möglicherweise Staubexplosionen hervorrufen.

Der Vorteil eines kontinuierlichen Prozesses liegt in der kompakten Bauweise und geringen Investitionskosten bei gleichzeitig hohem Feststoffdurchsatz. Da die wirtschaftlichen Vorteile in viele Fällen überwiegen, werden die oben genannten Nachteile häufig in Kauf genommen. Zusätzlich werden vermehrt ursprünglich diskontinuierliche Prozesse auf kontinuierliche Verfahren umgestellt, um bei steigendem Kostendruck und zunehmender Konkurrenz marktfähig zu bleiben. Zudem ist eine permanente Optimierung der Steuerung und Prozessführung hilfreich, da somit die Breite der Eigenschaftsverteilungen weiter verringert werden kann. Dies entspricht einer Qualitätssteigerung des Gesamtproduktes.

Einen Vergleich beider Verfahrensweisen stellen Teunou und Poncelet (2002) an, was in Tabelle 1.1 dargestellt ist. Es ist zu sehen, dass der Feststoffdurchsatz geringer, die Anlage- bzw.

Tabelle 1.1: Vergleich zwischen kontinuierlichem und diskontinuierlichem Coatingprozess (siehe Teunou und Poncelet (2002)).

	Diskontinuierlich (Wurster)	Kontinuierlich (WSR)
Volumen	120 l	120 l
Durchsatz	50 kg/h	100 kg/h
Anschaffungskosten	1 100 000 €	610 000 €
Betriebskosten	2,1 €/kg	0,6 €/kg
Produktqualität	exzellent	vertretbar
	Gleichmäßige Beschichtung Gleichförmiger Batch	Ungleichmäßige Beschichtung Heterogenes Produkt

Betriebskosten aber auch die Produktqualität beim diskontinuierlichen Wurstercoating, einer Sonderausführung der Wirbelschicht mit internem Steigrohr, höher sind als beim kontinuierlichen Prozess, bei selbem Reaktorvolumen.

Kontinuierliche Wirbelschichtapparate lassen sich grob in zwei unterschiedliche Bauweisen einteilen. Zum einen in einen Rundreaktor, wie er häufig im diskontinuierlichen Prozess verwendet wird. Hierbei besteht die Möglichkeit des kontinuierlichen Partikeleintrags über eine Schleuse sowie des Austrags von Partikeln, welcher häufig über ein zentrales Steigrohr realisiert wird. Dabei ergibt sich das Partikelverweilzeitverhalten eines ideal durchmischten Rührkessels (engl.: CSTR - continuously-stirred tank reactor), wobei die Partikelkonzentration über die Zeit exponentiell fällt.

Zum anderen gibt es Wirbelschichttrinnen. In diesen kanalartigen Apparaten, für gewöhnlich mit einem Längen-Breitenverhältnis  $> 1$ , werden dem Prozess auf einer Seite Ausgangspartikel mithilfe von Förderschnecken oder Zellenradschleusen kontinuierlich zugeführt. Der Abzug der Partikel erfolgt, nachdem diese das System durchquert haben, an der anderen Seite des Apparates durch eine Schleuse oder mit Hilfe eines Überlaufwehres. Durch die Kontrolle des Schleusendurchsatzes oder die Höhe des Überlaufwehres kann hierbei auf die Partikelmasse im System bzw. auf die Partikelverweilzeit Einfluss genommen werden. Der Vorteil einer solchen Wirbelschichtrinne liegt im Verweilzeitverhalten der Partikel, welches bei vergleichbarer Bettmasse enger verteilt ist als das von Rundreaktoren. Im Idealfall würde dieses der Verweilzeitverteilung einer Kolbenströmung (engl.: PFTR - plug flow tubular reactor) gleichen, welches einem Peak um die mittlere Verweilzeit mit einer Varianz von Null gleicht. In realen Wirbelschichttrinnen wird dies jedoch nicht erreicht.



## 1.4 Verweilzeitverhalten in Wirbelschichttrinnen

Wie in Abschnitt 1.3 beschrieben, liegt das Verweilzeitverhalten von Partikeln in Wirbelschichttrinnen zwischen dem eines ideal durchmischten Rührkessels (CSTR) und dem eines Reaktors mit idealer Kolbenströmung (PFTR). Die genaue Information darüber ist von großem Interesse, etwa beim Anlagenbau und -design sowie bei der Herstellung von partikulären Produkten.

Für einen kontinuierlich betriebenen idealen Rührkessel, welcher mit einer Schleuse für die Partikelzufuhr und zumeist mit einem zentralen Rohr für den Partikelaustrag ausgestattet ist, kann die Verweilzeitverteilung gut vorausgesagt werden. Die analytische Lösung lautet

$$E(\theta) = e^{-\theta}, \quad (1.1)$$

wobei  $E$  der dimensionslosen, normierten Konzentration und  $\theta$  der dimensionslosen Zeit entsprechen. In der vorliegenden Arbeit ist die laut Definition volumenbezogene Konzentration jedoch massenbezogen und wird deshalb im Folgenden als Massenbeladung mit der Einheit kg/kg bezeichnet. Die dimensionslose Zeit

$$\theta = t/\bar{\tau} \quad (1.2)$$

ergibt sich aus der Zeit  $t$  und der mittleren Verweilzeit  $\bar{\tau}$ . Die dimensionslose normierte Massenbeladung

$$E(\theta) = \bar{\tau}E(t) \quad (1.3)$$

lässt sich wiederum aus den dimensionsbehafteten Größen mittlere Verweilzeit  $\bar{\tau}$  und E-Funktion  $E(t)$  bestimmen. Die normierte Massenbeladung

$$E(t) = \frac{C(t)}{C_{tot}} \quad (1.4)$$

gleich dem Quotienten aus Tracermassenbeladung  $C(t)$  zum Zeitpunkt  $t$  und der gesamten Tracermassenbeladung  $C_{tot}$ , welche in das System eingebracht wurde.

In der Arbeit von Cunäus (2011) wird der exponentielle Abfall der Massenbeladung über die Zeit aus Gleichung 1.1 experimentell nachgewiesen.

Die Verweilzeit in einem Reaktor mit idealer Kolbenströmung ist stattdessen nicht verteilt. Dies resultiert aus der laut Definition fehlenden axialen Rückvermischung,

$$\begin{aligned} E(\theta) &= 0 && \text{für } \theta \neq 1 \\ E(\theta) &= \infty && \text{für } \theta = 1, \end{aligned} \quad (1.5)$$

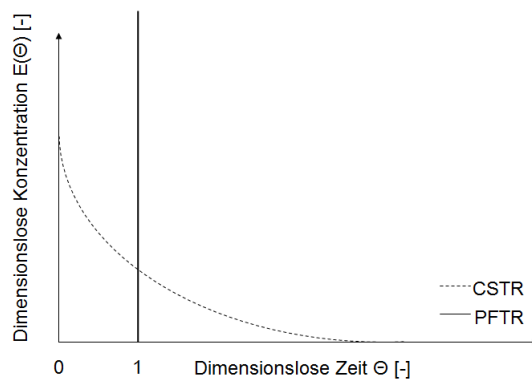


Abbildung 1.2: Darstellung der Verläufe der Massenbeladung über die dimensionslose Verweilzeit für die idealen Fälle mit totaler (CSTR) und ohne Rückvermischung (PFTR).

was einem unveränderten Mischungszustand zwischen Ein- und Austritt des Reaktors entspricht. Die Verläufe der Massenbeladung beider idealen Fälle sind in Abbildung 1.2 dargestellt.

Anders als bei den beiden idealen Fällen, kann die Verweilzeitverteilung für den realen Fall der Wirbelschichttrinne gegenwärtig nicht vorausgesagt werden. Aus diesem Grund ist die Untersuchung der Partikelverweilzeit in Wirbelschichttrinnen nach wie vor ein wichtiger wissenschaftlicher Beitrag, mit dem Ziel diese vorhersagen bzw. steuern zu können.

Im Jahr 1978 veröffentlichte Reay (1978) eine Arbeit zur Verweilzeitverteilung von Partikeln in Wirbelschichttrinnen, mit dem Fokus auf der experimentellen Variation von Anlagendimensionen wie Länge, Breite und Höhe, der Anströmgeschwindigkeit des Gases, der Art des Verteilerbodens sowie der Partikeleigenschaften Größe und Dichte. Es wurde nachgewiesen, dass sich die von Levenspiel (1972) vorgeschlagenen Methoden und Gleichungen für die Berechnung der Verweilzeitverteilung in einer Flüssigkeitsströmung auch auf deren Berechnung in Wirbelschichttrinnen anwenden lassen. Hierfür wird die verwendete molekulare Diffusion durch die partikuläre Dispersion ersetzt. Als Maß für die axiale Partikeldispersion dient der Dispersionskoeffizient  $D$ , welcher den Grad der Spreitung der Verweilzeitverteilung beschreibt. Die Schlussfolgerung aus der experimentellen Untersuchung ergab eine Unabhängigkeit der Partikeldispersion von den Anlagendimensionen, wobei angemerkt wird, dass sich dies bei deutlich größeren industriellen Anlagen abweichend verhalten könne. Mit zunehmender Leerrohrgasgeschwindigkeit  $u_G$  steigt auch die Partikeldispersion  $D$ , weshalb Reay diese zum größten Einflussfaktor erklärt und seine Korrelation

$$D = 0,17 \cdot \frac{u_G - u_{mf}}{u_{mf}^{0,33}} \quad (1.6)$$

allein hierauf und auf die minimale Fluidisationsgeschwindigkeit  $u_{mf}$  stützt. Die angegebenen Geschwindigkeiten und der Dispersionskoeffizient  $D$  weisen die Einheiten [cm/s] und [cm<sup>2</sup>/s]

auf. Allerdings wird in der Arbeit auch angeführt, dass das Anwenden aller Schlussfolgerungen auf Wirbelschichtbetten tiefer als 10 cm nicht ratsam ist, da sich vollkommen unterschiedliche Fluidisationsmuster ausbilden können.

In einer weiteren Publikation über die experimentelle Untersuchung der Verweilzeitverteilung in einer Vibrationswirbelschichttrinne stellten Satija und Zucker (1986) fest, dass neben zahlreichen anderen Betriebsparametern eine Zunahme der Vibrationsamplitude den größten Einfluss auf die mittlere Verweilzeit (Abnahme) und die Partikeldispersion (Zunahme) hat. Zusätzlich wurde sowohl das Höhenprofil der Wirbelschicht im Hinblick auf diverse Betriebsparameter als auch der Einbau von internen Wehren zur Beeinflussung der Verweilzeitverteilung untersucht. Eine Erhöhung der Wehranzahl führte hierbei zu einer erhöhten mittleren Verweilzeit. Mit Zunahme des Feststoffdurchsatzes konnte keine signifikante Änderung der Bettmasse  $M_{Bett}$  festgestellt werden, was wiederum zu einer direkten Abnahme der mittleren Verweilzeit führte.

Experimentelle Ergebnisse von Nilsson (1986) sowie Nilsson und Wimmerstedt (1988) zeigen das Transportverhalten von Sand und Apatitpartikeln in einer Wirbelschichttrinne der Länge  $L_{Bett} = 2,1$  m und Breite  $B_{Bett} = 0,2$  m bzw.  $0,1$  m. Aus den gemessenen Daten wurde eine Korrelation für den Dispersionskoeffizienten

$$D = \frac{1,49 \cdot [0,01 \cdot (H_{Bett} - 0,05) + 0,00165 \cdot \rho_G \cdot (u_G - u_{mf})] \cdot \bar{u}_P^{0,23}}{u_{mf}^{0,33}} \quad (1.7)$$

erstellt, in welche ähnlich zur Korrelation Reay neben den Größen der Gasgeschwindigkeit  $u_G$  und der minimalen Fluidisationsgeschwindigkeit  $u_{mf}$  auch die mittlere Partikelgeschwindigkeit  $\bar{u}_P$ , die Gasdichte  $\rho_G$  und die Betthöhe  $H_{Bett}$  in primären SI-Einheiten eingehen. Eine Variation des Ortes der Tracerinjektion, die der Datengewinnung dient, sowie der Tracermasse ergab dabei keinen Einfluss auf den Dispersionskoeffizienten. Die Ergebnisse zeigen weiterhin eine Erhöhung des Dispersionskoeffizienten mit zunehmender Betthöhe. Eine Zunahme der Gasgeschwindigkeit sowie die Reduzierung von Partikelgröße oder -dichte bewirkten den selben Effekt.

Die Gleichungen 1.6 und 1.7 sind in der Lage, Daten der experimentellen Untersuchung der jeweiligen Autoren gut vorherzusagen, weichen jedoch beim Versuch, Daten des jeweils anderen Autors abzubilden, deutlich von den experimentellen Werten ab, wie in Abbildung 1.3 ersichtlich wird.

Eine weitere Möglichkeit die Partikelbewegung in der Wirbelschicht zu untersuchen, bietet das "Magnetic Monitoring". Hierfür verwendeten Idakiev und Mörl (2015) einen Marker in kontinuierlichen und diskontinuierlichen Wirbelschichten, um seine Position in x-, y- und z-Richtung sowie seine räumliche Ausrichtung zu messen, woraus Bewegungskennwerte für verschiedene Apparate- und Betriebsparameter ermittelt wurden. Ein Ziel stellt dabei das Verständnis der

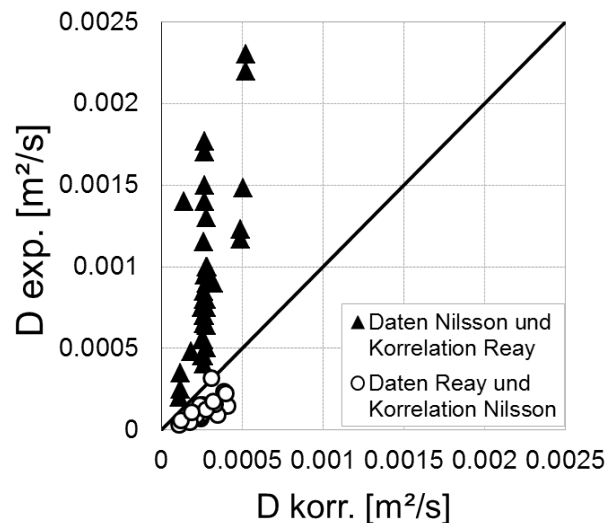


Abbildung 1.3: Experimentelle Daten von Reay (○) sowie von Nilsson und Wimmerstedt (▲) über den Ergebnissen der Korrelation der jeweils anderen Autoren.

Bewegung einzelner Partikel dar, um in Zukunft ganzheitlich auf die Partikeldispersion schließen zu können

Um Verweilzeitverteilungen abbilden zu können, wurden im Laufe der Zeit diverse mathematische Modelle erstellt. Während das Verweilzeitverhalten für einen ideal durchmischten Rührkessel in Gleichung 1.1 trivial aus der Massenbilanz hergeleitet werden kann, war die Beschreibung anderer Apparate komplexer. Im Jahr 1935 veröffentlichten MacMullin und Weber (1935) die Lösung für ein Kaskadenmodell ohne Rückvermischung zur Berechnung der dimensionslosen normierten Massenbelastung

$$E(\theta) = \frac{N_{CSTR}^{N_{CSTR}}}{(N_{CSTR} - 1)!} \theta^{N_{CSTR}-1} e^{-N_{CSTR}\theta} \quad (1.8)$$

für eine beliebige Anzahl  $N_{CSTR}$  ideal durchmischter Rührkessel. Hierbei geht die dimensionslose Verweilzeit  $\theta$  aus Gleichung 1.2 als Variable und die Anzahl der ideal durchmischten Rührkessel  $N_{CSTR}$  als einziger Parameter ein. Darauf aufbauend veröffentlichten Gilliland und Mason (1952) sowie Danckwerts (1953) sowohl experimentelle Untersuchungen als auch mathematische Zusammenhänge zur Beschreibung des Verweilzeitverhaltens in Systemen mit kontinuierlichem Durchfluss.

Eine weitere Möglichkeit zur Beschreibung von Verweilzeitverteilungen sind Modelle wie von Charlou (2014), welcher Markow-Ketten nutzte. Bei Kenntnis eines Zustandes zu einem beliebigen Zeitpunkt kann in der Theorie jeder Zustand zu jedem nachfolgenden Zeitpunkt berechnet werden. In dem postulierten Modell werden zwei Parameter, zum einen ein Rückflusskoeffizient

$R$  und zum anderen die Partikelmasse  $M_P$  verwendet, um jede Zelle eines Gitters, welches den Apparat beschreibt, zu berechnen.

Eine dritte Methode, um das Verweilzeitverhalten von Partikeln in einer Wirbelschichttrinne zu beschreiben, ist das Dispersionsmodell. Anhand einer partiellen Differenzialgleichung wird hierbei die Änderung der normierten Massenbeladung  $E$  über der Zeit mit Hilfe eines konvektiven und eines dispersiven Terms beschrieben.

Hierfür kann die Änderung der normierten Massenbeladung  $E$  über die dimensionslose Zeit  $\theta$  mit der Dispersions-Konvektions-Gleichung

$$\frac{\partial E(\theta)}{\partial \theta} = \frac{1}{Bo} \frac{\partial^2 E(\theta)}{\partial \zeta^2} - \frac{\partial E(\theta)}{\partial \zeta} \quad (1.9)$$

für verschiedene Randbedingungen sowohl analytisch als auch numerisch berechnet werden. Die Bodensteinzahl  $Bo$  gibt hierbei das Verhältnis von konvektivem zu dispersivem Partikeltransport an, wobei  $\zeta$  die dimensionslose Ortskoordinate darstellt.

An den Systemgrenzen ist Partikeldispersion theoretisch a) nur am Eintritt (offen-geschlossen), b) nur am Austritt (geschlossen-offen), c) an beiden Grenzen (offen-offen) oder d) gar nicht (geschlossen-geschlossen) möglich. Eine Zusammenfassung möglicher analytischer Lösungen findet sich in der Arbeit von Van Genuchten und Alves (1982).

Es wurden somit einige Versuche unternommen, das komplexe Transportverhalten von partikulären Produkten und deren Verweilzeitverteilung in Wirbelschichttrinnen zu klären. Im Hinblick auf das Anlagendesign oder die Herstellung von spezifischen Schüttgütern ist es jedoch notwendig, das Verweilzeitverhalten von Partikeln genauer zu kennen, um den immer größer werdenden Qualitätsansprüchen an die Anlagentechnik und Produkte gerecht zu werden.

## 1.5 Trocknung in Wirbelschichttrinnen

Die Trocknung von partikulären Gütern stellt einen wesentlichen Prozess auf dem Gebiet der Wirbelschichttechnik dar. Aus diesem Grund ist es nicht verwunderlich, dass bereits zahlreiche Veröffentlichungen zu diesem Bereich in der Literatur zu finden sind.

Im Rahmen von diskontinuierlichen Wirbelschichten beschäftigten sich Burgschweiger u. a. (1999) mit der konvektiven Trocknung von porösem Material. Der Ansatz war die separate Betrachtung von intrapartikulären Trocknungskinetiken und Sorptionsgleichgewicht, welche in ein Modell mit gekoppeltem Wärme- und Stoffaustausch integriert wurden. Um den Abfall der Trocknungsrate während des Prozesses zu beschreiben, wurde zwischen zunehmender intrapartikulärer Limitierung durch erhöhten Stofftransportwiderstand und der Abnahme durch Änderung im Sorptionsgleichgewicht unterschieden, indem ein modifiziertes Konzept der normierten Trocknungskurve von van Meel (1958) genutzt wurde. Als Ergebnis steht eine gute

Übereinstimmung von experimentell ermittelten und modellierten Daten.

Weiterführend untersuchten Fyhr u. a. (1999) das Trocknungsverhalten von Weizen und Zeolith experimentell und erstellten ein Modell sowohl für den diskontinuierlichen als auch für den kontinuierlichen ideal durchmischten Rundreaktor. Die Höhe der Wirbelschicht wurde hierbei in Schichten eingeteilt, in welchen jeweils ein Partikel, repräsentativ für alle in dieser Schicht befindlichen Partikel, von der kontinuierlichen Gasphase umströmt wird. Im Sinne einer ideal durchmischten Wirbelschicht ist es Partikeln möglich, sich in vertikaler Richtung zwischen den einzelnen Schichten zu bewegen. Um den Fall der kontinuierlichen Wirbelschichttrocknung zu simulieren, wurden die Partikel in einer der Schichten in gewissen zeitlichen Abständen durch neue feuchte Partikel ersetzt, was zu einer guten Übereinstimmung von Simulation und experimentellen Werten führt.

Auch Burgschweiger und Tsotsas (2002) beschäftigten sich mit der kontinuierlichen Trocknung in einer ideal durchmischten Wirbelschicht. Sie wiesen die annähernd ideale Durchmischung experimentell nach und erstellten ein Modell zur Berechnung sowohl der dynamischen als auch der stationären Zustände. Hierzu wurde ein populationsdynamisches Modell mit der Verweilzeit als interne Koordinate genutzt, um die Partikelverweilzeitverteilung bei der Berechnung von Partikelfeuchte und -temperatur zu berücksichtigen. Der Vergleich der simulierten und experimentellen Daten ergab eine gute Übereinstimmung.

Ähnlich zu Burgschweiger untersuchte auch Cunäus (2011) das Trocknungsverhalten in der ideal durchmischten kontinuierlichen Wirbelschicht mit zentralem Überlaufrohr für den Partikelaustrag. Er zeigte erstmals experimentelle Ergebnisse zur Feuchteverteilung von Partikeln am Austritt der Wirbelschicht und deren gute Übereinstimmung mit simulierten Daten. Auch die analytische Lösung von Peglow u. a. (2011) für das vorliegende Problem überzeugt mit adäquater Genauigkeit.

Für die Modellierung der Trocknung von Weizen in einer kontinuierlichen Wirbelschichttrinne griffen Fyhr und Kemp (1999) das eigene Modell für den Rundreaktor (Fyhr u. a. (1999)) auf und erweiterten es durch ein Kaskadenmodell in Reihe geschalteter Rundreaktoren, mit der Anzahl  $N_{CSTR}$  gleicher Reaktoren, wie bereits MacMullin und Weber (1935). Die Anzahl  $N_{CSTR}$  wurde aus Länge und mittlerer Verweilzeit der Wirbelschichttrinne sowie dem Dispersionskoeffizienten  $D$  nach Nilsson (1986) sowie Nilsson und Wimmerstedt (1988) bestimmt. Hierbei wurde die Annahme getroffen, dass ein hohes Verhältnis von konvektivem zu dispersivem Partikeltransport entlang axialer Richtung in der Wirbelschichttrinne vorliegt. Die Validierung der simulierten Daten mit experimentellen Werten aus einer Laborwirbelschichttrinne ergab eine gute Übereinstimmung.

Baker u. a. (2006) formulierten ein analytisches Modell für die Beschreibung der Trocknung in einer Wirbelschichttrinne. Sie nutzten eine in Reihe geschaltete Kaskade von Trocknungszellen, welche ihrerseits aus einer gewissen Anzahl in Reihe geschalteter ideal durchmischter Rühr-

kessel bestehen. Jede Trocknungszelle wurde nun iterativ unter Berücksichtigung der erfüllten Wärmebilanz gelöst. Die axiale Dispersion aus der Gleichung von Nilsson (1986) geht hierbei in die Anzahl ideal durchmischter Rührkessel ein, wobei die Anzahl der Trocknungszellen auf 28 festgesetzt wurde. Die Anzahl von 28 ist dem Kompromiss zwischen relativ glatter Kurvenverläufe von Feuchte und Temperatur entlang der Wirbelschichttrinne und der Rechenzeit geschuldet. Die Autoren berechneten den Verlauf von Feuchte, Temperatur und spezifischem Energieverbrauch über die Länge der Wirbelschichttrinne wie auch den Gesamtenergieverbrauch. Die Simulationen ergaben, dass der Effekt der Dispersion vernachlässigbar ist.

Basierend auf dem Modell von Burgschweiger und Tsotsas (2002) erstellten Alaathar u. a. (2013) ein Fließbild-Simulationstool, welches die Simulation der Trocknung von verschiedenen Feststoffen, sowie für deren Mischungen, in einem kontinuierlich betriebenen Wirbelschichtreaktor für eine ganzzahlige Anzahl CSTR ermöglicht. Es erfolgt die Berechnung der Gasfeuchte und -temperatur sowie der Verteilung der Partikelfeuchte und -temperatur, unter Berücksichtigung der Verteilung von Partikelfeuchte, -temperatur und -größe. Die Validierung der Simulation anhand der experimentellen Ergebnisse von Peglow u. a. (2007) ergab eine gute Übereinstimmung.

Die Integration der Partikelanzahldichte über die Verweilzeit für eine Rührkesselkaskade ermöglicht darüber hinaus die Berechnung des Trocknungsverhaltens von Partikeln in einer Wirbelschichttrinne. Um eine Berechnung einer realen Wirbelschichttrinne durchzuführen, muss hierfür jedoch die Anzahl ideal durchmischter Rührkessel so gewählt werden, dass eine Übereinstimmung der Simulationsergebnisse an die experimentellen Daten erreicht wird. Eine Parameterstudie bezüglich des Längen-Breiten-Verhältnisses wurde simulativ durchgeführt, um dessen Effekt auf die Partikelfeuchteverteilung zu untersuchen. Die simulierten Daten zur Trocknung in der Wirbelschichttrinne wurden jedoch nicht experimentell validiert.

Auf den ersten Blick scheint es eine Fülle an Veröffentlichungen in der Literatur zu geben, welche sich mit der Trocknung in Wirbelschichten befassen. Obwohl einiges an experimentellen Daten bezüglich der diskontinuierlichen Wirbelschichttrocknung zur Verfügung steht, gibt es nur wenige experimentelle Untersuchungen zur kontinuierlichen Trocknung in Wirbelschichten. Experimentelle Studien zur kontinuierlichen Trocknung in Wirbelschichttrinnen sind hingegen in der wissenschaftlichen Literatur noch weniger vertreten. Experimentelle Daten bezüglich der verteilten Partikelfeuchte am Austritt eines solchen Apparates existieren bisher nur in der Arbeit von Chen u. a. (2017). Die hier vorgestellten Trocknungsversuche stammen aus der vorliegenden Dissertation und wurden an einer Wirbelschichttrinne, unter Variation der Austrittswehrhöhe sowie mit und ohne internen Einbauten durchgeführt, wobei lediglich ein kleiner Teil der relevanten Betriebsparameter abgedeckt wurde.

Ähnlich verhält es sich mit wissenschaftlichen Arbeiten zur Simulation kontinuierlicher Wirbelschichttrinnen. Häufig werden Kaskadenmodelle mit ganzzahliger Anzahl von Rührkesseln verwendet, wobei die Anpassung von Simulation an Experimente erforderlich ist, oder grobe

Annahmen, wie großem Längen-Breiten-Verhältnis oder sehr geringer Partikeldispersion (Kolbenströmung der Partikel) getroffen werden müssen. Auch hierfür findet sich eine Lösung in der Arbeit von Chen u. a. (2017), in Form einer 1D und einer 2D Modellierung des Trocknungsprozesses, wobei die 1D Modellierung Bestandteil der vorliegenden Dissertation ist. Als Resultat konnte eine zufriedenstellende Abbildung der experimentellen Daten erreicht werden.

Ziel war es somit die vorhandene Informationslücke bezüglich der experimentellen Untersuchung in Wirbelschichtrinnen sowie der Modellierung des Trocknungsverhaltens von Partikeln, unter Berücksichtigung verteilter Partikelfeuchte, zu füllen, um zukünftig die Trocknung partikulärer Güter in der kontinuierlich betriebenen Wirbelschichtrinne mit hinreichender Genauigkeit vorhersagen zu können.

## 1.6 Coating in Wirbelschichtrinnen

Grundsätzlich können partikelbildende Prozesse in der Wirbelschicht in drei Formulierungsprozesse eingeteilt werden. Bei der Agglomeration werden feine Partikel durch Einsatz von Bindemitteln aneinander gebunden, wodurch neue und größere Partikel entstehen und mit fortlaufender Prozesszeit und mit weiteren Partikeln weiter wachsen können.

Bei der Granulation werden Partikel mit einer artgleichen Flüssigkeit, beispielsweise einer Schmelze, Suspension oder Lösung, beaufschlagt. Durch Erstarren der Schmelze oder Verdampfen der Flüssigkeit oder des Lösungsmittels wachsen diese schichtweise an, da sich der enthaltene Feststoff auf ihnen abscheidet. Die finalen Partikel unterscheiden sich hierbei nicht von den ursprünglichen Partikeln bezüglich ihrer Materialzusammensetzung. Dies ist der primäre Unterschied zum Coating bzw. zur Ummantelung von Partikeln, wobei die Kernpartikel aus einem anderen Material als die entstehende Coatinghülle bestehen. Dennoch verhalten sich Granulations- und Coatingprozesse ähnlich, weshalb im Folgenden auf beide Prozessmodi eingegangen wird.

Das Wirbelschichtcoating oder das Ummanteln von partikulären Gütern in der Wirbelschicht fand ursprünglich hauptsächlich im Bereich der Pharmaindustrie statt. Gerüche oder Geschmäcker konnten hierdurch mit einer neutralen Hülle maskiert, pharmazeutische Wirkstoffe durch eine sich langsam zersetzende Schicht kontrolliert freigesetzt oder empfindliche Materialien durch eine Schutzschicht von der Außenwelt abgeschirmt werden. In den 1960er Jahren meldeten Wurster (1963, 1966) sowie Wurster und Lindlof (1964, 1965) mehrere Verfahren und Apparate zum Patent an, welche noch heute Anwendung finden. Aufgrund der besonderen Apparatebauweise mit mittigem Steigrohr in der konischen Anlage ließen sich auch sehr feine Partikel in der Wirbelschicht beschichten. Der Gasverteilerboden war hierbei durch unterschiedliche Öffnungsverhältnisse so gestaltet, dass eine Erhöhung des Gasstroms in Richtung Zentrum erfolgte. Darüber hinaus kann eine besonders gleichmäßige Beschichtung im Wurster-Betrieb



erreicht werden.

Daraufhin schlugen Scott u. a. (1964) sowie Rankell u. a. (1964) Möglichkeiten zum Design von Anlagen und zur Umsetzung von Coatingprozessen im kontinuierlichen Betrieb vor, indem sie eine bereits bestehende diskontinuierliche Wirbelschichtanlage mit zwei Schleusen ausstatteten, um einen kontinuierlichen Partikelein- und -austrag zu ermöglichen. Sowohl für den diskontinuierlichen als auch für den kontinuierlichen Fall ließ sich das Partikelwachstum derart einstellen, dass anschließendes Mahlen von Grobgut überflüssig war. Auch die Partikelfeuchte konnte in beiden Fällen so eingestellt werden, dass ein nachfolgender Trocknungsprozess entfiel. Es folgten weitere Arbeiten, welche sich hauptsächlich mit Parametereinflüssen und deren Auswirkungen auf den Coatingprozess befassten.

So untersuchten Ormós u. a. (1973d,c,b,a) die Partikeleigenschaften, wie Abriebfestigkeit und Porenvolumen, betrachteten bereits bestehende Methoden und deren Anwendbarkeit auf die in diskontinuierlichen Wirbelschichten hergestellten Granulate und schlugen ihrerseits Methoden zur Charakterisierung von Partikeln vor. Daraufhin stellten sie Parameter, wie Bindermenge und -durchsatz sowie die Eigenschaften von Düsenluft und auch des Verteilerbodens in den Mittelpunkt ihrer Arbeit.

Weitere Untersuchungen zum Einfluss verschiedener Parameter auf das Coatingergebnis folgten beispielsweise von Thurn (1970) und Banks (1981).

Erst später wurde die Wirbelschichttechnologie auch in anderen Bereichen, wie der chemischen oder Lebensmittelindustrie angewendet. Dewettinck und Huyghebaert (1999) schrieben eine Abhandlung über das Coating in der Lebensmittelindustrie, wobei sie auf Allgemeines und Grundlagen aber auch Prozessvariablen (Dewettinck und Huyghebaert (1998)), Wettereinflüsse, Prozesskontrolle, mögliche Agglomeration als Nebeneffekt, das Coating aus Schmelzen und letztendlich die eigentliche Anwendung im Lebensmittelbereich eingehen. Bis zu Beginn des 21. Jahrhunderts fokussierten sich wissenschaftliche Arbeiten hauptsächlich auf experimentelle Untersuchungen in diskontinuierlichen Wirbelschichten (Wesdyk u. a. (1993); Hemati u. a. (2003)) und den Einfluss von Betriebsparametern auf die Granulatcharakteristik.

Eine neue Methode zur Einbringung von Wärme in der Wirbelschicht wurde von Idakiev u. a. (2018) vorgestellt. Sie verglichen experimentell das konvektive und induktive Heizen während des Coating Prozesses, wobei ähnliche Ergebnisse erzielt werden konnten. Abschließend wurden die Vor- und Nachteile der induktiven Wärmeeinbringung diskutiert und ihre Limitierung aufgezeigt.

Ein Beitrag von Teunou und Poncelet (2002) behandelt den Vergleich von diskontinuierlichem und kontinuierlichem Coating in der Lebensmittelindustrie, wobei sie zum Ergebnis kamen, dass der kontinuierliche Prozess, neben vielen Nachteilen auf Ebene der Partikelqualität, das deutlich wirtschaftlichere Verfahren ist. Dies ist besonders in der chemischen und Lebensmittelindustrie

von besonderem Interesse. Hier sind die Gewinnmargen deutlich kleiner, als beispielsweise im Pharmabereich, weshalb die Produktion aufgrund höheren Durchsatzes kostengünstiger sein muss.

In der Arbeit von Hampel u. a. (2013) wird das klassische Wurster-System in der konischen Wirbelschicht im kontinuierlichen Betrieb betrachtet. Als Partikelsystem wurde mikrokristalline Zellulose als Kernpartikel und wässrige Natriumbenzoatlösung als Coatingflüssigkeit verwendet. Der Partikelaustrag erfolgte über zwei getaktete Schleusen und ein nachgeschaltetes Sichterrohr. Partikel mit einer gewissen Größe und entsprechender Sinkgeschwindigkeit fallen hierbei zu Boden in einen Auffangbehälter, wohingegen kleine Partikel mit dem aufwärts gerichteten Luftstrom mitgerissen und erneut der Wirbelschicht zugeführt werden. Zusätzlich zur experimentellen Untersuchung wurde ein populationsdynamisches Modell zur Vorausberechnung der Partikelgrößenverteilung erstellt und mit den experimentellen Daten verglichen.

Schmidt u. a. (2015a,b) untersuchten die Granulation von Natriumbenzoatpartikeln in einer runden, kontinuierlichen Wirbelschicht. Es wurden dabei Prozesse mit zwei Klassiervarianten betrachtet: zum einen mit interner Klassierung über ein vertikal mit Luft durchströmtes Fallrohr im Zentrum der Wirbelschicht; zum anderen mit externer Klassierung über zwei Siebe, welche das ausgetragene Gut in Überkorn, Produkt und Unterkorn aufteilen. Das als zu groß befundene Überkorn wurde anschließend durch eine Mühle zerkleinert und mit dem zu feinen Unterkorn erneut der Wirbelschicht zugeführt. Es wurde gezeigt, wie sich sowohl die Trocknungsbedingungen, der Durchsatz der Granulationslösung, der Fluidisationsgasmassenstrom und -temperatur, als auch die Gasgeschwindigkeit im Klassierrohr und die Größe bzw. Masse des Partikelzustroms auf die Stabilität des Prozesses auswirken. Der Partikelzustrom wurde hierbei lediglich durch Overspray bzw. durch Zerkleinern der Überkorns in der Mühle generiert. Abhängig von den Prozessbedingungen konnten Oszillationen der Partikelgrößenverteilung über die Prozesszeit festgestellt werden.

Für die Qualität eines Produktes sind dessen Eigenschaften und deren Verteilung ausschlaggebend. Aus diesem Grund beschäftigten sich Rieck u. a. (2015) mit der experimentellen Untersuchung der Porosität von mit Natriumbenzoat beschichteten Glas- und  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikeln. In einer diskontinuierlichen, runden Wirbelschicht im Labormaßstab wurde die Gastemperatur am Eintritt sowie der Durchsatz der Coatingflüssigkeit einer wässrigen Lösung aus Natriumbenzoat variiert und eine empirische Gleichung für die Korrelation der Porosität abgeleitet. Hierfür wurde ein Term eingeführt, welcher als gaseitiges Trocknungspotential bezeichnet und aus dem Verhältnis der Differenz von gesättigter und Austrittsgasfeuchte zur Differenz von gesättigter und Eintrittsgasfeuchte berechnet wird. Basierend auf Populations-, Wärme- und Massenbilanzen wurde die erstellte Korrelation in ein Modell zur Berechnung des Partikelwachstums integriert, wobei eine gute Übereinstimmung von experimentellen Daten und Simulation erzielt wurde.

Im selben Jahr untersuchten Hoffmann u. a. (2015) die Porosität von Natriumbenzoatpartikeln

bei der kontinuierlichen Granulation in einer runden Wirbelschicht mit internem Klassierrohr. Auch in dieser Arbeit wurde auf Prozessstabilität und die Eigenschaften des im System durch Overspray generierten Partikelzustroms eingegangen, wobei das Hauptaugenmerk jedoch auf der Berechnung des Partikelwachstums lag. Hierfür wurde ein Zwei-Zonen-Modell mit Populationsbilanzen genutzt, wobei das gesamte System in eine Sprüh- und eine Trocknungszone aufteilt wurde. In der Arbeit wurde die Korrelation von Rieck u. a. (2015) verwendet, wodurch eine gute Übereinstimmung von Simulation und Experiment erzielt wurde.

Im Laufe der Zeit konzentrierten sich die anfänglich noch sehr experimentell ausgerichteten Untersuchungen immer mehr auf Modellierung und Simulation. Dies hatte den Vorteil, dass Parameter und deren Einflüsse sowohl auf die Stabilität des Prozesses, als auch auf das Ergebnis der Granulation bzw. des Coatings einfacher, schneller und deutlich kostengünstiger untersucht werden konnten.

Aus diesem Grund erstellten Vreman u. a. (2009) mit Hilfe von Populationsbilanzen ein Granulationsmodell für einen kontinuierlichen Wirbelschichtreaktor. Die Autoren entdeckten, dass unter der Bedingung einer zu großen Fraktion an durch Overspray generierten Keimen, kein stationärer Zustand existierte. Für den Fall eines stationären Zustandes berechneten sie die Partikelgrößenverteilung des Produktes analytisch. Der transiente Bereich wurde numerisch berechnet, bis dieser in den stationären Betrieb konvergierte, wobei sich für den instabilen Fall anhaltende Oszillationen der Partikelgrößenverteilung ausbildeten.

Dieses oszillierende Verhalten der Partikelgrößenverteilung wurde zuvor bereits simulativ und ebenfalls populationsdynamisch von Heinrich u. a. (2002) beobachtet. Es wurde jeweils ein kontinuierliches System mit interner und externer Separation betrachtet. Bei der internen Separation wurde eine Trennung durch ein senkrechtes mit Luft durchströmtes Fallrohr simuliert, wobei die externe Separation durch eine Mühle und zwei Siebe für Über- und Unterkorn sowie Produkt erreicht wurde. Die Autoren beschrieben für beide Fälle ein sehr unregelmäßiges Anlaufverhalten des Prozesses, womit die späteren Oszillationen begründet wurden. Im Gegensatz zu Vreman u. a. (2009) argumentierten Heinrich u. a. (2002) jedoch mit zu kleinen generierten Keimen als Problemfaktor für einen oszillierenden jedoch stabilen Prozess.

Durch das zunehmende Interesse an Arbeiten zur Modellierung solcher Granulations- und Coatingprozesse, rückten zunehmend andere Größen als die bisher untersuchten Betriebsparameter in den Fokus.

So simulierten Fries u. a. (2011) den Granulationsprozess für einen Wurstercoater und eine Wirbelschicht im Top-Spray-Betrieb mit Hilfe gekoppelter DEM-CFD (Discrete Element Method - Computational Fluid Dynamics) Modellierung. Mit dieser sehr rechenintensiven Methode wird die Bewegung der einzelnen Partikel durch die DEM erfasst, wobei die kontinuierliche Gasphase durch die Navier-Stokes Gleichungen beschrieben und mit dem klassischen Ansatz der CFD gelöst wird. Aus den Ergebnissen konnte das Feststoffvolumen in der Sprühzone, also

dem Bereich in dem Partikel mit der Granulationsflüssigkeit benetzt werden, abgeleitet werden. Zusätzlich wurde der Einfluss der Apparategeometrie auf die Homogenität der Partikelbenetzung analysiert. Dabei stellte sich simulativ heraus, dass eine deutlich homogenere Benetzung der Partikel im Wursterapparat erreicht wurde als dies im Top-Spray Wirbelschichtprozess der Fall war.

Mit Hilfe einer flachen, "quasi"-2-dimensionalen Wirbelschicht, einer hochauflösenden Hochgeschwindigkeitskamera und der passenden Bildverarbeitung untersuchten Börner u. a. (2011) die Verweilzeiten von Partikeln in den jeweiligen Zonen für die Benetzung und Trocknung. In der Arbeit wurden vier Fälle, eine Wirbelschicht mit Top-Spray, eine Strahlschicht und jeweils ein Wurstercoater mit und ohne internes Steigrohr gewählt. Eine Zunahme der Gasgeschwindigkeit bewirkte fallübergreifend eine Abnahme der Partikelverweilzeit in der Sprühzone.

In einer späteren Publikation befassten sich Börner u. a. (2014) mit der Messung von Partikelverweilzeiten in den unterschiedlichen Zonen, verwendeten aber ein anderes Messsystem als zuvor. Mit Hilfe einer faseroptischen Sonde wurden sowohl eine flache "quasi"-2-dimensionale als auch eine runde Wirbelschicht in verschiedenen Höhen und bei unterschiedlichen Tiefen untersucht. So war es möglich, Partikelfraktionen sowie Partikel- und Blasengeschwindigkeiten innerhalb der unterschiedlichen Bereiche der Wirbelschicht zu bestimmen.

Die Veröffentlichung von Bück u. a. (2016b) befasst sich ebenfalls mit den von Heinrich u. a. (2002) sowie Vreman u. a. (2009) beschriebenen Oszillationen der Partikelgrößenverteilung bei der kontinuierlichen Wirbelschichtgranulation mit externer Klassierung durch einen Sieb-Mahl-Kreislauf. Nach ihrem Urteil ist die Stabilität des Prozesses nicht allein abhängig von den partikelbildenden Betriebsparametern, sondern vielmehr von der Ausprägung der verschiedenen Zonen im System. Daher wurde eine systematische modellgestützte Untersuchung durchgeführt und eine Beurteilung für den Fall der Top-Spray-Granulation und einen Wurster-Apparat abgegeben. Die Wahrscheinlichkeit einer Oszillation war für den Wurster-Apparat mit externer Klassierung am größten. Für die Top-Spray-Granulation waren das Verhältnis von Trocknungs- zu Sprühzone, bzw. die Verweilzeit in erster Linie ausschlaggebend für die Stabilität. Waren diese Größen zu klein gewählt, hatten die Partikel nur wenig Zeit zum Trocknen, da sie sich hauptsächlich in der Sprühzone aufhielten. Hierdurch wurde ebenfalls oszillierendes bzw. instabiles Prozessverhalten hervorgerufen. Darüber hinaus gaben Bück u. a. (2016b) tabellarisch eine Zusammenfassung von Arbeiten aus der Literatur an, welche sich mit der Bestimmung der Volumenfraktionen von Sprüh- oder Trocknungszonen bzw. der Partikelverweilzeiten innerhalb dieser Zonen befassen. Weiterhin beschäftigten sich Bück u. a. (2015) sowie Bück u. a. (2016a) mit unterschiedlichen Ansätzen zur modellgestützten Kontrolle von Partikeleigenschaften mit dem Ziel die instabilen Gleichgewichtszustände zu stabilisieren.

Bertin u. a. (2011) erstellten ein Modell zur Beschreibung des Wachstumsprozesses von Harnstoffpartikeln zur Düngemittelherstellung aus einer Schmelze in der Wirbelschichttrinne und

lösten dieses numerisch. Hierfür wurden Populations-, Massen- und Energiebilanzen genutzt und drei Wachstums- und Kühlkammern der Wirbelschichtrinne als Kaskadenmodell beschrieben, in welchem jede Kammer als eigenständiger, ideal durchmischter Rührkessel betrachtet wurde. Es wurde ein Granulationsprozess als Grundlagenversuch betrachtet und jeweils eine Störung in Form einer Erhöhung von 10% (Sprungfunktion) des Partikeldurchsatzes, des Eintrages der Schmelze sowie des mittleren Partikeldurchmessers am Eintritt und dessen Varianz veranlasst. Auch eine Änderung des Rücklaufverhältnisses, also wie viel des finalen und zu groben Produktes in einer Mühle zerkleinert und erneut dem Partikeleintrittsmassenstrom zugeführt wurde, war Teil der Untersuchung. Es stellte sich heraus, dass ein geringes Rücklaufverhältnis der Stabilität des Prozesses zuträglich ist und die Partikelgrößenverteilung am Zulauf den größten Einfluss auf die Größenverteilung des finalen Produktes am Austritt hat. Eine Abnahme des Partikelmassenstroms und eine Zunahme des Stroms flüssiger Schmelze begünstigen ebenfalls schnelleres Partikelwachstum.

In einer weiteren Publikation von Bertin u. a. (2013) wurde ein Granulationsmodell für die kontinuierliche Wirbelschichtrinne im stationären Zustand präsentiert. Hierbei wurde die Wirbelschichtrinne, wie zuvor bei Bertin u. a. (2011), als Kaskade ideal durchmischter Rührkessel betrachtet und der Effekt des Austrags feiner Partikel mit dem Fluidisationsgasmassenstrom berücksichtigt. Partikelmassenströme von einer zur nächsten Kammer wurden aus den Gleichungen von Bernoulli und der Differenz der Betthöhen in den einzelnen Kammern abgeleitet, wodurch der Rückfluss von Partikeln in eine vorherige Kammer ausgeschlossen wurde. Das Modell für den Granulationsprozess kann analytisch für eine beliebige Partikelgrößenverteilung am Eintritt gelöst werden, wobei der Partikeldurchmesser als interne Größenkoordinate verwendet wird. Um den Austrag der besonders kleinen Partikel zu berücksichtigen, wurde eine Austragskonstante bestimmt, was durch Anpassen der Simulationsdaten an experimentelle Werte erreicht wurde. Die Vergleiche von Simulation und Experiment belegen eine gute Übereinstimmung.

Diese Abhandlung sollte die Entwicklung des Granulations- und Coatingprozesses über die vergangenen Jahre aufzeigen und verdeutlichen, dass eine Vielzahl an experimentellen Untersuchungen in der Literatur hinsichtlich der Betriebsparameter auf das finale Produkt hauptsächlich im diskontinuierlichen Prozess existiert. Für den Fall der kontinuierlichen Granulation oder des Coatings nimmt die Zahl der verfügbaren Veröffentlichungen auf experimenteller Ebene jedoch stark ab, wobei verlässliche experimentelle Daten zum kontinuierlichen Coating in der Wirbelschichtrinne selten sind. In der Arbeit von Bachmann u. a. (2019), welche Teil der vorliegenden Dissertation ist, werden jedoch experimentelle Daten an einer Wirbelschichtrinne erhoben und auf die Partikelgrößen- und Schichtdickenverteilung sowie die Schichtporosität analysiert. Ähnlich verhält es sich mit der Simulation und Modellbildung dieser Prozesse. Obwohl es Modelle zur Beschreibung des Coatingprozesses in Wirbelschichtrinnen gibt, sind die Simulationsdaten

kaum bis gar nicht durch experimentelle Daten validiert. Darüber hinaus wird auch der Einfluss der Partikelverweilzeit im System unzureichend diskutiert, weshalb es unmöglich ist, deren Einfluss auf das Coatingergebnis, wie z.B. der Partikelgrößenverteilung, unabhängig vom Einfluss anderer Faktoren, wie Zonenbildung, Betriebsparametern oder Materialeigenschaften, zu bestimmen. Auch dies ist als Teil der gegenwärtigen Dissertation in der Arbeit von Bachmann u. a. (2019) veröffentlicht, wobei hierbei Simulationsergebnisse eines 1D und eines 2D Modells mit den experimentellen Messwerten verglichen wurden.

Es bedarf weiterer Forschungsarbeit, um letztendlich in der Lage zu sein, Coatingprozesse hinreichend gut vorher zu berechnen, um in Zukunft ein qualitativ hochwertiges partikuläres Produkt kostengünstig herstellen oder ein gesamtes Anlagenkonzept erstellen zu können.

## 1.7 Zielstellung

Der Markt für partikuläre Güter, sei es im chemischen, lebensmitteltechnischen oder pharmazeutischen Bereich, ist immens und nahezu unüberschaubar. Im Sinne der Wirtschaftlichkeit ist der Trend vom diskontinuierlichen Betrieb zur kontinuierlichen Verfahrensweise erkennbar. Ein Großteil von Ausgangs- oder Zwischenprodukten liegt in den betrachteten Industriezweigen in feuchtem Zustand vor, weshalb eine Trocknung der Güter erforderlich ist. Weitergehend kann es notwendig sein die hergestellten Produkte zu beschichten, um beispielsweise eine definierte Arzneimittelfreisetzung zu realisieren oder lediglich um bestimmte Inhaltsstoffe von äußeren Einflüssen zu schützen. Um eine hohe Qualität der finalen Produkte zu gewährleisten, ergeben sich neue Ansprüche an den Herstellungsprozess dieser Produkte sowie bei Planung, Auslegung, Bau und Design der Apparatechnik. Dabei wird das Interesse an der standardmäßigen Erfassung von Mittelwerten der Partikeleigenschaften, wie etwa der Partikelfeuchte bei der Trocknung oder der Partikelgröße beim Coating von der Kenntnis der verteilten Partikeleigenschaften abgelöst. Hierfür ist das Verständnis des Zusammenhangs von Partikelverweilzeit im System und der sich ändernden Partikeleigenschaften notwendig, welche im Wesentlichen die Produktqualität bestimmen.

Das Ziel dieser Arbeit ist daher, diesen Zusammenhang experimentell zu ermitteln und ihn modellbasiert zu berechnen. Hierfür sollen in einem ersten Teil Verweilzeitmessungen an zwei Wirbelschichtrinnen, im Labor- und Technikumsmaßstab, durchgeführt werden. Die gemessenen Verweilzeitverteilungen sollen weitergehend analysiert und auf ihren konvektiven und dispersiven Anteil untersucht werden. Das Verhältnis beider Terme entspricht der Bodensteinzahl, welche mit Hilfe einer zu erstellenden empirischen Gleichung dimensionslos korreliert werden soll. Auch eine Korrelation der mittleren Verweilzeit soll erfolgen. Mit beiden korrelierten Größen soll es zukünftig möglich sein, die Verweilzeitverteilung eines beliebigen kontinuierlichen Prozesses in einer Wirbelschichtrinne beliebiger Dimension zu berechnen und somit vorher zu sagen.

Im zweiten Teil dieser Arbeit soll der Zusammenhang der korrelierten Verweilzeitverteilungen mit den verteilten Partikeleigenschaften geschaffen werden. Hierfür sollen zunächst Messdaten zur Trocknung von feuchten Partikeln generiert werden. Proben am Eintritt sowie am Austritt der Wirbelschichtrinne sollen auf die Feuchte der Einzelpartikel untersucht werden, woraus sich die verteilte Partikelfeuchte über die Population ergibt.

Neben der experimentellen Untersuchung sollen auch Berechnungen zur Trocknung von Partikeln in der Wirbelschichtrinne durchgeführt werden. Hierfür soll ein auf Populationsbilanzen gestütztes Modell erstellt werden, welches Verweilzeitverteilungen aus der im ersten Teil erstellten Korrelation einbezieht. Nach einer Diskretisierung und Implementierung soll die Simulation erfolgen, welche mit den experimentell bestimmten Daten bezüglich der Partikelfeuchteverteilung verglichen werden soll.

Zusätzlich zur Partikelfeuchte soll im dritten Teil der Arbeit auch der Einfluss der Verweilzeitverteilung auf eine weitere Partikeleigenschaft, die Partikelgröße beim Coating, bestimmt werden. Zu diesem Zweck sollen experimentelle Untersuchungen zum Partikelcoating durchgeführt werden. Der Durchmesser mehrerer Einzelpartikel soll daher sowohl vor Eintritt in die Wirbelschichtrinne als auch am Austritt aus dem System bestimmt werden, woraus die mittlere Schichtdicke der Einzelpartikel bestimmt werden soll, was wiederum zur verteilten Schichtdicke über die gesamte Partikelpopulation führt. Um die Qualität der Beschichtung zu beurteilen, sollen weiterhin einzelne Partikelschichten auf deren Gleichmäßigkeit hin untersucht werden.

Ein populationsdynamisches Modell soll darüber hinaus für die Berechnung der Endverteilung der Partikelschichtdicke herangezogen werden. Hierfür soll eine vorgegebene, aus der zuvor erstellten Korrelation bestimmte Verweilzeitverteilung genutzt und die Ergebnisse im Anschluss mit den experimentellen Daten verglichen werden.

Die erzielten Ergebnisse sollen zukünftig eine zuverlässigere und schnellere Auslegung von Wirbelschichtrinnen und gezieltere, auf spezielle Anwendungen abgestimmte apparative Lösungen ermöglichen.

Neben den Herstellern solcher Wirbelschichtrinnen sollen auch deren Anwender einen Vorteil aus den wissenschaftlichen Ergebnissen erfahren. Beispielsweise soll eine Abschätzung von zukünftigen Investitionen in weitere Anlagentechnik oder eine mögliche Überprüfung von Angeboten erleichtert und beschleunigt werden. Auch für die Möglichkeit der Umrüstung oder Anpassung bestehender Anlagentechnik, zur Prozessoptimierung und Erhöhung der Wirtschaftlichkeit, soll diese Arbeit eine Grundlage bilden.

Die vorliegende Arbeit soll Bindeglied zwischen Apparate-, Verfahrens- und Produktentwicklung sein und deren bisher separate Betrachtung in ihrer Gesamtheit ermöglichen.

## 2 Experimentelles Setup

Im Folgenden wird auf den Aufbau von Wirbelschichttrinnen sowie auf Gemeinsamkeiten und Unterschiede der in dieser Arbeit verwendeten Wirbelschichtapparate eingegangen. Des Weiteren werden die genutzten Materialien sowie die Messtechnik zur Partikelanalyse vorgestellt.

### 2.1 Aufbau der verwendeten Wirbelschichttrinnen

Eine kontinuierliche Wirbelschichttrinne besteht, wie nahezu alle Wirbelschichtapparate, im Wesentlichen aus einer Wirbelkammer, welche nach unten durch einen Loch- oder Sintermetallboden zur homogenen Gasverteilung abgegrenzt ist. Für die Luftversorgung können verschiedene Arten von Ventilatoren, sowohl vor der Wirbelschichtkammer (druckseitig) als auch danach (saugseitig) installiert sein, wobei für kleinere Anlagen im Labormaßstab auch die Versorgung aus dem Druckluftsystem möglich ist. Auch Inertgase können zur Fluidisation genutzt werden, indem diese im Kreislauf durch das System gefördert werden. Eine Integration von Heizern in den luftdurchströmten Leitungen ermöglicht das Erwärmen des Prozessgases, um beispielsweise eine Steigerung der Kapazität zur Flüssigkeitsaufnahme zu bewirken.

Im Anschluss an die Wirbelkammer durchströmt das Gas im Allgemeinen einen Zyklon, einen Filter oder beides in Reihe, um feine Feststoffpartikel, welche vom Fluidisationsgasmassenstrom mitgerissen wurden, von diesem abzutrennen. Abhängig vom Prozess besteht die Möglichkeit, den abgetrennten und staubigen Feststoffanteil über Rohrleitungen und eine Schleuse erneut der Wirbelschichtkammer zuzuführen. Um vom Fluidisationsgas aufgenommene Flüssigkeiten wieder abzuscheiden, können Kondensatoren nach der Feststoffabscheidung genutzt werden.

Im Gegenteil zu diskontinuierlichen Apparaten weisen kontinuierliche Anlagen Partikelschleusen auf, wie beispielsweise Förderschnecken oder Zellenradschleusen, um den kontinuierlichen Partikelein- und -austrag zu ermöglichen und das System von den Umgebungsdruckverhältnissen abzudichten. Im Gegensatz zu zylindrischen, kontinuierlichen Wirbelschichten, bei welchen der Partikelaustrag häufig durch ein zentrales, vertikales Abzugsrohr realisiert wird, sind die kanalähnlichen Wirbelschichttrinnen am Partikelaustritt entweder mit Überlaufwehren und anschließender Schleuse oder direkt mit einer Schleuse ausgestattet.

Die Schichthöhe im System kann demnach auf zwei Arten eingestellt werden. Zum einen



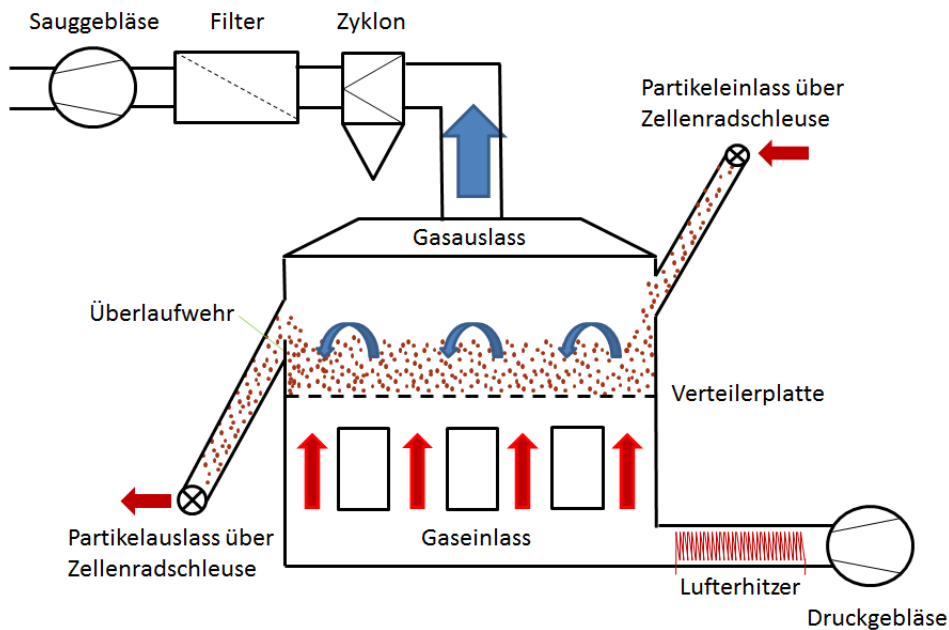


Abbildung 2.1: Skizze der Wirbelschichttrinne im Technikumsmaßstab (Glatt GmbH, GF/Procell 20).

über die Höhe eines Überlaufwehres am Austritt der Wirbelschichttrinne (WSR) und zum anderen über den Partikeldurchsatz der Schleuse am Boden der WSR. Durch diese kann die Bettmasse gesteuert werden, da die Schleusendrehzahl während des laufenden Prozesses kontrolliert werden kann. Abbildung 2.1 zeigt den schematischen Aufbau der verwendeten Technikumsanlage mit allen wichtigen Bestandteilen.

Es ist darüber hinaus möglich, die Technikumsanlage für bestimmte Anwendungen zu modifizieren. Der Einbau von Zweistoff-Bottom-Spray Düsen (Schlick GmbH, Durchmesser des Flüssigkeitskanals = 2,3 mm) in den Verteilerboden (Abbildung 2.2 A), zum Einbringen von Flüssigkeiten beim Coating- oder Agglomerationsprozess, kann realisiert werden. Außerdem können interne Wehre für den Überlauf sowie für den Unterlauf in die Wirbelschichttrinne integriert werden. Im Überlaufmodus (Abbildung 2.2 B) können Partikel von einer Kammer zur nächsten nur über die internen Wehre transportiert werden, da diese mit der Gasverteilerplatte nach unten abschließen. Beim Unterlaufmodus (Abbildung 2.2 C) sind die Wehre hingegen so hoch, dass ein Partikeltransport darüber hinweg nicht stattfinden kann, jedoch durch einen Spalt zwischen Wehr und Gasverteilerplatte möglich ist. Durch den Einsatz solcher internen Wehre kann Einfluss auf das Partikelverweilzeitverhalten in der kontinuierlichen Wirbelschichttrinne genommen werden. Die Steuerung der Zellenradschleuse am Eintritt sowie der Ventilatorleistung erfolgt jeweils über einen Frequenzumrichter. Die Zellenradschleuse am Austritt rotiert mit maximaler Geschwindigkeit, da Partikel, welche das Überlaufwehr am Austritt passiert haben, direkt ausgetragen werden müssen, um die Verweilzeitmessung am Austritt nicht zu

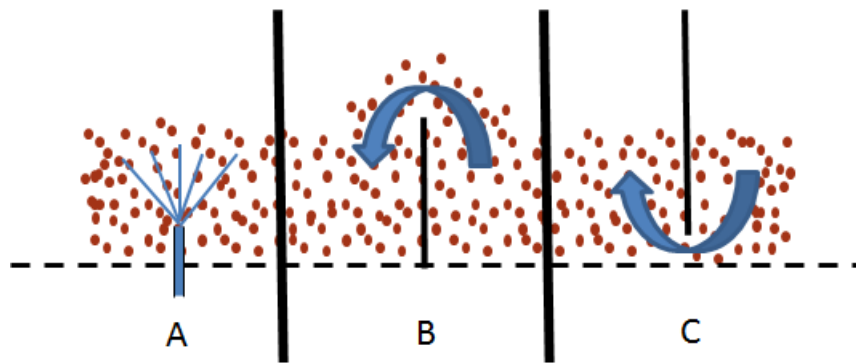


Abbildung 2.2: Skizze der Wirbelschichttrinne im Labormaßstab (Kaltmodell Eigenbau). Dargestellt sind die drei Bereiche: (A) Bottom-Spray Zweistoffdüse, (B) Überlaufwehr und (C) Unterlaufwehr.

verfälschen.

