



Abschlussbericht zum Projekt SO 204/30-1 Einbeziehung der Strukturentstehung von Agglomeraten in CFD- Methoden zur Berechnung von Produkteigenschaften

1. Allgemeine Angaben

DFG-Förderkennzeichen	SO 204/30-1
Antragsteller	Martin Sommerfeld, Prof. Dr.-Ing.
Institut/Lehrstuhl	Zentrum für Ingenieurwissenschaften Lehrstuhl Mechanische Verfahrenstechnik Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg 06099 Halle (Saale)
Thema des Projektes	Einbeziehung der Strukturentstehung von Agglomeraten in CFD-Methoden zur Berechnung von Produkteigenschaften
Berichtszeitraum	1. März 2005 bis 31. Dezember 2010
Förderungszeitraum insgesamt	1. März 2005 bis 30. April 2007
Publikationen aus diesem Projekt	a) Begutachtete Artikel Stübing, S., Dietzel, M. and Sommerfeld, M., Modelling agglomeration and the fluid dynamic behaviour of agglomerates, Proceedings of ASME-JSME-KSME Joint Fluids Engineering Conference 2011, Paper No. AJK2011-12025, July 24-29, 2011, Hamamatsu, Shizuoka, JAPAN (angenommen zur Veröffentlichung in den CD-Rom Proceedings, siehe Anlage) Weitere Publikationen sind in Vorbereitung. b) Konferenzbeiträge Stübing, S. and Sommerfeld, M., Lagrangian modelling of agglomerate structures in a homogeneous isotropic turbulence, Proceedings of the 7th International Conference on Multiphase Flow, ICMF2010, Tampa, Fl., USA, Paper No. 11.7.3 (2010). Stübing, S. and Sommerfeld, M.: Lagrangian modeling of agglomerate structure. Proceedings of the 6th International Conference on Multiphase Flow, ICMF2007, Leipzig, Germany, Paper No. S2_Thu_A_47 (2007).

2. Arbeits- und Ergebnisbericht

2.1. Ausgangsfragen und Zielsetzung des Projekts

Das Hauptziel des Projekts ist die Erweiterung eines numerischen Berechnungsmodells zur Vorausberechnung der Produkteigenschaften von sprühgetrockneten Agglomeraten. Dazu sollte ein am Lehrstuhl vorhandenes Agglomerationsmodell hinsichtlich der Strukturentstehung von Agglomeratpopulationen erweitert werden. Unter Einbeziehung der Lagevektoren aller agglomeratbildenden Primärpartikel kann die Struktur der Agglomerate charakterisiert und daraus Produkteigenschaften abgeleitet werden. Die angestrebten Strukturinformationen, die das weiterentwickelte Modell bereitstellen soll sind:

- Formfaktoren der individuellen Agglomerate,
- statistische Verteilungen der Formfaktoren einer dispersen Population,
- die Eindringtiefen der Primärpartikel im Agglomerat ineinander,
- effektive freie Oberflächen, reale Grenzflächen zum umgebenden Fluid und
- die Porosität und fraktale Dimension der Agglomerate,
- sowie charakteristische Durchmesser.

Mit Hilfe der gewonnenen Strukturinformationen soll die Basis geschaffen werden, die Produkteigenschaften wie Löslichkeits- und Dispersionsverhalten, Agglomeratstärke und Schüttguteigenschaften berechnet werden. Dazu müssen theoretische Zusammenhänge zwischen Agglomeratstruktur und die Auswirkung auf die daraus abgeleiteten Produkteigenschaften gefunden werden.

2.2. Entwicklung der durchgeführten Arbeiten

In diesem Projekt wurde ein Modell zur Agglomeration von viskosen und hochviskosen Partikeln hinsichtlich der Strukturcharakterisierung der Agglomeratmorphologie erweitert. Das bisherige Modell betrachtete entstandene Agglomerate als ein sphärisches Einzelpartikel mit dem volumenäquivalenten Durchmesser aller Primärpartikel. Kollisionen zwischen Primärpartikel und Agglomerat wurden als Kollision zweier sphärischer Partikel betrachtet und die Struktur des Agglomerats nicht näher aufgelöst. In dieser Arbeit wurde das bestehende Modell (Blei 2006) soweit erweitert, dass die Struktur von Agglomeraten aufgelöst und ein heranfliegendes Partikel mit dem entsprechenden Primärpartikel im Agglomerat kollidiert.

Zur Charakterisierung von Agglomeratstrukturen muss die Lage jedes einzelnen Primärpartikels, aus denen ein Agglomerat aufgebaut ist, bekannt sein. Dafür musste zunächst eine Datenstruktur entwickelt werden, um sämtliche zur Strukturcharakterisierung benötigten Informationen zu speichern. Hierbei repräsentieren die Datenelemente einer Baumstruktur die einzelnen Primärpartikel (Lipowsky und Sommerfeld (2008)). Jedes Element trägt spezifische Informationen über das entsprechende Partikel, wie Partikeldurchmesser, Lage im Agglomerat und Eindringtiefe. Über die Lagevektoren ist der Ort aller Primärpartikel innerhalb des Agglomerats jederzeit bestimmbar. Das erste Primärpartikel fungiert dabei als Referenzpartikel, auf das sich die Lage jedes weiteren Primärpartikels bezieht (Abbildung 1 links). Die einzelnen Elemente (Partikel) werden mit Hilfe von Zeigern so zu einer Baumstruktur verknüpft, dass diejenigen Elemente miteinander verbunden sind, die auch im Agglomerat miteinander in Kontakt stehen (Abbildung 1 rechts). Der Vorteil dieser Datenstruktur ist, dass bei der Simulation von Agglomeratbrüchen, ein Agglomerat an der Bruchstelle getrennt werden kann, indem der Zeiger zwischen den Primärpartikeln gelöscht wird und somit zwei separate Agglomerate entstehen.

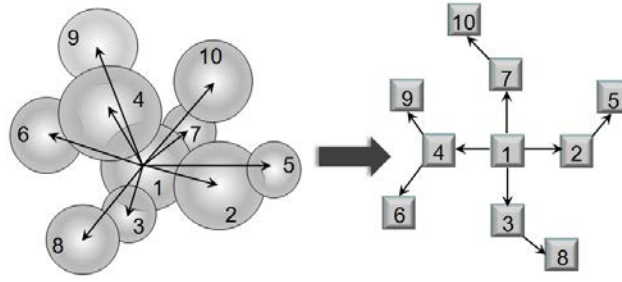


Abbildung 1: Lagevektoren der agglomeratbildenden Primärpartikel, zur Bestimmung des Partikelorts innerhalb eines Agglomerats als Grundlage für Strukturberechnungen (links) und die Umsetzung in eine baumstrukturierte Datenverwaltung (rechts).

