



# Diskontinuierliches und kontinuierliches Pelletcoating im Wurster-Wirbelschichtprozess

## **Dissertation**

zur Erlangung des akademischen Grades

**Doktoringenieurin  
(Dr.-Ing.)**

von Dipl.-Ing. Neli Atanasova Hampel  
geb. am 25.11.1984 in Plovdiv, Bulgarien

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

Promotionskommission: Jun.-Prof. Dr.-Ing. Andreas Bück (Vorsitz)  
Prof. Dr.-Ing. Evangelos Tsotsas (Gutachter)  
Prof. Dr.-Ing. Mirko Peglow (Gutachter)  
Prof. Dr.-Ing. Bertram Wolf (Gutachter)

eingereicht am: 12.05.2015  
Promotionskolloquium am: 10.11.2015



# Vorwort

*Das, wobei unsere Berechnungen versagen, nennen wir Zufall.*

---

Albert Einstein

Die vorliegende Arbeit fasst die zwischen August 2009 und Oktober 2012 erzielten Ergebnisse meiner Tätigkeit als wissenschaftliche Mitarbeiterin des Wachstumskerns Wigratec am Lehrstuhl für Thermische Verfahrenstechnik der Otto von Guericke Universität Magdeburg zusammen. Für Finanzierung und Betreuung der Initiative sei dem Bundesministerium für Bildung und Forschung hiermit herzlich gedankt.

Mein besonderer Dank gilt dem Lehrstuhlleiter der Thermischen Verfahrenstechnik, Herrn Prof. Dr.-Ing. habil. Evangelos Tsotsas, und dem technischen Geschäftsführer der IPT Pergande GmbH, Herrn Hon.-Prof. Dr.-Ing. Mirko Peglow, für die Möglichkeit der Erarbeitung der Dissertation, die vielen Anregungen und die langjährige Unterstützung.

Ich danke dem Leiter des Fachbereiches Pharmazeutische Technologie und Qualitätssicherung der Fachhochschule Köthen, Herrn Prof. Dr. rer. nat. habil. Bertram Wolf für die fachliche Betreuung und die Übernahme eines Gutachtens.

Dem Leiter der InnoProfile-Nachwuchsforschergruppe NaWiTec am Lehrstuhl für Thermische Verfahrenstechnik der Otto von Guericke Universität Magdeburg, Herrn Jun.-Prof. Dr.-Ing. Andreas Bück, danke ich für die Leitung des Promotionskolloquiums und für die zahlreichen Diskussionen bei der Bearbeitung der Thematik und die freundschaftliche Unterstützung meiner Arbeit.

Recht herzlich möchte ich mich bei, Herrn Dr.-Ing. Florian Priebe und Herrn Thomas Rockmann von der Salutas Pharma GmbH für die Kooperation und Zusammenarbeit im Wigratec-Projekt bedanken.

Ein ganz besonderer Dank und hohe Anerkennung geht an den technischen Geschäftsführer der Magdeburger Industriearmatur-Manufaktur GmbH, Herrn Dr.-Ing. Matthias Ihlow. Er hat mir in der Zeit der Forschungstätigkeit mit seinem umfangreichen Wissensstand immer für fachliche Diskussionen auf sehr hohem Niveau zur Seite gestanden.

Ich habe am Lehrstuhl für Thermische Verfahrenstechnik eine freundschaftliche, vertrauensvolle und von großer Hilfsbereitschaft gekennzeichnete Arbeitsatmosphäre vorgefunden. Dafür möchte ich mich bei den Menschen bedanken, die einen großen Anteil am Erfolg dieser Arbeit

---

haben: Dr.-Ing. Maryam Dadkhah, Dr.-Ing. Mathias Dervedde, Dipl.-Ing. Torsten Hoffmann, Dipl.-Ing. Philipp Bachmann, Dr.-Ing. Plamena Ihlow, Susanne Bögelsack, Dipl.-Ing. Christian Fischer, Dr.-Ing. Matthias Börner, Dipl.-Ing. Franziska Sondej, Dipl.-Ing. Franka Kretschmer, Dr.-Ing. Magdalena Wassermann, Dr.-Ing. Antje Rossau, Dipl.-Ing. Lisa Mielke und Dipl.-Ing. Christian Rieck.

Ich möchte Herrn Diethardt Kürschner, sowie der Werkstatt um Herrn Ernst-Albert Gehrke danken, die den Bau der Versuchsanlage und meine fortwährenden Umbauarbeiten realisiert und professionell betreut haben. Gleichwohl sei Frau Chem.-Ing. Sabine Schlüsselburg für ihre Mithilfe bei den kleinen und großen Problemen des Alltags gedankt.

Von ganzem Herzen möchte ich mich bei meinen Freunden für ihre Geduld und Unterstützung bedanken.

Aus tiefstem Herzen danke ich meinem Mann, Dr.-Ing. Robert Hampel, für sowohl seine fachliche Mitwirkung bei der Anfertigung der Arbeit als auch seine Geduld. Seine positive Einstellung in allen Lebenslagen über die Jahre hinweg hat mich motiviert und unterstützt.

Bei meinen Eltern, Dr.-Med. Margarita Atanasova und Dipl.-Math. Atanas Atanasov<sup>†</sup>, möchte ich mich zutiefst für ihre tatkräftige und moralische Unterstützung und die gegebene Möglichkeit des eingeschlagenen Bildungswegs bedanken.

Ich widme diese Arbeit meiner Tochter Lea. Es ist schön, dass es Dich gibt...

Die vorliegende Arbeit ist Bestandteil des durch das BMBF finanzierten Wachstumskernes und Forschungsprojektes WIGRATEC "Kontinuierliches Pelletcoting für die Pharmaindustrie" im Projektzeitraum von August 2009 bis Juli 2012.



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung



# Kurzzusammenfassung

Coating von Partikeln in Wirbelschichten ist eine weit verbreitete Technik, um gut definierte Eigenschaften der dispergierten Feststoffe zu erzeugen oder Wirkstoffe zu schützen. Die Mehrzahl der Beschichtungsverfahren werden in Chargen realisiert. Im Vergleich zu der diskontinuierlichen Führung bietet die kontinuierliche Betriebsweise mögliche Vorteile wie reduzierte Kosten und eine verbesserte Prozesskontrolle an. Bei Mehrschichtbeschichtung ergeben sich erhebliche Vorteile bei dem Dauerbetrieb. Aus diesem Grund wären eine ausführliche Untersuchung des diskontinuierlichen und kontinuierlichen Coatings und ein direkter Vergleich zwischen den beiden Betriebsverfahren sehr interessant.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich in fünf Hauptkapitel. Kapitel 2 der Arbeit beschäftigt sich mit der Modellierung des Coatingprozesses in diskontinuierlich und kontinuierlich betriebenen Wirbelschichten. Hierbei werden Ausführungen zur Modellierung mit Populationsbilanzen gegeben. Ein wesentlicher Gesichtspunkt ist die Beschreibung von Partikelwachstum unter der Berücksichtigung der Porosität der gebildeten Coatingschicht. Ein anderer wichtiger Bestandteil der Modellierung ist die Unterteilung der Wirbelschicht in Zwei-Zonen – Eindüsung- und Trocknungszone.

Im Kapitel 3 der Arbeit werden die Ergebnisse der Modellierung des diskontinuierlichen und kontinuierlichen Coatingprozesses präsentiert. Es wird das Modellverhalten in den beiden Betriebsweisen bei Variation von Modellparametern untersucht. Im Modell für das diskontinuierliche Coating wird der Einfluss von Parametern wie Schichtporosität, Verweilzeit in der Eindüsungzone und Volumenanteil der Eindüsungzone analysiert. Die mathematische Beschreibung der kontinuierlichen Beschichtung berücksichtigt Parameter wie die Porosität der gebildeten Coatingschicht, die Verweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr und für den Separationsprozess charakteristische Größen.

Kapitel 4 stellt die experimentellen Grundlagen zum Coating in einer Wirbelschichtanlage im Labormaßstab dar. Ein besonderes Interesse liegt bei der Modifizierung der Anlage zur Durchführung von kontinuierlichen Coatingexperimenten. Hierfür werden die Systeme sowohl für den kontinuierlichen Partikelaustrag als auch für die kontinuierliche Keimzugabe dokumentiert und untersucht. Die Berechnung und die Steuerung der Bettmasse, die im kontinuierlichen Betrieb eine entscheidende Rolle spielen, werden in diesem Kapitel erläutert und analysiert.

Bei den experimentellen Untersuchungen des Coatings kommen mikrokristalline Zel-

---

lulose als Trägermaterial und eine wässrige Lösung von Natriumbenzoat als Coatinglösung im Einsatz. Zur Analyse der Eigenschaften der hergestellten Granulate werden der Partikelgrößenanalysator CAMSIZER, ein Rasterelektronenmikroskop und ein Röntgentomographiesystem verwendet.

Kapitel 5 der Arbeit umfasst umfangreiche experimentelle Untersuchungen sowohl zur Charakterisierung des Wurster-Coatingprozesses als auch zur Überprüfung des diskontinuierlichen und kontinuierlichen Coatings. Bei den Coatingversuchen werden Parametervariationen bezüglich Temperatur, Gasmassenstrom, Eindüsungsrate, Keimzugaberate und Taktfrequenz der Ausgangsventile detailliert ausgewertet. Die Entwicklung der Partikelgrößenverteilung wird im Prozessverlauf durch die Entnahme von Proben beschrieben. Hierbei können Tendenzen bezüglich des Partikelwachstums erkannt werden. Die Betriebsparameter Gaseintrittstemperatur und Fluidisierungsmassenstrom zeigen einen direkten Einfluss auf die Porosität der gebildeten Coatingschicht.

Im Kapitel 6 der Arbeit werden die frei wählbaren Modellparameter für das diskontinuierliche und kontinuierliche Pelletcoating festgelegt. Außerdem werden die Ergebnisse aus der Gegenüberstellung von Experimenten und Simulationen diskutiert. Hierbei lässt sich feststellen, dass die Beschreibung sowohl des diskontinuierlichen als auch kontinuierlichen Coatingprozesses zufriedenstellende Ergebnisse liefert. Auf der Basis von der Produktqualität, Kosten und Energieeffizienz, Stillstandzeiten, Flexibilität der Ausrüstung und auf Grund von eigenen Beobachtungen werden diskontinuierliche und kontinuierliche Coatingprozesse miteinander verglichen. Schließlich wird ein Optimierungsvorschlag für den Trenneffekt in der Klassiereinrichtung beim kontinuierlichen Coatingprozess gegeben.

# Abstract

Coating of particles in fluidized beds is a widely spread technique to generate well defined properties of dispersed solids or to protect active ingredients. The majority of coating processes is conducted batch-wise, losing the possible advantages of the continuous mode of operation, such as reduced cost or improved process control. Especially in case of multi-layer coating significant benefits could arise from continuous operation. That's why a detailed investigation of discontinuous and continuous coating and a direct comparison between both operating procedures would be very interesting from the scientific aspect.

The present work is divided in five main chapters. Chapter 2 is focused on the modelling of the coating process in discontinuously and continuously operated fluidized beds. The mathematical implementation is given with population balances. An essential point of view is the description of particle growth under consideration of the porosity of the layer. Another important component of the modelling is the division of the fluidized bed in two zones – spraying and drying zone.

In Chapter 3 of the work the results of the modelling of the discontinuous and continuous coating process are presented. The model is examined for both operation modes by variation of model parameters. In case of discontinuous coating, the influence of parameters such as porosity of the layer, residence time in the spraying zone, mass fraction of the spraying zone are discussed. The mathematical model for continuous coating considers parameters like porosity of the layer, residence time up to the classifying tube and parameters of the separation function. Their influence on the process is shown and discussed.

In Chapter 4, the experimental set up for the coating experiments in lab scale fluidized bed apparatus is presented. The main focus was set on the modification of the plant for the realization of continuous coating experiments. The systems for the continuous particle discharge as well as for the continuous nuclei feeding are examined. The calculation and control of the bed mass, which are of key importance in the continuous operating mode, are explained and analyzed.

For the coating experiments microcrystalline cellulose is used as a carrier material and an aqueous solution of sodium benzoate as coating solution. For the analysis of the quality of the pellets, a particle size analyzer CAMSIZER, an electron microscope and a X-ray tomography system are applied.

Chapter 5 of the work involves extensive experimental investigations for the characterisation of

---

the Wurster coating processes as well as for examination of the discontinuous and continuous coating. In the coating experiments, varied parameters are the gas inlet temperature, gas mass flow rate, spraying rate, nuclei feeding rate and tact frequency of the output valves. The growth of the particle size distribution in the process is described by means of particle samples from the bed. Some trends can be recognized with regard to the particle growth. The operation parameters gas inlet temperature and gas mass flow rate show a direct influence on the porosity of the coating layer.

In Chapter 6 of the work, the adjustable parameters of the models for the discontinuous and continuous coating are fixed. Moreover, the results of the comparison between experiments and simulations are discussed. On this basis, it can be concluded that the description of the discontinuous and continuous coating process delivers satisfactory results. In terms of product quality, costs and energy efficiency, shutdown times, flexibility of the equipment, and on the basis of own observations, the discontinuous and the continuous coating process are compared with each other. Finally, an optimization proposal for the discharge effect in the separation tube for the continuous coating process is given .

# Inhaltsverzeichnis

<b>Vorwort</b>	<b>I</b>
<b>Kurzzusammenfassung</b>	<b>III</b>
<b>Abstract</b>	<b>V</b>
<b>Inhaltsverzeichnis</b>	<b>VII</b>
<b>Nomenklatur</b>	<b>XI</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1 Allgemeines . . . . .	1
1.2 Coating in Wirbelschichten . . . . .	3
1.2.1 Apparatetechnische Ausführungsmöglichkeiten . . . . .	3
1.2.2 Das Wursterverfahren . . . . .	9
1.2.3 Modellierungsmöglichkeiten . . . . .	15
1.3 Ziele der Arbeit . . . . .	20
<b>2 Modellierung des Wirbelschicht-Coatingprozesses</b>	<b>23</b>
2.1 Die allgemeine Populationsbilanz . . . . .	23
2.2 Herleitung der Wachstumskinetik . . . . .	25
2.3 Modellierung des diskontinuierlichen Prozesses . . . . .	27
2.3.1 Das Zwei-Zonen Modell . . . . .	28
2.3.2 Simulationsergebnisse . . . . .	30
2.4 Modellierung des kontinuierlichen Prozesses . . . . .	31
2.4.1 Der Separationsprozess . . . . .	34
2.4.2 Das Verweilzeitmodell . . . . .	37
2.4.2.1 Trefferwahrscheinlichkeit auf das Klassierrohr . . . . .	38
2.4.2.2 Strömungstechnische Ermittlung . . . . .	39
2.4.3 Simulationsergebnisse . . . . .	40
<b>3 Ergebnisse der Modellierung</b>	<b>45</b>
3.1 Modellverhalten beim diskontinuierlichen Coatingprozess . . . . .	45
3.1.1 Variation der Schichtporosität . . . . .	45
3.1.2 Variation der Verweilzeit in der Sprühzone . . . . .	46

3.1.3	Variation des Volumenanteils der Sprühzone . . . . .	46
3.1.4	Zusammenfassung der Ergebnisse der Parametervariationen . . . . .	49
3.2	Modellverhalten beim kontinuierlichen Coatingprozess . . . . .	52
3.2.1	Variation der Schichtporosität . . . . .	52
3.2.2	Variation der Partikelverweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr . . . . .	53
3.2.3	Variation der Parameter der Trennfunktion . . . . .	53
3.2.3.1	Variation der Turbulenzkonstante . . . . .	56
3.2.3.2	Variation des Durchmessers des Abzugsrohres . . . . .	56
3.2.3.3	Variation der Länge des Klassierrohres . . . . .	58
3.2.4	Zusammenfassung der Ergebnisse der Parametervariationen . . . . .	60
<b>4</b>	<b>Experimentelle Grundlagen</b>	<b>63</b>
4.1	Die Wirbelschichtversuchsanlage . . . . .	63
4.2	Modifizierung der Anlage für den kontinuierlichen Betrieb . . . . .	65
4.2.1	Das System für kontinuierlichen Produktaustrag . . . . .	67
4.2.1.1	Ermittlung der Trennschärfe am Produktaustrag . . . . .	69
4.2.1.2	Ermittlung der Austragsdauer des Produktes . . . . .	71
4.2.2	Das System für kontinuierliche Keimzugabe . . . . .	74
4.2.3	Berechnung und Steuerung der Bettmasse . . . . .	76
4.2.3.1	Berechnung der Bettmasse . . . . .	76
4.2.3.2	Regelung der Bettmasse . . . . .	79
4.3	Versuchsmaterialien . . . . .	81
4.3.1	Das Trägermaterial . . . . .	81
4.3.2	Die Coatinglösung . . . . .	83
4.4	Messtechnik und Methoden zur Analyse der Partikeleigenschaften . . . . .	85
4.4.1	Analyse der Partikelgröße . . . . .	85
4.4.2	Das Rasterelektronenmikroskop . . . . .	87
4.4.3	Analyse der Partikelporosität . . . . .	88
4.4.4	Analytische Methode zur Ermittlung der Partikelporosität . . . . .	91
<b>5</b>	<b>Experimentelle Untersuchungen</b>	<b>93</b>
5.1	Charakterisierung des Wurster-Prozesses . . . . .	93
5.1.1	Vergleich unterschiedlicher Durchströmungsplatten . . . . .	93
5.1.2	Vergleich unterschiedlicher Wirbelschichtkonfigurationen . . . . .	96
5.2	Diskontinuierliche Coatingversuche . . . . .	101
5.2.1	Durchführung und Auswertung . . . . .	101
5.2.2	Analyse der Partikelporosität . . . . .	104
5.2.3	Experimentelle Parametervariationen . . . . .	105
5.2.3.1	Variation der Gaseintrittstemperatur . . . . .	105