In Abbildung 2.3 ist die Wirbelschichttrinne im Labormaßstab schematisch dargestellt, wobei nur die notwendigsten Elemente integriert wurden. Die Ventilatorleistung wird ebenfalls per Frequenzumrichter gesteuert, wobei die Zellenradschleusen am Partikelein- und -austritt jeweils mit maximaler Rotationsgeschwindigkeit laufen. Eine Dosierung von Partikeln erfolgt über eine Vibrationsrinne, welche zuvor auf ihre Fördermenge kalibriert wurde.

Die wesentlichen Parameter der für die experimentellen Untersuchungen verwendeten Wirbelschichttrinnen sind in Tabelle 2.1 aufgeführt. Beide Anlagen sind mit Differenzdrucksensoren zur Bestimmung des Druckverlustes der Gasverteilerplatte sowie der Schichtmasse ausgestattet. Auch Temperaturelemente zur Bestimmung der Temperatur am Gasein- und -austritt sowie in der Schicht sind an beiden Anlagen installiert. Der Produktdurchsatz eines jeden Experimentes kann mit Waagen am Austritt nachvollzogen werden.

## 2.2 Verwendete Materialien

Das in dieser Arbeit untersuchte Partikelsystem besteht aus kugelförmigen  $\gamma$ -Aluminiumoxid. Hierbei handelt es sich um einen weißen, geruchlosen Feststoff, welcher auch als Tonerde bezeichnet wird. In industrieller Anwendung findet sich dieser häufig als Adsorbens bei der Chromatographie, als Katalysatormaterial oder aufgrund seiner hohen Porosität als Träger unterschiedlicher Katalysatoren wieder. Für die experimentelle Untersuchung der Verweilzeitverteilung kamen zwei verschiedene Chargen der Firma Sasol zum Einsatz, Partikel mit mittlerem Sauterdurchmesser von 1,8 mm und 3,0 mm. Für die anschließenden Untersuchungen zur Wirbelschichttrocknung sowie zum -coating wurden die 1,8 mm Partikel genutzt. Die verwendeten Partikel weisen eine hohe Sphärizität von 0,96 und eine enge Partikelgrößenverteilung auf.

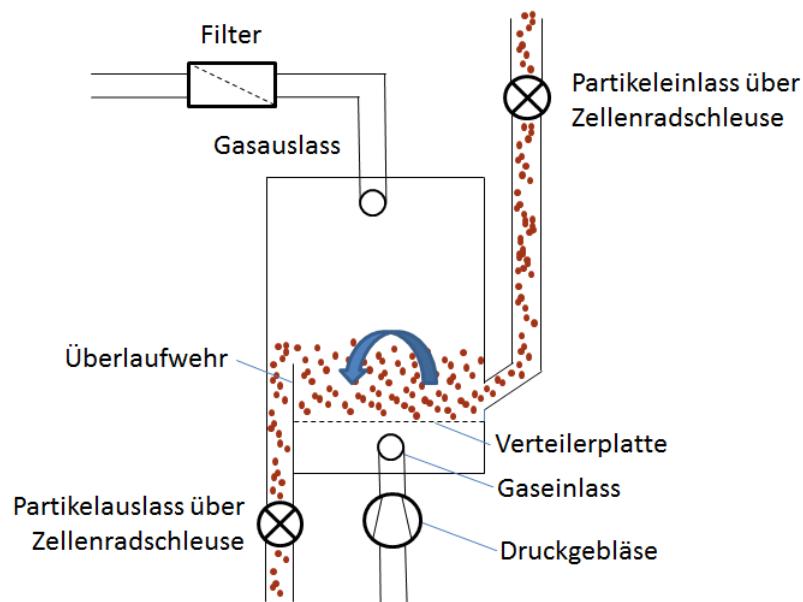


Abbildung 2.3: Skizze der Laborwirbelschichtanlage.

Tabelle 2.1: Vergleich zwischen den genutzten Wirbelschichttrinnen: Technikumsanlage und Laboranlage (siehe Abbildungen 2.1 und 2.3).

	Technikumsanlage	Laboranlage
Luftverteilerplatte	Lochboden	Lochboden
Öffnungsverhältnis	6,4% offene Fläche	6,4% offene Fläche
Luftversorgung Ventilator	druck- und saugseitig	druckseitig
Dimensionen (L x B x H)	100 cm x 20 cm x 55 cm	64 cm x 8 cm x 55 cm
Feststoffdurchsatz	0,4 – 2 kg/min	0,1 – 0,5 kg/min
Feststoffabscheidung	Zyklon + Filter	Filter
Lufterhitzer	ja	nein
Kondensator	nein	nein
Partikelaustrag	Überlaufwehr + Zellenradschleuse möglich	Überlaufwehr + Zellenradschleuse
Staubrückführung		nein

Des Weiteren ist eine hohe Porosität festzustellen, welche bei der Trocknungsuntersuchung von Vorteil ist. Die Partikel können viel Wasser aufnehmen, wodurch sich der Trocknungsprozess über einen langen Zeitraum erstreckt, was im kontinuierlichen Betrieb mit hoher mittleren Partikelverweilzeit notwendig ist. Hiermit wird sichergestellt, dass eine Feuchteverteilung detektiert wird, welche zum Vergleich mit anderen Experimenten herangezogen werden kann. Bei übermäßiger Trocknung würden alle Feuchteverteilungen, unabhängig von den eingestellten Betriebsparametern oder Wehrkonfigurationen, auf Höhe der Gleichgewichtsfeuchte liegen.

Um Tracerpartikel für die Untersuchung der Verweilzeitverteilung herzustellen, wurde ein Teil des ursprünglich weißen Ausgangsstoffs mit Pigmenten gefärbt. Bei den gewählten, wasserlöslichen Pigmenten handelte es sich um Indigokarmin (Blau), Chinolingelb (gelb) und Azorubin (rot).

Als Coatingflüssigkeit wurde eine 30-massenprozentige Natriumbenzoatlösung verwendet. Bei Natriumbenzoat handelt es sich um einen weißen, geruchlosen und kristallinen Feststoff, mit einer Dichte von  $1,44 \text{ g/cm}^3$ , welcher gut und in großen Mengen in Wasser löslich ist. Die Substanz ist kostengünstig und problemlos zu erhalten. Aufgrund seiner bakterio- und fungistatischen Wirkung wird der Stoff als Zusatzstoff E211 zur Konservierung von Lebensmitteln oder in Kosmetika eingesetzt. In der Pyrotechnik findet Natriumbenzoat als Brennstoff Anwendung.

## 2.3 Geräte und Messtechnik zur Partikelanalyse

Bei der Bestimmung der Partikelverweilzeitverteilungen wurden Proben mit einer Masse von etwa 80 g im Minutentakt entnommen. Da die gefärbten Tracerpartikel händisch ausgezählt wurden, wurden bei der hohen Anzahl an Proben die einzelnen Proben mittels Rotationsprobenteilers LABORETTE 27 der Firma Fritsch GmbH repräsentativ in 8 gleiche Fraktionen separiert. Zur Aufgabe der Probe auf den rotierenden Probenteiler wurde der Vibrationskanal LABORETTE 24 mit v-förmiger Rinne der Firma Fritsch GmbH genutzt.

Die Massen sämtlicher Proben und Fraktionen wurden mit der Halbmikrowaage SECURA225D-1S der Firma Sartorius mit einer Genauigkeit von 0,01 mg bestimmt.

Die vollständige Trocknung von Partikelproben bis zur Gleichgewichtsbeladung wurde im Vakuumtrockenschrank VO200 der Memmert GmbH durchgeführt.

### 2.3.1 Coulometrie

Das Ziel bei der Coulometrie ist die Bestimmung einer Menge an Wassermolekülen, indem die elektrische Ladung  $Q$  (Einheit: C - Coulomb) gemessen wird, welche zum vollständigen Abbau des Wassers in einer bekannten chemischen Reaktion benötigt wird. Da bereits sehr kleine Ströme eingestellt und gemessen werden können, eignet sich diese Methode besonders, um

eine sehr geringe Menge von Wasser zu erfassen.

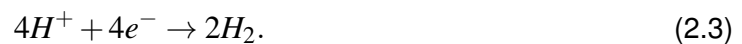
Bei dieser Methode wird die feuchte Probe in einem Ofen platziert, welcher kontinuierlich von einem Inertgas durchströmt wird, das Wasser der Probe nach und nach aufnimmt und anschließend durch eine Keramikmembran strömt. An der Membran, welche als Träger für stark hygroskopisches Phosphorpentoxid  $P_2O_5$  dient, wird das Wasser absorbiert und zu Phosphorsäure gemäß der Reaktionsgleichung



umgesetzt. Zeitgleich wird eine Spannung an der Membran angelegt, wodurch die Phosphorsäure wieder in Phosphorpentoxid umgewandelt wird, nach den Reaktionsgleichungen an der Anode



bzw. an der Kathode



Währenddessen wird der elektrische Strom durch die elektrolytische Zelle als Funktion über die Zeit gemessen. Aus der Integration ergibt sich die gesamte elektrische Ladung für die Elektrolyse, welche wiederum direkt in die absolute Wassermasse umgerechnet werden kann. Zur vorliegenden Untersuchung wurde das easyH2O Water Detection System der Firma Berghof Products + Instruments GmbH genutzt.

### 2.3.2 Kernspinresonanzspektroskopie - nuclear magnetic resonance (NMR)

Da sich auf Grund unterschiedlicher Verweilzeiten einzelner Partikel in der Wirbelschichtrinne auch eine Verteilung der Partikelfeuchte über die Partikelpopulation am Austritt des Trockners einstellt, ist es von großem Interesse, die Feuchte einzelner Partikel zu bestimmen. Problematisch ist hierbei die Bestimmung von sehr geringen Feuchten vieler Partikel, wie sie bei der Wirbelschichttrocknung üblich sind. Die Kernspinresonanzspektroskopie detektiert die Menge an Wasser in einer Probe, indem sie den Kernspin der im Wasser enthaltenen Protonen nutzt.

Für gewöhnlich rotiert das magnetische Moment  $M_{magn}$  eines Protons kreiselförmig (Präzession) auf Grund des imperfekten Kernspins, mit der sogenannten Larmor- bzw. Resonanzfrequenz. Da die Kreiselbewegung des magnetischen Momentes aller Protonen zwar dieselbe Frequenz

aufweist, jedoch ungeordnet in ihrer Ausrichtung ist, ergibt sich im Mittel eine Gesamtmagnetisierung  $M_{magn,tot}$ . Werden Protonen einem magnetischen Feld  $\vec{B}$  ausgesetzt, richten sich ihre magnetischen Momente entsprechend der Quantentheorie nach einem der beiden stationären Zustände - parallel oder antiparallel zu  $\vec{B}$  aus. Die parallele Ausrichtung ( $\alpha$ -spin-state) ist aus thermodynamischer Sicht begünstigt und weist ein geringeres Energieniveau auf. Die antiparallele Ausrichtung mit höherem Energieniveau wird daher nur von wenigen Protonen eingenommen. Mit zunehmender Energie des magnetischen Feldes  $\vec{B}$  steigt die Energiedifferenz zwischen den beiden stationären Zuständen. Durch das Applizieren eines Pulses durch ein zweites Magnetfeld  $\vec{B}_{Puls}$ , welches orthogonal zu dem bestehenden Magnetfeld  $\vec{B}$  orientiert ist, werden Protonen durch Absorption der Energie aus dem energiearmen Zustand auf das höhere Energieniveau gehoben, wodurch die Zahl der Protonen in antiparalleler Ausrichtung steigt. Diese sogenannte Resonanz tritt nur dann auf, wenn die durch den Puls eingetragene Energie genau der Energiedifferenz der beiden Zustände entspricht, was wiederum der Larmor- bzw. Resonanzfrequenz entspricht. Die Resonanzfrequenz von Atomkernen

$$\nu = \frac{\gamma \cdot \vec{B}}{2 \cdot \pi} \quad (2.4)$$

liegt für Wasserstoff bei einer Feldstärke von 1,41 T beispielsweise bei 60 MHz, wobei  $\gamma$  für das gyromagnetische Verhältnis steht.

Nach dem Puls sind die Protonen bestrebt, wieder den niederenergetischen Zustand einzunehmen, was als Spin-Lattice-Relaxation bezeichnet wird. Nach der Relaxationszeit liegt wieder der Ausgangszustand der Protonen vor. Um das Verhältnis von Signal zu Rauschen zu erhöhen, werden mehrere Pulse nacheinander aufgegeben, wobei sich das Rauschen durch die Überlagerung auslöscht und das Signal verstärkt, was in Abbildung 2.4 dargestellt ist.

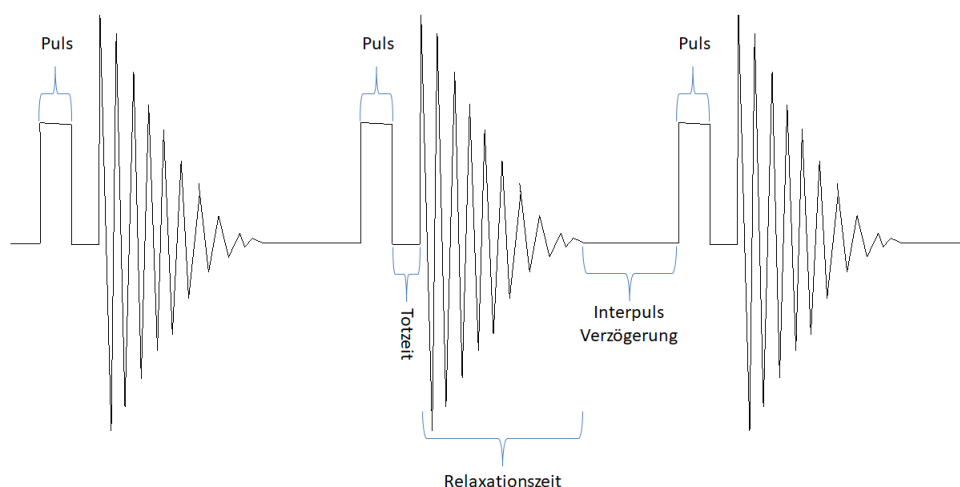


Abbildung 2.4: Skizze des Signals eines Kernspinresonanzspektrometers (NMR). Aufgetragen ist die induzierte Spannung als Funktion der Zeit.

Gemessen wird hierbei nicht die Relaxation der einzelnen Protonen, sondern die Überlagerung aller, also des kreiselnden magnetischen Momentes der Gesamtmagnetisierung  $M_{magn,tot}$ . Dieses pendelt nach der Pulsanregung spiralförmig zurück in seinen Ausgangszustand (free induction decay (FID)), wobei die Abweichung des gesamten magnetischen Momentes als Strom über die x-Achse detektiert und als NMR-Signal ausgegeben wird. Anschließend erfolgt eine Fourier Transformation, um das finale NMR-Spektrum zu erhalten. Eine schematische Skizze hierzu ist in Abbildung 2.5 gegeben.

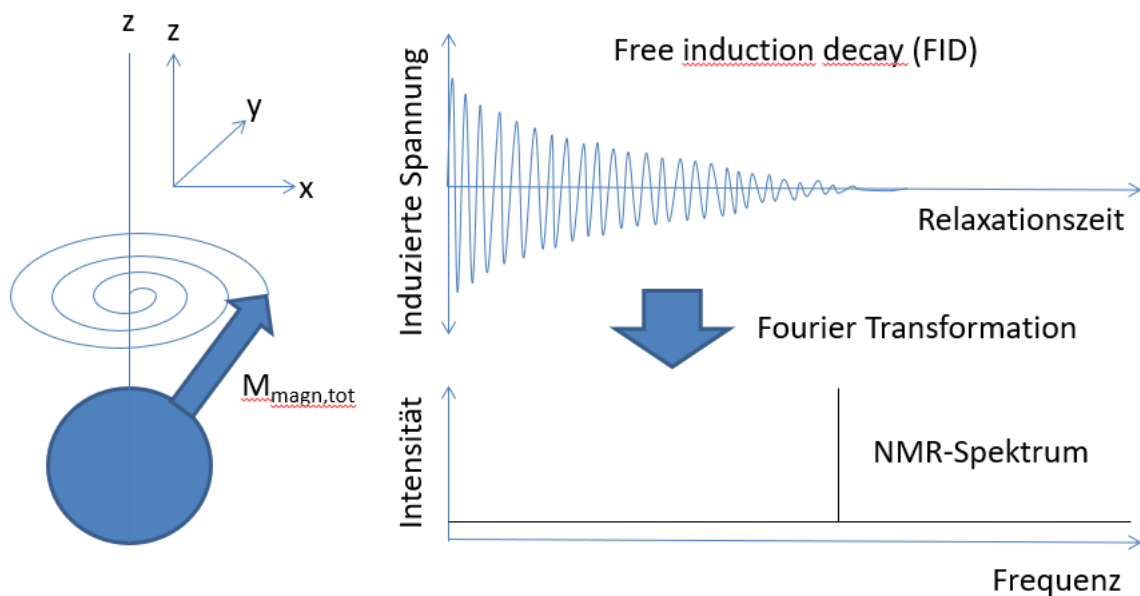


Abbildung 2.5: Skizze der Signalerfassung bei der Kernspinresonanzspektrometrie (NMR).

Die Amplitude während des FID ist direkt abhängig von der absoluten Anzahl an Protonen, wodurch sich auf die genaue und absolute Masse an Wasser, dessen Moleküle genau 2 Protonen besitzen, in einer Probe schließen lässt.

Eine Erhöhung der Feldstärke des Magnetfeldes  $\vec{B}$  bewirkt eine Erhöhung der Energiedifferenz beider Kernzustände, weshalb wiederum eine Erhöhung der Resonanzfrequenz erfolgen muss, wodurch letztendlich die Auflösung verbessert wird. Eine Verringerung der Temperatur bewirkt eine höhere Differenz der Protonenanzahl in parallelem und antiparallelem Zustand. Dies bedeutet, dass mehr Protonen angeregt werden können, den energiereicheren Zustand einzunehmen, bis die Sättigung einsetzt. Dies bewirkt bei Relaxation ein stärkeres Signal und somit ebenfalls eine erhöhte Auflösung.

In der vorliegenden Arbeit wurde das NMR "minispec mq60" der Firma Bruker verwendet.

### 2.3.2.1 Kombination aus Coulometrie und Kernspinresonanzspektroskopie

Um die Vorteile der Coulometrie und ihrer hohen Genauigkeit, auch bei sehr kleinen Wassermengen, mit der unkomplizierten und sehr schnellen Messung mittels NMR zu verbinden, wurde in der Arbeit von Cunäus (2011) eine Kalibrierung erstellt. Hierfür wurden feuchte  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikel des Durchmessers 1,8 mm in einer diskontinuierlichen Wirbelschicht im Labormaßstab getrocknet. Im zeitlichen Verlauf wurden Proben entnommen, wodurch sichergestellt wurde, dass sowohl feuchte, weniger feuchte als auch nahezu trockene Partikel generiert wurden, um einen weiten Bereich abzudecken. Anschließend wurden mehrere Partikel aus allen Proben mit der Kernspinresonanzspektroskopie und anschließend mit dem Coulometer gemessen. Als Resultat ergab sich eine Kalibrierung, indem einem bestimmten NMR-Signal eine definierte Wassermenge zugeordnet werden konnte.

### 2.3.3 Micro-Computertomographie ( $\mu$ -CT)

Das Grundprinzip der Röntgen Mikro-Computertomographie ist in Abbildung 2.6 dargestellt. Die zu untersuchende Probe ist auf dem Probehalter zwischen Röntgenquelle und Photodetektor platziert. Zwischen den Einzelmessungen rotiert der Probehalter samt Probe in horizontaler Ebene, wobei jeweils die Rotationsgeschwindigkeit, die Anzahl der zur Mittelung genutzten Einzelmessungen zwischen den Rotationsbewegungen und die Winkelschrittweite eingestellt werden können. Nach jedem Rotationsschritt erfolgen eine oder mehrere Messungen, bei denen Röntgenstrahlung in der Quelle erzeugt wird, diese die Probe passiert und auf den Detektor trifft. Dieser generiert ein Intensitätsprofil, welches optisch als ein Bild aus Grauwerten erfasst wird. Nach einer kompletten 360° Messung entsteht somit eine Sammlung aus zweidimensionalen Grauwertbildern aus verschiedenen Winkeln. Hieraus wird mit Hilfe eines Computers und entsprechender Software ein dreidimensionales Bild rekonstruiert.

Aufgrund unterschiedlicher Absorption der Röntgenstrahlung in verschiedenen Materialien wird die unterschiedliche Zusammensetzung der Partikel, welche aus Kernpartikel, Coatingschicht und Luft bestehen, sichtbar. Die Auflösung wird hierbei von der minimalen Größe der Voxel (Volumenelement) bestimmt, was der kleinsten noch auflösbaren geometrischen Größe entspricht. Durch diese Methode ist es möglich, sowohl die innere Beschaffenheit des Kernpartikels zu untersuchen, als auch den Aufbau der Coatingschicht genau zu beleuchten. Darüber hinaus ist die Methode zerstörungsfrei, weshalb die selbe Probe mehrfach vermessen werden kann.

Zur Vermessung von beschichteten Partikeln wurde in der vorliegenden Arbeit ein Micro-Computertomographie der Firma ProCon X-ray GmbH (CT Procon alpha 2000 von ProCon X-ray GmbH, Garbsen, Deutschland) und zur Rekonstruktion die Software Volex (Fraunhofer Institute for Integrated Circuits, IIS, Erlangen, Germany) genutzt.



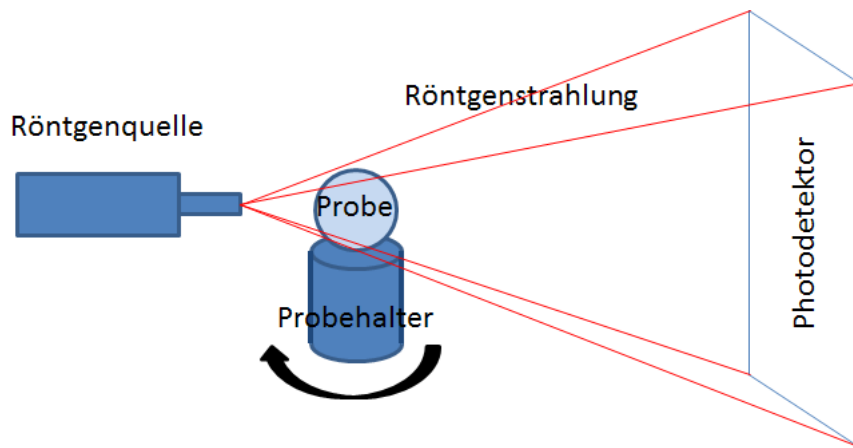


Abbildung 2.6: Skizze der Funktionsweise des in der vorliegenden Arbeit genutzten Mikro-Computertomographen.

Tabelle 2.2: Verwendete Parameter zur Vermessung von Partikeln mittels Mikro-Computertomographie.

	Wert	Einheit
Abstand Röntgenquelle - Probe	80	mm
Abstand Probe - Detektor	400	mm
Detektorauflösung	2304 × 2304	Pixel
Spannung Röntgenquelle	50	kV
Strom Röntgenquelle	170	μA
Beleuchtungszeit	2000	ms
Wiederholungsmessung pro Rotationsschritt	3	-

Die genutzten Betriebsparameter zur Messung sind in Tabelle 2.2 zusammengefasst.

### 2.3.4 Kameraoptisches Messsystem zur Partikelgrößenbestimmung (Camsizer)

Zur Bestimmung der Partikelgrößenverteilung über die Partikelpopulation wurde das kameraoptische System "Camsizer" (Retsch GmbH, Haan, Germany) genutzt, dessen Funktionsprinzip in Abbildung 2.7 skizziert ist.

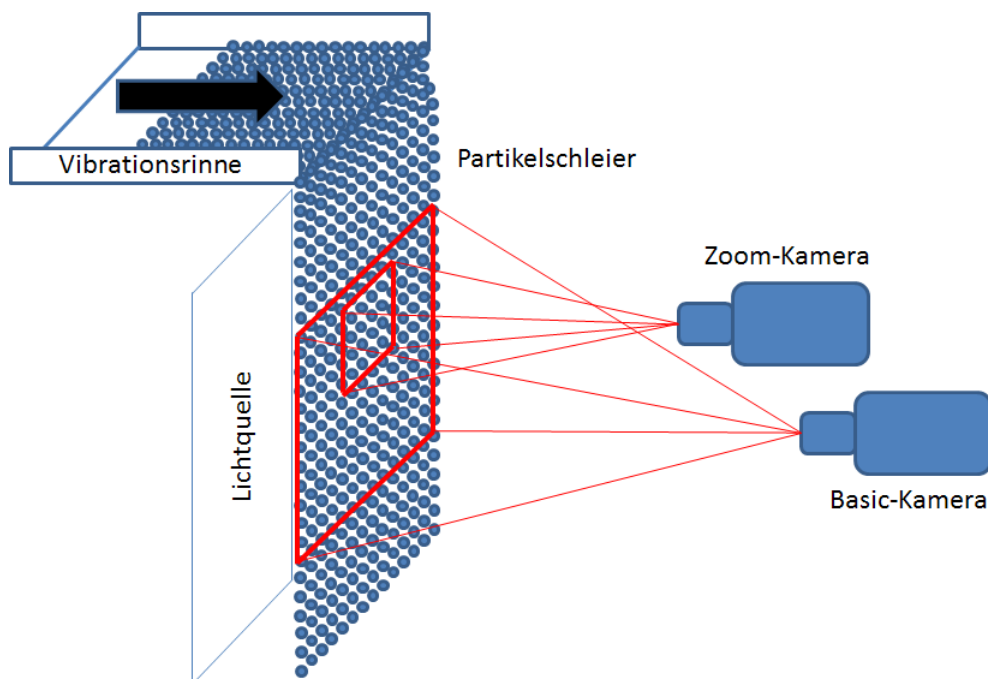


Abbildung 2.7: Skizze der Funktionsweise des in der Arbeit genutzten kameraoptischen Systems "Camsizer" der Firma Retsch GmbH.

Für eine Messung wird die entsprechende Partikelschüttung in einen Vorlagetrichter gegeben, welcher auf eine Vibrationsrinne führt. Diese sorgt für die gleichmäßige Verteilung der Partikel als Monolage auf der Rinne und deren horizontalen Transport in Richtung des Messschachts. In diesem Schacht fallen die Partikel nun als zweidimensionaler Schleier durch ein Kameramessfeld, wo sie zusätzlich durch einen vertikal gerichteten Luftstrom separiert werden. Im Messschacht befinden sich gegenüberliegend eine Lichtquelle und ein Kamerasystem, durch welches die durch die herabfallenden Partikel abgedunkelten Projektionsflächen detektiert werden. Das Kamerasystem besteht aus einer Basic-Kamera, welche den gesamten Messschacht aufnimmt und einer Zoom-Kamera, welche einen Teil des Messfeldes vergrößert abdeckt. Dadurch ist es möglich, sowohl den Grob- als auch den Feinanteil einer Partikelschüttung präzise zu vermessen.

Der verarbeitenden Software kann darüber hinaus vorgegeben werden, wie die detektierten Projektionsflächen ausgewertet werden sollen, was in Abbildung D.1 schematisch dargestellt ist. Zur Bestimmung der Größenverteilung nadelförmiger Partikel ist es beispielsweise sinnvoll, die jeweils längsten Partikeldurchmesser  $d_{max}$  zu detektieren, wohingegen bei besonders sphärischen Partikeln der äquivalente Kugeldurchmesser  $d_{area}$  gewählt werden sollte. Tiefgreifendere Information zum Messprinzip, Erkennung der Partikelgrenzen sowie deren Größe und Form kann dem Buch von Tsotsas und Mujumdar (2011) entnommen werden.

Aufgrund der hohen Sphärizität der in der vorliegenden Arbeit genutzten Partikel wurde der äquivalente Kugeldurchmesser  $d_{area}$  zur Bestimmung der Partikelgröße gewählt.

### 2.3.5 Rasterelektronenmikroskopie (REM)

Bei der Rasterelektronenmikroskopie wird mit Hilfe eines Elektronenstrahls in einer Hochvakuumkammer die Oberfläche einer Probe rasterförmig abgetastet, um Information über die Oberflächenbeschaffenheit zu erhalten. Typischerweise kommt die Rasterelektronenmikroskopie häufig in der Qualitätskontrolle oder der Materialforschung zum Einsatz, da eine Auflösung bis zu 1 nm möglich ist.

Zur Probenvorbereitung muss diese komplett frei von Lösungsmitteln und beweglichen Partikeln, wie etwa Staubteilchen, sein, da der Prozess im Hochvakuum stattfindet. Die Probe wird mit einer dünnen Metallschicht, etwa Gold oder Platin, beschichtet, da die Funktionsweise die elektrische Leitfähigkeit der Probenoberfläche voraussetzt.

Aus einer Glühkathode werden Elektronen emittiert, welche durch eine anliegende Spannung in Richtung Ringanode beschleunigt werden. Der Elektronenstrahl wird nun mittels einer Ablenkspule derart beeinflusst, dass dieser die gesamte Oberfläche der Probe abfährt. Beim Auftreffen der Elektronen auf die Probenoberfläche geben diese einen Teil ihrer Energie ab, wodurch sich sogenannte Sekundärelektronen aus der Probenoberfläche lösen. Diese werden wiederum von einem Sekundärelektronendetektor erfasst. Abhängig von der Position der freiwerdenden Sekundärelektronen werden unterschiedliche Signalstärken detektiert. Diese können in unterschiedliche Grauwerte überführt werden und ergeben somit schließlich das REM-Bild.

# 3 Verweilzeitverteilung in Wirbelschichttrinnen

In diesem Kapitel wird auf die Durchführung von Verweilzeitexperimenten eingegangen. Darüber hinaus werden die Generierung experimenteller Daten sowie die unterschiedlichen Methoden zur anschließenden computergestützten Datenauswertung beschrieben.

## 3.1 Durchführung von Verweilzeitexperimenten

Die experimentelle Untersuchung des Partikelverweilzeitverhaltens in Wirbelschichttrinnen wurde an den in Abschnitt 2.1 beschriebenen Anlagen durchgeführt. Da zur Untersuchung Experimente mit einem Spurstoff bzw. Tracerpartikel durchgeführt wurden, mussten diese zunächst hergestellt werden. Hierzu wurden jeweils 2 kg der ursprünglich weißen und trockenen  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikel in verschließbare Behälter gefüllt. Diese wurden mit 60 °C warmem Wasser und 5 g des entsprechenden Farbpigmentes (siehe Abschnitt 2.2) befüllt. Die anschließende mechanische Durchmischung des Behälterinhalts sowie die einhergehende Aufnahme der farbigen Flüssigkeit während einer 24-stündigen Ruhezeit führten zur gleichmäßigen Färbung der Partikel. Die nun feuchten und gefärbten Partikel wurden anschließend 2 Stunden in einer diskontinuierlichen Laborwirbelschicht (DN 150) bei 50 °C und einem Fluidisationsgasmassenstrom (Druckluft:  $Y_{G,in} = 4 \text{ g/kg}$ ) von 130 kg/h getrocknet. Grund für die langsame Trocknung bei geringer Temperatur war die Tatsache, dass sich eingefärbte Partikel anderenfalls entfärben würden, was Voruntersuchungen gezeigt haben. Nach dieser Prozedur weisen die generierten Tracerpartikel und die unbehandelten weißen Partikel noch immer gleiche Partikeleigenschaften auf, was eine der Grundvoraussetzung bei Tracerexperimenten darstellt.

Zu Beginn der Experimente wurde die Anzahl interner Wehre in der gewünschten Konfiguration gewählt und deren Höhe als auch die Höhe des Austragswehres nach Versuchsplan eingestellt. Nach Starten der Anlage wurden Betriebsparameter, wie Fluidisationsgasmassenstrom und Feststoffdurchsatz, eingestellt, wobei mit Zunahme der Bettmasse in der Anfahrphase auch der Partikelstrom am Austritt steigt.

Mit konstantem Austrittsstrom an Partikelmasse ist der stationäre Zustand erreicht. Zu diesem Zeitpunkt wurden 500 g des gefärbten Tracermaterials durch eine Schleuse am Eintritt in die

Wirbelschichtrinne injiziert. Zeitgleich wurde die erste Probe am Austritt der Wirbelschichtrinne über einen Zeitraum von 5 Sekunden genommen. Diese Probennahme erfolgte in einem Intervall von einer Minute, bis sich keine gefärbten Tracerpartikel mehr in den Proben finden ließen. Nun wurde der Prozess gestoppt und die gesamte Produkt- und Bettmasse durch Wägung bestimmt. Jede der gesammelten Partikelproben wurde anschließend einzeln gewogen und mit Hilfe eines Rotationsprobenteilers (Fa. Fritsch GmbH, LABORETTE 27) in 8 repräsentative Proben getrennt. Nun wurden zwei gegenüberliegende Behälter des Probenteilers zusammengeführt, erneut gewogen und durch händisches Auszählen auf die Anzahl der enthaltenen Tracerpartikel untersucht und deren Masse berechnet. Nach Entleeren der restlichen Behälter wurde die nächste Probe äquivalent untersucht.

Um die Masse eines Einzelpartikels zu bestimmen, wurden 300 trockene Einzelpartikel gewogen, von denen der Mittelwert in den weiteren Rechenschritten genutzt wurde.

Nach Beendigung der Experimente wurde die Partikelmischung aus weißem Versuchsmaterial und eingefärbten Tracerpartikeln der Produkt-, Bett- und Probenmasse in Fässern (80 l) mit Wasser und Detergenzien gewaschen. Anschließend wurden die Partikel in Fässern mit Siebdeckel abgetropft, bevor diese in der Technikumswirbelschichtrinne bei 170 °C, drei Unterlaufwehren mit 6 mm Spalthöhe und einer Austrittswehrhöhe von 175 mm, getrocknet wurden. Auf diese Weise konnten die selben Partikel mehrfach wiederverwendet werden, bevor sie auf Grund von Bruch und Abrieb ausgesondert wurden. Die getrockneten Partikel wurden anschließend im Vakuumtrockenschrank auf ihren Feuchtegehalt untersucht, wobei sich für alle Proben eine Feuchtebeladung kleiner 30 g je kg trockene Partikel ergab.

## 3.2 Berechnung und Auswertung von Verweilzeitverteilungen

Um die Massenbeladung

$$C(\tau_i) = \frac{M_{tracer,i}}{M_{tot,i}} \quad (3.1)$$

des Tracers zum Zeitpunkt  $\tau_i$  zu berechnen und die Verweilzeitverteilung der Tracerpartikel abbilden zu können, wurde die Tracermasse  $M_{tracer}$  aus der Anzahl der Tracerpartikel und der Masse eines Einzelpartikels bestimmt und durch die Masse  $M_{tot}$  der separierten Probe geteilt.

Häufig wird die Verweilzeitverteilung auch als E-Funktion dargestellt, wofür der Quotient aus Tracermassenbeladung  $C(\tau_i)$  der entsprechenden Probe und dem Strom der Tracermassenbeladung  $\dot{C}_{tracer,in}$  am Eintritt in die Wirbelschichtrinne gebildet wird. Hieraus ergibt sich die

normierte Massenbeladung

$$E(\tau_i) = \frac{C(\tau_i)}{\dot{C}_{tracer,in}} \quad (3.2)$$

mit einem Flächeninhalt von 1 und

$$\dot{C}_{tracer,in} = \frac{M_{tracer}}{\dot{M}_P}. \quad (3.3)$$

Der Feststoffdurchsatz  $\dot{M}_P$  ist variabel und muss je nach Experiment angepasst werden. Für die schlagartige Zugabe der Tracerpartikel, über eine Schleuse am Eintritt in die WSR, wird eine Injektionszeit von 1 Sekunde angenommen.

Die normierte Massenbeladung

$$E_{RTD}(\tau_i) = \frac{C(\tau_i)}{\sum_{i=1}^n C(\tau_i) \cdot \Delta\tau_i} \quad (3.4)$$

kann auch aus der Verweilzeitverteilung (engl.: residence time distribution - RTD) selbst berechnet werden. Hierfür wird der Quotient aus Tracermassenbeladung  $C(\tau_i)$  und der Summe aller Tracermassenanteile über die Prozesszeit multipliziert mit dem jeweiligen Zeitintervall gebildet, wobei für äquidistante Zeitintervalle im vorliegenden Fall  $\Delta\tau_i = \Delta\tau$  entspricht. Hierbei wird auf die in den Proben wiedergefundene Tracermasse und nicht auf die tatsächlich verwendete Tracermasse, wie in Gleichung 3.2, normiert.

Der Wiederfindungsanteil

$$r = \frac{\sum_{i=1}^N E(\tau_i) \Delta\tau}{\sum_{i=1}^N E_{RTD}(\tau_i) \Delta\tau} \quad (3.5)$$

lässt sich somit aus dem Quotienten der Flächen unter den unterschiedlich berechneten Funktionen ermitteln.

Um eine Verweilzeitverteilung beurteilen zu können, kann die entdimensionierte Verweilzeitverteilung herangezogen und mit Verteilungen verglichen werden, welche an anderen Anlagen oder mit unterschiedlichen Materialien generiert wurden. Dies lässt jedoch im Allgemeinen nur eine qualitative Aussage zu. Um zwei oder mehrere Verweilzeitverteilungen auch quantitativ beurteilen und vergleichen zu können, kann das Verhältnis aus konvektivem zu dispersivem Transport genutzt werden, welches die Bodensteinzahl

$$Bo = \frac{\bar{u}_P \cdot L_{WSR}}{D} \quad (3.6)$$

ausdrückt. Das Produkt aus mittlerer axialer Partikelgeschwindigkeit  $\bar{u}_P$  und Länge der Wirbelschichttrinne  $L_{WSR}$  ergibt den konvektiven Einfluss, wobei die Dispersion durch den Dispersions-

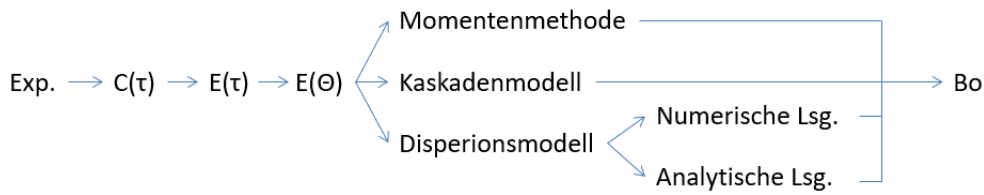


Abbildung 3.1: Skizze des Ablaufs der Datenauswertung der Verweilzeitversuche.

koeffizienten  $D$  ausgedrückt wird. Die mittlere axiale Partikelgeschwindigkeit

$$\bar{u}_P = \frac{L_{WSR}}{\bar{\tau}} \quad (3.7)$$

wiederum ergibt sich aus der Länge der Wirbelschichtrinne  $L_{WSR}$  und der mittleren Verweilzeit

$$\bar{\tau}_{M_{Bett}} = \frac{M_{Bett}}{\dot{M}_P}, \quad (3.8)$$

welche aus der Bettmasse  $M_{Bett}$  und dem Partikelmassendurchsatz  $\dot{M}_P$  bestimmt wird.

Ein hoher Wert für die Bodensteinzahl drückt somit einen hohen konvektiven oder geringen dispersiven Einfluss aus. Bezogen auf ideale Systeme, würde die Bodensteinzahl für einen idealen Rührkessel ohne konvektiven Beitrag  $B_{OCSTR} = 0$  und für die ideale Kolbenströmung ohne Dispersion  $B_{OPFTR} \rightarrow \infty$  betragen.

Es existieren unterschiedliche Herangehensweisen, um die Bodensteinzahl und somit das Verhältnis von konvektivem zu dispersivem Stofftransport zu bestimmen, was in den folgenden Abschnitten 3.2.1-3.2.3 ausgeführt wird und unter anderem in der Arbeit von Bachmann und Tsotsas (2015) genau erläutert ist. Einen schematischen Überblick zur schrittweisen Auswertung gibt Abbildung 3.1.

#### 3.2.1 Momentenmethode

Die Momentenmethode ist ein Verfahren aus der Statistik mit welchem Schätzfunktionen erstellt werden. Sie bietet eine Möglichkeit, die Bodensteinzahl aus einer bestimmten Verweilzeitverteilung unter Verwendung ihrer Momente zu berechnen. Ihre Anwendung ist einfach, birgt jedoch das Problem, dass die errechneten Schätzfunktionen nicht zwingend erwartungstreu sein müssen.

Jede Verteilungsfunktion ist durch Angabe ihrer Momente definiert. Eine Normalverteilung ist beispielsweise allein durch ihr erstes und zweites Moment festgelegt, welche dem Erwartungswert und ihrer Varianz entsprechen. Die Momente 3 und 4 können geometrisch als Schiefe und Wölbung verstanden werden.

Im Allgemeinen lässt sich das k-te Moment

$$M_k = \int_0^{\infty} x^k f(x) dx \quad (3.9)$$

für eine beliebige, kontinuierliche und reell zufallsverteilte Variable  $x$  berechnen. Für den diskreten Fall wird das Moment

$$M_k = \sum_{i=1}^N x_i^k f(x_i) \Delta x_i \quad (3.10)$$

aus der Summe der einzelnen Produkte von Zufallsvariable  $x_i$ , Verteilungsfunktion  $f(x_i)$  und dem Intervall  $\Delta x_i$  der Zufallsvariablen ermittelt. Für äquidistant verteilte Zufallsvariablen gilt hierbei  $\Delta x_i = \Delta x$ .

Im speziellen Fall der Verweilzeitverteilung entspricht die zufallsverteilte Variable der Verweilzeit  $\tau$  und die abhängige E-Funktion der Verteilungsfunktion. Hieraus ergeben sich die Gleichungen für die Fläche unter der Verweilzeitkurve

$$A = M_0 = \sum_{i=1}^N E_{RTD}(\tau_i) \Delta \tau = 1, \quad (3.11)$$

den Erwartungswert als mittlere Verweilzeit

$$\bar{\tau}_{RTD} = \frac{M_1}{M_0} = \frac{\sum_{i=1}^N \tau_i E_{RTD}(\tau_i) \Delta \tau}{\sum_{i=1}^N E_{RTD}(\tau_i) \Delta \tau}, \quad (3.12)$$

und die Varianz der Verweilzeitverteilung

$$\sigma_{RTD}^2 = \frac{M_2}{M_0} = \frac{\sum_{i=1}^N \tau_i^2 E_{RTD}(\tau_i) \Delta \tau}{\sum_{i=1}^N E_{RTD}(\tau_i) \Delta \tau}. \quad (3.13)$$

Wie in Abschnitt 1.4 beschrieben, gibt es vier verschiedene Randbedingungen für ein System mit Konvektion und Dispersion. Da in den zur Untersuchung genutzten Wirbelschichttrinnen keine Dispersion über die Systemgrenzen hinaus möglich ist, handelt es sich hierbei um doppelseitig geschlossene Systeme, weshalb im Weiteren lediglich hierauf eingegangen wird.

In seinem Schreiben zur Veröffentlichung von Levenspiel und Smith (1957) gab van der Laan (1958) die Lösung für die dimensionslose Varianz

$$\sigma^2(\theta) = \frac{2}{Bo^2} (Bo - 1 + e^{-Bo}) \quad (3.14)$$

einer Verweilzeitverteilung in Abhängigkeit von der Bodensteinzahl  $Bo$  an. Die dimensionslose Varianz lässt sich darüber hinaus nach

$$\sigma^2(\theta) = \frac{\sigma^2(\tau)}{\bar{\tau}_{RTD}^2} \quad (3.15)$$



aus der experimentell bestimmten und dimensionsbehafteten Varianz  $\sigma^2(\tau)$  und der mittleren Verweilzeit  $\bar{\tau}_{RTD}$  berechnen.

Aus den Gleichungen 3.14 und 3.15 lässt sich nun per Zielwertsuche die Bodensteinzahl  $B_0$  bestimmen und aus den Gleichungen 3.6, 3.7 und 3.12 der Dispersionskoeffizient errechnen.

Die Problematik bei der Momentenmethode ist, dass eine Verteilung eine infinite Anzahl von Momenten besitzt. Für die beschriebene Vorgehensweise zur Berechnung der Bodensteinzahl werden jedoch nur die ersten 3 Momente einer Verweilzeitverteilung genutzt, durch welche diese nicht zwangsläufig vollständig definiert ist. Somit ist das Ergebnis zweier verschiedener Verteilungen, welche sich lediglich in den ersten drei Momenten gleichen, identisch.

#### 3.2.2 Kaskadenmodell

Um die Bodensteinzahl aus einer gemessenen Verweilzeitverteilung zu bestimmen, kann auch die Vorstellung eines Kaskadenmodells herangezogen werden. Wie bereits in Abschnitt 1.4 beschrieben, lässt sich die Verweilzeitverteilung durch die Gleichungen 1.8, 1.3 und 1.2 approximativ abbilden. Der Zusammenhang des einzigen Modellparameters, der theoretischen Anzahl  $N_{th}$  ideal durchmischter Rührkessel, und der dimensionslosen Varianz  $\sigma^2(\theta)$  ergibt sich aus

$$\sigma^2(\theta) = \frac{1}{N_{th}}. \quad (3.16)$$

Mit Hilfe der  $\Gamma$ -Funktion

$$\Gamma(N_{th}) = (N_{th} - 1)! = \int_0^\infty t^{N_{th}-1} e^{-t} dt \quad (3.17)$$

nach Euler u. a. (1913–1914) kann die Fakultätsfunktion in Gleichung 1.8 für reelle Zahlen approximativ gelöst werden. Dies ist notwendig, da experimentelle Daten zu Verweilzeitverteilungen häufig eine nicht ganzzahlige Anzahl von ideal durchmischten Rührkesseln liefern.

Durch Variation von  $N_{th}$  und Anwendung der Methode der kleinsten Fehlerquadrate erfolgt eine Optimierung für die bestmögliche Anpassung der Modellverteilung an die experimentellen Daten. Aus der theoretischen Anzahl  $N_{th}$  und den Gleichungen 3.14 und 3.16 kann wiederum die Bodensteinzahl per Zielwertsuche bestimmt werden.

### 3.2.3 Dispersionsmodell

Das Dispersionsmodell beschreibt die Änderung der Konzentration  $C$  einer kontinuierlichen Phase über die Zeit  $\tau$  mit der Dispersions-Konvektions-Gleichung

$$\frac{\partial C}{\partial \tau} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \bar{u}_P \frac{\partial C}{\partial x}. \quad (3.18)$$

Wie bereit in Abschnitt erwähnt, wird die Konzentration in der vorliegenden Arbeit durch die Massenbeladung substituiert. Die Gleichung kann für verschiedene Anfangs- bzw. Randbedingungen sowohl analytisch als auch numerisch gelöst werden. Sie besteht sowohl aus einem dispersiven Term, mit dem Dispersionskoeffizienten  $D$ , als auch aus einem konvektiven Term mit der mittleren axialen Partikelgeschwindigkeit  $\bar{u}_P$ , wobei  $x$  die Ortskoordinate darstellt.

Analytischen Lösungen für verschiedene Anfangs- und Randbedingungen sind in der Arbeit von Van Genuchten und Alves (1982) aufgeführt. Für ein doppelseitig geschlossenes System, um welches es sich bei den untersuchten Wirbelschichtströmen handelt, da keine Dispersion über die Systemgrenzen hinaus möglich ist, existiert eine Gleichung zur analytischen Lösung von Bastian und Lapidus (1956).

Im Folgenden sind die berücksichtigten Anfangs- und Randbedingungen nach Danckwerts (1953) (Gleichungen 3.19), die analytische Lösung (Gleichungen 3.20 und 3.21) sowie die trigonometrische Funktion (Gleichung 3.22) angegeben:

$$\begin{aligned} C(x, 0) &= C_{ini} \\ (-D \frac{\partial C}{\partial x} + \bar{u}_P C)|_{x=0} &= \begin{cases} \bar{u}_P C_{in} & 0 < \tau < t_{in} \\ 0 & \tau > t_{in} \end{cases} \\ \frac{\partial C}{\partial x}(L, \tau) &= 0 \end{aligned} \quad (3.19)$$

$$C(x, \tau) = \begin{cases} C_{ini} + (C_{in} - C_{ini})K(x, \tau) & 0 < \tau < t_{in} \\ C_{ini} + (C_{in} - C_{ini})K(x, \tau) - C_{in}K(x, \tau - t_{in}) & \tau > t_{in} \end{cases} \quad (3.20)$$

$$K(x, \tau) = 1 - \sum_{i=1}^{\infty} \frac{\frac{2\bar{u}_P L}{D} \omega_i [\omega_i \cos(\frac{\omega_i x}{L}) + \frac{\bar{u}_P L}{2D} \sin(\frac{\omega_i x}{L})] \exp(\frac{\bar{u}_P x}{2D} - \frac{\bar{u}_P^2 \tau}{4D} - \frac{\omega_i^2 D \tau}{L^2})}{[\omega_i^2 + (\frac{\bar{u}_P L}{2D})^2 + \frac{\bar{u}_P L}{D}] [\omega_i^2 + (\frac{\bar{u}_P L}{2D})^2]} \quad (3.21)$$

$$\omega_i \cot(\beta_i) - \frac{\omega_i^2 D}{\bar{u}_P L} + \frac{\bar{u}_P L}{4D} = 0 \quad 1 < i < \infty \quad (3.22)$$

Die Eigenwerte  $\omega_i$  ergeben sich durch Einsetzen der positiven Wurzeln  $\beta_i$  in Gleichung 3.22.

Aus der normierten Massenbeladung in Gleichung 3.2 kann die normierte, dimensionslose Massenbeladung

$$E(\theta) = E(\tau) \cdot \bar{\tau}, \quad (3.23)$$

berechnet werden. Für die dimensionslose Darstellung, welche häufig genutzt wird um Ergebnisse aus Untersuchungen an unterschiedlichen Anlagen oder mit stark abweichenden Verweilzeitverteilungen vergleichbar zu machen, werden die Zeit

$$\tau = \theta \cdot \bar{\tau} \quad (3.24)$$

und die Ortskoordinate

$$x = \zeta \cdot L \quad (3.25)$$

in Gleichung 3.18 substituiert. Unter Berücksichtigung von Gleichung 3.6 und 3.7 ergibt sich die dimensionslose Dispersions-Konvektions Gleichung

$$\frac{\partial E}{\partial \theta} = \frac{1}{Bo} \frac{\partial^2 E}{\partial \zeta^2} - \frac{\partial E}{\partial \zeta}, \quad (3.26)$$

mit der dimensionslosen Massenbeladung  $E$  sowie den dimensionslosen Koordinaten  $\theta$  und  $\zeta$  für Zeit und Ort.

Eine weitere Möglichkeit zur Lösung von Gleichung 3.18 ist die numerische Lösung von Gleichung 3.26.

Hierfür wird die partielle Differentialgleichung 3.26 in ein System gewöhnlicher Differentialgleichungen überführt, welches nach Diskretisierung und Wahl der entsprechenden Anfangs- und Randbedingungen numerisch gelöst werden kann. Zu diesem Zweck wurde die finite Volumenmethode sowie das upwind-Schema verwendet. Als Anfangsbedingung wurde ein tracerfreies System mit der gesamten Tracermasse in der ersten von 1500 Zellen, angenommen. Als Randbedingungen wurden die von Danckwerts (1953) postulierten Gleichungen für ein doppelseitig geschlossenes System verwendet, wie bereits für die analytische Lösung. Das diskretisierte System von gewöhnlichen Differentialgleichungen wurde anschließend mit der Software MATLAB und der integrierten Funktion ode15s gelöst. Die einzelnen Schritte der Diskretisierung sind in Anhang B dargestellt.

Zur Optimierung der Anpassung der analytischen und numerischen Lösung an die experimentellen Daten wurde, wie in Abschnitt 3.2.2, die Methode der kleinsten Fehlerquadrate genutzt. Da die mittlere Partikelgeschwindigkeit  $\bar{u}_P$  aus den Gleichungen 3.7 und 3.8 bekannt ist, wurde

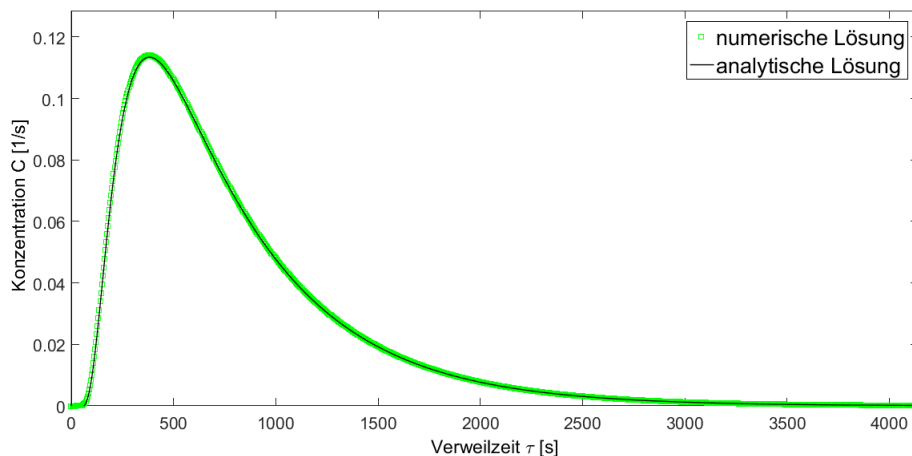


Abbildung 3.2: Vergleich von analytischer und numerischer Lösung der Dispersions-Konvektions Gleichung. Die Quadrate repräsentieren die numerische und die durchgezogene Linie die analytische Lösung. Die generierten Verteilungen weisen jeweils eine mittlere Verweilzeit von  $\bar{\tau} = 800$  s, und eine Bodensteinzahl von 2,5 auf. Es ist eine sehr gute Übereinstimmung zu erkennen.

der Dispersionskoeffizient  $D$  variiert, bis die minimale Summe der Fehlerquadrate gefunden wurde, woraus sich die beste Anpassung ergibt. Aus dem berechneten Dispersionskoeffizienten kann weitergehend die Bodensteinzahl mit Hilfe von Gleichung 3.6 bestimmt werden.

Zum Vergleich sind sowohl die analytische als auch die numerische Lösung von Gleichung 3.18 in Abbildung 3.2 für eine Bodensteinzahl von 2,5 dargestellt. Die numerische Lösung für 1500 Zellen dauerte 30 s. Für die analytische Lösung ist die Berechnung der ersten 2000 positiven Wurzeln der trigonometrischen Funktion erforderlich, sowie eine Einteilung der charakteristischen Länge in 1000 Intervalle. Die Prozesszeit wurde auf 1750 s festgelegt, mit einem Intervall von 1 s, woraus sich eine gesamte Berechnungszeit von 5435 s ergibt.

Der Vorteil der analytischen Lösung ist, dass diese für jeden Ort innerhalb der WSR separat berechnet werden kann. Dies bedeutet, dass die Lösung für das System am Austritt  $x = L$  direkt berechnet werden kann, wodurch die Berechnungszeit auf 5 Sekunden sinkt.

Da die analytische Lösung mit der numerischen Lösung übereinstimmt, wie in Abbildung 3.2 zu sehen ist, jedoch weniger Rechenzeit benötigt, und unter dem Gesichtspunkt der vielfachen Berechnung zur Optimierung des Dispersionskoeffizienten, wird im Folgenden die Analyse der experimentellen Verweilzeitverteilungen mit Hilfe der analytischen Lösung durchgeführt.

### 3.2.4 Vergleich der Methoden zur Analyse von experimentellen Verweilzeitverteilungen

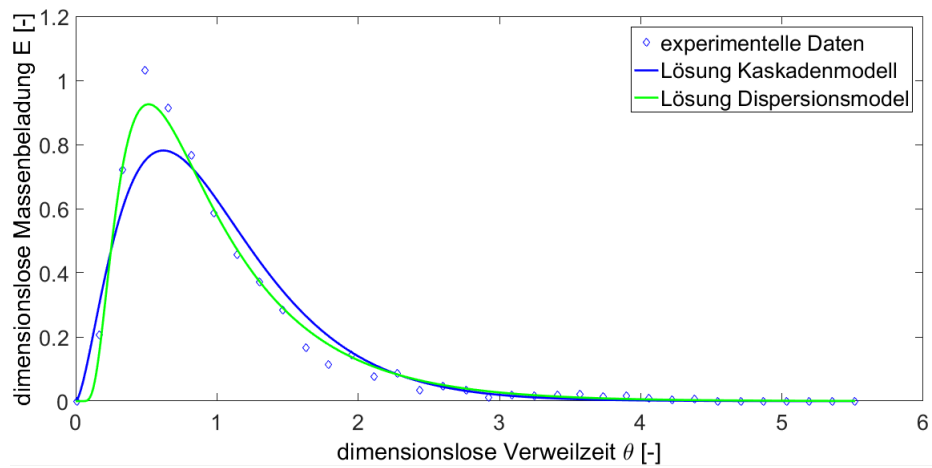
Um eine Aussage über die Qualität der zuvor beschriebenen Methoden machen zu können, wird in diesem Abschnitt eine Verweilzeitverteilung so manipuliert, dass drei unterschiedliche RTDs entstehen. Hierdurch wird sowohl ein uniformer Mittelwert als auch eine übereinstimmende Varianz der drei Verteilungen gewährleistet, welche im Anschluss mit den verschiedenen Methoden analysiert werden. Die manuell generierten entdimensionierten Verweilzeitverteilungen sollten hierfür drei Extremfälle darstellen. Zum Ersten wurde eine Verteilung mit besonders glattem Verlauf (Abbildung 3.3(a)) und zum zweiten mit stark gestreuten Datenpunkten (Abbildung 3.3(b)) erstellt. Beide Fälle sind bei den untersuchten, blasenbildenden Wirbelschichttrinnen üblich, wobei die Mehrzahl der Verweilzeitverteilungen zwischen den angesprochenen Fällen liegen. Zum Dritten wurde eine Verweilzeitverteilung mit fehlendem, abklingendem Ende untersucht, was in Abbildung 3.3(c) dargestellt ist und bei unzureichender Probenahme auftreten kann. Die drei Fälle wurden jeweils mit der Lösung des Kaskaden- (blau) und Dispersionsmodells (grün) in Abbildung 3.3 dargestellt.

Um nun zu einer abschließenden Beurteilung zu gelangen, sind in Tabelle 3.1 sowohl die Summe der Fehlerquadrate als auch die berechneten Dispersionskoeffizienten dargestellt. Die Unterscheidung zwischen Kaskaden- und Dispersionsmodell fällt leicht, da die Fehlerquadratsumme bei Letzterem für jeden einzelnen Fall kleiner ist, was einer besseren Anpassung an die experimentellen Werte entspricht.