Zur Berechnung der Partikelflugbahn (Strömungskräfte) und des Kollisionsquerschnitts wird ein Agglomerat als sphärisches Partikel mit dem Durchmesser der volumengleichen Kugel betrachtet. Für die Bestimmung einer möglichen Partikel-Partikel-Kollision wird damit die Kollisionswahrscheinlichkeit bestimmt aus (Sommerfeld 1996):

$$P_{\text{coll}} = f_{\text{coll}} \cdot \Delta t = \frac{\pi}{4} \cdot (d_{\text{real}} + d_{\text{fict}})^2 \cdot |\bar{u}_{\text{real}} - \bar{u}_{\text{fict}}| \cdot n_p \cdot \Delta t \quad \text{Gl. 1}$$

Darin geben $\frac{\pi}{4} \cdot (d_{\text{real}} + d_{\text{fict}})^2$ den Kollisionsquerschnitt und $|\bar{u}_{\text{real}} - \bar{u}_{\text{fict}}|$ die Relativgeschwindigkeit zwischen realem und fiktivem Partikel an. Die Partikelanzahlkonzentration ist n_p und Δt ist der Lagrangesche Zeitschritt. Mit Hilfe einer gleichverteilten Zufallszahl im Intervall $[0, 1]$ wird die Entscheidung getroffen ob eine Kollision stattfindet. Eine Kollision ereignet sich, wenn die Zufallszahl $RN < P_{\text{coll}}$ ist. Bei großen Unterschieden der Durchmesser kollidierender Partikel muss noch die strömungsmechanische Wechselwirkung zwischen den Partikeln berücksichtigt werden. Diese hat zur Folge, dass sich ein kleineres Partikel mit der Relativströmung um ein größeres Kollektorpartikel (Agglomerat) herum bewegt und somit die Kollisionswahrscheinlichkeit oder -frequenz reduziert. Für diese so genannte Auftreffwahrscheinlichkeit η_p geben Schuch und Löffler (1978) folgende Korrelation in Abhängigkeit des Trägheitsparameters Ψ an:

$$\eta_p = \frac{2 Y_G}{D_K} = \left(\frac{\Psi}{\Psi + a} \right)^b \quad \text{Gl. 2}$$

Hierbei ist Y_G der Radius eines Kreises aus dem die kleinen Partikel gerade auf das Kollektorpartikel mit dem Durchmesser D_K auftreffen können (Grenzpartikelbahn). Die Auftreffwahrscheinlichkeit wurde dann in Abhängigkeit der relativen Stokeszahl Ψ angegeben:

$$\Psi = \frac{\rho_p |\bar{u}_{p1} - \bar{u}_{p2}| d_p^2}{18 \mu D_K} \quad \text{Gl. 3}$$

Darin stehen d_p und ρ_p für den Durchmesser und die Dichte des kleinen Partikels und D_K für den Durchmesser des Kollektorpartikels. Nun kann die Auftreffwahrscheinlichkeit für ein Kollektorpartikel unter Verwendung des Auftreffparameters Ψ aus Gleichung 2 bestimmt werden. Die Modellkonstanten a und b sind abhängig von der Kollektor-Reynoldszahl und sind in Tabelle 1 zusammengestellt (Schuch und Löffler 1978).

Tabelle 1: Parameter für die Auftreffwahrscheinlichkeit in Abhängigkeit von Re_K

Re_K	a	b
$\gg 1$	0.25	2.0
60 – 80	0.506	1.84
40	1.03	2.07
10 – 20	1.24	1.95
< 1	0.65	3.7

Ereignet sich eine Kollision zwischen einem Agglomerat und einem Primärpartikel, wird der Stoßpunkt des kleinen Partikels auf der Oberfläche der volumenäquivalenten Kugel, welche das Agglomerat repräsentiert, stochastisch erzeugt (Sommerfeld 1996). Ist die Struktur der Agglomerate bekannt (Lagevektoren), kann für ein kollidierendes Primärpartikel ein entsprechender Kollisionspartner (Primärpartikel) innerhalb des Agglomerats gefunden werden. Da die Rotation der Partikel bislang nicht im Modell berücksichtigt wird, wird das Agglomerat zufällig in alle drei Richtungen gedreht bevor der Stoßpartner im Agglomerat gesucht wird. Dazu wird das stoßende Partikel entlang des Relativgeschwindigkeitsvektors, vom Agglomerat weg verschoben (Abbildung 2A). Nun wird überprüft, welches Primärpartikel im Agglomerat vom stoßenden Partikel getroffen werden kann. Konnte ein Stoßpartner lokalisiert werden, findet der Stoß zwischen diesen beiden Partikel statt (Abbildung 2B). Trifft das stoßende Partikel aufgrund der Morphologie auf kein Primärpartikel im Agglomerat, fliegt es an den Armen des Agglomerats vorbei ohne einen Stoß auszuführen (Abbildung 2C). Somit wird aufgrund der Agglomeratmorphologie die berechnete Kollisionsfrequenz auf eine effektive Kollisionsfrequenz $f_{c,eff}$ reduziert.

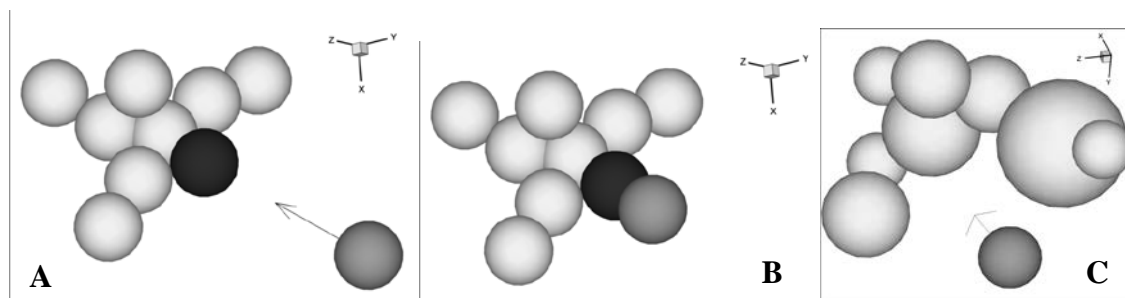


Abbildung 2: A) Primärpartikel das mit einem Agglomerat kollidiert (der Vektor zeigt die Relativgeschwindigkeit zwischen Partikel und Agglomerat. Das schwarze Partikel wurde als Stoßpartner ermittelt.) B) Agglomerat nach Anhaften des neuen Partikels (dunkel grau) am Kollisionspartner (schwarz). C) Primärpartikel (dunkel) fliegt durch die Agglomeratstruktur und führt keinen Stoß aus.

Wurde eine Kollision zwischen fiktivem und Primärpartikel im Agglomerat bestimmt, kann es zu einer Penetration der viskosen und hochviskosen Partikel kommen. Im Folgenden wird die Penetration zweier Partikel, die auf dem Modell vom Blei (2006) beruht, näher erläutert. Das Eindringen des stoßenden Partikels, welches eine höhere Viskosität als sein Stoßpartner hat, wird im Wesentlichen durch den Stokesschen Widerstand und viskose Scherkräfte beeinflusst. Die Bewegungsgleichung des penetrierenden Partikels wird in Kugelkoordinaten gelöst, so dass in radialer Richtung der Stokessche Widerstand und in beiden tangentialen Richtungen die viskosen Scherkräfte auf das Partikel wirken. Die Änderung der Penetrationsgeschwindigkeit errechnet sich somit zu:

$$\bar{u}_{r,new} = \bar{u}_{r,old} \cdot \exp\left[-\frac{3 \cdot \pi \cdot \mu_{low} \cdot d_c}{m_{high}} \cdot \Delta t\right]; \quad \bar{u}_{\varphi, \theta, new} = \bar{u}_{\varphi, \theta, old} \cdot \exp\left[-\frac{\mu_{low}}{m_{high}} \cdot \frac{\pi}{4} \cdot \frac{d_c^2}{s} \cdot \Delta t\right] \quad \text{Gl. 4}$$