5.2.3.2	Variation des Fluidisierungsmassenstroms . . . . .	107
5.2.3.3	Variation der Eindüsungsrate . . . . .	109
5.2.3.4	Zusammenfassung der Ergebnisse der Parametervariation . . . . .	111
5.3	Kontinuierliche Coatingversuche . . . . .	115
5.3.1	Durchführung und Auswertung . . . . .	115
5.3.2	Analyse der Partikelporosität . . . . .	118
5.3.3	Experimentelle Parametervariationen . . . . .	118
5.3.3.1	Variation der Gaseintrittstemperatur . . . . .	122
5.3.3.2	Variation des Fluidisierungsmassenstroms . . . . .	123
5.3.3.3	Variation der Eindüsungsrate . . . . .	126
5.3.3.4	Variation der Keimzugaberate . . . . .	128
5.3.3.5	Variation der Taktfrequenz der Austragsventile . . . . .	128
5.3.3.6	Zusammenfassung der Ergebnisse der Parametervariation . . . . .	131
<b>6</b>	<b>Diskussion der Ergebnisse</b>	<b>133</b>
6.1	Festlegung der frei wählbaren Modellparameter . . . . .	133
6.1.1	Diskontinuierlicher Coatingprozess . . . . .	133
6.1.1.1	Schichtporosität . . . . .	133
6.1.1.2	Volumenanteil der Sprühzone . . . . .	133
6.1.1.3	Verweilzeit der Partikel in der Sprühzone . . . . .	134
6.1.2	Kontinuierlicher Coatingprozess . . . . .	134
6.1.2.1	Schichtporosität . . . . .	134
6.1.2.2	Volumenanteil der Sprühzone . . . . .	135
6.1.2.3	Verweilzeit der Partikel in der Sprühzone . . . . .	135
6.1.2.4	Partikelverweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr . . . . .	135
6.1.2.5	Die Turbulenzkonstante . . . . .	141
6.2	Vergleich zwischen experimentellen Daten und Simulation . . . . .	141
6.2.1	Diskontinuierlicher Coatingprozess . . . . .	141
6.2.2	Kontinuierlicher Coatingprozess . . . . .	144
6.3	Vergleich diskontinuierlicher und kontinuierlicher Coatingprozesse . . . . .	149
6.3.1	Die Produktqualität . . . . .	149
6.3.2	Kosten und Energieeffizienz . . . . .	149
6.3.3	Stillstandzeiten . . . . .	149
6.3.4	Flexibilität der Ausrüstung . . . . .	150
6.3.5	Allgemeine Bemerkungen und direkter Vergleich . . . . .	150
6.4	Optimierung des Trenneffektes in der Klassiereinrichtung . . . . .	153
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>157</b>
7.1	Zusammenfassung . . . . .	157

7.2 Ausblick . . . . .	160
<b>A Feuchtemesstechnik</b>	<b>161</b>
<b>B Charakterisierung von Partikelgrößenverteilungen</b>	<b>163</b>
<b>C Kenngrößen der Wirbelschicht</b>	<b>167</b>
<b>D Anlagenparameter</b>	<b>169</b>
<b>E Darstellung der Ergebnisse</b>	<b>171</b>
E.1 Diskontinuierliches Coating . . . . .	171
E.2 Kontinuierliches Coating . . . . .	178
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>189</b>
<b>Studentische Arbeiten</b>	<b>199</b>
<b>Veröffentlichungen</b>	<b>201</b>
<b>Lebenslauf</b>	<b>203</b>

# Nomenklatur

## Lateinische Symbole

Formelzeichen	Bezeichnung	Einheit
A	Querschnittsfläche	m <sup>2</sup>
c	Massenanteil	-
d	Durchmesser	m
d <sub>32</sub>	Normierter Sauterdurchmesser	m
D	Dispersionskoeffizient	m <sup>2</sup> /s
D <sub>R</sub>	Dämpfungsgrad des Reglers	-
e	Eigenschaftskordinate	verschieden
f	Taktfrequenz	1/s
F	Kraft	N
g	Erdbeschleunigung	m/s <sup>2</sup>
G	Wachstumsrate	m/s
H	Höhe	m
i	Index	-
k	Pulsationsbeiwert	-
k <sub>t</sub>	Turbulenzkonstante	-
K	Übertragungskonstante	-
l	Abstand	m
L	Länge	m
m	Pulsationsfaktor	-
M	Masse	kg
M <sub>j,r</sub>	j-tes Moment einer Index r Verteilung	-
n	Anzahldichte	1/ m <sup>3</sup>
N	Partikelanzahl	-
p <sub>N</sub>	Quelldichte	von r und e abhängig
P	Druck	Pa

P	Trefferwahrscheinlichkeit	-
$P_N$	Quellterm	1/s
q	Normierte Dichteverteilung	1/m
Q	Normierte Summenverteilung	-
r	externe Koordinate	m
R	Regler	-
s	Schichtdicke	m
s	Variable des Reglers	-
t	Zeit	s
T	Trennfunktion	1/s
$T_V$	differentialer Anteil eines Reglers	-
T	Temperatur	K
u	Gasgeschwindigkeit	m/s
V	Volumen	m <sup>3</sup>
X	Feststoffbeladung	kg/kg
Y	Gasbeladung	kg/kg

## Griechische Symbole

Formelzeichen	Bezeichnung	Einheit
$\alpha$	Eindüszungszone	-
1- $\alpha$	Trocknungszone	-
$\Delta$	Differenz	-
$\varepsilon$	Porosität der Hülle	-
$\zeta$	Widerstandsbeiwert	-
$\eta$	Öffnungsverhältnis	-
$\vartheta$	Temperatur	°C
$\iota$	Volumenanteil des Feststoffes	-
$\kappa$	Trennschärfe	-
$\lambda$	Ausflussbeiwert	-
$\mu$	Unnormiertes r-tes Moment	m <sup>3r</sup>
$\nu$	Kinematische Viskosität	m <sup>2</sup> /s
$\xi$	Widerstandsbeiwert	-
$\rho$	Dichte	kg/m <sup>3</sup>
$\tau$	Verweilzeit	s

$\sigma^2$	Varianz	$m^2$
$\phi$	Transportterm	1/s
$\varphi$	relative Feuchte	-
$\Phi$	Transportdichte	von r und e abhängig
$\psi$	Volumenanteil	-
$\omega$	Einheitsnormalenfaktor	-
$\Omega$	Eigenschaftsraum	-

## Indizes

<b>Index</b>	<b>Bezeichnung</b>
act	Istwert
area	Fläche
A	Auftrieb
App	Apparat
b	beliebige Zahl
B	Beschleunigung
bed	Schicht, Wirbelschicht
bulk	Bulkphase
c	Kern
cr	kritisch
CP	grobe Partikel
d	Bodenverteiler
DP	Taupunkt
elu	Austrag
end	am Ende
FP	feine Partikel
g	Gas
G	Gewicht
h	Loch
H	Hohlraum
H <sub>2</sub> O	Wasser
in	Eintritt
IP	Ausgangspartikel
kin	kinetisch

L	Flüssigkeit
m	Exponent
max	maximal
mf	Minimalfluidisation
min	minimal
n	Düse
nuc	Keime
out	Produkt, Austritt
P	Partikel
rec	Rezirkulation
R	Regler
s	Feststoff
sat	Sättigung
set	Sollwert
sh	Hülle
sink	Sinken
tot	gesamt
T	Tracer
U	Umlauf
vap	Dampf
V	Ventil
W	Widerstand
WT	Wursterrohr
$\Delta$	Dreieck
0	Beginn $t = 0$ , bezogen auf die Anzahl
1	bezogen auf die Länge
2	bezogen auf die Oberfläche
3	bezogen auf das Volumen

## Abkürzungen

<b>Abkürzung</b>	<b>Bedeutung</b>
API	Active Pharmaceutical Ingredient
Gl.	Gleichung
HPMC	Hydroxypropylmethylcellulose
MFC	Mass Flow Controller

PBM	Populationsbilanzmodell
PID	Proportional-Integral-Differential (Regler)
REM	Rasterelektronenmikroskop
WSA	Wirbelschichtanlage
$\mu$ CT	Tomograph
1D	eindimensional
3D	dreidimensional



# 1 Einleitung

## 1.1 Allgemeines

Das Ummanteln (engl. coating) von Feststoffen mit Hilfe von feststoffhaltigen Flüssigkeiten ist ein Verfahren, welches bereits in der Antike seinen Ursprung findet. Hier wurden Nahrungsmittel wie Nüsse oder getrocknete Früchte zur geschmacklichen Verfeinerung mit Honig, Harzen und Ähnlichem überzogen. Später folgten dann Verfahren, um Lebensmittel oder Bestandteile von Heilpflanzen mit Hilfe von Zucker zu ummanteln. Diese hatten das Ziel die Haltbarkeit der Nahrung zu erhöhen, was einen wichtigen Schritt in der menschlichen Entwicklungsgeschichte darstellt. Im Mittelalter bis zum 20. Jahrhundert hat sich das Ummanteln (Coaten) vor allem im pharmazeutischen Bereich weiterentwickelt. Nach dem Zweiten Weltkrieg konnten die Kenntnisse im Bereich der industriellen Nutzung von Coatingprozessen stetig ausgebaut und vertieft werden. In gleichem Maße konnten die praktischen Anwendungsgebiete und die Produktpalette erweitert werden. Im Jahr 1959 entwickelte Prof. Dale Wurster das nach ihm benannte Wurster-Beschichtungsverfahren, welches als ein Ableger des Wirbelschichtcoatings betrachtet werden kann, siehe Wurster (1990). Hierbei wurden erstmals Tabletten mit dem organischen Material Hydroxypropylmethylcellulose (HPMC) homogen beschichtet, Vollrath und Krause (2011).

Coatingprodukte sind heutzutage im alltäglichen Leben sowie für die Industrie unverzichtbar geworden. Insbesondere die Pharmaindustrie profitiert vom Fortschritt dieser Technologie. Darüber hinaus sind im Bereich der Lebens- und Futtermittelindustrie als auch der chemischen Industrie viele Coatingprodukte bekannt und im technischen Einsatz. Bei allen genannten Anwendungsbereichen spielen die funktionellen Anforderungen an die Coatingschicht eine bedeutende Rolle. Zu den Eigenschaften zählt unter Anderem die Aufprägung eines definierten Diffusionsverhaltens für eingelagerte Inhaltsstoffe, welche zur Verbesserung der Lagerstabilität beitragen. Außerdem sind in diesem Zusammenhang das Verhindern der Aufnahme oder Abgabe von Feuchtigkeit, die Maskierung von Geruch und Geschmack, die Veränderung von Fließeigenschaften sowie der Oberfläche, aber auch der mechanische Schutz des Produktes als mögliche Funktionen der Coatingschicht zu nennen. Aus diesem Grund sind ständige Qualitätskontrollen der Produkte unumgänglich, Tsotsas und Mujumdar (2009).

Derzeit sind verschiedene Arten des Coatings bekannt. Die wesentlichen Methoden sind in der

Abbildung 1.1 dargestellt.

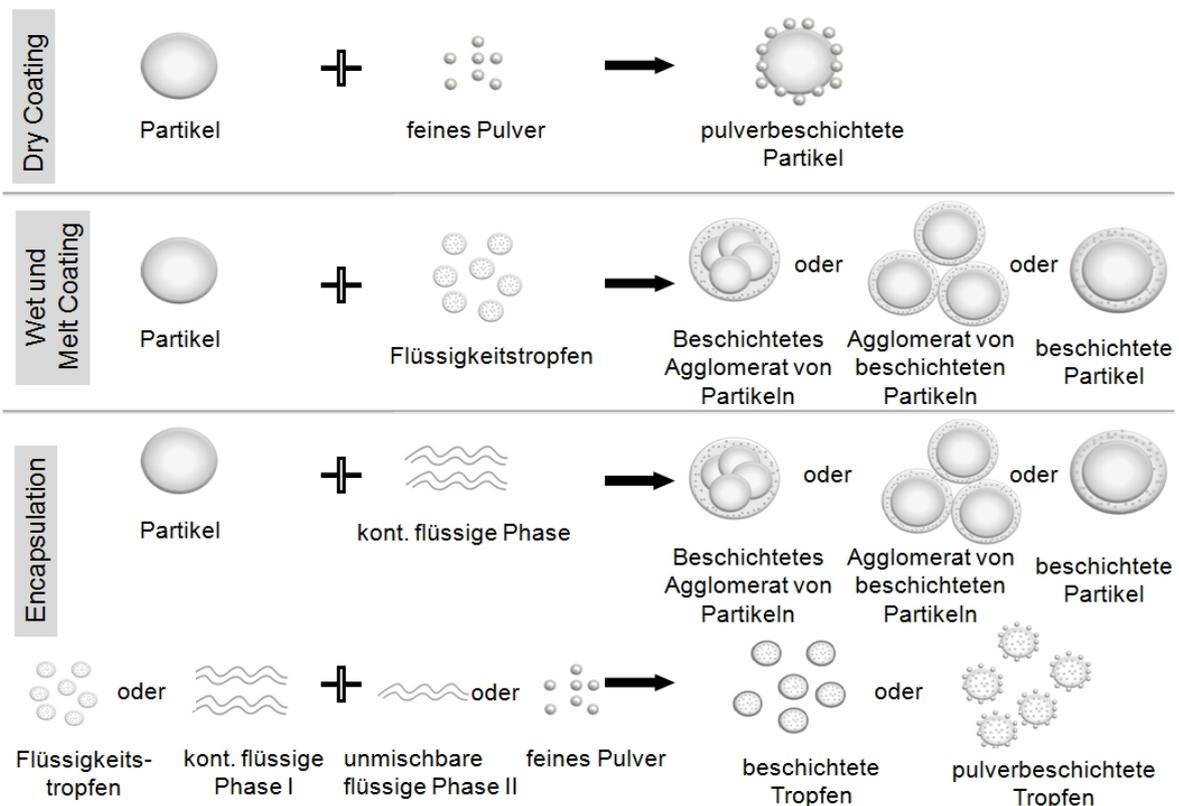


Abbildung 1.1: Darstellung der wesentlichen Coatingprozesse und -möglichkeiten, Salman u. a. (2007).

Grundsätzlich kann zwischen trockenem und flüssigem Coating unterschieden werden. Bei trockenem Coating werden die zu beschichtenden Partikel mit feinem Pulver, bestehend aus Teilchen mit einer Größe von weniger als  $1 \mu\text{m}$  (submikron) in Kontakt gebracht. Hierbei lagert sich das Pulver auf der Oberfläche des Partikels an und bildet eine trockene Coatingschicht. Im Fall des flüssigen Coatings werden die Partikel mit einer Flüssigkeit in Kontakt gebracht, welche sich auf der Oberfläche abscheidet und diese dabei ummantelt. Die Flüssigkeit kann beispielsweise eine Lösung oder eine Schmelze sein. Je nach Verfahren und den Prozessbedingungen kann der Coatingprozess die Partikel homogen beschichten oder durch einen Agglomerationsprozess überlagert werden, siehe Abbildung 1.1. Als eine dritte Variante des Coatings lässt sich die Verkapselung nennen. Hierbei wird das zu ummantelnde Material (Partikel oder Flüssigkeitstropfen) mit einer kontinuierlichen Flüssigkeitsphase und/oder submikronem Pulver in Kontakt gebracht. Im Ergebnis führt dies zu beschichteten Partikeln, Agglomeraten oder Tropfen.

Die Einbringung einer Flüssigkeit in ein Partikelsystem führt häufig zur Bildung von Flüssigkeitsbrücken zwischen den Partikeln und damit zur Agglomeration. Durch eine solche

Aggregation von Primärpartikeln kommt es im Allgemeinen zu einer Zunahme der Partikelgröße und einer Verringerung der Partikelanzahl, siehe Hampel (2010). In Abhängigkeit vom technischen Verfahren und den Einsatzstoffen können Agglomeration und Coating als konkurrierende Prozesse auftreten. Eine theoretische Möglichkeit, um das Auftreten von Agglomeration bzw. Coating abzuschätzen, bietet das Stokes-Kriterium an, siehe Ennis u. a. (1991). Dieses drückt eine Relation zwischen der kinetischen Energie und der im Flüssigkeitsfilm dissipierten Energie beim Aufprall zweier Partikel aus. Dieses Kriterium wurde bereits von verschiedenen Autoren erfolgreich eingesetzt, um den Prozess der Agglomeration in Wirbelschichten auf Basis von Mikroprozessen zu beschreiben. So nutzten beispielsweise Terrazas-Velarde u. a. (2009) und Dervedde u. a. (2012), Dervedde (2013) das Stokes Kriterium, um mit Hilfe stochastischer Simulationsmethoden eine erfolgreiche Aggregation zwischen zwei Partikeln zu charakterisieren.

## 1.2 Coating in Wirbelschichten

### 1.2.1 Apparatetechnische Ausführungsmöglichkeiten

Das Coaten von Partikeln kann unter verschiedenen apparativen und verfahrenstechnischen Bedingungen umgesetzt werden. Die am häufigsten eingesetzten Apparate sind Tellercoater, Trommelcoater und Wirbelschichtcoater. Die wesentlichen Unterschiede bestehen hierbei in der Art, in der das zu beschichtende Material mit dem Beschichtungsmaterial in Kontakt gebracht wird.

In der vorliegenden Arbeit wird der Coatingprozess in Wirbelschichten untersucht. Die Wirbelschicht findet erstmals Erwähnung durch Winkler (1926) für einen Vergasungsprozess von Kohle. Im Hinblick auf den Partikel-Coatingprozess findet die Wirbelschichttechnik zahlreiche Erwähnung in der Literatur. Die wesentlichen Ergebnisse und Arbeiten zum Coating in klassischen Wirbelschichten werden in der Tabelle 1.1 aufgelistet.

Die Wirbelschichttechnik ist durch die Fluidisation der dispersen, zu beschichtenden Phase gekennzeichnet. Hierbei wird die Schüttung aufgrund der Durchströmung mit einem Gas im Apparat in einen Schweb- und damit flüssigkeitsähnlichen Zustand versetzt. Bei der klassischen Wirbelschicht bewegen sich die Partikel im Idealfall auf stochastischen Bahnen im Apparat über dem Anströmboden. Um das Coating des Feststoffes zu realisieren, wird das fluidisierte Haufwerk mit Hilfe einer Düsenvorrichtung besprüht. Das Ziel ist hierbei, eine homogene Abscheidung der Flüssigkeit über alle Partikel der Schüttung und die Oberfläche zu erhalten.