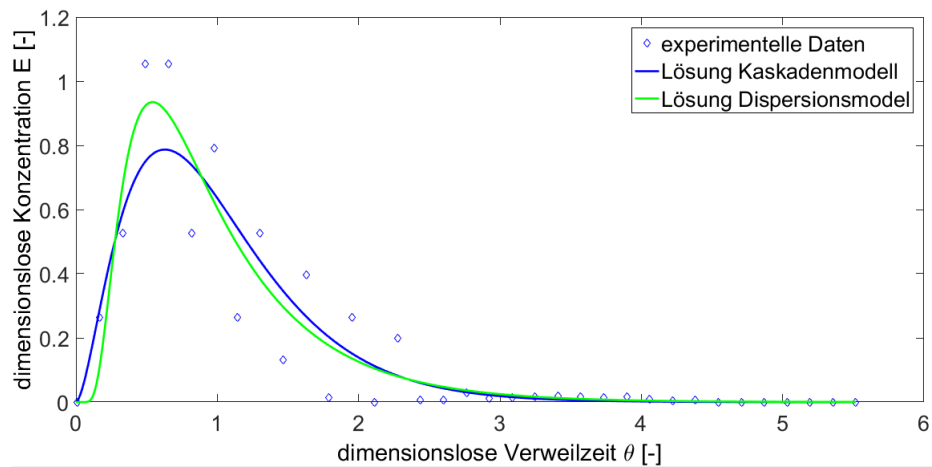
Die starke Abweichung für den Fall mit fehlendem Ende, auf Grund der Abhängigkeit der diskreten Methode von den Probenahmeintervallen, spricht gegen eine Bestimmung des Dispersionskoeffizienten aus den Momenten der Verweilzeitverteilung. Aus diesem Grund erfolgt in der vorliegenden Arbeit die experimentelle Bestimmung der Dispersionskoeffizienten bzw. der Bodensteinzahl aus der Lösung des Dispersionsmodells. Darüber hinaus wird die mittlere Verweilzeit  $\bar{\tau}_{M_{Bett}}$  (siehe Gleichung 3.8) im Folgenden aus der gewogenen Bettmasse  $M_{Bett}$  und nicht aus den Momenten der Verweilzeitverteilung (Gleichung 3.12) berechnet.

Tabelle 3.1: Vergleich der berechneten Dispersionskoeffizienten sowie der jeweiligen Fehlerquadratsummen für das Kaskaden- und Dispersionsmodell.

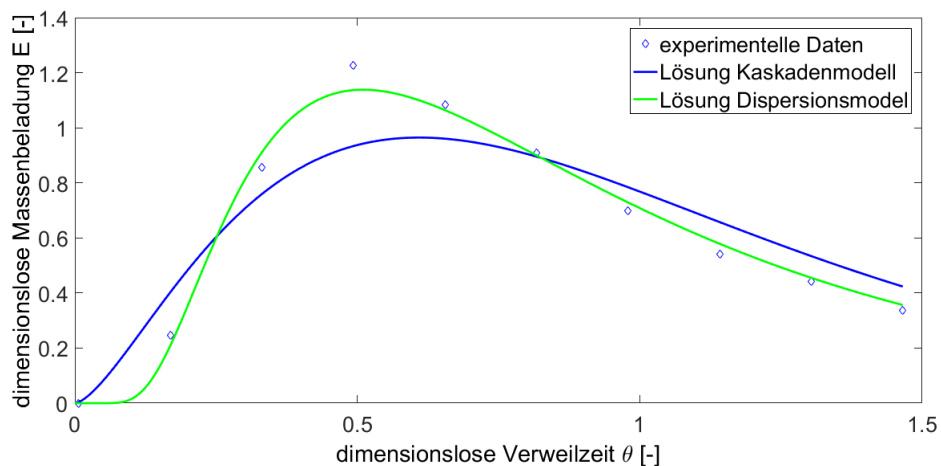
	Momentenmethode			Kaskadenmodell			Dispersionsmodell		
	orig.	gestr.	fehl. Ende	orig.	gestr.	fehl. Ende	orig.	gestr.	fehl. Ende
D [m <sup>2</sup> /s] x10 <sup>-4</sup>	9,9	8,8	4,3	7,2	6,8	7,2	8,9	7,9	9,2
Σ Fehlerquadrate				0,14	0,44	0,11	1,6x10 <sup>-4</sup>	21x10 <sup>-4</sup>	8,54x10 <sup>-4</sup>



(a) Generierte dimensionslose Massenbelastung  $E$  mit glattem Verlauf der Datenpunkte.



(b) Generierte dimensionslose Massenbelastung  $E$  mit stark gestreuten Datenpunkten.



(c) Generierte dimensionslose Massenbelastung  $E$  mit abgeschnittenem/fehlendem Ende.

Abbildung 3.3: Vergleich der Lösungen des Kaskaden- und Dispersionsmodells. Die durchgezogene blaue Linie repräsentiert die Lösung des Kaskadenmodells und die grüne Linie die Lösung des Dispersionsmodells. Die Anpassung erfolgte an die dimensionslosen  $E$ -Funktionen der Verteilungen der generierten Extremfälle.

### 3.3 Experimentelle Parametervariation und Diskussion der Ergebnisse

In den folgenden Abschnitten wird der Einfluss der Betriebsparameter, der internen Wehre und deren Konfigurationen auf die Verweilzeitverteilung untersucht. Darüber hinaus wird die Auswirkung von Mischungen unterschiedlicher Partikelgrößen auf ihr Transportverhalten durch die Wirbelschicht analysiert.

#### 3.3.1 Einfluss der Prozessparameter auf die Verweilzeitverteilung

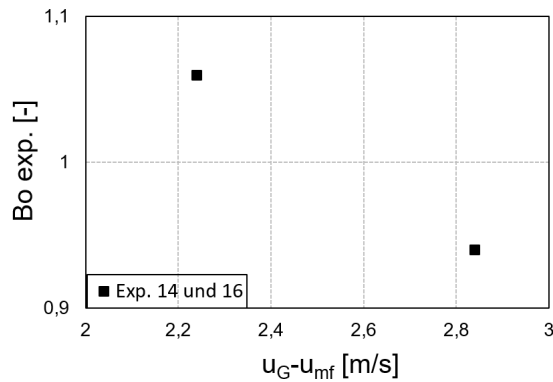
Durch die Variation von Gasgeschwindigkeit, Partikelgröße, Feststoffdurchsatz und Austragswehrröhe soll der Einfluss der Betriebsparameter auf die Verweilzeitverteilung bestimmt werden. Die erhobenen experimentellen Daten sind in Anhang A in Tabelle A.1 dargestellt und in der Arbeit von Bachmann u. a. (2016) veröffentlicht.

Mit dem Ziel einer dimensionslosen Korrelation für die Bodensteinzahl, welche allgemein gültig sein soll, werden neben den in dieser Arbeit generierten Versuchsergebnissen auch Daten anderer Autoren verwendet. Damit soll gewährleistet sein, dass ein weiter Bereich von Anlagen dimensionen, Partikelgrößen und -dichten sowie der einhergehenden Partikeleigenschaften von der Korrelation abgedeckt werden. Hierfür werden die experimentellen Daten von Reay (1978) sowie von Nilsson (1986) herangezogen. Die experimentellen Daten von Khanali u. a. (2012) dienen der Validierung und nicht der Anpassung der Korrelation. Die wichtigsten Parameter dieser Arbeiten sind in Anhang A in Tabelle A.2 zusammengefasst.

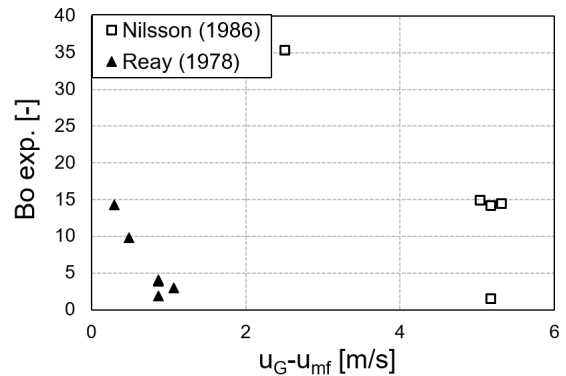
In Abbildung 3.4(a) ist die experimentelle Bodensteinzahl über die Differenz der Gas-  $u_G$  und der minimalen Fluidisationsgeschwindigkeit  $u_{mf}$  aufgetragen. Eine Zunahme dieser Differenz (Experimente 14 und 16) bewirkt eine Abnahme der Bodensteinzahl, sowohl für den Fall der eigenen Untersuchung ■ als auch für die experimentellen Werte von Reay (1978) ▲ und Nilsson (1986) □ in Abbildung 3.4(b), was auf eine Zunahme der Dispersion zurück zu führen ist.

In Abbildung 3.4(c) ist die Bodensteinzahl über dem Feststoffdurchsatz  $\dot{M}_P$  (Experimente 5, 6 und 7) dargestellt. Eine Zunahme des Feststoffdurchsatzes hat eine Zunahme der Bodensteinzahl zur Folge. Dies kann bereits aus den Gleichungen 3.6-3.8 geschlossen werden. Laut deren Proportionalitäten sollte eine Verdopplung des Feststoffdurchsatzes eine Verdoppelung der Bodensteinzahl nach sich ziehen. In Abbildung 3.4(d) wird jedoch deutlich, dass die Zunahme mit einem Exponenten von 0,5 erfolgt, was auf die Abhängigkeit der Bettmasse  $M_{Bett}$  vom Feststoffdurchsatz zurückzuführen ist. Eine Verdopplung von  $\dot{M}_P$  führt zu einer Erhöhung von  $M_{Bett}$  und daher nicht zu einer Halbierung der mittleren Partikelverweilzeit  $\bar{\tau}_{M_{Bett}}$  und somit nicht zu einer Verdopplung der Bodensteinzahl.

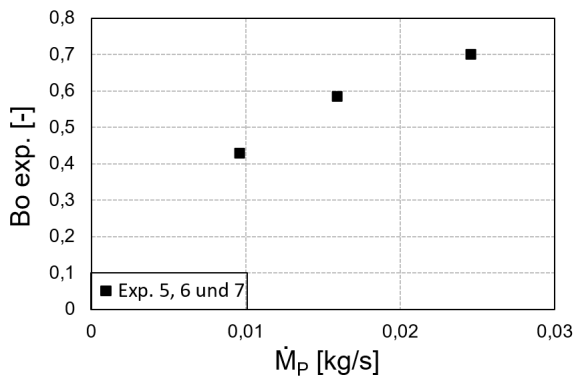
Der Einfluss des Partikeldurchmessers wurde in den Experimenten 2 und 3 an der Technikums-



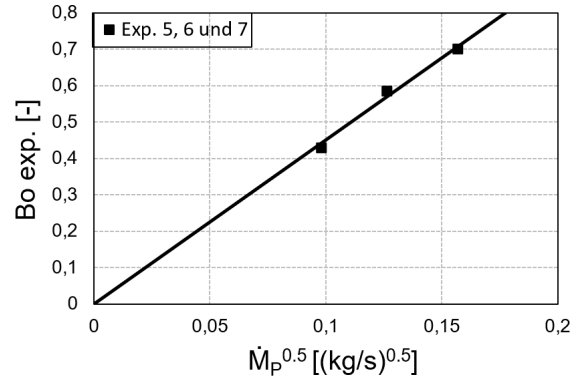
(a) Verlauf der experimentell bestimmten Bodensteinzahl über der Differenz der Gasgeschwindigkeiten  $u_G$  und  $u_{mf}$ .



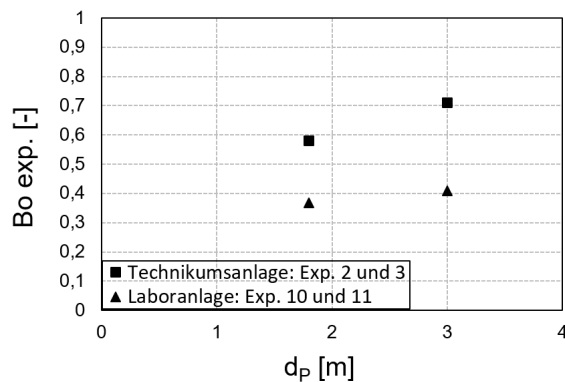
(b) Verlauf der Bodensteinzahlen über der Differenz der Gasgeschwindigkeiten  $u_G$  und  $u_{mf}$  aus der Literatur.



(c) Verlauf der experimentell bestimmten Bodensteinzahl über den Feststoffdurchsatz  $\dot{M}_P$ .



(d) Verlauf der Bodensteinzahlen über der Wurzel des Feststoffdurchsatzes  $\dot{M}_P^{0.5}$ .



(e) Abhängigkeit der Bodensteinzahl vom Partikeldurchmesser  $d_p$ . Mit steigendem Partikeldurchmesser nimmt auch die Bodensteinzahl zu.

Abbildung 3.4: Abhängigkeit der Bodensteinzahl von der Differenz der Gas-  $u_G$  und der minimalen Fluidisationsgeschwindigkeit  $u_{mf}$ , vom Feststoffdurchsatz  $\dot{M}_P$  sowie von Partikeldurchmesser  $d_p$ .



anlage ■ sowie in Exp. 10 und 11 an der Laboranlage ▲ untersucht. Wie in Abbildung 3.4(e) zu erkennen ist, steigt die Bodensteinzahl mit zunehmendem Partikeldurchmesser. Aus einer Zunahme des Partikeldurchmessers folgt eine Abnahme der Bettporosität im fluidisierten Zustand, was wiederum eine Zunahme der Bettmasse  $M_{Bett}$  zur Folge hat. Dies würde wiederum bedeuten, dass nach den Gleichungen 3.6-3.8 die Bodensteinzahl sinken müsste. Der Grund, dass dies nicht stattfindet, ist die starke Abnahme des Dispersionskoeffizienten und folglich eine Zunahme der Bodensteinzahl. Die Abnahme des Dispersionskoeffizienten lässt sich zum einen mit der Abnahme der Bettporosität und einer resultierenden kürzeren "freien Weglänge" im Bett erklären. Zum anderen werden größere Partikel an der Bettoberfläche auf Grund ihrer Masse weniger stark von platzenden Gasblasen beschleunigt und somit weniger weit geschleudert. Beide Ereignisse führen zu einer Verringerung der Partikeldispersion und zu einer Erhöhung der Bodensteinzahl.

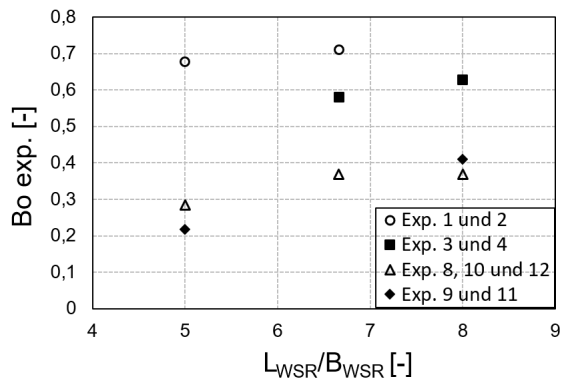
Da in der Untersuchung von Reay (1978) sowohl die Länge als auch die Breite der Wirbelschichtrinne gleichzeitig variiert wurden, wird die Bodensteinzahl  $B_o$  seiner Arbeit in Abbildung 3.5b neben der Darstellung der eigenen Daten in Abbildung 3.5a über das Längen-Breiten-Verhältnis veranschaulicht. Sowohl die ermittelten experimentellen Werte der Technikumsanlage (○ und ■) und der Laboranlage (△ und ◆) als auch die Werte aus der Literatur von Reay (1978) weisen eine direkte Proportionalität der Bodensteinzahl vom Längen-Breiten Verhältnis auf. Die Daten von Reay (1978) wurden mit jeweils einer perforierten und einer gesinterten Gasverteilerplatte durchgeführt, womit die Abweichungen der beiden Versuchsreihen untereinander zu erklären sind.

In den Abbildungen 3.5(c) und 3.5(d) sind die Abhängigkeiten der Bodensteinzahl von den einzelnen Parametern der verwendeten Anlage dargestellt. Die Datensätze aus der Laborwirbelschicht (□  $d_p = 1,8$  mm; ▲  $d_p = 3,0$  mm) belegen eine Zunahme der Bodensteinzahl mit zunehmender Länge der Wirbelschichtrinne (Abb. 3.5(c)). Dies ist leicht nachzuvollziehen, da die Länge nach Gleichungen 3.6 und 3.7 quadratisch in die Bodensteinzahl eingeht.

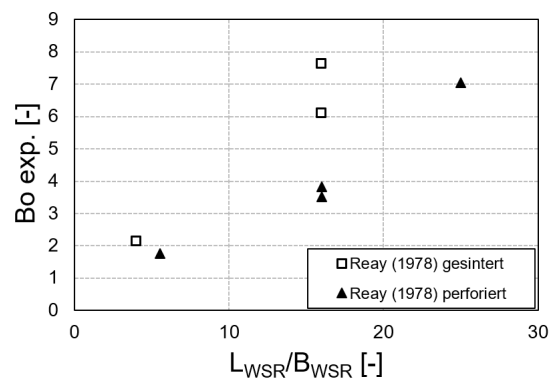
Mit ansteigender Breite der Rinne fällt die Bodensteinzahl jedoch, was die Datenpunkte in Abbildung 3.5(d) zeigen, die aus Experimenten mit Partikeln unterschiedlicher Durchmesser (▲  $d_p = 3,0$  mm; ■  $d_p = 1,8$  mm) in der Technikumsanlage resultieren.

Mit zunehmender Höhe des Überlaufwehres am Austritt der Wirbelschichtrinne nimmt die Bodensteinzahl ebenfalls ab, wie die Abbildungen 3.5(e) und 3.5(f) zeigen. Die Ursache hierfür gleicht der Begründung für den Trend der Bodensteinzahl mit variierender Wirbelschichtbreite. Bei konstanter Wirbelschichtlänge und gleichzeitiger Verdopplung der Höhe oder Breite, verdoppelt sich die mittlere Partikelverweilzeit, wodurch sich wiederum aus den Gleichungen 3.6 und 3.7 eine Verringerung der Bodensteinzahl ergibt. Der Grund dafür, dass keine Halbierung der Bodensteinzahl stattfindet, ist die gleichzeitig steigende Dispersion.

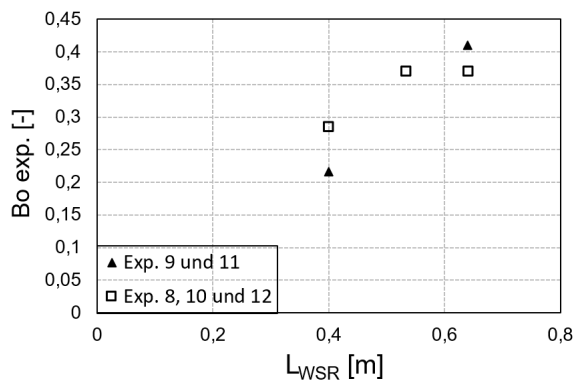
### 3.3 EXPERIMENTELLE PARAMETERVARIATION UND DISKUSSION DER ERGEBNISSE



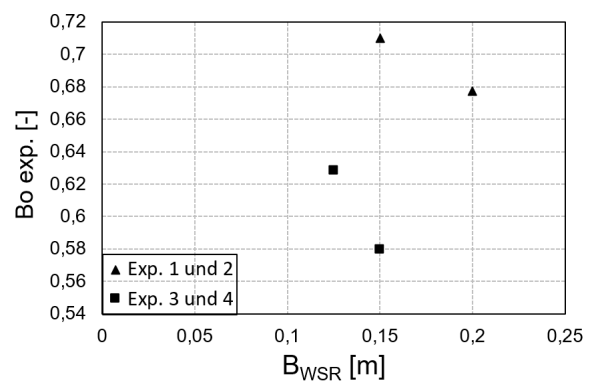
(a) Verlauf der experimentell bestimmten Bodensteinzahl über das Verhältnis von Länge zu Breite der Wirbelschichtrinne.



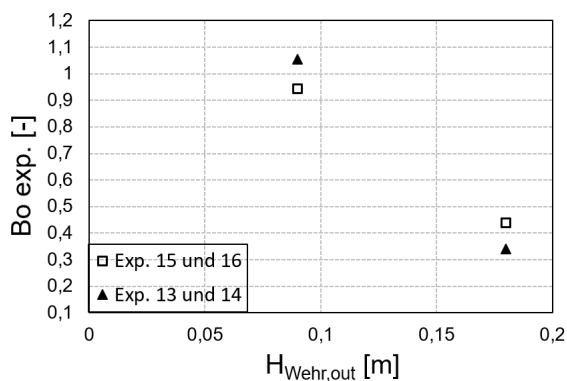
(b) Verlauf der Bodensteinzahl über das Verhältnis von Länge zu Breite der Wirbelschichtrinne aus der Literatur nach Reay (1978).



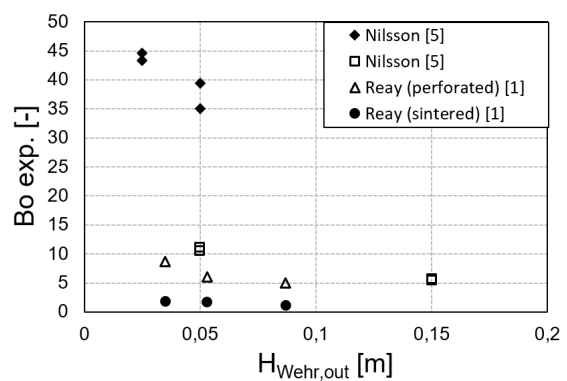
(c) Verlauf der experimentell bestimmten Bodensteinzahl über die Länge  $L_{WSR}$  der Wirbelschichtrinne.



(d) Verlauf der experimentell bestimmten Bodensteinzahl über die Breite  $B_{WSR}$  der Wirbelschichtrinne.



(e) Verlauf der experimentell bestimmten Bodensteinzahl über die Höhe  $H_{Wehr,out}$  des Austrittswehres für die eigenen Daten.



(f) Verlauf der Bodensteinzahl über die Höhe  $H_{Wehr,out}$  des Austrittswehres für Daten aus der Literatur nach Reay (1978) und Nilsson (1986).

Abbildung 3.5: Abhängigkeit der Bodensteinzahl von der Länge  $L_{WSR}$  und Breite  $B_{WSR}$  der Wirbelschichtrinne sowie der Höhe des Austrittswehres  $H_{Wehr,out}$ .

#### 3.3.2 Einfluss interner vertikaler Wehre

Im verarbeitenden Produktionsbetrieb werden eng verteilte Partikeleigenschaften und einhergehend enge Verweilzeitverteilungen erwünscht, was wiederum in hohe Bodensteinzahlen resultiert. Daher steht die Minimierung der Dispersion häufig im Mittelpunkt der industriellen Fragestellung. In Abschnitt 3.3.1 wurden bereits Parameter untersucht, die einen positiven Einfluss auf die Erhöhung der Bodensteinzahl haben, jedoch können diese nicht beliebig gewählt werden, da die Stabilität und Wirtschaftlichkeit des Gesamtprozesses gewährleistet bleiben muss. So führt beispielsweise eine Erhöhung des Feststoffdurchsatzes oder eine Reduktion der Breite bzw. Höhe der Wirbelschichtrinne zu einer Verringerung der mittleren Partikelverweilzeit, wodurch das Prozessziel verfehlt werden kann. Eine Verlängerung der Wirbelschichtrinne ist mit gleichzeitig zunehmender Anlagengröße unwirtschaftlich.

Daher soll eine weitere Möglichkeit der Einflussnahme auf die Verweilzeitverteilung untersucht werden. In der Literatur wurde bereits von Satija und Zucker (1986) belegt, dass eine Verringerung der Partikeldispersion durch den Einbau interner, vertikaler Wehre erreicht werden kann. Daher soll sich dieser Abschnitt mit der Anzahl interner Wehre, deren Höhe sowie deren Konfiguration befassen.

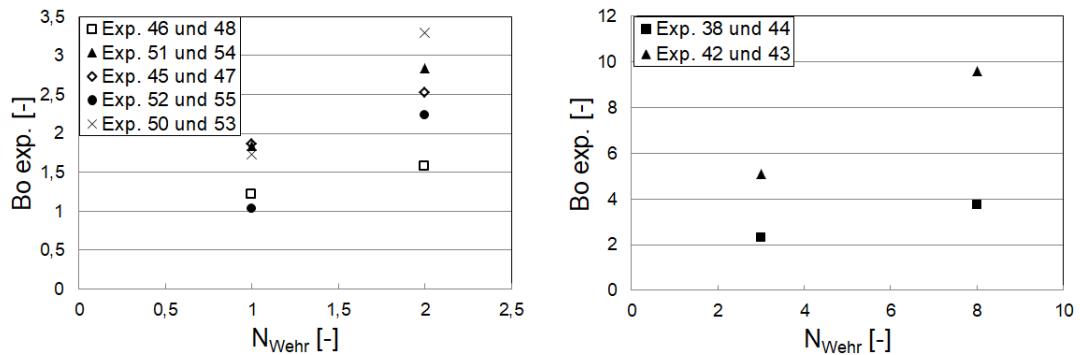
Wie bereits zuvor in Abschnitt 2.2 beschrieben, können die internen Wehre sowohl in Überlauf- als auch in Unterlaufkonfiguration in das System integriert werden, weshalb im Folgenden einzeln auf die jeweilige Konfiguration eingegangen wird. In den Tabellen A.3 und A.4 im Anhang sind die Parameter der durchgeführten Untersuchung zum partikulären Verweilzeitverhalten in der Wirbelschichtrinne mit internen Einbauten/Wehren aufgelistet, welche in der Arbeit von Bachmann u. a. (2017) beschrieben wurden.

##### 3.3.2.1 Interne Wehre in Unterlaufkonfiguration

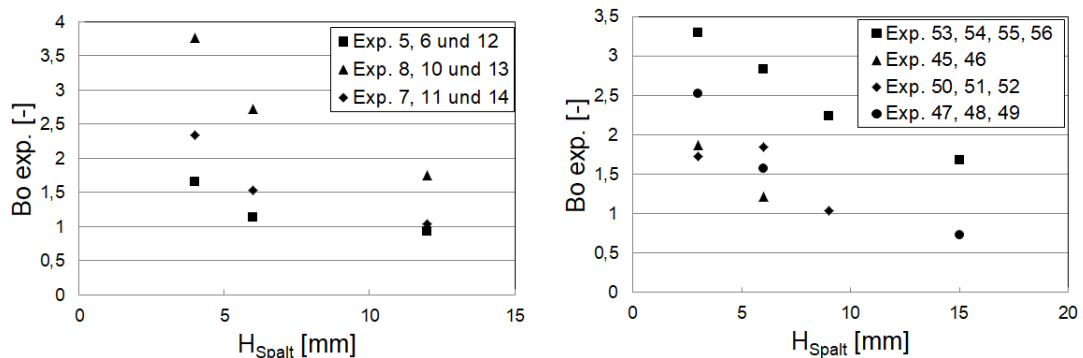
In Abbildung 3.6(a) sind die experimentellen Bodensteinzahlen der Laboranlage und in Abbildung 3.6(b) jene der Technikumsanlage über die Anzahl der internen Wehre dargestellt. Mit Zunahme der Wehranzahl steigt die Bodensteinzahl in beiden Fällen. Dies lässt sich mit einem einfachen Beispiel erklären. Bei einer Betthöhe von 200 mm in fluidisiertem Zustand, einer Spalthöhe zwischen Wehr und Verteilerplatte von 20 mm und einer gleichmäßig verteilten Partikelmassenbeladung über die Betthöhe ist die konvektive Partikelgeschwindigkeit durch den Spalt 10 mal höher als im Rest der Wirbelschichtrinne. Der hohe gerichtete Partikeltransport erschwert somit den entgegengesetzten dispersiven Partikeltransport, was zu verminderter Dispersion und somit zu einer erhöhten Bodensteinzahl führt (siehe Gleichung 3.6).

Demnach müsste eine Verringerung der Spalthöhe ebenfalls eine Erhöhung der Bodensteinzahl nach sich ziehen, da auch diese zu erhöhter konvektiver Partikelgeschwindigkeit im Spalt führt. Dies ist in den Abbildungen 3.6(c) und 3.6(d) zu sehen, in welchen die experimentellen Daten für

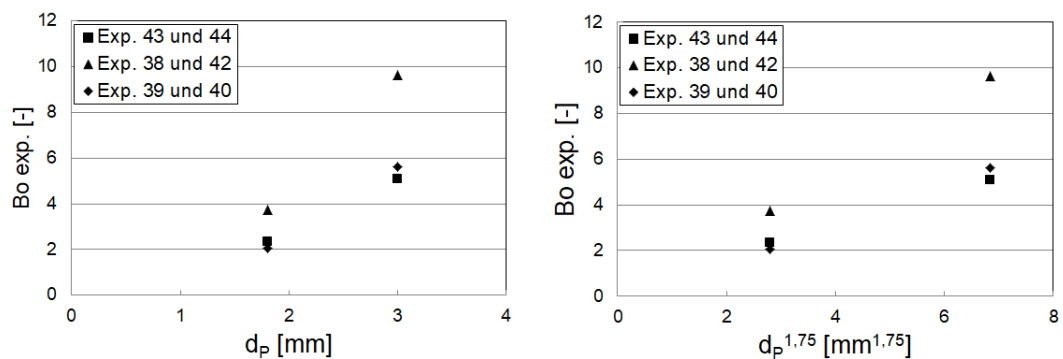
### 3.3 EXPERIMENTELLE PARAMETERVARIATION UND DISKUSSION DER ERGEBNISSE



- (a) Verlauf der experimentell bestimmten Bodensteinzahl über die Anzahl der internen Unterlaufwehre  $N_{Wehr}$  in der Laboranlage.
- (b) Verlauf der experimentell bestimmten Bodensteinzahl über die Anzahl der internen Unterlaufwehre  $N_{Wehr}$  in der Technikumsanlage.



- (c) Verlauf der experimentell bestimmten Bodensteinzahl über die Höhe des Unterlaufspalts  $H_{Spalt}$  in der Laboranlage.
- (d) Verlauf der experimentell bestimmten Bodensteinzahl über die Höhe des Unterlaufspalts  $H_{Spalt}$  in der Technikumsanlage.



- (e) Verlauf der experimentell bestimmten Bodensteinzahl über den Partikeldurchmesser  $d_p$ .
- (f) Verlauf der experimentell bestimmten Bodensteinzahl über  $d_p^{1.75}$ .

Abbildung 3.6: Abhängigkeit der Bodensteinzahl  $Bo$  von der Anzahl der internen Wehre  $N_{Wehr}$ , der Spalthöhe  $H_{Spalt}$  sowie vom Partikeldurchmesser  $d_p$  in Unterlaufkonfiguration.

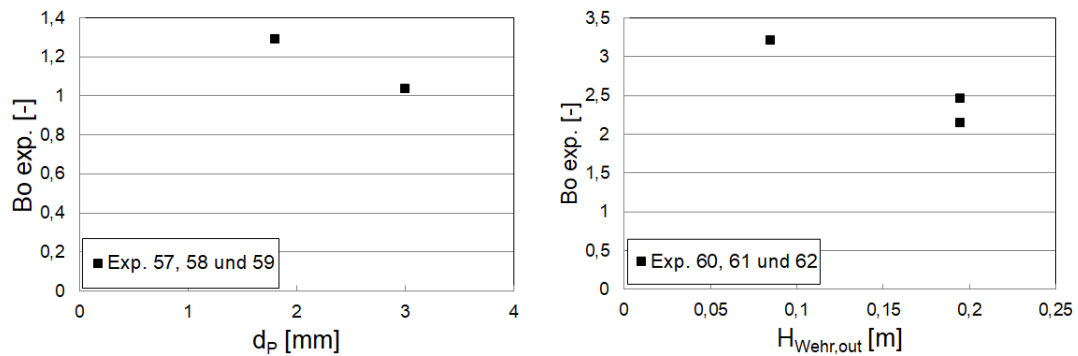
die Labor- und die Technikumsanlage dargestellt sind. Hierbei erschwert die erhöhte, gerichtete Partikelgeschwindigkeit im verringerten Spalt die Dispersion von Partikeln aus einer Kammer in die vorhergehende Kammer.

Eine Vergrößerung des Partikeldurchmessers führt ebenfalls zu einer Erhöhung der Bodensteinzahl, was in den Abbildungen 3.6(e) und 3.6(f) dargestellt ist. Im Gegensatz zu einer Erhöhung des Partikeldurchmessers ohne interne Wehre ist die Zunahme der Bodensteinzahl mit Wehren deutlich größer. Zwar gilt hier die gleiche Erklärung der erhöhten Porosität und der daraus resultierenden kürzeren "freien Weglänge", sowie der verringerten Beschleunigung größerer Partikel durch platzende Gasblasen auf Grund der höheren Masse, jedoch werden diese Phänomene ergänzt durch den deutlich erhöhten Widerstand der Wehre auf den rückläufigen Partikeltransport. Bei doppeltem Partikeldurchmesser vervierfacht sich die Projektionsfläche, wodurch das Verhältnis von Projektionsfläche zu Spaltfläche ebenfalls um den Faktor 4 steigt, und der Widerstand auf den dispersiven Partikelfluss in eine vorhergehende Kammer erhöht wird.

#### **3.3.2.2 Interne Wehre in Überlaufkonfiguration**

Für den Fall mit internen Wehren in Überlaufkonfiguration wurde ebenfalls der Einfluss des Partikeldurchmessers auf die Bodensteinzahl untersucht. Die Ergebnisse für drei Experimente sind in Abbildung 3.7(a) dargestellt. Auffällig hierbei ist der abnehmende Trend der Bodensteinzahl mit zunehmendem Partikeldurchmesser im Vergleich zu den experimentellen Daten aus den Versuchen in Unterlaufkonfiguration in Abbildungen 3.6(e) und 3.6(f). Der Grund hierfür ist erneut die Bettporosität in fluidisiertem Zustand. Große Partikel verursachen eine geringe Bettporosität bei gleichem Gasmassenstrom, weshalb die einzelnen Kammern erst sehr weit befüllt werden müssen, bevor der stationäre Partikelfluss in Konvektionsrichtung erreicht werden kann. Hieraus ergibt sich eine hohe Bettmasse, was eine hohe mittlere Verweilzeit verursacht. Letztere resultiert in eine geringe mittlere Partikelgeschwindigkeit. Aus Gleichung 3.6 ergibt sich somit eine deutlich kleinere Bodensteinzahl.

Um den Einfluss unterschiedlicher Wehrhöhen interner Wehre auf den Partikeltransport zu untersuchen, wurden drei weitere Experimente (Exp. 60, 61 und 62, siehe Abbildung 3.7(a)) durchgeführt. Hierbei entspricht die Höhe des Austrittswehres der Höhe der internen Wehre. Die Bodensteinzahl nimmt mit zunehmender Wehrhöhe in Überlaufkonfiguration ab, wie bereits bei der Variation der Austrittswehrhöhe bei der Untersuchung ohne interne Wehre zu erkennen war. Der Dispersionskoeffizient sinkt um den Faktor 0,55 und die mittlere Partikelgeschwindigkeit um den Faktor 0,40, was zu einer erhöhten Bodensteinzahl führt.



(a) Abhängigkeit der Bodensteinzahl vom Partikeldurchmesser  $d_p$  in Überlaufkonfiguration. (b) Abhängigkeit der Bodensteinzahl von der Höhe des Austrittswehres. Austrittswehr und interne Wehre weisen in allen Experimenten mit Überlaufkonfiguration die gleiche Höhe auf.

Abbildung 3.7: Abhängigkeit der Bodensteinzahl  $Bo$  vom Partikeldurchmesser  $d_p$  sowie der Austrittswehrrhöhe  $H_{Wehr,out}$  in Überlaufkonfiguration.

### 3.3.2.3 Einfluss nicht-äquidistanter Wehrplatzierung

Um den Einfluss der Platzierung von internen Wehren zu untersuchen, wurden 2 Experimente mit Unterlaufkonfiguration durchgeführt. Die hierfür gewählten Betriebsparameter sind in Tabelle A.5 in Anhang A dargestellt. Zum Vergleich wurden alle Betriebsparameter konstant gehalten und ein internes Unterlaufwehr mit 6 mm Spalthöhe in der Wirbelschichtrinne montiert. Zunächst wurde dieses in einem Abstand von 33 cm zum Partikeleintritt installiert (33/67) und auf das Partikelverweilzeitverhalten untersucht, was in Abbildung 3.8 dargestellt ist. Den Messergebnissen werden Daten gegenübergestellt, welche aus einem entsprechenden Experiment mit einem Wehrabstand von 67 cm zum Partikeleintritt (67/33) resultieren.

Dem Vergleich ist zu entnehmen, dass bei einer Distanz von 0,33 m eine höhere Bodensteinzahl erzielt wird, was in Tabelle A.5 im Anhang A dargestellt ist. Die Bettmasse und die hieraus resultierende mittlere Partikelverweilzeit fällt bei der 33/67 Wehrplatzierung deutlich geringer aus. Dies ist dem geringeren Volumen der ersten Kammer geschuldet.

Der Widerstand des internen Wehres auf den axialen Partikeltransport ist in beiden Fällen höher als der Widerstand auf den Partikeltransport über das Austrittswehr aus dem System heraus. Die Summe des Partikelstroms an beiden Stellen entspricht dem Partikelstrom in die Wirbelschichtrinne hinein. Daher muss sich im stationären Zustand ein Gleichgewicht einstellen, in welchem sich an jedem Übergang der gleiche Partikelstrom einstellt. Dies wird vor dem internen Wehr mit einer größeren Betthöhe bzw. Bettmasse erreicht. Verdoppelt sich das Volumen vor dem internen Unterlaufwehr mit niedriger Spalthöhe und hohem Transportwiderstand steigt die Bettmasse und somit die mittlere Verweilzeit der Partikel. Diese erhöhte mittlere

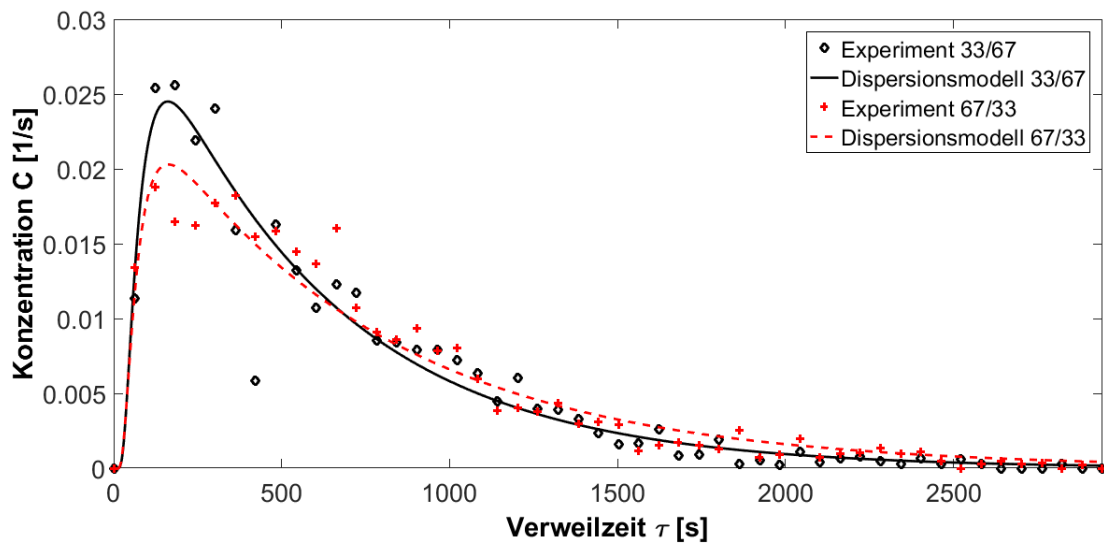


Abbildung 3.8: Experimentelle Verweilzeitverteilung und Simulationsdaten für eine nicht-äquidistante Platzierung eines internen Unterlaufwehres. Das Verhältnis des Abstands vom Eintritt in die WSR zur Gesamtlänge  $L_{WSR}$  gleicht bei dem Experiment  $\diamond$  und der Simulation  $-$  33:67, wohingegen es bei den experimentellen Daten  $+$  sowie der Simulation  $- -$  67:33 beträgt.

Verweilzeit wiederum zieht eine geringere axiale Partikelgeschwindigkeit nach sich, was nach Gleichung 3.6 zu einer höheren Bodensteinzahl führt. Betrachtet man jedoch ausschließlich die Dispersionskoeffizienten ist nur eine geringe Differenz zu erkennen, was den Unterschied der Bodensteinzahlen durch die variierenden Bettmassen belegt.

### 3.3.2.4 Einfluss von Partikelgrößenmischungen auf die Verweilzeitverteilung

Da es sich bei industrieller Anwendung im Allgemeinen nicht um monodispers verteilte Partikelschüttungen handelt, wurde im Folgenden eine Partikelmischung untersucht, bestehend aus zwei verschiedenen Durchmessern und variierenden Massenanteilen. Die betrachteten Partikel weisen, wie bereits in den Abschnitten zuvor, einen Partikeldurchmesser von 1,8 mm und 3,0 mm auf, wobei sich der Anteil der kleinen Partikel

$$q = \frac{M_{P,1,8mm}}{M_{P,1,8mm} + M_{P,3,0mm}} \quad (3.27)$$

aus den eingesetzten anteiligen Massen am Partikeleintritt berechnet.

Die Versuchsdurchführung blieb hierbei unverändert und das Ausgangsmaterial wurde zuvor in Fässern (80 l) zu definierten Massenanteilen gemischt. Auch die Tracerpartikel wurden zu entsprechenden Massenanteilen gemischt und im stationären Zustand in die Wirbelschichtrinne eingebracht.

Die während des Experiments entnommenen Proben wurden wie in Abschnitt 3.1 beschrieben

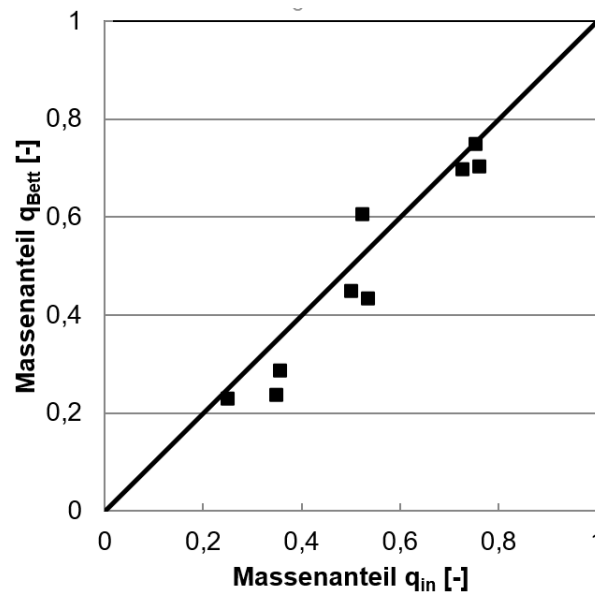


Abbildung 3.9: Massenanteil kleiner Partikel in der Bettmasse  $q_{Bett}$  über dem Massenanteil im Ausgangsmaterial  $q_{in}$ .

analysiert. Dabei wurden die mit dem Rotationsprobenteiler separierten Proben zusätzlich gesiebt, in eine kleine und große Fraktion getrennt, und unabhängig voneinander analysiert. Somit lässt sich der Partikeltransport der einzelnen Fraktionen eines Gemisches nachvollziehen. Auch die finale Bettmasse wurde mit Hilfe eines Siebes in zwei Fraktionen getrennt und einzeln gewogen.

Betrachtet man zunächst die Bettmassenzusammensetzung in Abbildung 3.9, so fällt auf, dass die Partikelmassenanteile in der WSR ( $q_{Bett}$ ) von den Anteilen  $q_{in}$  im Ausgangsmaterial abweichen. Es ist zu sehen, dass die großen Partikel überproportional in der Bettmasse vertreten sind. Die Betriebsparameter sind in Tabelle A.6 im Anhang A aufgeführt.

Durch den Unterschied in der Partikelgröße setzen sich die kleineren Partikel von den größeren Partikeln ab und nehmen überdurchschnittlich den oberen Teil der Wirbelschicht ein. Dieser Segregationseffekt wurde bereits von Daleffe u. a. (2008) beschrieben, als diese Glaspartikelmischungen (Partikeldurchmesser: 1,29 mm, 2,18 mm, 3,67 mm) in einer Wirbelschichtanlage, einer Vibrationsrinne und einer Kombination aus Beiden untersuchten.

Betrachtet man die einzelnen Partikelfraktionen getrennt, so würden die kleinen Partikel, bei ansonsten gleichen Prozessbedingungen, auf Grund der höheren Bettporosität im fluidisierten Zustand, eine geringere Bettmasse ausbilden als die großen Partikel. Dies spiegelt sich auch in der Partikelmischung wider, in welcher mit zunehmendem Anteil an kleinen Partikeln die Gesamtporosität steigt und somit die Gesamtbettmasse sinkt, was in Abbildung 3.10 (a - ohne Einbauten; b - Überlauf; c - Unterlauf) dargestellt ist. Wiederum ist auffällig, dass die höchste Bettmasse  $M_{Bett}$ , unabhängig vom Massenanteil  $q$ , bei Überlaufmodifikation erreicht wird. Mit



Zunahme von  $q_{\text{Bett}}$  fallen die Gesamtmasse sowie die Masse der großen Partikel linear.

In Abbildung 3.11 sind die experimentellen Bodensteinzahlen über den Massenanteil  $q_{in}$  dargestellt, wobei Abbildung 3.11(a) den Ergebnissen ohne Einbauten und Abbildung 3.11(b) den Ergebnissen mit Überlauf- oder Unterlaufkonfiguration entspricht. In Abbildung 3.11(a) wird deutlich, dass sich die geringste Bodensteinzahl für die Partikelmischung mit einem Massenanteil  $q_{in}$  am Eintritt von 0,5 ergibt. Das Experiment mit überwiegend großen Partikeln weist eine höhere Bodensteinzahl auf als das Experiment mit überwiegend kleinen Partikeln ( $q_{in} = 0,75$ ). Dies ist auch bei beiden anderen Konfigurationen (siehe Abbildung 3.11(b)) zu beobachten. Allerdings ergibt sich hierbei für einen Massenanteil  $q_{in}$  von 0,5 die höchste Bodensteinzahl, was gegenläufig zu den Ergebnissen aus den Experimenten ohne interne Wehre ist.

Im Fall ohne Einbauten ist es den Partikeln möglich sich zu entmischen, wodurch die großen Partikel, welche sich häufiger im unteren Bereich des Bettes befinden, den Partikeltransport der kleinen Partikel weniger beeinflussen. Mit zunehmendem Anteil kleiner Partikel sinkt die Bettmasse auf Grund höherer Porosität, was eine höhere mittlere Partikelgeschwindigkeit entlang der Wirbelschichtrinne zur Folge hat. Gleichzeitig steigt die Dispersion jedoch an und befindet sich bereits bei einem Massenanteil von 0,5 beinahe bei der Dispersion der reinen Partikel des Durchmessers von 1,8 mm.

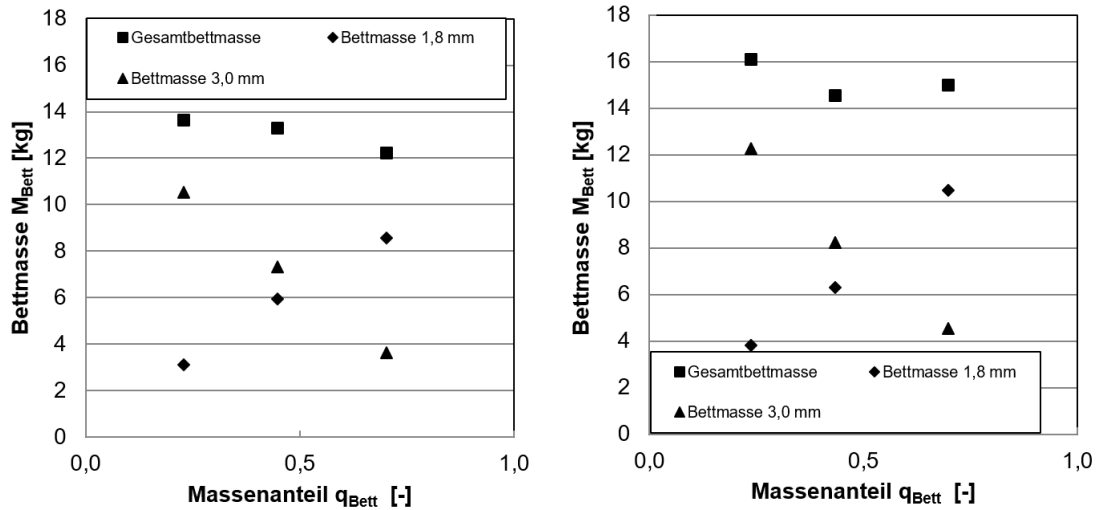
## 3.4 Herleitung spezifischer Korrelationen

Nachfolgend werden aus den ermittelten Daten und unter Berücksichtigung der verschiedenen Prozessparameter mathematische Zusammenhänge abgeleitet. Diese sollen in eine empirische Korrelation resultieren, welche es ermöglicht, die Verweilzeitverteilung von Partikelschüttungen in der Wirbelschichtrinne vorherzusagen und aufwendige experimentelle Untersuchungen zu minimieren.

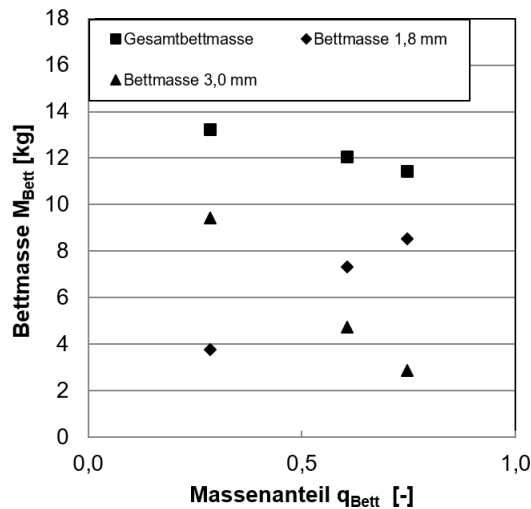
### 3.4.1 Korrelation der Bodensteinzahl ohne interne Wehre

Um eine beliebige Verweilzeitverteilung vorhersagen zu können, wurde eine Korrelation für die Bodensteinzahl erstellt. Hierfür wurden zunächst die experimentellen Verläufe der Bodensteinzahlen aus den durchgeführten Verweilzeituntersuchungen betrachtet und in mathematische Terme gefasst. Um im Nachhinein auch Daten aus der Literatur verwenden zu können, wurden zunächst nur die Daten ohne interne Wehre korreliert, wie sie in der Literatur vorliegen.

Wie in Abbildung 3.5 zu sehen ist, nimmt die Bodensteinzahl mit Zunahme der Länge der Wirbelschichtrinne  $L_{WSR}$  zu und mit Zunahme der Austrittswehrröhe  $H_{Wehr,out}$  sowie der Breite der Wirbelschicht  $B_{WSR}$  ab. Wie bereits den Gleichungen 3.6 und 3.7 zu entnehmen ist, geht



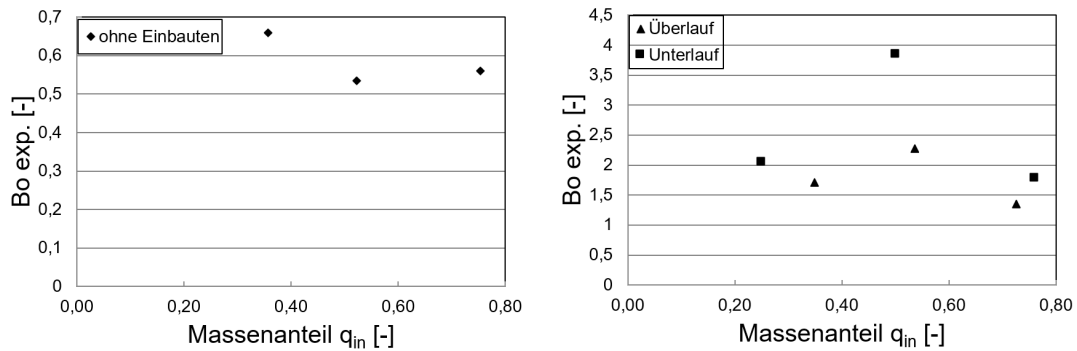
(a) Bettmasse  $M_{Bett}$  über dem Massenanteil kleiner Partikel in der Bettmasse  $q_{Bett}$  (ohne Einbauten). (b) Bettmasse  $M_{Bett}$  über dem Massenanteil kleiner Partikel in der Bettmasse  $q_{Bett}$  (Überlaufkonfiguration).



(c) Bettmasse  $M_{Bett}$  über dem Massenanteil kleiner Partikel in der Bettmasse  $q_{Bett}$  (Unterlaufkonfiguration).

Abbildung 3.10: Bettmasse  $M_{Bett}$  über dem Massenanteil kleiner Partikel in der Bettmasse  $q_{Bett}$  für unterschiedliche Wehrkonfigurationen.

### 3 VERWEILZEITVERTEILUNG IN WIRBELSCHICHTTRINNEN



(a) Abhängigkeit der Bodensteinzahl vom Massenanteil  $q_{in}$  für die Versuchsreihe ohne interne Einbauten für die Partikelmischung.

(b) Abhängigkeit der Bodensteinzahl vom Massenanteil  $q_{in}$  für die Versuchsreihe mit internen Einbauten in Über- und Unterlaufkonfiguration für die Partikelmischung.

Abbildung 3.11: Abhängigkeit der Bodensteinzahl vom Massenanteil kleiner Partikel  $q_{in}$  am Eintritt in die Wirbelschichtanlage für die Partikelmischung.

die Länge der Wirbelschichtrinne quadratisch in die Bodensteinzahl ein. Daher ergibt sich eine Proportionalität zu

$$Bo \sim \frac{L_{WSR}}{H_{Wehr,out}} \cdot \frac{L_{WSR}}{B_{WSR}} \quad (3.28)$$

Durch Berücksichtigung der Bettporosität

$$\varepsilon_{RZ} = \left( \frac{Re_G}{Re_{elu}} \right)^{1/k} \quad (3.29)$$

nach Richardson und Zaki (1954) im Exponenten des Korrelationsterms mit dem Exponenten

$$k = \frac{\ln \left( \frac{Re_{mf}}{Re_{elu}} \right)}{\ln(\varepsilon_{mf})}, \quad (3.30)$$

ergibt sich eine geringere Abweichung der korrelierten Daten zu den experimentell bestimmten Bodensteinzahlen, was wiederum zu dem Term

$$Bo \sim \left( \frac{L_{WSR}^2}{H_{Wehr,out} \cdot B_{WSR}} \right)^{\varepsilon_{RZ}} \quad (3.31)$$

führt.

Die hierzu benötigten dimensionslosen Reynoldszahlen im Betriebszustand

$$Re_G = \frac{u_G \cdot d_P}{\nu_G}, \quad (3.32)$$

im Zustand des Partikelaustrags nach Werther (1977)

$$Re_{elu} = \sqrt{\frac{4}{3} \cdot Ar} \quad (3.33)$$

und im Zustand minimaler Fluidisation nach Kunii u. a. (2013)

$$Re_{mf} = 42,86 \cdot (1 - \varepsilon_{mf}) \cdot \left( \sqrt{\frac{\varepsilon_{mf}^3}{(1 - \varepsilon_{mf})^2} \cdot \frac{Ar}{3214,29}} - 1 \right), \quad (3.34)$$

berechnen sich aus der Archimedeszahl

$$Ar = \frac{(\rho_P - \rho_G) \cdot g \cdot d_P^3}{\rho_G \cdot \nu_G^2}, \quad (3.35)$$

der Gasgeschwindigkeit im leeren Rohrquerschnitt  $u_G$ , den Partikel- und Gasdichten sowie der kinematischen Viskosität des Gases  $\nu_G$ .

Nach Abbildung 3.4(e) führt eine Zunahme des Partikeldurchmessers  $d_P$  zu einer zunehmenden Bodensteinzahl ( $Bo \sim d_P$ ). Eine weitere Größe, welche berücksichtigt werden muss, ist der Blasendurchmesser. Beim Platzen kleiner Gasblasen an der Oberfläche des fluidisierten Bettes werden Partikel weniger stark bzw. weit geschleudert, woraus eine geringere Dispersion und somit eine höhere Bodensteinzahl resultiert, als dies bei großen Gasblasen der Fall ist. Somit ergibt sich der Proportionalitätsterm  $Bo \sim d_P/d_B$  für die Korrelation der Bodensteinzahl. Der entsprechende Gasblasendurchmesser  $d_B$  bei zugehöriger Höhe des Austrittswehres  $H_{Wehr,out}$  wird hierfür aus der impliziten Gleichung von Horio und Nonaka (1987)

$$\left( \frac{\sqrt{d_B} - \sqrt{d_{B,eq}}}{\sqrt{d_{B,in}} - \sqrt{d_{B,eq}}} \right)^{1-\gamma/\psi} \cdot \left( \frac{\sqrt{d_B} + \sqrt{\delta}}{\sqrt{d_{B,in}} + \sqrt{\delta}} \right)^{1-\gamma/\psi} = \exp\left(-0,3 \cdot \frac{H_{Wehr,out}}{B_{WSR}}\right) \quad (3.36)$$

berechnet. Der ursprünglich verwendete Durchmesser der zylindrischen Wirbelschicht wurde für den vorliegenden Fall durch die Breite der Wirbelschichttrinne ersetzt.

Für die Berechnung des Gleichgewichtsblasendurchmesser

$$d_{B,eq} = \left[ -\gamma + (\gamma^2 + 4 \cdot d_{B,max}/B_{WSR})^{0,5} \right]^2 \cdot B_{WSR}/4 \quad (3.37)$$

werden die Parameter

$$\gamma = 0,0256 \cdot (B_{WSR}/g)^{0,5} / u_{mf} \quad (3.38)$$

und

$$\psi = (\gamma^2 + 4 \cdot d_{B,max}/B_{WSR})^{0,5} \quad (3.39)$$

verwendet. Der Parameter

$$\delta = (\gamma + \psi)^2 \cdot B_{WSR}/4 \quad (3.40)$$

berechnet sich aus den in den Gleichungen 3.38 und 3.39 definierten Größen.

Bei der Berechnung des initialen Blasendurchmessers  $d_{B,in}$ , unmittelbar oberhalb der Gasverteilerplatte, muss zwischen perforierter Lochplatte oder Gasverteiler aus gesinterten Metallkugeln unterschieden werden, da sich die Größe der Gasblasen hierbei erheblich unterscheidet. Im Fall eines perforierten Lochbodens kann

$$d_{B,in} = 1,38 \cdot g^{-0,2} \left[ \frac{u_G - u_{mf}}{N_{or}} \cdot L_{WSR} \cdot B_{WSR} \right]^{0,4} \quad (3.41)$$

aus der Anzahl der Öffnungen (engl.: orifice)  $N_{or}$  sowie der Querschnittsfläche  $L_{WSR} \cdot B_{WSR}$  der Wirbelschichtrinne errechnet werden.

Im Fall eines Sintermetallbodens berücksichtigt die Korrelation für den Anfangsblasendurchmesser

$$d_{B,in} = 3,77 \cdot (u_G - u_{mf})^2 / g \quad (3.42)$$

lediglich das Quadrat der Differenz aus Gasgeschwindigkeit im Leerrohr  $u_G$  und im Zustand minimaler Fluidisation  $u_{mf}$ . In den Gleichungen 3.36-3.42 gehen die Geschwindigkeiten  $u_G$  und  $u_{mf}$  und alle Längen  $d_B, d_{B,max}, d_{B,in}, L_{WSR}, B_{WSR}$  und  $H_{Wehr,out}$  in primären SI-Einheiten ein.

Aus Abbildung 3.4(d) ergibt sich der Einfluss des Feststoffdurchsatzes  $\dot{M}_P$  auf die Bodensteinzahl mit einem Exponenten von 0,5. Die Differenz des Prozessgasmassenstroms und Prozessgasmassenstroms bei minimaler Fluidisierung wirkt sich in umgekehrt proportionaler Weise mit gleichem Exponenten auf die Bodensteinzahl aus. In seiner Gesamtheit ergibt sich somit ein Term in der Form  $Bo \sim (\dot{M}_P / (\dot{M}_G - \dot{M}_{G,mf}))^{1/2}$ .

Um nun Daten anderer Publikationen mit in die Korrelation einzubeziehen, muss der bisherige Term

$$Bo = \left[ \frac{L_{WSR}^2}{H_{Wehr,out} \cdot B_{WSR}} \right]^{\epsilon_{RZ}} \cdot \frac{d_P}{d_B} \cdot \left[ \frac{\dot{M}_P}{\dot{M}_G - \dot{M}_{G,mf}} \right]^{1/2} \quad (3.43)$$

erweitert werden.

Im Datensatz von Nilsson (1986) tauchen neben verschiedenen Partikeldurchmessern, wie in den eigenen Daten, auch unterschiedliche Partikelmaterialien und somit Partikeldichten auf. Um diese verschiedenen Partikeleigenschaften in eine allgemeine Form zur Korrelation der Bodensteinzahl aufzunehmen, wurde der Term  $u_{elu}/u_{mf}$  eingefügt, wobei der Exponent von 0,85 durch die Minimierung der Abweichung zwischen experimentellen und korrelierten Daten ermittelt wurde.