Auf Grundlage dieser Datenstruktur erfolgen die Strukturmodellierungen der entstehenden Agglomerate. Folgende Strukturparameter werden berechnet:

- Porosität
- Sphärizität
- freie Oberfläche
- Trägheitsradius
- fraktale Dimension
- Penetrationstiefen

Berechnung der Agglomeratporosität

Allgemein ist die Porosität definiert als das Verhältnis von Hohlraumvolumen zu Gesamtvolumen eines Systems und stellt somit ein Maß für die vorliegenden Hohlräume im Agglomerat dar. Ein Agglomerat wird im vorliegenden Modell durch eine konvexe Hülle umgeben, so dass das Volumen dieser Hülle das Gesamtvolumen des Agglomerats darstellt. Somit berechnet sich die Agglomeratporosität zu:

$$\varepsilon = \frac{V_{\text{Poren}}}{V_{\text{Gesamt}}} = \frac{V_{\text{Hülle}} - V_{\text{Partikel}}}{V_{\text{Hülle}}} = 1 - \frac{V_{\text{Partikel}}}{V_{\text{Hülle}}} \quad \text{Gl. 5}$$

Damit die konvexe Hülle um ein Agglomerat gelegt werden kann, wird die Oberfläche aller agglomeratbildenden Primärpartikel durch eine Anzahl äquidistant verteilter Punkte approximiert. Anschließend wird die konvexe Hülle dieser Punktmenge mit Hilfe eines inkrementellen Algorithmus (O'Rourke 2001) berechnet (Abbildung 3) und das Volumen der Hülle für die Berechnung der Porosität bestimmt.

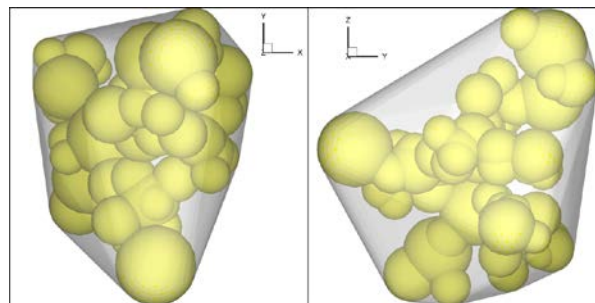


Abbildung 3: Konvexe Hülle um ein numerisch generiertes Agglomerat aus verschiedenen Ansichten.

Berechnung der Agglomeratsphärizität:

Die Sphärizität eines Körpers gibt an wie rund (sphärisch) dieser ist. Sie ist definiert als das Verhältnis der Oberfläche einer volumengleichen Kugel zur Oberfläche eines Körpers (Gl. 6). Somit ist die Sphärizität ein Maß dafür, wie weit die Form eines Partikels von der einer idealen Kugel abweicht. Je geringer der Wert der Sphärizität ist, desto größer die Abweichung von der Kugelform. Im Falle eines Agglomerats mit vergleichsweise großer Oberfläche sagt die Sphärizität nicht viel über die äußere Form aus. Vielmehr kennzeichnet dieser Parameter eine Art von Oberflächenvergrößerung. Die Definition der Sphärizität lautet für das Agglomerat:

$$\psi = \frac{A_{\text{väk}}}{A_{\text{O, Agg}}} \quad \text{Gl. 6}$$

Das Partikelvolumen eines Agglomerats setzt sich aus dem Volumen aller Primärpartikel abzüglich des Volumens im Überlappungsbereich der Partikel zusammen. Während der Penetration von viskosen Partikeln wird in Realität etwas Fluid verdrängt. Bei der Modellannahme der Formstabilität kann kein Fluid verdrängt werden, so dass das Modell das doppelte Volumen im Überlappungsbereich der Partikel vernachlässigt. Da dieses Volumen allerdings vergleichsweise gering ist, führt die Vernachlässigung nur zu einem geringen Fehler. Zur Berechnung des Partikelvolumens wird das gesamte Agglomerat mit Hilfe von Würfeln diskretisiert. Die Volumina aller Würfel, die innerhalb des Agglomerats liegen, werden zum Gesamtvolumen der agglomeratbildenden Partikel summiert.

Berechnung der freien Oberfläche eines Agglomerats:

Die Berechnung der freien Oberfläche $A_{O, \text{Agg}}$ eines Agglomerats nutzt die bereits für die konvexe Hülle angelegte Diskretisierung der Primärpartikel. Da die Partikeloberflächen durch äquidistant verteilte Punkte approximiert werden, ist deren Gesamtzahl äquivalent zur Oberfläche des jeweiligen Partikels. Jeder Oberflächenpunkt, der innerhalb eines anderen Partikels liegt, wird entfernt, so dass nur die Punkte welche die freie Oberfläche des Agglomerats bilden übrig bleiben. Das Verhältnis der initialen Punktmenge n_0 zur Restpunktmenge n_R ist gleich dem Verhältnis der Gesamtoberfläche zur freien Oberfläche des Partikels (Gl. 7).

$$A_{O, \text{Agg}} = \sum_{i=1}^{n_p} \frac{n_R}{n_0} \cdot \pi \cdot d_{p,i}^2 \quad \text{Gl. 7}$$

Berechnung des Trägheitsradius:

Der Trägheitsradius R_G ist ein Äquivalentdurchmesser, der die Massenverteilung innerhalb eines Körpers angibt. Berücksichtigt wird hierin der Abstand jedes Partikels zum Schwerpunkt des Agglomerats (Gl. 8).

$$R_G = \sqrt{\frac{1}{n_p} \cdot \sum_{i=1}^{n_p} |\vec{r}_i - \vec{r}_s|^2} \quad \text{Gl. 8}$$

Dabei steht n_p für die Anzahl der Primärpartikel, r_s für den Schwerpunkt des Agglomerats und r_i für die Lage des betrachteten Primärpartikels. Abbildung 4 zeigt die Berechnung des Trägheitsradius schematisch.

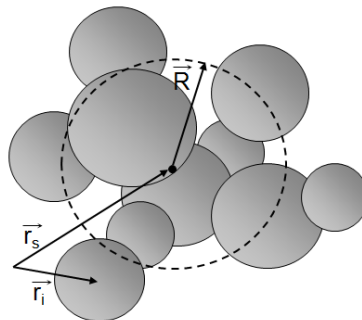


Abbildung 4: Berechnung des Trägheitsradius R eines Agglomerats in schematischer Darstellung.

