

Transportvorgänge in Festbetten

Geschichte, Stand und Perspektiven der Forschung*

Herrn Prof. Dr. Dieter Vortmeyer zum 60. Geburtstag

Evangelos Tsotsas**

Die Übersicht versucht, einen Eindruck über die Geschichte, den gegenwärtigen Stand und die Perspektiven der Forschung auf dem Gebiet der Wärme-, Stoff- und Impulsübertragung in Festbetten zu vermitteln. Die Methodik der Modellbildung und der experimentellen Analyse wird anhand von Beispielen ausführlich erläutert und in einer Reihe von Thesen kodifiziert. Sie ist nicht auf Festbetten beschränkt, sondern läßt sich auch auf andere mehrphasige Systeme mit oder ohne chemische Reaktion anwenden. Formeln oder Berechnungsrichtlinien werden nicht angegeben, dafür wird auf Handbücher und andere Veröffentlichungen verwiesen.

Transport phenomena in packed beds: History, state of the art, and research outlook. This review tries to give an impression about the history, the state of the art, and the research outlook for heat, mass, and momentum transfer in packed beds. The methodology of model development and experimental analysis is thoroughly discussed on the basis of examples; several postulates are introduced for its codification. This methodology is not restricted to packed beds but can also be applied to other disperse systems with or without chemical reaction. Formulas and guidelines for calculations are not given; handbooks and other related papers are quoted for this purpose.

1 Einleitung

Die vorliegende Übersicht befaßt sich mit der Wärme-, Stoff- und Impulsübertragung in Festbetten, d.h. in losen, mit einer fluiden Phase gefüllten Haufwerken. Obwohl Festbetten eine herausragende Bedeutung in der modernen Verfahrenstechnik besitzen, sollen hier nicht Praktiker mit detaillierten Berechnungsrichtlinien versorgt werden. Da dies vor kurzem an anderer Stelle geschah [1], verzichten wir getrost auf die Angabe von Formeln. Vielmehr soll dem Leser eine Vorstellung über die Geschichte, den Stand und die Perspektiven der entsprechenden Forschung vermittelt werden. Da sich Festbetten als Paradigma für kompliziertere disperse Systeme eignen, ist die Betonung der Forschungsmethodik im Text nicht zufällig. Die Subjektivität eines solchen Beitrags liegt in seiner Natur, er ist als Diskussionsgrundlage gemeint, nicht als Abschlußbericht. Dementsprechend und aus Platzgründen ist die Literaturliste nicht vollständig, sie stellt nur eine kleine Auswahl aus dem umfangreichen Skripttum dar. Der Autor bittet für seine bewußten oder fahrlässigen Auslassungen um Nachsicht.

2 Wärme- und Stoffübertragung ohne Strömung

Gewaltige gedankliche Sprünge sind weder für den individuellen noch für den kollektiven menschlichen Intellekt typisch. Vielmehr findet der Fortschritt durch Analogien

und kleine Extrapolationen statt, indem man vom Bekannten ausgehend das Unbekannte schrittweise erschließt. Als in der zweiten Hälfte des vergangenen Jahrhunderts die Forschung über disperse Systeme und Festbetten einsetzte, war Vieles über einphasige Medien bereits bekannt. Um an diesem Wissen anzuknüpfen, wurde die sogenannte Kontinuumsannahme eingeführt. Danach lassen sich disperse Systeme wie homogene, einphasige Körper mit „effektiven“ Eigenschaften beschreiben. Die Aufgabe der Berechnung dieser Eigenschaften war den Forschern zugedacht, und namhafte Naturwissenschaftler taten sich dabei hervor – so Lorenz und Lorentz (Brechungsindex), Clausius und Mossotti (Dielektrizitätskonstante) und Maxwell [2] (elektrische Leitfähigkeit). Ihre Berechnungen können auch auf die uns interessierenden Eigenschaften von Festbetten ohne Durchströmung übertragen werden, so auf die Wärmeleitfähigkeit λ_{bed} und den Diffusionskoeffizienten δ_{bed} .

Im 20. Jahrhundert traten die Ingenieure den Naturwissenschaftlern zur Seite, wodurch sich das Spektrum der Forschung weiter entfaltete: Den analytischen Berechnungen wurden Ersatzschaltungen [3], Zellenmodelle [4, 5], numerische Berechnungen [6] und zahlreiche Meßdaten hinzugefügt; (weitere Zitate finden sich in [7, 8]). Heute sind diese Untersuchungen bereits so ausgereift, daß Transporteigenschaften von nicht durchströmten Festbetten wie die Wärmeleitfähigkeit λ_{bed} und der Diffusionskoeffizient δ_{bed} bereits als Stoffwerte geführt werden [9]. Die Forschung konzentriert sich vorwiegend auf Sondereffekte, wie die Übertragung von Wärme durch Strahlung [10] bzw. durch Feststoffbrücken [11] oder die Auswirkung der Partikelform und -größenverteilung [12].

Daß, indes, die Kontinuumsannahme nur eingeschränkt gilt, läßt sich an den Daten von Abb. 1 gut erkennen. Es handelt sich um momentane Wärmeübergangskoeffizienten α_t , die zwischen einer Heizplatte und dem daraufliegenden Festbett aus Glaskugeln gemessen wurden [13, 14].

* Vortrag auf der Sitzung des Fachausschusses „Wärme- und Stoffübertragung“ der GVC-VDI-Gesellschaft Verfahrenstechnik und Chemieingenieurwesen am 25./26. April 1991 in Freudenstadt.

** Priv.-Doz. Dr.-Ing. habil. E. Tsotsas, Dow Deutschland Inc., Postfach 1120, 2160 Stade.

Während sich α_t für große Werte der Zeit t aus derselben sowie aus der spezifischen Wärmekapazität und der Wärmeleitfähigkeit λ_{bed} des Bettes nach *Fourier* errechnet (\sqrt{t} -Gesetz), strebt der Wärmeübergangskoeffizient bei kleinen Zeiten einer waagerechten Asymptote entgegen ($\alpha_t \approx \alpha_{\text{ws}}$). Das Abdriften von der *Fourier*'schen Theorie ist auf das Versagen der ihr zugrundeliegenden Kontinuumsannahme zurückzuführen [15, 16]. Als Kriterium hierfür kann die Unterschreitung der kritischen Zeit t_{crit} verwendet werden, die sich nach Abb. 1 aus dem Schnittpunkt der Asymptoten ergibt. Man merke jedoch, daß es sich hier um einen allmählichen Übergang und nicht um eine sprunghafte Änderung handelt.

Den Grund für das geschilderte Verhalten kann man leicht verstehen, indem man sich die ersten Augenblicke der Wärmeübertragung von der Wand an das Bett vorstellt. Dann sind die auf der isothermen Heizfläche liegenden Partikel aufgrund ihrer beträchtlichen Wärmekapazität noch isotherm, doch hat die Wärmeübertragung in dem nahezu kapazitätslosen Gaswickel, der diese Partikel von der Wand trennt, ihren stationären Zustand bereits erreicht. Somit wird sie nur von der Leitung in der Gasphase bestimmt, die feste Phase ist am Geschehen noch ganz unbeteiligt. Erst für $t > t_{\text{crit}}$ umspannt die Eindringtiefe des Temperaturprofils beide Phasen, so daß das Festbett aus makroskopischer Sicht als ein Kontinuum betrachtet werden darf.

Schnelle instationäre Vorgänge in Festbetten oder ganz allgemein in dispersen Systemen stellen die Kontinuumsannahme grundsätzlich in Frage. Ein quantitatives Kriterium für ihre Gültigkeit ist indessen nicht immer bekannt. Offenbar existiert in diesem Zusammenhang noch Forschungsbedarf. Auch werden möglichst einfache Modelle gebraucht, die dennoch in der Lage sind, die Abweichungen vom Verhalten eines Kontinuums angemessen zu berücksichtigen. Im Problem des auf einer Heizplatte liegenden Festbettes geschieht dies durch die Einführung von α_{ws} , der als Kontaktwärmeübergangskoeffizient bezeichnet wird. Seine Vorausberechnung, sowie die Berechnung von t_{crit} , werden in [13] diskutiert.

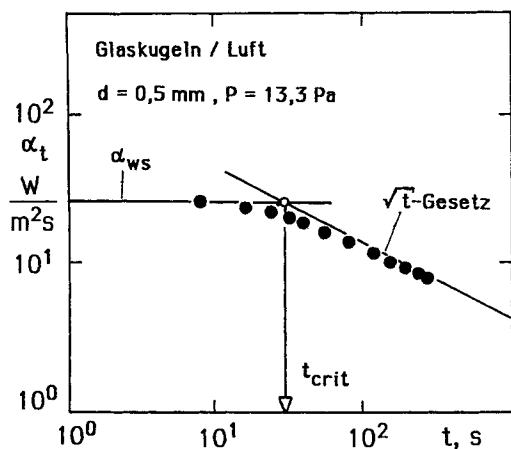


Abb. 1. Momentane Werte des Wärmeübergangskoeffizienten zwischen einer Heizplatte und einer darauf liegenden Schüttung in Abhängigkeit von der Zeit [13, 14]; Glaskugeln ($d = 0,5 \text{ mm}$) / Luft, Druck: $P = 13,3 \text{ Pa}$. Unterhalb der kritischen Kontaktzeit t_{crit} gilt die Kontinuumsannahme nicht mehr.