Beim Gegenüberstellen der Berechnungsergebnisse aus dieser Korrelation mit den experimentellen Daten von Reay (1978) ist auffällig, dass sich die ermittelten Daten in zwei Stränge aufteilen. Einer der Stränge repräsentiert den Datensatz mit perforierten Lochboden, die Daten des andern Stranges mit einer Verteilerplatte aus Sintermetall. Der Unterschied in der Versuchsausführung bei den verschiedenen Verteilerplatten und bei gleicher Prozessgasgeschwindigkeit beschränkt sich demnach nicht nur auf die mittlere Blasengröße  $d_B$ , welche bereits in der Korrelation berücksichtigt wurde, sondern erfordert auch die Einbeziehung der Anfangsblasengröße  $d_{B,in}$  sowie der maximal möglichen Blasengröße  $d_{B,max}$ .

Der maximale Gasblasendurchmesser

$$d_{B,max} = 2,59g^{-0,2} [(u_G - u_{mf}) \cdot L_{WSR} \cdot B_{WSR}]^{0,4} \quad (3.44)$$

wird aus der Differenz der Gasgeschwindigkeit  $u_G$  durch die partikuläre Phase und der Gasgeschwindigkeit im Zustand minimaler Fluidisation  $u_{mf}$  und der Anströmfläche  $L_{WSR} \cdot B_{WSR}$  bestimmt. Der Exponent in dem entwickelten Term  $\frac{d_{B,in}}{d_{B,max}}$  von 0,25 sowie der Vorfaktor von 10 wurden angepasst, indem die Abweichung zwischen experimentellen und korrelierten Daten minimiert wurde. Schließlich wurde der gesamte Korrelationsterm mit der Bettporosität  $\epsilon_{RZ}$  dividiert und die Varianz aus experimentellen und korrelierten Daten somit weiter minimiert. Als Resultat aller beschriebenen Zusammenhänge ergibt sich der Ausdruck

$$Bo_{oW} = 10 \cdot \left[ \frac{L_{WSR}^2}{H_{Wehr,out} \cdot B_{WSR}} \right]^{\epsilon_{RZ}} \cdot \frac{d_P}{d_B} \cdot \left[ \frac{\dot{M}_P}{\dot{M}_G - \dot{M}_{G,mf}} \right]^{1/2} \cdot \left( \frac{u_{elu}}{u_{mf}} \right)^{0,85} \cdot \left( \frac{d_{B,in}}{d_{B,max}} \right)^{0,25} \cdot \epsilon_{RZ}^{-1} \quad (3.45)$$

für die Korrelation der Bodensteinzahl in einer kontinuierlichen Wirbelschichttrinne ohne interne Wehre (ohne Wehre - oW).

Um eine Aussage über die Güte der Korrelation aus Gleichung 3.45 zu treffen, ist ein Paritätsdiagramm in Abbildung 3.12(a) dargestellt. Hierfür werden experimentelle Daten aus Untersuchungen an der Laborwirbelschichtanlage  $\square$  und der Technikumsanlage  $\blacktriangle$  verwendet. Sowohl der lineare Verlauf aller Datenpunkte entlang der Winkelhalbierenden als auch die geringe Abweichung von dieser belegt eine gute Übereinstimmung.

Um die Güte der Korrelation neben den eigenen Werten auch an Daten aus der Literatur zu

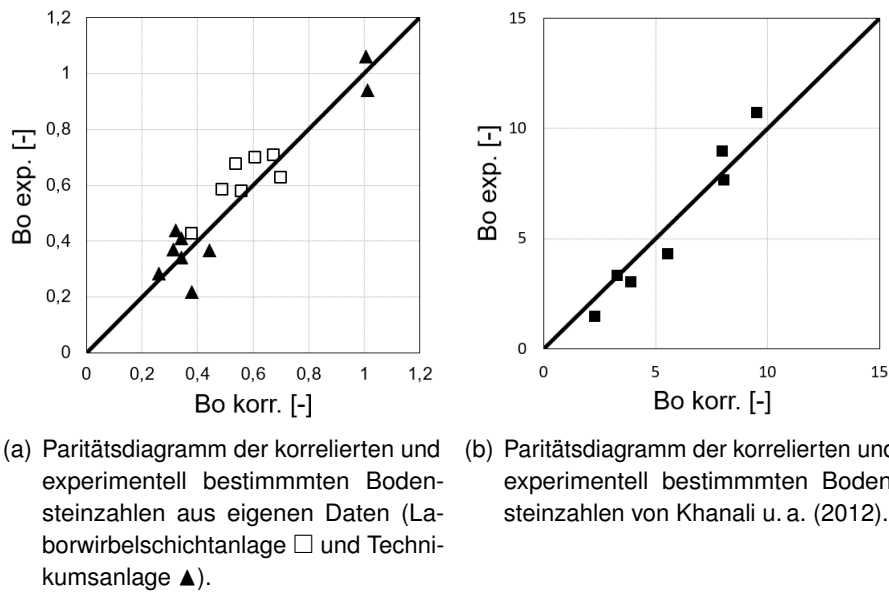


Abbildung 3.12: Paritätsdiagramm der korrelierten und experimentell bestimmten Bodensteinzahlen aus der vorliegenden Untersuchung und der Literatur von Khanali u. a. (2012) ohne Einbauten.

prüfen, müssen Kennzahlen eingeführt werden. Aus Gründen der Einfachheit werden hierfür das Bestimmtheitsmaß  $R^2$  sowie die Steigung der Regressionsgeraden aller Datensätze aufgegriffen und in Tabelle A.7 in Anhang A aufgeführt. Zum Vergleich wurden die Werte aller Datensätze sowohl für die zuvor erstellte Korrelation in Gleichung 3.45 als auch für die Korrelationen in Gleichung 1.6 nach Reay (1978) und Gleichung 1.7 nach Nilsson (1986) berechnet. Die Bestimmung der Bodensteinzahlen aus den Korrelationen für den Dispersionskoeffizienten erfolgte nach Gleichung 3.6.

Die vier Datensätzen weisen eine angestrebte Steigung von nahezu 1 sowie ein Bestimmtheitsmaß zwischen 0,54 und 0,95 auf, was laut Definition einer moderaten bis sehr guten Korrelation entspricht. Lediglich die Korrelation von Nilsson (1986) bildet die Daten von Nilsson (1986) besser ab, schneidet jedoch bezogen auf die Steigung für die anderen Datensätze schlechter ab, als die in dieser Arbeit vorgestellte Korrelation in Gleichung 3.45.

Da für das Erstellen der Korrelation die Datensätze sowohl von Reay (1978) als auch von Nilsson (1986) verwendet wurden und somit der Anpassung dienen, wurde ein dritter Datensatz aus der Literatur von Khanali u. a. (2012) herangezogen, um die Eignung der Korrelation zu prüfen. Bei dem untersuchten Material handelte es sich um Reis, weshalb die Gasgeschwindigkeit  $u_{mf}$  im Zustand minimaler Fluidisierung experimentell bestimmt wurde, da sie nur schlecht zu berechnen ist. Der hieraus berechnete Partikeldurchmesser weicht jedoch von dem in der Arbeit angegebenen äquivalenten Partikeldurchmesser auf Grund der Partikelform ab. Um

jedoch eine Konsistenz der einzelnen Parameter innerhalb der Korrelation zu erreichen, wurde der aus  $u_{mf}$  berechnete Partikeldurchmesser genutzt, aus welchem wiederum Größen wie die Austragsgeschwindigkeit  $u_{elu}$  oder die Blasendurchmesser  $d_B$ ,  $d_{B,max}$  und  $d_{B,in}$  berechnet wurden. Abbildung 3.12(b) zeigt das Paritätsdiagramm und belegt eine gute Übereinstimmung von Korrelation und Literaturdaten. Der Anstieg und das Bestimmtheitsmaß des Datensatzes sind in Tabelle A.7 in Anhang A angegeben.

Die Abweichung der Korrelation in Gleichung 3.45 von der Korrelation aus der Veröffentlichung von Bachmann u. a. (2016) ist durch die Verwendung einer verbesserten Korrelation für die Gasblasengröße in der vorliegenden Arbeit begründet. Die implizite Gleichung 3.36 von Horio und Nonaka (1987) für die Gasblasengröße  $d_B$  konvergiert für Partikel der Geldart-Gruppe B und D in die Gleichung für die Gasblasengröße nach Wen und Yu (1966), erzielt nahezu gleiche Ergebnisse wie die Korrelationen von Rowe (1976) oder Darton u. a. (1977) und kann darüber hinaus für Partikel der Geldart-Gruppe A angewendet werden. Zwar sinkt das Bestimmtheitsmaß für die Datensätze von Reay (1978) und Nilsson (1986), dafür verbessert sich jedoch der Anstieg für den größten der untersuchten Datensätze von Nilsson (1986) erheblich.

### 3.4.2 Korrelation der Bodensteinzahl mit internen Wehren

Da der Einbau von internen Wehren, sei es in Über- oder Unterlaufkonfiguration, einen Widerstand auf den Partikeltransport in axialer Richtung ausübt, wird im Folgenden die ursprüngliche Korrelation für die Bodensteinzahl ohne interne Wehre (siehe Gleichung 3.45) durch einen Widerstandsterm für Über- bzw. Unterlaufkonfiguration erweitert. So kann dieser Widerstand beschrieben und entsprechend berücksichtigt werden.

#### 3.4.2.1 Korrelation der Bodensteinzahl in Unterlaufkonfiguration

Für die Korrelation der Bodensteinzahl in Unterlaufkonfiguration wurde eine Vielzahl an Experimenten durchgeführt. Zunächst wurde die Anzahl der integrierten, vertikalen Wehre zwischen 1, 3 und 8 variiert. Die Abbildungen 3.6(a) und 3.6(d) zeigen übereinstimmende Ergebnisse für mehrere Versuchsreihen: Eine Erhöhung der Anzahl interner Unterlaufwehre bewirkt eine erhebliche Erhöhung der Bodensteinzahl, was auf den größeren Transportwiderstand, welcher auf die Partikel wirkt, zurückzuführen ist. Aus diesem Grund ergibt sich für die Wehranzahl  $N_{Wehr}$  eine direkte Proportionalität im Widerstandsterm für die Bodensteinzahl in Unterlaufkonfiguration  $BO_{Unter} \sim N_{Wehr}$ .

Deckungsgleich mit den Ergebnissen der Versuchsreihe ohne Einbauten in Abschnitt 3.3.1 ergibt sich auch für die Unterlaufkonfiguration eine Zunahme der Bodensteinzahl mit erhöhtem Partikeldurchmesser  $d_p$ . Aus einer Polynomannäherung ergibt sich ein Exponent von 1,75, was in Abbildung 3.6(f) dargestellt ist.



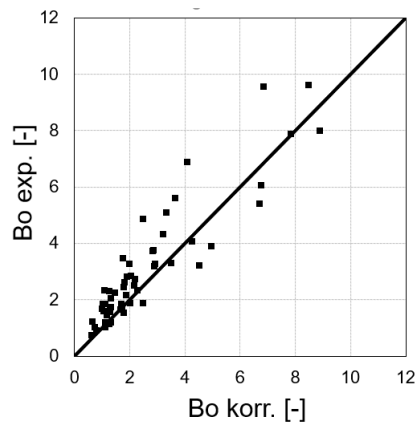


Abbildung 3.13: Paritätsdiagramm: Experimentell bestimmte Bodensteinzahl über die korrelierten Werte in Unterlaufkonfiguration.

Da der Partikeldurchmesser bereits mit einem Exponenten von 1 in der Korrelation für die Bodensteinzahl ohne Einbauten berücksichtigt wird, geht der unterlaufspezifische Anteil in die Korrelation mit 0,75 in Form der Reynoldszahl im Zustand minimaler Fluidisierung in den Zähler des Widerstandsterms ein  $BO_{Unter} \sim Re_{mf}^{0,75}$ .

Die Versuchsreihe zum Einfluss der Spalthöhe der Unterlaufwehre ergibt eine Abnahme der Bodensteinzahl mit zunehmender Spalthöhe, was einer Reduzierung des Partikeltransportwiderstands gleicht und in den Abbildungen 3.6(c) und 3.6(d) zu sehen ist. Aus diesem Grund verhält sich die Spalthöhe  $H_{Spalt}$  indirekt proportional zum Transportwiderstand.

Die Korrelation für die Bodensteinzahl mit internen Unterlaufwehren lässt sich demnach wie folgt,

$$BO_{Unter} = 5,06 \cdot 10^{-3} \cdot BO_{oW} \cdot N_{Wehr} \cdot \left( \frac{H_{Wehr,out}}{H_{Spalt}} \right)^{\epsilon_{RZ}} \cdot Re_{mf}^{0,75} \quad (3.46)$$

berechnen, wobei sich der Vorfaktor von  $5,06 \cdot 10^{-3}$  aus einer linearen Anpassung an die Messwerte ergibt. Die Höhe des Austrittswehres im Widerstandsterm für  $BO_{Unter}$  im Nenner hebt sich mit  $H_{Wehr,out}$  im Zähler der Korrelation für die Bodensteinzahl ohne interne Einbauten gegenseitig auf.

Die Güte der Übereinstimmung von Korrelation und experimentellen Daten lässt sich in Abbildung 3.13 erkennen und mit Hilfe der Steigung der Regressionsgeraden von 0,97 bzw. des Bestimmtheitsmaßes  $R^2 = 0,85$  in Werte fassen.

#### 3.4.2.2 Korrelation der Bodensteinzahl in Überlaufkonfiguration

Für die Korrelation der Bodensteinzahl in Überlaufkonfiguration wurden 6 Experimente durchgeführt. In Abbildung 3.7(a) fällt auf, dass eine Zunahme des Partikeldurchmessers eine Abnahme

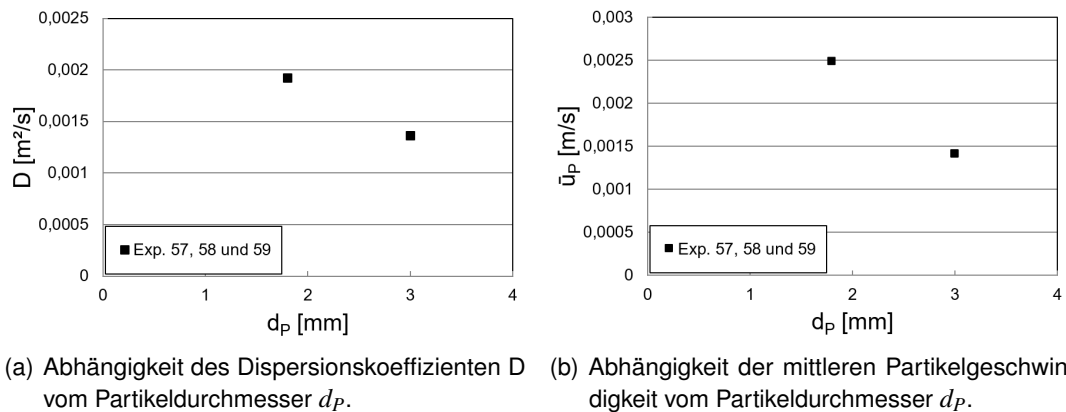


Abbildung 3.14: Abhängigkeit des Dispersionskoeffizienten  $D$  (a) und der mittleren Partikelgeschwindigkeit  $\bar{u}_p$  (b) vom Partikeldurchmesser in Überlaufkonfiguration.

der Bodensteinzahl bewirkt, weshalb  $d_p$  im Nenner des Widerstandsterms für  $Bo_{Ueber}$  auftritt. Dieser Trend verhält sich umgekehrt zur entsprechenden Tendenz im Fall von Unterlauf bzw. ohne interne Einbauten. Zwar nimmt die Dispersion auch in diesem Fall mit zunehmendem Partikeldurchmesser um 29% ab, doch auf Grund der erheblichen Zunahme der Bettmasse und der damit verbundenen erhöhten mittleren Verweilzeit bzw. der resultierenden Abnahme der mittleren Partikelgeschwindigkeit von 43%, ergibt sich eine Verringerung der Bodensteinzahl, was in Abbildung 3.14 dargestellt ist.

Die erstellte Korrelation für die Bodensteinzahl in Überlaufkonfiguration

$$Bo_{Ueber} = 0,0117 \cdot Bo_{oW} \cdot N_{Wehr} \cdot \frac{H_{Wehr,out}}{d_p} \quad (3.47)$$

ergibt sich äquivalent wie in den Abschnitten 3.4.1 und 3.4.2.1 aus den experimentellen Werten. Im Paritätsdiagramm in Abbildung 3.15 lässt sich die Übereinstimmung von Korrelation und Experimenten beobachten. In Werten ergibt sich eine Steigung der Regressionsgeraden von 1 und ein Bestimmtheitsmaß  $R^2$  von 0,95.

### 3.4.3 Korrelation der Bettmasse

Aus den zuvor erstellten Korrelationen für die Bodensteinzahl lässt sich der Partikeltransport durch eine Wirbelschichtrinne bestimmen. Um jedoch die exakte Verweilzeitverteilung für einen definierten Wirbelschichtprozess vorhersagen zu können, wird neben der Bodensteinzahl auch die Bettmasse benötigt, aus welcher die mittlere Verweilzeit (Gleichung 3.8) bzw. Partikelgeschwindigkeit (Gleichung 3.7) bestimmt wird. Die gängige Methode zur Bestimmung der

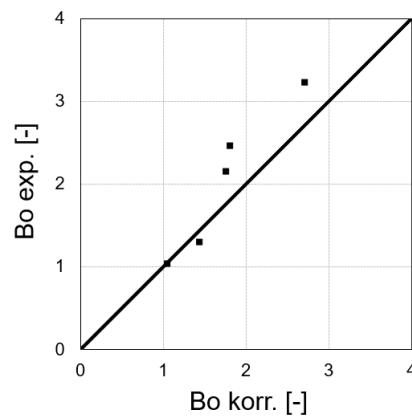


Abbildung 3.15: Paritätsdiagramm: Experimentell bestimmte Bodensteinzahl über die korrelierten Werte in Überlaufkonfiguration.

Bettmasse

$$M_{Bett} = (1 - \epsilon_{RZ}) \cdot \rho_P \cdot L_{WSR} \cdot B_{WSR} \cdot H_{Bett} \quad (3.48)$$

ist die Berechnung aus der Bettporosität  $\epsilon_{RZ}$  im fluidisierten Zustand nach Richardson und Zaki (Gleichungen 3.29 und 3.30) multipliziert mit der Partikeldichte  $\rho_P$  sowie der Bettlänge  $L_{WSR}$  und -breite  $B_{WSR}$ . Darüber hinaus wird die Betthöhe  $H_{Bett}$  in fluidisiertem Zustand benötigt, welche sich nur ungenau voraussagen lässt. Um dies zu umgehen, soll in der folgenden Korrelation die Betthöhe  $H_{Bett}$  mit der bekannten Höhe des Austrittswehres  $H_{Wehr,out}$  substituiert werden.

Zum Zweck der Bettmassenkorrelation wurden neben den Verweilzeitversuchen mit Tracerpartikeln auch Experimente zur alleinigen Bestimmung der Bettmasse durchgeführt. Hierfür wurden Betriebsparameter eingestellt und der Prozess angefahren. Nach Erreichen des stationären Zustands wurde der Prozess gestoppt und die Bettmasse gewogen. Diese zusätzliche Versuchsreihe wurde durchgeführt, um mögliche Schwankungen in der Bettmasse während des Prozesses auszugleichen und somit einen realen Trend für die Bettmasse aufzudecken. Des Weiteren kann auf Grund der kurzen Prozesszeit eine Großzahl an Parametern variiert werden. Die experimentellen Ergebnisse hierzu sind in Tabellen A.8 bis A.10 im Anhang aufgeführt sowie in Abbildung D.2 dargestellt und liefern eindeutige Zusammenhänge für die verschiedenen Prozessparameter.

Darüber hinaus wurden auch Daten aus der Literatur von Reay (1978), Nilsson (1986) sowie Khanali u. a. (2012) herangezogen und der Vergleich zwischen der bisher gängigen Bestimmung der Bettmasse sowie einer neuen Korrelation angestellt.

Um die allgemeine Gleichung 3.48 für die Bettmasse mit der tatsächlich bekannten Austrittswehrrhöhe zu nutzen, wurde die Formel für die Bettporosität angepasst. Die entsprechende

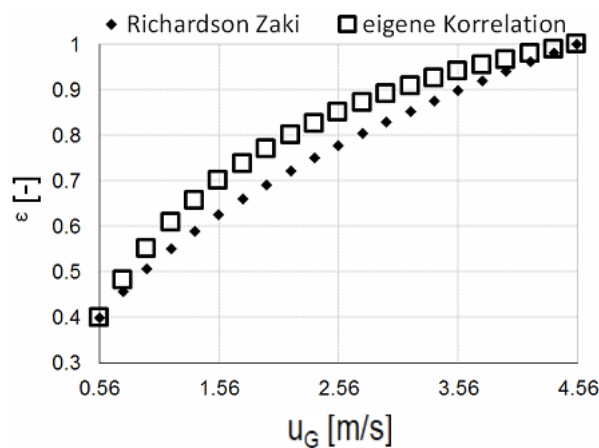


Abbildung 3.16: Bettporosität über die Gasgeschwindigkeit für den Fall von  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikeln ( $d_p = 1,8$  mm) nach Richardson und Zaki  $\blacklozenge$  sowie nach der eigenen Korrelation  $\square$  (siehe Gleichungen 3.49 und 3.50). Die Geschwindigkeit im Zustand minimaler Fluidisation beträgt 0,56 m/s, die Austragsgeschwindigkeit 4,56 m/s.

Gleichung für die Berechnung der scheinbaren Bettporosität

$$1 - \varepsilon_{app} = \left(1 - \frac{2,7 \cdot K}{1 + 1,7 \cdot K}\right) \cdot (1 - \varepsilon_{mf}) \quad (3.49)$$

mit

$$K = \frac{u_G - u_{mf}}{u_{elu} - u_{mf}} \quad (3.50)$$

für den in Abbildung 3.16 dargestellten Verlauf der Porosität ( $\square$ ) benötigt neben der Gasgeschwindigkeit  $u_G$  auch die Gasgeschwindigkeit im Zustand minimaler Fluidisation  $u_{mf}$  sowie die Austragsgeschwindigkeit  $u_{elu}$ .

Der Verlauf der Porosität nach Richardson und Zaki  $\blacklozenge$  (Gleichungen 3.29 und 3.30) über der Fluidisationsgasgeschwindigkeit ist ebenfalls für das Beispiel von  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikel des Durchmessers 1,8 mm dargestellt. Die Gasgeschwindigkeiten im Zustand minimaler Fluidisation und im Austragszustand betragen nach Gleichungen 3.32 - 3.34 für die dargestellten Partikel 0,56 m/s bzw. 4,56 m/s.

Die Diagramme für die experimentell bestimmten Daten über den korrelierten Bettmassen, sowohl nach der eigenen Korrelation (Abbildung 3.17a) als auch nach der Korrelation von Richardson und Zaki (Abbildung 3.17b) zeigen einen linearen Verlauf und eine gute Übereinstimmung der experimentellen und korrelierten Daten. Die Darstellung dient dem Vergleich der allgemein gebräuchlichen Korrelation, bei welcher die Austragswehrrhöhe verwendet wurde. Hieraus ergeben sich ein Anstieg von 0,996 und ein Bestimmtheitsmaß von 0,931 für die eigene

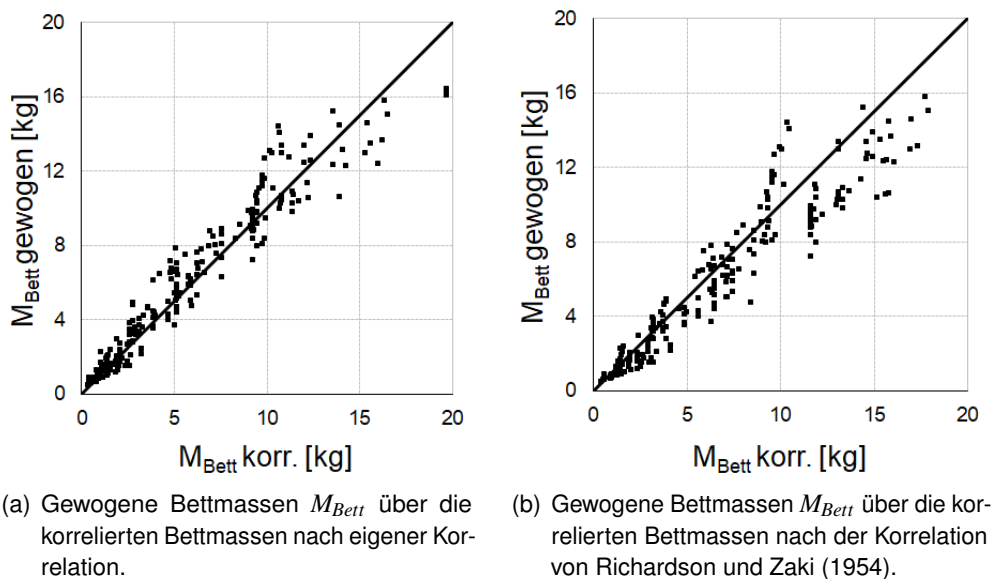


Abbildung 3.17: Paritätsdiagramme: Experimentell bestimmte Bettmassen über korrelierten Bettmassen mit Bettporosität (a) nach eigener Korrelation (Gleichungen 3.48, 3.49 und 3.50) und (b) nach Korrelation von Richardson und Zaki (Gleichungen 3.29 und 3.30).

Korrelation und ein Anstieg von 0,865 und Bestimmtheitsmaß von 0,905 für die Korrelation aus der Literatur nach Richardson und Zaki.

Es ist eine Abweichung der Steigung des Datensatzes von der Winkelhalbierenden in Abbildung 3.17b festzustellen, obwohl nicht die benötigte und unbekannte Höhe des fluidisierten Bettes  $H_{Bett}$ , sondern die Höhe des Austrittswehres  $H_{Wehr,out}$  genutzt wurde. Würde die Betthöhe  $H_{Bett} > H_{Wehr,out}$  genutzt, so würde eine geringere Steigung und somit eine Überbestimmung der korrelierten Werte auftreten. Auch das höhere Bestimmtheitsmaß  $R^2$  der Werte aus eigener Korrelation lässt auf eine bessere Übereinstimmung mit den experimentell bestimmten Bettmassen schließen.

Da in Abschnitt 3.3.2.3 aufgezeigt wurde, dass die internen Wehre einen Einfluss auf die Bettmasse ausüben können, sollte dieser Effekt in Zukunft berücksichtigt werden und mit in die Korrelation der Bettmasse integriert werden. Denkbar ist hierfür die Berechnung der Bettmasse für die einzelnen, durch Wehre abgegrenzten, Kammern in der Wirbelschichttrinne, sowie mit einem weiteren Widerstandsterm, wie er bereits für die Berechnung der Bodensteinzahlen mit internen Wehren angewendet wurde.

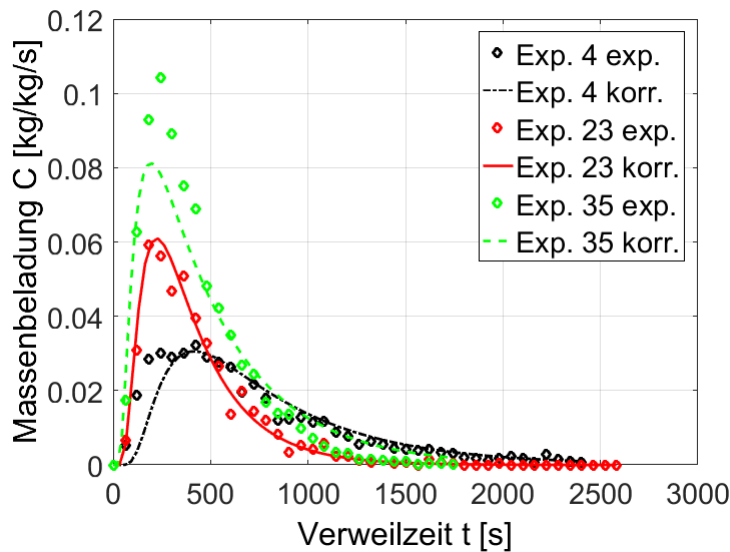


Abbildung 3.18: Gemessene und korrelierte Verweilzeitverteilungen. Dargestellt sind zwei Verteilungen, deren korrelierten Bodensteinzahlen aus allen Experimenten am weitesten von den gemessenen Bodensteinzahlen, sowohl negativ (grün: Experiment 35) als auch positiv (schwarz: Experiment 4) abweichen. Die dritte Verteilung in rot entspricht Experiment 23, dessen gemessene und korrelierte Bodensteinzahl sich gleichen.

### 3.4.4 Berechnung einer beliebigen Verweilzeitverteilung

Aus den Gleichungen 3.45 - 3.47 für die Korrelation der Bodensteinzahl sowie aus der Korrelation für die Bettmasse aus den Gleichungen 3.48 - 3.50 kann sowohl die mittlere Verweilzeit (Gleichung 3.8) als auch die mittlere Partikelgeschwindigkeit (Gleichung 3.7) bestimmt werden. Unter Verwendung der numerischen oder analytischen Lösung von Gleichung 3.18 kann nun eine Verweilzeitverteilung berechnet werden. In Abbildung 3.18 sind sowohl gemessene als auch aus den zuvor beschriebenen Gleichungen korrelierte Verweilzeitverteilungen dargestellt.

Um die Güte der Korrelationen optisch zu belegen, wurden hierfür Verteilungen gewählt, welche hinsichtlich ihrer Bodensteinzahlen sowohl maximal von den gemessenen Bodensteinzahlen (Versuchsnummern 4 und 35) abweichen als auch genau der gemessenen Bodensteinzahl (Versuchsnummer 23) entsprechen.

Das korrelierte Ergebnis stimmt gut mit den experimentell ermittelten Verweilzeitverteilungen überein. Selbst für die Verweilzeitverteilungen mit hoher Differenz aus experimenteller und korrelierter Bodensteinzahl ist eine relativ gute Übereinstimmung zu erkennen.

Da es sich bei den aufgestellten Korrelationen für die dimensionslose Bodensteinzahl, sowohl ohne Einbauten als auch mit internen äquidistanten Wehren, um empirische Gleichungen handelt, gelten diese im untersuchten Fluidisationsbereich blasenbildender Wirbelschichten

innerhalb gewisser Grenzen.

Beispielsweise ergeben sich höhere Bodensteinzahlen für die Korrelation ohne Wehre als für die Korrelation mit Unterlaufwehren für besonders kleine Austrittswehrhöhen. Jedoch stellt sich die Frage, ob eine solche Anordnung vernünftig ist. Sollte dieser Fall eintreten, kann die zusätzliche Korrelation für den Einbau interner Wehre vernachlässigt und die Korrelation für die Bodensteinzahl ohne Wehre (Gleichung 3.45) verwendet werden.

Bei der Wahl der Parameter sollte darauf geachtet werden, dass diese in einem sinnvollen Bereich liegen. Es ist beispielsweise nicht zweckmäßig diese so zu wählen, dass die Gasgeschwindigkeit die Austrags- bzw. Minimalfluidisationsgeschwindigkeit über- bzw. unterschreitet.

Erfolgt eine Wahl der Parameter nach den genannten Randbedingungen, so sollte nach der Klassifizierung von Geldart (1973) in Abbildung 1.1, die Korrelation für Partikel der Gruppe B und D sowie teilweise der Gruppe A eine zufriedenstellende Lösung ergeben. Auf Grund ihrer schlechten Eigenschaften hinsichtlich der Fluidisierung können die Gleichungen voraussichtlich nicht für Partikel der Gruppe C angewendet werden, was jedoch nicht untersucht wurde.

## 4 Trocknung in Wirbelschichttrinnen

In diesem Kapitel wird das Trocknungsverhalten partikulärer Schüttgüter in der Wirbelschichttrinne untersucht. Zunächst wird eine Versuchsreihe zur Trocknung durchgeführt, welche daraufhin simuliert wird. Hierfür finden die Korrelationen zur Verweilzeitverteilung aus Kapitel 3 in der Modellbildung Anwendung. Im Anschluss werden die simulierten Daten den Messergebnissen gegenübergestellt und bewertet.

### 4.1 Durchführung von Trocknungsexperimenten

Um das Trocknungsverhalten partikulärer Güter in der Wirbelschichttrinne zu untersuchen, muss das Versuchsmaterial zunächst vorbereitet werden. Die für ein Experiment benötigte Masse an  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikeln des Durchmessers 1,8 mm wurden in einem Fass (80 l) vollkommen mit Wasser bedeckt, worin diese 12 h über Nacht verweilten. Auf diese Weise soll gewährleistet werden, dass sämtliche Poren der Partikel mit Wasser gesättigt sind. Das überschüssige, nicht in den Poren befindliche Wasser läuft durch einen Siebdeckel auf dem Fass in den anschließenden 24 Stunden ab. Zusätzlich wurde eine Partikelprobe entnommen, um anschließend die Partikelfeuchteverteilung des Ausgangsmaterials zu bestimmen.

Um während eines Experimentes sowohl das Trocknungsverhalten als auch das Verweilzeitverhalten zu untersuchen, wurden 500 g der unbehandelten, weißen Partikel eingefärbt, wie in Abschnitt 3.1 zur Untersuchung des Verweilzeitverhaltens bereits geschildert wurde. Diese wurden im Anschluss als feuchte Tracerpartikel verwendet, um die Verweilzeitverteilung während der Trocknungsexperimente zu bestimmen.

Zu Beginn der Experimente in der Technikumsanlage (Glatt GF/Procell 20) wurden die Betriebsparameter (siehe Tabelle 4.1) eingestellt und die Anlage gestartet.

Die Gaseintrittstemperatur wurde hierbei variiert, sowie der Partikelmassenstrom und die Austrittswehrrhöhe. Auch der Effekt des Einbaus interner Wehre auf das Trocknungsverhalten wurde untersucht.

Nachdem die Anlage aufgeheizt wurde und sich die Betriebsparameter konstant einstellten, wurde die Feststoffzufuhr gestartet. Nach Erreichen eines konstanten Partikelmassenstroms und somit des stationären Prozesszustandes, wurden die feuchten Tracerpartikel über eine



Tabelle 4.1: Betriebsparameter zu den durchgeführten Trocknungsversuchen. Der Luftvolumenstrom von  $1400 \text{ m}^3/\text{h}$  ist für die gesamte Versuchsreihe konstant und gleicht einer Gasgeschwindigkeit von  $1,94 \text{ m/s}$ .

Einheit	Parameter	Symbol	Exp.	Exp.	Exp.	Exp.	Exp.	Exp.	Exp.	Exp.	Exp.	
			1	2	3	4	5	6	7	8	9	
°C	Gastemperatur	$\vartheta_{G,in}$	120	90	90	90	90	90	90	90	75	55
mm	Austrittswehrhöhe	$H_{Wehr,out}$	175	175	35	95	35	35	95	95	95	95
kg	Produktmasse	$M_{Produkt}$	16,6	22,7	17,2	26,4	24,1	14,1	23,0	29,9	31,6	31,6
kg	Bettmasse	$M_{Bett}$	9,1	8,9	1,2	3,7	1,8	1,6	4,8	4,8	6,4	6,4
-	Anzahl Zwischenwehre	$N_{Wehr}$	-	-	-	-	3	3	3	3	3	3
kg /min	Partikelmassenstrom trocken	$\dot{M}_{P,dry}$	0,6	0,9	1,0	0,8	1,1	0,9	1,1	1	1,0	1,0
mm	Höhe Unterlaufspalt	$H_{Spalt}$	-	-	-	-	6	12	6	6	6	6

Schleuse am Partikeleintritt zugegeben, die erste Probe für 5 Sekunden entnommen und anschließend im 1-minütigen Takt wiederholt. Nun wurde äquivalent zu Abschnitt 3.1 verfahren, wobei zum Ende eines jeden Experimentes eine zusätzliche Probe entnommen wurde, um diese im Anschluss auf ihre Partikelfeuchteverteilung zu untersuchen.

## 4.2 Theoretische Grundlagen der Wirbelschichttrocknung

Um die Experimente auswerten zu können, werden zunächst die theoretischen Grundlagen geklärt. Bei der Trocknung handelt es sich im Allgemeinen um das Entfernen von Flüssigkeiten aus Feststoffen, wobei der Trocknungsverlauf von den Betriebsparametern, wie Luftmassenstrom oder -temperatur, und Materialeigenschaften, wie etwa Porosität oder Hygroskopizität abhängt. Ein typischer zeitlicher Verlauf ist in Abbildung 4.1 dargestellt.

Im ersten Trocknungsabschnitt (1. TA) sinkt die Gutsbeladung linear, da die Partikel auf ihrer Oberfläche mit Flüssigkeit benetzt sind und die Verdampfung von der Aufnahmekapazität der Luft limitiert ist (gasseitige Limitierung). Wenn ausreichend Flüssigkeit von der Oberfläche entfernt ist, sodass sich dort keine Luftsättigung mehr einstellt, ist die kritische Gutsbeladung  $X_{kr}$  erreicht. Anschließend beginnt der 2. TA, in welchem nun die Flüssigkeit aus dem Partikelinneren abgegeben wird. Aufgrund des hierbei notwendigen Transports durch Diffusion von verdampfter Flüssigkeit aus dem Partikelinneren an die Oberfläche erfolgt eine zusätzliche Limitierung (partikelseitige Limitierung).

Eine weitere graphische Darstellung des Trocknungsprozesses ist in Abbildung 4.2 zu sehen. In dieser ist der Verdampfungsmassenstrom  $\dot{M}_{vap}$  über die Partikelbeladung  $X$  dargestellt. Die

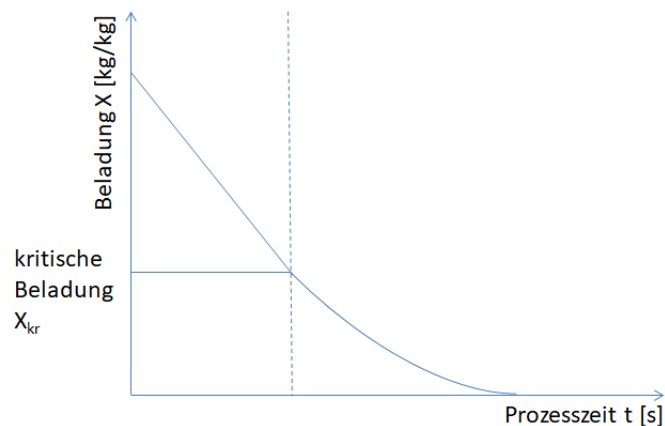


Abbildung 4.1: Skizze eines typischen zeitlichen Trocknungsverlaufs mit erstem und zweitem Trocknungsabschnitt, welche an der Stelle der kritischen Beladung ineinander übergehen.

zuvor beschriebenen Trocknungsabschnitte sind auch hier anhand des konstanten Levels im 1. TA und des abfallenden Verlaufs in 2. TA erkennbar. Bei stark hygroskopischen Gütern kann sich zudem ein 3. TA ausbilden.

Die Änderung der Zustände feuchter Luft wird mit einem Mollier-Diagramm (siehe Abbildung 4.3) beschrieben, wodurch Prozesse wie Kühlung und Erwärmung, Be- und Entfeuchtung sowie das Mischen von Luftmengen graphisch veranschaulicht werden können.

### 4.3 Bestimmung der Einzelpartikelfeuchte

Zur Bestimmung der Verteilung von Einzelpartikelfeuchten in einer Schüttung ist es notwendig, eine relativ hohe Anzahl von Einzelpartikeln auf ihre Feuchte zu untersuchen. Hierfür wurden in der Arbeit von Cunäus (2011) zwei Verfahren miteinander gekoppelt. Mit der Magnetresonanzspektroskopie (Abschnitt 2.3.2) wurden 100 Partikel vermessen, um den jeweiligen absoluten Wassergehalt direkt zu bestimmen. Diese 100 Partikel wurden daraufhin mit dem präzisen aber zeitintensiven Verfahren der Coulometrie (Abschnitt 2.3.1) erneut vermessen. Das ausgegebene NMR-Signal wurde an die coulometrisch bestimmte, absolute Wassermasse gekoppelt (siehe Abschnitt 2.3.2.1). Die so ermittelte Korrelation zwischen der absoluten Wassermasse

$$M_W = 0,042 \cdot NMR_{Signal} - 0,286 \quad (4.1)$$

in  $[\mu\text{g}]$  und dem  $NMR_{Signal}$  ermöglicht eine schnelle Vermessung (30 Sekunden pro Partikel) einer hohen Partikelanzahl. Um die gewünschte Einzelpartikelfeuchte zu berechnen, wurden alle feuchten Probepartikel anschließend mit der Halbmikrowaage "SECURA225D-1S" (Firma

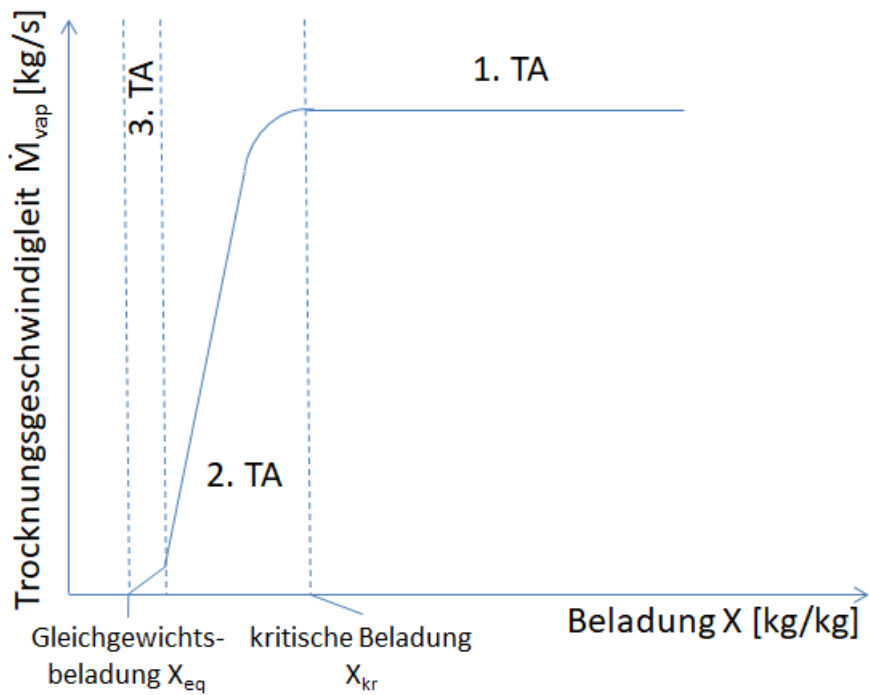


Abbildung 4.2: Skizze des Verlaufs des Verdampfungswassermassenstrom über die Gutsbeladung.

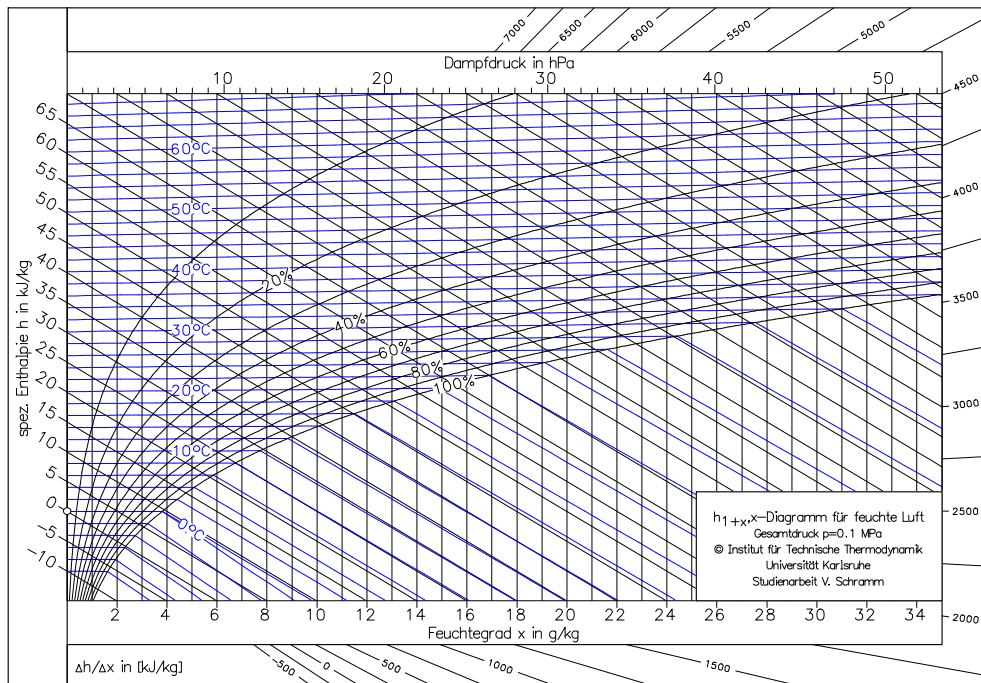


Abbildung 4.3: Mollier-Diagramm zur Darstellung von Zustandsänderungen feuchter Luft. (Quelle: Institut für Technische Thermodynamik (KIT))

Sartorius AG) gewogen und ihre feuchte Partikelmasse  $M_{P,wet}$  bestimmt. Mit Hilfe der Gleichung

$$X = \frac{M_W}{M_{P,wet} - M_W} \quad (4.2)$$

lässt sich nun auf die tatsächliche Einzelpartikelfeuchte  $X$  schließen. Die jeweilige absolute Partikelanzahl, aufgetragen über die Partikelfeuchte, ergibt abschließend die Verteilung der Partikelfeuchte über die Population.

## 4.4 Experimentelle Parametervariation und Diskussion

In diesem Abschnitt werden die durchgeführten Experimente ausgewertet und die Abhängigkeit der Partikelfeuchteverteilung von den Betriebsparametern aufgezeigt.

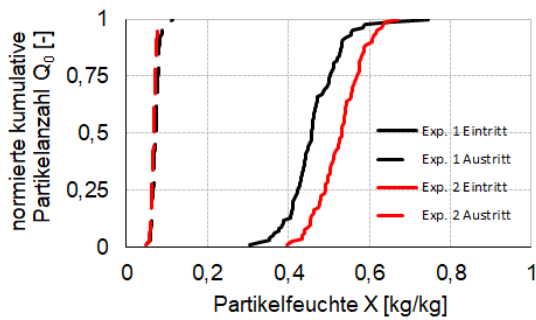
### 4.4.1 Einfluss der Betriebstemperatur

Um den Einfluss der Betriebstemperatur auf den Trocknungsverlauf partikulärer Güter in der Wirbelschichttrinne zu untersuchen, wurden zwei Experimente mit unterschiedlichen Eintrittsgastemperaturen durchgeführt. Weitere Betriebsparameter, wie Luftvolumenstrom und Austrittswehrlänge wurden hierbei konstant gehalten. Die Betriebsparameter zur Trocknungsuntersuchung können Tabelle 4.1 entnommen werden.

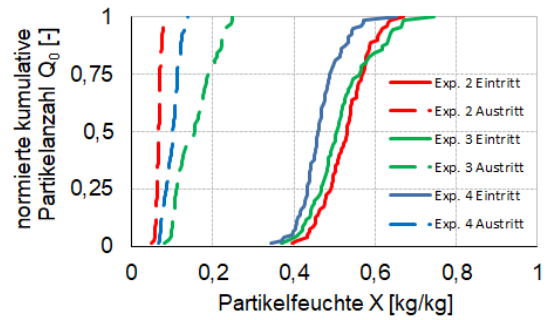
Abbildung 4.4(a) zeigt die graphische Darstellung der experimentellen Ergebnisse für diese Variation. Es ist zu sehen, dass sich beide Kurven in Richtung geringerer Feuchten verschieben. Obwohl die Ausgangsverteilungen der beiden Experimente 1 und 2 voneinander abweichen, decken sich die beiden Feuchteverteilungen am Austritt. Bei unterschiedlicher Eintrittsverteilung und Betriebstemperatur wird somit ein ähnliches Resultat erzielt. Die Trocknung ist für nahezu alle Partikel vollständig abgeschlossen und beide Austrittsverteilungen befinden sich im Bereich der Gleichgewichtsfeuchte  $X_{eq}$ . Der Grund hierfür ist die hohe Verweilzeit der Partikel im System, welche durch die Wahl eines zu hohen Austrittswehres bedingt ist. Ein aussagekräftiger Effekt ist hieraus allein nicht abzulesen.

### 4.4.2 Einfluss der Austrittswehrlänge

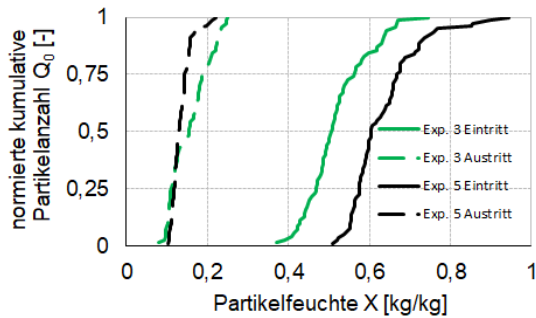
Es soll der Einfluss der Austrittswehrlänge auf das Trocknungsverhalten der Partikel untersucht werden. Hierfür wurden drei verschiedene Wehrlängen (Exp. 3 = 35 mm, Exp. 4 = 95 mm und Exp. 2 = 175 mm) gewählt, wobei wiederum alle weiteren Betriebsparameter konstant gehalten wurden. In Abbildung 4.4(b) sind die Feuchteverteilungen der drei Experimente sowohl am Ein- als auch am Austritt dargestellt. Obwohl die Eintrittsverteilungen voneinander abweichen,



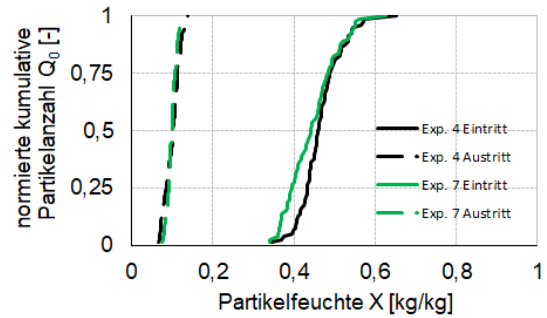
(a) Einfluss der Betriebstemperatur.



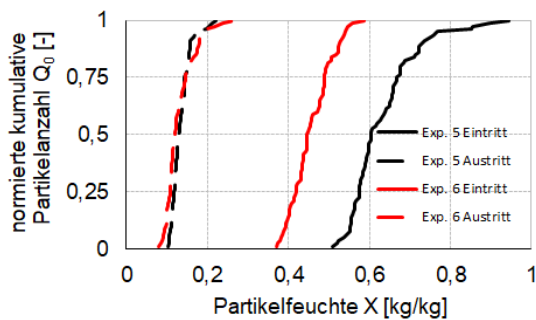
(b) Einfluss der Austrittsweirhöhe.



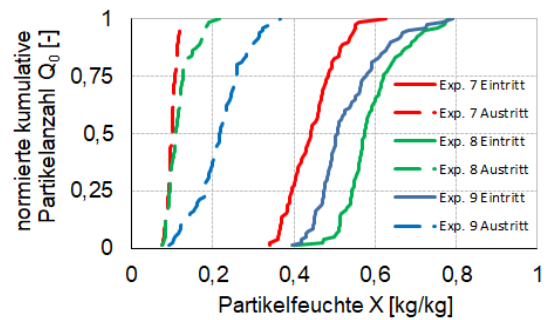
(c) Einfluss interner Einbauten 1.



(d) Einfluss interner Einbauten 2.



(e) Einfluss der Unterlaufspalthöhe.



(f) Einfluss der Betriebstemperatur mit Einbauten.

Abbildung 4.4: Experimentelle Daten für die Feuchteverteilung in der Wirbelschichttrinne am Eintritt (—) sowie am Austritt (- -) in Abhängigkeit von verschiedenen Betriebsparametern.

ist der Unterschied im Trocknungsverlauf klar zu erkennen. Die grüne Eintrittsverteilung aus Experiment 3 mit der geringsten Austrittswehrhöhe  $H_{Wehr,out}$  weist die geringste Verschiebung in Richtung kleiner Feuchte auf, was auf Grund der geringsten Verweilzeit zu erwarten ist. Daran schließen sich die Ergebnisse aus Experiment 4 mit einer Austrittswehrhöhe von 95 mm und aus Experiment 2 mit 175 mm an.

#### 4.4.3 Einfluss interner Einbauten

Der Einbau interner Wehre sorgt für einen Einfluss auf die Verweilzeitverteilung, welche sich wiederum auf das Trocknungsverhalten auswirkt. Daher wurden vier weitere Experimente durchgeführt, um diesen Einfluss zu beleuchten. Zunächst wurde bei einer Austrittswehrhöhe von 35 mm und mit drei äquidistanten Wehren (Exp. 5) der Vergleich zur Trocknung ohne interne Einbauten (Exp. 3) angestellt. Die Ergebnisse in Abbildung 4.4(c) zeigen eine größere Varianz der generierten Austrittsverteilung des Experimentes ohne interne Wehre, was Tabelle A.11 in Anhang A ebenfalls zu entnehmen ist.

Der gleiche Effekt wurde beim Vergleich von Experiment 4 ( $H_{Wehr,out} = 95$  mm ohne Einbauten) und Experiment 7 ( $H_{Wehr,out} = 95$  mm mit drei internen Wehren) festgestellt. Obwohl die Varianz in der Eintrittsverteilung bei Experiment 7 höher ist als bei Experiment 4, verhält es sich bei den Austrittsverteilungen umgekehrt.

#### 4.4.4 Einfluss der Höhe des Unterlaufspaltes

Neben dem Einbau von internen Wehren lässt sich die Verweilzeitverteilung auch durch die Höhe des Unterlaufspaltes der Wehre beeinflussen, wodurch wiederum Einfluss auf das Partikel-trocknungsverhalten genommen werden kann. Hierfür wurden zwei Experimente mit jeweils drei internen Unterlaufwehren mit unterschiedlichen Spalthöhen (Exp. 5: 6 mm, Exp. 6: 12 mm) durchgeführt. Wie zuvor wurden alle weiteren Betriebsparameter konstant gehalten. Abbildung 4.4(e) zeigt die Ein- und Austrittsverteilungen beider Experimente. Die Varianz der Eintrittsverteilung von Experiment 5 mit einer Wehrhöhe von 6 mm ist höher als die von Experiment 6 (siehe Tabelle A.11 im Anhang). Die Austrittsverteilungen weisen wiederum den umgekehrten Effekt auf, was auf eine engere Verweilzeitverteilung bei einer geringeren Unterlaufspalthöhe zurückzuführen ist.

#### 4.4.5 Einfluss der Betriebstemperatur mit internen Einbauten

Da der Einfluss der Betriebstemperatur in Abschnitt 4.4.1 kaum sichtbar geworden ist, soll diese erneut untersucht werden. Zusätzlich werden in den Experimenten 7 bis 9 jeweils drei interne Unterlaufwehre eingebaut mit einer Spalthöhe von jeweils 6 mm.

In Abbildung 4.4(f) ist der Einfluss der unterschiedlichen Gaseintrittstemperatur trotz abweichender Eintrittsfeuchteverteilung klar zu sehen. Die Reihenfolge der Verteilungen der Austrittsfeuchte beginnt mit Experiment 7 mit der höchsten Gaseintrittstemperatur  $\vartheta_{G,in}$  von 95 °C und liegt bei der geringsten Feuchte. Auf diese folgen die Austrittsverteilungen von Experiment 8 ( $\vartheta_{G,in} = 75$  °C) und Experiment 9 ( $\vartheta_{G,in} = 55$  °C) jeweils nach rechts in Richtung höherer Partikelfeuchte verschoben.

### 4.5 Modellierung der Trocknungsversuche

Um das Trocknungsverhalten von partikulären Produkten in Wirbelschichttrinnen vorhersagen zu können, wurde ein auf Populationsbilanzen basierendes, eindimensionales Modell von Peglow u. a. (2011) und Cunäus (2011) erweitert und an die Anforderungen eines kontinuierlichen Prozesses in der Wirbelschichtrinne angepasst. Hierbei handelt es sich um ein Zwei-Zonen-Modell, welches die Gasphase in Suspensionsgas und Bypassgas aufteilt. Der Annahme nach tritt lediglich das Suspensionsgas mit der ideal durchmischten dispersen Feststoffphase in Kontakt, wodurch es zu Wärme- und Stoffaustausch kommt. Der Bypassgasphase ist es nicht möglich in Wärme- und Stoffaustausch mit der partikulären Phase zu treten, jedoch mit dem Suspensionsgas. Beiden Gasphasen ist darüber hinaus der Wärmeaustausch mit den Systemgrenzen, der Reaktorwand, möglich.

Folgende Modellannahmen werden getroffen:

1. Ideale Kolbenströmung des Bypass- und Suspensionsgases. Nutzung der scheinbaren Sherwoodzahl  $Sh_{app}$  (berechnet aus der realen Sherwoodzahl  $Sh$  nach Gnielinski → Effekt der Rückvermischung in der Kinetik enthalten).
2. Ideale Durchmischung der Partikel im Suspensionsgas.
3. Einzelpartikelbasierte Trocknungskinetik unter Berücksichtigung des partikelseitigen Stofftransports.
4. Wärmeübergang zwischen allen Phasen außer zwischen Partikeln und Bypassgasphase.
5. Kein Stoffübergang von Partikel zu Partikel.
6. Homogene Partikeleigenschaften am Eintritt unter Vernachlässigung von inneren Partikeleigenschaften wie Partikeltemperatur oder -feuchtebeladung  $X_{in}$ .
7. Monodisperse Partikelgrößenverteilung.
8. Räumlich konstante Temperatur der Apparatewand: Wärmeleitung ermöglicht einen Temperaturengleich innerhalb der Apparatewand trotz der variierenden Wärmeströme  $\dot{Q}_{sWand}$  und  $\dot{Q}_{bWand}$ , hervorgerufen durch einen Gastemperaturgradienten in Strömungsrichtung.

In Abbildung 4.5 sind alle Ströme in und aus dem System bzw. innerhalb des Systems skizziert.





in [1/s] für die Dichtefunktion der Partikelanzahl  $N$ , die Wassermassendichte

$$m_W(\tau) = \frac{dM_W}{d\tau} \quad (4.7)$$

in [kg/s] für die Dichtefunktion der Wassermasse  $M_W$  und die Enthalpiedichte

$$h_P(\tau) = \frac{dH_P}{d\tau} \quad (4.8)$$

in [J/s] für die Dichtefunktion der Partikelenthalpie  $H_P$  steht. Der in den Gleichungen 4.3 - 4.5 enthaltene konvektive Anteil

$$G_\tau = \frac{d\tau}{dt} = 1 \quad (4.9)$$

entspricht der Alterungsrate der Partikel. Da mit jedem vergangenen Zeitschritt der Prozesszeit  $t$  der gleiche Zeitschritt in der Verweilzeit  $\tau$  vergeht, muss das Verhältnis der Änderung beider Variablen 1 ergeben.

Nach Modellannahme 6 treten alle Partikel mit den gleichen Anfangseigenschaften, wie Feuchtebeladung, in das System ein. Die Partikelfeuchtebeladung kann somit zu jedem beliebigen Zeitpunkt aus dem Verhältnis von Wassermasse im Partikel zu trockener Partikelmasse berechnet werden.

Der Partikelanzahlstrom

$$\dot{N}_{out,CSTR} = E_{CSTR} \cdot \frac{\dot{M}_{P,out,CSTR}}{M_P} \quad (4.10)$$

für einen ideal durchmischten Rührkessel (CSTR) wird mit der normierten Massenbeladung  $E_{CSTR}$  nach den Gleichungen 1.3 und 1.2 am Partikelaustritt berechnet. Diese gleicht für einen CSTR der normierten Verweilzeitverteilung der Partikel innerhalb des Systems.

Im vorliegenden Fall einer Wirbelschichttrinne und der sich hieraus ergebenden Verweilzeitverteilung kann die Größe mit der entsprechenden normierten Massenbeladung  $E_{RTD}$  aus Abschnitt 3.4.4 mit

$$\dot{N}_{out,RTD} = E_{RTD} \cdot \frac{\dot{M}_{P,out,RTD}}{M_P}, \quad (4.11)$$

berechnet werden. Hierbei wird der Partikelmassenstrom nach Burgschweiger und Tsotsas

(2002) am Austritt der Wirbelschichttrinne

$$\begin{aligned} \dot{M}_{P,out,RTD} &= 0 & \text{für} & \quad \kappa H_{Bett} \leq H_{Wehr,out} \\ \dot{M}_{P,out,RTD} &= \zeta A_{Wehr,out} (1 - \varepsilon) \rho_P \sqrt{2g(\kappa H_{Bett} - H_{Wehr,out})} & & (4.12) \\ & & \text{für} & \quad \kappa H_{Bett} \geq H_{Wehr,out} \end{aligned}$$

verwendet, multipliziert mit der normierten Massenbelastung  $E_{RTD}$  und durch die Partikelmasse  $M_P$  geteilt, um die Gesamtanzahl an Partikeln des Stroms am Austritt zu erhalten. Im stationären Zustand gleicht  $\dot{N}_{out}$  somit  $\dot{N}_{in}$ , wodurch eine Akkumulation von Partikeln im System vermieden wird. Da der Partikelmassenstrom  $\dot{M}_{P,out,RTD}$  aus der vorgegebenen Verweilzeit hervorgeht, gilt

$$\dot{M}_{P,out,RTD} = \dot{M}_{P,in} \quad (4.13)$$

für den stationären Zustand. In der dynamischen Anfangsphase gibt die Partikelmassenverteilung bezogen auf die Verweilzeit im System sowie die Verweilzeitverteilung am Austritt den Partikelmassenstrom vor.