Berechnung der fraktalen Dimension:

Zur Charakterisierung der räumlichen Struktur von Agglomeraten wird neben dem Trägheitsradius oft die fraktale Dimension verwendet. Das Volumen oder die Masse im Agglomerat sind proportional dem Radius mit der fraktalen Dimension als Exponent: $V_{\text{Agg}} \approx m_{\text{Agg}} \approx r^{D_f}$. So hat zum Beispiel eine lineare Kette von Primärpartikeln eine fraktale Dimension von 1 und eine kompakte Kugel einen Wert von 3. Die fraktale Dimension eines Agglomerats wird hier mit der Box-Counting-Methode (Liebovitch 1989) bestimmt (Abbildung 5). Dazu wird ein Agglomerat mit einer bestimmten Anzahl von Würfeln einer spezifischen Kantenlänge überdeckt. Alle nicht leeren Würfel, die einen Teil des Agglomerats beinhalten, werden gezählt. Die Würfelkantenlänge wird sukzessive verkleinert und die Zahl der nicht-leeren Würfel ermittelt. Wird die Zahl der nicht-leeren Würfel in einem doppelt logarithmischen Diagramm über der Kantenlänge aufgetragen, ergibt sich eine Gerade. Die Steigung dieser Geraden gibt die fraktale Dimension des untersuchten Agglomerats an.

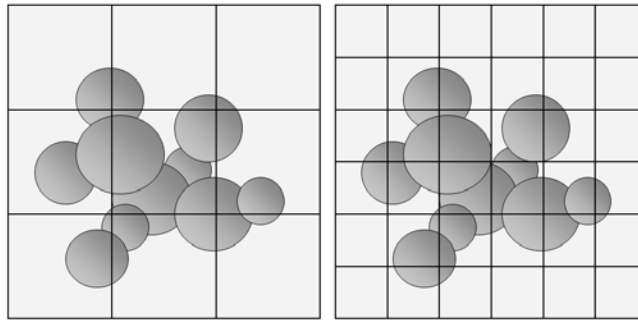


Abbildung 5: Bestimmung der fraktalen Dimension eines Agglomerats mittels Box-Counting-Methode (links: grobes, rechts: feines Gitter).

2.3. Ergebnisse und Diskussion

Das neue Strukturmodell wurde in einer homogenen isotropen Turbulenz auf Plausibilität getestet. Als Berechnungsgebiet diente ein Würfel der Kantenlänge 0,2 m mit periodischen Randbedingungen für die Partikel. Um die in realen Sprühtrocknern vorkommenden, verschiedenen Trocknungszustände der Partikel zu simulieren wurden unterschiedliche Partikelviskositäten eingestellt. Innerhalb jeder Simulation blieb die Viskosität konstant. Die mit der lokalen Fluidgeschwindigkeit homogen in das Rechenggebiet injizierten Partikel, wiesen eine monodisperse Partikelgrößenverteilung von 100 μm auf, die momentane Fluidgeschwindigkeit am Partikelort berechnete sich mit Hilfe eines isotropen Langevin Dispersionsmodells (Sommerfeld *et al.* (1993)). Die Eigenschaften der Turbulenz sind der Arbeit von Sommerfeld (2001) entnommen und werden in Tabelle 2 gezeigt. Die Primärpartikel sind monodispers (Tabelle 2) und die Partikelbewegung im Rechenggebiet wurde insgesamt für 1 s durchgeführt, womit ein statistisch unabhängiges Ergebnis erhalten wurde. Bei den hier vorgestellten Simulationsergebnissen wurde die Viskosität der Partikel variiert. Bei den jeweiligen Fällen haben aber alle Partikel identische Viskosität. Eine Verdampfung von Lösemittel wurde zunächst nicht betrachtet.

Tabelle 2: Turbulenz- und Partikeleigenschaften des betrachteten Testfalls.

Gasphasen rms-Geschwindigkeit u'	0,3 m/s
Turbulente kinetische Energie k	0,135 m^2/s^2
Dissipation ε	6,84 m^2/s^3
Lagrangesches Integrales Zeitmaß T_L	$3,2 \cdot 10^{-3}$ s
Longitudinales Eulersches Längenmaß L_E	$7,25 \cdot 10^{-3}$ m
Partikeldichte ρ_p	1200 kg/m^3
Partikeldurchmesser d_p	$100 \cdot 10^{-6}$ m
Partikelrelaxationszeit $\tau_{p, \text{Stokes}}$	$37,04 \cdot 10^{-3}$ s
Volumenanteil α	$5,25 \cdot 10^{-2}$ m^3/m^3

Abbildung 6 zeigt Agglomerate bestehend aus Primärpartikeln unterschiedlicher Viskosität, die im oben angegebenen Testfall entstanden. Die Struktureigenschaften dieser Agglomerate sind in Tabelle 3 zusammengestellt. Bei niedrigen Viskositäten sind hohe Penetrationstiefen zu beobachten, die bis zur vollständigen Koaleszenz der Partikel führen können. In Abbildung 6 links ist ein Agglomerat bestehend aus Partikeln mit einer Viskosität von 0,2 Pas (blau) zu sehen. Die Größenverteilung der Primärpartikel im Agglomerat ist nicht monodispers, da einige Kollisionen zur Koaleszenz der Partikel führten. In einem derartigen Fall wird das Volumen des Primärpartikels im Agglomerat um das Volumen des kollidierenden Primärpartikels vergrößert. Bei höheren Viskositäten tritt Koaleszenz in geringerem Maße auf. Weiterhin ist eine sphärische Struktur der Agglomerate mit einzelnen herausragenden Armen zu erkennen. Da eine homogene, isotrope Turbulenz Translations- und

Rotationsinvarianz aufweist ist zu vermuten, dass entstehende Agglomerate eine sphärische Struktur aufweisen. Diese Vermutung spiegelt sich in den ermittelten Strukturparametern wider, welche im Folgenden diskutiert werden. Die Strukturen der berechneten niedrig viskosen Agglomerate haben eine relativ große Ähnlichkeit mit Milchpulver-Agglomeraten die aus einem Strühtrocknungsprozess entnommen wurden (Abb. 6 unten). Allerdings haben die Primärpartikel im realen Agglomerat schon eine Größenverteilung.