Hinsichtlich der apparativen Umsetzung lassen sich verschiedene Eindüsungsmöglichkeiten für Wirbelschichten identifizieren (Salman u. a. (2007)):

Tabelle 1.1: Inhaltliche Zusammenfassung von Literatur bezüglich experimenteller Untersuchungen zum Coating in Wirbelschichten unter Verwendung lösungsmittelbasierter Coatingflüssigkeiten.

Autor	Produkte	Experimentelle Variationen	Messtechnik	Inhalt/Ergebnisse
Link und Schlünder (1997)	Startmaterial: • $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ Partikel (1.3 mm) Coatinglösung: • Natriumchlorid und Laktose • Kalkhydrat • Texapon K12-96	• Konzentration von Laktose • Düsendruck • Gaseintrittstemperatur • mit bzw. ohne Texapon	• REM • Siebanalyse	• hohe Konzentration, starkes Wachstum • erhöhter Düsenvordruck, erhöhte Partikelkollision und Verminderung der Adhäsion • Temperaturoptimum für das Coating erkennbar • Texapon erhöht das Wachstum
Dewettinck und Huyghebaert (1998)	Startkerne: • Natriumchlorid Coatinglösung: • Protein-Lösungen	• Coatinglösung • Düsenvordruck	• Viskosimeter • Adsorptionsgerät • Anemometer	• die Qualität der Schicht hängt von den funktionellen und kompositorischen Eigenschaften des Proteins ab • mit der Erhöhung des Düsenvordrucks bilden sich kleine Tröpfchen mit einer hohen Geschwindigkeit
Hede u. a. (2007)	Startmaterial: • Natriumsulfat 180-350 $\mu\text{m}$ • Glas 180-350 $\mu\text{m}$ Coatinglösung: • 15 Ma% Natriumsulfat, Dextrin, Farbe	• Startmaterial • Wirbelschichtanlagen • Düsenvordruck	• Siebanalyse • REM	• die Morphologie der Schicht ist bei allen drei WS-Anlagen gleich • unporöse Partikel, bessere Abriebfestigkeit • niedriger Düsenvordruck, größere Agglomerationsstendenz

Autor	Produkte	Experimentelle Variationen	Messtechnik	Inhalt/Ergebnisse
Chen u. a. (2009)	Startkerne: <ul style="list-style-type: none"> <li>• Edelistahl</li> <li>• Maisstärke</li> <li>• Siliziumdioxid</li> </ul> Gastpartikel: <ul style="list-style-type: none"> <li>• SiO<sub>2</sub> EH-5</li> <li>• SiO<sub>2</sub> R972</li> <li>• SiO<sub>2</sub> A200</li> </ul> Coatinglösung: <ul style="list-style-type: none"> <li>• Eudragit E100</li> <li>• Hydroxypropyl-methylcellulose</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Gastemperatur</li> <li>• Konzentration der Lösung</li> <li>• Masse des eingedühten Feststoffes</li> <li>• Wassermenge im Lösungsmittel</li> <li>• Eindühtungsrate</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Laserbeugung für die Partikelgröße</li> <li>• REM</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• höhere Gastemperatur – geringere Partikelgröße und Agglomeration</li> <li>• geringere Polymerkonzentration – geringere Partikelgröße, geringere Agglomeration</li> <li>• geringere Masse des eingedühten Feststoffes – geringere Partikelgröße</li> <li>• geringere Wassermenge im Lösungsmittel – porösere Schicht</li> <li>• höhere Eindühtungsrate – porösere Schicht, größeres Wachstum, stärkere Agglomeration</li> </ul>

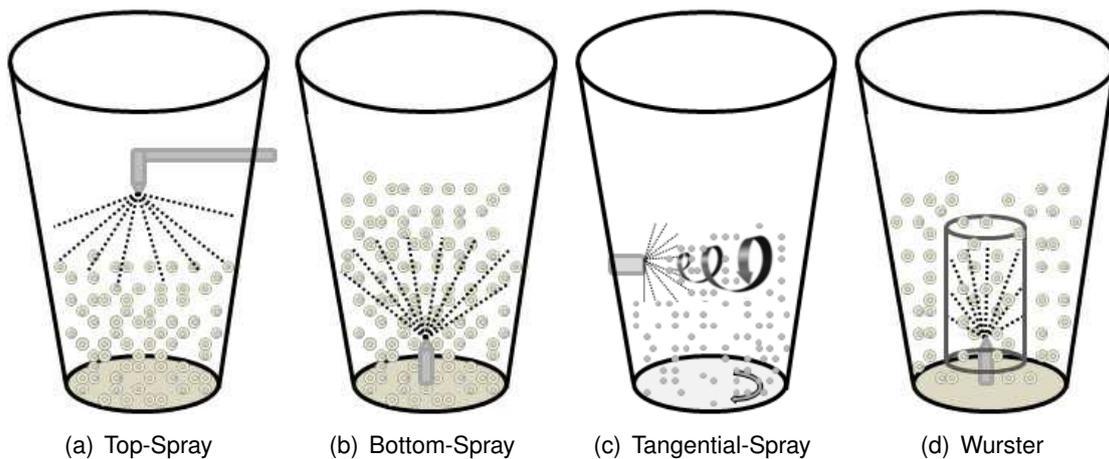


Abbildung 1.2: Schematische Darstellung unterschiedlicher Wirbelschichtkonfigurationen.

- Eindüsung von oben (Top-Spray),
- Eindüsung von unten (Bottom-Spray),
- Seitliche Eindüsung (Tangential-Spray),
- Eindüsung von unten innerhalb eines Steigrohres (Wurster-Konfiguration).

Alle Konfigurationen werden in Abbildung 1.2 schematisch dargestellt. Die Top-Spray-Konfiguration zeichnet sich durch einen in Gravitationsrichtung positionierten Sprühstrahl aus, siehe Abbildung 1.2(a). Die Düse kann sowohl oberhalb der Wirbelschicht als auch in die fluidisierte Schicht eingetaucht positioniert werden. Der Sprühstrahl ist in diesem Fall im Gegenstrom zum Fluidisierungsgas. Bottom-Spray ist durch eine der Gravitation entgegengerichtete Sprührichtung charakterisiert, siehe Abbildung 1.2(b). Gas und Sprühflüssigkeit befinden sich im Gleichstrom. Eine weitere Möglichkeit der Flüssigkeitseinbringung ist das tangentielle Einsprühen. Der Sprühstrahl ist hier rechtwinklig zur Gravitationsrichtung angeordnet, siehe Abbildung 1.2(c).

Eine gesonderte Konfiguration ist der Wurster-Wirbelschichtcoater, siehe Abbildung 1.2(d). Dieses Verfahren unterscheidet sich vom klassischen Wirbelschichtcoater durch ein zusätzlich eingebautes Steigrohr und einen sektionsweise perforierten Anströmboden. Die Düseneinrichtung ist konzentrisch unter dem höhenverstellbaren Steigrohr und im Bottom-Spray-Verfahren angeordnet. Mit Hilfe dieser Änderungen wird der Partikelschüttung eine Umwälzung im Prozessraum aufgezwungen, die apparativ und durch die Prozessparameter beeinflusst werden kann. Es hat sich herausgestellt, dass diese Konfiguration ein vergleichsweise homogenes Coatingbild (gleichmäßige Beschichtung) ergibt. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird der apparative und modelltechnische Fokus auf das Coating in der Wurster-Konfiguration gelegt, wobei sowohl der diskontinuierliche als auch der kontinuierliche Betrieb untersucht werden.

Im Allgemeinen lassen sich Wirbelschichtprozesse sowohl in diskontinuierlicher als auch kontinuierlicher Betriebsweise realisieren, Teunou und Poncelet (2002). Einen Überblick über diskontinuierliche Wirbelschichtprozesse geben Salman u. a. (2007) und Olsen (1989). Von Heinrich (2011) werden umfangreiche apparative Möglichkeiten kontinuierlich betriebener Wirbelschichten zusammengefasst.

Charakteristisch für die kontinuierliche Fahrweise der Wirbelschichten ist ein permanenter Partikelaustrag. Im Allgemeinen ist es sinnvoll, die Bettmasse während des Prozesses konstant zu halten, um eine möglichst konstante Partikelverweilzeit zu erzielen. Außerdem besteht somit aus ökonomischer Sicht die Möglichkeit, die Kapazität der Anlage zu optimieren und den Energiebedarf zu verringern. Die zugeführten Massenströme von Keimen und Sprühflüssigkeit sind bei dieser Regelungsaufgabe als Führungsgrößen geeignet.

Für den kontinuierlichen Partikelaustrag lassen sich nach Uhlemann und Mörl (2000) im Wesentlichen drei Methoden voneinander unterscheiden:

1. intern klassierender Austrag,
2. extern klassierender Austrag und
3. nicht klassierender Austrag.

Die interne Klassierung nutzt mit Hilfe von Austragsrohren oder -schächten die Gegenstromsichtung, um Partikel einer bestimmten Größe aus der Wirbelschicht auszutragen, siehe beispielsweise Heinrich (2011). Der Aufbau eines intern klassierenden Apparatesystems ist in der Abbildung 1.3(a) dargestellt. Im Gegensatz dazu werden bei der externen Klassierung (Abbildung 1.3(b)) die Partikel unklassiert aus der Wirbelschicht abgezogen und über ein externes Klassierorgan (z.B. Sieb oder Sichter) fraktioniert. Die grobe Fraktion wird über eine Mühle mit dem Feingutstrom als Keimzugabe zum Prozess zurückgeführt. Die Zielfraktion wird als Produkt aus dem Prozess ausgeschleust. Bei nicht klassierendem Austrag wird die Bettmasse über ein geeignetes Austragsorgan (z.B. Zellenradschleuse) kontinuierlich aus dem Prozess entnommen, siehe Abbildung 1.3(c). Das abgezogene Produkt besitzt in diesem Fall eine vordefinierte Partikelgrößenverteilung. Die Konstanterhaltung der Bettmasse kann mit Hilfe der Abzugsgeschwindigkeit realisiert werden.

Eine weitere Konfiguration des kontinuierlichen Wirbelschichtverfahrens ist die Wirbelschichtrinne. In der Wirbelschichtrinne lassen sich unterschiedliche Prozesse, wie Trocknung, Granulation oder Coating, miteinander verbinden, siehe Abbildung 1.4. Auf diese Weise kann eine vollständige Produktgestaltung in einem kontinuierlichen Apparat vollzogen werden. Unter der Annahme, dass sich die Schüttung der zu behandelnden Partikel kolbenartig ("plug flow") durch den Apparat bewegt, ist kein Abzug von Partikeln aus dem Prozess notwendig. Die Partikel weisen idealerweise lokal betrachtet keine Eigenschaftsverteilungen auf. In der Praxis hat sich jedoch herausgestellt, dass sich die Partikel nicht in idealer Kolbenströmung befinden

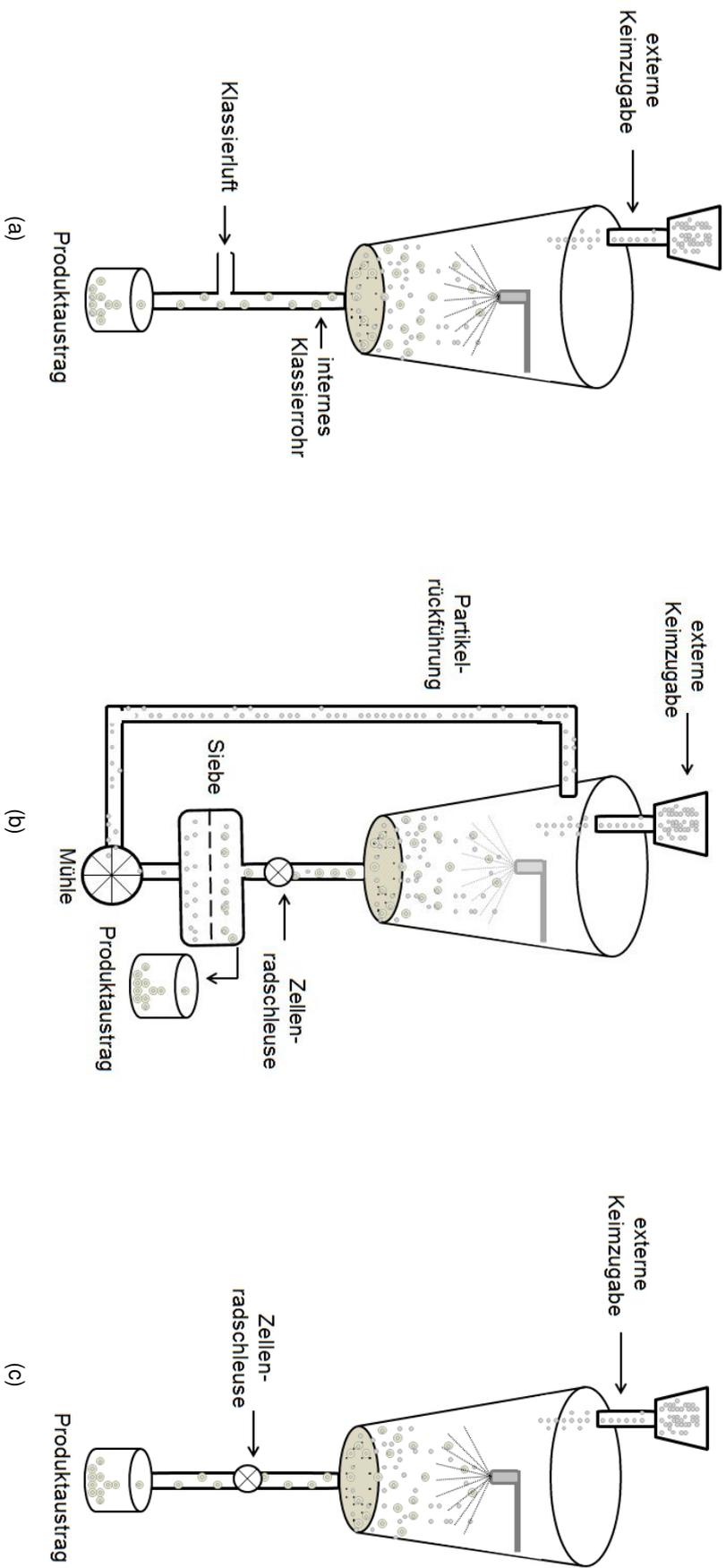


Abbildung 1.3: Schematische Darstellung der wesentlichen Austragsmethoden für kontinuierliche Partikelbildungsprozesse in Wirbelschichten, (a) interne Klassierung, (b) externe Klassierung und (c) unklassierender Abzug.

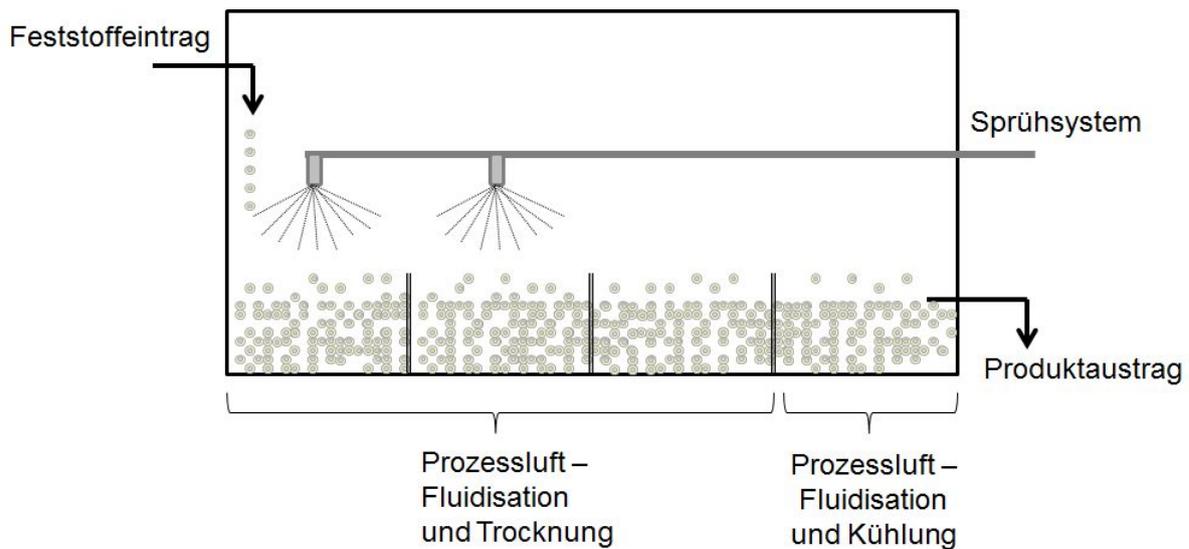


Abbildung 1.4: Schematische Darstellung einer kontinuierlich arbeitenden Wirbelschichttrinne mit verschiedenen Prozesskammern für eine ganzheitliche Produktgestaltung.

und das abgezogene Produkt eine Eigenschaftsverteilung (z.B. in der Partikelgröße oder im Wirkstoffgehalt) aufweist. Aus diesem Grund wird von verschiedenen Autoren die Verweilzeitverteilung der Partikel in Rinnenapparaten untersucht, siehe beispielsweise Idakiev und Mörl (2013), Bachmann und Tsotsas (2014) und Jacob (2010).

### 1.2.2 Das Wursterverfahren

Von Vollrath und Krause (2011) konnte nachgewiesen werden, dass sich das Wursterverfahren durch eine homogene Beschichtung auszeichnet. Nicht zuletzt deshalb findet der Wursterprozess in der Pharma und Lebensmittelindustrie häufig seine Anwendung. Hintergrund sind hier die hohen Anforderungen an die Qualität der Produkte. In der Literatur lassen sich zahlreiche Untersuchungen hinsichtlich der Anwendungsmöglichkeiten in der Pharmaindustrie finden. Hierzu zählt beispielsweise die Untersuchung der Herstellung von feinen Inhalationspulvern durch Ilda u. a. (2005). Eine häufige pharmazeutische Anwendung ist außerdem das Coating von Pellets als Träger von pharmazeutisch aktiven Substanzen (API) zur Herstellung von definierten Freisetzungsraten bei den Patienten. Das Coating von Pellets wird beispielsweise von Laicher und Fuchs (1998) und Christensen und Bartelsen (1997) untersucht. Das Wursterverfahren als eine Abwandlung der klassischen Wirbelschicht spielt hierbei eine zentrale Rolle.