3 Strömung

Während die Beschäftigung mit den Eigenschaften von nicht durchströmten dispersen Systemen im Laufe der

Jahrzehnte zu einem fast eigenständigen Zweig der Naturwissenschaft und der Mathematik avancierte (vgl. [17], [18]), ist der Ingenieur vor allem an offenen Kontrollräumen und an durchströmten Festbetten interessiert: Es gilt ja in der Verfahrenstechnik, die Eigenschaften von Stoffströmen zu verändern, und zwar bei möglichst hohem Umsatz.

Der Prototyp für die meisten entsprechenden Apparate ist das Schüttungsrohr: Gegenüber dem leeren Rohr besitzt es den Vorteil einer viel größeren Phasengrenzfläche und einer Rippenwirkung, wenn es um die Auswirkung einer Randbedingung von der Wand an das Fluid geht. Die sich verändernde Eigenschaft des Fluids kann seine Temperatur sein, wie in Regeneratoren, die bereits von *Nußelt* [19] und *Hausen* [20] eingehend untersucht wurden. Auch die Änderung der Zusammensetzung des Fluids in Festbettreaktoren ist technisch sehr interessant. Entsprechende Studien wurden bereits von *Damköhler* [21] durchgeführt, doch erreichte die Forschung – angetrieben durch die rasante Ausbreitung der Petrochemie – erst in der Nachkriegszeit ihren noch anhaltenden Höhepunkt.

Unabhängig von der Art der Fluideigenschaft, die sich bei der Durchströmung verändert, hängt das Ausmaß dieser Veränderung von der Verweilzeit und somit auch vom Strömungsfeld im Festbett ab. In einem feststofffreien („leeren“), laminar durchströmten Rohr stellt das Fluid ein Kontinuum dar, und das Strömungsfeld kann bei bekannter Viskosität vorausberechnet werden. Die Kontinuumsannahme wird beim Übergang in die Turbulenz stark relativiert, da ja bekanntlich große und kleine Wirbel existieren, bis zur molekularen Ebene hinunter. Doch läßt sich der Formalismus wiederum durch die Einführung einer effektiven („turbulenten“) Viskosität retten. Ähnliches kann auch für Festbetten durch den Ersatz der Viskosität mit der Permeabilität erreicht werden. Letztere berücksichtigt die Reibung, die aufgrund der Partikel entsteht. Die sich ergebende lineare Abhängigkeit zwischen der Strömungsgeschwindigkeit und dem Druckverlust ist als D'Arcy-Gesetz bekannt ([22], vgl. auch mit [23]). Trägheitsterme gewinnen erst bei hohen Reynolds-Zahlen die Oberhand, was durch einen additiven, quadratischen Term berücksichtigt werden kann. Am gebräuchlichsten ist die Gleichung von *Ergun* [24], während man einige weitere Hinweise aus der besonders umfangreichen Literatur in [13] findet.

Durch die Kopplung der vorangegangenen Anschauung mit der Annahme einer konstanten, ortsunabhängigen Permeabilität ergibt sich ein nivelliertes, kolbenartiges Strömungsprofil im Schüttungsrohr: Die entsprechende Verweilzeit ließe sich einfach aus der Strecke und der Fluidgeschwindigkeit berechnen.

Während die meisten Berechnungen und Modelle für Schüttungsrohre auf dieser Annahme beruhen, entpuppt sich die Hypothese der Kolbenströmung bei näherer Betrachtung als sehr ungenau. Strömungsprofile existieren nämlich in Wirklichkeit sowohl auf mikroskopischer, als auch auf mesoskopischer und makroskopischer Ebene, s. Abb. 2 nach [25, 26]. Die sogenannte mikroskopische Strömungs-Ungleichverteilung bezieht sich auf die einzelnen Hohlräume der Schüttung, mit Abmessungen, die kleiner als der Partikeldurchmesser d sind. Sie entsteht durch die Haftung des Fluids an der Partikeloberfläche und durch die wechselnde Kontur des Strömungskanals. Das Strömungsfeld ist zwar für geordnete Packungen und im laminaren Bereich nach *Navier/Stokes* berechenbar [27], doch lassen sich entsprechende Kalkulationen für die praktisch relevanten Zufallsschüttungen nicht mehr durchführen. Die Hohlräume solcher Betten haben nämlich eine

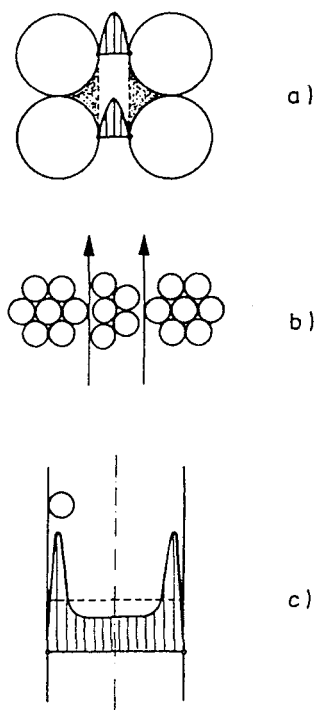


Abb. 2. Mikroskopische (a), mesoskopische (b) und makroskopische (c) Strömungsungleichverteilung in Schüttungsrohren.

nicht nur unbekannte sondern auch um ein statistisches Mittel schwankende Geometrie. Die Strömung und die Turbulenz in einzelnen Hohlräumen von geordneten Schüttungen wurden von einigen Forschern experimentell untersucht, s. z.B. [28, 29]. Messungen dieser Art werden durch Platzenge erschwert: Trotz des Einsatzes von Tischtennis- und Feldtennisbällen läßt sich eine gewisse Verfälschung durch die Anwesenheit der Sonde nicht vermeiden. Außerdem stellt die Übertragung von Ergebnissen aus der mikroskopischen Ebene geordneter Packungen auf das makroskopische Geschehen in zufälligen Festbetten ein bislang ungelöstes, theoretisches Problem dar.

Mesoskopische Anomalien der Strömung werden in Betten aus relativ kleinen Teilchen ($d < 1$ mm) durch die Bildung von verhältnismäßig dichten Agglomeraten und von Bypass-Kanälen verursacht (Abb. 2b). Sie beziehen sich auf eine Skala von einigen Partikeldurchmessern und sind zwar oft nur indirekt, jedoch eindeutig nachweisbar [26]. Und auch auf der makroskopischen Ebene des gesamten Rohrquerschnitts – charakteristische Abmessung: Rohrdurchmesser D – ist die Strömung ungleichverteilt. Grund dafür ist die Struktur des Bettes in Wandnähe, die von einer gewissen Ordnung gekennzeichnet ist, da ja die Porosität an der Wand den Wert $\psi = 1$ haben und einen halben Partikeldurchmesser von ihr entfernt ein Minimum erreichen muß. Der Verlauf der Funktion $\psi(r) - r$ ist die radiale Ortskoordinate – wurde in der Literatur gemessen [30, 31], empirisch approximiert [32, 33] und durch komplizierte Modelle simuliert [34] (s. auch [26]). Alles in allem bleibt eine Auflockerung der wandnahen, ca. einen halben Partikeldurchmesser dicken Zone übrig, so daß man ein randgängiges makroskopisches Strömungsprofil erwartet. Dies wird dadurch etwas relativiert, daß die Strömungsgeschwindigkeit in unmittelbarer Nähe der Wand doch wieder abnehmen muß, um schließlich zu verschwinden (Haftbedingung, s. Abb. 2c).

Die vorangegangenen Überlegungen zur makroskopischen Strömungs-Ungleichverteilung wurden bereits in 1953

durch Messungen bestätigt [35] (s. auch [36]). Letztere werden in der Regel mit Ringanemometern durchgeführt, die man in den leeren Rohrquerschnitt nach dem Bett plaziert. Die durch Verzerrung des Profils zwischen dem Bettende und der Meßebeane entstehenden Ungenauigkeiten sind dabei offensichtlich. Solche Ungenauigkeiten können freilich nur mit Hilfe von berührungslosen, optischen Messungen innerhalb des Bettes ausgeschaltet werden [31, 37]. Leider sind solche Techniken sehr aufwendig, so daß ihre Ausbeute bis jetzt recht gering blieb. Mit Sicherheit liegt hier ein Schwerpunkt für zukünftige Anstrengungen vor.

Die experimentellen Untersuchungen wurden von zahlreichen theoretischen Studien begleitet. So leitete *Martin* ein randgängiges, stufenartiges Geschwindigkeitsprofil ab, basierend auf einer Zwei-Zonen-Approximation für den Verlauf der Porosität [32]. Andere Autoren haben verschiedene Kontinuumsmodelle vorgeschlagen, s. z.B. [38–41]. Besonders erwähnenswert ist die Arbeit von *Vortmeyer* und *Schuster* [33], die von einer exponentiellen Abnahme der Porosität mit zunehmendem Wandabstand ausgingen. Die numerisch berechneten Geschwindigkeitsprofile wurden durch analytische Ausdrücke approximiert, so daß nun Formeln für den praktischen Gebrauch bereitstehen [1, 33]. Zwei nach diesen Formeln errechnete makroskopische Geschwindigkeitsprofile sind in Abb. 3 aufgetragen (R : Rohrradius, $u_0(r)$, u_0 : lokale bzw. mittlere Leerrohrgeschwindigkeit). Das Ausmaß der – erheblichen – Abweichung vom Kolbenprofil hängt vom Verhältnis zwischen dem Rohr- und dem Partikeldurchmesser D/d , sowie von der Reynolds-Zahl Re_0 ab. Letztere ist als $Re_0 = u_0 d / \nu_f$ (ν_f : kinematische Viskosität) definiert. Die Erfüllung der Haftbedingung an der Rohrwand wurde durch die Verwendung eines viskosen Terms im Ansatz für die Impulsübertragung gewährleistet [33]. Es sei erwähnt, daß Anlaufstrecken in Schüttungsrohren – ob der kleinen Permeabilität – kurz sind und in aller Regel vernachlässigt werden dürfen [26]. Zukünftige Arbeiten werden sich wohl mit der Verfeinerung der vorhandenen Ansätze, mit dem Einfluß der Partikelform und -größenverteilung und mit den Wechselwirkungen zwischen den verschiedenen Skalen der Strömungsungleichverteilung befassen.