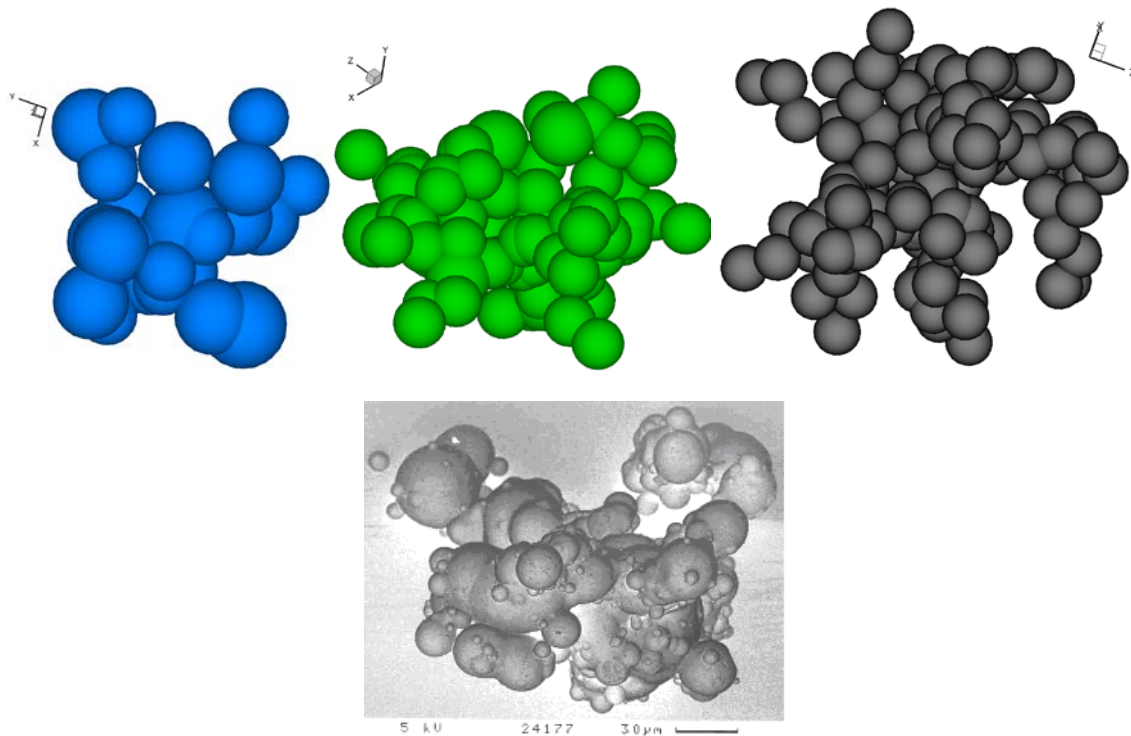


Abbildung 6: Struktur der berechneten Agglomerate. blau: $\mu = 0,2 \text{ Pa s}$; grün: $\mu = 1 \text{ Pa s}$; schwarz: $\mu = 10 \text{ Pa s}$; unten: REM-Aufnahme eines Milchpulver-Agglomerats.

Tabelle 3: Eigenschaften der in Abb. 6 dargestellten berechneten Agglomerate.

Agglomerat	μ [Pa s]	n_{pp} [-]	d_f [-]	ε [-]	\square [-]	R_G [μm]
blau	0.2	29	2.43	0.53	0.54	140
grün	1.0	90	2.05	0.68	0.42	210
schwarz	10	98	2.2	0.73	0.39	230

Abbildung 7 zeigt die Verteilung der berechneten normierten Penetrationstiefen (bezogen auf den Durchmesser des kollidierenden Primärpartikels) in Abhängigkeit der Partikelviskosität. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Verteilung der Penetrationstiefe mit steigender Partikelviskosität immer enger wird. Daraus resultieren dann Agglomerate mit geringer Festigkeit (siehe Abb. 6 rechts). Bei niedrigen Viskositäten ist, abhängig von der Relativgeschwindigkeit, die Penetrationstiefe deutlich größer und es kann auch vollständige Koaleszenz auftreten. Als Folge ergeben sich Agglomerate sehr hoher Festigkeit. Die auf den Durchmesser des eindringenden Partikels bezogene mittlere relative Penetrationstiefe, sinkt also mit steigender Viskosität. Eine höhere Viskosität der Partikel entspricht einem höheren Trocknungszustand bei der Sprühtrocknung. Im Frühstadium der Trocknung befinden sich die Partikel in einem flüssigen bis niedrig viskosen Zustand. Im Verlauf des Prozesses nehmen die Partikel einen immer trockeneren Zustand ein. Nahe der Injektionsdüse eines Sprühtrockners ist daher mit hohen Penetrationstiefen (bzw. mit Koaleszenz) von kollidierenden Partikeln zu rechnen. Eine gezielte Agglomeration kann in diesem Bereich durch die Zuführung von bereits getrocknetem Feingut gefördert werden.

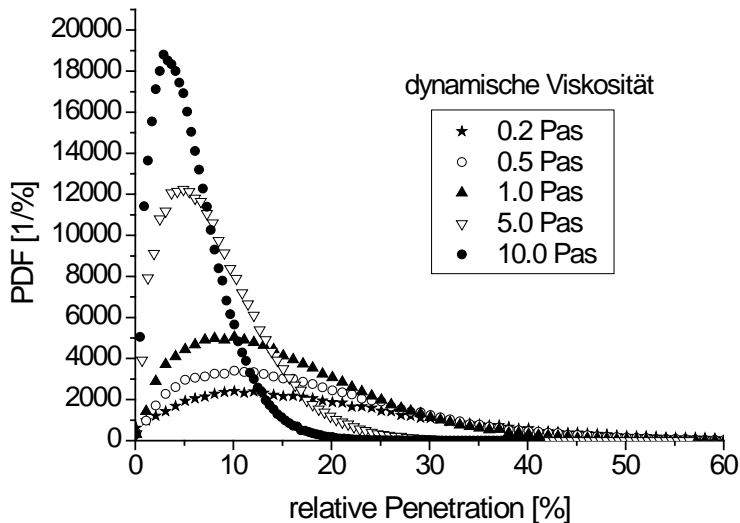


Abbildung 7: Verteilungsdichte der relativen Penetrationstiefe kollidierender Primärpartikel in Abhängigkeit der Viskosität. Die Penetrationstiefe wurde auf den Durchmesser des eindringenden Partikels bezogen.

Kollisionen zwischen niedrigviskosen Partikeln führen nicht nur zu sehr hohen Penetrationstiefen sondern auch zu sehr kompakten Agglomeraten. Wie Gleichung 1 zeigt, ist die Kollisionswahrscheinlichkeit proportional zum Kollisionsquerschnitt und damit auch den Partikeldurchmessern. Die Durchmesserzunahme von kompakten Agglomeraten ist geringer als von poröseren, so dass die Anzahl der Kollisionen von kompakten Agglomeraten ebenfalls niedriger ist als von poröseren. Auf der anderen Seite kann es bei poröseren Agglomeraten zum Hindurchfliegen kollidierender Primärpartikel kommen. Diese Effekte resultieren in einer geringeren Anzahl an Primärpartikeln pro Agglomerat bei niedrigen Viskositäten gegenüber Partikeln hoher Viskosität (siehe Abb. 8). Bei hochviskosen Partikeln bleibt die Anzahlverteilung der Primärpartikel im Agglomerat nahezu unverändert.

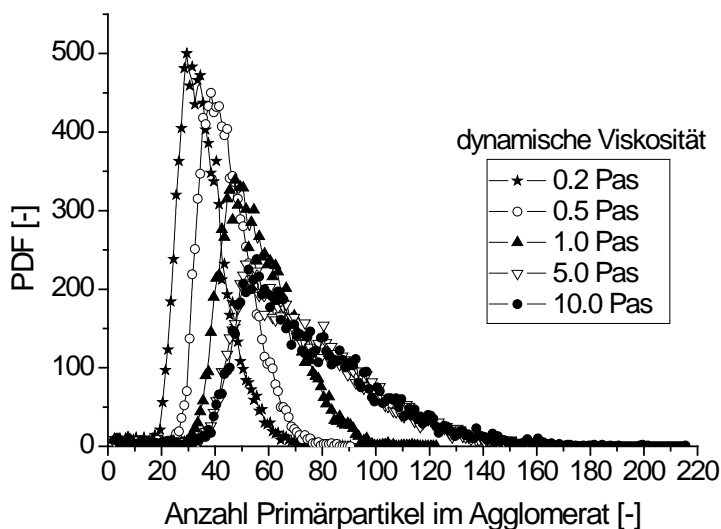


Abbildung 8: Verteilungsdichte der Anzahl der Primärpartikel in den entstandenen Agglomeraten in Abhängigkeit der Viskosität.