Äquivalent wird für den Wassermassenstrom

$$\dot{M}_{W,out} = E_{RTD} \cdot X_{out} \cdot \dot{M}_{P,out} \quad (4.14)$$

und den Enthalpiestrom

$$\dot{H}_{P,out} = E_{RTD} \cdot \dot{M}_{P,out} (c_P + X_{out} c_W) T_{P,out} \quad (4.15)$$

am Austritt der Wirbelschichttrinne vorgegangen.

Durch das Koppeln der normierten Massenbelastung  $E_{RTD}$  aus der korrelierten Bodensteinzahl (Gleichung 3.45, 3.46 oder 3.47) und Bettmasse (Gleichung 3.48 - 3.50) bzw. mittleren Partikelgeschwindigkeit (Gleichungen 3.7 und 3.8) sowie der Lösung der Dispersions-Konvektions-Gleichung 3.18, mit dem beschriebenen Trocknungsmodell, lässt sich das Trocknungsproblem partikulärer Stoffe sowohl im dynamischen als auch im stationären Zustand numerisch für eine beliebige Wirbelschichttrinne lösen.

Hierfür wurden die partiellen Differentialgleichungen 4.3 - 4.5 diskretisiert, (siehe Anhang B) und in ein System gewöhnlicher Differentialgleichungen überführt, welches anschließend mit Hilfe der Software MATLAB und der integrierten Funktion ode15s gelöst wurde.

### 4.5.2 Bilanzierung der Gasphase

Wie zuvor geschildert und in Abbildung 4.5 dargestellt, handelt es sich bei dem vorliegenden Modell um ein Zwei-Zonen-Modell. In diesem wird die Gasphase in eine Suspensionsgasphase  $(1 - \nu)$ , welche in Wärme- und Stoffaustausch mit der dispersen Partikelphase steht, und eine Bypassgasphase  $(\nu)$ , welche keinen Partikelkontakt erfährt, geteilt.

Unter Berücksichtigung der ersten Modellannahme wird die Höhenkoordinate  $z$  eingeführt, anhand welcher die Änderung der Eigenschaften der Gasphase in vertikaler Strömungsrichtung beschrieben werden soll. Hieraus ergeben sich die dynamischen Bilanzgleichungen der Wassermassenänderung für die Berechnung der Suspensionsgasbeladung  $Y_s$  mit

$$(1 - \nu) \frac{dM_G \partial Y_s}{dz \partial t} = -(1 - \nu) \dot{M}_G \frac{\partial Y_s}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} (\dot{M}_{Ps} - \dot{M}_{sb}), \quad (4.16)$$

und für die Enthalpiedichte  $h_s$  entsprechend mit

$$(1 - \nu) \frac{dM_G \partial h_s}{dz \partial t} = -(1 - \nu) \dot{M}_G \frac{\partial h_s}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} (\dot{H}_{Ps} - \dot{H}_{sb} - \dot{Q}_{sP} + \dot{Q}_{bs} - \dot{Q}_{sWand}), \quad (4.17)$$

in der Suspensionsgasphase. In der Bypassgasphase gilt analog

$$\nu \frac{dM_G \partial Y_b}{dz \partial t} = -\nu \dot{M}_G \frac{\partial Y_b}{\partial z} + \frac{\partial \dot{M}_{sb}}{\partial z} \quad (4.18)$$

und

$$\nu \frac{dM_G \partial h_b}{dz \partial t} = -\nu \dot{M}_G \frac{\partial h_b}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} (\dot{H}_{sb} - \dot{Q}_{bs} - \dot{Q}_{bWand}). \quad (4.19)$$

Die spezifische Enthalpie  $h$  ergibt sich aus der Gastemperatur  $T_G$  sowie der jeweiligen Gasbeladung  $Y$  und lässt sich für die Suspensionsgasphase mit

$$h_s = c_G T_s + Y_s (c_{w,G} T_s + \Delta h_{vap}) \quad (4.20)$$

und für die Bypassgasphase mit

$$h_b = c_G T_b + Y_b (c_{w,G} T_b + \Delta h_{vap}) \quad (4.21)$$

berechnen.

### 4.5.3 Bilanzierung der Apparatewand

Unter Beachtung von Annahme 8 lässt sich die zeitliche Änderung der Temperatur der Apparatewand mit

$$c_{Wand}M_{Wand}\frac{dT_{Wand}}{dt} = \dot{Q}_{PWand} + \dot{Q}_{sWand} + \dot{Q}_{bWand} - \dot{Q}_{Wande}, \quad (4.22)$$

beschreiben, wobei sich die spezifische Enthalpie der Wand aus

$$h_{Wand} = c_{Wand}T_{Wand} \quad (4.23)$$

ergibt.

Die in Abbildung 4.5 aufgeführten Wärme- und Stoffströme sind im Folgenden definiert.

### 4.5.4 Stoff- und Wärmeübergang zwischen Suspensionsgas und Partikeln

Die für den Prozess bedeutendsten Stoff- und Wärmeübergänge bei der Trocknung sind zwischen dem zu trocknenden Gut und dem durchströmenden Gas zu finden, was im vorliegenden Fall den Partikeln und dem Suspensionsgas entspricht. Aus den Modellannahmen 1 und 2 ergeben sich für die Bilanzierung Differentialgleichungen zweiter Ordnung. Die Gleichungen beschreiben den Transport des Wasserdampfes zwischen Partikeln und Suspensionsphase

$$\frac{\partial^2 \dot{M}_{Ps}}{\partial \tau \partial z} = \rho_G \beta_G \frac{\partial^2 A_{Ps}}{\partial \tau \partial z} [Y_{eq}(X(\tau), T_p(z)) - Y(z)] \dot{v}(\eta) \quad (4.24)$$

unter Berücksichtigung der normierten Trocknungskurve  $\dot{v}(\eta)$  in Abhängigkeit von der normierten Feuchtebelastung  $\eta$ , den Wärmeübergang an der Phasengrenze

$$\frac{\partial^2 \dot{Q}_{sP}}{\partial \tau \partial z} = \alpha_G \frac{\partial^2 A_{Ps}}{\partial \tau \partial z} [T_s(z) - T_p(\tau)], \quad (4.25)$$

sowie die Änderung der Enthalpie im Partikel bzw. der Suspensionsphase

$$\frac{\partial^2 \dot{H}_{Ps}}{\partial \tau \partial z} = \frac{\partial^2 M_{Ps}}{\partial \tau \partial z} [c_{W,G}T_p(\tau) - \Delta h_{vap}(T_p)], \quad (4.26)$$

über den Koordinaten der Höhe  $z$  sowie der Verweilzeit  $\tau$ . Die Übertragungsfläche  $A_{Ps}$ , welche der gesamten Partikeloberfläche entspricht, ist hierbei abhängig von der Partikelanzahl  $N_P$  und

Tabelle 4.2: Experimentell bestimmte Gleichgewichtsbeladung  $X_{eq}$  und relative Luftfeuchte  $\Phi$  aus Messungen mit der Magnetschwebewaage nach Burgschweiger und Tsotsas (2000) bei 36 °C.

$\Phi$	0	0,05	0,1	0,65	0,75	0,805	0,93	1
$X_{eq}$	0	0,027	0,04	0,09	0,12	0,2	0,67	0,8

ergibt sich aus

$$\frac{\partial^2 A_{Ps}}{\partial \tau \partial z} = \pi d_P^2 \frac{\partial^2 N_P}{\partial \tau \partial z}, \quad (4.27)$$

abhängig von der Verweilzeit-  $\tau$  sowie der Höhenkoordinate  $z$ .

Die Triebkraft für den Stoffübergang ergibt sich aus der Differenz der Gleichgewichtsbeladung des Gases  $Y_{eq}$  an der Grenzschicht der Partikeloberfläche und der Gasbeladung  $Y_s$ . Erstere wird mit

$$Y_{eq} = \frac{\tilde{M}_W}{\tilde{M}_G} \frac{p_{eq}}{p_e - p_{eq}} \quad (4.28)$$

berechnet, worin der Umgebungsdruck  $p_e$  und der durch die Partikelhygroskopizität verminderte Dampfdruck  $p_{eq}$  sowie die molaren Massen von Wasser  $\tilde{M}_W$  und Gas  $\tilde{M}_G$  eingehen. Dieser berechnet sich mit

$$p_{eq} = \Phi(X) p_{sat} \quad (4.29)$$

aus der relativen Luftfeuchte  $\Phi(X)$  und dem Sattedampfdruck  $p_{sat}$ . Letzterer wiederum ergibt sich aus der Antoine-Gleichung, welche in Gleichung C.1 in Anhang C wiedergegeben wird. Der Zusammenhang zwischen der Partikelbeladung  $X$  und der relativen Luftfeuchtigkeit  $\Phi$  wird durch die experimentell bestimmten Werte in Tabelle 4.2 nach Burgschweiger und Tsotsas (2000) ausgedrückt.

Die Funktion der normierten Trocknungskurve  $\dot{v}(\eta)$  beschreibt sowohl den Zeitpunkt des Übergangs aus dem 1. TA in den 2. TA als auch den Verlauf des 2. TA. Zuvor nimmt diese den Wert 1 und für den 2. TA Werte zwischen 1 und 0 an. Die normierte Feuchtebeladung

$$\eta = \frac{X - X_{eq}}{X_{kr} - X_{eq}} \quad (4.30)$$

ergibt sich aus der Gleichgewichtsbeladung  $X_{eq}$  und der experimentell bestimmten kritischen Partikelbeladung  $X_{kr}$ , am Übergang aus dem ersten in den zweiten Trocknungsabschnitt. Für

die kritischen Partikelbeladung wird der von Cunäus (2011) experimentell bestimmte Wert  $X_{kr} = 0,22$  kg/kg angenommen.

Nach Cunäus (2011) kann die normierte Trocknungskurve  $\dot{v}(\eta)$  in Näherung linear und direkt proportional zur dimensionslosen Beladung  $\eta$  mit  $\dot{v} = \eta$  berechnet werden.

Um die Gleichungen 4.24 - 4.26 lösen zu können, müssen abschließend die Wärme- und Stoffübergangskoeffizienten,  $\beta$  und  $\alpha$ , bestimmt werden.

Aus der scheinbaren Sherwoodzahl

$$Sh_{app} = ReSc \frac{A_{WSR}}{A_P} \ln \left[ 1 + \frac{Sh_{Ps} A_P}{ReSc A_{WSR}} \right] \quad (4.31)$$

nach Groenewold und Tsotsas (1997) für kugelförmige Partikel kann der Stoffübergangskoeffizient nach

$$\beta_{Ps} = \frac{Sh_{app,Ps} D_{W,G}}{d_P} \quad (4.32)$$

berechnet werden. Der Wärmeübergangskoeffizient

$$\alpha_{sP} = \frac{Nu_{app,sP} \lambda_G}{d_P} \quad (4.33)$$

wird aus der Analogie zwischen Stoff- und Wärmeübergang aus der Nusseltzahl

$$Nu_{app,sP} = \frac{Sh_{app,Ps}}{Le^{-1/3}} \quad (4.34)$$

und Lewiszahl

$$Le = \frac{\lambda_G}{c_G \rho_G D_{W,G}} \quad (4.35)$$

bestimmt, welche sich wiederum aus der Wärmeleitfähigkeit  $\lambda_G$  und dem Diffusionskoeffizienten  $D_{W,G}$  ergibt.

Die in Gleichung 4.31 benötigte Kennzahl für das Festbett

$$Sh_{Ps} = [1 + 1,5(1 - \varepsilon)] Sh_P \quad (4.36)$$

kann nach Gnielinski (1980) auch für den fluidisierten Zustand angewandt werden, wobei die Sherwoodzahl der umströmten Kugel ebenfalls nach Gnielinski (1975) mit

$$Sh_P = 2 + \sqrt{Sh_{lam} + Sh_{turb}}, \quad (4.37)$$

$$Sh_{lam} = 0,664Re^{1/2}Sc^{1/3} \quad (4.38)$$

und

$$Sh_{turb} = \frac{0,037ScRe^{0,8}}{1 + 2,443Re^{-0,1}(Sc^{2/3} - 1)} \quad (4.39)$$

berechnet wird.

#### 4.5.5 Stoff- und Wärmeübergang zwischen Suspensions- und Bypassgasphase

Da bei beiden Gasphasen von idealer Kolbenströmung ausgegangen wird, werden die Bilanzgleichungen für Stoff- und Wärmeübergang in Abhängigkeit von der Höhenkoordinate  $z$  wie folgt definiert:

$$\frac{\partial \dot{M}_{sb}}{\partial z} = \rho_G(z) \beta_{sb} A_{sb} [Y_s(z) - Y_b(z)] \quad (4.40)$$

$$\frac{\partial \dot{Q}_{bs}}{\partial z} = \rho_G(z) \alpha_{bs} A_{bs} [T_b(z) - T_s(z)] \quad (4.41)$$

$$\frac{\partial \dot{H}_{sb}}{\partial z} = \frac{\partial \dot{M}_{sb}}{\partial z} [c_{W,G} T_s(z) - \Delta h_v(T_s)] \quad (4.42)$$

Die beiden Übertragungsflächen  $A_{sb}$  und  $A_{bs}$  gleichen sich, sind jedoch unbekannt, weshalb die Bestimmung der Übergangskoeffizienten aus der Anzahl der Übertragungseinheiten NTU (NTU - number of transfer units) entsprechend

$$NTU_{sb} = \frac{\rho_g \beta_{sb} A_{sb}}{\dot{M}_G} \quad (4.43)$$

erfolgt.

Nach Groenewold und Tsotsas (1997) entspricht eine Betthöhe von 50 mm dem Wert  $NTU = 1$ . In linearer Abhängigkeit führt eine Verdoppelung der Betthöhe  $H_{Bet}$  zu einer Verdoppelung des NTU-Wertes.

Der Wärmeübergang wird mit

$$\alpha_{bs} \cdot A_{sb} = \frac{\rho_G}{c_G} \beta_{sb} \beta_{sb} Le^{2/3} \quad (4.44)$$

berechnet.

### 4.5.6 Wärmeübergang zwischen Gas und Apparatewand

Für die Wärmeübertragung auf die Apparatewand müssen beide Gasphasen separat voneinander betrachtet werden. Die Änderungen der Wärmeströme werden hierbei mit

$$\frac{d\dot{Q}_{sWand}}{dz} = \alpha_{GWand}(1-v)\frac{dA_{Wand}}{dz}(T_s(z) - T_{Wand}) \quad (4.45)$$

und

$$\frac{d\dot{Q}_{bWand}}{dz} = \alpha_{GWand}v\frac{dA_{Wand}}{dz}(T_b(z) - T_{Wand}) \quad (4.46)$$

beschrieben. Die Übertragungsflächen

$$A_{bWand} = vA_{Wand} \quad (4.47)$$

und

$$A_{sWand} = (1-v)A_{Wand} \quad (4.48)$$

lassen sich aus dem Verhältnis  $v$  und der Gesamtfläche der Apparatewand

$$A_{Wand} = L_{WSR}B_{WSR}H_{WSR} \quad (4.49)$$

berechnen.

Der Wärmeübergangskoeffizient

$$\begin{aligned} \alpha_{GWand} = \frac{\lambda_G}{d_p} &= 0,009Pr^{1/3}Ar^{1/2} \left( \frac{u_G}{u_{opt}} \right)^{0,3} && \text{für } u_{mf} < u_G < u_{opt} \\ &= 0,009Pr^{1/3}Ar^{1/2} && \text{für } u_{opt} < u_G < u_{elu} \end{aligned} \quad (4.50)$$

berechnet sich nach Baskakov u. a. (1973) mit den entsprechenden Reynoldszahlen aus den Gleichungen 3.33 und 3.34 sowie der optimalen Reynoldszahl

$$Re_{opt} = 7,5 \left( \frac{gd_p^3}{v_G^2} \right)^{0,45} \quad (4.51)$$



### 4.5.7 Wärmeübergang zwischen Partikeln und Apparatewand

Der Wärmeübergang zwischen disperser Phase und Wand

$$\frac{d\dot{Q}_{PWand}}{d\tau} = \frac{n(\tau)}{N_{P,Bett}} \alpha_{PWand} A_{Wand} (T_P(\tau) - T_{Wand}) \quad (4.52)$$

berechnet sich aus der Fläche der Apparatewand (siehe Gleichung 4.49) sowie dem Wärmeübergangskoeffizienten  $\alpha_{PWand}$  nach Martin (1980).

## 4.6 Ergebnisse aus der Simulation

Mit den zuvor beschriebenen Modellansätzen soll die durchgeführte Versuchsreihe im Folgenden simuliert werden. Zu Beginn wird ein Kaskadenmodell vorgestellt, in welches die Anzahl idealer Rührkessel (CSTR) eingeht. Experimente mit einer nicht ganzzahligen Anzahl von CSTRs können somit nicht simuliert werden, allerdings dienen diese Berechnungen als Eingrenzung, um abwägen zu können, wo sich die tatsächliche Feuchteverteilung befindet.

Um eine tatsächliche Feuchteverteilung zu berechnen, wird im Anschluss eine korrelierte Verweilzeitverteilung direkt mit dem Modell gekoppelt und anschließend simuliert. Diese Ergebnisse werden abschließend mit den experimentellen Messwerten verglichen.

### 4.6.1 Simulationsergebnisse des Kaskadenmodells

Um das Trocknungsverhalten von partikulären Gütern in der Wirbelschichttrinne berechnen zu können, wird das System als eine Aneinanderreihung von ideal durchmischten Rührkesseln, eine Kaskade, verstanden. Das Verweilzeitverhalten eines ideal durchmischten Rührkessels wird nach Gleichung 1.1 als abklingende E-Funktion beschrieben. Das Verweilzeitverhalten von zwei oder mehreren aufeinanderfolgenden CSTRs kann annäherungsweise durch Gleichung 1.8 charakterisiert werden.

Zunächst wird davon ausgegangen, dass das vorliegende Trocknungsproblem in der Wirbelschichttrinne durch das Verweilzeitverhalten eines CSTR beschrieben werden kann. Da die Partikel nach den Modellannahmen einheitliche Eintrittsfeuchten besitzen, wird zunächst der Mittelwert einer tatsächlich gemessenen Feuchteverteilung als Eintrittsfeuchte gewählt. Experiment 9 soll hierfür zur Veranschaulichung dienen (siehe Abbildung 4.13(i)), da hierbei aufgrund der geringen Betriebstemperatur eine breite Feuchteverteilung erzeugt wurde und sich nur wenige Partikel nahe der berechneten Gleichgewichtsbeladung  $X_{eq} = 0,07 \text{ kg/kg}$  befinden. Bei sehr hoher Betriebstemperatur (bspw. Abbildung 4.13(a), Exp. 1) werden hingegen sehr viele

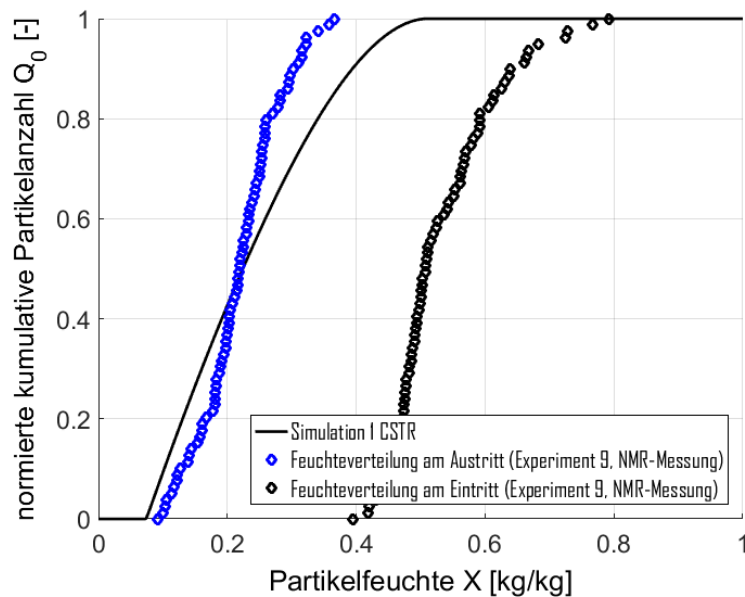


Abbildung 4.6: Ergebnis des simulierten Trocknungsverlaufs (—) eines ideal durchmischten Rührkessels (CSTR) und einer einheitlichen Partikeleintrittsfeuchte im Vergleich zu den Werten aus den NMR-Messungen ( $\diamond$ ) von Experiment 9.

Partikel mit ähnlicher Feuchte generiert, wodurch der Einfluss der Verweilzeitverteilung kaum erkennbar ist. Das Ergebnis der Simulation ist in Abbildung 4.6 dargestellt.

Da sich der reale Trocknungsverlauf für eine Wirbelschichttrinne zwischen dem eines CSTR und einer Kaskade von CSTRs bewegt, wurde die Simulation weiterführend für 2 und 3 CSTRs durchgeführt. Die Wirbelschichttrinne wurde hierfür in zwei bzw. drei Volumen gleicher Größe aufgeteilt und jeder Abschnitt als ein separater Rührkessel berechnet. Für die Eintrittsfeuchte in einen nachfolgenden Rührkessel wurde die mittlere Austrittsfeuchte des zuvor berechneten Rührkessels angenommen. Es ist wichtig darauf hinzuweisen, dass die Ergebnisse für nur einen CSTR nicht als Grundlage zur Berechnung eines weiteren CSTR in der Kaskade verwendet werden können, da sich hierbei die mittlere Verweilzeit auf Grund eines anderen Bezugsvolumens verdoppelt und somit das Endergebnis verfälscht.

Die Ergebnisse für den letzten CSTR der jeweiligen Rührkesselkaskade sind in Abbildung 4.7 wiedergegeben. Es fällt auf, dass die simulierten mittleren Austrittsfeuchten voneinander abweichen. Dies ist jedoch nachvollziehbar, wenn man bedenkt, dass jeder weitere CSTR mit der mittleren Austrittsfeuchte des vorhergehenden CSTR berechnet wird. Somit werden alle Feuchten, welche größer sind als die mittlere Partikelfeuchte, zur Berechnung des 2. oder 3. CSTR vernachlässigt.

Es ist zu sehen, dass sich mit Zunahme der Anzahl der theoretischen Rührkessel die Verteilung nach links in Richtung geringerer Feuchten verschiebt. Der Beginn eines jeden Trock-

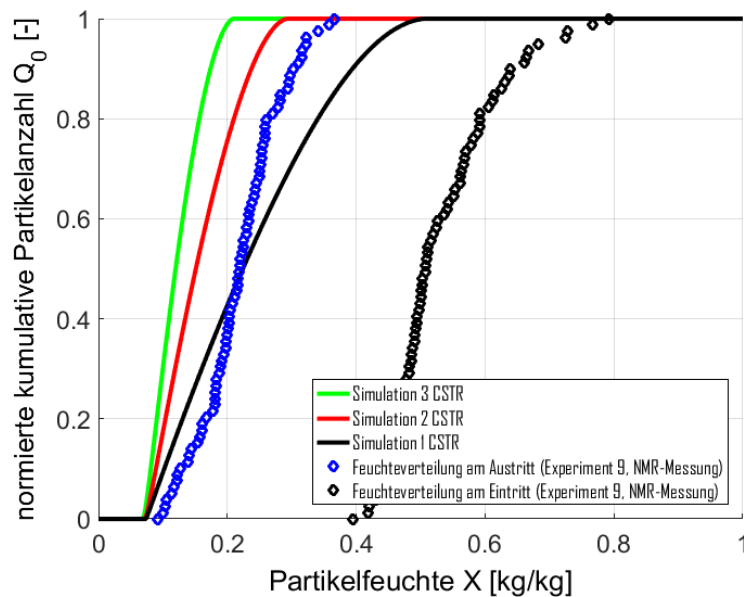


Abbildung 4.7: Ergebnisse der simulierten Trocknungsverläufe (—) unter Annahme des Verweilzeitverhaltens von einem (schwarz), zwei (rot) und drei (grün) in Reihe geschalteten CSTRs. Der erste von zwei, bzw. der erste und zweite Rührkessel von insgesamt drei CSTRs ist nicht dargestellt. Die Verläufe ( $\diamond$ ) entsprechen den Messwerten aus den NMR-Messungen von Experiment 9.

nungsverlaufs liegt bei der mittleren Austrittsfeuchte der zuvor berechneten Verteilung, was zu Ergebnisverfälschung führt.

Da die Modellannahme einer gleichverteilten Eintrittsfeuchte jedoch nicht ignoriert werden kann, muss ein anderer Ansatz gewählt werden, um die Verteilung der Partikelfeuchte bereits am Eintritt eines jeden Rührkessels zu berücksichtigen.

Aus diesem Grund wird die Simulation für den Trocknungsverlauf eines CSTR für jede einzelne Eintrittsfeuchte erneut durchgeführt. Die Ergebnisse werden anschließend in jedem Feuchteintervall summiert und durch die Anzahl der Eintrittszustände dividiert, wie in Abbildung 4.8 zu sehen ist. Im Vergleich zu Abbildung 4.6 werden nun auch Partikelfeuchten erreicht, welche oberhalb des Medians der Eingangsverteilung liegen.

Die Ergebnisse aus der Simulation für eine angenommene Rührkesselkaskade (1, 2 und 3 CSTR) mit Mittelung der Partikelanzahl in jeder Feuchteklasse sind in Abbildung 4.9 dargestellt. Im Vergleich zu Abbildung 4.7 sind nun auch Partikelfeuchten oberhalb der mittleren Partikelfeuchte des vorhergehenden CSTR möglich. Die Simulation liefert realistisch aussehende Ergebnisse für den Trocknungsverlauf für eine Kaskade ganzzahliger Rührkessel. Der Trocknungsverlauf eines realen Systems kann hiermit jedoch nur annähernd beschrieben werden, da dieser mit einer nicht ganzzahligen Anzahl von CSTR besser abgebildet werden kann.

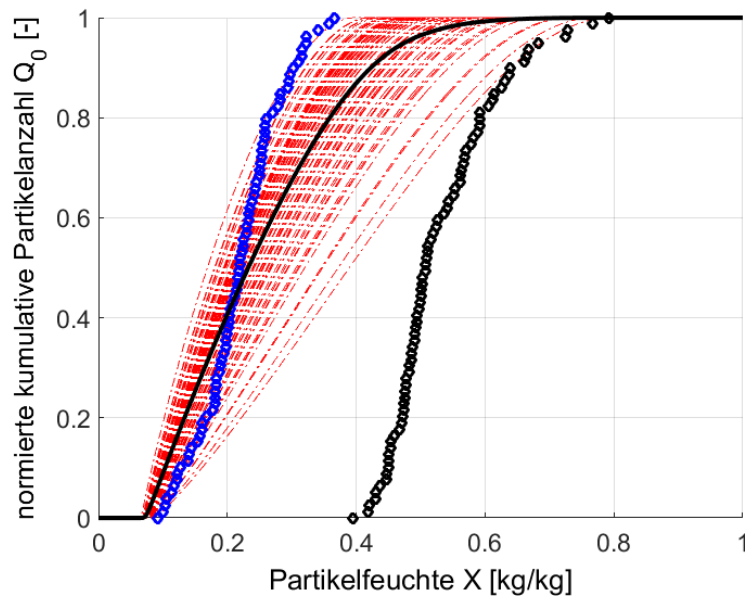


Abbildung 4.8: Ergebnis des simulierten Trocknungsverlaufs (—) für jeden einzelnen Eintrittszustand der Partikelfeuchte im Vergleich mit den entsprechenden Messwerten (◇) aus den NMR-Messungen von Experiment 9.

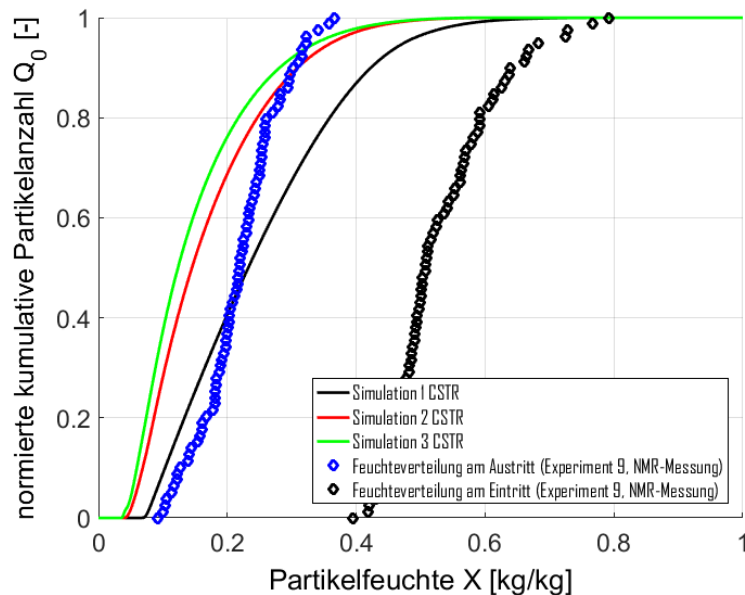


Abbildung 4.9: Ergebnis der simulierten Trocknungsverläufe für eine Rührkesselkaskade mit einem (schwarz), zwei (rot) oder drei (grün) CSTRs. Die Simulationen wurden für jeden einzelnen Eintrittszustand der Partikelfeuchte durchgeführt und abschließend über jedes Feuchteklassenintervall gemittelt. Die Rauten (◇) entsprechen den Werten aus den NMR-Messungen von Experiment 9.

### 4.6.2 Simulationsergebnisse nach Kopplung der Verweilzeitverteilung

Um das Problem ganzzahliger Rührkessel in einer Kaskade für die Verweilzeit nicht fortzuführen und die Ergebnisse der entsprechenden Simulation mit den experimentellen Daten zu vergleichen, werden zunächst die Verweilzeitverteilungen aus Experiment und Korrelation gegenübergestellt, was Abbildung 4.10 zeigt. Es ist zu sehen, dass die korrelierten Verweilzeitverteilungen gut mit den experimentell bestimmten Verteilungen übereinstimmen. Lediglich bei den Experimenten 3, 5 und 6 gibt es stärkere Abweichungen. Dies sind drei Experimente, welche bei der geringsten Austrittswehrhöhe von 35 mm durchgeführt wurden. Die zugehörigen Betriebsparameter sind in Tabelle 4.1 aufgelistet.

Da die Partikelfeuchte innerhalb der Wirbelschichtrinne unbekannt ist, wird die Schichtmasse aus Gleichung 3.48 für die Bestimmung der mittleren Verweilzeit (siehe Gleichung 3.8) und die Bodensteinzahl mit den Gleichungen 3.45 - 3.47 für trockene Partikel berechnet. Die sich ergebenden Ungenauigkeiten, werden aufgrund der praktischen Anwendung vernachlässigt.

Um die korrelierten Verweilzeitverteilungen in die Simulation mit einbeziehen zu können, wird Gleichung 4.11 verwendet.

Zunächst soll jedoch die Übereinstimmung der Ergebnisse aus dem Kaskadenmodell sowie aus dem Modell mit einer korrelierten Verweilzeitverteilung belegt werden. Hierfür wird eine Berechnung mit einer generierten Verweilzeitverteilung eines CSTR für Experiment 9 durchgeführt und mit dem Ergebnis aus Abbildung 4.6 in Abbildung 4.11 verglichen.

Es ist zu sehen, dass die berechneten Verläufe aus der Simulation für einen CSTR aus dem Kaskadenmodell (Gleichung 4.10) und mit vorgegebener Verweilzeitverteilung eines CSTR nach Gleichung 1.1 äquivalent sind. Dies bedeutet, dass durch die Kopplung einer beliebigen Verweilzeitverteilung mit dem Trocknungsmodell ein beliebiges, reales System abgebildet werden kann.

## 4.7 Variation der Simulationsparameter im Trocknungsmodell

Um den Einfluss der in Abschnitt 4.5 vorgestellten Modellparameter auf das Simulationsergebnis zu untersuchen, wurde eine Parameterstudie durchgeführt. Als Eintrittsparameter wurden hierfür die experimentell bestimmte Feuchteverteilung sowie die korrelierte Verweilzeitverteilung von Experiment 9 gewählt.

Variiert wurden die Wehranzahl  $N_{Wehr}$ , die Spalthöhe  $H_{Spalt}$  der Unterlaufwehre, die Austrittswehrhöhe  $H_{Wehr,out}$ , die Gaseintrittstemperatur  $T_G$ , sowie die Eintrittsfeuchte  $X_{in}$  und die kritische Feuchte  $X_{kr}$  der Partikel. Verglichen wurden die jeweiligen parameterabhängigen Simu-

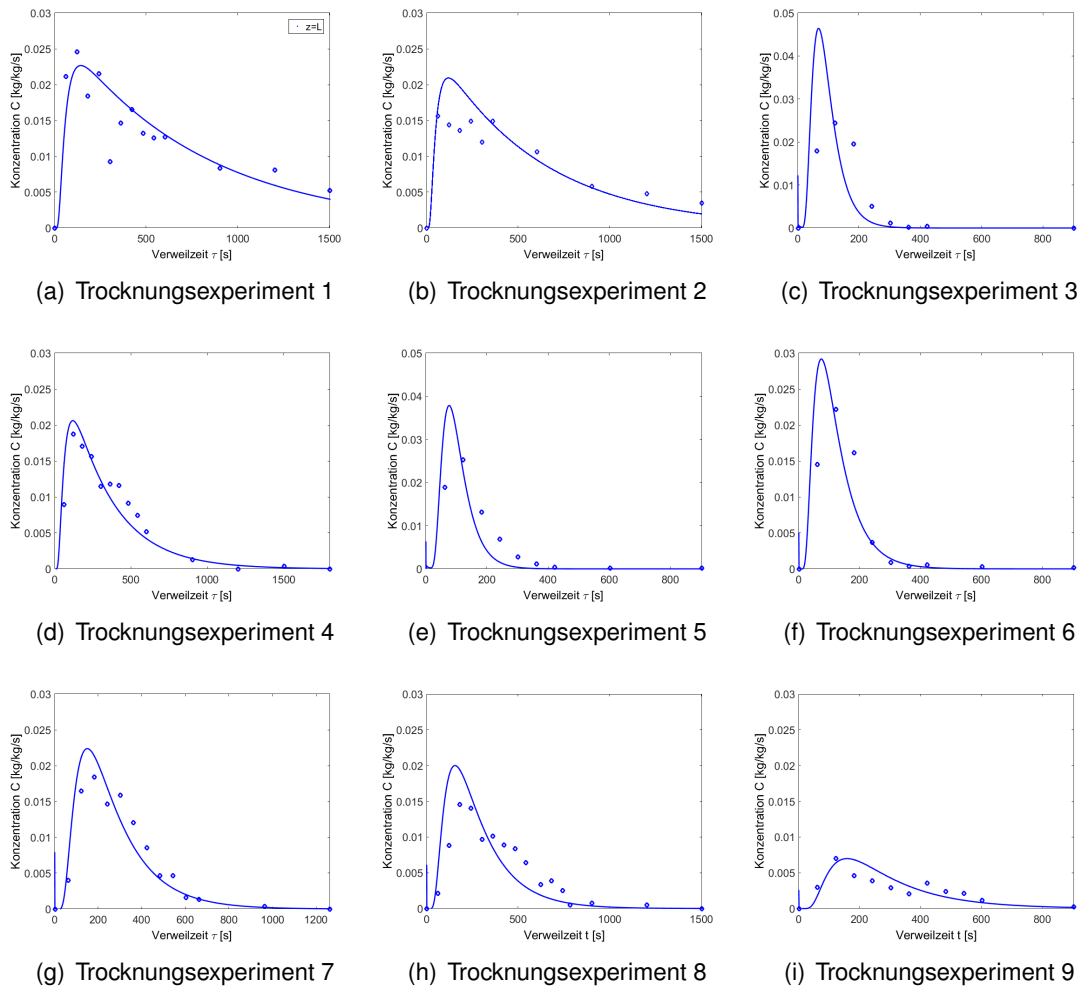


Abbildung 4.10: Experimentelle Daten ( $\diamond$ ) und aus der Korrelation erstellte Verweilzeitverteilungen (—). Für die Verweilzeitkorrelation wurden die Gleichungen 3.45 - 3.47 für die Bodensteinzahl sowie die Gleichungen 3.48 - 3.50 für die Bettmasse verwendet, um anschließend Gleichung 3.18 analytisch zu lösen.

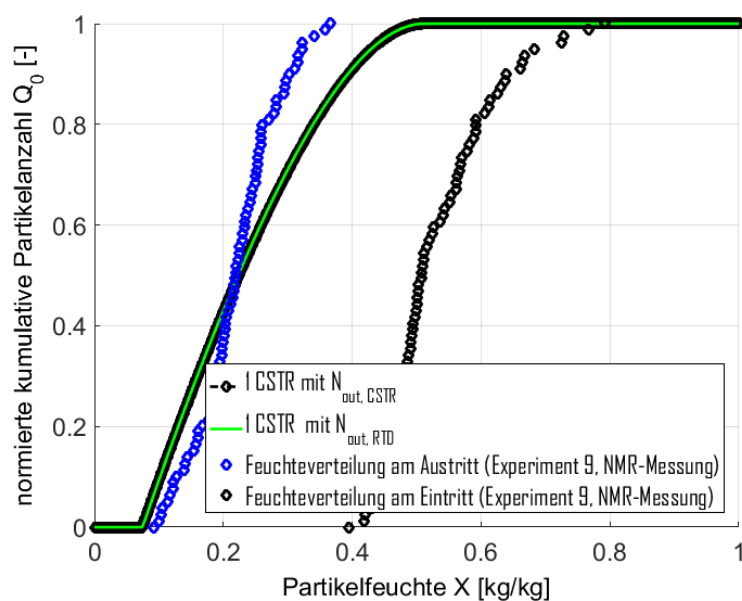


Abbildung 4.11: Ergebnis der simulierten Trocknungsverläufe (—) unter Annahme des Verweilzeitverhaltens eines Rührkessels nach Gleichung 4.10 (schwarz) sowie nach Gleichung 4.11 (grün) unter Vorgabe der Verweilzeitverteilung für einen CSTR aus Gleichung 1.1. Beide Verläufe sind identisch, was für die Verwendung der vorgegebenen Verweilzeitverteilung spricht. Die Verläufe in blau (◇) entsprechen den Werten aus den NMR-Messungen von Experiment 9.

lationsergebnisse mit dem Simulationsergebnis, welches auf den experimentellen Parametern von Experiment 9 (siehe Tabelle 4.1) basiert.

In Abbildung 4.12 sind die Effekte der Parametervariation als Simulationsergebnis sowie die gemessenen Partikelfeuchteverteilungen von Experiment 9 als Vergleich dargestellt.

In Abbildung 4.12(a) wird das Simulationsergebnis mit variierender Anzahl interner Unterlaufwehre  $N_{Wehr}$  wiedergegeben. Die entsprechenden Verweilzeiten für 4, 6 und 8 CSTRs in Reihe wurden nach Gleichung 1.8 berechnet. Es ist zu sehen, dass die Zunahme von  $N_{Wehr}$  eine kleine Abnahme der Varianz der Feuchteverteilung nach sich zieht. Dies ist zu erwarten, da mit Zunahme von  $N_{Wehr}$  eine Abnahme der Varianz der Verweilzeitverteilung einhergeht und folglich nach Gleichung 4.10 ein enger verteilter Partikelanzahlstrom das System verlässt.

In Abbildung 4.12(b) wird der Effekt der Spalthöhe  $H_{Spalt}$  der Unterlaufwehre auf die Austrittsfeuchteverteilung aufgezeigt. Dargestellt sind die Feuchteverteilungen einer Simulation ohne interne Wehre sowie einer Simulation mit drei internen Unterlaufwehren und einer Spalthöhe von 12 mm und 6 mm. Die Abnahme der Spalthöhe bewirkt nach Gleichung 3.46 eine Zunahme der Bodensteinzahl und somit eine Verringerung der Varianz der Verweilzeitverteilung. Hieraus ergibt sich, äquivalent zur zunehmenden Wehranzahl  $N_{Wehr}$ , eine kleine Verringerung der Varianz der Partikelfeuchteverteilung am Austritt.

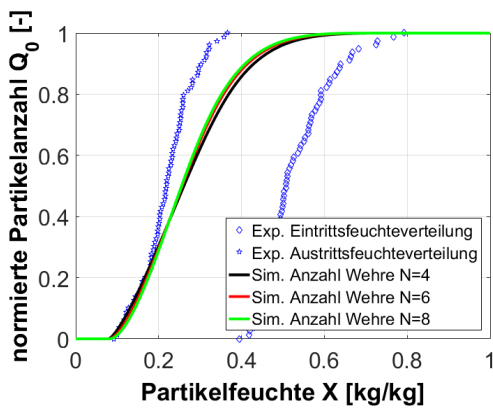
Die Zunahme der Austrittswehrhöhe  $H_{Wehr,out}$  verursacht auf Grund der dadurch erhöhten mittleren Verweilzeit der Partikel eine Verschiebung der gesamten Feuchteverteilung in Richtung geringerer Partikelfeuchten, wie in Abbildung 4.12(c) anhand der zwei Wehrhöhen von 35 und 95 mm gezeigt wird.

Wie anzunehmen ist, bewirkt eine Zunahme der Gaseintrittstemperatur  $\vartheta_G$  eine schnellere Trocknung und somit eine Verschiebung der Feuchteverteilung auf der Abszisse, was Abbildung 4.12(d) belegt.

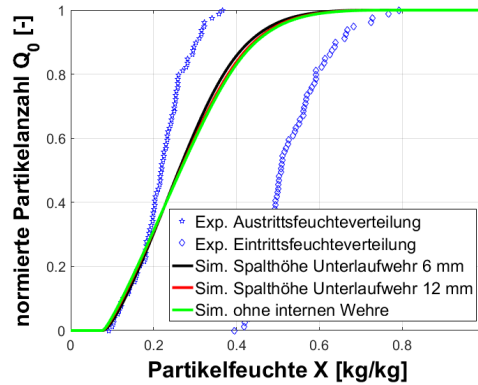
Ebenso ist die Veränderung der Feuchteverteilung am Austritt in Abhängigkeit von der Eintrittsfeuchte (siehe Abbildung 4.12(e)) einleuchtend, da mit zunehmender Partikeleintrittsfeuchte  $X_{in}$  eine Zunahme der resultierenden Partikelaustrittsfeuchte einhergeht.

Eine geringe kritische Partikelfeuchte  $X_{kr}$ , welche den Übergang des ersten in den zweiten Trocknungsabschnitt definiert, verursacht eine geringfügige Verschiebung der gesamten Feuchteverteilung in Richtung geringer Partikelfeuchten, was sich in Abbildung 4.12(f) besonders im unteren Teil der Verteilung bei Partikeln im zweiten TA bemerkbar macht.

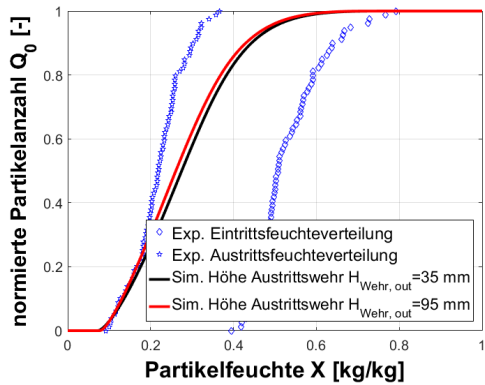




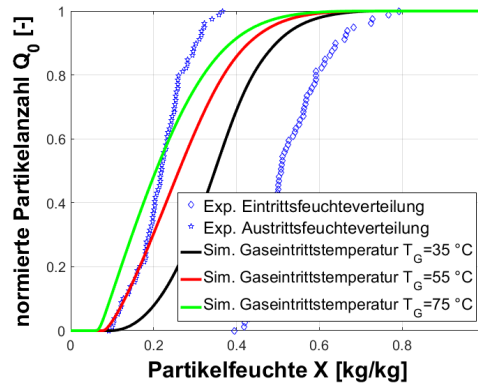
(a) Variation der Anzahl interner Unterlaufwehre von 4, 6 bis 8.



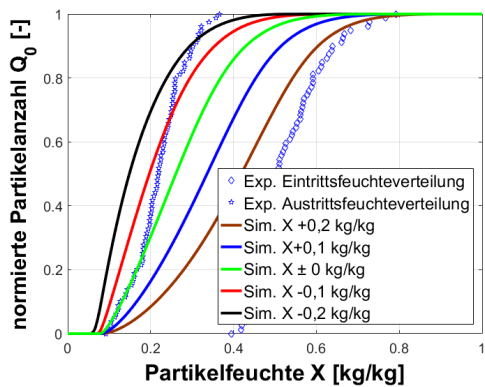
(b) Variation der Spalthöhe der Unterlaufwehre von 6 und 12 mm und ohne internes Wehr.



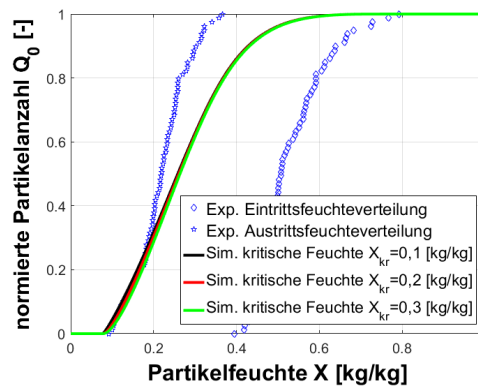
(c) Variation der Höhe des Austrittswehres von 35 und 95 mm.



(d) Variation der Gaseintrittstemperatur von 35, 55 und 75 °C.



(e) Variation der Eintrittsfeuchte.



(f) Variation der kritischen Feuchtebeladung von 0,1, 0,2 und 0,3 kg/kg.

Abbildung 4.12: Simulierte Feuchteverteilungen von Experiment 9 unter Variation von verschiedenen Simulationsparametern.

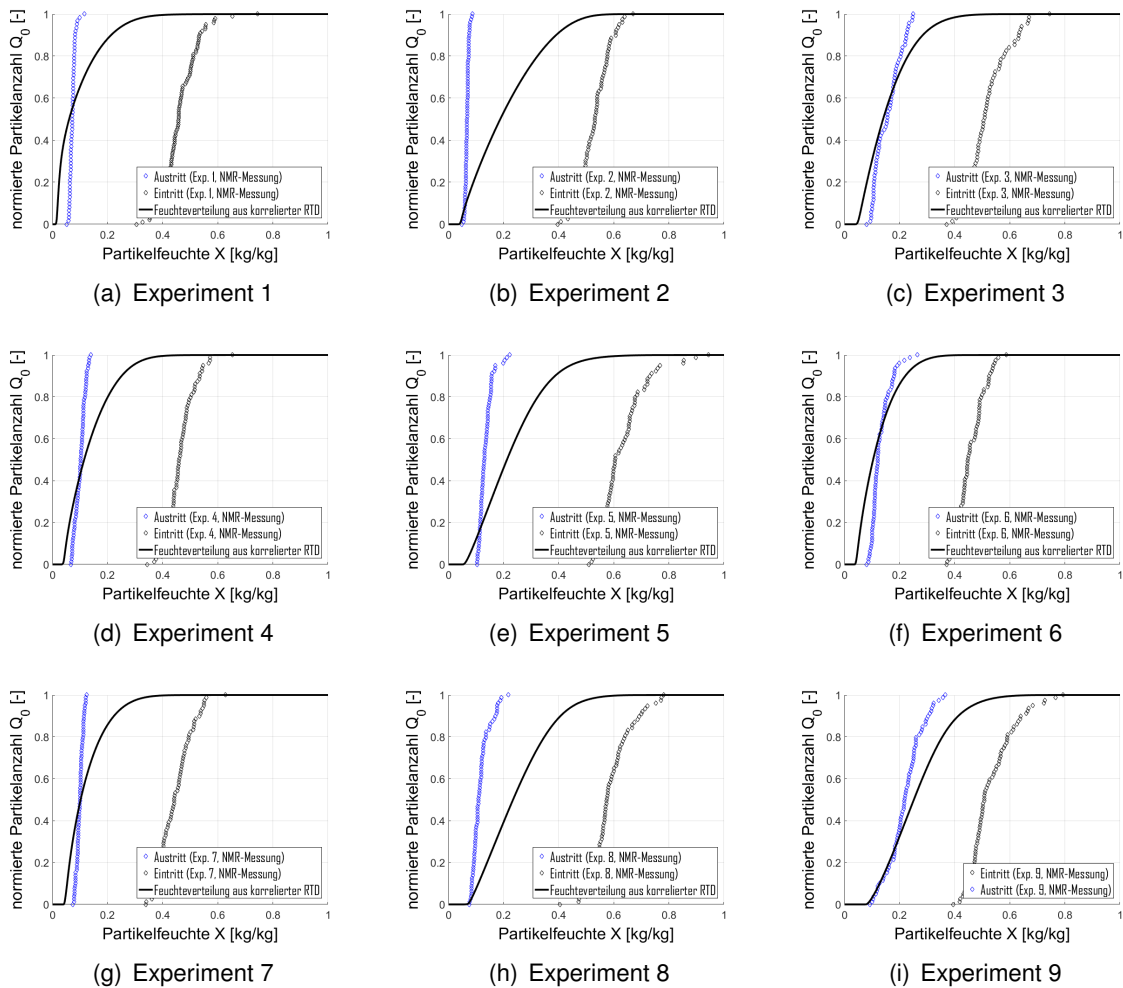
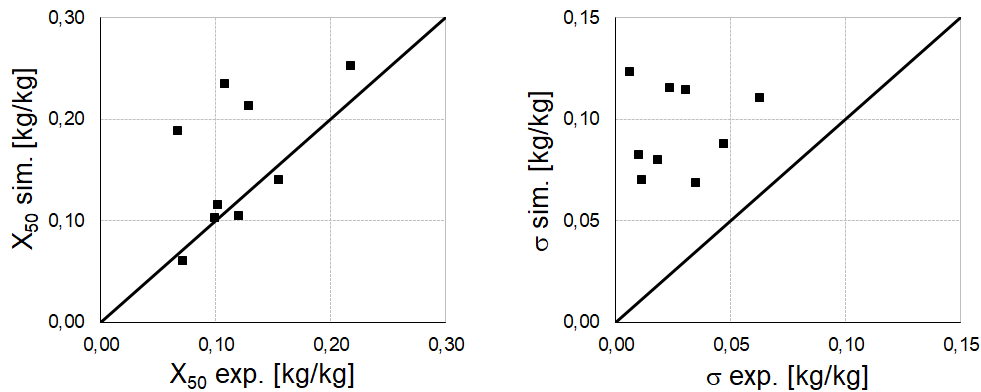


Abbildung 4.13: Experimentelle Daten ( $\diamond$ ) und Feuchteverteilungen aus der Simulation mit korrelierten Verweilzeitverteilungen (—).

## 4.8 Validierung des Trocknungsmodells

In Abbildung 4.13 sind die Ergebnisse für die Feuchteverteilungen aller Trocknungsexperimente dargestellt. Es ist auffällig, dass einige Mittelwerte der berechneten Verteilungen mit den Mittelwerten der Messwerte übereinstimmen. Die Varianz der Simulationsdaten liegt jedoch in jedem Fall über den experimentellen Ergebnissen. Die Mediane sowie die Standardabweichungen für alle Experimente sind in Tabelle A.12 aufgeführt und in Abbildung 4.14 graphisch dargestellt.

Das vorgestellte Modell eignet sich daher nur bedingt zur Berechnung des Trocknungsverlaufs in einer Wirbelschichttrinne. Die Methode der Mittelung über alle Feuchteklassen der aus unterschiedlichen Eintrittszuständen hervorgehenden Feuchteverteilungen bringt dahingehend einen Vorteil, dass Eintrittsfeuchten auf beiden Seiten des Mittelwertes berücksichtigt werden, weist jedoch noch immer Probleme auf, den realen Prozess abzubilden.



(a) Vergleich der simulierten und experimentell bestimmten mittleren Partikelfeuchten. (b) Vergleich der Standardabweichungen der simulativ und experimentell bestimmten Partikelfeuchteverteilungen.

Abbildung 4.14: Paritätsdiagramme für die experimentellen Messwerte und die simulierten Daten bezüglich (a) der mittleren Feuchten  $X_{median}$  sowie (b) der Standardabweichungen  $\sigma$  der Verteilungen für alle Trocknungsexperimente am Austritt.

Das größte Problem hierbei ist sicherlich Annahme 6, welche von einer gleichverteilten Partikeleintrittsfeuchte ausgeht. In dem vorliegenden Modell wird nicht die Partikelfeuchte direkt, sondern die Partikelmasse sowie die Wassermasse über die Verweilzeit berechnet. Um im Nachhinein die Partikelfeuchte als Verhältnis der beiden berechneten Massen zu bestimmen, muss davon ausgegangen werden, dass alle Partikel anfänglich mit der gleichen Feuchte in das System eintreten. In einem realen Prozess mit verteilter Eintrittsfeuchte könnten Partikel mit hoher Eintrittsfeuchte und langer Verweilzeit im System jedoch die gleiche Feuchte aufweisen, wie Partikel mit niedriger Eintrittsfeuchte und kurzer Verweilzeit.

Für den Fall einer engen Partikelfeuchteverteilung am Eintritt ist es deshalb zu erwarten, dass das Modell gute Ergebnisse liefert. Jedoch kann das vorliegende eindimensionale Modell mit der Verweilzeit als interner Koordinate das zweidimensionale Problem mit Verweilzeit- und Partikeleintrittsfeuchteverteilung nicht besser abdecken.

Dieses Problem tritt auch in der Arbeit von Cunäus (2011) auf, in der ebenfalls die Partikelbelastung aus der Änderung der Wasser- und Partikelmasse berechnet wird. Die sowohl analytisch als auch numerisch berechneten Verteilungen weisen in seiner Arbeit alle eine größere Breite auf als die experimentellen Daten. Die Mittelwerte aus Experiment und Simulation stimmen hingegen sehr gut überein, da die Trocknungsbedingungen so gewählt sind, dass mehr als 50 Prozent aller Partikel die Gleichgewichtsbeladung erreichen.

Wird für die Berechnung ein 2D Modell verwendet, ergeben sich eine gute Übereinstimmung von Simulation und Messwerten, was in der Arbeit von Chen u. a. (2017) belegt wurde.

# 5 Coating in Wirbelschichttrinnen

Wie in der Zielstellung in Abschnitt 1.7 beschrieben wurde, befasst sich die vorliegende Arbeit außer mit der Untersuchung der Verweilzeitverteilung und Trocknung auch mit dem Coating, der Ummantelung von Partikeln, in Wirbelschichttrinnen. Daher folgen in diesem Kapitel die experimentelle Untersuchung von Coatingprozessen sowie deren Auswertung. Anschließend wird ein Modell zur Berechnung der Coatingschichtdicke und ihrer Verteilung vorgestellt, indem die aus den zuvor ermittelten Korrelationen (siehe Gleichungen 3.48, 3.8 sowie 3.45 - 3.47) berechneten Verweilzeitverteilungen eingebunden werden. Abschließend werden die Messergebnisse diskutiert, mit den simulierten Daten verglichen und eine Variation der Simulationsparameter durchgeführt.

## 5.1 Durchführung von Coatingversuchen

Zur Durchführung von Coatingversuchen wurden alle Betriebsparameter (Gas- und Feststoffmassenstrom, Wehrkonfiguration und Gaseintrittstemperatur) wie in Tabelle A.13 im Anhang gelistet eingestellt, bevor der Prozess gestartet wurde. Nach Erreichen eines konstanten Feststoffmassenstroms am Austritt der Wirbelschicht wurde das Einbringen der Sprühflüssigkeit über vier äquidistante Zweistoffdüsen (Bottom-Spray) initiiert. Nach der fünffachen berechneten mittleren Verweilzeit aus den Gleichungen 3.8 und 3.48 bis 3.50, wodurch ein stationärer Coatingprozess sichergestellt war, wurden Proben am Austritt der Wirbelschichttrinne zur Analyse der Coatingschichtdicke entnommen, der Prozess beendet und die Produkt- sowie Bettmasse gewogen.

Die Partikel der entnommenen Proben wurden anschließend mit Hilfe der Micro-Computertomographie ( $\mu$ -CT), des kameraoptischen Systems "Camsizer", gravimetrisch sowie mit einem Lichtmikroskop untersucht, um ihre Coatingschichtdicke bestimmen zu können.

## 5.2 Analyse von Coatingversuchen

Um die Qualität von beschichteten partikulären Produkten zu beurteilen, gibt es mehrere Merkmale, die hierfür herangezogen werden können. Hierbei kann es sich um die Partikeldichte,

die Dichte der Schicht oder der gesamten Partikelschüttung, die spezifische Oberfläche sowie um Bruch- oder Abriebfestigkeit handeln.

In der vorliegenden Arbeit werden die Partikelgröße sowie die Schichtdicke und -porosität einzelner Partikel sowie der Partikelpopulation betrachtet und genauer untersucht. Hierfür kommen die jeweiligen Methoden mit unterschiedlichen Vor- und Nachteilen zum Einsatz.

## 5.2.1 Bestimmung der Schichtporosität von Einzelpartikeln

### 5.2.1.1 Mikroskopie und Gravimetrie

Um die Schichtporosität

$$\varepsilon_{Schicht} = \frac{V_{Hohlraum}}{V_{Schicht}} = \frac{V_{Schicht} - V_{Feststoff}}{V_{Schicht}} \quad (5.1)$$

von Einzelpartikeln gravimetrisch zu bestimmen, müssen sowohl die Partikelmassen in beschichtetem sowie unbeschichtetem Zustand, als auch der Partikeldurchmesser bekannt sein. Hierfür wurden aus jeder beschichteten Probe 100 Partikel entnommen, die jeweiligen Massen mit Hilfe einer Halbmikrowaage (SSECURA225D-1S", Firma Sartorius) einzeln bestimmt und mit einem Lichtmikroskop vermessen, um den beschichteten Durchmesser  $d_{P,coat}$  zu ermitteln. Anschließend wurden die Partikel einzeln in Glasröhrchen überführt und mit destilliertem Wasser über 24 Stunden gewaschen, bis sich die Schicht aus Natriumbenzoat vollständig vom Partikel gelöst hat. Nach weiteren 24 Stunden im Vakuumtrockenschrank (Firma Memmert,  $\vartheta_e = 105 \text{ °C}$ ,  $p_e = 20 \text{ mbar}$ ) wurden die gewaschenen Partikel erneut gewogen und der unbeschichtete/gewaschene Durchmesser  $d_{P,wash}$  bestimmt.

Die anschließende Berechnung der Schichtporosität erfolgte nun aus den Differenzen der Volumina

$$V_{Schicht} = V_{P,coat} - V_{P,wash} = \frac{1}{6}\pi d_{P,coat}^3 - \frac{1}{6}\pi d_{P,wash}^3 \quad (5.2)$$

sowie der Massen

$$M_{Schicht} = M_{P,coat} - M_{P,wash} \quad (5.3)$$

der beschichteten und gewaschenen Partikel. Bei bekannter Feststoffdichte des Coatingmaterials  $\rho_{Feststoff}$  und der Dichte der Schicht

$$\rho_{Schicht} = \frac{M_{Schicht}}{V_{Schicht}} \quad (5.4)$$

Tabelle 5.1: Ergebnisse zur Schichtporosität für jeweils einen Partikel aus jedem der 4 Experimente. Die Bestimmung erfolgte durch die Vermessung mit dem  $\mu$ -Computertomographen, anschließender 3-D Rekonstruktion und "convex hull" Algorithmus.

Experiment	1	2	3	4
Schichtporosität	0,42	0,41	0,45	0,48

kann die Schichtporosität

$$\varepsilon_{Schicht} = 1 - \frac{\rho_{Schicht}}{\rho_{Feststoff}} \quad (5.5)$$

berechnet werden. Sich aus der Messung ergebende negative Differenzen aus beschichteten und gewaschenen Massen bzw. Partikeldurchmesser sind nicht sinngemäß und werden vernachlässigt.

### 5.2.1.2 Mikro-Computer-Tomographie ( $\mu$ -CT)

Eine weitere Möglichkeit die Schichtporosität von Einzelpartikeln einer bestimmten Probe zu bestimmen, ist die Analyse von mit dem Röntgen-Mikro-Computertomographen (CT Procon alpha 2000, ProCon X-ray GmbH, Garbsen, Germany) generierten Aufnahmen. Hierbei handelt es sich um eine sehr genaue, jedoch aufwendige und zeitintensive Methode. Deshalb wurden nur wenige Messungen durchgeführt, die im Nachhinein mit anderen Methoden verglichen werden. Die Methode wurde von Dadkhah u. a. (2012) etabliert und bereits mehrfach von Rieck u. a. (2015) bzw. Hoffmann u. a. (2015) angewendet.