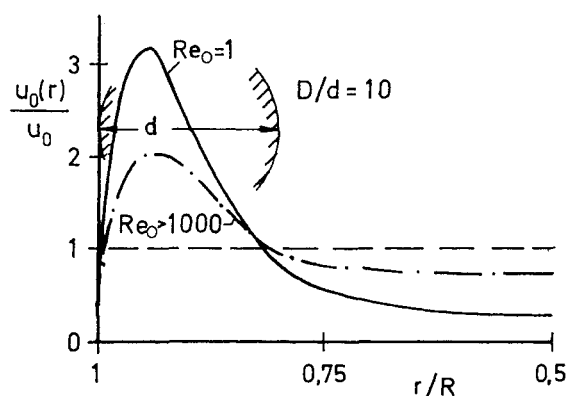


Abb. 3. Zwei nach *Vortmeyer* und *Schuster* [33] errechnete makroskopische Geschwindigkeitsprofile in einem mit kugelförmigen Partikeln gepackten Kreisrohr. Die Kolbenströmung ist gestrichelt dargestellt.

4 Dispersion

In einem Versuch die Verweilzeit und ihre Verteilung möglichst direkt zu bestimmen, schlug *Danckwerts* [42]

sogenannte Tracer-Experimente vor. Dabei wird dem einströmenden Fluid eine pulsartige, schrittförmige oder periodische Markierung zugegeben. Die Konzentration des Tracers wird sowohl am Eintritt als auch am Austritt des Bettes in Abhängigkeit von der Zeit gemessen. Läge Kolbenströmung vor, dann müßten die beiden Anzeigen zwar phasenverschoben doch sonst identisch sein (die Partikeln werden als kompakt und inert betrachtet). In Wirklichkeit besitzt jedoch das Ausgangssignal immer ein größeres zweites Moment als die Eintrittsmarkierung [43], es ist breiter und abgeflachter. Die zunächst nicht näher spezifizierte Ursache für die Ausbreitung und Abflachung wird gewöhnlich axiale Dispersion genannt. Man nimmt ferner an, daß der entsprechende Stoffstrom der ersten Ableitung des axialen Konzentrationsprofils des Tracers direkt proportional sei mit einer Proportionalitätskonstante, die man als den Dispersionskoeffizienten D_{ax} bezeichnet. Das entsprechende „Dispersionsmodell“ – für Gleichungen s. u.a. in [1, 13, 44] – und seine zahlreichen Varianten haben eine wichtige, wenn auch oft kontrovers diskutierte Rolle im Chemieingenieurwesen der Nachkriegszeit gespielt.

Zunächst sollen die Ursachen für das Auftreten der axialen Dispersion erklärt werden, wobei das leere, laminar durchströmte Rohr eine gute Ausgangsposition bietet. In einem solchen Rohr wird die Front der Tracer-Markierung durch das – parabolische – Geschwindigkeitsprofil ständig auseinandergezerrt, während sich die Diffusion um Konzentrationsausgleich in radialer Richtung bemüht. Das Zusammenspiel der beiden, entgegengesetzten Effekte wird nach einer genügend langen Verweilzeit aus makroskopischer Sicht als axiale Dispersion wahrgenommen und – zu Ehren seines Entdeckers – Taylor-Dispersion genannt [45]. Ist die Verweilzeit hingegen kurz, dann kann sich die Taylor-Dispersion nicht entfalten, die Veränderung der Markierung ist bei bekanntem Geschwindigkeitsprofil direkt aus ihm berechenbar. Freilich liegt ein ausgeprägter – und nicht leicht zu beschreibender – Übergangsbereich zwischen den zwei Asymptoten. Ferner findet Stoffübertragung in axiale Richtung durch Diffusion statt (s. [46]).

Die axiale Diffusion wird als Dispersionsmechanismus auch in Festbetten gefunden. Eine Auswahl aus entsprechenden Messungen ist in Abb. 4 enthalten [47–51], für mehr Information s. [25, 26]. Als Kennzahl für die axiale

Dispersion wird die effektive Péclet-Zahl $PE_{ax} = u_0 d / D_{ax}$ verwendet, die Auftragung ist doppellogarithmisch. Ferner wird zwischen gas- und flüssigkeitsdurchströmten Festbetten unterschieden (mit durchgezogenen bzw. mit gestrichelten Linien abgegrenzte Meßwerte-Bereiche). In allen Fällen waren die Partikeln kompakt, inert, kugelförmig und monodispers. Daß für Gase und kleine Reynolds-Zahlen ($Re_0 < 10^0$) die effektive Péclet-Zahl direkt proportional zu der Reynolds-Zahl ist, läßt sich durch die Dominanz der axialen Diffusion erklären. Freilich ist dafür nicht der Diffusionskoeffizient in einem feststofffreien Raum, sondern der Diffusionskoeffizient des Bettes ohne Strömung δ_{bed} nach Abschnitt 2 maßgeblich.

Da Flüssigkeitsmoleküle recht langsam diffundieren, tritt die entsprechende Asymptote in Abb. 4 nicht auf: Man könnte sie erst bei ca. $Re_0 = 10^{-3}$ beobachten. In dieser Beziehung würde die sog. molekulare Péclet-Zahl $Pe_0 = u_0 d / \delta$ eine bessere Abszisse für die Auftragung abgeben, als die Reynolds-Zahl.

Bei hohen Reynolds-Zahlen ergibt sich unabhängig vom Aggregatzustand des Fluids ein Grenzwert von ca. $PE_{ax} = 2$ (s. Abb. 4). Dieser läßt sich weder als Diffusion noch als Taylor-Dispersion interpretieren. Vielmehr beschreibt er die axiale Vermischung des Fluids, die in den Hohlräumen der Schüttung stattfindet. In dieser Hinsicht kann das Festbett auch als eine Kaskade aus idealen Rührkesseln aufgefaßt werden, der Wert $PE_{ax} = 2$ ist auf theoretischem Wege ableitbar [52].

Ein besonders auffälliges Merkmal von Abb. 4 sind die Unterschiede zwischen Flüssigkeiten und Gasen: Während man für Gase einen recht glatten Übergang von der Asymptote der axialen Diffusion zu der derjenigen der Rührkesselkaskade erhält – vom kleinen Zwischenmaximum abgesehen –, ergibt sich für Flüssigkeiten ein ausge dehntes Plateau mit einem nahezu konstanten Wert von ca. $PE_{ax} = 0,5$. Die zusätzliche Dispersion (man vgl. mit $PE_{ax} = 2$) wurde in [25] als durch die mikroskopische Strömungsungleichverteilung angetriebene Taylor-Dispersion gedeutet. Auch ist es gelungen, durch einfache Modellannahmen die experimentellen Befunde recht gut zu beschreiben, s. Abb. 5. Nach dieser Interpretation tritt die Schmidt-Zahl, $Sc = \nu_f / \delta$, im PE_{ax} - Re_0 -Diagramm als zusätzlicher Parameter auf. Ob der kleinen Diffusionskoeffizienten ist die

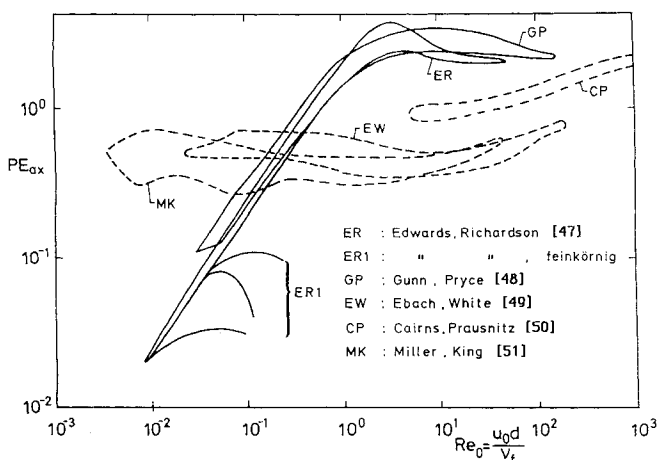


Abb. 4. Axiale Dispersion in Schüttungsrohren nach Tracer-Experimenten; kugelförmige, kompakte, inerte und monodisperse Partikeln. Auf der Ordinate steht die effektive Péclet-Zahl $PE_{ax} = u_0 d / D_{ax}$. Durchgezogene Linien: Gase; gestrichelte Linien: Flüssigkeiten.