Der Wursterapparat wird von den Autoren Cronin u. a. (2010), Karlsson u. a. (2006) und Shelukar u. a. (2009) in vier verschiedene Zonen unterteilt, welche sich phänomenologisch voneinander unterscheiden, siehe Abbildung 1.5:

1. Up-bed-Zone,

2. Entspannungszone,
3. Down-bed-Zone und
4. Zone des horizontalen Transportes.

Die Up-bed-Zone ist im Inneren des Wurster-Rohres lokalisiert. Im Bereich des Wursterrohres weist die Perforation des Anströmbodens ein größeres Öffnungsverhältnis auf als im Randbereich. Darüber hinaus ist die Düse zentrisch am unteren Ende des Wursterrohres positioniert. Beide Aspekte bewirken eine erhöhte Strömungsgeschwindigkeit des Gases im Rohr. Die Folge ist ein pneumatischer Transport der Partikel durch das Rohr. Während des Transportes werden die Partikel aufgrund der Eindüsung mit Sprühflüssigkeit benetzt, siehe Abbildung 1.5. Nach Christensen und Bartelsen (1997) beträgt der Volumenanteil an Partikeln im Steigrohr des Wursterapparates weniger als 5%. Im Allgemeinen ist die Position des Steigrohres in vertikaler Richtung variabel, um ein möglichst optimales Einströmen der Partikel in das Steigrohr zu gewährleisten.

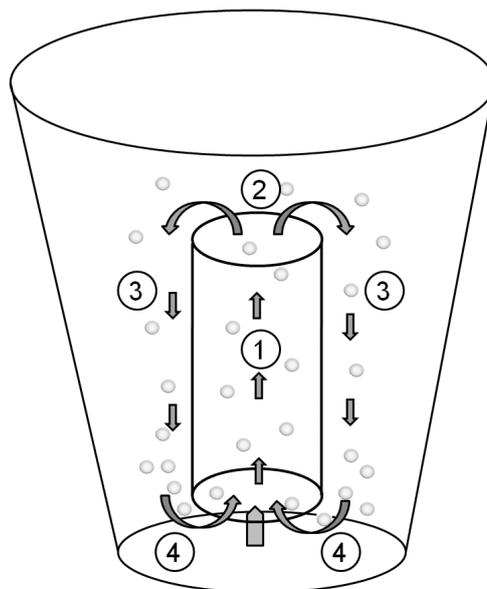


Abbildung 1.5: Aufteilung des Wurster-Prozesses in Zonen.

In der Entspannungszone – oberhalb des Wursterrohres – wird durch die plötzliche Erweiterung die Gasgeschwindigkeit rapide abgesenkt. Hierbei wird die Austragsgeschwindigkeit der Partikel unterschritten und der pneumatische Transport gestoppt. Infolgedessen fallen die Partikel in die Down-bed-Zone zurück, wo die höchste Partikelkonzentration im gesamten Apparat zu finden ist. Die Gasgeschwindigkeit in der Down-bed-Zone liegt geringfügig oberhalb der Lockerungsgeschwindigkeit, sodass hier nur eine geringe Fluidisation zum Tragen kommt. Nach Christensen und Bartelsen (1997) und Karlsson u. a. (2006) ist die Partikelfeuchtigkeit im Prozess so einzustellen, dass in dieser Zone keine Agglomeration auftritt. Aufgrund der geringen

Fluidisation ist die Agglomerationsneigung hier am stärksten.

Die vierte Zone des Apparates – Zone des horizontalen Transports – befindet sich zwischen dem Steigrohr und dem Anströmboden, siehe Abbildung 1.5. Da im Steigrohr wegen der höheren Strömungsgeschwindigkeit ein geringerer statischer Druck herrscht, werden die Partikel – ähnlich dem Injektorprinzip – in das Rohr hineingezogen. Durch die Höhenverstellbarkeit kann der Spalt von Rohr zu Anströmboden so eingestellt werden, dass der horizontale Produkttransport in die Up-bed-Zone eintritt. In der Nähe dieses Spaltes ist eine sehr hohe Konzentration an Partikeln zu beobachten, Arimoto u. a. (2004), Wang und Cameron (2007). Eine geeignete Spalthöhe hängt in hohem Maße von der Größe und der Fließgeschwindigkeit der Partikel ab, Grave und Pöllinger (2011). Guignon u. a. (2003) stellten fest, dass in der Zone des horizontalen Transportes die Gasgeschwindigkeit mindestens zweimal so hoch sein muss wie die Lockerungsgeschwindigkeit, um das Produkt konstant in Bewegung zu halten.

Um die Beschichtung der Partikel zu beschreiben, wird von Werner u. a. (2007) ein im Apparat zirkulierendes Einzelpartikel verfolgt, vergleiche hierzu Abbildung 1.6. Zunächst wird die Flüssigkeit über ein geeignetes Eindüsungorgan im Bottom Spray Verfahren zerstäubt und steigt im Steigrohr mit dem Gastrom auf. Die Tropfen und die Partikel kollidieren innerhalb des Steigrohres, was zu einer Abscheidung und Anhaftung der Tröpfchen auf der Oberfläche der Partikel führt. Die abgeschiedenen Flüssigkeitstropfen breiten sich auf der Oberfläche der Partikel aus und treten je nach Materialeigenschaften mit dem Feststoff in Interaktion – z.B. Eindringen in poröse Strukturen. Nicht zuletzt aufgrund der starken Konvektion ist innerhalb des Steigrohres mit einer überlagerten Tropfentrocknung zu rechnen. Nachdem das Partikel das Steigrohr verlassen hat, unterliegt es im weiteren Zirkulationsverlauf der Trocknung der Flüssigkeitsbenetzung beim Durchlaufen der vorangehend beschriebenen Apparatezonen. Hierdurch bildet sich eine Feststoffschicht auf der Oberfläche des Partikels. Entsprechend dem Injektorprinzip wird das Partikel wieder in das Rohr hineingezogen und wiederum pneumatisch transportiert – womit die Zirkulation erneut beginnt. Durch die wiederholte Zirkulation bildet sich ein geschlossenes Coating auf der Partikeloberfläche. Metha u. a. (1985) haben festgestellt, dass im Wursterprozess aufgrund der Gleichstromführung der Fluidisationsluft und des Sprühstrahles eine homogenere Verteilung der Tropfen und eine gleichmäßigere Abtrocknung der Schicht erzielt wird. Eine hohe Produktfeuchte begünstigt die Agglomeration der Pellets. Im Gegensatz dazu treten Sprühtrocknung der Tropfen und Abrieb der gebildeten Schicht bei ungenügender Filmbildung als Folge sehr schneller Trocknungsprozesse und geringer Produktfeuchten auf, siehe Jones (1989). Im Fall von Agglomeration ist kein Einzelpartikelcoating möglich, was zu einem Scheitern der Prozessaufgabe führen kann und damit unerwünscht ist. Die Nutzung des Wursterverfahrens wird jedoch auch für eine gezielte Agglomeration untersucht, was von Rajniak u. a. (2007) und Kage u. a. (2003) analysiert wird.

Neben diesen Erkenntnissen zum Wursterverfahren gibt es eine Reihe unterschiedlicher Un-

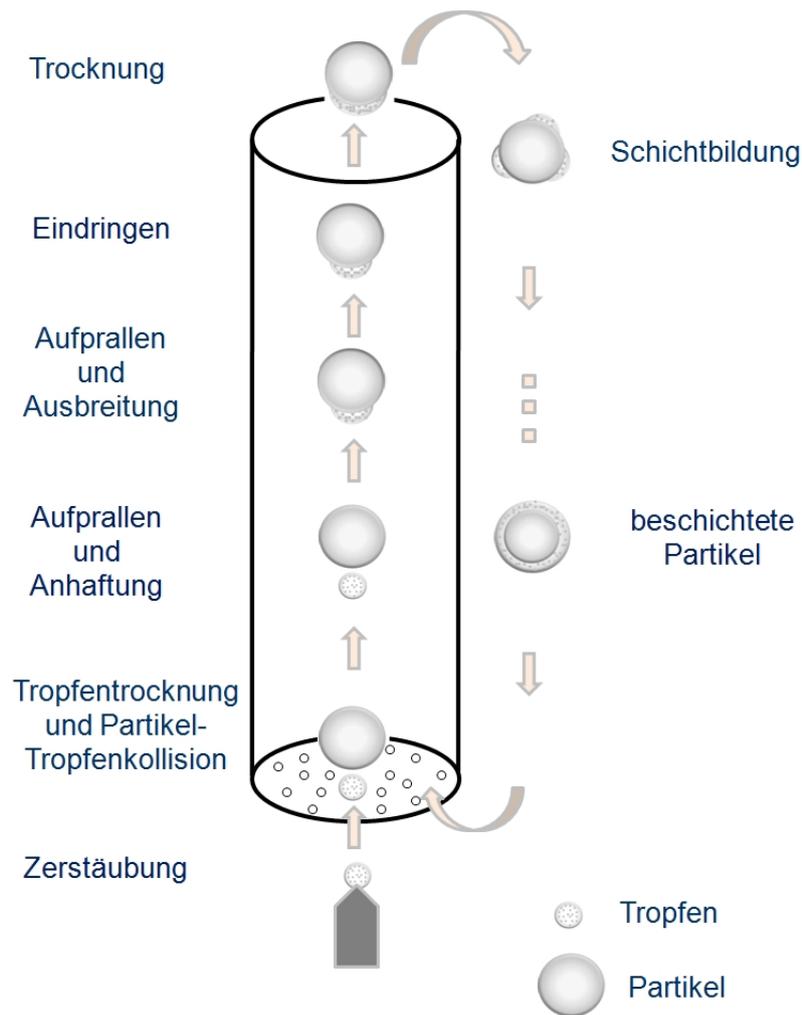


Abbildung 1.6: Bedüsung einzelner Partikel im Steigrohr einer Wurster-Wirbelschichtanlage, Werner u. a. (2007).

tersuchungen hinsichtlich der Vor- und Nachteile zur Realisierung von Coatingprozessen im Wursterverfahren. Eine Auflistung der wesentlichen Arbeiten, deren Bedingungen und Ergebnisse wird in der Tabelle 1.2 aufgeführt.

Tabelle 1.2: Inhaltliche Zusammenfassung von Literatur bezüglich experimenteller Untersuchungen zum Coating im Wursterprozess unter Verwendung lösungsmittelbasierter Coatingflüssigkeiten.

Autor	Produkte	Experimentelle Variationen	Messtechnik	Inhalt/Ergebnisse
Becher und Schlünder (1998)	Startmaterial: • Aluminium-Silikat Partikel Coatinglösung: • Calciumcarbonat	• Düsenvordruck • Fluidisierungs- massenstrom • Eindüsenrate	• REM • Siebanalyse	• hohe maximale Gasgeschwindigkeit sinkt proportional zum Abstand zwischen dem Steigrohr und dem Anströmboden • geringere Zirkulationszeit bei höheren Gasgeschwindigkeiten • bei erhöhter Betthöhe nimmt die Zirkulationszeit zu • erhöhter Düsenvordruck – gleichartigere Schicht
Ilda u. a. (2005)	Startkerne: • Laktose Coatinglösung: • Hydroxypropyl- methylcellulose	• Coatingdauer	• Pyknometer • 3D Lasermikroskop • Bildanalyse	• längere Coatingdauer – Abnahme der Rauigkeit • längere Coatingdauer – Partikeloberfläche nimmt ab • höhere Sphärizität nach dem Coatingprozess
Musko u. a. (2000)	Startmaterial: • Theophyllin • Glas 180-350 $\mu m$ Coatinglösung: • Eudragit L 100-55, Eastacryl 30D, Surelease	• Coatinglösungen • Vorbereitung der Flüssigkeit	• REM • Spektrophotometrie • Analyse der Freisetzung	• Auflösung der aufgetragenen Eudragit- und Eastacrylschicht am Anfang langsam, später schneller • Surelease ist unlösbar im Lösungsmittel, Theophyllin wird durch Diffusion in der Coatingschicht freigesetzt

Autor	Produkte	Experimentelle Variationen	Messtechnik	Inhalt/Ergebnisse
Senwanis u. a. (1999)	Startmaterial: • Kristalle der Acetylsalicylsäure Coatinglösung: • Lutrol und Carbowax Lubricant	• Konzentration des Gleitmittels	• Analyse der Freisetzung • Siebanalyse	• höhere Konzentration des Gleitmittels verbessert die Fließeigenschaften der Partikel
Ström u. a. (2005)	Startkerne: • Glas Coatinglösung: • Hydroxypropylmethylcellulose in Wasser und Ethanol	• Partikelgröße • Fluidisierungs-massenstrom • Konzentration und Art der Lösung	• Hochgeschwindigkeitskamera • REM	• Verhältnis Partikeldurchmesser zu Porendurchmesser von 1.5 sichert stabile Fluidisation • Masse der Schicht steigt mit Tröpfchenanzahl • Gastemperatur hat Einfluss auf Trocknung und physikalische Eigenschaften der Schicht
Tzika u. a. (2003)	Startmaterial: • Mischung aus Ammoniumsulfat, Ammoniumdihydrogenphosphat, Ammoniumnitrat und Calciumsulfat Coatinglösung: • Polymer auf der Basis von Vinylidenchlorid	• Öffnungsverhältnis des Anströmbodens • Einsatzhöhe • Fluidisierungs-massenstrom • Eindüsungsrate	• REM • Analyse der Freisetzung	• größeres Öffnungsverhältnis – gleichmäßigere Beschichtung • erhöhte Eindüsungsrate verkürzt die Coatingdauer • geringe Einsatzhöhe – größere Freisetzungsrate

### 1.2.3 Modellierungsmöglichkeiten

Um bei Partikelbildungsprozessen eine weitreichend gute und stabile Qualität zu erhalten, ist es notwendig, ein möglichst umfangreiches Prozessverständnis zu besitzen. Ist dieses vorhanden, können adäquate Prozessmodellierungen vorgenommen werden, und der Prozess kann stabil und effizient gestaltet werden. Von Mort (2007) werden verschiedene Ebenen einer Prozessmodellierung beschrieben: (1) Mikroebene, (2) Mesoebene und (3) Makroebene. Werden alle drei Ebenen berücksichtigt, ist eine umfassende Prozessbeschreibung möglich.

Als makroskopische Beschreibungsmethode für Partikelbildungsprozesse wie Coating, Granulation und Agglomeration werden häufig Populationsbilanzen verwendet, vgl. Hounslow (1998) und Heinrich (2011). Bei dieser mathematischen Methode wird der zeitliche Verlauf einer Eigenschaftsverteilung beschrieben. Die hierbei betrachteten Eigenschaften bilden die internen Koordinaten der Populationsbilanzen. Bei mehrdimensionalen Populationsbilanzsystemen sind teilweise aufwendige mathematische Methoden notwendig, um eine Lösung zu erzielen.

Dennoch hat sich die Methode der Populationsbilanzen für die Betrachtung von Prozessen und Verfahren als sinnvoll herausgestellt, da hiermit verschiedene Anlagenkonfigurationen und Betriebsmodifikationen, unter der Voraussetzung geeigneter Kinetiken berücksichtigt werden können. Sowohl diskontinuierliche als auch kontinuierliche Verfahren können inklusive peripherer Prozesse, z.B. Fraktionierung und Zerkleinerung, gut beschrieben werden.

In der Literatur lassen sich diverse Arbeiten hinsichtlich der Beschreibung gesamter Verfahrenskonzepte und unterschiedlicher Betriebsmodifikationen finden, siehe Tabelle 1.3. Alavi u. a. (2007) beschreiben beispielsweise einen diskontinuierlichen Coatingprozess mit Hilfe eines eindimensionalen Populationsbilanzmodells. Das Ziel dieses Beitrags ist es, den Einfluss von Betriebsparametern auf die Coatingeffizienz zu ermitteln. Anhand der Massenverteilung des Coatings der Partikel wird unter der Vernachlässigung von Bruch und Agglomeration nachgewiesen, dass eine Erhöhung des Fluidisierungsmassenstroms die Prozesseffizienz verringert. Hingegen wird durch Erhöhung des Düsenovdrucks und der Eindüsungsrate die Effizienz erhöht.

Von Poon u. a. (2009) wird der Beschichtungsprozess für ein Semi-Batch Verfahren in einem Trommelgranulator beschrieben. In der Modellbeschreibung werden mit Hilfe eines dreidimensionalen Ansatzes auch Agglomeration und Keimbildung berücksichtigt. Als interne Koordinaten werden hier das Volumen des Feststoffes, der Flüssigkeit und des Gases in den Granulaten geführt. Auf diese Weise ist die Beobachtung und Beeinflussung der Granulatporosität möglich.

Eine Beschreibung des kontinuierlichen Prozesses wird von Heinrich u. a. (2002) für eine Wirbelschicht vorgestellt. In diesem Beitrag wird auch der Vergleich zu einem Semi-Batch-Prozess und einem Batchprozess vorgenommen. Die Modellierung erfolgt ebenso mit Populationsbilan-

zen, wobei die Partikelgröße als interne Koordinate geführt wird. Für alle drei Betriebsmodifikationen wird ein Ein-Zonen Modell verwendet, welches ein oberflächenproportionales Wachstum der Partikel ansetzt. Anhand der Beiträge zu den unterschiedlichen Betriebsmodifikationen lässt sich feststellen, dass eine makroskopische Beschreibung des Granulationsprozesses mit Populationsbilanzen möglich ist. Hingegen wird in der Literatur herausgestellt, dass nicht alle Partikelwachstumsprozesse ausreichend detailliert beschreibbar sind.

Am Beispiel des Agglomerationsprozesses werden von Peglow (2005) und Kumar (2006) Methoden entwickelt, welche auf einem Populationsbilanzansatz beruhen und dennoch einen empirischen Anteil in Form der Agglomerationskinetik beinhalten. Darüber hinaus hat Hampel (2010) herausgestellt, dass die alleinige Verwendung von Populationsbilanzmodellen für eine ganzheitliche Beschreibung des Agglomerationsprozesses ohne tieferes Prozessverständnis nicht ausreichend ist. Hier wird darauf verwiesen, dass eine Beschreibung von Mikroprozessen in Bezug auf die Agglomeration notwendig ist.