Für die computergestützte Rekonstruktion wird eine Vielzahl von Einzelbildern erstellt, wobei es möglich ist, mehrere Bilder aus einem Winkel zu mitteln, um die spätere Bildqualität zu erhöhen. Für die Messungen in der vorliegenden Arbeit wurde die Röntgenquelle mit einer Stromstärke von  $170 \mu A$  und einer Spannung von 50 kV betrieben. Die Belichtungszeit der Kamera betrug 2000 ms. Zudem wurde zwischen jedem von 1200 Rotationsschritten, was einem Rotationsschritt von  $0,3^\circ$  entspricht, eine Mittlung aus 3 Einzelbildern durchgeführt. Aus den Messparametern ergab sich nach der Rekonstruktion eine Voxelgröße von  $1,5 \mu m$  Seitenlänge (Voxel: Volumenelement (3D)  $\hat{=}$  Pixel: Flächenelement (2D)). Diese entsprechenden Messparameter wurden in der Arbeit von Sondej u. a. (2015) als optimale Einstellungen aus einer Parameterstudie für die Bestimmung der Partikelporosität ermittelt. Die Berechnung der Porosität erfolgte nach Dadkhah u. a. (2012) aus der "convex hull" Methode.

In Abbildung 5.1 ist eine solche Rekonstruktion eines Partikels aus Experiment 4 in Überlaufkonfiguration dargestellt. Das Verhältnis aus Hohlraumvolumen zu Gesamtvolumen der Schicht,

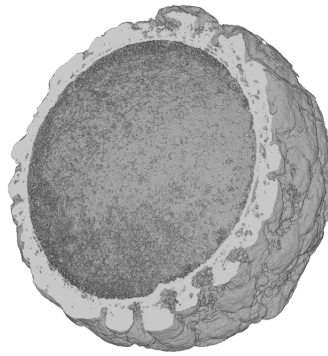


Abbildung 5.1: Rekonstruktion aus 1200 Mittelungen einzelner Graubilder eines Partikels aus Experiment 4 in Überlaufkonfiguration, erstellt mit dem Mikro-Computertomographen.

gemäß Gleichung 5.1, ergibt die Schichtporosität, welche in Tabelle 5.1 aufgeführt ist.

Aufgrund der oben genannten Nachteile hinsichtlich der langen Mess- und Rekonstruktionszeiten ist jedoch anzumerken, dass die Porositäten lediglich von jeweils einem Einzelpartikel eines jeden Experiments gemessen wurden und aufgeführt sind.

### 5.2.2 Bestimmung der Verteilung der Schichtporosität über die Partikelpopulation

Da es sich bei den durchgeführten Experimenten um einen kontinuierlichen Prozess handelt, liegt die Vermutung nahe, dass die in Abschnitt 5.2.1 bestimmten Porositäten der Einzelpartikel verteilt über der Population vorliegen.

Durch das in Abschnitt 5.2.1.1 beschriebene Vermessen einer Vielzahl von Einzelpartikeln kann die Verteilung der Porosität ermittelt werden. Durch anschließendes Auftragen der Anzahl der vermessenen Partikel über deren Schichtporosität wird die Porositätsverteilung der Population abgebildet. Hieraus kann der Mittelwert ( $\bar{\epsilon}_{Schicht}$ ) und die Standardabweichung  $\sigma$ , welche die Schwankungen der Porosität um den Mittelwert angibt, berechnet werden.

### 5.2.3 Bestimmung der Schichtdickenverteilung auf Einzelpartikeln mittels Mikro-Computertomographie

Um die Schichtdickenverteilung LTD (engl.: layer thickness distribution) von umhüllten Partikeln zu bestimmen, kann eine 3-D Rekonstruktion eines Einzelpartikels aus den  $\mu$ -CT Messungen aus Abschnitt 5.2.1.2, wie sie in Abbildung 5.1 dargestellt ist, in mehreren Schnitten durch ihren Mittelpunkt graphisch ausgewertet werden, was jedoch sehr zeitintensiv ist.

Da die untersuchten Partikel jedoch hoch sphärisch sind (Sphärizität = 0,96), kann ange-

nommen werden, dass die Verteilung der Schichtdicke eines Schnittes der Gesamtverteilung entspricht, woraus sich einige Vorteile ergeben. Zum Einen muss eine Aufnahme nur noch aus einem Winkel erfolgen, was die Messdauer enorm verkürzt. Zum Anderen erübrigt sich die Rekonstruktion zu einem 3-dimensionalen Bild. Die Grundlagen hierfür wurden bereits in der Arbeit von Sondej u. a. (2015) beschrieben. Die entsprechenden Messparameter sind in Abschnitt 5.2.1.2 aufgeführt.

Mit Hilfe der Software MATLAB (Mathworks Inc.) und der zur Verfügung stehenden Bildbearbeitungsfunktionen kann nun die Bestimmung der Schichtdickenverteilung über einem Einzelpartikel erfolgen. In Abbildung 5.2 sind die verschiedenen Schritte dargestellt.

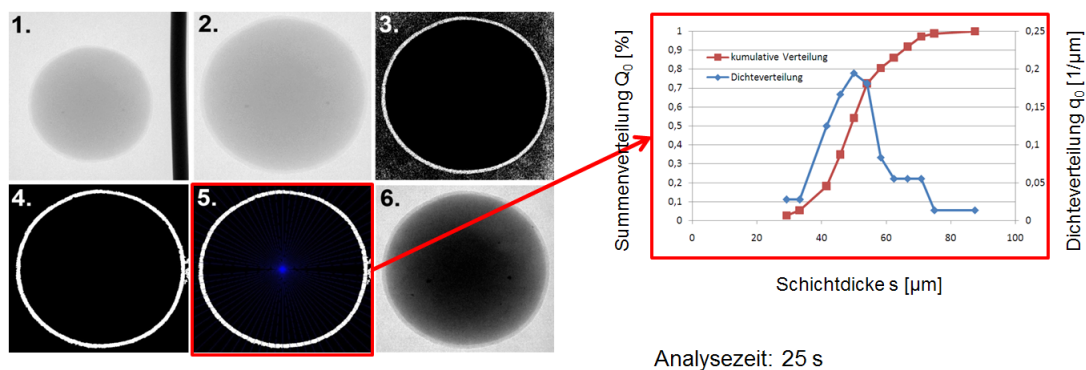


Abbildung 5.2: Auswertung einer  $\mu$ -CT Durchleuchtung: 1. und 2. Durchleuchtung, 3. Binarisierung, 4. Ausfüllen der Schicht, 5. Einfügen von Strahlen, 6. Partikel mit erhöhtem Kontrast.

In Abbildung 5.2 (1.) ist das durchleuchtete Rohbild eines Partikels zu sehen, welcher zusammen mit einem Befestigungsdraht (schwarzer Steifen rechts) aufgenommen wurde. Letzterer bildet aufgrund seiner bekannten Breite die Größenreferenz für die Bilderpixel, woraus letztendlich die Schichtdicke berechnet wird. Nach Ausschneiden des eigentlichen Partikels (Cropping) in Abbildung 5.2 (2.) erfolgt das Binarisieren in Abbildung 5.2 (3.), wodurch jedem Pixel entweder der Wert schwarz oder weiß zugeordnet wird. In Abbildung 5.2 (4.) erfolgt das Ausfüllen der Schicht und weiterführend das Einfügen eines Strahlengitters (Abbildung 5.2 (5.)) durch den Partikelmittelpunkt.

Als Ergebnis wird eine Tabelle mit 72 Einträgen erstellt, welche der Schichtdicke entsprechen. In Abbildung 5.2 ist eine Verteilung für  $30^\circ$  Rotationen und 12 Schritten dargestellt. Abbildung 5.2 (6.) stellt das Partikel mit erhöhtem Kontrast dar und dient zum Vergleich mit Abbildung 5.2 (2.).



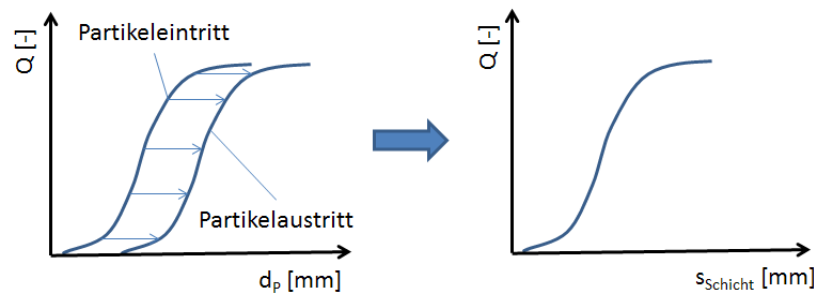


Abbildung 5.3: Schematische Darstellung zur Berechnung der Schichtdickenverteilung aus der Differenz der normierten Partikelgrößenverteilungen am Partikeleintritt und -austritt.

## 5.2.4 Bestimmung der Schichtdickenverteilung über der Partikelpopulation

In diesem Abschnitt werden vier Methoden zur Bestimmung der Schichtdickenverteilung über eine Partikelpopulation vorgestellt.

### 5.2.4.1 Mikroskopie

Da die beschichteten und gewaschenen Durchmesser der Einzelpartikel einer Probe bereits aus Abschnitt 5.2.1.1 bekannt sind, lässt sich die mittlere Schichtdicke eines Einzelpartikels entsprechend

$$s_{EP} = (d_{P,coat} - d_{P,wash})/2 \quad (5.6)$$

aus der Hälfte der Differenz beider Durchmesser ermitteln. Die aufgetragene Partikelanzahl über die berechnete Schichtdicke ergibt somit die Schichtdickenverteilung in der Partikelpopulation, aus welcher wiederum der Median  $s_{EP,50}$  und die Standardabweichung  $\sigma$  bestimmt werden können. Die somit bestimmte Schichtdickenverteilung wird im Folgenden als "Schichtdickenverteilung aus Einzelpartikeln" ( $s_{EP}$ ) bezeichnet und soll sich von der "Schichtdickenverteilung aus der Partikelgrößenverteilung" ( $s_{PSD}$ ) abgrenzen.

Eine weitere Möglichkeit der Bestimmung der Schichtdickenverteilung folgt aus den Partikelgrößenverteilungen. Unter der Annahme, dass jedes Partikel einer Größenklasse nach dem Coating genau einer anderen Größenklasse zugeordnet werden kann, wird die Differenz der Partikelgrößen jeder Anzahlklasse gebildet und halbiert, um die einfache Schichtdicke zu erhalten. Eine graphische Darstellung gibt Abbildung 5.3.

#### 5.2.4.2 Mikro-Computertomographie ( $\mu$ -CT)

Um die Schichtdickenverteilung über eine Partikelpopulation mikro-tomographisch vermessen zu können, eignet sich das Verfahren, wie es in Abschnitt 5.2.3 beschrieben wird.

Um in kurzer Zeit möglichst viele Aufnahmen machen zu können, ist es möglich mehrere Partikel zeitgleich zu vermessen, wie in Abbildung 5.4 zu sehen ist. Hieraus können Einzelbilder extrahiert werden (siehe Abbildung 5.2), welche wiederum mit computergestützter Hilfe in der Programmierumgebung MATLAB (Mathworks Inc.) bearbeitet und auf ihre Schichtdickenverteilung untersucht werden können. Die anschließende Mittelung der Schichtdickenverteilung vieler Einzelpartikel ergibt abschließend die Verteilung über der Partikelpopulation.

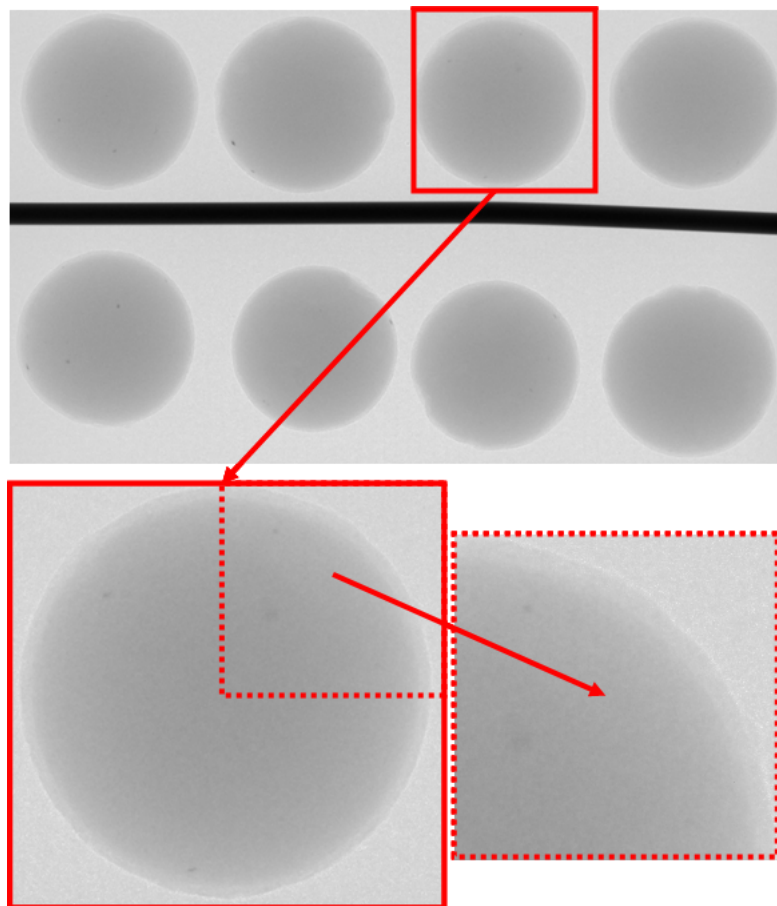


Abbildung 5.4: Darstellung der Durchleuchtung von 8 Partikeln und einem Referenzdraht mit bekanntem Durchmesser. Durch das gleichzeitige Durchleuchten mehrerer Partikel wird Messzeit gespart.

#### 5.2.4.3 Camsizer

Eine weitere Möglichkeit die verteilte Schichtdicke einer Partikelpopulation zu bestimmen, ist die Messung der Partikelgrößenverteilung einer Schüttung beschichteter und die anschließende

Vermessung derselben gewaschenen Partikel, mit Hilfe eines kameraoptischen Systems (Cam-sizer, Firma Retsch)). Das Waschen von 100 g einer Probe erfolgte in fünffacher Wiederholung in Bechergläsern bei 60 °C unter ständigem Rühren über 2 h. Im Nachhinein wurde die gewaschene Probe im Vakuumtrockenschrank bei 105 °C und 20 mbar für weitere 24 h getrocknet. Anschließend wird das selbe Verfahren für die Berechnung der Schichtdickenverteilung aus den Partikelgrößenverteilungen wie bei der mikroskopischen Untersuchung aus Abschnitt 5.2.4.1 angewendet.

### **5.2.4.4 Optischer Nachweis zur Güte der Partikelwaschung mittels REM**

Um den Nachweis des vollständigen Entfernens der Coatingschicht auf der Partikeloberfläche durch das in Abschnitt 5.2.4.3 beschriebene Waschverfahren zu erbringen, wurden rasterelektronenmikroskopische (REM) Aufnahmen angefertigt. Zur Durchführung der Rasterelektronenmikroskopie (siehe Abschnitt 2.3.5) wurde ein REM Typ Pro der Firma Phenom verwendet.

Es wurden jeweils 4 Partikel einer jeden Probe vermessen. Zum Ersten wurden Aufnahmen von neuen, unbenutzten Partikeln angefertigt, um einen Eindruck der unbeschichteten Partikeloberfläche zu erhalten. Danach wurden sowohl 4 Partikel in beschichtetem als auch in unbeschichtetem Zustand analysiert. Zusätzlich wurden neue und unbenutzte Partikel nach der selben Vorgehensweise, wie in Abschnitt 5.2.1.1 beschrieben, gewaschen und untersucht, um den Einfluss der Waschung auf eventuelle Oberflächenveränderungen der Partikel sichtbar zu machen. In Abbildung D.3 im Anhang sind jeweils Beispielpartikel für die verschiedenen Partikelzustände von Experiment 3 dargestellt. Da die Auswertung rein optisch erfolgt, kann jeweils nur ein Vergleich zwischen verschiedenen Partikeln angestellt werden.

In den Abbildungen (D.3(a)-D.3(d)) im Anhang ist zu sehen, dass die poröse Schicht auf den zuvor beschichteten Partikeln durch das Waschen vollständig entfernt wurde (D.3(e)-D.3(h)). Die Oberfläche der beschichteten und danach gewaschenen Partikel ist rauher in ihrer Erscheinung im Vergleich zu den unbeschichteten Partikeln (siehe Abbildungen D.3(i)-D.3(l)). Dies ist auf den Waschvorgang zurückzuführen, da sich die Partikeloberfläche durch die Reibung der Partikel aneinander aufräut, was der Vergleich mit den neuen, ungenutzten und gewaschenen Partikeln in den Abbildungen D.3(m)-D.3(p) zeigt. Eine kameraoptische Untersuchung der Größenverteilung belegt jedoch keine signifikante Abweichung der gewaschenen von den unbehandelten reinen Partikeln.

## **5.3 Modellierung der Coatingversuche**

Im Gegensatz zum Modell für die Partikeltrocknung in Abschnitt 4.5 wird für den Coatingprozess ein Ansatz gewählt, der die Eigenschaftskordinaten selbst, statt der Verweilzeit, für die Berech-

nung ihrer Änderung verwendet. Die Partikelgröße wird deshalb als interne Koordinate genutzt. Die Partikelverweilzeit soll mit Hilfe eines Kaskadenmodells mit Rückfluss in die Berechnung eingehen.

Um die Verteilung der Schichtdicke über eine Partikelpopulation vorhersagen zu können, wird eine populationsdynamische Bilanz erstellt. Für die Beschreibung des schichtweisen Wachstums wurde ein Zwei-Zonen-Modell genutzt. Der Ansatz einer zweigeteilten Betrachtung des Systemraums ist bekannt aus der Literatur und wurde bereits mehrfach z.B. von Sherony (1981), Wnukowski und Setterwall (1989), Hoffmann u. a. (2011), Tsotsas und Mujumdar (2011) sowie Hampel u. a. (2013) angewandt. Hierbei findet das schichtweise Wachstum der Partikel in der Sprühzone (Sp) statt, wobei in der Trocknungszone (Tr) das Entfernen des Lösungsmittels, im vorliegenden Fall die Verdampfung von Wasser, erfolgt. Für jede Zone wird eine eigenständige partielle Differentialgleichung gelöst. Die Gleichungen für das Partikelwachstum in der Sprühzone

$$\frac{\partial n_{Sp}}{\partial t} = -G_d \cdot \frac{\partial n_{Sp}}{\partial d} - \frac{n_{Sp}}{\bar{\tau}_{Sp}} + \frac{n_{Tr}}{\bar{\tau}_{Tr}} + v \cdot \dot{n}_{in} \quad (5.7)$$

und für den Verbleib der Partikel in der Trocknungszone

$$\frac{\partial n_{Tr}}{\partial t} = \frac{n_{Sp}}{\bar{\tau}_{Sp}} - \frac{n_{Tr}}{\bar{\tau}_{Tr}} + (1 - v) \cdot \dot{n}_{in} - \dot{n}_{out} \quad (5.8)$$

enthalten die Partikelanzahldichte  $n$ , die mittlere Verweilzeit  $\bar{\tau}$  in der entsprechenden Zone, den Anzahldichtestrom  $\dot{n}_{in}$  in und  $\dot{n}_{out}$  aus dem System heraus. Darüber hinaus beschreibt der Faktor

$$v = \frac{V_{Sp}}{V_{Sp} + V_{Tr}} \quad (5.9)$$

das Verhältnis des Volumens der Sprühzone zum Gesamtvolumen. Er steht über die Gleichung

$$\frac{\bar{\tau}_{Sp}}{\bar{\tau}_{Tr}} = \frac{v}{1 - v} \quad (5.10)$$

mit den Partikelverweilzeiten in den einzelnen Zonen in Verbindung.

Der Anzahldichtestrom  $\dot{n}_{in}$  ist als Betriebsparameter einzustellen und somit bekannt. Der Anzahldichtestrom  $\dot{n}_{out}$  aus dem System heraus muss hingegen berechnet werden.

Die Bestimmung der Wachstumsrate

$$G = \sum_k^N \lambda_k \cdot G_k \quad (5.11)$$

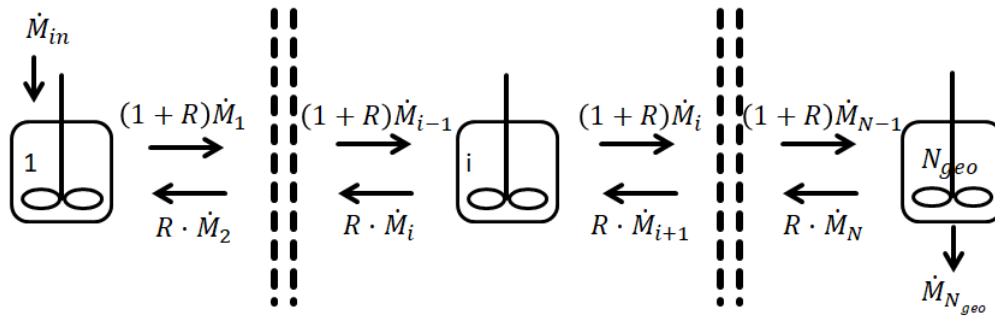


Abbildung 5.5: Schematische Darstellung des Kaskadenmodells zur Eingliederung einer definierten Verweilzeitverteilung in die Simulation des Coatingprozesses.

erfolgte aus

$$G_k = \frac{2 \cdot \dot{M}_{Feststoff}}{(1 - \varepsilon_{Schicht}) \cdot \rho_{Feststoff} \cdot \pi} \cdot \frac{d^{k-2}}{\mu_k} \quad (5.12)$$

mit der Summe der Gewichtung

$$\sum_k^N \lambda_k = 1 \quad (5.13)$$

nach Tsotsas und Mujumdar (2011) bzw. Rieck u. a. (2015) umgekehrt proportional zu einem definierten Moment  $\mu_i$  der Partikelpopulation in der Sprühzone. Hierbei fließt der Feststoffanteil des Massenstroms der eingedüsten Lösung  $\dot{M}_{Feststoff}$ , die Schichtporosität  $\varepsilon_{Schicht}$  sowie die Dichte des in der Lösung enthaltenen Feststoffes  $\rho_{Feststoff}$  ein. Neben der in der Simulation genutzten oberflächenproportionalen Wachstumsrate für  $\lambda_2 = 1$  ist auch anzahl- ( $\lambda_0 = 1$ ), längen- ( $\lambda_1 = 1$ ) oder volumenproportionales ( $\lambda_3 = 1$ ) Wachstum möglich, sowie eine Kombination unter Berücksichtigung von Gleichung 5.13.

Um eine definierte Verweilzeitverteilung in der Simulation zu integrieren, wurde ein Kaskadenmodell mit Rückfluss  $R$  genutzt, welches in Abbildung 5.5 schematisch dargestellt ist.

Im stationären Zustand gleicht der Partikelmassenstrom aus einem Rührkessel in den benachbarten Rührkessel entsprechend

$$\dot{M}_i = \dot{M}_{in} \quad (5.14)$$

dem Massenstrom am Eintritt in die Wirbelschichtrinne. Der Partikelanzahlstrom

$$\dot{N}_i = \frac{\dot{M}_i}{M_P} \quad (5.15)$$

bezieht sich auf die Einzelpartikelmasse  $M_P$ . Der unbekannte Rückflussparameter  $R$  wird aus der dimensionslosen Varianz

$$\sigma^2 = \frac{1 + 2R}{N_{geo}} - \frac{2R(1 + R)}{N_{geo}^2} \left[ 1 - \left( \frac{R}{1 + R} \right)^{N_{geo}} \right] \quad (5.16)$$

der Verweilzeitverteilung nach Roemer und Durbin (1967) und der geometrischen Anzahl  $N_{geo}$  von Rührkesseln bestimmt. Letztere wird bspw. dem Längen-Breiten Verhältnis der Wirbelschichttrinne oder der Anzahl ihrer Kammern gleichgesetzt. Die Berechnung der dimensionslosen Varianz erfolgt wiederum aus Gleichung 3.14 sowie aus den Gleichungen für die Korrelation der Bodensteinzahl 3.45, 3.46 oder 3.47.

Nach Diskretisierung und anschließender Implementierung des Modells in der Software MATLAB (Mathworks Inc.) kann eine numerische Lösung für die Partikelgrößenverteilung berechnet werden.

Um nun auf die Verteilung der Schichtdicke schließen zu können, wird die Differenz der normierten kumulativen Anzahlverteilungen am Partikelein- und -austritt gebildet und halbiert, um die Schichtdicke zu erhalten, was in Abschnitt 5.2.4.1 beschrieben ist.

Ein weiterer entscheidender Faktor zur Berechnung der Partikelgrößenverteilung beim kontinuierlichen Coatingprozess in der Wirbelschichttrinne und der daraus zu berechnenden Schichtdickenverteilung über der Partikelpopulation, ist die Schichtporosität  $\varepsilon_{Schicht}$ . Um Vorhersagen über die finale Partikelgrößenverteilung machen zu können, muss diese bekannt sein.

Für das vorliegende Stoffsystem aus  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikeln und Natriumbenzoat als Coatingmaterial liegt eine Korrelation von Rieck u. a. (2015) zwischen der Schichtporosität und dem normierten Trocknungspotential

$$\eta = \frac{Y_{sat} - Y_{out}}{Y_{sat} - Y_{in}} \quad (5.17)$$

vor, welche eine lineare Abhängigkeit mit

$$\varepsilon_{Schicht} = -0,33 \cdot \eta + 0,45 \quad (5.18)$$

beschreibt. Die Sättigungsbeladung  $Y_{sat}$  kann hierfür bei bekannter Temperatur aus dem Mollier-Diagramm in Abbildung 4.3 abgelesen werden. Die Luftbeladung am Austritt wird entsprechend

$$Y_{out} = \frac{\dot{M}_{W,Lsg} - \dot{M}_P \cdot X_{out}}{\dot{M}_G} \quad (5.19)$$

durch das Verhältnis der verdampften Wassermasse  $\dot{M}_{W,Lsg} - \dot{M}_P \cdot X_{out}$  zum Gasmassenstrom  $\dot{M}_G$  bestimmt.

Um einen entsprechenden Nachweis der Gültigkeit des beschriebenen Modells zu erbringen, werden die durchgeführten Experimente aus Abschnitt 5.4.1 simuliert und die in Tabelle A.13 im Anhang gegebenen Parameter genutzt.

### **5.4 Ergebnisse und Diskussion der Untersuchung des Coatingprozesses**

Im Folgenden werden die Erkenntnisse aus der Untersuchung des Coatingprozesses dargestellt. Hierzu gehören sowohl die Ergebnisse aus der experimentellen Parametervariation als auch die Validierung des mathematischen Modells sowie eine Variation der Simulationsparameter.

#### **5.4.1 Experimentelle Parametervariation - Einfluss auf die Schichtdicke und -porosität**

Um den Einfluss der Partikelverweilzeitverteilung auf die Coatingschichtdicke und ihre Porosität zu untersuchen, wurden vier kontinuierliche Experimente in der Technikumswirbelschichttrinne durchgeführt. Um unterschiedliche Verweilzeitverteilungen zu realisieren wurden, verschiedene Prozesskonfigurationen gewählt:

Experiment 1 und 2 mit variierender Betthöhe, ohne interne Einbauten sowie Experiment 3 und 4 mit drei Wehren in Unterlaufkonfiguration und Überlaufkonfiguration. Alle Betriebsparameter sind in Tabelle A.13 im Anhang dokumentiert.

Um die Auswirkung der unterschiedlichen Verweilzeitverteilungen auf die Partikelschichtdicke zu bestimmen, sind die aus den korrelierten mittleren Verweilzeiten (Gleichung 3.8) und Bodensteinzahlen (Gleichungen 3.45 bis 3.47) ermittelten Verweilzeitverteilungen in Abbildung 5.6 dargestellt. Es ist zu sehen, dass besonders die Verteilung von Experiment 1 heraus sticht, da auf Grund der geringeren Austrittswehrröhe die mittlere Verweilzeit nur etwa die Hälfte der mittleren Verweilzeiten der anderen Experimente beträgt.

Betrachtet man die Verweilzeitverteilungen der Experimente 2, 3 und 4 so sticht eine deutlich breitere Verteilung bei Experiment 2 heraus, welches ohne interne Einbauten durchgeführt wurde und einen geringen Wert für die Bodensteinzahl aufweist. Beim Vergleich der Experimente 3 und 4 wird eine breitere Verteilung von Experiment 4 deutlich. Bei gleicher mittlerer Verweilzeit bedeutet dies eine geringere Bodensteinzahl und damit einhergehend eine größere Varianz der Verweilzeitverteilung.

Die entsprechend dem in Abschnitt 5.2.4.1 und 5.2.4.3 beschriebenen Prozedere gemessenen Partikelgrößenverteilungen der beschichteten und gewaschenen Partikelproben aller durchgeführten Experimente sind in Abbildung 5.7 zu sehen. Hierbei ist anzumerken, dass die

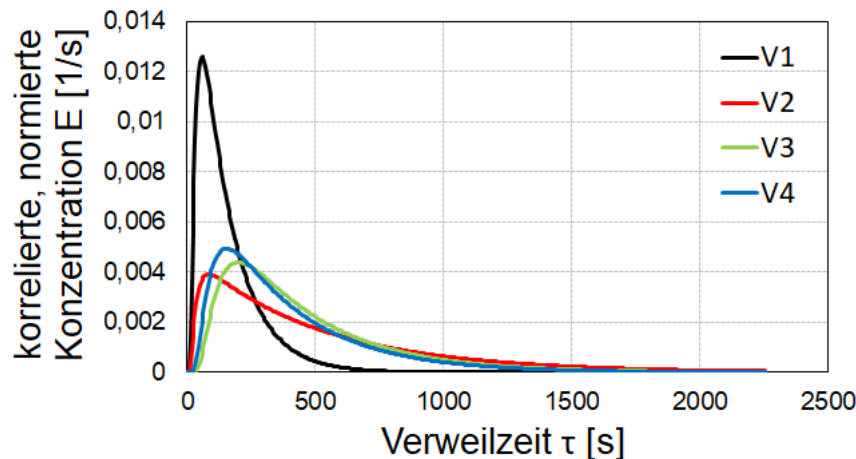


Abbildung 5.6: Darstellung der Verweilzeitverteilungen für die durchgeführten Experimente aus der Korrelation für die mittlere Verweilzeit (Gleichung 3.8) und die Bodensteinzahlen (Gleichungen 3.45 bis 3.47).

Verteilungen am Eintritt einerseits auf Grund unterschiedlicher Partikelchargen des Herstellers im Mittelwert  $d_{P,50}$  und in der Breite (Standardabweichung) sowie andererseits auf Grund von unterschiedlich starker vorhergehender Beanspruchung und Abnutzung voneinander abweichen. Für die Experimente 2 und 3 wurden unbenutzte, neue Partikel verwendet, was anhand der engen Partikelgrößenverteilung erkennbar ist.

Für die Darstellung der Verteilungen wird im Folgenden die kumulative Summenverteilung gewählt, da hieraus Merkmale wie Median und Standardabweichung gut erkennbar sind.

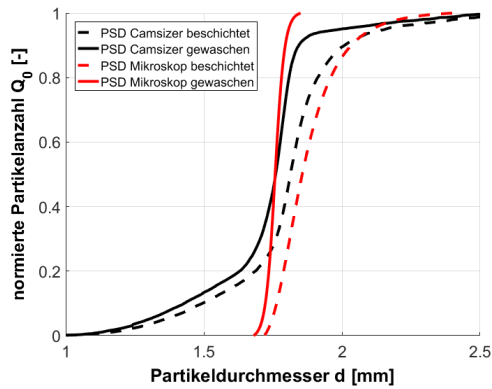
Die genauen Werte der Mediane und Standardabweichungen der Partikelgrößenverteilungen sind Tabelle A.14 im Anhang zu entnehmen. Hierbei wird die bereits erwähnte Abweichung der Experimente 1 und 4 von 2 und 3 besonders deutlich. Es kann für Experimente 2 und 3 eine gute Übereinstimmung der Partikelgrößenverteilungen aus den beiden Analysemethoden (kameraoptisch und mikroskopisch) festgestellt werden.

Um die entsprechenden Schichtdickenverteilungen zu erhalten, werden die Verteilungen der Partikelgrößen aus den Camsizermessungen sowie aus den mikroskopischen Daten der beschichteten und gewaschenen Partikel berechnet, wie bereits in den Abschnitten 5.2.4.3 und 5.2.4.1 beschrieben wird. Zusätzlich wird die Schichtdickenverteilung aus den Einzelpartikeln der mikroskopischen Messung nach Gleichung 5.6 bestimmt, was in Abschnitt 5.2.4.1 erläutert wird.

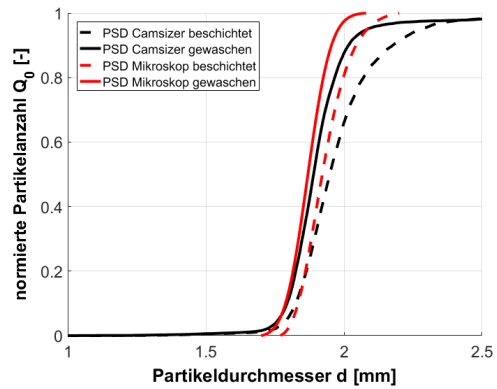
Auch die Schichtdickenverteilungen der Partikelpopulationen aus den  $\mu$ -CT Messdaten wurden analog zu Abschnitt 5.2.4.2 ausgewertet.

In Abbildung 5.8 sind die berechneten Schichtdickenverteilungen über die normierte kumulative Partikelanzahl  $Q_0$  dargestellt. Es fällt auf, dass sich die aus den mikroskopischen Messdaten

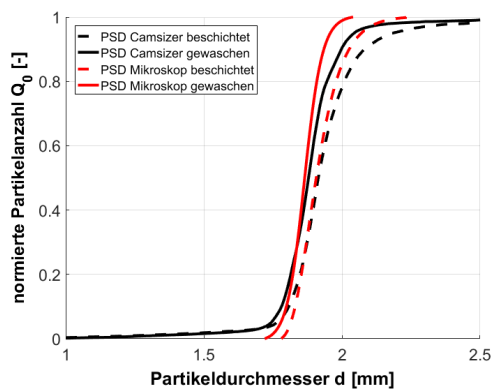




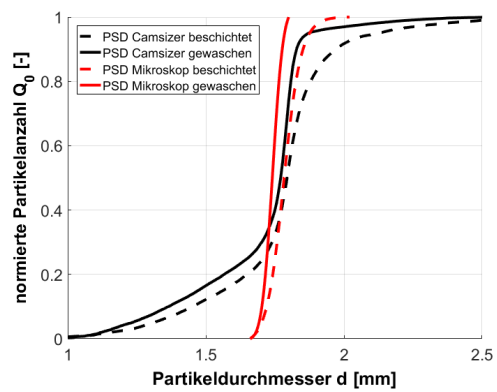
(a) Partikelgrößenverteilungen aus Experiment 1.



(b) Partikelgrößenverteilungen aus Experiment 2.



(c) Partikelgrößenverteilungen aus Experiment 3.



(d) Partikelgrößenverteilungen aus Experiment 4.

Abbildung 5.7: Darstellung der Partikelgrößenverteilungen am Eintritt (—) in die Wirbelschicht-  
rinne und am Austritt (- -) aus der Wirbelschicht-  
rinne (Mikroskop (rot); CamSizer  
(schwarz)).

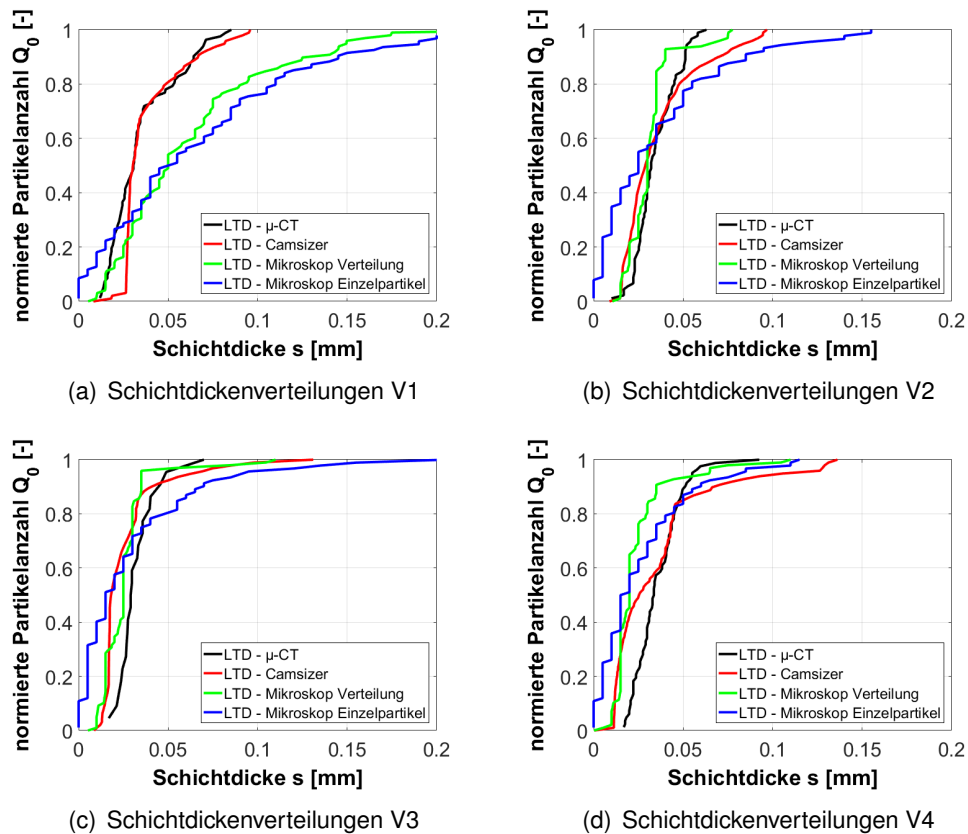


Abbildung 5.8: Darstellung der Schichtdickenverteilungen der gecoateten Partikel berechnet mit unterschiedlichen Methoden sowohl nach Abschnitt 5.2.4.1 aus den Partikelgrößenverteilungen der mikroskopischen Messmethode (grün) sowie aus den Partikelgrößenverteilungen nach Abschnitt 5.2.4.3 der Camsizer-Messungen (rot). Des Weiteren sind die Schichtdickenverteilungen aus der mikroskopischen Untersuchung für Einzelpartikel (blau) nach Abschnitt 5.2.4.1 und aus der  $\mu$ -CT Messung (schwarz) nach Abschnitt 5.2.4.2 dargestellt.

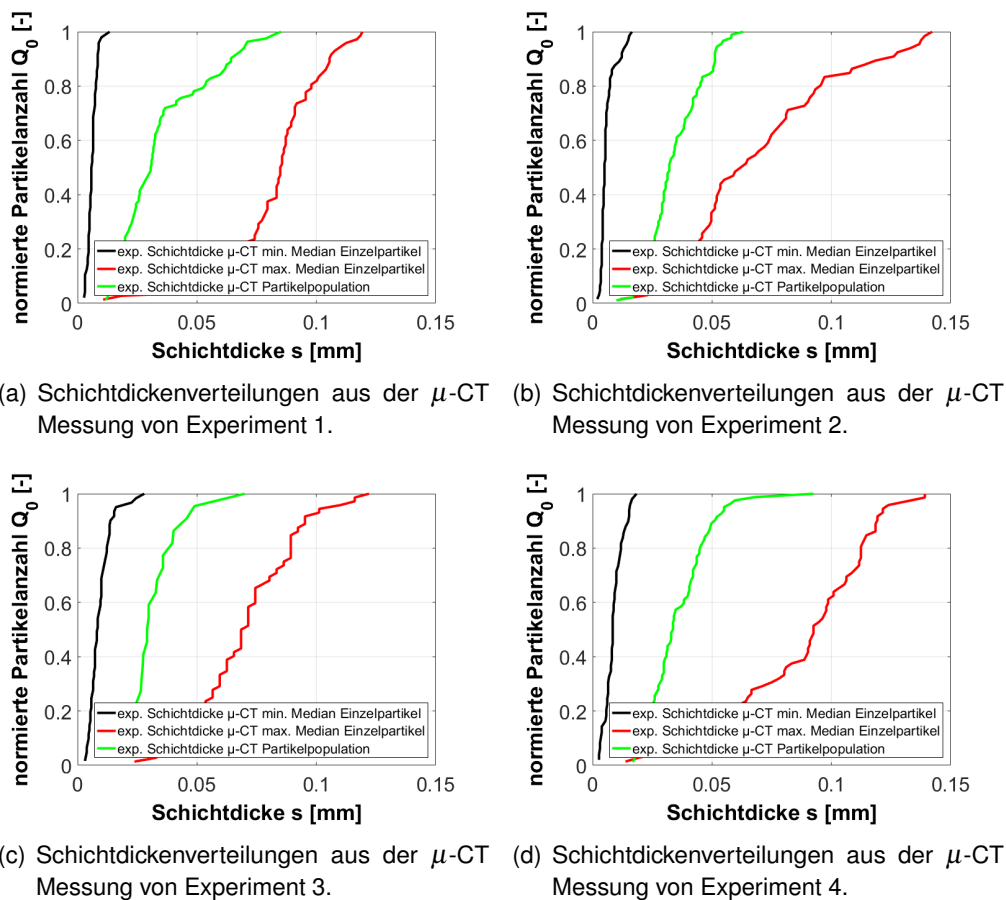


Abbildung 5.9: Darstellung der Schichtdickenverteilung über die Partikelpopulation - sowie über die Einzelpartikel mit dem kleinsten - sowie dem größten - Median der Schichtdicke des jeweiligen Experiments aus der  $\mu$ -CT Messung.

bestimmten Schichtdickenverteilungen entsprechend ihrer Datenherkunft unterscheiden: Basierend auf Einzelpartikelmessungen (blau) fällt die Verteilung breiter aus, als bei der Nutzung der gesamten Partikelgrößenverteilung (grün). Dies kommt durch die Messmethode an sich zustande, da der pro Partikel einmalig mikroskopisch gemessene Durchmesser in keinem Fall genau dem einmalig gemessenen Durchmesser der gewaschenen Partikel entspricht, was einen großen Einfluss auf die Bestimmung der Schichtdicke hat.

Die Schichtdickenverteilung der mikroskopischen Untersuchung von Experiment 1 sticht heraus, da diese den höchsten Median und die höchste Standardabweichung aufweist und auch deutlich von der kameraoptisch bestimmten Verteilung abweicht. Dies ist bereits aus der zugehörigen Partikelgrößenverteilung bzw. aus der Differenz der Mediane der Partikelgrößenverteilungen in Abbildung 5.7(a) ersichtlich.

Tabelle A.15 im Anhang ist zu entnehmen, dass die höchste mittlere Schichtdicke (Median) der vier Experimente für die Partikel des Experiments 1 berechnet wird. Die mittleren Schichtdicken

sowie die Standardabweichungen der Experimente 2-4 mit einer Austrittswerrhöhe von 175 mm liegen in einem ähnlichen Wertebereich.

In Abbildung 5.9 sind sowohl die Schichtdickenverteilungen über die Partikelpopulation nach Abschnitt 5.2.4.2 des jeweiligen Experimentes als auch die Schichtdickenverteilungen der Einzelpartikel nach Abschnitt 5.2.3 mit jeweils dem kleinsten sowie dem größten Median dargestellt.

Wie Tabelle A.16 im Anhang zu entnehmen ist, liegen die mittleren Schichtdicken aller Experimente nah beieinander. Die Standardabweichungen unterscheiden sich nur in Bezug auf Experiment 1 stark. Für die Mediane bzw. die Standardabweichungen der Schichtdickenverteilungen auf den Einzelpartikeln ist kaum ein Zusammenhang erkennbar. Die mittleren Schichtdicken liegen zwischen Faktor 1 und 2, die Standardabweichungen dagegen zwischen Faktor 1 und 3.

Die nach Abschnitt 5.2.1.1 bestimmten mittleren Porositäten aus der gravimetrischen bzw. mikroskopischen Bestimmung stimmen gut mit den mikro-tomographisch gemessenen Porositäten der Einzelpartikel aus Abschnitt 5.2.1.2 überein, was Tabelle A.17 im Anhang entnommen werden kann.

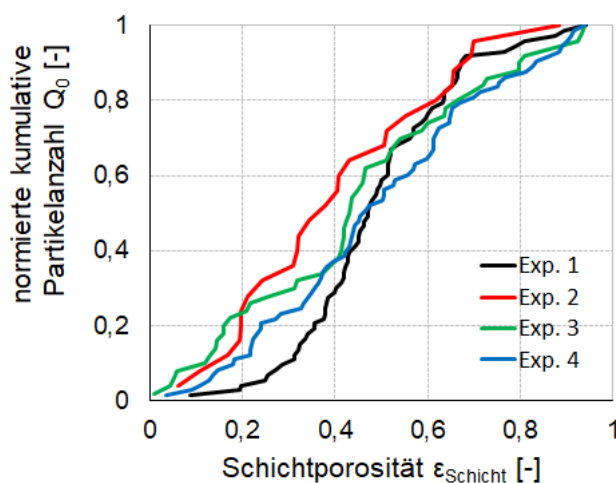


Abbildung 5.10: Darstellung der Verteilungen der Schichtporositäten für die durchgeführten Experimente aus der gravimetrischen Bestimmung gekoppelt mit den mikroskopischen Messdaten von Einzelpartikeln.

Die Standardabweichungen weisen jedoch hohe Werte auf, was in Abbildung 5.10 zu sehen ist. Die Werte für die Porosität liegen hierbei auf der gesamten Achse von 0 bis 1. Dies kann auf die abweichende räumliche Orientierung der Einzelpartikel bei der mikroskopischen Vermessung vor und nach dem Waschen zurückzuführen sein. Die Anzahlverteilung ist in Abbildung 5.10 über der Schichtporosität dargestellt. Das Ergebnis von Experiment 2 fällt auf, da es die geringste

mittlere Schichtporosität aufweist und deshalb im Vergleich zu den anderen Experimenten nach links verschoben ist. Die mittleren Schichtporositäten aus den Experimenten 1, 3 und 4 gleichen sich nahezu.

Die generelle Übereinstimmung der Versuchsergebnisse der unterschiedlichen Experimente zum kontinuierlichen Wirbelschichtcoating lässt darauf schließen, dass die Partikelverweilzeitverteilung einen vernachlässigbar kleinen bzw. keinen Einfluss auf die Porosität der sich ausbildenden Schicht hat.

### 5.4.2 Validierung des Coatingmodells

Für die Validierung des Modells wird Experiment 2 mit den entsprechenden Betriebsparametern aus Tabelle A.13 im Anhang herangezogen.

Um den Nachweis zu erbringen, dass die mit dem Modell berechneten Prozessparameter in einen stationären Zustand übergehen, nachdem die dynamische Anfangsphase durchlaufen ist, sind in Abbildung 5.11 sowohl die Bettmasse  $M_{Bett}$  im System als auch der Median  $d_{P,50}$  und die Standardabweichung  $\sigma$  der Partikelgrößenverteilung am Austritt der Wirbelschichtrinne für die ersten 1500 Sekunden von Experiment 2 dargestellt.

Es ist zu sehen, dass nach 1500 s der stationäre Zustand erreicht ist. Die Bettmasse in Abbildung 5.11(a) pendelt sich auf 4,0 kg ein, was bereits aus den Gleichungen 3.48 - 3.50 berechnet wurde und in Tabelle A.13 im Anhang dargestellt ist.

Der Verlauf des Medians des Partikeldurchmessers  $d_{P,50}$  wird in Abbildung 5.11(c) dargestellt und pendelt sich auf einen Wert von 1,948 mm ein (siehe Tabelle A.14 im Anhang).

Die Standardabweichung  $\sigma$  in Abbildung 5.11(b) steigt zu Beginn an, um schließlich auf einen konstanten Wert von 0,161 mm abzufallen.

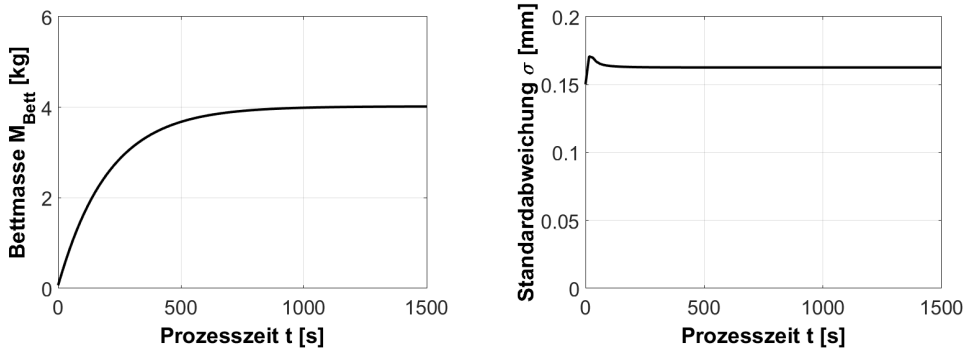
Die Partikelverweilzeiten in der Sprüh- bzw. Trocknungszone wurden aus dem Top-Spray-Prozess, aus der Arbeit von Börner u. a. (2011) für den Bottom-Spray Betrieb in der vorliegenden Arbeit übernommen. Die benötigte Porosität der aufgetragenen Partikelschicht wurde aus der Korrelation von Rieck u. a. (2015) für  $\gamma$ -Aluminiumoxidpartikel berechnet.

Die angegebenen Bettmassen sind korreliert und wurden aus den Gleichungen 3.48, 3.49 und 3.50 errechnet. Die Partikeldichte wird mit

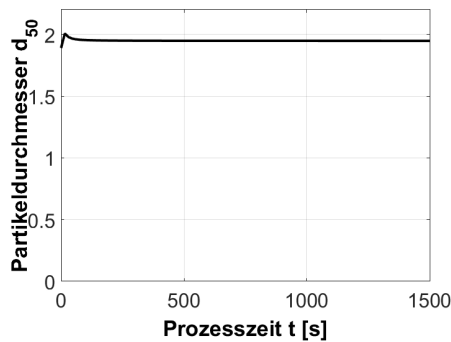
$$\rho_P = \frac{6 \cdot M_{P,50}}{d_{P,50}^3 \cdot \pi} \quad (5.20)$$

aus dem mittleren Durchmesser  $d_{P,50}$  und der mittleren Partikelmasse  $M_{P,50}$  der reinen Proben bestimmt.

Als Randbedingung für die Simulation wird die Partikelgrößenverteilung angenommen, welche



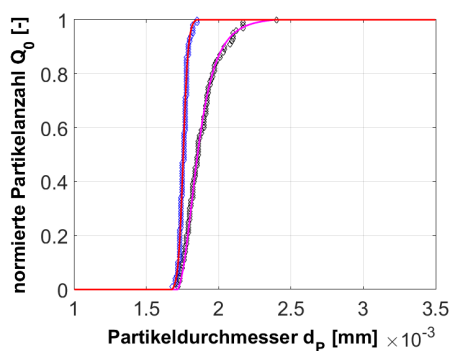
(a) Zeitlicher Verlauf der Bettmasse  $M_{Bett}$  beim dynamischen Prozessbeginn im System (b) Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung  $\sigma$  beim dynamischen Prozessbeginn am Austritt



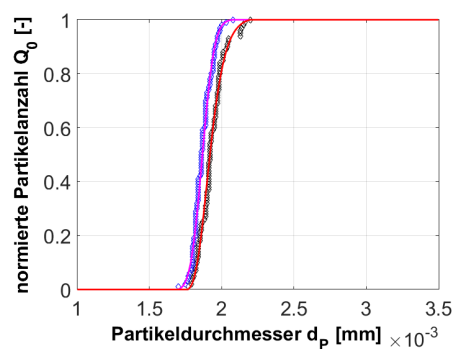
(c) Zeitlicher Verlauf des Medians  $d_{50}$  beim dynamischen Prozessbeginn am Austritt

Abbildung 5.11: Bettmasse  $M_{Bett}$  sowie Median  $d_{P,50}$  und Standardabweichung  $\sigma$  des Partikeldurchmessers am Austritt der Wirbelschichttrinne über die Prozesszeit für die Simulation von Experiment 2. Anfangs ist das dynamische Verhalten der Werte zu sehen, welche sich im zeitlichen Verlauf konstanten Werten annähern.

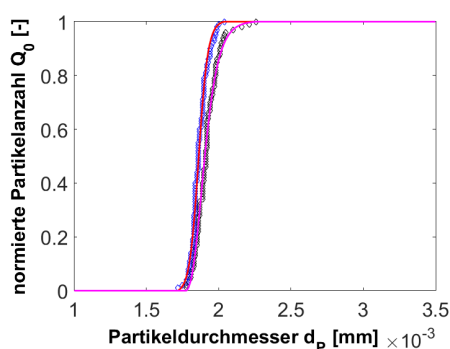
sowohl kameraoptisch als auch mikroskopisch erfasst wurde. Für die Simulation wird die Verteilungsdichte der Partikelgröße benötigt, was bezüglich der Ableitung der Summenverteilung der kameraoptisch (Camsizer) vermessenen Proben auf Grund der hohen Anzahl an vermessenen Partikeln kein Problem darstellt. Die vorliegenden Summenverteilungen der Partikelgröße aus den mikroskopisch vermessenen Proben hingegen, basieren auf 100 Partikeln, was durch Differenzierung zu einer stark gestreuten Dichteverteilung und im nächsten Schritt, bei der numerischen Lösung des Coatingmodells, zu Berechnungsproblemen auf Grund von Unstetigkeiten führt. Um dieses Problem zu beseitigen, können diskrete und äquidistante Klassen eingeführt und die Dichteverteilung als Histogramm dargestellt werden. Dieses Vorgehen ergibt besonders um den Median der Verteilung für die Simulation annehmbare Werte, ist jedoch stark von der Wahl der Anzahl der Klassen bzw. von der Klassenbreite abhängig. Die Ränder der Verteilung werden darüber hinaus nur unzureichend gut wiedergegeben, da diese durch das beschriebene Vorgehen steil und abrupt enden.



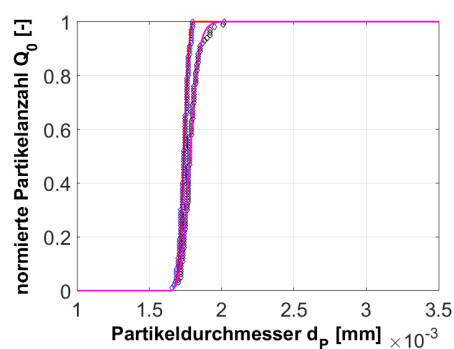
(a) Anpassung an die mikroskopisch bestimmte Summenverteilung Exp. 1.



(b) Anpassung an die mikroskopisch bestimmte Summenverteilung Exp. 2.



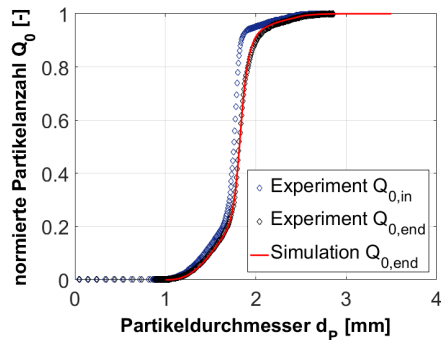
(c) Anpassung an die mikroskopisch bestimmte Summenverteilung Exp. 3.



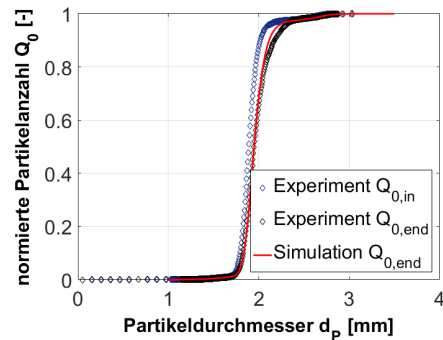
(d) Anpassung an die mikroskopisch bestimmte Summenverteilung Exp. 4.

Abbildung 5.12: Darstellung der mikroskopisch bestimmten Partikelgrößenverteilungen sowie derer Anpassung.

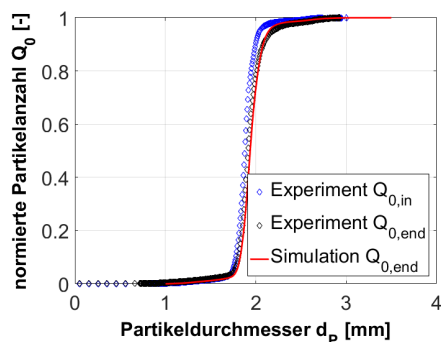
Aus diesem Grund wurde ein weiteres Vorgehen, die Anpassung einer differenzierbaren Sum-



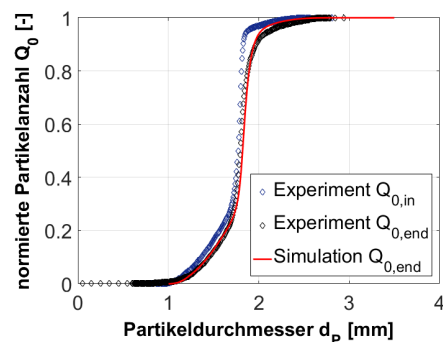
(a) Partikelgrößenverteilung als Simulationsergebnis des Coatingmodells Exp. 1.



(b) Partikelgrößenverteilung als Simulationsergebnis des Coatingmodells Exp. 2.



(c) Partikelgrößenverteilung als Simulationsergebnis des Coatingmodells Exp. 3.



(d) Partikelgrößenverteilung als Simulationsergebnis des Coatingmodells Exp. 4.

Abbildung 5.13: Darstellung der Partikelgrößenverteilungen am Ein-  $\blacklozenge$  und Ausgang  $\blacklozenge$  der kontinuierlichen Wirbelschichttrinne, gemessen mittels Camsizer und berechnet mittels populationsdynamischen Modells (-).

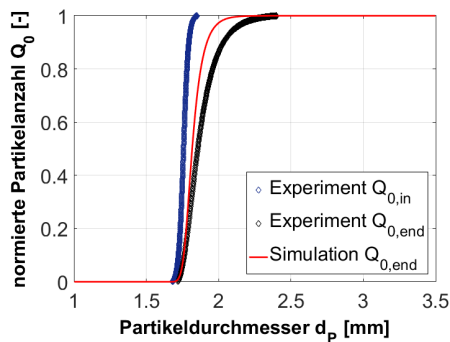
menverteilung an die experimentell bestimmte Verteilung durchgeführt. Die sich hieraus ergebenden Verteilungen sind in Abbildung 5.12 dargestellt. Der Vorteil ergibt sich daraus, dass die Summenverteilung auch am Rand differenziert werden kann, wodurch mehr Information erhalten bleibt.

Es ist zu sehen, dass die jeweilige Anpassung sehr gut mit den mikroskopisch bestimmten Partikelgrößenverteilungen übereinstimmen.

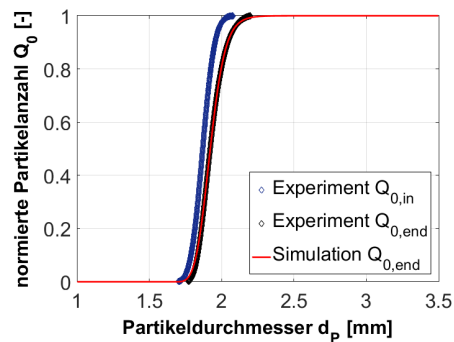
Die aus dem populationsdynamischen Coatingmodell berechneten Partikelgrößenverteilungen sind in Abbildung 5.13 dargestellt. Als Eingangsverteilung der Partikelgröße für die Simulation wurde die mit dem Camsizer gemessene Verteilung genutzt. Die Übereinstimmung der experimentellen Verteilungen mit den simulierten Daten ist für alle Experimente hoch.