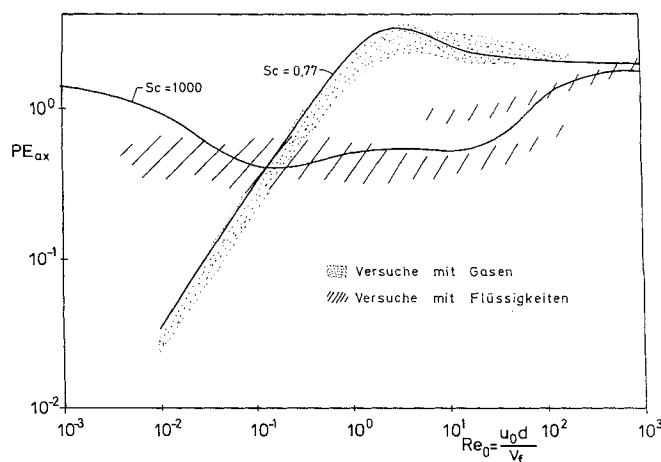


Abb. 5. Tracer-Experimente zeigen Unterschiede im Dispersionsverhalten zwischen Gasen und Flüssigkeiten. Diese lassen sich durch Berücksichtigung der mikroskopischen Strömungsungleichverteilung und der daraus resultierenden Taylor-Dispersion recht gut erklären (durchgezogene Linien nach [25]); $PE_{ax} = u_0 d / D_{ax}$.

Schmidt-Zahl in Flüssigkeiten ca. drei Größenordnungen größer als in Gasen.

Taylor-Dispersion tritt auch in der mesoskopischen Ebene auf und verursacht das sonderbare Verhalten der mit kleinen Partikeln gewonnenen Daten von Abb. 4 („ER1“). Indessen scheint das makroskopische Strömungsprofil keine wesentliche Taylor-Dispersion anzuregen. Wäre eine solche Dispersion vorhanden, dann müßte sie sich mit einer deutlichen Abhängigkeit vom Verhältnis zwischen Rohr- und Partikeldurchmesser D/d bemerkbar machen. Auch der Art der beobachteten mittleren Zusammensetzung – ob flächengemittelt oder „mixed cup“ – käme eine wesentliche Bedeutung zu. Doch konnten solche Effekte durch Tracer-Experimente in inerten Betten bis heute nicht eindeutig nachgewiesen werden [25]. Andererseits tritt bei Versuchen mit überlagerter Adsorption doch ein gewisser Einfluß des Verhältnisses D/d auf [53]: Das Problem ist noch ungelöst.

Überhaupt ist die Taylor-Dispersion in Festbetten noch weitgehend unverstanden. Dies betrifft sowohl den Übergangsbereich als auch die Wechselwirkungen zwischen den verschiedenen räumlichen Skalen ihrer Anregung und Entwicklung. Daß die qualitative Einteilung von Abb. 2 ihre Grenzen hat, erkennt man, wenn man den Übergang zu sehr kleinen D/d -Verhältnissen betrachtet. Dann wird die mesoskopische Skala irrelevant, die makroskopische und die mikroskopische verschmelzen miteinander. Der Entwurf einer umfassenden, vereinheitlichten Theorie ist eine dringende, jedoch keineswegs einfache Aufgabe. Auch muß die Brücke zwischen den Festbetten und den konsolidierten porösen Körpern – und zwischen den entsprechenden Forschergruppen – geschlagen werden. Erste Vergleiche zeigen hier Unterschiede sowohl in der Konzeption als auch in den experimentellen Befunden [26, 54, 55].

Bei aller Theorie darf man nicht übersehen, daß die Taylor-Dispersion ein Fragezeichen im Siegeszug der Danckwert'schen Tracer-Methode darstellt. Es wird ja ein Effekt gemessen, der nur für instationäre Vorgänge relevant ist. Je größer sein Beitrag, desto schwieriger und fraglicher wird die Anwendung der Meßergebnisse auf die Auslegung von kontinuierlichen, stationär operierenden Apparaten. Um es an einem Beispiel deutlich auszudrücken, sind Markierungsexperimente doch kein gleichwertiger Ersatz für die Hagen-Poiseuille'sche Lösung, wenn es darum geht, einen feststofffreien, laminar durchströmten Rohrreaktor auszulegen.

Auch das Fundament des Dispersionsmodells, die Art seiner Differentialgleichung, blieb in der Literatur von Kritik nicht verschont [56]. Doch spielen die kritisierten Modellschwächen – unendliche Geschwindigkeit der Signalübertragung, Rückvermischung – in vielen praktischen Problemen keine allzu große Rolle. Freilich hat es an Entwürfen für alternative Modelle keineswegs gefehlt, wobei Methoden der Wahrscheinlichkeitsrechnung [57], Computer-Experimente [58] und mehr oder minder komplizierte Netzwerke aus Kanälen und Knotenpunkten [59, 60] herangezogen wurden. Solche Ansätze entfernen sich vom Kontinuum-Charakter des Dispersionsmodells zusehends, auch von seiner empirischen und pauschalisierenden Art. Zugleich muß jedoch das traditionelle Instrumentarium der Differentialrechnung ebenso aufgegeben werden, man gerät selbst mit der digitalen Bauweise unserer Rechenanlagen in Konflikt. Beschränkt man sich auf die Strömung und die Dispersion, so mag die Übung mit Zellenmodellen lehrreiche Ergebnisse liefern, doch ist der Übergang zu komplexeren – lies: praxisnahen – Vorgängen

sehr problematisch. Die in diesem Zusammenhang verbreitete Ansicht, die makroskopisch beobachtbare Dispersion wäre allein aus den Gesetzmäßigkeiten der Impulsübertragung ableitbar – s. z.B. [60] –, kann der Autor des vorliegenden Beitrags nicht teilen: Taylor hat uns eigentlich bereits vor vierzig Jahren eines Besseren belehrt. Ein interessantes Beispiel für die Fortführung der Taylor'schen Analyse ist übrigens in [61] zu finden. Die Schaffung einer strengen mathematischen Basis für Kontinuumsmodelle wurde von einigen Forschern in Angriff genommen – „Volumenmittelung“, s. u.a. [62, 63]. Während dadurch die Struktur vorhandener Gleichungen bestätigt werden konnte, war die Ausbeute an Neuem nicht sehr groß: Der eindeutige experimentelle Nachweis für zusätzliche Terme und Koeffizienten blieb bis heute aus. Indessen wird die Aktivität auf dem Gebiet mit Sicherheit nicht nachlassen, Herausforderung und Bürde aus dem Umstand, daß das Strömungsfeld in einem Zufallsbett wohl unberechenbar ist.

5 Thermische Markierungen und die Methodik der Modellierung

Neben der Zugabe einer Tracer-Substanz kann die Zufuhr von Wärme auch zur Markierung des in ein Schüttungsrohr einströmenden Fluids dienen. Der wesentliche Unterschied besteht darin, daß in einem thermischen Experiment die Partikeln nicht inertisiert werden können: Sie spielen eine überaus wichtige Rolle, ähnlich wie die adsorbierenden Teilchen in einer chromatographischen Säule. So wird die Fortbewegung des Schwerpunkts der Markierung durch die Wärmekapazität der Partikeln abgebremst, die entsprechende mittlere Verweilzeit nimmt erheblich zu. Zum anderen spiegelt sich die Kinetik des Temperatursausgleichs in die Änderung des zweiten Moments des Signals wider. Diese Kinetik umfaßt, erstens, die axiale Wärmeübertragung in der fluiden und in der festen Phase, zweitens, den Wärmetransport vom Fluid an die Partikeloberfläche und umgekehrt, und, drittens, die Wärmeleitung im Partikelinneren. Möchte man all diese Effekte berücksichtigen, dann muß man auf ein heterogenes, dreiparametrisches Modell zurückgreifen. Dabei bedeutet „Heterogenität“, daß zwischen der festen und der fluiden Phase unterschieden wird. Für jeden Effekt tritt ein Modellparameter auf: die effektive Wärmeleitfähigkeit λ_{ax} (analog zu D_{ax}) für die axiale Wärmeübertragung, die Nußelt-Zahl $Nu = \alpha d / \lambda_f$ (α : Wärmeübergangskoeffizient, λ_f : Wärmeleitfähigkeit des Fluids) für den Wärmetransport zwischen den Phasen, und die Wärmeleitfähigkeit der Teilchen λ_p für die intrapartikuläre Leitung.

Doch sind einfachere Modelle mit zwei oder gar mit einem Parameter ebenso denkbar, jeweils drei in der Anzahl. Eines dieser Modelle enthält beispielsweise die effektive Wärmeleitfähigkeit als einzigen Parameter. Es ist ein homogenes Modell, das thermische Analogon des Dispersionsmodells vom Abschnitt 4. In einem anderen kommt lediglich die Nußelt-Zahl vor: Es handelt sich um das einfachste heterogene Modell, das vor mehr als sechzig Jahren vorgeschlagen wurde [19, 64, 65] und vielfach unter dem Namen „Regeneratorgleichungen“ bekannt ist. Und auch verkomplizieren läßt sich die Situation leicht, indem man z.B. die makroskopische Strömungsungleichverteilung in die Modellierung auch noch miteinbezieht. Wie kann der Forscher bei so vielen Möglichkeiten das zur Versuchsauswertung geeignete Modell wählen? Welchen Parameter sollte man sinnvollerweise aus dem Experiment

bestimmen? Und, welchen Rat sollte man dem Praktiker mit auf den Weg geben?