Eine Beschreibung von Mikroprozessen wird häufig mit stochastischen Methoden realisiert. Diese wurden für Agglomerationsprozesse von Terrazas-Velarde u. a. (2009), Terrazas-Velarde (2010), Dervedde u. a. (2012) und Dervedde (2013) erfolgreich eingesetzt. Der Vorteil von stochastischen Methoden wie beispielsweise der Monte-Carlo-Methode (siehe Metropolis und Ulam (1949)) liegt in der Möglichkeit, verschiedene mikrokinetische Prozesse physikalisch oder chemisch zu modellieren und diese dann für einen definierten Zeitabschnitt in den Gesamtprozess zu implementieren. Monte-Carlo Simulationen können in zwei Gruppen unterteilt werden: (1) Simulationen, welche zeitlich gesteuert sind ("time driven") und (2) Simulationen, die ereignisorientiert sind ("event driven"). Die Anwendbarkeit sowie die Vor- und Nachteile dieser Methoden stellt Dervedde (2013) heraus. Als nachteilig kann bei bekannten stochastischen Modellierungsmethoden der erhöhte rechentechnische Aufwand betrachtet werden. Dieser lässt sie – gemessen am heutigen Stand der Technik – nicht für Online-Prozesssteuerungen von Partikelbildungsprozessen im industriellen Maßstab anwenden.

Um Steuerungen für Partikelauflbauprozesse zu beschreiben, wurde deshalb in jüngerer Vergangenheit auf populationsdynamische Methoden zurückgegriffen, siehe z.B. Palis (2012) und Bück (2012). Darüber hinaus lassen sich in der Praxis auf der Basis von Populationsbilanzen ganze Anlagen- und Prozesssysteme beschreiben, die sowohl im diskontinuierlichen als auch kontinuierlichen Betriebsmodus arbeiten, vgl. z.B. Drechsler u. a. (2005). Um sich dennoch von der makroskopischen Ebene in Richtung einer detaillierteren Modellierungsebene mit höherem Prozessverständnis zu begeben, besteht die Möglichkeit, Compartment-Modelle (Zonenmodelle) anzuwenden.

In der Literatur werden bereits derartige Modelle vorgestellt, siehe beispielsweise Becher und Schlünder (1997), Becher und Schlünder (1998) oder Jimenez u. a. (2006). Diese Form der Modellierung zeichnet sich durch die Unterteilung des Prozessraums in verschiedene Zo-

nen aus. Der Hintergrund für die Unterteilung ist das Auftreten lokal unterschiedlicher Einzelprozesse wie beispielsweise Befeuchtung, Trocknung oder Abrieb. Diese Prozesse werden in den einzelnen Zonen (Prozessräumen) autark beschrieben. Ein geeigneter Ansatz hierfür sind Populationsbilanzen. Durch das Zusammenführen der Einzelprozesse ist wiederum eine ganzheitliche Beschreibung des Gesamtprozesses möglich. Im Allgemeinen werden zur übergreifenden Bilanzierung der Einzelmodelle die lokale Position, die Größe und Partikelaustauschraten zwischen den Zonen berücksichtigt. Apparative oder stoffliche Einflüsse können somit erfaßt werden.

Die einfachste Form von Zonenmodellen wird durch das Ein-Zonen Modell verkörpert, wobei keine Unterscheidung von Prozessräumen vorgenommen wird. Hier wird demzufolge über den Gesamtprozess bilanziert. Beispielhaft kann der Beitrag von Saleh u. a. (2003) genannt werden, welcher sich mit der diskontinuierlichen Granulation unter Berücksichtigung einer oberflächenproportionalen Wachstumskinetik beschäftigt, vgl. Tabelle 1.3.

Hingegen wird von Rieck u. a. (2014) ein Zwei-Zonen Modell genutzt, um einen diskontinuierlichen Wirbelschichtgranulationsprozess zu beschreiben. Hierbei werden Befeuchtungs- und Trocknungszone voneinander unterschieden. Die Modellierung erfolgt anhand von Populationsbilanzen mit der Partikelgröße als interne Koordinate. Mit Hilfe experimenteller Untersuchungen kann hier für das vorliegende System eine Abhängigkeit der Partikelporosität vom Trocknungspotential des Prozesses abgeleitet werden.

Eine weiterführende Studie wird von Maronga und Wnukowski (1997) präsentiert. In diesem Beitrag kommt zur Beschreibung eines diskontinuierlichen Coatingprozesses in einer Wirbelschicht ein Drei-Zonen Modell zum Einsatz. Es wird zwischen einer Trocknungszone, einer Befeuchtungszone und einer inaktiven Zone unterschieden. Die inaktive Zone übernimmt die Funktion eines Speichers. Die Größe der inaktiven Zone wird von der Anlagengeometrie abhängig gemacht. Maronga und Wnukowski (1997) untersuchen darüber hinaus die Austauschraten zwischen den Zonen. Hierbei wird festgestellt, dass eine Erhöhung der Austauschraten zwischen den Zonen zu Partikelgrößenverteilungen mit geringerer Varianz führen. Der Ansatz von gleich großen Austauschraten führt dagegen zu einer hohen Varianz der Verteilung.

Die in der Literatur vorhandenen Beiträge belegen, dass Compartmentmodelle sinnvoll sind, um apparative Einflüsse in Form verschiedener Prozesszonen voneinander zu trennen. Die in der Tabelle 1.3 aufgeführte Literatur belegt dieses für Wirbelschichtprozesse. Das für den Coatingprozess geeignete Wursterverfahren, welches als eine Abwandlung der klassischen Wirbelschicht betrachtet werden kann, weist aufgrund der gerichteten Feststoffumwälzung eine sehr klare Abgrenzung der Trocknungs- bzw. Beschichtungszone auf – weshalb für die Beschreibung dieses Prozesses die Arbeit mit Zonenmodellen sinnvoll ist. Eine praktische Anforderung besteht in der kontinuierlichen Fahrweise dieses Prozesses, um verschiedene Coa-

Tabelle 1.3: Inhaltliche Zusammenfassung von Literatur bezüglich Modellen auf der Basis von Populationsbilanzen zu Coating- und Granulationsprozessen.

Autor	Modellansatz	Validierung	Inhalt/Ergebnisse
Alavi u. a. (2007)	<p>Prozess:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Coating</li> <li>• diskontinuierlich</li> </ul> <p>PBM</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• 1D, partikelanzahl-proportionales Wachstum</li> <li>• Zwei-Zonen Modell</li> </ul>	<p>WSA:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Bottom Spray</li> </ul> <p>Startkerne:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• <math>\gamma</math>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></li> </ul> <p>Coatinglösung:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Carboxymethyl-cellulose</li> </ul> <p>Parametervariation:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Gasdurchsatz</li> <li>• Düsenvordruck</li> <li>• Eindüsenungsrate</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Agglomeratbildung und Bruch vernachlässigt</li> <li>• Porosität der gebildeten Schicht nicht berücksichtigt, als kompakt angenommen</li> <li>• geringerer Gasdurchsatz – geringere Effizienz des Prozesses</li> <li>• höherer Düsenvordruck – höhere Effizienz des Prozesses</li> <li>• höherer Eindüsenungsrate – höhere Effizienz des Prozesses aber schlechtere Qualität der Schicht</li> </ul>
Heinrich u. a. (2002)	<p>Prozess:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Coating</li> <li>• diskontinuierlich,</li> </ul> <p>Semi-Batch, kontinuierlich</p> <p>PBM</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• 1D, oberflächen-proportionales Wachstum</li> <li>• Ein-Zonen Modell</li> </ul>	<p>WSA:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Top Spray</li> </ul> <p>Startkerne:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Senfkörner</li> </ul> <p>Coatinglösung:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Kalk</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• nur Partikelwachstum angenommen</li> <li>• Änderung der Partikeldichte im Modell implementiert</li> <li>• Einfluss unterschiedlicher Betriebsparameter auf den Prozessverlauf</li> </ul>
Maronga und Wnukowski (1997)	<p>Prozess:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Coating</li> <li>• diskontinuierlich</li> </ul> <p>PBM</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• 1D, oberflächen-proportionales Wachstum</li> <li>• Drei-Zonen Modell</li> </ul>	<p>WSA:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Top Spray</li> </ul> <p>Startkerne:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Laktose</li> </ul> <p>Coatinglösung:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• HPMC</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Agglomeratbildung und Bruch nicht berücksichtigt</li> <li>• auf der Partikeloberfläche aufgetragene Schicht als kompakt angenommen</li> <li>• Erhöhung der Austauschrate zwischen den Zonen – schmalere Partikelgrößenverteilungen</li> <li>• alle Austauschrate gleich groß – die breiteste Partikelgrößenverteilung</li> <li>• Erhöhung der Austauschrate zwischen den Eindüsenungs- und Trocknungszone – schmalere Partikelgrößenverteilungen</li> </ul>

Autor	Modellansatz	Validierung	Inhalt/Ergebnisse
Poon u. a. (2009)	Prozess: <ul style="list-style-type: none"> <li>• Granulation</li> <li>• Semi-Batch</li> </ul> PBM <ul style="list-style-type: none"> <li>• 3D (Volumen des Gases, Feststoffes und der Flüssigkeit), oberflächenproportionales Wachstum</li> <li>• Ein-Zonen Modell</li> </ul>	Trommelgranulator: Startkerne: <ul style="list-style-type: none"> <li>• Kalzit</li> </ul> Coatinglösung: <ul style="list-style-type: none"> <li>• Polyvinylalkohol</li> </ul> Parametervariation: <ul style="list-style-type: none"> <li>• Partikelgrößen</li> </ul>	Inhalt/Ergebnisse <ul style="list-style-type: none"> <li>• Agglomeration und Keimbildung berücksichtigt</li> <li>• Partikelporosität gemessen mit Pycnometer und im Modell berechnet</li> <li>• vielversprechender Vergleich der experimentellen und simulierten Daten</li> </ul>
Rieck u. a. (2014)	Prozess: <ul style="list-style-type: none"> <li>• Granulation</li> <li>• diskontinuierlich</li> </ul> PBM + Wärmeübertragung <ul style="list-style-type: none"> <li>• 1D, oberflächenproportionales Wachstum</li> <li>• Zwei-Zonen Modell</li> </ul>	WSA: <ul style="list-style-type: none"> <li>• Top Spray</li> </ul> Startkerne: <ul style="list-style-type: none"> <li>• <math>\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3</math></li> <li>• Glaspartikel</li> </ul> Coatinglösung: <ul style="list-style-type: none"> <li>• Natriumbenzoat</li> </ul>	Inhalt/Ergebnisse <ul style="list-style-type: none"> <li>• Agglomeratbildung und Bruch nicht berücksichtigt</li> <li>• Implementierung einer Abhängigkeit der Partikelporosität vom Trocknungspotenzial des Prozesses</li> <li>• Partikelporosität für das Stoffsystem spezifisch</li> <li>• Übereinstimmung der experimentellen und modellierten Ergebnisse</li> </ul>
Saleh u. a. (2003)	Prozess: <ul style="list-style-type: none"> <li>• Granulation</li> <li>• diskontinuierlich</li> </ul> PBM <ul style="list-style-type: none"> <li>• 1D, oberflächenproportionales Wachstum</li> <li>• Ein-Zonen Modell</li> </ul>	WSA: <ul style="list-style-type: none"> <li>• Top Spray</li> </ul> Startkerne: <ul style="list-style-type: none"> <li>• Natriumchlorid</li> </ul> Coatinglösung: <ul style="list-style-type: none"> <li>• Natriumchlorid</li> </ul> Parametervariation: <ul style="list-style-type: none"> <li>• Partikelgröße</li> </ul>	Inhalt/Ergebnisse <ul style="list-style-type: none"> <li>• Porosität der gebildeten Schicht nicht berücksichtigt</li> <li>• höhere Partikelgröße – geringere Wachstumsgeschwindigkeit</li> <li>• Wachstum, Agglomeration und Bruch im Modell berücksichtigt</li> <li>• Partikelwachstum, Betriebseffizienz und Schichtqualität sinken mit Erhöhung der Granulatgröße</li> <li>• Agglomerationsrate bei der Granulation sinkt mit Erhöhung der Primärpartikelgröße</li> </ul>

tingschichten durch eine Kaskadierung von Wursterapparaten zu realisieren. Hieraus erwächst die Notwendigkeit, eine zonenbasierte Beschreibung für den kontinuierlichen Coatingprozess auf der Basis von Populationsbilanzen zu erarbeiten. Dieses Ziel soll seitens der Modellbeschreibung in der vorliegenden Arbeit verfolgt und somit der Stand des Wissens für das Prozessverständnis erweitert werden.

### 1.3 Ziele der Arbeit

Ziel der vorliegenden Arbeit ist die experimentelle und theoretische Untersuchung des Pelletcoatings in einem Wursterverfahren. Sowohl der diskontinuierliche als auch der kontinuierliche Prozess sollen in diesem Zuge auf der Basis von Populationsbilanzen modelliert werden. Darüber hinaus sind diverse phänomenologische Ergebnisse und Einflüsse, wie die Porosität der Coatingschicht, zu betrachten. Die Validierung der Modellierung soll anhand von experimentellen Daten erfolgen. Im Rahmen der experimentellen Untersuchungen wird eine validierungsfähige Versuchsanlage aufgebaut, die sowohl den kontinuierlichen als auch den diskontinuierlichen Betrieb realisieren kann.

Im Kapitel 2 der Arbeit werden zwei Modellierungsansätze zur partikulären Beschreibung des diskontinuierlichen bzw. kontinuierlichen Coatingprozesses im Wursterverfahren vorgestellt. Dies geschieht anhand eines eindimensionalen Populationsbilanzmodells mit der internen Koordinate Partikeldurchmesser. Kernstück der Modellierung ist die Unterteilung des Bilanzraums in zwei Zonen, in denen verschiedene Teilprozesse stattfinden. Darüber hinaus wird die Herleitung der verwendeten Wachstumskinetik dargestellt und in die Populationsbilanz implementiert. Für den kontinuierlichen Prozess wird die Separation in einem Klassierrohr beschrieben und in das Modell integriert. Zusätzlich wird die Berücksichtigung der Verweilzeit der Partikel im Apparat bzw. im Separator beleuchtet. Zur Lösung des Populationsbilanzsystems werden verschiedene Lösungsmethoden vorgeschlagen und angewendet.

Die Ergebnisse der Modellierung sowie die Variation der modellspezifischen Parameter stehen im Fokus von Kapitel 3 der Arbeit. Zunächst werden die Ergebnisse der Simulation aus der vorher erarbeiteten Modellierung vorgestellt. Hierbei erfolgt eine Variation wesentlicher Prozess- und Modellparameter, wie der Schichtporosität der Coatingschicht und des Volumenanteils der Modellzonen. Diese Simulationsuntersuchungen werden für beide Betriebsarten – kontinuierlich und diskontinuierlich – dokumentiert und diskutiert.

Kapitel 4 der vorliegenden Arbeit widmet sich dem experimentellen Aufbau, den Materialien und den Methoden. Hierzu wurde eine Versuchsanlage im technischen Maßstab für Kleinchargen modifiziert. Dies wurde so umgesetzt, dass sowohl im kontinuierlichen als auch im Batch-Betrieb eine Analyse der zu validierenden Prozessgrößen möglich ist. Der kontinuierliche Betrieb wurde mit Hilfe eines neuartigen Klassierapparates realisiert. Zusätzlich wird die

Regelung der Bettmasse zur Umsetzung eines stabilen Prozesses im Wursterapparat vorgestellt und dokumentiert. Die Anlagengestaltung ist so ausgeführt, dass eine Kaskadierung des vorliegenden Systems einen mehrstufigen Prozess ermöglichen würde. Neben der eingehenden Darstellung der Anlagentechnik wird in diesem Kapitel auch das Materialsystem, bestehend aus pharmatauglichen Pellets und einer Natriumbenzoatlösung, charakterisiert. Darüber hinaus werden die technischen Messmethoden, beispielsweise zur Analyse der Partikelgrößenverteilung, beschrieben.

Die Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen werden im Kapitel 5 geschildert. In diesem Rahmen werden die Entwicklung der Partikelgrößenverteilung im Bett und die Größe des Produkts beobachtet und analysiert. Dies wird für eine Variation der Gaseintrittstemperatur, des Fluidisierungsmassenstroms und des Eindüsungsmassenstroms der Sprühflüssigkeit dokumentiert.

Abschließend werden im Kapitel 6 die Simulationsergebnisse und die experimentellen Ergebnisse miteinander verglichen und ausgewertet. Dieser Abgleich wird sowohl auf Basis des diskontinuierlichen Coatingprozesses im Wursterverfahren wie auch des kontinuierlichen Prozesses durchgeführt. Mit Hilfe der experimentellen Daten können darüber hinaus die Modellparameter geprüft und optimiert werden.



# 2 Modellierung des Wirbelschicht-Coatingprozesses

## 2.1 Die allgemeine Populationsbilanz

Die dispersen Systeme sind Stoffgemische, die aus nicht oder kaum ineinander löslichen festen, flüssigen oder gasförmigen Phasen bestehen. Sie spielen eine wichtige Rolle in vielen verfahrenstechnischen Prozessen. Meist treten diese Systeme als Zweiphasensysteme auf, bei denen die disperse Phase (Partikel, Teilchen, Körner, Tröpfchen, Bläschen) in Form einer Population vorliegt. Diese steht im Wärme-, Stoff-, und Impulsaustausch mit der kontinuierlichen Phase. Der Begriff Population bedeutet eine Gesamtheit von Individuen, die durch dieselben Eigenschaftsmerkmale charakterisiert werden. Diese Eigenschaften können beispielsweise Partikelgröße, Partikelfeuchtebeladung oder Porosität sein. Die Eigenschaftskordinaten werden in interne und externe Koordinaten eingeteilt. Die externen Koordinaten werden zur Charakterisierung der räumlichen Verteilungen der Population angewendet. Die Eigenschaften der dispersen Phase, wie zum Beispiel das Volumen  $V$ , lassen sich mit Hilfe der internen Koordinaten beschreiben. Die Eigenschaftskordinaten werden als Verteilungsfunktionen definiert. Die meist verwendete Funktion ist hierbei die Anzahldichtefunktion, welche die Anzahl von Individuen in einem bestimmten Bereich der Eigenschaftskordinate wiedergibt.