Die berechneten Verteilungsdichten der Primärpartikelzahl in allen bei unterschiedlicher Viskosität entstandenen Agglomeraten sind in Abb. 8 dargestellt. Darin ist deutlich eine Verschiebung des Maximums zu höheren Primärpartikelanzahlen mit steigender Viskosität zu erkennen. Ebenfalls ist eine Verbreiterung der Verteilung bei höheren Viskositäten

ersichtlich. Bei höheren Viskositäten (5 und 10 Pa s) bleibt die Größe der Agglomerate allerdings nahezu gleich.

Die Penetrationstiefe hat selbstverständlich auch einen entscheidenden Einfluss auf die Porosität der entstandenen Agglomerate. Große Eindringtiefen liefern kompaktere Agglomerate mit geringer Porosität, wohingegen geringe Eindringtiefen bei viskoserem Tropfen Agglomerate mit hoher Porosität liefern. In Abbildung 9 wird dieser Zusammenhang in der Verteilung der Agglomeratporosität bezogen auf die konvexe Hülle bei Variation der Partikelviskosität gezeigt. Aufgrund der breiteren Verteilung der Penetrationstiefen niedrigviskoser Partikel ist auch die Verteilung der Agglomeratporositäten etwas breiter als bei höheren Viskositäten.

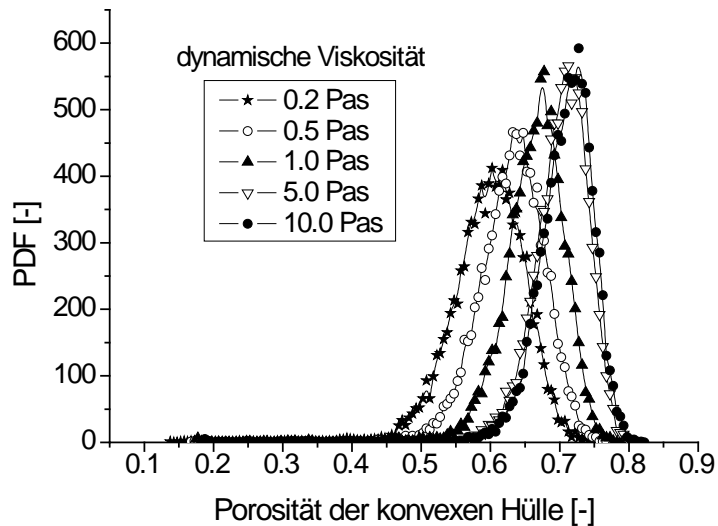


Abbildung 9: Verteilungsdichte der Agglomeratporosität (bezogen auf die konvexe Hülle) in Abhängigkeit der dynamischen Viskosität der Primärpartikel.

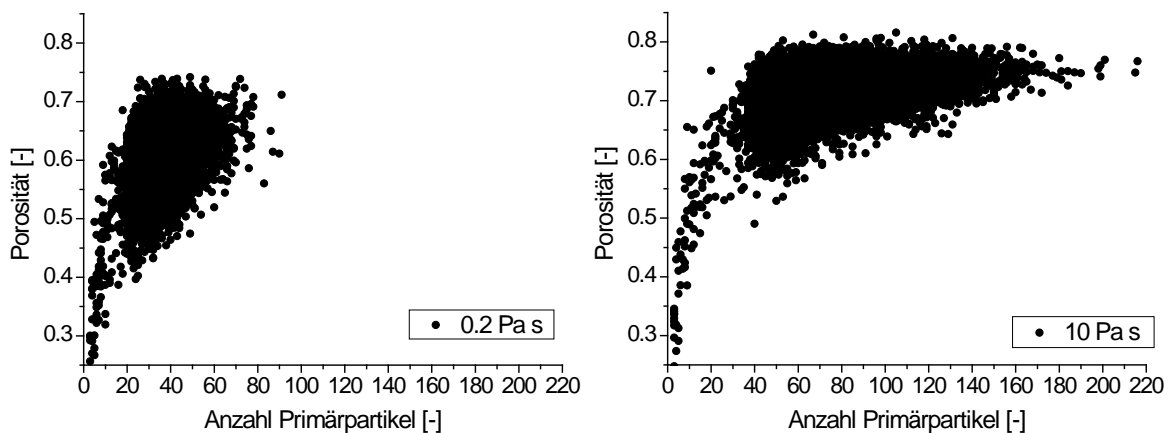


Abbildung 10: Korrelation zwischen Agglomeratporosität bezogen auf die konvexe Hülle und der Anzahl der Primärpartikel im Agglomerat bei verschiedener Partikelviskosität; links: 0,2 Pa s, rechts: 10 Pa s.

Der Einfluss der Partikelviskosität sowohl auf die Agglomeratporosität als auch auf die Anzahl der Primärpartikel pro Agglomerat ist in den Abbildung 10 gezeigt. Die Korrelationen zeigen eine deutlich niedrigere Porosität für Agglomerate, welche aus Partikeln mit einer geringeren Viskosität bestehen, als bei hochviskosen Partikeln. Ebenso ist die Anzahl der Primärpartikel pro Agglomerat bei niedrigen Viskositäten geringer. In frühen Stadien des Agglomeratwachstums, also bei einer niedrigen Primärpartikelanzahl, ist die resultierende Agglomeratporosität stark von der Anzahl der Primärpartikel pro Agglomerat abhängig, was sich in einem starken Anstieg der Porosität mit steigender Partikelanzahl niederschlägt. Für

sehr große Agglomerate bestehend aus mehr als 100 Primärpartikeln strebt die Porosität bei steigender Partikelanzahl gegen einen Grenzwert, welcher von der Viskosität der Partikel abhängig ist (Abb. 10 rechts).

In Abbildung 11 ist der Zusammenhang zwischen der Partikelviskosität und der resultierenden Trägheitsradien anhand der Verteilungsdichten gezeigt. Hohe Penetrationstiefen der Primärpartikel haben eine Verteilung der Masse nahe dem Massenschwerpunkt der Agglomerate zur Folge. Dies äußert sich in kleinen Trägheitsradien der Agglomerate (Abbildung 11). Mit sinkenden Penetrationstiefen ist mehr Agglomeratmasse weiter vom Schwerpunkt entfernt. Große Trägheitsradien deuten demnach auf porösere und kettigere Agglomerate hin, während kleine Trägheitsradien für kompakte nahezu sphärische Agglomerate stehen. Bei hohen Viskositäten ist eine breitere Verteilung der Trägheitsradien zu beobachten. Dadurch, dass niedrig viskose Partikel sehr weit ineinander eindringen können und die Agglomeratmasse sehr dicht um den Massenschwerpunkt verteilt ist, ist die Verteilung des Trägheitsradius relativ eng. Dringen die Partikel nur sehr wenig ineinander ein, wie es bei hohen Viskositäten der Fall ist, wird der Trägheitsradius eines Agglomerats im Wesentlichen durch die Anzahl der Primärpartikel beeinflusst, was sich in einer breiteren Verteilung widerspiegelt.