Nach Antworten für die vorangegangenen Fragen haben mehrere Autoren gesucht, wobei der Pionierarbeit von *Vortmeyer/Schäfer* [66] und den Beiträgen von *Dixon/Cresswell* [67–69] besondere Aufmerksamkeit gebührt (s. auch [70]). Die Quintessenz der umfangreichen Literatur läßt sich wie folgt in vier Thesen kodifizieren [26]:

These 1: Verschiedene Modelle können das Ergebnis eines Experiments gleich gut beschreiben.

These 2: Zur Beurteilung der Güte von Modellen sind, neben der „guten Übereinstimmung zwischen Messung und Rechnung“, auch zusätzliche Kriterien nötig: Die Korrelierbarkeit der nach dem Modell aus Meßdaten abgeleiteten Parameter, ihre Übertragbarkeit auf andere Experimente und ihre Unabhängigkeit von den Randbedingungen; schließlich, die physikalische Relevanz der dem Modell zugrundeliegenden Annahmen und Vorstellungen.

These 3: Die genannten Kriterien lassen sich durch Erhöhung der Modellkomplexität erfüllen.

These 4: Die Parameter eines Modells lassen sich von den Parametern eines anderen mit Hilfe von Äquivalenzbeziehungen berechnen. Letztere sind jedoch nicht allgemeingültig, sondern versuchsspezifisch.

Bezüglich des Experiments mit einer thermischen Markierung hat sich das bereits erwähnte, heterogene dreiparametrische Modell als zufriedenstellend erwiesen (Erfüllung der Kriterien von These 2). Im nachfolgenden wird die Änderung des zweiten Moments aufgrund der axialen Wärmeübertragung (Modellparameter: A_{ax}) als A_1 bezeichnet. Dementsprechend steht A_2 für den Einfluß des Wärmetransports Fluid – Partikeloberfläche (Modellparameter: Nu), A_3 für die Auswirkung der intrapartikulären Leitung (Modellparameter: λ_p). Die gesamte Änderung des zweiten Moments, die ja im Experiment gemessen wird, setzt sich in erster Näherung aus den genannten Einzelbeiträgen additiv zusammen. Letztere werden in bezogener Form durch die Quotienten $A_n/\Sigma A_n$, $n = 1$ bis 3, ausgedrückt. Während Ableitung und Formeln in [26] und z. T. auch in [1] enthalten sind, werden diese Quotienten in Abb. 6 gezeigt. Die Berechnung beruht auf einer mittleren Schüttungsporosität von $\psi = 0,40$, einer Prandtl-Zahl von $Pr = 1$ und einem Verhältnis zwischen Partikel- und

Gaswärmeleitfähigkeit von $\lambda_p/\lambda_f = 50$. Es wurde angenommen, daß die Wärmekapazität der festen Phase viel größer als diejenige des Fluids sei („Kapazitätenverhältnis“ $K \gg 1$), was für gasgefüllte Betten auch gut zutrifft. Ferner werden die Nußelt-Zahlen Nu nach *Gnielinski* [71] und die effektive Wärmeleitfähigkeit λ_{ax} nach [1] berechnet. Letztere strebt bei kleinen Durchsätzen der Wärmeleitfähigkeit der nicht durchströmten Schüttung λ_{bed} entgegen. Doch den größten Einfluß auf den Betrag der Quotienten $A_n/\Sigma A_n$ übt die in der Abszisse von Abb. 6 aufgetragene molekulare Péclet-Zahl für die Wärmeübertragung $Pe_0 = u_0(\rho c)_f d/\lambda_f$ aus. Es zeigt sich, daß die axiale Dispersion von Wärme bei kleinen Péclet-Zahlen durch die axiale Wärmeübertragung, bei mittleren durch den Wärmetransport zwischen Fluid und Partikeloberfläche und bei großen durch die Leitung im Partikelinneren dominiert wird. Die Begriffe „klein“, „mittel“ und „groß“ lassen sich sogar mit Hilfe von zwei kritischen Péclet-Zahlen $Pe_{0,cr,1}$ und $Pe_{0,cr,2}$ quantifizieren. Die Definition dieser Kenngrößen, die wiederum keine Stabilitätsbedeutung haben, ist aus Abb. 6 ersichtlich, ihre Vorausberechnung wird in [26] erörtert. Es ist nun klar, daß der kluge Experimentator im Bereich $Pe_0 < Pe_{0,cr,1}$ die effektive Wärmeleitfähigkeit λ_{ax} , im Intervall $Pe_{0,cr,1} < Pe_0 < Pe_{0,cr,2}$ die Nußelt-Zahl Nu und im Bereich $Pe_0 > Pe_{0,cr,2}$ die Partikelleitfähigkeit λ_p aus den Ergebnissen seiner Markierungsversuche ableiten wird.

Doch was passiert, wenn man gezwungenerweise oder freiwillig auf einer niedrigeren Komplexitätsebene arbeitet und z.B. alles nach den Regeneratorgleichungen auswertet? Die Güte der Wiedergabe der Meßdaten bleibt dann unberührt, wie ja These 1 besagt. Eine Bewertung ist somit nur durch Berücksichtigung der zusätzlichen Kriterien von These 2 möglich, indem man den aus dem Experiment ermittelten Parameter genauer unter die Lupe nimmt. Dieser ist die Nußelt-Zahl, die wir zur Unterscheidung Nu' nennen, und die gemäß These 4 aus den drei Parametern des komplexeren Modells berechnet werden kann. Die entsprechende Formel [26] drückt eine versuchsspezifische Äquivalenzbedingung aus, nämlich die Invarianz der zentralen Meßgröße: Für die thermischen Markierungsexperimente die Invarianz der Änderung des zweiten Moments zwischen Aus- und Eintritt des Schüttungsrohres. Das Ergebnis einer solchen Berechnung ist in Abb. 7 über der molekularen Péclet-Zahl Pe_0 aufgetragen. Gewaltige Unterschiede treten zwischen Nu' und der Nußelt-Zahl des dreiparametrischen Modells Nu auf, sowohl bei großen als auch bei kleinen Péclet-Zahlen. In diesen Bereichen ist die Kennzahl Nu' weder auf andere Experimente oder technische Situationen übertragbar, noch von den Randbedingungen unabhängig, noch physikalisch relevant: Sie wird oft als „scheinbar“ bezeichnet. Die Nußelt-Zahl des dreiparametrischen Modells Nu , die den Kriterien von These 2 genügt, wird nur im mittleren Péclet-Bereich approximiert, da dort die axiale Dispersion der Wärme tatsächlich vom Temperatureausgleich zwischen Fluid und Partikeloberfläche kontrolliert wird: Die Parallele zu Abb. 6 ist offensichtlich.

Vor allem das als Festbettparadoxon bezeichnete Verhalten von Nu' bei kleinen Péclet-Zahlen gab in der Literatur zu vielen Diskussionen und Vermutungen Anlaß, s. u.a. [32, 72–75]. Hält man sich jedoch an der hier geschilderten Methodik, so verliert das Paradoxon seine paradoxen Merkmale. Beim heutigen Stand des Wissens läßt sich die („wahre“) Nußelt-Zahl des dreiparametrischen Modells Nu bzw. die entsprechende Sherwood-Zahl für die Stoffübertragung nach [71] zuverlässig vorausberechnen. Dennoch ist im Schrifttum eine gewisse Verwirrung vorhanden,

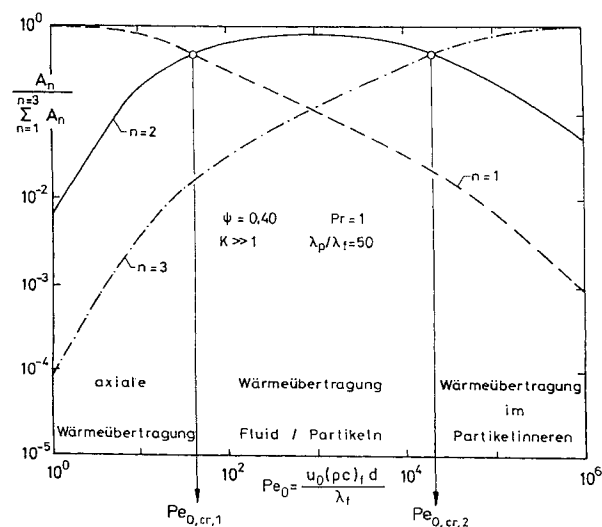


Abb. 6. Verschiedene Beiträge zur axialen Dispersion von Wärme in durchströmten Festbetten (Experimente mit thermischer Markierung) und ihre anteilige Wichtigkeit.