Es wird angenommen, dass die Anzahldichtefunktion  $n$  die Zahl der Partikel beschreibt, die sich zu einem bestimmten Zeitpunkt in einem Teilvolumen des Zustandsraumes aufhalten. Der Zustandsraum wird durch die räumlichen Koordinaten  $\vec{r}$  und Eigenschaftskordinaten  $\vec{e}$  definiert. Damit ergibt sich die absolute Anzahl der Individuen  $N(t)$  aus der Integration der Anzahldichte über die Eigenschaftsräume  $\vec{r}$  und  $\vec{e}$

$$N(t) = \int_{\Omega_r} \int_{\Omega_e} n(\vec{r}, \vec{e}, t) dV_r dV_e \quad . \quad (2.1)$$

Somit ist die Anzahldichtefunktion lediglich eine Funktion des Eigenschaftsraumes und der Zeit

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

Die klassische Form der Bilanzgleichungen in der Verfahrenstechnik besitzt die folgende Struk-

tur:

$$\text{Akkumulation} = \text{Zufluss} - \text{Abfluss} + \text{Quelle} - \text{Senke} \quad . \quad (2.3)$$

Die Änderung der Partikelanzahl in einem Kontrollvolumen ist eine Folge von Zu- und Abflüssen über die Oberfläche des Kontrollvolumens und Entstehungs- oder Abbauprozessen innerhalb des Kontrollvolumens. Die Wortgleichung kann folglich umgesetzt werden:

$$\frac{dN}{dt} = \Phi_N(t) + P_N(t) \quad . \quad (2.4)$$

Der Akkumulationsterm  $dN(t)/dt$  beschreibt die zeitliche Änderung der Individuenanzahl innerhalb des Kontrollvolumens. Der Term  $\Phi_N(t)$  beschreibt den verallgemeinerten Transportterm und  $P_N(t)$  den verallgemeinerten Quell- oder Senkenterm. Um die Gleichung 2.4 umformen zu können, werden die Transportdichte  $\Phi_N(t)$  und die Quellendichte  $p_N(t)$  eingeführt,

$$\frac{d}{dt} \left[ \int_{V_r} \int_{V_e} n(r,e,t) drde \right] = - \int_{S_r} \int_{S_e} \phi_N((r,e,t), \omega) drde + \int_{V_r} \int_{V_e} p_N(r,e,t) drde \quad . \quad (2.5)$$

Die Größen  $S_r$  und  $S_e$  beschreiben die Oberfläche des Kontrollvolumens. Der Ausdruck  $\phi_N((t,r,e), \omega)$  ist der Anteil der Flussdichte  $\phi_N$ , der senkrecht durch die Oberfläche herein oder heraustritt. Das negative Vorzeichen ist eine Folge der Konvention. Der Einheitsnormalenvektor  $\omega$  ist immer an der Oberfläche angebracht und zeigt aus dem Volumen heraus. Damit können eintretende Flüsse positiv gewertet werden, obwohl sie entgegen der Normalen gerichtet sind. Aus diesem Grund ist die Vorzeichenkorrektur notwendig.

Die Gleichung 2.5 kann in Gleichung 2.6 überführt werden. Dabei lassen sich die Differentiation und Integration vertauschen, und das Oberflächeintegral wird mit dem Gaußschen Integralsatz behandelt. Es ergibt sich daraus:

$$\int_{V_r} \int_{V_e} \frac{\partial}{\partial t} n(r,e,t) drde = - \int_{V_r} \int_{V_e} \text{div} \phi_N(r,e,t) drde + \int_{V_r} \int_{V_e} p_N(r,e,t) drde \quad . \quad (2.6)$$

Gleichung 2.6 ist die integrale Formulierung der Populationsbilanz. Diese Formulierung kann wiederum in lokaler Formulierung ausgedrückt werden:

$$\frac{\partial}{\partial t} n(r,e,t) = -\text{div} \phi_N(r,e,t) + p_N(r,e,t) \quad . \quad (2.7)$$

Dies ist möglich, da die integrale Formulierung für alle beliebigen Kontrollvolumina gültig ist. Im Allgemeinen ist immer dann, wenn von einer Populationsbilanz gesprochen wird, die lokale Formulierung gemeint.

Im häufig angewendeten Spezialfall eines örtlich konzentrierten Systems mit nur einer Eigenschaftskordinaten reduziert sich die allgemeine Populationsbilanz auf

$$\frac{\partial}{\partial t} n(e,t) = -\frac{\partial}{\partial e} \phi_N(e,t) + p_N(e,t) \quad . \quad (2.8)$$

Die allgemeine Formulierung kann auf alle eigenschaftsverteilten Prozesse angewandt werden. Die charakteristischen Ausdrücke für die Fluss- und Produktionsdichten,  $\phi_N$  bzw.  $p_N$ , müssen ermittelt und in die Populationsbilanz eingesetzt werden.

Um die Eigenschaftsverteilung der dispersen Phase in der Populationsbilanz beschreiben zu können, wird in der Regel die Anzahldichteverteilung  $n(r,e,t)$  verwendet. Diese beschreibt die Anzahl der Partikel, die sich zu einem Zeitpunkt  $t$  innerhalb eines Teilvolumens des Zustandsraumes befinden. Der Zustandsraum wird dabei von den internen Koordinaten  $e$  (Eigenschaftskordinaten) und den externen Koordinaten  $r$  (räumliche Koordinaten) aufgespannt, siehe Gleichung 2.1. Um die Gesamtzahl aller Partikel  $N(t)$  zu erhalten, muss über das Volumen des Zustandsraumes integriert werden.

Um die Verteilungen von Systemen mit unterschiedlicher Größe miteinander vergleichen zu können, werden sie normiert dargestellt. Normiert wird dabei auf die Gesamtmenge des Systems. Für den Spezialfall eines örtlich konzentrierten Systems hängt die Anzahldichteverteilung nicht mehr von den örtlichen (externen) Koordinaten ab, sondern nur von den Eigenschaftskordinaten. Wählt man nur eine Eigenschaftskordinate, wie z.B. den Partikeldurchmesser  $d$ , so ergibt sich folgende normierte Anzahldichteverteilung  $q_0(t,d)$ :

$$q_0(t,d) = \frac{n(t,d)}{N_{\text{bed}}} = \frac{n(t,d)}{\int_0^{\infty} n(t,d) dd} \quad (2.9)$$

Häufig wird auch die normierte Massendichteverteilung  $q_3(t,d)$  verwendet. Sie wird nach folgender Gleichung berechnet:

$$q_3(t,d) = \frac{d^3 \cdot n(t,d)}{M_{\text{bed}}} = \frac{d^3 \cdot n(t,d)}{\int_0^{\infty} d^3 \cdot n(t,d) dd} \quad (2.10)$$

## 2.2 Herleitung der Wachstumskinetik

Ein populationsdynamisches Modell ermöglicht es, die zeitlich veränderlichen Partikelgrößenverteilungen sowohl im Apparat als auch im Produktmassenstrom zu berechnen.

Der Beschichtungs- oder Wachstumsvorgang beschreibt eine Änderung der Eigenschaften der dispersen Phase. Diese Änderung kann als eine Bewegung der Partikel entlang der internen oder externen Eigenschaftskordinaten mit einer bestimmten Geschwindigkeit  $G$  verstanden werden.

In der Literatur sind bereits Wachstumskinetiken für die Wirbelschicht-Sprühgranulation angegeben. Oft wird die Annahme getroffen, dass ein oberflächenproportionales Wachstum stattfindet. Das bedeutet, dass sich die Sprühtropfen proportional zur Partikeloberfläche in der

Wirbelschicht verteilen. Bei Heinrich u. a. (2002), Uhlemann und Mörl (2000) und Priese und Wolf (2013) ist für diese Annahme folgende Gleichung angegeben:

$$G = \frac{2 \cdot \dot{M}_{s,L}}{\rho_s \cdot A_{bed}} \quad (2.11)$$

Hier bedeuten  $A_{bed}$  die gesamte Oberfläche der Partikel in der Wirbelschicht,  $\dot{M}_{s,L}$  den eingedüsten Feststoffmassenstrom und  $\rho_s$  die Feststoffdichte. Die Gleichung 2.11 ist unter der Annahme gültig, dass die gebildete Hülle kompakt ist, also eine Porosität von  $\epsilon_{sh} = 0$  besitzt.

Im Gegensatz zu dieser Annahme ist die Coatingschicht meist nicht kompakt, sondern porös. Diese Tatsache lässt sich durch Einführung der scheinbaren Dichte  $\rho_{sh}$  berücksichtigen. Abbildung 2.1 illustriert schematisch den Aufbau eines Partikels aus Kern und Coatingschicht.

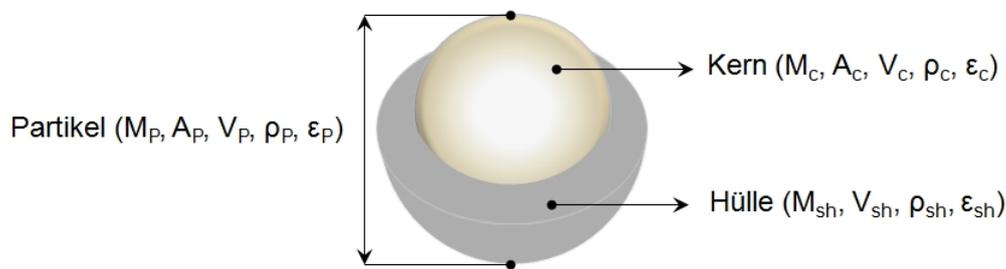


Abbildung 2.1: Aufteilung eines Granulates in Kern und Granulathülle.

Bei Wirbelschicht-Coatingprozessen und -granulationsprozessen werden Feststofflösungen versprüht, um die Partikel zu beschichten bzw. zu vergrößern. Die Wachstumsrate  $G$  der Partikel hängt direkt von der Eindüsungsrates der Feststofflösungen ab. Die Wachstumsrate kann proportional zur Oberfläche ( $i = 0$ ), Anzahl ( $i = 1$ ), Länge ( $i = 2$ ) oder zum Volumen ( $i = 3$ ) des Partikels oder zu einer Kombination dieser sein. Allgemein kann die Wachstumsrate mit folgender Gleichung beschrieben werden:

$$G = \sum_{i=0}^3 G_i \cdot \lambda_i, \quad \sum_{i=0}^3 \lambda_i = 1 \quad (2.12)$$

Zunächst wird oberflächenproportionales Wachstum vorausgesetzt, sodass sich die Massenbilanz eines Partikels wie folgt schreiben lässt:

$$\frac{dM_P}{dt} = \dot{M}_{s,L} \frac{A_P}{A_{bed}} \quad (2.13)$$

Hierbei sind  $M_P$  und  $A_P$  die Masse beziehungsweise die Oberfläche eines einzelnen Partikels. Die zeitliche Änderung der Partikelmasse lässt sich auch so ausdrücken:

$$\frac{dM_P}{dt} = \frac{dd}{dt} \cdot \frac{dM_P}{dd} \quad (2.14)$$

Nun muss eine mathematische Formulierung der Partikelmasse erfolgen. Es wird angenommen, dass die Masse des Partikels bzw. Granulats sich aus zwei Massen zusammensetzt: Zum einen aus der Masse des Partikels zum Zeitpunkt  $t = 0$  (Kern)  $M_c$  und zum anderen aus der Masse der bereits angewachsenen Feststoffschicht (Hülle)  $M_{sh}$ . Daraus folgt:

$$M_P(t) = M_c + M_{sh}(t) = V_c \cdot \rho_c + (V_P(t) - V_c) \cdot \rho_{sh} \quad . \quad (2.15)$$

Die Dichte der Granulathülle  $\rho_{sh}$  lässt sich mit Hilfe deren Porosität beschreiben. Es gilt:

$$\rho_{sh} = (1 - \varepsilon_{sh})\rho_s \quad . \quad (2.16)$$

Hierbei ist  $\rho_s$  die Dichte des Feststoffes in der Coatinglösung. Bei Coatingprozessen werden der Startkern und der Feststoff der Coatinglösung durch unterschiedliche Dichten charakterisiert. Einsetzen von Gleichung 2.16 in Gleichung 2.15 ergibt:

$$M_P(t) = M_c + M_{sh}(t) = V_c \cdot \rho_c + (V_P(t) - V_c) \cdot (1 - \varepsilon_{sh}) \cdot \rho_s \quad . \quad (2.17)$$

Mit dieser Gleichung kann Gleichung 2.14 ausgewertet werden. Unter Annahme kugelförmiger Partikel und einer vom Partikeldurchmesser unabhängigen, also konstanten Porosität  $\varepsilon_{sh}$ , folgt:

$$\frac{dM_P}{dt} = G \cdot \left( \frac{\pi \cdot d^2}{2} (1 - \varepsilon_{sh}) \cdot \rho_s \right) \quad . \quad (2.18)$$

Durch Gleichsetzen von Gleichungen 2.13 und 2.14 ergibt sich für die gesuchte Wachstumskinetik

$$G = \frac{2 \cdot \dot{M}_{s,L}}{\rho_s \cdot (1 - \varepsilon_{sh}) \cdot A_{bed}} \quad . \quad (2.19)$$

In der Literatur, z.B. bei Bück u. a. (2011), Bück (2012) und Hoffmann u. a. (2011), ist neben dem oberflächenproportionalen Wachstum der bereits erwähnte allgemeinere Ansatz zu finden. Dabei wird davon ausgegangen, dass sich die eingedünte Feststoffmasse proportional zu einem beliebigen Moment der Größenverteilung der dispersen Phase verteilt. Dennoch kann Gleichung 2.11 wie folgt umgeschrieben werden:

$$G_i = \frac{2 \cdot \dot{M}_{s,L} \cdot d^{i-2}}{\rho_s \cdot (1 - \varepsilon_{sh}) \cdot \pi \cdot \mu_i} \quad . \quad (2.20)$$

## 2.3 Modellierung des diskontinuierlichen Prozesses

Im Abschnitt 2.1 wurde mit Gleichung 2.8 eine allgemeine Form der Populationsbilanz für ein örtlich konzentriertes System hergeleitet. Um nun daraus eine Populationsbilanz für einen Wachstumsprozess zu entwickeln, müssen sowohl die Transportdichte  $\phi_N$ , als auch die Quelledichte  $\rho_N$  mathematisch beschrieben werden.

In einem Wachstumsprozess kann die Größe der betrachteten Partikel positiv aber auch negativ geändert werden. Als interne Koordinate eignen sich der Durchmesser oder das Volumen der Partikel. In dieser Arbeit wurde der Partikeldurchmesser  $d$  als Eigenschaftskoordinate gewählt.

Das Wachstum der Partikel wird als konvektiver Transport entlang der Eigenschaftskoordinate interpretiert. Die Partikel wachsen mit einer Geschwindigkeit  $G$ . Die Transportdichte  $\phi_N$  des Prozesses kann daher folgendermaßen ausgedrückt werden:

$$\phi_N = G \cdot n \quad . \quad (2.21)$$

Die Keimbildung lässt sich über die Quelldichte  $p_N$  beschreiben. Daraus folgt für einen Coatingprozess die Quelldichte:

$$p_N = 0 \quad . \quad (2.22)$$

Mit Hilfe dieser Beziehungen ergibt sich aus Gleichung 2.8 die Differentialgleichung zur Beschreibung des Partikelwachstums für den diskontinuierlichen Coatingprozess:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = - \frac{\partial (G \cdot n)}{\partial d} \quad . \quad (2.23)$$

### 2.3.1 Das Zwei-Zonen Modell

Aus populationsdynamischer Sicht charakteristisch für den diskontinuierlichen Prozess ist eine konstante Partikelanzahl, da keine Zufuhr von Keimen und kein Austrag von Partikeln stattfindet. Die Partikel werden mit einer Feststofflösung bedüst. Dabei findet ein Partikelwachstum statt.

Ein weiterer Schritt der Modellierung ist die Unterteilung des Bilanzraumes in zwei Zonen, wie bei Hoffmann u. a. (2011) beschrieben ist. Der Bilanzraum teilt sich dadurch in eine Sprühzone, Zone 1, und in eine Trocknungszone, Zone 2, auf. Darin steht  $\alpha$  für den Massenanteil der Partikel in der Sprühzone und  $1 - \alpha$  entsprechend für den Massenanteil der Partikel in der Trocknungszone, siehe Abbildung 2.2. Der Anteil der Sprühzone  $\alpha$  an der gesamten Wirbelschicht ist frei wählbar.

Für die Modellierung des diskontinuierlichen Coatingprozesses werden folgende Annahmen getroffen:

- Die gesamte eingedüste Flüssigkeit wird nur auf die Partikeloberfläche abgeschieden. Es wird kein Overspray berücksichtigt.
- Die Partikel besitzen eine ideale Kugelform.
- Alle Partikel haben die gleichen Stoff- und Partikeleigenschaften (Porenstruktur und Materialzusammensetzung) beim Zeitpunkt  $t = t_0$ .

- Die Agglomeration, der Bruch von Partikeln und Keimbildung werden vernachlässigt.
- Unterteilung des Granulatorraums in zwei Zonen – Eindüsen- und Trocknungszone, die sich permanent im Partikelaustausch befinden.
- Die Partikelanzahl in den beiden Zonen bleibt konstant im Prozess.
- Die Ortsabhängigkeit der Porosität des Bettes im Wirbelschichtapparat und die damit verbundene Ungleichverteilung der Strömung soll nicht betrachtet werden.

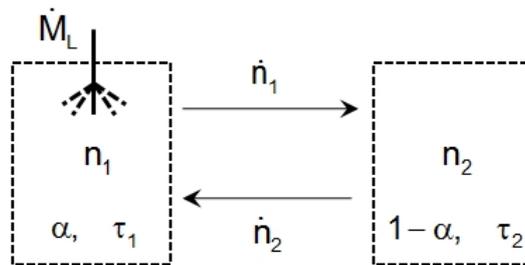


Abbildung 2.2: Bilanzschema für den diskontinuierlichen Coatingprozess.