In Abbildung 5.14 sind die simulierten Verteilungen der Partikelgröße dargestellt, welche sich aus der mikroskopisch bestimmten Eingangsverteilung ergeben. Jede Raute repräsentiert

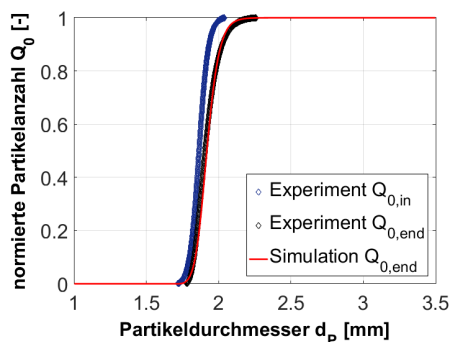




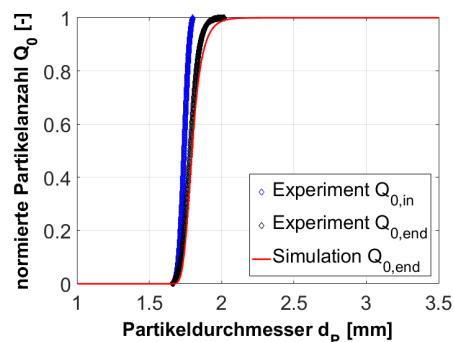
(a) Partikelgrößenverteilung als Simulationsergebnis des Coatingmodells Exp. 1.



(b) Partikelgrößenverteilung als Simulationsergebnis des Coatingmodells Exp. 2.



(c) Partikelgrößenverteilung als Simulationsergebnis des Coatingmodells Exp. 3.



(d) Partikelgrößenverteilung als Simulationsergebnis des Coatingmodells Exp. 4.

Abbildung 5.14: Darstellung der Partikelgrößenverteilungen am Ein- (blau) und Austritt (schwarz) der kontinuierlichen Wirbelschichtrinne, mikroskopisch vermessen und berechnet mittels populationsdynamischen Modells (rot).

hierbei die Vermessung eines Einzelpartikels am Austritt, wobei die normierte Partikelanzahl über den jeweiligen Partikeldurchmesser aufgetragen ist. Die durchgezogene Linie hingegen stellt den Verlauf der simulierten Verteilung am Austritt dar. Die Werte für Mediane und Standardabweichungen, aus den Messungen mit dem Camsizer sowie dem Mikroskop, können ebenfalls Tabelle A.14 im Anhang entnommen werden.

Es ist zu erkennen, dass der Vergleich der simulierten Daten mit den Experimenten eine gute Übereinstimmung aufweist. Lediglich die mikroskopisch bestimmten Partikelgrößen und die daraus resultierenden Simulationsergebnisse für Experiment 1 weichen voneinander ab. Eine Abweichung der mikroskopischen Daten von den kameraoptischen Messungen aus Experiment 1 war bereits in Abschnitt 5.4.1 beobachtbar.

Die resultierenden Schichtdickenverteilungen, welche aus den Partikelgrößenverteilungen nach Abschnitt 5.2.4.1 berechnet wurden, sind in Abbildung 5.15 dargestellt. Es wurden zum einen die Camsizer-Daten als auch die mikroskopischen Daten als Ausgangsverteilung genutzt. Die

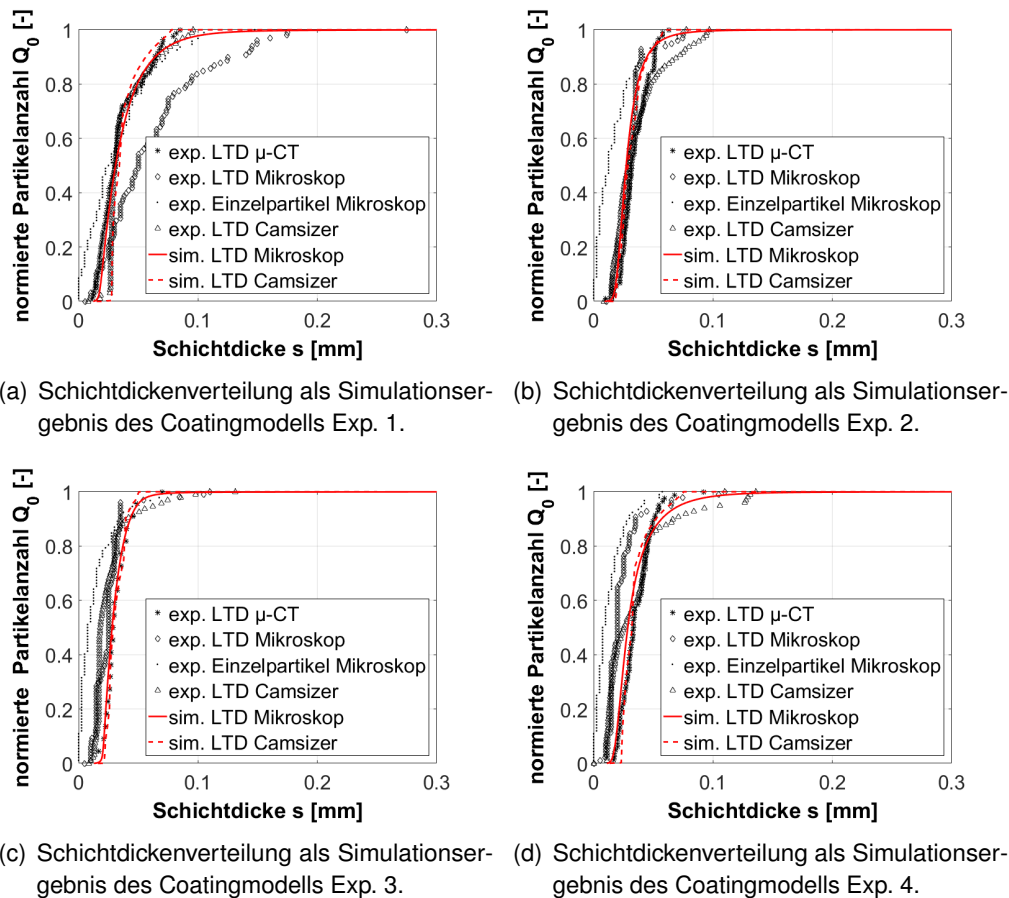
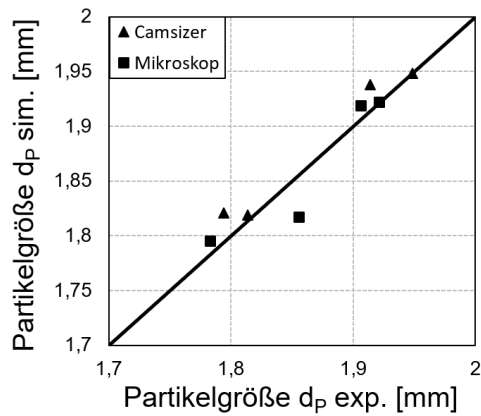


Abbildung 5.15: Darstellung der berechneten und experimentell bestimmten Schichtdickenverteilungen aus der Partikelgrößenverteilung der mikroskopischen und Camsizer-Messungen sowie die experimentell bestimmte Schichtdickenverteilung aus der  $\mu$ -CT Messung.

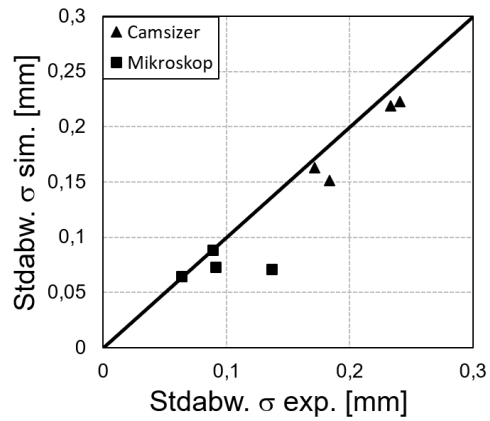
Mediane und Standardabweichungen sind in Tabelle A.15 im Anhang aufgeführt.

Der angestellte Vergleich der simulierten Partikelgrößen- und der resultierenden Schichtdickenverteilungen mit den gemessenen Verteilungen ergibt eine gute Übereinstimmung, sowohl für die kameraoptische Messmethode als auch für die Vermessung mit dem Lichtmikroskop. Auch die direkten Schichtdickenvermessungen mit dem Mikro-Computertomographen ergaben eine hohe Übereinstimmung mit den erzielten Simulationsergebnissen.

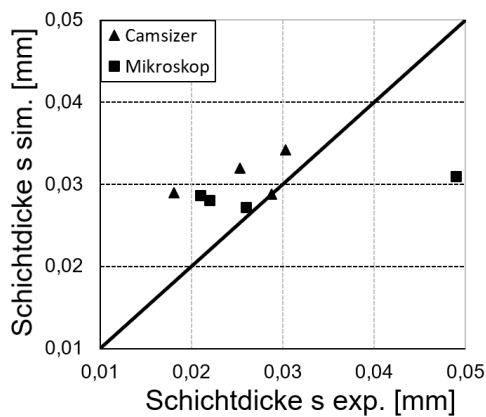
In Abbildung 5.16(a) sind die mittleren Partikeldurchmesser aus der Simulation über die experimentell ermittelten Werte im Paritätsdiagramm dargestellt. Die Dreiecke ( $\blacktriangle$ ) repräsentieren die Werte aus den Camsizer-Messungen und die Quadrate ( $\blacksquare$ ) die der mikroskopisch bestimmten Daten. Es kann für beide Messverfahren eine gute Übereinstimmung von Simulation und Experiment festgestellt werden. Für die Standardabweichungen der Partikelgrößenverteilungen aller Experimente, welche in Abbildung 5.16(b) dargestellt sind, gilt ebenfalls eine gute Übereinstimmung.



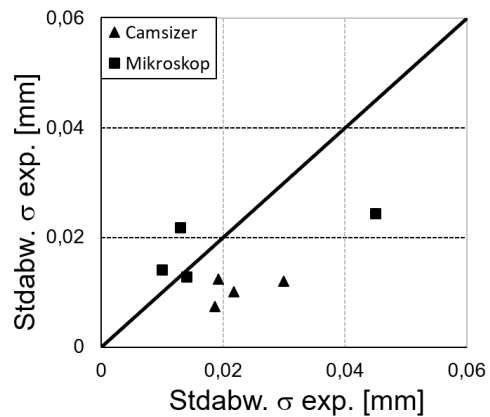
(a) Paritätsdiagramm: Simulierter und experimentell bestimmter mittlerer Partikeldurchmesser  $d_{p,50}$ .



(b) Paritätsdiagramm: Simulierte und experimentell bestimmte Standardabweichung der Partikelgrößenverteilung.



(c) Paritätsdiagramm: Simulierte und experimentell bestimmte mittlere Schichtdicke  $s_{50}$ . Der Wert abseits der Winkelhalbierenden entspricht mittleren Schichtdicke aus Exp. 1 (mikroskopisch vermessen).



(d) Paritätsdiagramm: Simulierte und experimentell bestimmte Standardabweichung der Schichtdickenverteilung. Der Wert abseits der Winkelhalbierenden entspricht mittleren Schichtdicke aus Exp. 1 (mikroskopisch vermessen).

Abbildung 5.16: Darstellung der Übereinstimmung von Simulation und Experiment aller Experimente sowohl für die Camsizer-Daten als auch für die mikroskopisch erhobenen Werte im Paritätsdiagramm. Die Dreiecke ( $\blacktriangle$ ) repräsentieren die Werte aus den Camsizer-Messungen, die Quadrate ( $\blacksquare$ ) die mikroskopisch erfassten Werte.

mung, bei einer mittleren Abweichung von 10% für die mit dem Camsizer ermittelten Daten und 15% für die mikroskopisch bestimmten Werte (siehe Tabelle A.14 im Anhang).

Bei den Medianen der Schichtdickenverteilungen der vier Experimente in Abbildung 5.16(c) lässt sich eine ausreichend gute Übereinstimmung, mit einer mittleren Abweichung aller Experimente von etwa 25%, wiederfinden (siehe Tabelle A.15 im Anhang). Zwar liegt der mikroskopisch bestimmte Wert aus Experiment 1 abseits der Winkelhalbierenden, dies wurde jedoch bereits aus der Partikelgrößenverteilung in Abbildung 5.14(a) ersichtlich und diskutiert. Die verbleibenden Daten liegen entweder nahe der Winkelhalbierenden oder weisen höhere simulierte Werte auf. Bei der Standardabweichung verhält es sich umgekehrt. Die simulierten Standardabweichungen in Abbildung 5.16(d) sind unterbewertet, was dazu führt, dass alle Daten aus den Messungen mit dem Camsizer unterhalb der Winkelhalbierenden liegen. Es ergeben sich mittlere Abweichungen von 50% für die Camsizer-Daten und 26% für die mikroskopisch ermittelten Werte.

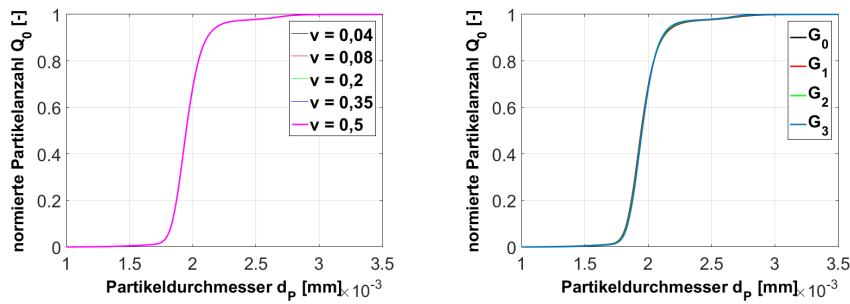
Die gute Übereinstimmung der Partikelgrößenverteilungen und die Abweichungen der Schichtdickenverteilungen lassen darauf schließen, dass die Methode der Umrechnung aus der Partikelgröße in die Schichtdicke nur bedingt anwendbar ist.

### 5.4.3 Variation der Simulationsparameter im Coatingmodell

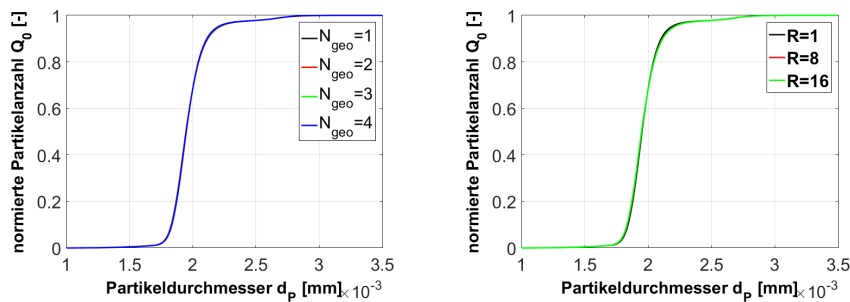
Nachdem im vorhergehenden Abschnitt 5.4.2 gezeigt wurde, dass die simulierten Daten geeignet sind die experimentellen Ergebnisse wiederzugeben, soll in diesem Abschnitt der Einfluss der Simulationsparameter auf das Coatingergebnis untersucht werden. Zunächst stellt sich die Frage des Einflusses des Rückflussparameters  $R$ . Dieser wird direkt aus der Verweilzeitverteilung berechnet. Des Weiteren soll entsprechend das Verhältnis  $\nu$  des Volumens von Sprühzone zum Gesamtvolumen, bzw. der Partikelverweilzeiten in den zwei Zonen untersucht werden. Darüber hinaus soll der Effekt der geometrischen Anzahl von Rührkesseln  $N_{geo}$  sowie der Einfluss der Wachstumsraten  $G_0$  bis  $G_3$  auf das Simulationsergebnis bestimmt werden. Alle weiteren Parameter können Tabelle A.13 im Anhang entnommen werden.

Als Eingangsverteilung wurde hierfür die mit dem Camsizer kameraoptisch ermittelten Daten aus Experiment 2 verwendet, um auf die Anpassung an die experimentellen mikroskopischen Werte verzichten zu können. In Abbildung 5.17 sind die Ergebnisse bezüglich der Partikelgröße dargestellt. Den im Bezug auf den großen Partikeldurchmesser geringen Schichtdicken geschuldet, fallen die Änderungen in dieser Betrachtung, im Vergleich zur Darstellung der Schichtdicke in Abbildung 5.18 gering aus.

In Abbildung 5.17(a) wurde das Verhältnis ( $\nu = 0,04; 0,08; 0,2; 0,35; 0,5$ ) des Sprühzonenvolumens zum Gesamtvolumen variiert. Die verschiedenen Endergebnisse unterscheiden sich jedoch kaum voneinander.



(a) Partikelgrößenverteilung bei Variation des Verhältnisses  $v$ . (b) Partikelgrößenverteilung bei Variation der Wachstumsrate  $G_i$  mit  $i=0,1,2,3$ .



(c) Partikelgrößenverteilung bei Variation der Anzahl von geometrischen Rührkesseln  $N_{geo}$ . (d) Partikelgrößenverteilung bei Variation des Rückflussparameters  $R$ .

Abbildung 5.17: Partikelgrößenverteilungen bei Variation der Simulationsparameter. Variiert wurden das Verhältnis des Sprühzonenvolumens zum Gesamtvolumen  $v$ , die unterschiedlichen Wachstumsraten  $G_0, G_1, G_2$  und  $G_3$ , die Anzahl geometrischer Rührkessel  $N_{geo}$  sowie der Rückflussparameter  $R$ .

Abbildung 5.17(b) zeigt die Ergebnisse aus unterschiedlichen Wachstumsraten, welche jeweils proportional zu genau einem der ersten vier Momente gewählt wurden ( $\lambda_0 = 1 \vee \lambda_1 = 1 \vee \lambda_2 = 1 \vee \lambda_3 = 1$ ). Bei stark vergrößerter Betrachtung wird eine Verschiebung der Verteilungen in Richtung größerer Partikel von  $\lambda_0 = 1$  zu  $\lambda_3 = 1$  sichtbar.

In Abbildung 5.17(c) ist das Simulationsergebnis für eine zunehmende geometrische Anzahl ( $N_{geo} = 1; 2; 4; 6$ ) von Rührkesseln dargestellt. Mit zunehmender Anzahl  $N_{geo}$  sinkt die Varianz der simulierten Endverteilung.

Mit zunehmendem Rückflusskoeffizienten  $R$ , was einer Zunahme der Partikeldispersion und somit einer Abnahme der Bodensteinzahl  $Bo$  entspricht, erhöht sich die Varianz der Partikelgrößenverteilung, was in Abbildung 5.17(d) bei starker Vergrößerung zu sehen ist.

Für die Verteilung der Schichtdicke, berechnet aus der Simulation, gelten auf Grund ihrer Berechnungen aus den Partikelgrößenverteilungen die selben Zusammenhänge.

Eine Zunahme des Verhältnisses  $\nu$  bewirkt kaum eine Änderung der Schichtdicke, wie in Abbildung 5.18(a) zu sehen ist. Die einzelnen Verläufe mit unterschiedlichen Verhältnissen  $\nu$  sind deckungsgleich, weshalb nur die zuletzt dargestellte Verteilung in magenta mit  $\nu = 0,5$  zu sehen ist.

Die Änderung der Wachstumsrate  $G_i$  mit  $i = 0 - 3$  verursacht eine geringfügige Verschiebung der Verteilung in Richtung höherer Schichtdicken, was in Abbildung 5.18(b) dargestellt ist. Die Varianz der Partikelgrößenverteilung steigt von anzahl- hin zu volumenproportionalem Wachstum, also mit zunehmendem  $i$ .

Die Zunahme der Anzahl von geometrischen Rührkesseln  $N_{geo}$ , wie in Abbildung 5.18(c) gezeigt, bewirkt eine Abnahme der Varianz der Schichtdickenverteilung bei gleichbleibender mittleren Schichtdicke.

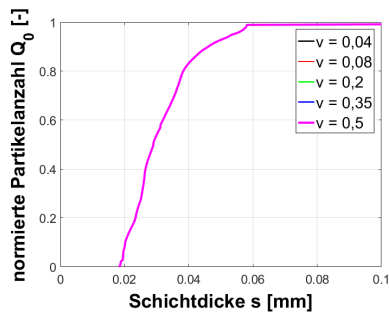
Die Zunahme des Rückflussparameters  $R$  (Abbildung 5.18(d)), was einer Zunahme des Dispersionskoeffizienten bzw. einer Abnahme der Bodensteinzahl entspricht, sorgt für eine Zunahme der Varianz der Schichtdickenverteilung. Die mittlere Schichtdicke steigt nur geringfügig an.

Da die beiden Parameter, Anzahl geometrischer Rührkessel  $N_{geo}$  und der Rückflussparameter  $R$ , von der Varianz der Verweilzeitverteilung und somit von der Bodensteinzahl abhängen, wurde deren gemeinsamer Einfluss auf das Simulationsergebnis untersucht. Hierfür wurde erneut am Beispiel von Experiment 2 der Rückflussparameter  $R$  für  $N_{geo} = 2$  und  $N_{geo} = 6$  aus der gleichen Varianz bzw. Bodensteinzahl von  $Bo = 0,47$  berechnet. Für die Werte von  $R$  ergeben sich 2,59 und 11,85 mit zunehmender Anzahl  $N_{geo}$ . Das Resultat ist graphisch in Abbildung 5.19 dargestellt.

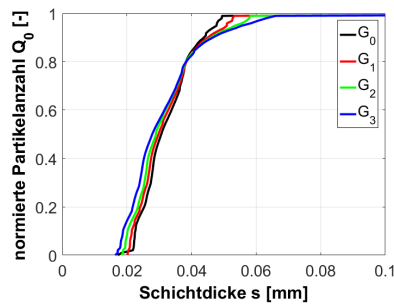
Wie zu erkennen ist, variiert das Ergebnis mit Änderung der Anzahl  $N_{geo}$  bzw. des Rückflussparameters  $R$  bei gleichbleibender Bodensteinzahl  $Bo$  nicht. Dies erweist sich als vorteilhaft, da es oftmals schwierig ist, eine genaue Anzahl  $N_{geo}$  festzulegen. Im vorliegenden Fall besteht ein Längen/Breitenverhältnis der WSR von 5, bei einer Anzahl von 4 Kammern, auf Grund von 3 internen Wehren. Für die Berechnung wurde in dieser Arbeit daher eine Anzahl  $N_{geo} = 4$  festgesetzt und anschließend der Rückflussparameter  $R$  bestimmt. Entscheidend ist somit ausschließlich die Wahl der Bodensteinzahl  $Bo$ .

Um den Coatingprozess und insbesondere den Einfluss der beiden Zonen bzw. der Verweilzeit der Partikel in der Wirbelschichttrinne genauer zu betrachten, wurden weitere Simulationen durchgeführt und deren Ergebnisse, allen voran deren Standardabweichungen, miteinander verglichen. Hierfür wurden auch theoretische Grenzfälle betrachtet, um die simulierten Daten einordnen zu können.

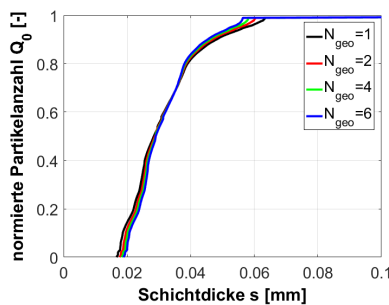
Betrachtet wurden die Fälle eines diskontinuierlichen Rührkessels mit einer sowie mit zwei Zonen. Darüber hinaus wurde das kontinuierliche Wirbelschichtmodell herangezogen und für einen theoretischen Rührkessel ( $N_{th} = 1$ ) sowie für eine Kaskade von Rührkesseln berechnet.



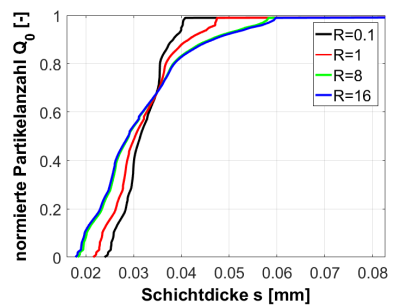
(a) Schichtdickenverteilung bei Variation des Sprühzonenverhältnisses  $v$ .



(b) Schichtdickenverteilung bei Variation der Wachstumsrate  $G_i$  mit  $i=0,1,2,3$ .



(c) Schichtdickenverteilung bei Variation der geometrischen Anzahl von Rührkesseln  $N_{geo}$ .



(d) Schichtdickenverteilung bei Variation des Rückflussparameters  $R$ .

Abbildung 5.18: Schichtdickenverteilungen bei Variation der Simulationsparameter. Variiert wurden das Verhältnis des Sprühzonenvolumens zum Gesamtvolumen  $v$ , die unterschiedlichen Wachstumsraten  $G_0, G_1, G_2$  und  $G_3$ , die Anzahl geometrischer Rührkessel  $N_{geo}$  sowie der Rückflussparameter  $R$ .

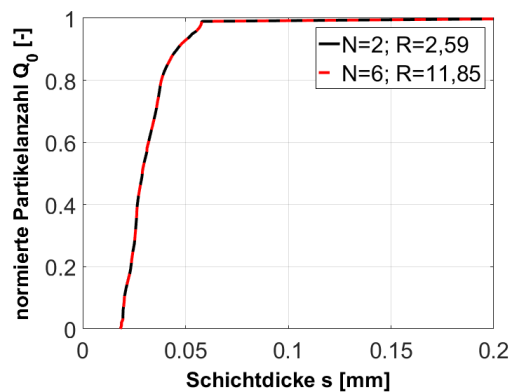


Abbildung 5.19: Die Simulationsergebnisse der Schichtdickenverteilung nach gemeinsamer Variation der Anzahl nicht idealer geometrischer Rührkessel  $N_{geo}$  sowie des Rückflussparameters  $R$  bei konstanter Varianz bzw. Bodensteinzahl der Verweilzeitverteilung.

Tabelle 5.2: Simulationsparameter für die Berechnung des Coatings im kontinuierlichen und diskontinuierlichen Betrieb.

$N_{th}[-]$	$N_{geo}[-]$	$\sigma^2[-]$	$Bo[-]$	$R[-]$
1	4	1	$5,5 \times 10^{-4}$	1773
2	4	1/2	2,55	$9,1 \times 10^{-1}$
4	4	1/4	6,82	$2,4 \times 10^{-4}$
10	12	1/10	18,93	$1,1 \times 10^{-1}$
15	16	1/15	28,81	$3,5 \times 10^{-2}$

Für alle Simulationen wurde eine Bettmasse von 5 kg und die Anfangsbedingungen von Experiment 2 gewählt. Die zugehörige Tabelle 5.2 enthält die Modellparameter für die kontinuierlichen Simulationen.

Die erste Simulationsreihe wurde für den diskontinuierlichen Fall mit einer Zone  $\nu = 1$  für verschiedene Prozesszeiten durchgeführt. Die gleiche Simulationsreihe wurde im Anschluss für zwei Zonen mit  $\nu = 0,5$  und  $\nu = 0,1$  erneut berechnet, was einem Anstieg der Partikelverweilzeit in der Trocknungszone entspricht. Die Varianzen der entsprechenden Simulationen sind in Abbildung 5.20(a) über die Prozesszeit dargestellt.

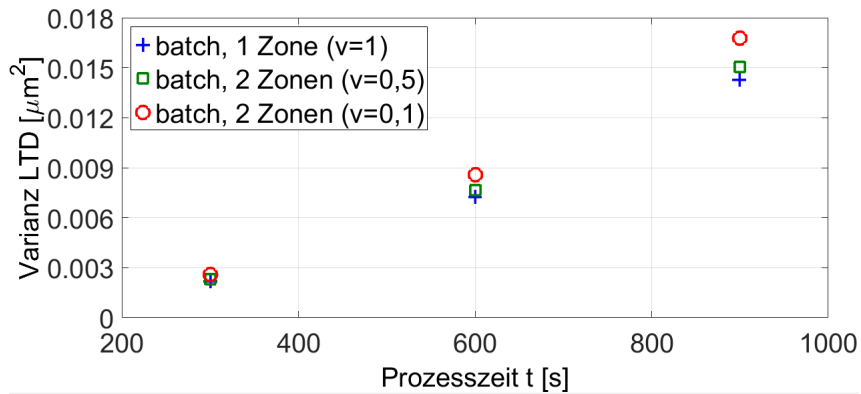
Anschließend wurde der kontinuierliche Prozess für nur eine Zone berechnet, um nur die Rückvermischung zu betrachten und den Effekt der Verweilzeitverteilung innerhalb der beiden Zonen auszuschließen. Die Simulationen wurden für eine Anzahl theoretischer Rührkessel von  $N_{th} = 1, 2, 4, 10$  und  $15$  durchgeführt und miteinander verglichen. Um die kontinuierlichen Simulationen vergleichbar zu machen, wurde sicher gestellt, dass die mittleren Verweilzeiten den Prozesszeiten aus den diskontinuierlichen Simulationen entsprechen. Als Ergebnis der Simulationen sind die Varianzen der Schichtdickenverteilung über die mittleren Verweilzeiten in Abbildung 5.20(b) dargestellt.

Die geringsten Varianzen sind beim diskontinuierlichen Fall mit einer Zone zu erkennen. Im theoretischen Fall, sollte die Varianz den Wert Null annehmen, da es sich um oberflächenproportionales Wachstum handelt. Bei der Simulation weicht der Wert jedoch auf Grund numerischer Diffusion während der Lösung des Modells geringfügig von Null ab. Eine Zunahme der Varianz ist mit steigender Prozesszeit erkennbar, was ebenfalls auf numerische Diffusion zurückzuführen ist.

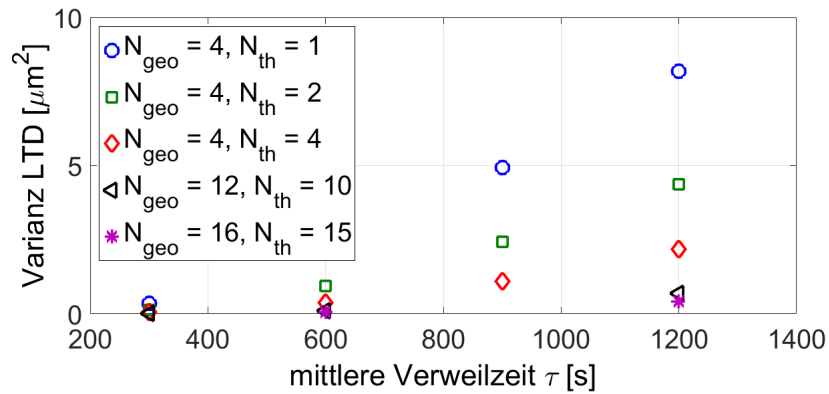
Die Abnahme von  $\nu$  und die Betrachtung einer zweiten Zone, bzw. die Zunahme der Partikelverweilzeit in der Trocknungszone, führt zu einem Anstieg der Varianz der Schichtdickenverteilung. Dies bedeutet, dass es möglich ist, die Schichtdickenverteilung durch die passende Wahl der Eindüsungszone zu beeinflussen.

Im kontinuierlichen Fall wurde zunächst die Anzahl theoretischer Rührkessel entsprechend Gleichung 3.16 aus der dimensionslosen Varianz der Verweilzeitverteilung  $\sigma_{RTD}^2$  bestimmt. Diese





(a) Varianz der Schichtdickenverteilung über die Prozesszeit im diskontinuierlichen Betrieb.



(b) Varianz der Schichtdickenverteilung über die mittlere Verweilzeit im kontinuierlichen Betrieb.

Abbildung 5.20: Varianz der Schichtdickenverteilung über (a) die Prozesszeit im diskontinuierlichen Betrieb und über (b) die mittlere Verweilzeit im kontinuierlichen Fall.

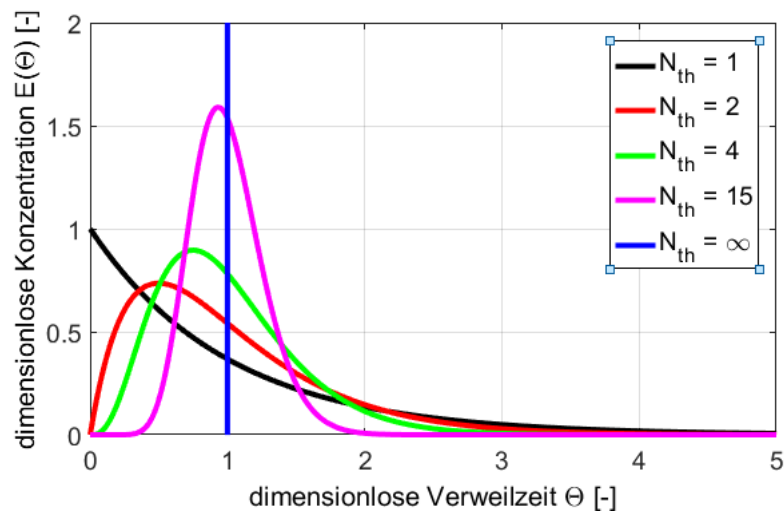


Abbildung 5.21: Dimensionslose Verweilzeitverteilungen für die behandelten Fälle im kontinuierlichen Betrieb. Eine Zunahme der Anzahl theoretischer Rührkessel bewirkt eine geringere Varianz der RTD. Eine unendlich große Anzahl würde einen unendlich hohen Peak um die mittlere Verweilzeit mit einer Varianz von Null ergeben.

wiederum bestimmt den Rückflussparameter  $R$  nach Gleichung 5.16 und die Bodensteinzahl  $Bo$  nach Gleichung 3.14. Alle Parameter sind in Tabelle 5.2 aufgeführt. Die Anzahl  $N_{geo}$  von geometrischen Rührkesseln wurde so gewählt, dass sich ein positiver Wert für  $R$  ergab und die Berechnungszeit kurz gehalten wurde. Wie bereits zuvor geschildert, wirkt sich hierbei die Kombination von  $N_{geo}$  und  $R$  nicht auf das Ergebnis aus, solange der Wert für die Varianz  $\sigma_{RTD}^2$  konstant bleibt. Um die verschiedenen Prozesszeiten der diskontinuierlichen Simulationen in den mittleren Verweilzeiten der kontinuierlichen Simulationen abzubilden, wurde der Partikelmassenstrom entsprechend für eine Bettmasse von 5 kg gewählt. Partikelmassenströme von 0,25, 0,33, 0,5 und 1 kg/min ergeben somit eine mittlere Verweilzeit von 1200, 900, 600 und 300 Sekunden.

Das Ergebnis der kontinuierlichen Simulationen zeigt eine exponentielle Zunahme der Varianz der Schichtdickenverteilung mit zunehmender mittleren Verweilzeit. Die höchste Varianz ist im Fall eines ideal durchmischten Rührkessels  $N_{th} = 1$  zu erkennen, was auf Grund totaler Rückvermischung und hierdurch bedingter breiter Partikelverweilzeit zu erwarten ist.

Mit zunehmender theoretischer Anzahl von Rührkesseln sinkt die Varianz der Schichtdickenverteilung, wie auch die der Verweilzeitverteilung, was in Abbildung 5.21 dargestellt ist.

Eine Anzahl unendlich vieler theoretischer Rührkessel würde eine Schichtdickenvarianz hervorbringen, welche die der Varianz der diskontinuierlichen Berechnung mit einer Zone ( $\sigma = 0$ ) entspricht.

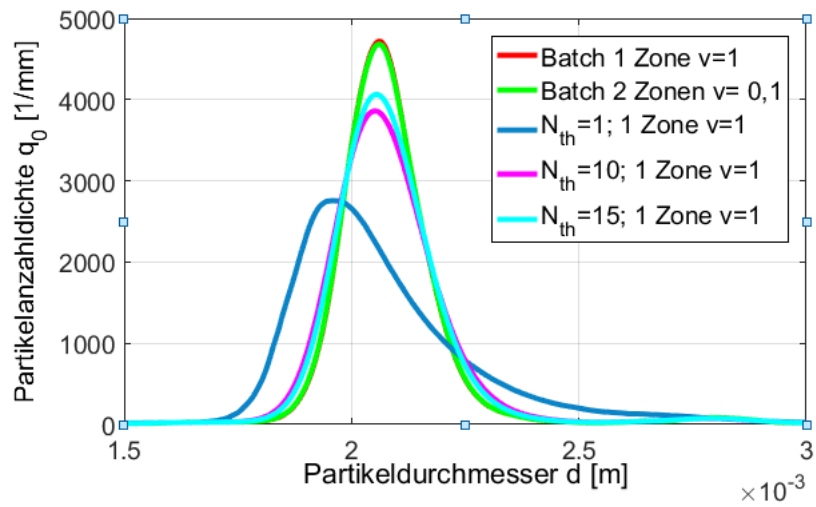


Abbildung 5.22: Partikelgrößenverteilungsdichten aus den betrachteten Fällen für den kontinuierlichen und diskontinuierlichen Betrieb.

Zur Verdeutlichung sind die simulierten Partikelgrößenverteilungen für eine Prozesszeit bzw. mittlere Verweilzeit von 600 s, für alle Berechnungen in Abbildung 5.22 dargestellt.

## 6 Zusammenfassung und Ausblick

Um die aus der vorliegenden Untersuchung gewonnenen Ergebnisse einzuordnen und zu bündeln sowie einen ganzheitlichen Überblick zu erhalten, wird die Arbeit in diesem Kapitel zusammengefasst. In chronologischer Abfolge wird hierbei auf die experimentelle Durchführung und Modellierung der einzelnen Themenkomplexe eingegangen, sowie deren Analyse erläutert. Darüber hinaus soll ein Ausblick helfen, interessante Fragestellungen für zukünftige Untersuchungen anzuregen und mögliche Ansätze zur Problemlösung aufzuzeigen.

### 6.1 Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit ist in drei Hauptabschnitte gegliedert. Das Hauptaugenmerk liegt auf der experimentellen Untersuchung und Korrelation der Bodensteinzahl und der Bettmasse zur Ableitung von Verweilzeitverteilungen in Wirbelschichtrinnen. Des Weiteren wurde die Trocknung in kontinuierlich betriebenen Wirbelschichtrinnen experimentell untersucht, um den Einfluss unterschiedlicher Verweilzeitverteilungen auf die Partikelfeuchteverteilung aufzudecken. Darüber hinaus wurde ein mathematisches Trocknungsmodell abgeleitet und die zuvor entwickelten Korrelationen für die Verweilzeitverteilungen hierin integriert. Weiterführend wurde die Ummantelung von Partikeln, das sog. Coating, experimentell untersucht. Auch hierbei stand der Einfluss der Verweilzeitverteilung auf die Verteilung der Partikeleigenschaften, allen voran die Schichtdicke, im Mittelpunkt. Diese wurde mit einer Vielzahl unterschiedlicher Methoden sowohl für die Partikelpopulation als auch für Einzelpartikel experimentell bestimmt. Die Untersuchung der Schichtporosität ergab kaum eine Abhängigkeit von der Verweilzeitverteilung. Eine populationsdynamische Modellbildung und Simulation der Schichtdickenverteilung, basierend auf der Verweilzeitkorrelation wurde durchgeführt, um zu zeigen, dass eine Vorhersage bei bekannter Verweilzeitverteilung möglich ist.

Zunächst wurde die Thematik der Verweilzeitverteilung in kontinuierlich betriebenen Wirbelschichtrinnen bearbeitet. Nach einer kurzen Einführung in die Grundlagen von Verweilzeituntersuchungen mit Tracerpartikeln, wurden die Möglichkeiten der Analyse solcher Verteilungen charakterisiert, wobei die Bestimmung der wichtigsten Kenngröße bezüglich des Partikeltransports, der Bodensteinzahl, im Mittelpunkt stand.

Neben der standardmäßigen Bestimmung der dimensionslosen Bodensteinzahl aus den Mo-

menten der Verweilzeitverteilung nach Levenspiel (1972), wurden die Anpassung eines Kaskadenmodells sowie der analytischen Lösung der Dispersions-Konvektionsgleichung an die experimentellen Daten auf ihre Güte untersucht. Anhand von drei manuell generierten Extremfällen von Verweilzeitverteilungen erwies sich die analytische Lösung des Dispersionsmodells bzw. ihre Anpassung an die experimentellen Daten als die Stabilste, was anhand der Summe der Fehlerquadrate zwischen Experiment und Berechnung belegt wurde.

Anschließend wurde in einer experimentellen Untersuchung der Einfluss unterschiedlicher Betriebsparameter auf die Verweilzeitverteilung an einer Wirbelschichttrinne sowohl in Technikums- als auch in Labormaßstab durchgeführt. Variiert wurden die Betriebsparameter, woraus sich eine Zunahme der Bodenstein mit zunehmender Partikelgröße, Feststoffdurchsatz und Länge der WSR sowie abnehmender Gasgeschwindigkeit, Austrittswehrhöhe und Breite der WSR ergab.

Darüber hinaus und mit Hinblick auf die Minimierung der Partikeldispersion im System und folglich der Verringerung der Varianz der Verweilzeitverteilung wurde der Einfluss interner Einbauten, in Form von vertikalen Wehren untersucht. Zwei Konfigurationen wurden hierbei betrachtet. Zum einen wurde die Überlaufkonfiguration, in welcher Partikel lediglich über das interne Wehr transportiert werden können, analysiert. Zum anderen stand die Unterlaufkonfiguration, in welcher die internen Einbauten einen Spalt zwischen Gasverteilerplatte und Wehr aufweisen, durch welche Partikeltransport stattfindet, im Fokus. Partikeltransport über die Unterlaufwehre ist auf Grund ihrer Höhe nicht möglich. Die Untersuchung zeigte, dass es möglich ist, auf diese Weise das Transportverhalten von partikulären Gütern zu beeinflussen.

Eine Zunahme der Bodensteinzahl in Unterlaufkonfiguration wurde mit zunehmender Anzahl von Wehren  $N_{Wehr}$ , abnehmender Spalthöhe  $H_{Spalt}$  sowie Zunahme der Partikelgröße  $d_p$  erreicht, was wiederum eine Minimierung der Partikeldispersion bedeutet.

Im Vergleich zum Prozess ohne interne Einbauten und in Unterlaufkonfiguration ergibt sich für die Überlaufkonfiguration bezüglich der zunehmenden Partikelgröße eine abnehmende Bodensteinzahl und somit ein umgekehrter Zusammenhang.

Aufbauend auf den experimentellen Ergebnissen wurde anschließend eine Korrelation für die Bodensteinzahl, zunächst ohne interne Einbauten, erstellt. Diese wurde mit Korrelationen aus der Literatur verglichen und zeigt eine bessere Übereinstimmung, auch für die erhobenen Daten der jeweils anderen Wissenschaftler. Weiterhin wurden zwei Korrelationen für den Betrieb mit internen Einbauten, sowohl für die Überlauf- als auch die Unterlaufkonfiguration abgeleitet. Um eine Abschätzung der mittleren Partikelverweilzeit geben zu können, wurde eine Korrelation für eine scheinbare Bettporosität im fluidisierten Zustand hergeleitet. Der Vorteil zur allgemeinen Berechnung ist, dass hierfür die bekannte Höhe des Austrittswehres zur Berechnung der Bettmasse und nicht die unbekannte Betthöhe im fluidisierten Zustand verwendet wird. Ein Vergleich mit der allgemein gültigen Korrelation aus der Literatur nach Richardson und Zaki

(1954) belegt eine bessere Übereinstimmung mit experimentell gemessenen Bettmassen.

Abschließend wurden korrelierte Verweilzeitverteilungen zuvor gemessenen Verteilungen graphisch gegenüber gestellt, wobei ein gutes Ergebnis, selbst bei größeren Abweichungen zwischen korrelierter und experimentell bestimmter Bodensteinzahlen, erzielt wurde. Da es sich bei den vorgestellten Korrelationen um rein empirische Gleichungen handelt, liegt ihre Gültigkeit im Bereich der untersuchten Dimensionen.

Um die Auswirkung unterschiedlicher Verweilzeitverteilungen auf relevante Wirbelschichtprozesse zu klären, wurde die Trocknung in der Wirbelschichttrinne untersucht. Hierfür wurde zunächst eine Einführung in die Vorgehensweise von Trocknungsexperimenten gegeben und theoretische Grundlagen für das weitere Verständnis wurden zusammengestellt. Da die Verteilung der Feuchtebeladung über die Population von Interesse war, wurde nachfolgend die experimentelle Bestimmung der Feuchtebeladung von Einzelpartikeln beschrieben. Mit einer Parametervariation wurde fortführend der Einfluss der Betriebsparameter auf das Trocknungsergebnis, allem voran auf die Partikelfeuchteverteilung, untersucht. Als problematisch stellte sich bei der experimentellen Vorbereitung die Generierung von Partikelschüttungen mit einheitlicher Feuchteverteilung heraus, was die Voraussetzung für eine gute Vergleichbarkeit darstellt. Deshalb ist bei einigen Experimenten der Vergleich nur unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Eingangsbedingungen zu bewerten.

Eine Zunahme der Gastemperatur bewirkt eine schnellere Trocknung und mit zunehmender Austrittswehrhöhe verschiebt sich die Feuchteverteilung in Richtung trockener Partikel, was auf die resultierende höhere Partikelverweilzeit zurückzuführen ist.

Eine Zunahme der Anzahl interner Wehre  $N_{Wehr}$  ergibt eine geringere Varianz der Feuchteverteilung auf Grund der erhöhten Bodensteinzahl und der einhergehenden verringerten Partikeldispersion. Den gleichen Effekt zeigt eine Abnahme der Spalthöhe  $H_{Spalt}$  in Unterlaufkonfiguration.

Im Anschluss an die experimentelle Untersuchung wurde die Modellierung der Trocknungsprozesse erläutert. Mit Hilfe von Populationsbilanzgleichungen wurde auf Basis von Burgschweiger und Tsotsas (2002), Peglow u. a. (2007) sowie Cunäus u. a. (2008) ein dynamisches Modell erweitert, dessen Kern die Einbindung der zuvor korrelierten Verweilzeitverteilung darstellt. Diese Integration erfolgte zunächst über ein Kaskadenmodell, wobei das mathematische Modell mehrfach nacheinander für aufeinanderfolgende ideal durchmischte Rührkessel (CSTR) berechnet wurde. Die Anzahl der CSTRs ergibt sich hierfür aus der Verweilzeitverteilung bzw. aus ihrer reziproken dimensionslosen Varianz. Da das Trocknungsproblem hierdurch jedoch nur für eine ganzzahlige Anzahl von CSTRs gelöst werden kann, wurde eine zweite Herangehensweise abgeleitet. Hierfür wird die normierte Verweilzeitverteilung selbst für den Partikelabzug aus dem System genutzt. Die Übereinstimmung der Ergebnisse beider Methoden wurde anhand von zwei Trocknungssimulationen bestätigt.

Nachfolgend wurden die experimentell bestimmten Partikelfeuchteverteilungen mit Hilfe des Verweilzeitmodells berechnet und verglichen. Die Übereinstimmung der experimentellen Verteilungen mit den Simulationen stellt sich als befriedigend heraus. Auf der einen Seite wurden die mittleren Feuchten der Verteilungen ( $X_{50}$ ) gut durch die berechneten Daten abgebildet, auf der anderen Seite waren jedoch die Varianzen aller berechneten Verteilungen deutlich höher als die der Experimente. Der Grund hierfür liegt in der Berechnung der Partikelfeuchte und in den getroffenen Annahmen. Das eindimensionale Populationsbilanzmodell mit der Verweilzeit als interne Koordinate ist nicht in der Lage, das zweidimensionale Problem mit verteilter Partikeleintrittsfeuchte und Verweilzeitverteilung besser abzubilden.

Abschließend wurde eine Parameterstudie zum Trocknungsmodell durchgeführt, welche eine Verschiebung der Verteilung in Richtung kleiner Partikelfeuchte mit zunehmender Wehranzahl, Austrittswehrhöhe und Gaseintrittstemperatur sowie abnehmender Partikeleintrittsfeuchte sowie kritischer Partikelfeuchte ergab. Eine deutliche Abnahme der Varianz wurde durch eine geringere Spalthöhe der Unterlaufwehre sowie durch die Zunahme der Anzahl interne Wehre erreicht.

Im dritten Teil der vorliegenden Arbeit rückt das Coating in den Mittelpunkt. Ziel war die experimentelle Untersuchung des Prozesses sowie die anschließende Modellbildung und Validierung mit der Schichtdickenverteilung als Zielgröße.

Auch hierfür wurden Grundlagen zur experimentellen Untersuchung erläutert und im Anschluss die Möglichkeiten der Probenanalyse diskutiert. Hierbei kam eine Vielzahl von Methoden zum Einsatz. Die Bestimmung der Schichtporosität wurde mit einem Mikrocomputertomographen für Einzelpartikel und mit der Mikroskopie sowie Gravimetrie für die Partikelpopulation durchgeführt. Zur Bestimmung der Schichtdickenverteilung wurden ein Mikrocomputertomograph sowie ein Mikroskop und ein kameraoptisches System verwendet.

Im Anschluss an die diversen Analysemethoden wurde ein populationsdynamisches Wirbelschichtmodell zum Partikelwachstum vorgestellt, welches das Partikelverweilzeitverhalten einbezieht und die Partikelgröße als interne Koordinate beschreibt. Um die Verweilzeitverteilung zu berücksichtigen wurde ein Kaskadenmodell mit Rückfluss gewählt, wobei sich der Rückflussparameter  $R$  aus der dimensionslosen Varianz  $\sigma^2$  ergibt, welche wiederum aus der korrelierten Bodensteinzahl  $Bo$  hervorgeht. Aus der simulierten Partikelgrößenverteilung wurde anschließend die Schichtdickenverteilung, aus der Differenz der Partikelgrößenverteilungen am Ein- und Austritt berechnet.

In einer Parameterstudie zum Modell wurde kaum ein Effekt des Verhältnisses von Sprüh- zu Trocknungszone auf die berechnete Schichtdickenverteilung festgestellt. Die Variation der Wachstumsrate von anzahl-, längen-, oberflächen- bis zu volumenproportional, zog sowohl eine Verschiebung des Medians der Verteilung in Richtung größerer Schichtdicken als auch eine Erhöhung der Standardabweichung nach sich. Eine Zunahme der Anzahl interner Wehre  $N_{Wehr}$  sowie eine Abnahme des Rückflussparameters  $R$  bewirkten eine Abnahme der Standardabwei-

chung bei gleichbleibendem Mittelwert.

In einer Reihe von Experimenten mit variiert Höhe des Austrittswehrs und verschiedenen Konfigurationen interner Wehre, wurden unterschiedliche Verweilzeitverteilungen abgebildet. Die generierten Proben wurden schließlich auf die Schichtporosität von Einzelpartikeln sowie über die Partikelpopulation untersucht. Die Porositäten der einzelnen Experimente lagen hierbei nah beieinander, sowohl für ausgewählte Einzelpartikel als auch für die Verteilung über die Population. Dies ist zu erwarten, da die Porosität nach Rieck u. a. (2015) sowie Hoffmann u. a. (2015) zum größten Teil von den Trocknungsbedingungen während des Prozesses abhängt, welche bei der Untersuchung zum Coating nahezu konstant gewählt wurden.

Die Untersuchung der Schichtdickenverteilung auf Einzelpartikeln sowie über die Partikelpopulation ergab ähnliche Resultate und nur geringe Abweichungen voneinander. Dies lässt darauf schließen, dass die geringe Verweilzeit der Partikel in der Wirbelschichttrinne nur kleine Unterschiede im langsamen Partikelwachstum hervorbringt. Bei einer drastischen Verringerung des Partikeldurchsatzes würde sich die mittlere Verweilzeit stark erhöhen und der Einfluss der Verweilzeitverteilung stärker zum Vorschein kommen.

Ein Vergleich der experimentellen Partikelgrößenverteilungen mit den simulierten Verteilungen aus dem populationsdynamischen Modell ergab eine gute Übereinstimmung der Datensätze.

Im Vergleich zum Trocknungsmodell, wurde mit dem vorgestellten, eindimensionalen Coatingmodell ein eindimensionales Problem, der verteilten Partikelgröße, beschrieben. Daher ergibt sich die gute Übereinstimmung von Experiment und Simulation hinsichtlich der Partikelgrößenverteilung.

Die Tatsache, dass die Schichtdicke aus der Differenz der Partikelgrößenverteilungen gewonnen wird, verlangt jedoch die Annahme, dass alle Partikel einer Größenklasse nach dem Wachstum genau einer anderen Größenklasse zugeordnet werden können. Die Daten aus den mikroskopischen Messungen legen jedoch nahe, dass hierdurch Information verloren geht und die Schichtdickenverteilung eine geringfügig breitere Varianz aufweisen sollte, was letztendlich durch einen Vergleich experimenteller und simulierter Daten belegt wird. Dies könnte in Zukunft, durch die Einführung der Schichtdicke als weitere interne Eigenschaftskordinate eines erweiterten Populationsbilanzmodells behoben werden.

## 6.2 Ausblick

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Problematik der Verweilzeitverteilung von Partikeln beim kontinuierlichen Prozess in Wirbelschichttrinnen und der resultierenden Verteilung der Partikeleigenschaften im Produkt. Es wurde gezeigt, dass es möglich ist die Verweilzeitverteilung für einen beliebigen Prozess mit Hilfe einer empirischen Korrelation vorherzusagen, was



jedoch nur für äquidistant verteilte interne Wehre gilt. Daher wäre es ratsam, auch für den Fall nicht gleichverteilter Einbauten mathematische Ausdrücke herzuleiten.

Bezüglich der Modellierung des Trocknungsprozesses und der sich ergebenden Diskrepanz zwischen Simulation und Experiment, kann die Herleitung eines Trocknungsmodells mit der Partikelfeuchte als interne Koordinate ein wichtiger Schritt sein. Damit könnten auch verteilte Eingangsgrößen in der Berechnung berücksichtigt werden.

Die Resultate der Coatinguntersuchung zeigten nur geringfügige Unterschiede bzgl. der Verteilung von Porosität und Schichtdicke beim Vergleich der Experimente. Daher sollte eine weitere Untersuchung mit deutlich längeren Partikelverweilzeiten folgen, was beispielsweise durch Verringerung des Feststoffdurchsatzes realisiert werden kann. Somit kann der Einfluss der Verweilzeitverteilung auf das Coatingergebnis deutlich hervorgehoben werden.

Die mathematische Beschreibung des Coatings auf Einzelpartikeln wäre zukünftig interessant, um das Partikelwachstum auch auf mikroskopischer Ebene zu verstehen und beschreiben zu können.

Die Betrachtung anderer kontinuierlicher Prozesse, wie etwa die Agglomeration, sollte zukünftig von Interesse bei weiteren experimentellen Untersuchungen sein. Hierfür müssten die Korrelationen für die Verweilzeitverteilungen angepasst werden, da es sich um einen Prozess mit starkem Partikelwachstum handelt. Findet beim Coating nur der Aufbau dünner Schichten auf einem verhältnismäßig großem Partikel statt, so wächst ein Partikel bei der Agglomeration um ein vielfaches des Durchmessers seiner Primärpartikel. Denkbar wäre die Integration der Korrelation zur Bestimmung von Verweilzeitverteilungen über den Partikeldurchmesser, was wiederum experimentell gestützt werden muss.

# **A Messwerte und Simulationsergebnisse**

Tabelle A.1: Zusammenfassung der Versuchsparameter und experimentell bestimmten Bodensteinzahlen aus der Variation von Gasgeschwindigkeit, Partikelgröße, Feststoffdurchsatz und Austragswehrhöhe.

Nr.	Anlage	$u_G$ [m/s]	$d_P$ [mm]	$L_{WSR}$ [m]	$B_{WSR}$ [m]	$H_{Wehr,out}$ [m]	$Bo_{exp}$ [-]	$M_{Bett}$ [kg]	$\bar{\tau}$ [s]	$\dot{M}_P$ [kg/min]
1	Technikum	2,8	3	1,0	0,2	0,175	0,68	9,97	568	1,05
2	Technikum	2,8	3	1,0	0,15	0,175	0,71	6,14	358	1,03
3	Technikum	2,8	1,8	1,0	0,15	0,175	0,58	7,36	429	1,03
4	Technikum	2,8	1,8	1,0	0,13	0,175	0,63	4,84	297	0,98
5	Technikum	1,9	1,8	1,0	0,2	0,175	0,59	9,78	614	0,96
6	Technikum	1,9	1,8	1,0	0,2	0,175	0,43	8,92	932	0,57
7	Technikum	1,9	1,8	1,0	0,2	0,175	0,7	9,87	402	1,47
8	Labor	2,8	1,8	0,53	0,08	0,18	0,37	1,4	406	0,21
9	Labor	2,8	3	0,4	0,08	0,18	0,22	1,56	451	0,21
10	Labor	2,8	1,8	0,64	0,08	0,18	0,37	1,58	475	0,2
11	Labor	2,8	3	0,64	0,08	0,18	0,41	2,7	776	0,21
12	Labor	2,8	1,8	0,4	0,08	0,18	0,28	1,14	332	0,21
13	Labor	2,8	1,8	0,64	0,08	0,18	0,34	1,58	475	0,20
14	Labor	2,8	1,8	0,64	0,08	0,09	1,06	1,03	305	0,20
15	Labor	3,4	1,8	0,64	0,08	0,18	0,44	0,96	293	0,20
16	Labor	3,4	1,8	0,64	0,08	0,09	0,94	0,67	193	0,21

Tabelle A.2: Zusammenfassung der wichtigsten Parameter aus den Arbeiten von Reay (1978), Nilsson (1986) und Khanali u. a. (2012).

Material		Reay	Nilsson	Nilsson	Khanali et al.
		(1978)	(1986)	(1986)	(2012)
		Kupferschrot	Sand	Apatit	Reis
$d_P$	[mm]	0,39	0,28	3,60	3,43
Geldart		B	B	D	D
Klassifikation					
$\rho_P$	[kg/m <sup>3</sup> ]	8920	2500	2570	857
$L_{WSR}$	[m]	0,4-1	2,1	2,1	1
$B_{WSR}$	[m]	0,04-0,1	0,2	0,1	0,08
$H_{Wehr,out}$	[m]	0,035-0,087	0,041-0,165	0,041-0,165	0,05-0,1
$\dot{M}_P$	[kg/s]	0,01	0,008-0,19	0,028-0,045	0,0008- 0,0023
$u_G$	[m/s]	0,6 – 0,95	0,16-0,87	2,18-2,4	2,5
$u_{mf,exp}$	[m/s]	0,45	0,01-0,22	2,0	1,7

Tabelle A.3: Zusammenfassung der Versuchsparameter und experimentell bestimmten Bodensteinzahlen der Untersuchung mit internen Wehren bei einer Gastemperatur von  $\vartheta_{G,in} = 20^{\circ}\text{C}$ .

Nr.	$H_{Wehr,out}$ [mm]	$H_{Wehr}$ [mm]	$H_{Spalt}$ [mm]	$N_{Wehr}$ [-]	$d_p$ [mm]	$u_G$ [m/s]	$\dot{M}_P$ [kg/s]	Anlagen- $Bo_{exp.}$ typ	$Bo_{exp.}$ [-]	$M_{Bett}$ [kg]
1	175	500	12	3	1,8	2,4	0,018	Techn.	1,16	8,80
2	175	500	12	3	1,8	2,9	0,017	Techn.	2,30	6,20
3	175	500	12	3	1,8	1,9	0,024	Techn.	1,21	9,61
4	175	500	12	3	3	2,4	0,018	Techn.	1,88	13,16
5	175	500	12	3	1,8	1,9	0,009	Techn.	0,92	8,84
6	175	500	6	3	1,8	1,9	0,009	Techn.	1,14	8,80
7	175	500	6	3	1,8	1,9	0,017	Techn.	1,53	9,04
8	175	500	6	3	1,8	1,9	0,025	Techn.	2,73	9,93
9	175	500	12	3	1,8	1,9	0,017	Techn.	1,19	9,56
10	175	500	12	3	1,8	1,9	0,023	Techn.	1,75	9,30
11	175	500	4	3	1,8	1,9	0,016	Techn.	2,34	9,64
12	175	500	4	3	1,8	1,9	0,009	Techn.	1,66	8,41
13	175	500	4	3	1,8	1,9	0,025	Techn.	3,77	9,52
14	175	500	12	3	1,8	2,0	0,017	Techn.	1,03	8,89
15	175	500	6	3	1,8	1,0	0,016	Techn.	3,27	15,07
16	175	500	6	3	1,8	1,3	0,017	Techn.	2,45	12,36
17	175	500	6	3	1,8	1,7	0,016	Techn.	1,85	10,27
18	35	500	6	3	1,8	0,9	0,017	Techn.	7,99	4,72
19	35	500	6	3	1,8	1,0	0,017	Techn.	7,88	4,25
20	35	500	6	3	1,8	1,3	0,017	Techn.	6,08	3,63
21	35	500	6	3	1,8	1,4	0,017	Techn.	5,41	3,39
22	95	500	6	3	1,8	1,7	0,017	Techn.	3,18	6,20
23	95	500	6	3	1,8	1,4	0,017	Techn.	3,26	7,58
24	95	500	6	3	1,8	1,1	0,017	Techn.	4,31	9,15
25	180	500	6	3	1,8	1,9	0,002	Labor	1,59	1,51
26	180	500	6	3	1,8	2,3	0,002	Labor	1,46	1,31
27	180	500	6	3	1,8	2,7	0,002	Labor	1,75	1,12
28	90	500	6	3	1,8	1,8	0,002	Labor	2,62	1,01
29	90	500	6	3	1,8	2,0	0,002	Labor	2,16	0,91
30	90	500	6	3	1,8	2,4	0,002	Labor	1,88	0,85

Tabelle A.4: Zusammenfassung der Versuchsparameter und experimentell bestimmten Bodensteinzahlen der Untersuchung mit internen Wehren bei einer Gastemperatur von  $\vartheta_{G,in} = 20^{\circ}\text{C}$ .