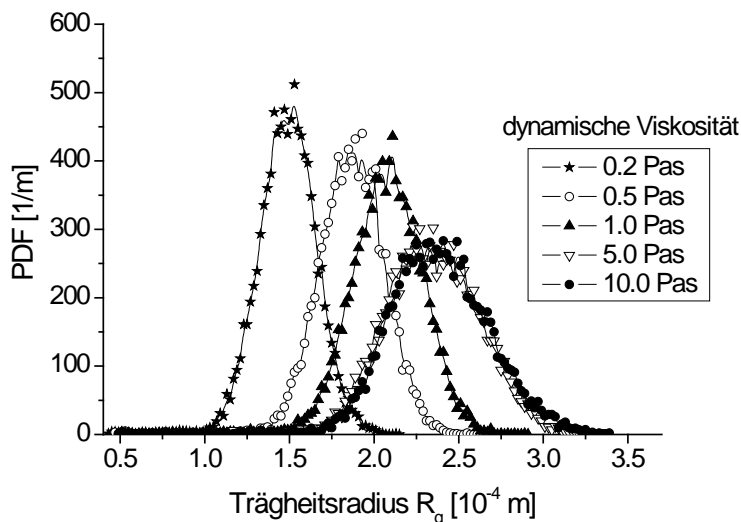


Abbildung 11: Verteilungsdichte des Trägheitsradius in Abhängigkeit der Partikelviskosität.

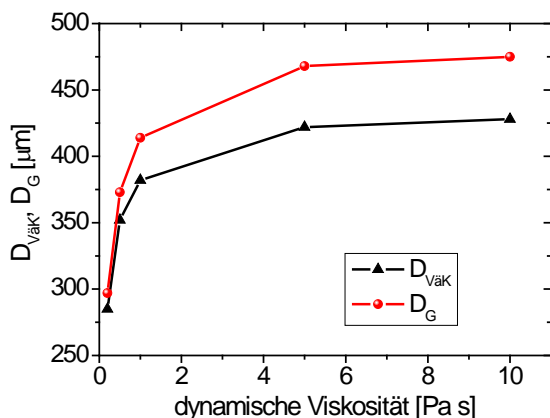


Abbildung 12: Volumenäquivalenz- und Trägheitsdurchmesser in Abhängigkeit der Partikelviskosität.

Die Abhängigkeiten des Durchmessers der volumenäquivalenten Kugel und des Trägheitsdurchmessers von der dynamischen Viskosität (Abb. 12) werden im Wesentlichen

durch die jeweiligen Penetrationstiefen (Abb. 7) bestimmt. Wie zu erwarten ist der Trägheitsdurchmesser im gesamten Bereich deutlich größer als der Durchmesser der volumenäquivalenten Kugel. Bei geringen Viskositäten sind beide Durchmesser im Bereich von ca. 300 μm und steigen mit steigender Viskosität zunächst rapide an bis sie bei Viskositäten größer 5 Pa s einem Grenzwert entgegenstreben, da sich die Penetrationstiefen dann kaum noch ändern. Es sollte allerdings beachtet werden, dass die Anzahl der Primärpartikel im Agglomerat zunimmt wenn die dynamische Viskosität steigt.

Mit Hilfe der fraktalen Dimension können Aussagen über die räumliche Struktur von Körpern getroffen werden. Verschiedene Autoren (Schmid et al. 2006, Shen et al. 2008) geben für eher kettige Agglomerate eine fraktale Dimension von $D_f = 1,7$ und für kompaktere von $D_f = 2,1$ bis 2,75 an. Die in den Testrechnungen erzeugten Agglomerate weisen eine, in ihrer räumlichen Struktur, kompakte Form auf, so dass mit einer fraktalen Dimension zwischen 2,1 und 2,75 zu rechnen ist. Aus Abbildung 13 geht hervor, dass das Strukturmodell Werte in diesem Bereich für die fraktale Dimension liefert. Die leichte Verbreiterung der Verteilungsdichte bei niedrigeren Viskositäten hin zu höheren Werten deutet auf eine kompaktere Struktur der Agglomerate hin. Dies wurde bereits durch die übrigen Strukturparameter bestätigt. Generell ist aber der Einfluss der Viskosität auf die Verteilung der fraktalen Dimension marginal und deutet darauf hin, dass dieser Parameter nicht sehr sensitiv für die Charakterisierung der hier vorliegenden Agglomerate ist.

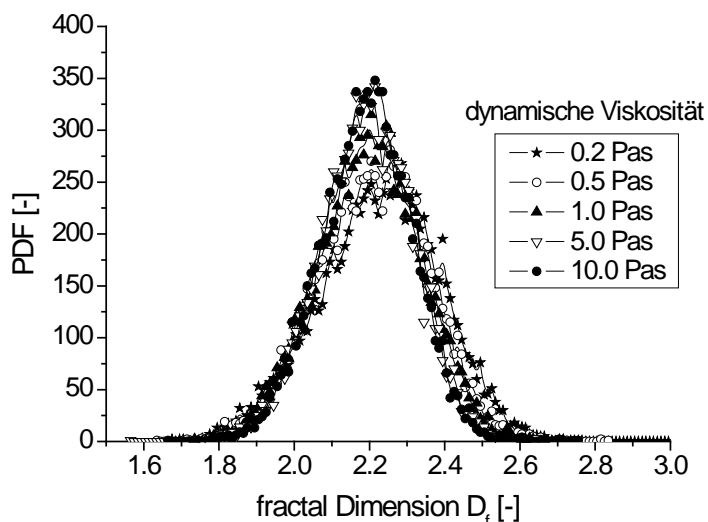


Abbildung 13: Verteilungsdichte der fraktalen Dimension der berechneten Agglomerate in Abhängigkeit der Viskosität der Primärpartikel.

Eine Charakterisierung der Agglomeratmorphologie ist anhand eines einzelnen Strukturparameters nicht möglich. Vielmehr erscheint ein Zusammenspiel aus vielen verschiedenen Parametern die besten Ergebnisse einer Strukturanalyse von Agglomeraten zu ergeben. Die Ableitung von Produkteigenschaften aus den aus dem Modell erhaltenen Parametern steht bislang noch aus. Ein Großteil der Projektlaufzeit wurde für die Implementierung der Datenstruktur sowie der Routinen für die Strukturberechnung benötigt.

2.4. Verwertbarkeit der Ergebnisse

Das entwickelte Modell zur detaillierten Vorhersage von Agglomeratmorphologien wurde in das selbst entwickelte Programm FASTEST/Lag3D implementiert und getestet. Die erzielten Ergebnisse sind viel versprechend, um für industrielle Prozesse mit Partikelagglomeration genutzt zu werden. Um das Modell weiterführend zu überprüfen wurde eine Zusammenarbeit mit GEA/Niro, AS, Kopenhagen, einem Hersteller von großtechnischen Sprühtrocknern

begonnen. In einem Pilotrockner wurden Trocknungsversuche mit Feingutrückführung zur Steigerung der Agglomeration durchgeführt. Aus dem Produkt wurden Proben entnommen, die hinsichtlich der Struktur untersucht werden. Anhand von Simulationen soll getestet werden, ob das Modell realistische Ergebnisse zur Agglomeratmorphologie liefert.

Eine Validierung der Kollisionsvorgänge viskoser und hochviskoser Tropfen soll im Rahmen des laufenden Projekts SO 204/35-1 ermöglicht werden. In dem Projekt, das in das DFG Schwerpunktprogramm „Process-Spray“ eingebunden ist, wird eine experimentelle Datenbasis binärer Tropfenkollisionen erarbeitet. Anhand dieser Daten kann das verwendete Penetrationsmodell auf seine Gültigkeit hin untersucht werden.