Die Sprühzone umfasst den Raum, welcher von dem Steigrohr umschlossen wird. In dieser Zone findet das Partikelwachstum statt, d.h. die Pellets werden von der Düse besprüht und beschichtet. Der restliche Raum des Granulators gehört zu der Trocknungszone. In dieser Zone werden die Partikel nur durchgemischt und getrocknet, Li u. a. (2011). Aufgrund zirkulierender Partikelbewegung werden permanent Partikel zwischen beiden Zonen ausgetauscht. Die Austauschraten werden mit Hilfe der charakteristischen Verweilzeit  $\tau_i$  in jeder Zone definiert und beziehen sich auf die Anteile der beiden Zonen:

$$\dot{n}_i = \frac{n_i}{\tau_i} \quad (2.24)$$

Die Parameter  $\alpha$ ,  $\tau_1$  und  $\tau_2$  können dabei nach den von Börner (2013) angegebenen Korrelationen abgeschätzt werden. Da

- die beiden Zonen in einem permanenten Austauschkontakt stehen,
- die Anteile an Partikeln in den Zonen sich nicht ändern, und
- das Volumen der beiden Zonen konstant bleibt,

lässt sich  $\tau_2$  bei bekanntem  $\tau_1$  mit Hilfe der folgenden Gleichung ermitteln:

$$\frac{\tau_1}{\tau_2} = \frac{\alpha}{1-\alpha} \quad (2.25)$$

Die Größen  $n_1$  und  $n_2$  bezeichnen die Anzahldichteverteilungen in der Eindüsen- und Trocknungszone. Die Anzahldichteverteilung des Prozesses lässt sich mit:

$$n(t,d) = n_1(t,d) + n_2(t,d) \quad (2.26)$$

ermitteln. Es entsteht ein Differentialgleichungssystem, welches jeweils eine Gleichung für jede der beiden Granulatorzonen beinhaltet:

$$\frac{\partial n_1}{\partial t} = \frac{\partial(G \cdot n_1)}{\partial d} - \frac{n_1}{\tau_1} + \frac{n_2}{\tau_2}, \quad (2.27)$$

$$\frac{\partial n_2}{\partial t} = \frac{n_1}{\tau_1} - \frac{n_2}{\tau_2}. \quad (2.28)$$

### 2.3.2 Simulationsergebnisse

In diesem Abschnitt wird eine Beispielsimulation für den diskontinuierlichen Prozess dargestellt und näher untersucht. Bei den Berechnungen wird davon ausgegangen, dass kein Abrieb und Overspray entsteht. Damit wird die Eigenkeimentstehung ausgeschlossen. Da kein overspray anfällt, wird auch vorausgesetzt, dass der gesamte eingedüste Feststoff auf die im Apparat befindlichen Partikel aufgetragen wird.

Die Beispielsimulation für den diskontinuierlichen Coatingprozess mit einer Prozessdauer von 5 Stunden ist in der Abbildung 2.3 präsentiert. Für die Simulation wird die aufgetragene Coatingschicht als kompakt angenommen. Die verwendeten Simulationsparameter sind in Tabelle 2.1 aufgeführt.

Tabelle 2.1: Simulationsparameter für den diskontinuierlichen Prozess.

Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Anfangsgröße Partikel	$d_c$	0.34	mm
Varianz Kernpartikel	$\sigma^2$	0.04	mm <sup>2</sup>
Anfangsbettmasse	$M_{bed}$	1	kg
Eindüsungsrate Coatinglösung	$\dot{M}_L$	0.98	kg/h
Feststoffanteil Coatinglösung	$c$	30	Ma %
Dichte Feststoff	$\rho_s$	1450	kg/m <sup>3</sup>
Dichte Kernmaterial	$\rho_c$	1380	kg/m <sup>3</sup>
Porosität der Schicht	$\epsilon_{sh}$	0	-
Volumenanteil der Sprühzone	$\alpha$	0.1	-
Verweilzeit in der Sprühzone	$\tau_1$	0.1	s

Aufgrund des Einsprühens der Coatinglösung auf die Bettmasse steigt der Sauter-Durchmesser (Anhang B) der Partikel in der Schicht kontinuierlich mit der Zeit. Der Verlauf des Partikeldurchmessers weist einen mit der Zeit abnehmenden Anstieg auf, Abbildung 2.3(a). Die

Bettmasse in der Schicht steigt linear mit der Zeit und deren Zunahme entspricht der Menge an egedüstem Feststoff in die Wirbelschicht, Abbildung 2.3(b).

Da das Modell auf der Basis eines oberflächenproportionalen Wachstums (Gleichung 2.19) entwickelt ist, nimmt die Wachstumsgeschwindigkeit mit der Zeit ab und die Bettoberfläche nimmt zu, siehe Abbildungen 2.3(c) und 2.3(d). Bei dem angenommenen Wachstum erfolgt eine Verschiebung zu einem größeren Partikeldurchmesser. Dabei ändern sich die Form der Partikelgrößenverteilungen und deren Varianz jedoch kaum mit der Zeit (Hoffmann u. a. (2011)). Dies wird in der Abbildungen 2.3(e) und 2.3(f) veranschaulicht.

Ein direkter Vergleich des Modells mit experimentellen Daten ist im Abschnitt 6.2.1 dargestellt.

## 2.4 Modellierung des kontinuierlichen Prozesses

In Rahmen dieser Arbeit soll auch für die kontinuierliche Fahrweise des Wirbelschicht-Coatingprozesses eine Populationsbilanz aufgestellt werden. Der Unterschied zum diskontinuierlichen Prozess besteht in kontinuierlich entnommenen und zurückgeführten Partikeln. Ein weiterer wesentlicher Bestandteil des Modells ist die Klassierung der Partikel. Der entsprechende Bilanzraum beschreibt die Austragsmikroprozesse der Klassierung durch die Berücksichtigung der Partikeleigenschaften (Sinkgeschwindigkeit, Durchmesser o.ä.).

Im Modell für den kontinuierlichen Prozess werden zusammen mit den im Abschnitt 2.3 getroffenen Annahmen noch weitere zwei Annahmen berücksichtigt. Diese sind:

- Die kontinuierlich zugeführten Keime haben die gleiche Partikelgrößenverteilung wie die Partikel in der Anfangsbettmasse und
- die Bilanzierung um das Klassierrohr wird quasistationär betrachtet.

Zur Berechnung des kontinuierlichen Coatingprozesses wird das von Heinrich u. a. (2002) dargestellte Modell verwendet. Eine schematische Darstellung wird in der Abbildung 2.4 präsentiert. Der Anzahldichtestrom der permanent zugeführten Keime  $\dot{n}_{\text{nuc}}$  wird nach den Massenanteilen der Eindüsung- und Trocknungszone in  $\dot{n}_{\text{nuc},1}$  und  $\dot{n}_{\text{nuc},2}$  eingeteilt, wobei folgende Gleichung gilt:

$$\dot{n}_{\text{nuc}} = \dot{n}_{\text{nuc},1} + \dot{n}_{\text{nuc},2} = \dot{n}_{\text{nuc}} \cdot \alpha + \dot{n}_{\text{nuc}} \cdot (1 - \alpha) \quad . \quad (2.29)$$

Der Anzahldichtestrom, der auf das Klassierrohr trifft, wird wie folgt mathematisch ermittelt:

$$\dot{n}_{\text{tube}} = \frac{n}{\tau_3} \quad . \quad (2.30)$$

Der Klassiervorgang wird mit einer Trennfunktion  $T$  beschrieben, siehe Abschnitt 2.4.1. Die Trennkorngröße gibt die Partikelgröße wieder, deren stationäre Sinkgeschwindigkeit der Luft-

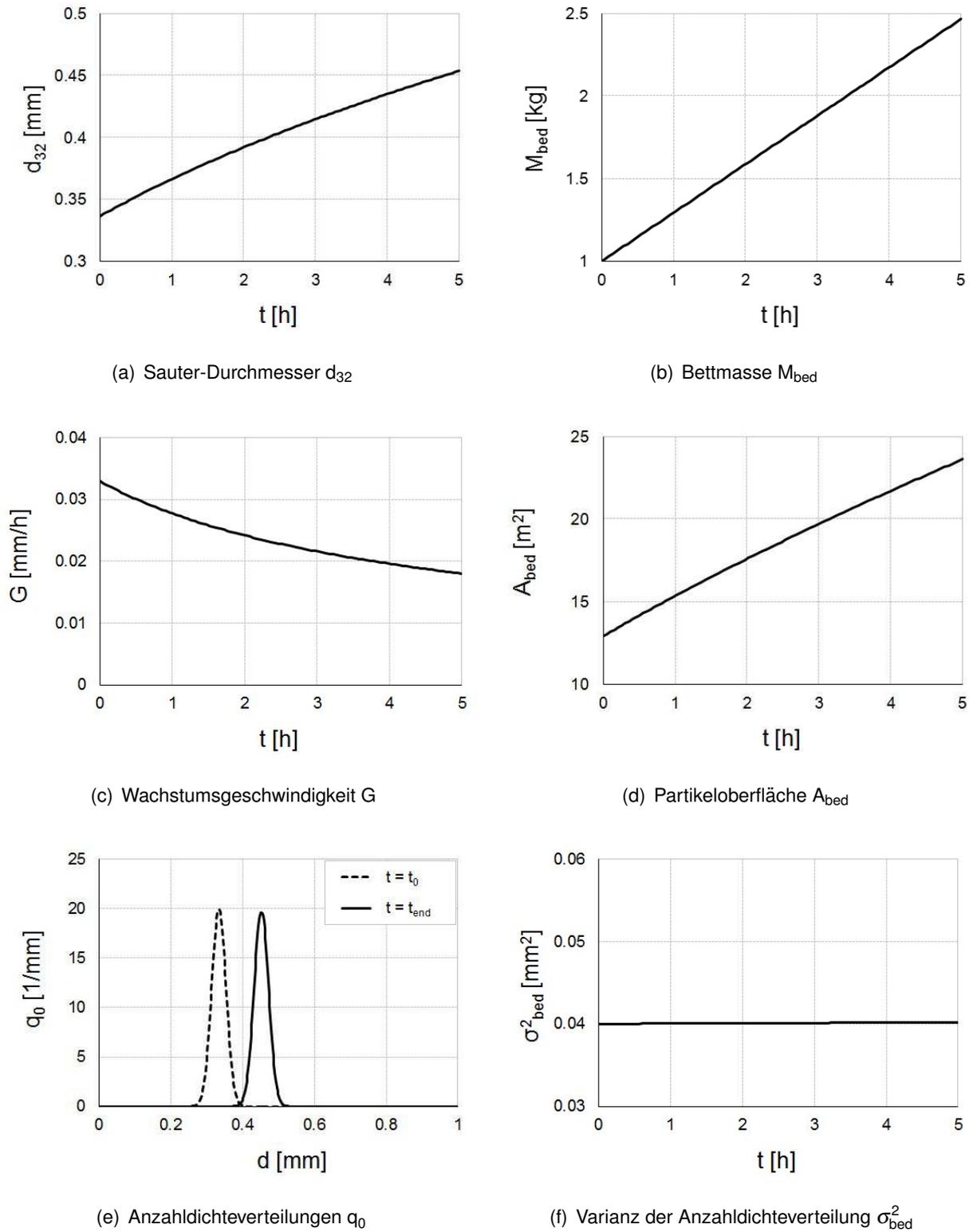


Abbildung 2.3: Ergebnisse einer Beispielsimulation für den diskontinuierlichen Coatingprozess.

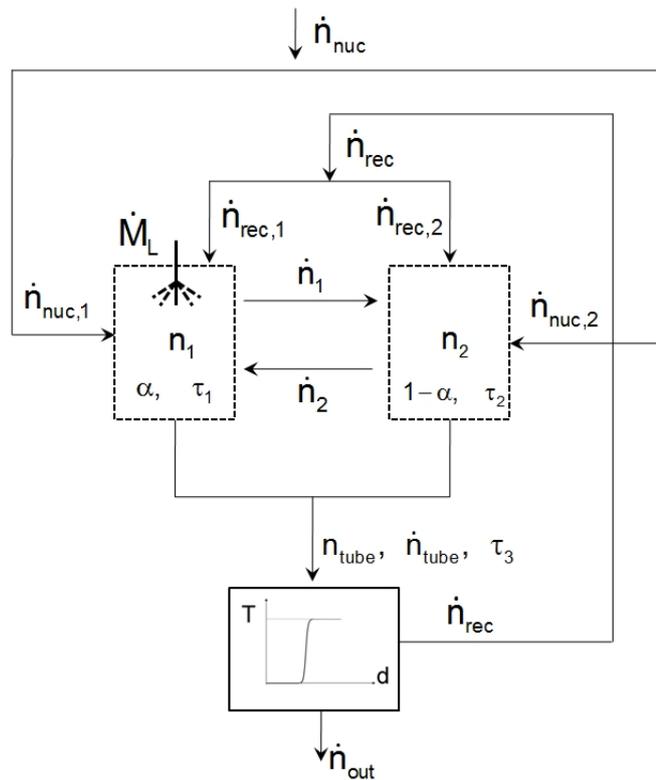


Abbildung 2.4: Bilanzschema für den kontinuierlichen Coatingprozess.

geschwindigkeit im Klassierrohr entspricht. Für den Anzahldichtestrom der ausgetragenen Partikel ergibt sich somit allgemein:

$$\dot{n}_{\text{out}} = \frac{n \cdot T}{\tau_3} = \dot{n}_{\text{tube}} \cdot T \quad (2.31)$$

Hierbei ist  $\tau_3$  die Verweilzeit bis zum Erreichen der Klassiervorrichtung. In der Literatur existieren zwei Vorstellungen zur Ermittlung dieses Modellparameters. Die beiden Lösungen sind im Abschnitt 2.4.2 detailliert dargestellt.

Der Anzahldichtestrom der Partikel, die den Prozess nicht als Produkt verlassen sondern zurück zum Wachstumsvorgang kehren,  $\dot{n}_{\text{rec}}$ , lässt sich zu

$$\dot{n}_{\text{rec}} = \dot{n}_{\text{tube}} - \dot{n}_{\text{out}} \quad (2.32)$$

ermitteln und wird analog zum Anzahldichtestrom der zugefügten Keime (siehe Gleichung 2.29) zwischen der Eindüsung- und Trocknungszone des Modells auf der Basis der Anteile der beiden Zonen geteilt.

Die Gleichungen 2.27 und 2.28, die für den diskontinuierlichen Prozess aufgestellt wurden, können übernommen werden, wenn sie um Partikelaustrag und -rückführung ergänzt werden. Damit werden folgende Populationsbilanzen mit einem oberflächenproportionalen Wachstum

definiert:

$$\frac{\partial n_1}{\partial t} = -G \cdot \frac{\partial n_1}{\partial d} - \frac{n_1}{\tau_1} + \frac{n_2}{\tau_2} - \frac{n_1}{\tau_3} \cdot T + \dot{n}_{\text{nuc},1} \quad , \quad (2.33)$$

$$\frac{\partial n_2}{\partial t} = \frac{n_1}{\tau_1} - \frac{n_2}{\tau_2} - \frac{n_2}{\tau_3} \cdot T + \dot{n}_{\text{nuc},2} \quad . \quad (2.34)$$

Durch die Regelung der Geschwindigkeit im Klassierrohr lässt sich die Bettmasse konstant halten. Diese Abhängigkeit wird mit der Hilfe folgender Gleichung für einen Proportional-Regler berechnet:

$$u = K_R (M_{\text{bed,set}} - M_{\text{bed,act}}) \quad . \quad (2.35)$$

In dieser Gleichung ist  $K_R$  eine reglerspezifische Konstante. Jede Änderung der Abweichung ( $M_{\text{bed,set}} - M_{\text{bed,act}}$ ) bewirkt eine sofortige proportionale Änderung der Stellgröße-Klassierluftgeschwindigkeit  $u$ .

### 2.4.1 Der Separationsprozess

Die Modellierung des Trennprozesses besteht darin, dass die Anzahldichte der Partikel in der Schicht unter Anwendung einer Trennfunktion nach Partikelgröße separiert wird.

Der im Rahmen dieser Arbeit untersuchte Separationsprozess erfolgt bei einem kontinuierlichen Coatingprozess mit Hilfe einer internen Klassiereinrichtung. Seitlich des Wirbelschichtapparates befindet sich das Klassierrohr. Im Rohr werden die Partikel in einen Klassierluftstrom gebracht. Wird ein Partikel einer Umströmung ausgesetzt, so stellt sich ein Gleichgewicht aus Gewichtskraft  $F_G$ , Widerstandskraft  $F_W$ , Auftriebskraft  $F_A$  und der Beschleunigungskraft  $F_B$  ein,

$$F_G + F_W + F_A + F_B = 0 \quad . \quad (2.36)$$

Entfällt die Beschleunigungskraft ( $F_B = 0$ ), so wird sich das Partikel mit der stationären Sinkgeschwindigkeit  $u_{\text{sink}}(d_P, \rho_P)$  im Strömungsfeld bewegen, die sich wie folgt ermitteln lässt:

$$u_{\text{sink}}(d_P, \rho_P) = \sqrt{\frac{4}{3} \frac{(\rho_P - \rho_g) g \cdot d_P}{\rho_P \xi(\text{Re})}} \quad . \quad (2.37)$$

Für unterschiedliche Partikeldurchmesser und Partikeldichten werden sich unterschiedliche stationäre Sinkgeschwindigkeiten einstellen, so dass es zu einem Klassiereffekt kommt, siehe Abbildung 2.5. Zur Berechnung der Partikeldichte  $\rho_P$  werden folgende Gleichungen verwendet:

$$\rho_P = \psi_{\text{sh}} \cdot \rho_{\text{sh}} + \psi_{\text{c}} \cdot \rho_{\text{c}}, \quad (2.38)$$

$$\psi_{\text{sh}} = \frac{V_P - V_{\text{c}}}{V_P} \quad (2.39)$$

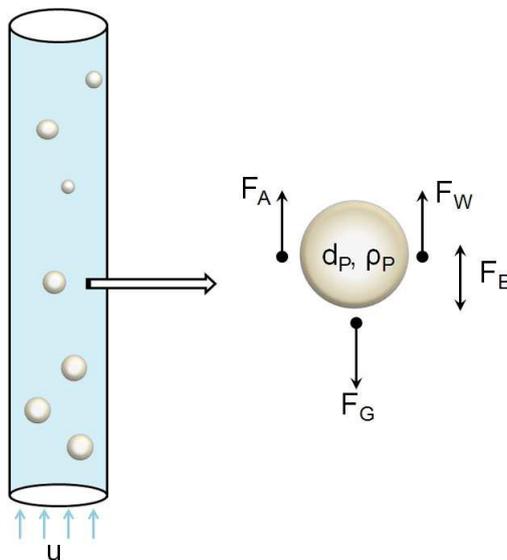


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung des Separationsprozesses bei einer Gasgeschwindigkeit  $u$ .

$$\psi_c = \frac{V_c}{V_P} \quad . \quad (2.40)$$

Die Größen  $\psi_{sh}$  und  $\psi_c$  sind Volumenanteile entsprechend der Hülle und dem Startkern;  $\rho_c$  kennzeichnet die Dichte des Kernmaterials.