Nr.	$H_{Wehr,out}$ [mm]	$H_{Wehr}$ [mm]	$H_{Spalt}$ [mm]	$N_{Wehr}$ [-]	$d_p$ [mm]	$u_G$ [m/s]	$\dot{M}_P$ [kg/s]	Anlagen- $Bo_{exp.}$ typ	$Bo_{exp.}$ [-]	$M_{Bett}$ [kg]
31	30	500	6	3	1,8	1,7	0,002	Labor	4,08	0,60
32	30	500	6	3	1,8	2,0	0,002	Labor	3,22	0,59
33	30	500	6	3	1,8	2,4	0,002	Labor	3,89	0,50
34	180	500	6	3	1,8	2,4	0,004	Labor	2,81	1,57
35	180	500	6	3	1,8	1,9	0,005	Labor	3,47	1,79
36	35	500	6	3	1,8	1,2	0,016	Techn.	9,56	3,36
37	95	500	6	3	1,8	1,7	0,012	Techn.	4,87	5,05
38	200	500	12	8	1,8	1,7	0,020	Techn.	3,74	13,93
39	175	500	9	3	1,8	1,7	0,016	Techn.	2,06	10,67
40	175	500	9	3	3	1,7	0,017	Techn.	5,61	16,31
41	200	500	6	8	1,8	1,7	0,017	Techn.	6,90	12,56
42	175	500	12	8	3	1,7	0,018	Techn.	9,61	16,46
43	175	500	12	3	3	1,7	0,020	Techn.	5,10	16,10
44	175	500	12	3	1,8	1,7	0,016	Techn.	2,33	13,40
45	180	500	6	1	1,8	2,8	0,004	Labor	1,87	1,44
46	180	500	9	1	1,8	2,8	0,004	Labor	1,21	1,39
47	180	500	6	2	1,8	2,8	0,004	Labor	2,52	1,33
48	180	500	9	2	1,8	2,8	0,004	Labor	1,57	1,48
49	180	500	15	2	1,8	2,8	0,003	Labor	0,73	1,46
50	90	500	3	1	1,8	2,8	0,003	Labor	1,73	0,92
51	90	500	6	1	1,8	2,8	0,003	Labor	1,84	0,87
52	90	500	9	1	1,8	2,8	0,003	Labor	1,04	0,92
53	90	500	3	2	1,8	2,8	0,003	Labor	3,30	0,76
54	90	500	6	2	1,8	2,8	0,003	Labor	2,83	0,79
55	90	500	9	2	1,8	2,8	0,003	Labor	2,24	0,92
56	90	500	15	2	1,8	2,8	0,003	Labor	1,68	0,90
57	175	175	-	3	1,8	2,9	0,018	Techn.	1,42	7,15
58	175	175	-	3	3	2,9	0,018	Techn.	0,96	12,79
59	175	175	-	3	3	2,9	0,018	Techn.	1,03	12,79
60	195	195	-	3	1,8	1,7	0,017	Techn.	2,46	12,46
61	85	85	-	3	1,8	1,7	0,017	Techn.	3,22	5,27
62	195	195	-	3	1,8	1,7	0,016	Techn.	2,15	13,39

Tabelle A.5: Betriebsparameter aus der Untersuchung zur nichtäquidistanten Platzierung der internen Wehre bei einer Gastemperatur von  $\vartheta_{G,in} = 20^{\circ}\text{C}$ .

			Exp. 1	Exp. 2
Länge WSR	$L_{WSR}$	[m]	1	1
Breite WSR	$B_{WSR}$	[m]	0,2	0,2
Abstand zum Partikeleinlass		[m]	0,33	0,67
Wehrmodifikation			Unterlauf	Unterlauf
Höhe Austrittswehr	$H_{Wehr,out}$	[mm]	175	175
Wehrhöhe	$H_{Wehr}$	[mm]	500	500
Spalthöhe	$H_{Spalt}$	[mm]	12	12
Anzahl Wehre	$N_{Wehr}$	[-]	1	1
Partikeldurchmesser	$d_P$	[mm]	1,8	1,8
Gasgeschwindigkeit	$u_G$	[m/s]	1,7	1,7
Feststoffdurchsatz	$\dot{M}_P$	[kg/s]	0,016	0,016
Anlagentyp			Techn.	Techn.
Bodensteinzahl exp.	$Bo$	[-]	0,8356	0,6113
Dispersionskoef. exp.	$D$		$1,9 \times 10^{-3}$	$2,1 \times 10^{-3}$
Bettmasse exp.	$M_{Bett}$	[kg]	10,48	12,99
mittlere Verweilzeit	$\bar{\tau}$	[s]	629	779

Tabelle A.6: Betriebsparameter aus der Untersuchung der Abhängigkeit der Bodensteinzahl vom Massenanteil bei Partikelmischungen.

	$Bo_{exp}$	$Bo_{korr}$	$q_{in}$	$H_{Spalt}$	$N_{Wehr}$	$L_{WSR}$	$B_{WSR}$	$H_{Wehr,out}$	$u_G$	$\dot{M}_P$
	[-]	[-]	[-]	[mm]	[-]	[m]	[m]	[m]	[m/s]	[kg/s]
Unterlauf										
1	2,05	2,77	0,25	12	3	1	0,2	0,175	1,7	0,0167
2	3,86	2,21	0,5	12	3	1	0,2	0,175	1,7	0,0178
3	1,78	1,64	0,76	12	3	1	0,2	0,175	1,7	0,0167
Überlauf										
4	1,71	2,13	0,35	-	3	1	0,2	0,175	1,7	0,0162
5	2,29	2,12	0,54	-	3	1	0,2	0,175	1,7	0,0167
6	1,36	2,16	0,73	-	3	1	0,2	0,175	1,7	0,0174
ohne										
Einbauten										
7	0,66	0,91	0,36	-	0	1	0,2	0,175	1,7	0,0168
8	0,54	0,80	0,52	-	0	1	0,2	0,175	1,7	0,0159
9	0,56	0,72	0,75	-	0	1	0,2	0,175	1,7	0,0165

Tabelle A.7: Bestimmtheitsmaße  $R^2$  und Anstiege der Regressionsgeraden im Bodenstein-Paritätsdiagramm der eigenen Daten sowie der Datensätze von Reay (1978), Nilsson (1986) und Khanali u. a. (2012). Für die Korrelationen wurden zum Vergleich sowohl die zuvor erstellte Gleichung 3.45 als auch die Gleichungen von Reay (1978) sowie Nilsson (1986) genutzt.

Bestimmtheitsmaß $R^2$	eigene Daten	Daten Reay	Daten Nilsson	Daten Khanali
eigene Korrelation	0,88	0,69	0,54	0,96
Korrelation Reay	0,16	0,74	0,72	0,82
Korrelation Nilsson	0,23	0,72	0,91	0,91
<b>Anstieg</b>				
eigene Korrelation	1,03	1,00	1,03	1,01
Korrelation Reay	0,23	1,45	0,35	0,73
Korrelation Nilsson	0,65	2,37	1,01	1,55

Tabelle A.8: Betriebsparameter zu den durchgeführten Versuchen zur Korrelation der Bettmasse.

Nr.	$L_{WSR}$	$B_{WSR}$	$H_{wehr,out}$	$\dot{M}_P$	$u_G$	exp. $M_{Bett}$	korr. $M_{Bett}$
[-]	[m]	[m]	[m]	[kg/min]	[m/s]	[kg]	[kg]
1	1	0,2	0,095	0,26	1,9	4,4	5,1
2	1	0,2	0,095	0,5	1,9	4,7	5,1
3	1	0,2	0,095	1	1,9	5,2	5,1
4	1	0,2	0,095	1,5	1,9	5,5	5,1
5	1	0,1	0,095	0,26	1,9	2,8	2,6
6	1	0,1	0,095	0,5	1,9	3,2	2,6
7	1	0,1	0,095	1	1,9	3,5	2,6
8	1	0,1	0,095	1,5	1,9	3,9	2,6
9	1	0,2	0,095	0,26	2,8	2,8	2,7
10	1	0,2	0,095	1	2,8	3,5	2,7
11	1	0,2	0,095	2,5	2,8	4,8	2,7
12	1	0,2	0,095	2,5	2,8	4,9	2,7
13	1	0,1	0,095	0,26	2,8	1,6	1,4
14	1	0,1	0,095	0,5	2,8	1,8	1,4
15	1	0,1	0,095	1	2,8	2,1	1,4
16	1	0,2	0,095	0,26	1,6	5,3	6,2
17	1	0,2	0,095	1	1,6	6,4	6,2
18	1	0,2	0,095	2,5	1,6	7,7	6,2
19	1	0,1	0,095	0,26	1,6	3,4	3,1
20	1	0,1	0,095	0,5	1,6	3,7	3,1
21	1	0,1	0,095	1	1,6	4,1	3,1
22	1	0,15	0,095	0,26	1,9	3,6	3,9
23	1	0,15	0,095	0,5	1,9	3,7	3,9
24	1	0,15	0,095	1	1,9	4,2	3,9
25	1	0,15	0,095	1,5	1,9	4,5	3,9
26	1	0,15	0,095	0,26	2,8	2,1	2,0
27	1	0,15	0,095	0,5	2,8	2,4	2,0
28	1	0,15	0,095	1	2,8	2,7	2,0
29	1	0,15	0,095	0,26	1,6	4,0	4,7
30	1	0,15	0,095	0,5	1,6	4,3	4,7
31	1	0,15	0,095	1	1,6	5,0	4,7
32	1	0,2	0,095	0,26	1,9	4,4	5,1
33	1	0,2	0,095	0,5	1,9	4,7	5,1
34	1	0,2	0,095	1	1,9	5,2	5,1
35	1	0,2	0,095	1,5	1,9	5,5	5,1
36	1	0,2	0,095	2	1,9	5,8	5,1
37	1	0,2	0,095	2,5	1,9	5,9	5,1
38	1	0,2	0,095	2,5	1,9	6,7	5,1
39	1	0,2	0,095	0,26	2,8	2,8	2,7
40	1	0,2	0,095	1	2,8	3,5	2,7



Tabelle A.9: Betriebsparameter zu den durchgeführten Versuchen zur Korrelation der Bettmasse.

Nr.	$L_{WSR}$	$B_{WSR}$	$H_{wehr,out}$	$\dot{M}_P$	$u_G$	exp. $M_{Bett}$	korr. $M_{Bett}$
[-]	[m]	[m]	[m]	[kg/min]	[m/s]	[kg]	[kg]
41	1	0,2	0,095	2,5	2,8	4,8	2,7
42	1	0,2	0,095	2,5	2,8	4,9	2,7
43	1	0,2	0,095	0,26	1,3	6,3	7,5
44	1	0,2	0,095	1	1,3	7,3	7,5
45	1	0,2	0,095	2,5	1,3	8,6	7,5
46	1	0,2	0,095	0,26	1,6	5,3	6,2
47	1	0,2	0,095	1	1,6	6,4	6,2
48	1	0,2	0,095	2,5	1,6	7,7	6,2
49	1	0,2	0,175	0,26	1,3	10,7	13,9
50	1	0,2	0,175	2,5	1,3	14,5	13,9
51	1	0,2	0,175	0,26	1,9	8,0	9,5
52	1	0,2	0,175	1	1,9	9,2	9,5
53	1	0,2	0,175	2,5	1,9	10,9	9,5
54	1	0,2	0,175	0,26	2,8	5,1	5,0
55	1	0,2	0,175	1	2,8	6,6	5,0
56	1	0,2	0,175	2,5	2,8	7,9	5,0
57	1	0,2	0,035	0,26	1,3	2,9	2,8
58	1	0,2	0,035	1	1,3	3,3	2,8
59	1	0,2	0,035	2,5	1,3	4,0	2,8
60	1	0,2	0,035	0,26	1,9	1,9	1,9
61	1	0,2	0,035	2,5	1,9	3,0	1,9
62	1	0,2	0,035	0,26	2,8	1,2	1,0
63	1	0,2	0,035	1	2,8	1,7	1,0
64	1	0,2	0,035	2,5	2,8	2,3	1,0
65	1	0,2	0,175	1	1,0	15,8	16,3
66	1	0,2	0,175	1	1,1	14,6	15,4
67	1	0,2	0,175	1	1,1	13,0	15,3
68	1	0,2	0,175	1	1,3	12,3	14,3
69	1	0,2	0,175	1	1,5	11,4	12,2
70	1	0,2	0,175	1	1,6	10,7	11,4
71	1	0,2	0,175	1	1,7	10,0	10,6
72	1	0,2	0,175	1	1,8	9,5	9,9
73	1	0,2	0,175	1	1,9	7,2	9,2
74	1	0,2	0,135	1	0,9	15,2	13,5
75	1	0,2	0,135	1	1,4	11,1	10,3
76	1	0,2	0,135	1	1,9	8,1	7,2
77	1	0,2	0,095	1	0,9	11,1	9,6
78	1	0,2	0,095	1	1,1	8,4	8,3
79	1	0,2	0,095	1	1,5	6,6	6,6
80	1	0,2	0,095	1	1,7	6,1	5,9

Tabelle A.10: Betriebsparameter zu den durchgeführten Versuchen zur Korrelation der Bettmasse.

Nr.	$L_{WSR}$	$B_{WSR}$	$H_{wehr,out}$	$\dot{M}_P$	$u_G$	exp. $M_{Bett}$	korr. $M_{Bett}$
[-]	[m]	[m]	[m]	[kg/min]	[m/s]	[kg]	[kg]
81	1	0,2	0,095	1	1,9	5,4	5,0
82	1	0,2	0,075	1	0,9	8,9	7,5
83	1	0,2	0,075	1	1,0	8,5	7,1
84	1	0,2	0,075	1	1,5	5,4	5,3
85	1	0,2	0,075	1	1,9	4,3	3,9
86	1	0,2	0,055	1	0,9	7,5	5,6
87	1	0,2	0,055	1	1,0	6,4	5,1
88	1	0,2	0,055	1	1,5	4,4	3,9
89	1	0,2	0,055	1	1,9	3,2	2,9
90	1	0,2	0,035	1	0,9	4,7	3,6
91	1	0,2	0,035	1	1,0	3,6	3,3
92	1	0,2	0,035	1	1,5	2,7	2,5
93	1	0,2	0,035	1	1,9	2,0	1,9
94	1	0,2	0,015	1	0,9	2,4	1,5
95	1	0,2	0,015	1	1,0	2,1	1,4
96	1	0,2	0,015	1	1,1	1,9	1,3
97	1	0,2	0,015	1	1,4	1,6	1,1

Tabelle A.11: Mittelwerte und Standardabweichungen der gemessenen Ein- und Austrittsfeuchteverteilungen für die durchgeführten Trocknungsversuche.

Einheit	exp. Parameter	Exp. 1	Exp. 2	Exp. 3	Exp. 4	Exp. 5	Exp. 6	Exp. 7	Exp. 8	Exp. 9
kg/kg	Median $X_{50,in}$	0,46	0,53	0,51	0,46	0,61	0,45	0,44	0,58	0,51
kg/kg	Median $X_{50,out}$	0,07	0,07	0,16	0,10	0,13	0,12	0,10	0,11	0,22
kg/kg	Stdabw. $\sigma_{in}$	0,07	0,06	0,08	0,05	0,08	0,05	0,06	0,07	0,08
kg/kg	Stdabw. $\sigma_{out}$	0,01	0,01	0,05	0,02	0,02	0,04	0,01	0,03	0,06

Tabelle A.12: Mittelwerte und Standardabweichungen der simulierten Austrittsfeuchteverteilungen für die durchgeführten Trocknungsversuche.

Einheit	Sim. Parameter	Exp. 1	Exp. 2	Exp. 3	Exp. 4	Exp. 5	Exp. 6	Exp. 7	Exp. 8	Exp. 9
kg/kg	Median $X_{50,out}$	0,06	0,19	0,14	0,11	0,21	0,10	0,10	0,23	0,25
kg/kg	Stdabw. $\sigma_{out}$	0,08	0,12	0,09	0,08	0,12	0,07	0,07	0,11	0,11

Tabelle A.13: Betriebs- und Simulationsparameter für das kontinuierliche Coating in der Wirbelschichttrinne.

Formelzeichen	Parameter	Wert				Einheit
		Exp. 1	Exp. 2	Exp. 3	Exp. 4	
$\vartheta_{G,in}$	Gastemperatur	85	85	85	85	°C
$\dot{V}_G$	Gasvolumenstrom	1400	1400	1400	1400	m <sup>3</sup> /h
$u_G$	Gasgeschwindigkeit	1,94	1,94	1,94	1,94	m/s
$H_{Wehr,out}$	Höhe Aussrittwwehr	95	175	175	175	mm
$N_{Wehr}$	Anzahl Wehre	-	-	3	3	[-]
$\dot{M}_P$	Partikelmassonstrem	1	1	1	1	kg /min
$\dot{M}_{Lsg}$	Eindüsungsrate	0,5	0,5	0,5	0,5	kg /min
-	Feststoffanteil	30	30	30	30	%
$H_{Spalt}$	Spalthöhe	-	-	6	-	mm
R	Rückflussparameter	1,96	7,46	0,96	1,77	-
$M_{Bett}$	Bettmasse	3,36	6,20	6,20	6,20	kg
$\rho_P$	Partikeldichte	1098	834	843	1143	kg/m <sup>3</sup>
$N_{geo}$	Geometrische Anzahl CSTR		4			-
$\rho_{Feststoff}$	Feststoffdichte		1380			kg/m <sup>3</sup>
t	Prozesszeit		3600			s
$\tau_{Sp}$	Verweilzeit Sprühzone		0,1			s
$\tau_{Tr}$	Verweilzeit Trocknungszone		1,15			s
v	Zonenverhältnis		0,08			-
$\epsilon_{Schicht}$	Schichtporosität		0,17			-

Tabelle A.14: Mittlere Partikelgrößen und Standardabweichungen der Coatinguntersuchung von Experiment (Camsizer und Mikroskop) und Simulation.

Nr.	Median PSD [mm]				Standardabweichung PSD [mm]			
	Camsizer gewaschen	Camsizer beschichtet	1D <sub>Reflux</sub>	2D <sub>PBM</sub>	Camsizer gewaschen	Camsizer beschichtet	1D <sub>Reflux</sub>	2D <sub>PBM</sub>
1	1,763	1,817	1,819	1,826	0,212	0,238	0,218	0,218
2	1,893	1,951	1,948	1,954	0,152	0,172	0,161	0,155
3	1,882	1,918	1,938	1,935	0,149	0,187	0,151	0,145
4	1,774	1,798	1,820	1,827	0,212	0,241	0,217	0,215

Nr.	Median PSD [mm]				Standardabweichung PSD [mm]			
	Mikroskop gewaschen	Mikroskop beschichtet	1D <sub>Reflux</sub>	2D <sub>PBM</sub>	Mikroskop gewaschen	Mikroskop beschichtet	1D <sub>Reflux</sub>	2D <sub>PBM</sub>
1	1,76	1,86	1,817	1,822	0,030	0,121	0,069	0,072
2	1,86	1,92	1,922	1,928	0,066	0,087	0,088	0,081
3	1,86	1,91	1,919	1,914	0,057	0,083	0,073	0,065
4	1,74	1,78	1,795	1,799	0,030	0,061	0,064	0,055

Tabelle A.15: Mittlere Schichtdicken und Standardabweichungen aus den verschiedenen Analysemethoden der Coatinguntersuchung.

Median LTD [ $\mu\text{m}$ ]					Standardabweichung LTD [ $\mu\text{m}$ ]			
Nr.	Camsizer	$\mu\text{-CT}$	$1D_{\text{Reflux}}$	$2D_{\text{PBM}}$	Camsizer	$\mu\text{-CT}$	$1D_{\text{Reflux}}$	$2D_{\text{PBM}}$
1	30	31	34	38	18	19	12	13
2	29	32	29	31	21	12	10	8
3	18	29	29	26	19	11	9	8
4	25	34	32	38	30	13	12	9

Median LTD [ $\mu\text{m}$ ]				Standardabweichung LTD [ $\mu\text{m}$ ]		
Nr.	Mikroskop	$1D_{\text{Reflux}}$	$2D_{\text{PBM}}$	Mikroskop	$1D_{\text{Reflux}}$	$2D_{\text{PBM}}$
1	50	31	32	43	21	22
2	30	27	29	13	13	9
3	25	28	25	14	9	6
4	20	29	29	16	19	14

Tabelle A.16: Mittlere Schichtdicken und Standardabweichungen der Einzelpartikel mit den kleinsten sowie größten Medianen sowie über die Population des jeweiligen Experimentes.

[ $\mu\text{m}$ ]	Schichtdickenverteilung auf Einzelpartikel mit Median $s_{50}$ min.		Schichtdickenverteilung über Population		Schichtdickenverteilung auf Einzelpartikel mit Median $s_{50}$ max.	
	Median $s_{50}$	Stdabw. $\sigma$	Median $s_{50}$	Stdabw. $\sigma$	Median $s_{50}$	Stdabw. $\sigma$
Exp. 1	6	4	31	19	85	13
Exp. 2	5	6	32	11	62	33
Exp. 3	8	10	29	11	68	21
Exp. 4	17	8	34	13	93	30

Tabelle A.17: Mittlere Schichtporositäten sowie deren Standardabweichungen für die durchgeführten Experimente aus der gravimetrischen Bestimmung sowie die Schichtporosität aus der mikrotomographischen Messung von Einzelpartikeln, nach 3-D Rekonstruktion und convex hull Algorithmus.

[-]	Schichtporosität aus Gravimetrie/Mikroskopie		Schichtporosität aus $\mu\text{-CT}$ Messung
	Median	Stdabw.	Median
	$\bar{\epsilon}_{50, \text{Schicht}}$	$\sigma$	$\bar{\epsilon}_{50, \text{Schicht}}$
Exp. 1	0,47	0,17	0,42
Exp. 2	0,38	0,21	0,41
Exp. 3	0,43	0,25	0,45
Exp. 4	0,47	0,23	0,48



# B Diskretisierung der Dispersions-Konvektions-Gleichung

Um die in Abschnitt 3.2.3 genutzte partielle Differentialgleichung 3.18,

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \bar{u}_P \frac{\partial C}{\partial x}, \tag{B.1}$$

zu lösen, wurde diese mit Hilfe der Finiten Volumen Methode diskretisiert und in ein System gewöhnlicher Differentialgleichungen überführt. Im Folgenden wird auf die Diskretisierung eingegangen. Abbildung B.1 zeigt das Schema für die Diskretisierung mit den entsprechenden Stützstellen.

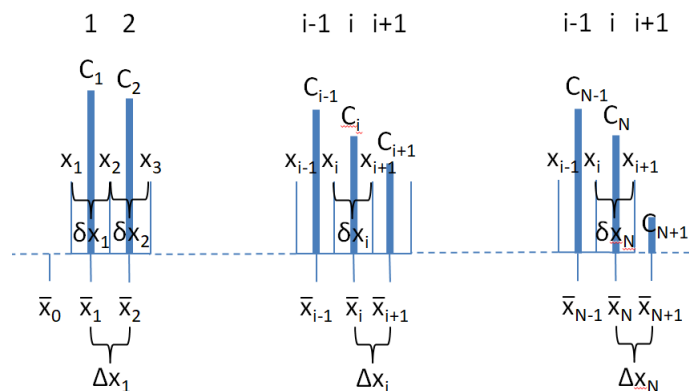


Abbildung B.1: Skizze des Schemas für die Diskretisierung der Dispersions-Konvektions-Gleichung

Als Anfangs- und Randbedingungen werden die in Abschnitt 3.2.3 formulierten Gleichungen 3.19 verwendet.

Für natürliche Zahlen  $1 < i < N$  gilt:

$$\int_{x_i}^{x_{i+1}} \frac{\partial C}{\partial t} dx = \int_{x_i}^{x_{i+1}} \frac{\partial}{\partial t} (D \frac{\partial C}{\partial x}) dx - \int_{x_i}^{x_{i+1}} \frac{\partial}{\partial x} (\bar{u}_P C) dx = \left[ D \frac{\partial C}{\partial x} \right]_{x_i}^{x_{i+1}} - [\bar{u}_P C]_{x_i}^{x_{i+1}} \tag{B.2}$$

mit der Profilannahme, C sei abschnittsweise konstant ("upwind scheme"):  $C_i = C(\bar{x}_i, t)$ , wobei  $\bar{x}_i$  dem Mittelpunkt des i-ten Intervalls entspricht. Für die Diffusion über die Grenzen der

---

und lassen sich mit einer in MATLAB integrierten Funktion für gewöhnliche Differentialgleichungen "ode15s" lösen.





# C Stoffdaten

## C.1 Berechnung Satttdampfdruck

Zur Berechnung des Satttdampfdrucks wird gewöhnlich die Antoine-Gleichung

$$p_{sat} = 10^{A - \left(\frac{B}{C+T}\right)} \quad (\text{C.1})$$

verwendet, mit den Parametern  $A=5,40221$ ,  $B=1838,675$  und  $C=-31,737$ .

$p_{sat}$  in bar, T in K, Gültigkeitsbereich von  $273 \text{ K} < T < 373 \text{ K}$

## C.2 Berechnung Wärmeübergangskoeffizient

Die Berechnung des Wärmeübergangs zwischen Gasphase und Wand erfolgt nach Baskakov u. a. (1973) mit

$$\alpha_{GWand} = 0,009 Pr^{1/3} Ar^{1/2} \cdot \begin{cases} \left(\frac{u_0}{u_{opt}}\right)^{0,3} & \text{für } u_{mf} < u_0 < u_{opt} \\ 1 & \text{für } u_{opt} < u_0 < u_{elu} \end{cases} \quad (\text{C.2})$$

Die Gasgeschwindigkeiten im Zustand minimaler Fluidisierung  $u_{mf}$  sowie im Partikelaustrag  $u_{elu}$  werden aus den entsprechenden Reynoldszahlen berechnet. Die optimale Gasgeschwindigkeit  $u_{opt}$  ergibt sich aus der optimalen Reynoldszahl

$$Re_{opt} = \frac{u_{opt} d_P}{\nu_G} = 7,5 \left( \frac{g d_P^3}{\nu_G^2} \right)^{0,45} \quad (\text{C.3})$$

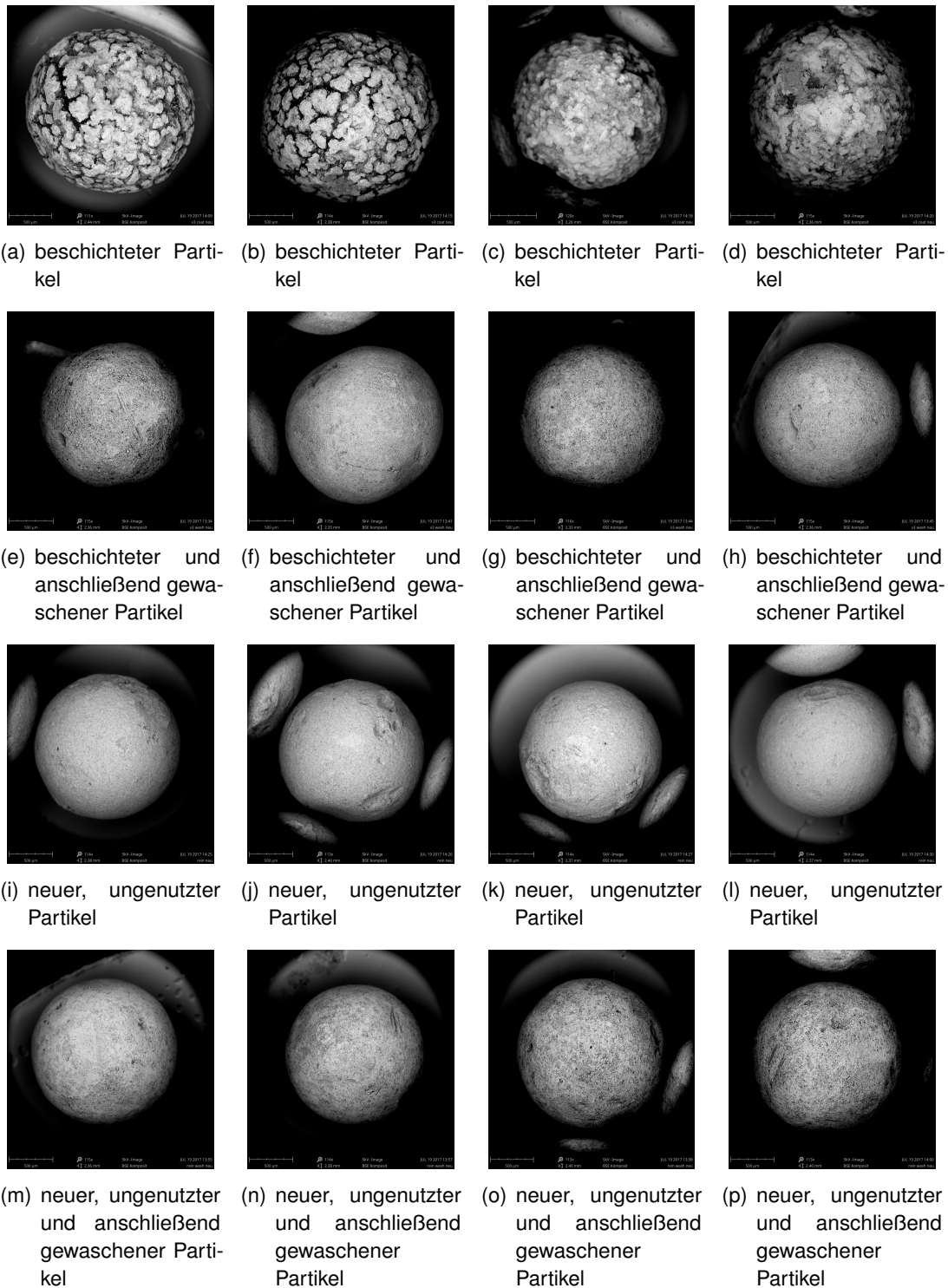


Abbildung D.3: REM-Aufnahmen von reinen Partikeln ((i) bis (l)), von reinen und anschließend gewaschenen Partikeln ((m) bis (p)), von beschichteten Partikeln ((a) bis (d)) und von beschichteten und anschließend gewaschenen Partikeln ((e) bis (h)).

# Literaturverzeichnis

- [Alaathar u. a. 2013] ALAATHAR, I. ; HARTGE, E-U. ; HEINRICH, S. ; WERTHER, J.: Modeling and flowsheet simulation of continuous fluidized bed dryers. In: *Powder Technology* 238 (2013), S. 132–141. – ISSN 0032-5910
- [Bachmann u. a. 2016] BACHMANN, P. ; BÜCK, A. ; TSOTSAS, E.: Investigation of the residence time behavior of particulate products and correlation for the Bodenstein number in horizontal fluidized beds. In: *Powder Technology* 301 (2016), S. 1067–1076. – ISSN 0032-5910
- [Bachmann u. a. 2017] BACHMANN, P. ; BÜCK, A. ; TSOTSAS, E.: Experimental investigation and correlation of the Bodenstein number in horizontal fluidized beds with internal baffles. In: *Powder Technology* 308 (2017), S. 378–387. – ISSN 0032-5910
- [Bachmann u. a. 2019] BACHMANN, P. ; CHEN, K. ; BÜCK, A. ; TSOTSAS, E.: Prediction of particle size and layer-thickness distributions in a continuous horizontal fluidized-bed coating process. In: *Particuology, In Press* (2019)
- [Bachmann und Tsotsas 2015] BACHMANN, P. ; TSOTSAS, E.: Analysis of residence time distribution data in horizontal fluidized beds. In: *Procedia Engineering* 102 (2015), S. 790–798. – ISSN 18777058
- [Baker u. a. 2006] BAKER, C.G.J. ; KHAN, A. R. ; ALI, Y. I. ; DAMYAR, K.: Simulation of plug flow fluidized bed dryers. In: *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 45 (2006), Nr. 8, S. 641–651. – ISSN 02552701
- [Banks 1981] BANKS, M.: *Studies on the fluidized bed granulation process, De Montfort University Leicester, England*, Dissertation, 1981
- [Barret 1949] BARRET, W.: *Method of carbonating lime and of separating the same from magnesia*. 1949. – URL <http://www.google.ch/patents/US2485350>
- [Baskakov u. a. 1973] BASKAKOV, A. P. ; BERG, B. V. ; VITT, O. K. ; FILIPPOVSKY, N. F. ; KIRAKOSYAN, V. A. ; GOLDOBIN, J. M. ; MASKAEV, V. K.: Heat transfer to objects immersed in fluidized beds. In: *Powder Technology* 8 (1973), Nr. 5-6, S. 273–282. – ISSN 0032-5910

- [Bastian und Lapidus 1956] BASTIAN, W. C. ; LAPIDUS, L.: Longitudinal diffusion in ion exchange and chromatographic columns: Finite column. In: *The Journal of Physical Chemistry* 60 (1956), Nr. 6, S. 816–817. – ISSN 0022-3654
- [Bertin u. a. 2011] BERTIN, D. E. ; COTABARREN, I. M. ; BUCALÁ, V. ; PIÑA, J.: Analysis of the product granulometry, temperature and mass flow of an industrial multichamber fluidized bed urea granulator. In: *9th International Symposium on Agglomeration and 4th International Granulation Workshop* 206 (2011), S. 122–131. – ISSN 0032-5910
- [Bertin u. a. 2013] BERTIN, Diego E. ; COTABARREN, Ivana ; PIÑA, Juliana ; BUCALÁ, Verónica: Granule size distribution for a multi-chamber fluidized-bed melt granulator: Modeling and validation using process measurement data. In: *Chemical Engineering Science* 104 (2013), S. 319–329. – ISSN 0009-2509
- [Börner u. a. 2014] BÖRNER, M. ; HAGEMEIERS, T. ; GANZER, G. ; PEGLOW, M. ; TSOTSAS, E.: Experimental spray zone characterization in top-spray fluidized bed granulation. In: *Chemical Engineering Science* 116 (2014), S. 317–330. – ISSN 0009-2509
- [Börner u. a. 2011] BÖRNER, M. ; PEGLOW, M. ; TSOTSAS, E.: Particle residence times in fluidized bed granulation equipments. In: *Chemical Engineering & Technology* 34 (2011), Nr. 7, S. 1116–1122. – ISSN 09307516
- [Bück u. a. 2016a] BÜCK, A. ; DÜRR, R. ; SCHMIDT, M. ; TSOTSAS, E.: Model predictive control of continuous layering granulation in fluidised beds with internal product classification. In: *Journal of Process Control* 45 (2016), S. 65–75. – ISSN 0959-1524
- [Bück u. a. 2016b] BÜCK, A. ; NEUGEBAUER, C. ; MEYER, K. ; PALIS, S. ; DIEZ, E. ; KIENLE, A. ; HEINRICH, S. ; TSOTSAS, E.: Influence of operation parameters on process stability in continuous fluidised bed layering with external product classification. In: *Powder Technology* (2016), Nr. 300, S. 37–45. – ISSN 0032-5910
- [Bück u. a. 2015] BÜCK, A. ; PALIS, S. ; TSOTSAS, E.: Model-based control of particle properties in fluidised bed spray granulation. In: *Powder Technology* 270 (2015), S. 575–583. – ISSN 0032-5910
- [Burgschweiger u. a. 1999] BURGSCHWEIGER, J. ; GROENEWOLD, H. ; HIRSCHMANN, C. ; TSOTSAS, E.: From hygroscopic single particle to batch fluidized bed drying kinetics. In: *The Canadian Journal of Chemical Engineering* 77 (1999), Nr. 2, S. 333–341. – ISSN 00084034
- [Burgschweiger und Tsotsas 2000] BURGSCHWEIGER, J. ; TSOTSAS, E.: Ein neues, schnelles Meßverfahren für Sorptionsisothermen: Anwendung auf Aktivtonerde. In: *Chemie Ingenieur Technik* 72 (2000), Nr. 1-2, S. 88–94. – ISSN 0009286X

- [Burgschweiger und Tsotsas 2002] BURGSCHEWIGER, J. ; TSOTSAS, E.: Experimental investigation and modelling of continuous fluidized bed drying under steady-state and dynamic conditions. In: *Chemical Engineering Science* 57 (2002), Nr. 24, S. 5021–5038. – ISSN 0009-2509
- [Campbell u. a. 1948] CAMPBELL, D. ; MARTIN, Z. ; MURPHREE, V. ; TYSON, W.: *Method of and apparatus for contacting solids and gases*. 1948. – URL <http://www.google.com/patents/US2451804>
- [Charlou 2014] CHARLOU, C.: *Characterization and modeling of the flow pattern of sewage sludge in a paddle dryer, Ecole nationale des Mines d'Albi-Carmaux, France*, Dissertation, 2014
- [Chen u. a. 2017] CHEN, K. ; BACHMANN, P. ; BÜCK, A. ; JACOB, M. ; TSOTSAS, E.: Experimental study and modeling of particle drying in a continuously-operated horizontal fluidized bed. In: *Particuology* 34 (2017), S. 134–146. – ISSN 16742001
- [Cunäus 2011] CUNÄUS, U.: *Populationsdynamische Beschreibung der kontinuierlichen Wirbelschichttrocknung, Otto-von-Guericke Universität, Deutschland*, Dissertation, 2011
- [Cunäus u. a. 2008] CUNÄUS, U. ; PEGLOW, M. ; TSOTSAS, E. ; METZGER, T.: Modelling of continuous fluidized bed drying using a population balance approach. In: *Drying 2008* (2008), 01
- [Dadkhah u. a. 2012] DADKHAH, M. ; PEGLOW, M. ; TSOTSAS, E.: Characterization of the internal morphology of agglomerates produced in a spray fluidized bed by X-ray tomography. In: *Powder Technology* 228 (2012), S. 349–358. – ISSN 0032-5910
- [Daleffe u. a. 2008] DALEFFE, R. V. ; FERREIRA, M. C. ; FREIRE, J. T.: Effects of binary particle size distribution on the fluid dynamic behavior of fluidized, vibrated and vibrofluidized beds. In: *Brazilian Journal of Chemical Engineering* 25 (2008), Nr. 1, S. 83–94. – ISSN 0104-6632
- [Danckwerts 1953] DANCKWERTS, P. V.: Continuous flow systems. In: *Chemical Engineering Science* 2 (1953), Nr. 1, S. 1–13. – ISSN 0009-2509
- [Darton u. a. 1977] DARTON, R. ; LANAUZE, R. ; DAVIDSON, J. ; HARRISON, D.: Bubble growth due to coalescence in fluidized beds. In: *Trans. Inst. Chem. Eng.* 55 (1977)
- [Davies u. a. 1973] DAVIES, P. ; JEFFERY, W. ; LEE, W. ; PURVES, W.: *Agglomeration of instant coffee*. 1973. – URL <http://www.google.com/patents/US3740232>
- [Dewettinck und Huyghebaert 1998] DEWETTINCK, K. ; HUYGHEBAERT, A.: Top-spray fluidized bed coating: Effect of process variables on coating efficiency. In: *LWT - Food Science and Technology* 31 (1998), Nr. 6, S. 568–575. – ISSN 0023-6438

- [Dewettinck und Huyghebaert 1999] DEWETTINCK, K. ; HUYGHEBAERT, A.: Fluidized bed coating in food technology. In: *Trends in Food Science & Technology* 10 (1999), Nr. 4–5, S. 163–168. – ISSN 0924-2244
- [Euler u. a. 1913–1914] EULER, L. ; ENGEL, F. ; SCHLESINGER, L.: *His Opera omnia. Series prima, Opera mathematica*. Bd. v. 11-13: *Institutiones calculi integralis*. Lipsiae : B.G. Teubneri, 1913-1914. – ISBN 9783764314101
- [Fries u. a. 2011] FRIES, L. ; ANTONYUK, S. ; HEINRICH, S. ; PALZER, S.: DEM–CFD modeling of a fluidized bed spray granulator. In: *Chemical Engineering Science* 66 (2011), Nr. 11, S. 2340–2355. – ISSN 0009-2509
- [Fyhr und Kemp 1999] FYHR, C. ; KEMP, I.: Mathematical modelling of batch and continuous well-mixed fluidised bed dryers. In: *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 38 (1999), Nr. 1, S. 11–18. – URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0255270198000646>. – ISSN 02552701
- [Fyhr u. a. 1999] FYHR, C. ; KEMP, I. ; WIMMERSTEDT, R.: Mathematical modelling of fluidised bed dryers with horizontal dispersion. In: *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 38 (1999), Nr. 2, S. 89–94. – ISSN 02552701
- [Geldart 1973] GELDART, D.: Types of gas fluidization. In: *Powder Technology* 7 (1973), Nr. 5, S. 285–292. – ISSN 0032-5910
- [Gilliland und Mason 1952] GILLILAND, E. R. ; MASON, E. A.: Gas mixing in beds of fluidized solids. In: *Industrial & Engineering Chemistry* 44 (1952), Nr. 1, S. 218–224. – ISSN 0019-7866
- [Gnielinski 1975] GNIELINSKI, V.: Berechnung mittlerer Wärme- und Stoffübergangskoeffizienten an laminar und turbulent überströmten Einzelkörpern mit Hilfe einer einheitlichen Gleichung. In: *Forschung im Ingenieurwesen* 41 (1975), Nr. 5, S. 145–153. – ISSN 0015-7899
- [Gnielinski 1980] GNIELINSKI, V.: Wärme- und Stoffübertragung in Festbetten. In: *Chemie Ingenieur Technik* 52 (1980), Nr. 3, S. 228–236. – ISSN 0009286X
- [Groenewold und Tsotsas 1997] GROENEWOLD, H. ; TSOTSAS, E.: A new model for fluid bed drying. In: *Drying Technology* 15 (1997), Nr. 6-8, S. 1687–1698. – ISSN 0737-3937
- [Hampel u. a. 2013] HAMPEL, N. ; A., Bück ; M., Peglow ; E., Tsotsas: Continuous pellet coating in a Wurster fluidized bed process. In: *Chemical Engineering Science* 86 (2013), S. 87–98. – ISSN 0009-2509

- [Heinrich u. a. 2002] HEINRICH, S. ; PEGLOW, M. ; IHLOW, M. ; HENNEBERG, M. ; MÖRL, L.: Analysis of the start-up process in continuous fluidized bed spray granulation by population balance modelling. In: *Chemical Engineering Science* 57 (2002), Nr. 20, S. 4369–4390. – ISSN 0009-2509
- [Hemati u. a. 2003] HEMATI, M. ; CHERIF, R. ; SALEH, K. ; PONT, V.: Fluidized bed coating and granulation: Influence of process-related variables and physicochemical properties on the growth kinetics. In: *Powder Technology* 130 (2003), Nr. 1–3, S. 18–34. – ISSN 0032-5910
- [Hertz 1975] HERTZ, G.: *Fluidized bed dryer*. 1975. – URL <http://www.google.com/patents/US3866332>
- [Hoffmann u. a. 2011] HOFFMANN, T. ; PEGLOW, M. ; TSOTSAS, E.: Prozessdynamik der Wirbelschichtgranulierung. In: *Chemie Ingenieur Technik* 83 (2011), Nr. 5, S. 658–664. – ISSN 0009286X
- [Hoffmann u. a. 2015] HOFFMANN, T. ; RIECK, C. ; SCHMIDT, M. ; BÜCK, A. ; PEGLOW, M. ; TSOTSAS, E.: Prediction of shell porosities in continuous fluidized bed spray layering. In: *Drying Technology* 33 (2015), Nr. 13, S. 1662–1670. – ISSN 0737-3937
- [Horio und Nonaka 1987] HORIO, M. ; NONAKA, A.: A generalized bubble diameter correlation for gas-solid fluidized beds. In: *AIChE Journal* 33 (1987), Nr. 11, S. 1865–1872. – ISSN 0001-1541
- [Idakiev und Mörl 2015] IDAKIEV, V. ; MÖRL, L.: Methode zur Untersuchung der Partikelbewegung in diskontinuierlich und kontinuierlich arbeitenden Wirbelschichten. In: *Chemie Ingenieur Technik* 87 (2015), Nr. 5, S. 626–637
- [Idakiev u. a. 2018] IDAKIEV, V. ; STEINKE, C. ; SONDEJ, F. ; BÜCK, A. ; TSOTSAS, E. ; MÖRL, L.: Inductive heating of fluidized beds: Spray coating process. In: *Powder Technology* 328 (2018), S. 26–37. – ISSN 0032-5910
- [Khanali u. a. 2012] KHANALI, M. ; RAFIEE, S. ; JAFARI, A. ; BANISHARIF, A.: Study of residence time distribution of rough rice in a plug flow fluid bed dryer. In: *International Journal of Advanced Science and Technology* (2012), Nr. 48, S. 103–114
- [Kunii u. a. 2013] KUNII, D. ; LEVENSPIEL, O. ; BRENNER, H.: *Fluidization Engineering*. 2. Aufl. Burlington : Elsevier Science, 2013. – ISBN 978-0-08-050664-7
- [Levenspiel 1972] LEVENSPIEL, O.: *Chemical reaction engineering*. Wiley, 1972. – ISBN 9780471530169

- [Levenspiel und Smith 1957] LEVENSPIEL, Octave ; SMITH, W. K.: Notes on the diffusion-type model for the longitudinal mixing of fluids in flow. In: *Chemical Engineering Science* 6 (1957), Nr. 4-5, S. 227–235. – ISSN 0009-2509
- [MacMullin und Weber 1935] MACMULLIN, R. ; WEBER, M.: The theory of short-circuiting in continuous-flow mixing vessels in series and kinetics of chemical reactions in such systems. In: *Trans. AIChE* 31(2) (1935), S. 409–458
- [Martin 1980] MARTIN, H.: Wärme- und Stoffübertragung in der Wirbelschicht. In: *Chemie Ingenieur Technik* 52 (1980), S. 199–209
- [Natta und Mazzanti 1962] NATTA, G. ; MAZZANTI, G.: *Process for the production of high molecular weight polyethylenes with metal alkyl and iron compound catalysts*. 1962. – URL <http://www.google.com.na/patents/US3037972>
- [Niks u. a. 1980] NIKS, A. ; VAN HIJFTE, W. ; GOETHALS, R.: *Process for urea granulation*. 1980. – URL <http://www.google.com/patents/US4219589>
- [Nilsson 1986] NILSSON, L.: *Behavior of longitudinal-flow, vibrating fluid-bed dryers: An experimental and theoretical study*, Lund University, Sweden, Dissertation, 1986
- [Nilsson und Wimmerstedt 1988] NILSSON, L. ; WIMMERSTEDT, R.: Residence time distribution and particle dispersion in a longitudinal-flow fluidized bed. In: *Chemical Engineering Science* 43 (1988), Nr. 5, S. 1153–1160. – ISSN 0009-2509
- [Ormós u. a. 1973a] ORMÓS, Z. ; PATAKI, K. ; CSUKÁS, B.: Studies on granulation in fluidized bed I: Methods for testing the physical properties of granulates. In: *Hungarian Journal of Industry and Chemistry* (1973), Nr. 2, S. 207–228
- [Ormós u. a. 1973b] ORMÓS, Z. ; PATAKI, K. ; CSUKÁS, B.: Studies on granulation in fluidized bed II: The effects of the amount of the binder on the physical properties of granules formed in a fluidized bed. In: *Hungarian Journal of Industry and Chemistry* (1973), Nr. 3, S. 307–328
- [Ormós u. a. 1973c] ORMÓS, Z. ; PATAKI, K. ; CSUKÁS, B.: Studies on granulation in fluidized bed III: Calculation of the feed rate of granulating liquid. In: *Hungarian Journal of Industry and Chemistry* (1973), Nr. 4, S. 463–474
- [Ormós u. a. 1973d] ORMÓS, Z. ; PATAKI, K. ; CSUKÁS, B.: Studies on granulation in fluidized bed IV: Effects of the characteristic of the fluidized bed the atomization and the air distributor upon the physical properties of the granulates. In: *Hungarian Journal of Industry and Chemistry* (1973), Nr. 4, S. 475–492



- [Peglow u. a. 2007] PEGLOW, M. (Hrsg.) ; CUNÄUS, U. (Hrsg.) ; KETTNER, C. (Hrsg.) ; METZGER, T. (Hrsg.) ; TSOTSAS, E. (Hrsg.): *A population balance approach for continuous fluidized bed dryers*. Bd. Number 2215. 2007
- [Peglow u. a. 2011] PEGLOW, M. ; CUNÄUS, U. ; TSOTSAS, E.: An analytical solution of population balance equations for continuous fluidized bed drying. In: *Chemical Engineering Science* 66 (2011), Nr. 9, S. 1916–1922. – ISSN 0009-2509
- [Rankell u. a. 1964] RANKELL, A. ; SCOTT, M. ; LIEBERMAN, H. ; CHOW, F. ; BATTISTA, J.: Continuous production of tablet granulations in a fluidized bed II. In: *Journal of Pharmaceutical Sciences* 53 (1964), Nr. 3, S. 320–324. – ISSN 00223549
- [Reay 1978] REAY, D. (Hrsg.): *Particle residence time distributions in "plug flow" fluid bed dryers*. 1978. – 136–144 S
- [Richardson und Zaki 1954] RICHARDSON, J. F. ; ZAKI, W. N.: Sedimentation and fluidisation, Part I. In: *Chemical Engineering Research and Design* 75 (1954), S. 82–100. – ISSN 02638762
- [Rieck u. a. 2015] RIECK, C. ; HOFFMANN, T. ; BÜCK, A. ; PEGLOW, M. ; TSOTSAS, E.: Influence of drying conditions on layer porosity in fluidized bed spray granulation. In: *Powder Technology* 272 (2015), S. 120–131. – ISSN 0032-5910
- [Roemer und Durbin 1967] ROEMER, M. H. ; DURBIN, L. D.: Transient response and moments analysis of backflow cell model for flow systems with longitudinal mixing. In: *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals* 6 (1967), Nr. 1, S. 120–129. – ISSN 0196-4313
- [Rowe 1976] ROWE, P.: Prediction of bubble size in a gas-fluidized bed. In: *Trans. Inst. Chem. Eng.* 31 (1976)
- [Satija und Zucker 1986] SATIJA, S. ; ZUCKER, I. L.: Hydrodynamics of vibro-fluidized beds. In: *Drying Technology* 4 (1986), Nr. 1, S. 19–43. – ISSN 0737-3937
- [Schmidt u. a. 2015a] SCHMIDT, M. ; HOFFMANN, T. ; BÜCK, A. ; TSOTSAS, E.: Experimental investigation of continuous fluidized bed spray granulation with internal classification. In: *Procedia Engineering* 102 (2015), S. 565–574. – ISSN 18777058
- [Schmidt u. a. 2015b] SCHMIDT, M. ; RIECK, C. ; BÜCK, A. ; TSOTSAS, E.: Experimental investigation of process stability of continuous spray fluidized bed layering with external product separation. In: *Chemical Engineering Science* 137 (2015), S. 466–475. – ISSN 0009-2509

- [Scott u. a. 1964] SCOTT, M. ; LIEBERMAN, H. ; RANKELL, A. ; BATTISTA, J.: Continuous production of tablet granulations in a fluidized bed I. In: *Journal of Pharmaceutical Sciences* 53 (1964), Nr. 3, S. 314–320. – ISSN 00223549
- [Sherony 1981] SHERONY, D.: A model of surface renewal with application to fluid bed coating of particles. In: *Chemical Engineering Science* 36 (1981), Nr. 5, S. 845–848. – ISSN 0009-2509
- [Sondej u. a. 2015] SONDEJ, F. ; BÜCK, A. ; KOSLOWSKY, K. ; BACHMANN, P. ; JACOB, M. ; TSOTSAS, E.: Investigation of coating layer morphology by micro-computed X-ray tomography. In: *Powder Technology* 273 (2015), S. 165–175. – ISSN 0032-5910
- [Teunou und Poncelet 2002] TEUNOU, E. ; PONCELET, D.: Batch and continuous fluid bed coating: Review and state of the art. In: *Journal of Food Engineering* 53 (2002), Nr. 4, S. 325–340. – ISSN 0260-8774
- [Thurn 1970] THURN, U.: *Mischen, Granulieren und Trocknen pharmazeutischer Grundstoffe in heterogenen Wirbelschichten*, ETH Zürich, Schweiz, Dissertation, 1970
- [Tsotsas und Mujumdar 2011] TSOTSAS, E. ; MUJUMDAR, A.: *Modern drying technology, volume 3: Product quality and formulation*. John Wiley and Sons, 2011. – ISBN 9781283302357
- [van der Laan 1958] VAN DER LAAN, E.: Letters to the editors. In: *Chemical Engineering Science* 7 (1958), Nr. 3, S. 187–191. – ISSN 0009-2509
- [Van Genuchten und Alves 1982] VAN GENUCHTEN, M. ; ALVES, W.: *Analytical solutions of one dimensional convective dispersive solute transport equations*. United States Department of Agriculture, 1982
- [van Meel 1958] VAN MEEL, D. A.: Adiabatic convection batch drying with recirculation of air. In: *Chemical Engineering Science* 9 (1958), Nr. 1, S. 36–44. – ISSN 0009-2509
- [Vreman u. a. 2009] VREMAN, A. W. ; VAN LARE, C. E. ; HOUNSLOW, M. J.: A basic population balance model for fluid bed spray granulation. In: *Chemical Engineering Science* 64 (2009), Nr. 21, S. 4389–4398. – ISSN 0009-2509
- [Wen und Yu 1966] WEN, C. Y. ; YU, Y. H.: A generalized method for predicting the minimum fluidization velocity. In: *AIChE Journal* 12 (1966), Nr. 3, S. 610–612. – ISSN 0001-1541
- [Werther 1977] WERTHER, J.: Strömungsmechanische Grundlagen der Wirbelschichttechnik. In: *Chemie Ingenieur Technik* 49 (1977), Nr. 3, S. 193–202. – ISSN 0009286X

- [Wesdyk u. a. 1993] WESDYK, R. ; JOSHI, Y. M. ; VINCENTIS, J. D. ; NEWMAN, A. W. ; JAIN, N. B.: Factors affecting differences in film thickness of beads coated in fluidized bed units. In: *International Journal of Pharmaceutics* 93 (1993), Nr. 1, S. 101–109. – ISSN 0378-5173
- [Winkler 1922] WINKLER, F.: *Verfahren zur Herstellung von Wassergas, De 437970 C.* 1922. – URL <https://patents.google.com/patent/DE438843C/un>
- [Wnukowski und Setterwall 1989] WNUKOWSKI, P. ; SETTERWALL, F.: The coating of particles in a fluidized bed (residence time distribution in a system of two coupled perfect mixers). In: *Chemical Engineering Science* 44 (1989), Nr. 3, S. 493–505. – ISSN 0009-2509
- [Wurster 1963] WURSTER, D. E.: *Granulating and coating process for uniform granules.* 1963. – URL <https://www.google.com/patents/US3089824>
- [Wurster 1966] WURSTER, D. E.: *Particle coating process.* 1966. – URL <https://www.google.com/patents/US3253944>
- [Wurster und Lindlof 1964] WURSTER, D. E. ; LINDLOF, J. A.: *Apparatus for coating particles in a fluidized bed.* 1964. – URL <http://www.google.com/patents/US3117027>
- [Wurster und Lindlof 1965] WURSTER, D. E. ; LINDLOF, J. A.: *Apparatus for the encapsulation of discrete particles.* 1965. – URL <https://www.google.com/patents/US3196827>
- [Ziegler u. a. 1960] ZIEGLER, K. ; BREIL, H. ; HOLZKAMP, E. ; MARTIN, H.: *Verfahren zur Herstellung von hochmolekularen Polyäthylenen, DE 973626 C.* 1960
- [Ziegler u. a. 1955] ZIEGLER, Karl ; HOLZKAMP, E. ; BREIL, H. ; MARTIN, H.: Das Mülheimer Normaldruck-Polyäthylen-Verfahren. In: *Angewandte Chemie* 67 (1955), Nr. 19-20, S. 541–547. – ISSN 00448249







# Veröffentlichungen

## Internationale Fachzeitschriften

- Bachmann, P.; Bück, A.; Tsotsas, E.: Investigation of the residence time behavior of particulate products and correlation for the Bodenstein number in horizontal fluidized beds, Powder Technology, 301, 2016, Pages 1067-1076, ISSN 0032-5910
- Bachmann, P.; Bück, A.; Tsotsas, E.: Experimental investigation and correlation of the Bodenstein number in horizontal fluidized beds with internal baffles, Powder Technology 308, 2017, Pages 378-387, ISSN 0032-5910
- Bachmann, P.; Chen, K.; Bück, A.; Tsotsas, E.: Prediction of particle size and layer-thickness distributions in a continuous horizontal fluidized-bed coating process, Particology, In Press, ISSN 1674-2001
- Bachmann, P.; Tsotsas, E.: Analysis of residence time distribution data in horizontal fluidized beds, Procedia Engineering 102, 2015, Pages 790-798, ISSN: 1877-7058
- Sondej, F.; Bück, A.; Koslowsky, K.; Bachmann, P.; Jacob, M.; Tsotsas, E.: Investigation of coating layer morphology by micro-computed X-ray tomography, Powder Technology 273, 2015, Pages 165-175, ISSN 0032-5910
- Chen, K.; Bachmann, P.; Bück, A.; Jacob, M.; Tsotsas, E.: Experimental study and modeling of particle drying in a continuously-operated horizontal fluidized bed, Particology 34, 2017, Pages 134-146, ISSN 1674-2001
- Chen, K.; Bachmann, P.; Bück, A.; Jacob, M.; Tsotsas, E.: CFD simulation of particle residence time distribution in industrial scale horizontal fluidized bed, Powder Technology 345, 2019, Pages 129-139, ISSN 0032-5910

## Konferenz-Proceedings

- Bachmann, P.; Peglow, M.; Tsotsas, E.: Population balance modeling of moisture content distributions in semi-batch fluidized bed drying, 18th International Drying Symposium, 11.-15. November 2012, Xiamen, Fujian, China

- Bachmann, P.; Tsotsas, E.: Minimization of particle dispersion in a continuous fluidized bed, 19th International Drying Symposium, 24.-27. August 2014, Lyon, Frankreich
- Wagner, D.; Bachmann, P.; Brinkhues, S.; Detert, M.; Schmidt, B.: Bus-based, miniaturized multi-sensory catheter system, Electronics System-Integration Technology, 18.-21. September 2018, Dresden, Deutschland

## Konferenzbeiträge ohne Proceedings

- Bachmann, P.; Peglow, M.; Tsotsas, E.: Modellierung der Gutsfeuchteverteilung bei der Semi-Batch-Wirbelschichttrocknung mit Hilfe von Populationsbilanzen, DECHEMA VDI-GVC FA Trocknungstechnik, 19.-21. März 2012, Hohenheim, Deutschland
- Bachmann, P.; Tsotsas, E.: Investigation of particle residence time distributions in horizontal fluidized beds, International Congress on Particle Technology, 23.-25. April 2013, Nuremberg, Deutschland
- Bachmann, P.; Tsotsas, E.: Untersuchung der Verweilzeitverteilung von Partikelpopulationen in der Wirbelschichttrinne, DECHEMA VDI-GVC FA Trocknungstechnik, 11.-12. März 2013, Magdeburg, Deutschland
- Bachmann, P.; Tsotsas, E.: Investigation of particle residence time distributions in horizontal fluidized beds, Conference of University of Chemical Technology and Metalurgy, 4.-5. Juni 2013, Sofia, Bulgarien
- Bachmann, P.; Tsotsas, E.: Verweilzeituntersuchung partikulärer Produkte in der Wirbelschichttrinne, DECHEMA VDI-GVC FA Trocknungstechnik, 19.-21. Februar 2014, Magdeburg, Deutschland
- Bachmann, P.; Bück, A.; Tsotsas, E.: Prediction of the Bodenstein number in a horizontal fluidized bed, 10th European Congress of Chemical Engineering, 27. September - 01. Oktober 2015, Nizza, Frankreich
- Bachmann, P.; Tsotsas, E.: Untersuchung des Transportverhaltens von Mischungen versch. Partikelgrößen in der Wirbelschichttrinne, DECHEMA VDI-GVC FA Agglomerations- und Schüttguttechnik Magdeburg, 16.-18. März 2015, Magdeburg, Deutschland
- Bachmann, P.; Bück, A.; Tsotsas, E.: Investigation and measurement of a particle moisture distribution using NMR spectroscopy, Innovations in Engineering 2015, 08.-10. September 2015, Sarafovo, Bulgarien
- Bachmann, P.; Tsotsas, E.: Berechnung von Schichtdickenverteilungen von Partikelpopulationen beim Coating in einer kontinuierlichen Wirbelschichttrinne, DECHEMA VDI-GVC FA Trocknungstechnik, 14.-15. März 2016, Weimar, Deutschland