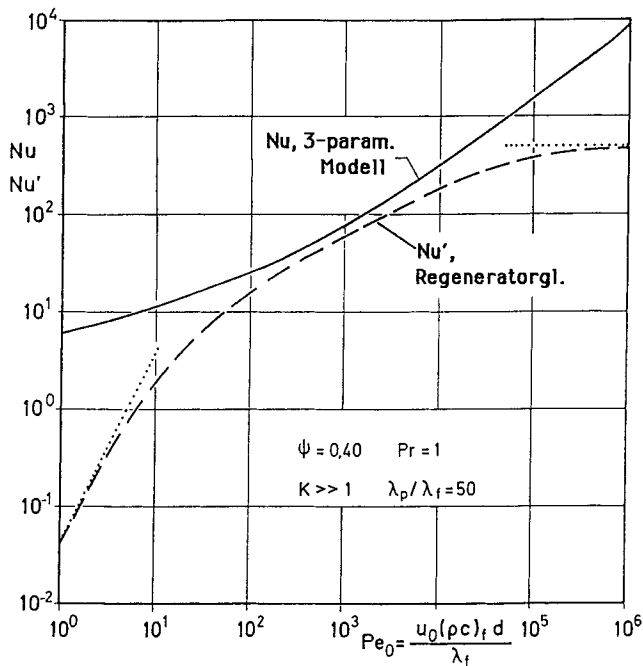


Abb. 7. Abhängigkeit der im einparametrischen heterogenen Modell (Regeneratorgleichungen) vorkommenden Nußelt-Zahl Nu' von der molekularen Péclet-Zahl (gestrichelte Linie). Zum Vergleich ist die nach [71] berechnete Nußelt-Zahl Nu angegeben; (dem dreiparametrischen Modell entsprechend).

hervorgerufen dadurch, daß Parameter mit unterschiedlicher Bedeutung leider oft denselben Namen tragen. Solche Mißverständnisse gilt es, in Zukunft zu vermeiden oder auszuräumen.

Eine weitere Erhöhung der Komplexität des heterogenen dreiparametrischen Modells hat sich bis heute in Zusammenhang mit Markierungsexperimenten nicht als notwendig erwiesen. Der Einfluß von Strömungsungleichverteilungen wird vermutlich durch die rege Beteiligung der Partikeln an der Wärmeübertragung in den Hintergrund gedrängt. Dennoch sind einige Ungereimtheiten weiterhin vorhanden, vor allem den Einfluß der Strömung auf die effektive Wärmeleitfähigkeit Λ_{ax} betreffend. In diesem Zusammenhang ist der Vergleich mit sogenannten Rückwärtsleitungsexperimenten interessant, s. z. B. [26, 76]. Bezüglich Λ_{ax} existiert noch Forschungsbedarf.

6 Das diabate Schüttungsrohr

Im vorangegangenen Abschnitt wurde das Schüttungsrohr stillschweigend als adiabat angenommen. Nun soll ein diabates Rohr mit konstanter Wandtemperatur T_W betrachtet werden. In diesem Rohr wird ein Fluid von der Eintrittstemperatur T_{ein} auf eine mittlere Austrittstemperatur T_{aus} erhitzt. Nach Pionierarbeiten von Colburn [77], Kling [78] und Leva [79], wurde zur Beschreibung des geschilderten Experiments in 1951 von Brötz [80] sowie von Coberly/Marshall [81] ein homogenes, zweidimensionales und zweiparametrisches Modell vorgeschlagen. Als Parameter enthält das Modell eine ortsunabhängige radiale Wärmeleitfähigkeit Λ_r und einen Wärmeübergangskoeffizienten an der Wand α_w . Letzterer ist mathematisch in eine Randbedingung der dritten Art eingebaut, er impliziert einen Temperatursprung an der Wand. Man nimmt außerdem an, daß die Strömungsgeschwindigkeit von der radialen Ortskoordinate unabhängig sei, d. h. man vernachlässigt

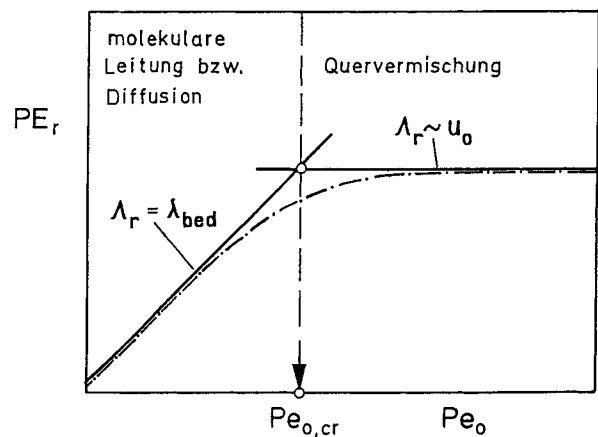


Abb. 8. Die Mechanismen der lateralen Wärme- bzw. Stoffübertragung in durchströmten Festbetten und die Definition der kritischen Péclet-Zahl (qualitative, doppellogarithmische Auftragung).

sigt die makroskopische Strömungsungleichverteilung. Das Modell kann, gemäß These 1 und ähnlich zu vielen anderen Modellen, die meisten Meßergebnisse (mittlere Austrittstemperaturen, radiale Temperaturprofile) recht gut beschreiben. Doch wird das Kriterium der Korrelierbarkeit (These 2) vom Wandwärmeübergangskoeffizienten α_w nur bedingt erfüllt. Letzterer, als Nußelt-Zahl $Nu_w = \alpha_w d / \lambda_f$ ausgedrückt, korreliert zwar im Bereich hoher molekularer Péclet-Zahlen relativ gut, bei kleinen Pe_0 -Werten jedoch nicht mehr. Ähnliches wird auch von anderen, mit α_w definierten Kennzahlen gezeigt. Das sonderbare Verhalten (s. u. a. [82, 83]) läßt die Frage nach der physikalischen Relevanz des Modells aufkommen, die sich am besten beantworten läßt, wenn man zunächst den Wärmetransport im Inneren des Bettes betrachtet.

Dazu ist das hier qualitative und doppellogarithmische Diagramm von Abb. 8 gut geeignet. Es stellt den zweiten Modellparameter, die radiale Wärmeleitfähigkeit Λ_r , in Form einer effektiven Péclet-Zahl $PE_r = u_0 (\rho c)_f d / \Lambda_r$, in Abhängigkeit von der molekularen Péclet-Zahl Pe_0 dar. Wie man sieht, wird bei großen Pe_0 -Zahlen ein asymptotischer Grenzwert von PE_r erreicht. In diesem Bereich nimmt die Wärmeleitfähigkeit Λ_r mit zunehmender Geschwindigkeit u_0 direkt proportional zu. Die Zunahme ist auf die hydrodynamische Quervermischung des Fluids in den Hohlräumen des Bettes zurückzuführen. Durch einfache Ansätze für diese sogenannte Flechtströmung läßt sich sogar der Endwert $PE_r = 8$ theoretisch ableiten [84, 85]. In der Praxis ergeben sich etwas höhere Werte – um $PE_r = 10$ –, eine Abhängigkeit vom Durchmesser Verhältnis wird beobachtet [86]. Die Genauigkeit, mit der man heute PE_r vorausberechnen kann, wird in [26] zusammen mit den vorhandenen Meßdaten kritisch diskutiert. Bezüglich der Meßtechniken sei hier die kleinflächige und stationäre Injektion einer Markierung in die Schüttung stichwortartig erwähnt. Die Markierung kann sowohl thermisch als auch stofflich sein, s. u. a. [87, 88] bzw. [89, 90]. Im letzteren Fall kommt der Koeffizient für radiale Dispersion D_r anstelle von Λ_r vor, die effektive Péclet-Zahl ist als $PE_r = u_0 d / D_r$ und die molekulare als $Pe_0 = u_0 d / \delta$ definiert; ansonsten ändert sich wenig. So wie die Wand die Turbulenz in einem leeren Rohr hemmt, so hemmt sie auch die Quervermischung in einem gepackten. Es entsteht ein Widerstand, der mit Hilfe einer Randbedingung der dritten Art recht gut beschrieben werden kann [83, 91, 92]: Das Modell ist im Bereich großer Péclet-Zahlen Pe_0 physikalisch relevant.

Nach These 3 kann eine bessere Beschreibung durch Erhöhung der Modellkomplexität erreicht werden. Das neue, die Kriterien erfüllende Modell müßte das radiale Profil der Porosität $\psi(r)$, der Strömungsgeschwindigkeit $u_0(r)$ und der Wärmeleitfähigkeit $A_r(r)$ berücksichtigen, eventuell auch die Leitung in axiale Richtung (also A_{ax}). Zumindest für $Pe_0 < Pe_{0,cr}$ wäre dann ein Wandwärmeübergangskoeffizient entbehrlich. Diese Entwicklungslinie wurde von einer Reihe von Forschern aufgenommen, die die eine oder andere der genannten Abhängigkeiten berücksichtigten. Darunter seien hier *Kalthoff/Vortmeyer* [93], *Vafai/Tien* [94], *Vafai et al.* [95], *Renken/Poulikakos* [96], *Cheng/Vortmeyer* [97], *Tsotsas/Schlünder* [83], *Daszowski/Eigenberger* [98] und *Vortmeyer/Haidegger* [99] genannt. In der zuletzt erwähnten, wichtigen Arbeit wurden die radialen Profile aller beteiligten Größen beachtet, auch der Wärmeleitfähigkeit A_r . Die in [83] auf theoretischem Wege abgeleiteten Aussagen konnten durch Meßdaten bestätigt werden, sowohl mit als auch ohne chemische Reaktion. Dennoch sind viele weitere Vergleiche und gezielte Experimente nötig, bevor ein Wärmeleitfähigkeitsprofil $A_r(r)$ dem Praktiker in die Hand gegeben werden kann. Hierin liegt eine sowohl aus theoretischer als auch aus praktischer Sicht bedeutende Forschungsaufgabe für die kommenden Jahre. Vor dieser Aufgabe sollte vielleicht an eine leider wenig beachtete Arbeit von *Brötz* aus 1956 erinnert werden, der damals – sich auf den Bereich kleiner Péclet-Zahlen Pe_0 beziehend – schrieb: „Der Wärmetransport (ist) allein durch die effektive Wärmeleitung in der durchströmten Schicht“, d.h. ohne einen Wandkoeffizienten, „bestimmt“ [100]. Es dauerte Jahrzehnte, bis diese Einsicht wieder an Boden gewann.