Auf der „International Conference on Multiphase Flows, ICMF 2010, Tampa, Fl. (USA)“ wurde sowohl von anderen Forschergruppen als auch von Seiten der Industrie großes Interesse am vorliegenden Modell geäußert.

Zwei weitere Publikationen über die Anwendung des entwickelten Agglomerationsmodells werden derzeit bearbeitet und sollen bei renommierten internationalen Zeitschriften eingereicht werden.

2.5. Kooperationspartner

Keine.

2.6. Qualifikation des wissenschaftlichen Nachwuchses im Zusammenhang mit dem Projekt.

Thomas Köhler, Studienarbeit, „Konstruktion einer Sprühtrocknungsanlage zur gezielten Erzeugung von Agglomeraten“.

Thomas Köhler, Studienarbeit, „Vergleich von Kollisions-, Verdampfungs- und Agglomerationsmodellen in einer homogenen isotropen Turbulenz“.

Paula Rieche, Studienarbeit, „Untersuchung des Kollisionsverhaltens von Latex-Suspensionstropfen mit Hilfe der Particle-Tracking-Velocimetry“.

Paula Rieche, Studienarbeit, „Experimente zur Tropfenverdampfung“.

Andre Reimann, Studienarbeit, „Modelle zur Berechnung der Tropfenverdampfung – Stand der Forschung“.

Literaturverzeichnis

Blei, S., *On the Interaction of non-Uniform Particles during the Spray Drying Process: Experiments and Modelling with the Euler-Lagrange Approach*, Dissertation, Shaker, Aachen, 2006.

Liebovitch, L. R., Toth, T., *A fast algorithm to determine fractal dimensions by box counting*, Physics Letters A, 141, no. 8, 9, 386 – 390, 1989.

Lipowsky, J. and Sommerfeld, M., *Influence of particle agglomeration and agglomerate porosity on the simulation of gas cyclones*, Proceedings of the 6th International Conference on CFD in Oil & Gas, Metallurgical and Process Industries, SINTEF/NTNU, Trondheim, Norway, 10-12 June 2008, paper CFD08-043.

O'Rourke, J., *Computational Geometry in C*, Second edition, Cambridge University Press, Cambridge, UK, 2001

Schmid, H.-J., Al-Zaitone, B., Artelt, C., Peukert, W., *Evolution of the fractal dimension for simultaneous coagulation and sintering*, Chemical Engineering Science 61, 293-305, 2006.

Shen, Y., Draine, B.T., Johnson, E.T., *Modeling porous dust grains with ballistic aggregates. I. Geometry and optical properties*, The Astrophysical Journal 689, 260-275, 2008.

Sommerfeld, M., Kohnen, G., and Rüger, M., *Some open questions and inconsistencies of Lagrangian particle dispersion models*, in Ninth Symposium on Turbulent Shear Flows, 1993.

Sommerfeld, M., *Modellierung und numerische Berechnung von partikelbeladenen turbulenten Strömungen mit Hilfe des Euler/Lagrange-Verfahrens*, Shaker, Aachen, 1996.

Sommerfeld, M., *Validation of a stochastic Lagrangian modeling approach for inter-particle collision in homogeneous isotropic turbulence*, Int. J. Multiphase Flow 21, 2001, 1829-1858.

3. Zusammenfassung

Das vorliegende Projekt diente der Erweiterung eines numerischen Modells zur Beschreibung von Kollisionsvorgängen in Sprühtrocknern. In Sprühtrocknern werden Lösungs- oder Suspensionstropfen durch Verdampfung des Lösungsmittels in einen trockenen Zustand überführt. Dabei nehmen die Partikel unterschiedliche Trocknungszustände an, die durch Viskosität, Dichte, Feststoffkonzentration und Temperatur gekennzeichnet sind. Das Ergebnis einer Kollision wird durch die Partikeleigenschaften maßgeblich bestimmt. Während Kollisionen von Tropfen zu einer vollständigen Koaleszenz oder zum erneuten Trennen der stoßenden Partikel führen können, werden bei hochviskosen Partikelstößen unterschiedliche Penetrationstiefen erreicht. Somit führen diese Kollisionen zur Bildung strukturierter und haltbarer Agglomerate.

Die Erweiterung des Kollisionsmodells, das die Penetration stoßender Partikel beschreibt, beinhaltet die Charakterisierung der entstehenden Agglomeratmorphologien. Um die Agglomeratstruktur beschreiben zu können, müssen die Positionen aller agglomeratbildenden Primärpartikel bekannt sein. Durch Speichern der Lagevektoren in einer speziellen Datenstruktur, ist die Bestimmung verschiedener Strukturparameter möglich.

Die Porosität wird mit Hilfe der konvexen Hülle, die jedes Agglomerat umgibt, berechnet. Dazu wird das Volumen der konvexen Hülle sowie das der Primärpartikel abzüglich des Überlappungsbereichs durch die Penetration bestimmt. Die Porosität wird dann angegeben als Hohlraumvolumen bezogen auf das Gesamtvolumen der Hülle. Neben der Porosität ist auch die freie Oberfläche ein interessanter Parameter. Mit Hilfe einer Diskretisierung äquidistant über die Oberfläche aller Primärpartikel wird der Teil der Partikeloberfläche, der aufgrund von Penetration in einem anderen Partikel steckt, identifiziert und die freie Oberfläche berechnet. Weitere wichtige Strukturparameter zur Charakterisierung der Agglomerate sind die Sphärizität, sowie der Trägheitsradius. Ebenso wird die fraktale Dimension der Agglomerate durch das Modell berechnet.

In ersten Testrechnungen wurden durch Vorgabe unterschiedlicher Viskositäten durchgeführt, um die Plausibilität des Modells zu prüfen. Eine Tropfenverdampfung wurde zunächst also nicht berücksichtigt. In einer homogenen isotropen Turbulenz wurden 100 µm Primärpartikel für 1 s verfolgt und Partikel-Partikel-Kollisionen simuliert. Durch Vorgabe verschiedener Viskositäten ist deren Einfluss auf die Penetrationstiefen untersucht worden. Am Ende der Simulationszeit wurden die entstandenen Agglomerate hinsichtlich ihrer Struktur charakterisiert und verschiedene Strukturparameter ermittelt. Die vorgestellten Ergebnisse zeigen, dass das erweiterte Agglomerationsmodell in der Lage ist, industriell relevante Sprühtrocknungsprozesse und dort entstehende Agglomerate zu berechnen.

In weiteren Rechnungen müssen einzelne Modellteile, wie die Penetration viskoser und hochviskoser Partikel, anhand von Experimenten validiert werden. Dazu sollen Ergebnisse aus einem anderen Projekt innerhalb des Schwerpunktprogramms „Process-Spray“ genutzt werden. Neben Ergebnissen aus Tropfenkollisionen sollen Messungen an zwei wechselwirkenden Sprühnebeln für die Überprüfung der Modelle genutzt werden. Die Anwendbarkeit des Modells auf reale Sprühtrockner wird anhand von experimentellen Daten aus einem Trockner der Firma GEA/Niro AS geprüft werden.