Die in den vorangegangenen Abschnitten gezeigte Methodik beschränkt sich nicht auf Festbetten, sondern ist auf andere mehrphasige Systeme mit oder ohne chemische Reaktion ebenso anwendbar. Im allgemeinen wird der forschende Wissenschaftler folgende Schritte durcharbeiten müssen:

-
- Das Diagramm illustriert den Prozess der Modellierung und deren Verbindung zur Praxis. In der Mitte befindet sich eine vertikale 'Hierarchie der Modelle', dargestellt durch eine Reihe von übereinander gestapelten Kästen, die jeweils in vier Spalten unterteilt sind. Über der Hierarchie steht 'Kriterien' mit einem Pfeil, der auf die Modelle zeigt. Rechts daneben steht 'Äquivalenzen' mit einem Pfeil, der von den Modellen ausgeht. Links steht 'Analyse/Theorie' und rechts 'Synthese/Praxis'. Ein 'besorgter Forscher' (mit einem traurigen Gesichtsausdruck) ist mit der Analyse/Theorie verbunden, während ein 'froher Praktiker' (mit einem glücklichen Gesichtsausdruck) mit der Synthese/Praxis verbunden ist. Ein 'gescheiterter Forscher' (mit einem traurigen Gesichtsausdruck) ist am unteren Ende der Hierarchie dargestellt, wo die Modelle in eine chaotische Masse von Symbolen und Zeichen zerfallen. Ein Pfeil führt von der Synthese/Praxis zu diesem gescheiterten Zustand.

Reaktion vorhanden, dann müssen alle Transportparameter von ihrer Kinetik unabhängig sein.

- Fortschritte werden in der Zukunft wohl großen experimentellen und rechnerischen Aufwand erfordern. Team-Arbeit und Kontinuität innerhalb einer Forschungsstelle sowie Koordination zwischen verschiedenen Forschungseinrichtungen sind daher gefragt.

Chem.-Ing.-Tech. 64 (1992) Nr. 4, S. 313–322

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) sei für die im Rahmen des Sonderforschungsbereichs 250 „Selektive Reaktionsführung an festen Katalysatoren“ gewährte Unterstützung herzlich gedankt.

Eingegangen am 30. August 1991 [B 5657]

Literatur

- [1] Tsotsas, E., in: VDI-Wärmeatlas, 6. Aufl., Abschn. Mh, VDI-Verlag, Düsseldorf 1991.
- [2] Maxwell, J. C.: A treatise on electricity and magnetism, Clarendon Press, Oxford 1873.
- [3] Krischer, O.: Die wissenschaftlichen Grundlagen der Trocknungstechnik, Springer Verlag, Berlin 1956.
- [4] Hengst, G.: Dissertation, München 1934.
- [5] Zehner, P.; Schlünder, E.-U.: Chem.-Ing.-Tech. 42 (1970) S. 933/941.
- [6] Wakao, N.; Kato, K.: J. Chem. Eng. Jpn 2 (1969) S. 24/33.
- [7] Vortmeyer, D.: Ger. Chem. Eng. 3 (1980) S. 124/128.
- [8] Tsotsas, E.; Martin, H.: Chem. Eng. Process. 22 (1987) S. 19/37.
- [9] Tsotsas, E., in: VDI-Wärmeatlas, 6. Aufl., Abschn. Deb, VDI-Verlag, Düsseldorf 1991.
- [10] Tien, C. L.: Trans. ASME J. Heat Transfer 110 (1988) S. 1230/1242.
- [11] Nayak, A. L.; Tien, C. L.: Int. J. Heat Mass Transfer 21 (1978) S. 669/676.
- [12] Tsotsas, E.; Schlünder, E.-U.: Chem. Eng. Technol., 14 (1991) S. 421/427.
- [13] Schlünder, E.-U.; Tsotsas, E.: Wärmeübertragung in Festbetten, durchmischten Schüttgütern und Wirbelschichten, Thieme Verlag, Stuttgart 1988.
- [14] Schlünder, E.-U.: Chem. Eng. Process. 18 (1984) S. 31/53.
- [15] Schlünder, E.-U.: Chem.-Ing.-Tech. 43 (1971) S. 651/654.
- [16] Tsotsas, E.; Martin, H.: Chem.-Ing.-Tech. 61 (1989) S. 677/686.
- [17] Lord Rayleigh: Phil. Mag. J. Sci. 34 (1892) S. 481/502.
- [18] Sangani, A. S.; Acrivos, A.: Lecture Notes Phys. 154 (1981) S. 216/225.
- [19] Nußelt, W.: VDI-Z. 7 (1927) S. 85/91.
- [20] Hausen, H.: Wärmeübertragung im Gegenstrom, Gleichstrom und Kreuzstrom, Springer Verlag, Berlin 1955.
- [21] Damköhler, G., in: Der Chemie-Ingenieur (Eucken, Jakob, Hrsg.), Band 3, Teil 1, Akad. Verlag, Leipzig 1937.
- [22] D'Arcy, H. P. G.: Les fontaines publiques de la ville de Dijon, Victor Dalmont, Paris 1856.
- [23] Durst, F.; Haas, R.; Interthal, W.: J. Non-Newtonian Fluid Mech. 22 (1987) S. 169/189.
- [24] Ergun, S.: Chem. Eng. Prog. 48 (1952) S. 89/94.
- [25] Tsotsas, E.; Schlünder, E.-U.: Chem. Eng. Process. 24 (1988) S. 15/31.
- [26] Tsotsas, E.: VDI-Fortschr. Ber. VDI-Z-Reihe 3, Nr. 223, VDI-Verlag, Düsseldorf 1990.
- [27] Sorensen, J. P.; Stewart, W. E.: Chem. Eng. Sci. 29 (1974) S. 819/825.
- [28] Cairns, E. J.; Prausnitz, J. M.: Ind. Eng. Chem. 51 (1959) S. 1441/1444.
- [29] van der Merwe, D. F.; Gauvin, W. H.: AIChE J. 17 (1971) S. 519/528.
- [30] Benenati, R. F.; Brosilow, C. B.: AIChE J. 8 (1962) S. 359/361.
- [31] McGreavy, C.; Foumeny, E. A.; Javed, K. H.: Chem. Eng. Sci. 41 (1986) S. 787/797.
- [32] Martin, H.: Chem. Eng. Sci. 33 (1978) S. 913/919.
- [33] Vortmeyer, D.; Schuster, J.: Chem. Eng. Sci. 38 (1983) S. 1691/1699.
- [34] Govindarao, V. M. H.; Froment, G. M.: Chem. Eng. Sci. 41 (1986) S. 533/539.
- [35] Schwartz, C. E.; Smith, J. M.: Ind. Eng. Chem. 45 (1953) S. 1209/1218.
- [36] Ziolkowska, I.; Ziolkowski, D.: Chem. Eng. Process. 23 (1988) S. 137/164.
- [37] Stephenson, J. L.; Stewart, W. E.: Chem. Eng. Sci. 41 (1986) S. 2161/2170.
- [38] Radestock, J.; Jeschar, R.: Chem.-Ing.-Tech. 43 (1971) S. 355/360.
- [39] Stanek, V.; Szekely, J.: AIChE J. 20 (1974) S. 974/980.
- [40] Kremer, H.; Rodenhäuser, F.: Chem.-Ing.-Tech. 54 (1982) S. 203/212.
- [41] Berninger, R.; Vortmeyer, D.: Chem.-Ing.-Tech. 59 (1987) S. 224/227.
- [42] Danckwerts, P. V.: Chem. Eng. Sci. 2 (1953) S. 1/13.
- [43] van der Laan, E. T.: Chem. Eng. Sci. 10 (1958) S. 187/191.
- [44] Vortmeyer, D.: Dechema Monogr. 114 (1989) S. 1/26.
- [45] Taylor, G.: Proc. R. Soc. London, Ser. A 219 (1953) S. 186/203.
- [46] Aris, R.: Proc. R. Soc. London, Ser. A 235 (1956) S. 67/77.
- [47] Edwards, M. F.; Richardson, J. F.: Chem. Eng. Sci. 23 (1968) S. 109/123.
- [48] Gunn, D. J.; Pryce, C.: Trans. Inst. Chem. Eng. 47 (1969) S. T341/T350.
- [49] Ebach, E. A.; White, R. R.: AIChE J. 4 (1958) S. 161/169.
- [50] Cairns, E. J.; Prausnitz, J. M.: Chem. Eng. Sci. 12 (1960) S. 20/34.
- [51] Miller, S. F.; King, C. J.: AIChE J. 12 (1966) S. 767/773.
- [52] Aris, R.; Amundson, N. R.: AIChE J. 3 (1957) S. 280/282.
- [53] Tobis, J.; Vortmeyer, D.: Chem. Eng. Sci. 43 (1988) S. 1363/1369.
- [54] Patel, K. M.; Greaves, M.: Chem. Eng., Res. Dev. 65 (1987) S. 12/22.
- [55] Kinzel, D. L.; Hill, G. A.: Can. J. Chem. Eng. 67 (1989) S. 39/44.
- [56] Sundaresan, S.; Amundson, N. R.; Aris, R.: AIChE J. 26 (1980) S. 529/536.
- [57] Sergeev, S. P.; Dilman, V. V.: Theor. Fund. Chem. Eng. 20 (1986) S. 15/23.
- [58] Sahimi, M.; Hughes, B. D.; Scriven, L. E.; Davis, H. T.: Chem. Eng. Sci. 41 (1986) S. 2103/2122.
- [59] Michail, R.; Singer, C.: Chem. Eng. Sci. 43 (1988) S. 2781/2794.
- [60] Aviles, B. E.; Levan, M. D.: Chem. Eng. Sci. 46 (1991) S. 1935/1944.
- [61] Eidsath, A.; Carbonell, R. G.; Whitaker, S.; Herrmann, L. R.: Chem. Engng Sci. 38 (1983) S. 1803/1816.
- [62] Slattery, J. C.: Momentum, energy and mass transfer in continua, McGraw Hill, New York, 1972.
- [63] Whitaker, S.: Chem. Eng. Sci. 28 (1973) S. 139/148.
- [64] Anzelius, A.: Z. Angew. Math. Mech. 6 (1926) S. 291/294.
- [65] Schuman, T. E. W.: J. Franklin Inst. 208 (1929) S. 405/416.
- [66] Vortmeyer, D.; Schäfer, R. J.: Chem. Eng. Sci. 29 (1974) S. 485/491.
- [67] Dixon, A. G.; Cresswell, D. L.: AIChE J. 25 (1979) S. 663/676.
- [68] Dixon, A. G.: AIChE J. 31 (1985) S. 826/834.
- [69] Dixon, A. G.; Cresswell, D. L.: AIChE J. 32 (1986) S. 809/819.
- [70] Vortmeyer, D.: Chem. Eng. Process. 26 (1989) S. 263/268.
- [71] Gnielinski, V., in: VDI-Wärmeatlas, 6. Aufl., Abschn. Gh, VDI-Verlag, Düsseldorf 1991.
- [72] Zabrodsky, S. S.: Int. J. Heat Mass Transfer 10 (1967) S. 1793/1800.
- [73] Nelson, P. A.; Galloway, T. R.: Chem. Eng. Sci. 30 (1975) S. 1/6.
- [74] Wakao, N.; Kaguei, S.; Funazkri, T.: Chem. Eng. Sci. 34 (1979) S. 325/336.
- [75] Glicksman, L. R.; Joos, F. M.: Trans. ASME J. Heat Transfer 102 (1980) S. 736/741.
- [76] Vortmeyer, D.; Adam, W.: Int. J. Heat Mass Transfer 27 (1984) S. 1465/1472.
- [77] Colburn, A. P.: Ind. Eng. Chem. 23 (1931) S. 910/923.
- [78] Kling, G.: Forschung 9 (1938) Nr. 2, S. 82/90.
- [79] Leva, M.: Ind. Eng. Chem. 39 (1947) S. 857/862.
- [80] Brötz, W.: Chem.-Ing.-Tech. 23 (1951) S. 408/416.
- [81] Coberly, C. A.; Marshall, W. R.: Chem. Eng. Prog. 47 (1951) S. 141/150.

- [82] Hennecke, F.-W.; Schlünder, E.-U.: Chem.-Ing.-Tech. 45 (1973) S. 277/284.
- [83] Tsotsas, E.; Schlünder, E.-U.: Chem. Eng. Sci. 45 (1990) S. 819/837.
- [84] Baron, T.: Chem. Eng. Progr. 48 (1952) S. 118/124.
- [85] Schlünder, E.-U.: Chem.-Ing.-Tech. 38 (1966) S. 967/979.
- [86] Fahien, R. W.; Smith, J. M.: AIChE J. 1 (1955) S. 28/37.
- [87] Zehner, P.; Schlünder, E.-U.: Chem.-Ing.-Tech. 45 (1973) S. 272/276.
- [88] Stanek, V.; Vychodil, P.: Chem. Eng. Commun. 27 (1984) S. 69/78.
- [89] Hiby, J. W., in: Interaction between fluids and particles (P. A. Rottenburg, Hrsg.), Inst. Chem. Eng., London 1962.
- [90] Han, N. W.; Bhakta, J.; Carbonell, R. G.: AIChE J. 31 (1985) S. 277/288.
- [91] Tobis, J.; Ziolkowski, D.: Chem. Eng. Sci. 43 (1988) S. 3031/3036.
- [92] Tien, C. L.; Hunt, M. L.: Chem. Eng. Process. 21 (1987) S. 53/63.
- [93] Kalthoff, O.; Vortmeyer, D.: Chem. Eng. Sci. 35 (1980) S. 1637/1643.
- [94] Vafai, K.; Tien, C. L.: Int. J. Heat Mass Transfer 24 (1981) S. 195/203.
- [95] Vafai, K.; Alkire, R. L.; Tien, C. L.: Trans. ASME J. Heat Transfer 107 (1985) S. 642/647.
- [96] Renken, K. J.; Poulikakos, D.: Int. J. Heat Mass Transfer 31 (1988) S. 1399/1408.
- [97] Cheng, P.; Vortmeyer, D.: Chem. Eng. Sci. 43 (1988) S. 2523/2532.
- [98] Daszkowski, T.; Eigenberger, G.: Chem.-Ing.-Tech. 62 (1990) S. 852/855.
- [99] Vortmeyer, D.; Haidegger, E.: Chem. Eng. Sci. 46 (1991) S. 2651/2660.
- [100] Brötz, W.: Chem.-Ing.-Tech. 28 (1956) S. 165/174.

Das Zerstäuben metallischer Schmelzen*

Klaus Bauckhage**

Von den zahlreichen Zerstäubungsmechanismen für die Disintegration von Schmelzen werden die wichtigsten beschrieben und hinsichtlich ihrer konstruktiven Details und Betriebsbedingungen besprochen. Sie lassen sich nach der Art und Weise gliedern, nach der die notwendigen Impulskräfte für die Disintegration aufgebracht werden, z.B. über die Tangential- und Normalkräfte von Zerstäubergasen und -flüssigkeiten, über Zentrifugalkräfte, durch das Einleiten hochfrequenter Schwingungen oder durch Impactvorgänge. Die mit den wichtigsten Zerstäuberarten erzielbaren integralen Tropfengrößen-Beziehungen werden diskutiert. Diese Information ist wichtig für eine optimierte Pulverproduktion, insbesondere dann, wenn in der betreffenden Beziehung für den Medianwert der diesbezüglichen Größenverteilung die Betriebsparameter in geeigneter Weise korreliert sind. Jedoch bleibt die verkürzte Angabe ausschließlich des Lageparameters weitgehend wertlos, wenn bei der Bezeichnung des Verteilungstyps nicht wenigstens die Streuungsparameter mit benannt werden.

Atomization of metallic melts. Among the numerous atomization techniques for melt spraying the principal ones are described and discussed in regard to their design criteria and operating conditions. They can be classified according to the forces acting on the melt stream via the high energy fluid streams (gas or water jets), by ultrasound-activated vibrations, by impact or by rotating elements. The equations for overall drop size distributions will be discussed. This information is important for optimized production of powders, especially if the median diameters of the resultant particle size distributions are correlated with the operating parameters of the disintegration process. However, this message remains insufficient if no information is given about its standard deviation with regard to the type of distribution.

1 Einleitung

Das Zerstäuben eines kontinuierlichen Flüssigkeitsstromes (auch einer Schmelze) dient dem Feindispersieren des Fluids und der Generierung vergleichsweise riesiger Flüssigkeitsoberflächen. Im allgemeinen steht dahinter das Ziel, günstige Voraussetzungen für einen nachfolgenden Wärme- und Stofftransport oder für eine Reaktion der Tropfen mit Gasen, Flüssigkeiten oder Feststoffoberflächen zu schaffen, im Falle metallischer Schmelzen besteht

das primäre Ziel in der Abkühlung und Erstarrung des dispergierten Materials.

Da eines der geläufigsten Herstellungsverfahren der wichtigsten mineralischen Werkstoffe, wie Keramiken, Gläser und selbstverständlich der Metalle, heutzutage noch das Erschmelzen ist, liegt es nahe, den Weg über das Zerstäuben der betreffenden Schmelzen zu wählen, wenn der darzustellende Werkstoff als disperses Material benötigt wird. Häufig besitzt dieser Weg gegenüber den klassischen Zerkleinerungsverfahren (z.B. von abgegossenem und erstarrtem Material) den Vorteil,

- wirtschaftlicher zu sein,
- wegen der Vermeidung von Abrieb frei von Kontaminationen zu bleiben,
- kugelförmige Partikeln zu produzieren, die in sehr enge Fraktionen klassierbar und in hohem Maße rieselfähig sind,

* Überarbeitete Fassung eines Übersichtsvortrages anlässlich der 5th Int. Conf. on Liquid Atomization and Spray Systems (ICLASS '91), 15./18. Juli 1991, am National Institute of Standards and Technology in Gaithersburg, MD, USA.

** Prof. Dr.-Ing. K. Bauckhage, Institut für Werkstofftechnik, Badgasteiner Str. 3, 2800 Bremen 33.