In der Literatur existieren unterschiedliche Modellvorstellungen für den Separationsprozess. Die Gleichungen, die am meisten Anwendung finden, sind in den Publikationen von Lynch und Rao (1965), Molerus und Hoffmann (1969) und Plitt (1971) angegeben.

Im Idealfall verlassen alle Partikel, deren stationäre Sinkgeschwindigkeit höher ist als die Strömungsgeschwindigkeit im Klassierrohr die Anlage, während alle kleineren Partikel zurückgeführt werden.

Für eine ideale Separation entspricht die Trennfunktion daher einer Treppenfunktion. Bei einem industriellen Prozess beschreibt die Trennfunktion jedoch eher eine S-förmige Kurve, welche in Abbildung 2.6 veranschaulicht wird. Die graue Fläche kennzeichnet die Abweichung der realen von der theoretischen Trennfunktion. Je größer diese Abweichung ist, desto geringer ist die Effektivität des Trennprozesses. Hierbei ist  $d_{cr}$  der Trennschnittdurchmesser. Um die Effektivität eines Trennvorganges zu beurteilen, wird die Trennschärfe des Prozesses ermittelt. Als Trennschärfe wird im Allgemeinen das Verhältnis der Trennmerkmale, die zu 25% und 75% im Produkt enthalten sind, definiert. Für eine reelle Klassierung wird die Trennschärfe  $\kappa$  daher wie folgt definiert:

$$\kappa = \frac{d_{25}}{d_{75}} \quad . \quad (2.41)$$

Je kleiner der Wert von  $\kappa$  ist, umso schlechter ist die Trennschärfe bzw. der Separationspro-

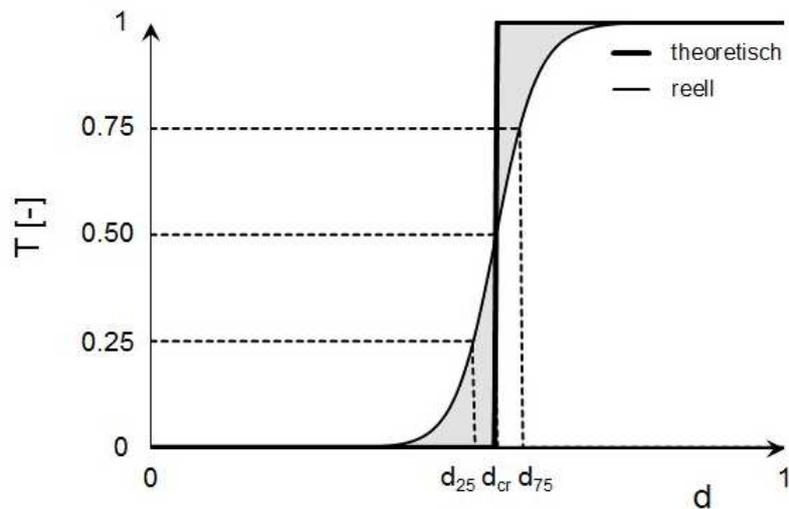


Abbildung 2.6: Vergleich theoretischer und reeller Trennfunktion T nach Edler (Stiess (2009)).

zess. Anhand der Trennschärfe kann die Qualität der Trennfunktion beurteilt werden. In der Literatur (Stiess (2009)) gelten folgender Bereiche für die Qualität eines Separationprozesses:

$$\begin{aligned}
 0.3 < \kappa < 0.6 & \text{ befriedigend} \\
 0.6 < \kappa < 0.8 & \text{ gut} \\
 0.8 < \kappa & \text{ sehr gut}
 \end{aligned}
 \tag{2.42}$$

Bei einem idealen Trennprozess werden alle Partikel mit  $d < d_{cr}$  in das Feinprodukt und alle Partikel mit  $d > d_{cr}$  in das Grobprodukt eingeteilt. Für eine hypothetische ideale Trennung ist daher  $d_{25} = d_{75} = d_{cr}$  und die Trennschärfe beträgt  $\kappa = 1$ .

Um den Partikelaustrag in Abhängigkeit von den Partikeleigenschaften zu beschreiben, wird in dieser Arbeit das Modell von Molerus verwendet (Molerus (1967), und Molerus und Hoffmann (1969)). Die nachstehende Modellgleichung beschreibt eine unscharfe Klassierung:

$$T(d_P, \rho_P) = \frac{1}{1 + \left( \frac{u}{u_{\text{sink}}(d_P, \rho_P)} \right) \exp \left[ - \frac{(u_{\text{sink}}(d_P, \rho_P) - u) L_{\text{tube}}}{D} \right]}
 \tag{2.43}$$

Durch die Einstellung der Geschwindigkeit der Klassierluft  $u$  wird der gewünschte Trennkorn-durchmesser eingesetzt. Einfluss auf die Trennschärfe der Separation haben der axiale Dispersionskoeffizient  $D$  und die Länge des Abzugsrohres  $L_{\text{tube}}$ . Der theoretische Einfluss der Länge des Klassierrohres in einem kontinuierlichen Coatingprozess wird im Abschnitt 3.2.3.3 untersucht.

Das Sichtungsmodell von Molerus wurde für den Bereich der Stokes-Umströmung validiert. Trennprozesse können aber auch im Übergangs- und Newton-Bereich stattfinden. Deshalb muss der Widerstandsbeiwert für jeden Partikeldurchmesser entsprechend den auftretenden Strömungsbedingungen ermittelt werden. Für den Stokes-Bereich wird der  $\xi$ -Wert nach Stiess

(2009) bestimmt:

$$\xi(\text{Re}) = \frac{24}{\text{Re}}, \quad \text{Re} < 0.1 \quad . \quad (2.44)$$

Der Übergangsbereich wird nach einer Näherungsgleichung aus Kürten u. a. (1966) beschrieben:

$$\xi(\text{Re}) = \frac{21}{\text{Re}} + \frac{6}{\sqrt{\text{Re}}} + 28, \quad 0.1 < \text{Re} < 4000 \quad . \quad (2.45)$$

Ein konstanter Widerstandsbeiwert von 0.44 wird bei einer Klassierung im Newton-Bereich angenommen:

$$\xi = 0.44, \quad \text{Re} > 4000 \quad . \quad (2.46)$$

Mit Hilfe der Gleichungen 2.37, 2.44, 2.45 und 2.46 wird so die entsprechende Sinkgeschwindigkeit für jede Partikelklasse ermittelt. Damit kann der Klassierprozess nach Gleichung 2.43 für die gesamte Schicht beschrieben werden. Für diese Betrachtung wird zusätzlich angenommen, dass im homogenen Turbulenzfeld des Klassierraums der turbulente Diffusionskoeffizient dem axialen Partikeldiffusionskoeffizienten  $D$  entspricht (Tomas und Gröger (2000)). Der axiale Dispersionskoeffizient lässt sich mit Hilfe von einer Turbulenzkonstante  $k_t$ , der Strömungsgeschwindigkeit  $u$  und dem Durchmesser des Strömungskanals  $d_{\text{tube}}$  ermitteln:

$$D = k_t \cdot u \cdot d_{\text{tube}} \quad . \quad (2.47)$$

Die Turbulenzkonstante stellt eine apparatespezifische Größe dar. Sie wird für den speziellen Anwendungsfall durch Experimente angepasst. Der Einfluss dieses Parameters auf den Prozess, hinsichtlich der Partikelgrößenverteilungen in der Schicht und beim Produkt ist im Abschnitt 3.2.3.1 dargestellt. Zur Beschreibung der experimentellen Daten wurde ein Wert von  $k_t = 2$  eingesetzt, siehe Abschnitt 6.2.2.

Die Modellierung eines Klassiervorgangs ist in Heinrich u. a. (2003) analysiert. Dabei sind die Kurven von Trennfunktionen bei verschiedenen Abzugsluftmassenströmen dargestellt. Bei gleichen Prozess- und Produktparametern verschiebt sich die Trennfunktion mit steigender Klassierluftgeschwindigkeit zu größeren Durchmessern. Damit ändert sich die Form der Kurve der Trennfunktion. Es lässt sich erkennen, dass mit steigender Abzugsluftgeschwindigkeit die Trennschärfe und dadurch die Effektivität des Separationsprozesses geringer wird.

## 2.4.2 Das Verweilzeitmodell

Ein frei wählbarer Modellparameter ist die Verweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr  $\tau_3$ . Partikel, deren Sinkgeschwindigkeit größer als die Luftgeschwindigkeit im Klassierrohr ist, werden ausgetragen. Die anderen Partikel werden mit der Klassierluft zurück in die Wirbelschicht geführt.

In der Literatur existieren zwei Möglichkeiten zur Ermittlung dieses Parameters:

- Ermittlung der Trefferwahrscheinlichkeit auf das Klassierrohr nach Heinrich u. a. (2003) und
- Strömungstechnische Ermittlung nach Burgschweiger und Tsotsas (2002).

In den nächsten Abschnitten werden die beiden Modellvorstellungen präsentiert.

Eine andere Möglichkeit zur Quantifizierung der Verweilzeit ist die experimentelle Ermittlung an der vorhandenen Wirbelschichtanlage. Dies wird im Abschnitt 4.2.1 dargestellt.

### 2.4.2.1 Trefferwahrscheinlichkeit auf das Klassierrohr

Heinrich u. a. (2003) betrachten eine herkömmliche Wirbelschicht mit einem im Boden dieser Wirbelschicht platzierten Abzugsrohr. Hinsichtlich der Wahrscheinlichkeit des Treffens eines Partikels auf die Öffnung des Abzugrohres stellen sie allgemein fest:

$$\begin{aligned} P(\text{kein Treffer}) + P(\text{mindestens ein Treffer}) &= 1, \\ P(0) + P(\geq 1) &= 1 \quad . \end{aligned} \quad (2.48)$$

Mit dem Öffnungsverhältnis aus Abzugsrohrdurchmesser zu Apparatedurchmesser

$$\eta = \frac{A_{\text{tube}}}{A_{\text{App}}} = \frac{d_{\text{tube}}^2}{d_{\text{App}}^2} \quad (2.49)$$

wird für einen einmaligen Partikelumlauf ( $b = 1$ ) die Trefferwahrscheinlichkeit bestimmt

$$P(b = 1) = \eta \quad . \quad (2.50)$$

So kann mit Hilfe des Binomialkoeffizienten die Wahrscheinlichkeit für das Treffen des Abzugsrohres bei  $b$  Umläufen ermittelt werden

$$P(\geq 1) = 1 - \binom{b}{0} \eta^0 (1 - \eta)^{b-0} \quad . \quad (2.51)$$

Um die Anzahl der Umläufe in einem Zeitintervall zu bestimmen, wird zuerst die Umlaufzeit der Partikel in der Wirbelschicht definiert. Mit der mittleren Geschwindigkeit der Partikel  $\bar{u}_p$  lässt sich einfach die Umlaufzeit der Partikel bei vorgegebenem Apparatedurchmesser und Schichthöhe abschätzen (Mörl (1981)),

$$t_U = \frac{2 \cdot H_{\text{bed}} + d_{\text{App}}}{\bar{u}_p} \quad . \quad (2.52)$$

Nach Uhlemann (1990) beträgt die Umlaufzeit oder auch Zirkulationszeit für Schichthöhen von einem Meter etwa 1 bis 2 Sekunden. Die Anzahl der Umläufe  $b$  wird durch den Beobachtungszeitraum  $\Delta t$  und die Umlaufzeit  $t_U$  definiert,

$$b = \frac{\Delta t}{t_U} \quad . \quad (2.53)$$

Durch Vereinfachung der Gleichung 2.51 und Einsetzen der Gleichung 2.53 lässt sich die Trefferwahrscheinlichkeit eines Partikels auf das Klassierrohr im Beobachtungszeitraum  $\Delta t$  wie folgt ermitteln:

$$P(\geq 1) = 1 - (1 - \eta)^{\frac{\Delta t}{\tau_U}} \quad . \quad (2.54)$$

Die Wahrscheinlichkeit eines Treffers auf die Klassiereinrichtung nimmt mit steigendem Beobachtungszeitraum  $\Delta t$  sowie mit steigendem Öffnungsverhältnis  $\eta$  zu (Heinrich u. a. (2002)).

Die vorgestellte Modellidee zur Ermittlung der Verweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr wird für die in dieser Arbeit untersuchte Anlagenkonfiguration angepasst und im Abschnitt 6.1.2.4 dargestellt.

### 2.4.2.2 Strömungstechnische Ermittlung

In diesem Abschnitt werden die strömungstechnischen Vorstellungen dargestellt, die in dieser Arbeit verwendet werden, um Modellparameter zu ermitteln. Durch die Ausflussgleichung besteht die Möglichkeit, die Verweilzeit bis zum Treffen auf die Klassiereinrichtung  $\tau_3$  zu berechnen. Die Ermittlung der Trefferwahrscheinlichkeit auf das Klassierrohr wird nicht nur für die Verlegung der Klassiereinrichtung, sondern auch für die Beschreibung des Separationsprozesses benötigt.

Burgschweiger und Tsotsas (2002) verwenden einen Ansatz auf Basis der Bernoulli-Gleichung. Daraus wird die Verweilzeit der Partikel bis zum Treffen der Klassiereinrichtung ermittelt:

$$\tau_3 = \frac{M_{bed}}{\dot{M}_{tube}} \quad . \quad (2.55)$$

Zur Berechnung der Verweilzeit ist der Partikelmassenstrom  $\dot{M}_{tube}$  notwendig. Dieser wird mit Hilfe folgender Gleichung ermittelt:

$$\dot{M}_{tube} = \begin{cases} 0, & k \cdot H_{bed} \leq H_{tube} \\ \lambda \cdot A_{tube} \cdot \rho_P (1 - \varepsilon_{bed}) \sqrt{2 \cdot g (k \cdot H_{bed} - H_{tube})}, & k \cdot H_{bed} > H_{tube} \end{cases} \quad . \quad (2.56)$$

Hierbei ist  $\lambda$  der Ausflussbeiwert,  $A_{tube}$  und  $H_{tube}$  zeichnen die Oberfläche und die Höhe des Klassierrohres innerhalb der Wirbelschicht auf. Außerdem wird in Gleichung 2.56 die Stärke einer Schwankung der Betthöhe um den Mittelwert  $H_{bed}$  beschrieben. Durch die Pulsation wird berücksichtigt, dass auch bei Betthöhen unterhalb der Höhe des Klassierrohres  $H_{tube}$  Partikel auf das Austragsrohr treffen können. Dies wird in einer scheinbaren Vergrößerung der Betthöhe um den Faktor  $k$  ausgedrückt. Die Betthöhe  $H_{bed}$  kann mit Hilfe der Gleichung C.5 im Anhang berechnet werden. Der Pulsationsfaktor  $k$  wird in Abhängigkeit von Reynolds-Zahl für den leeren Querschnitt angegeben:

$$k = \left( \frac{Re}{Re_{mf}} \right)^m \quad . \quad (2.57)$$

$Re$  und  $Re_{mf}$  sind Kenngrößen der Wirbelschichten und werden im Anhang C erläutert. Der Pulsationsexponent  $m$  und der spezifische Ausflussbeiwert  $\lambda$  werden in der Regel experimentell oder aus empirischen Gleichungen ermittelt.

Die vorgestellten Gleichungen ermöglichen die Anfahrphase zu beschreiben und die Bettmasse in Abhängigkeit von den Gas- und Partikeleigenschaften zu berechnen. Der Parameter  $\lambda$  und der zur Berechnung von  $k$  verwendete Exponent  $m$  müssen experimentell bestimmt werden. Die angenommenen Werte dieser Parameter und eine Anpassung der Modellvorstellung für die in dieser Arbeit untersuchte Anlagenkonfiguration sind im Abschnitt 6.1.2.4 angegeben.

### 2.4.3 Simulationsergebnisse

Die Ergebnisse einer Simulation mit dem oben beschriebenen Modell für den kontinuierlichen Coatingprozess sind auf der Abbildung 2.7 dargestellt. Hierbei sind die zeitliche Änderung des Sauter-Durchmessers  $d_{32}$  der Partikel in der Schicht und am Produktaustrag, sowie der Verlauf des Partikelmassenstroms  $\dot{M}_{out}$  am Austrag auf den Abbildungen 2.7(a) und 2.7(b) zu sehen. Weiterhin sind die Bettmasse  $M_{bed}$  und die Klassierluftgeschwindigkeit  $u$  in Abhängigkeit von der Zeit präsentiert, siehe Abbildung 2.7(c). Zusätzlich sind die normierten Anzahldichteverteilungen  $q_0$  innerhalb der Wirbelschicht bzw. im Produkt und deren Varianzen  $\sigma^2$  auf den Abbildungen 2.7(e) und 2.7(f) zu erkennen. Die hierbei verwendeten Simulationsparameter sind in Tabelle 2.2 aufgelistet.

Die Verläufe des Sauter-Durchmessers  $d_{32}$  in der Schicht und am Produktaustrag weisen ein Wachstum der Partikel auf. Der Partikeldurchmesser am Produktaustrag ist größer als in der Schicht. Dies ist eine Folge der im Modell integrierten Trennfunktion. Dabei werden die feinen Partikel zurück in die Wirbelschicht geführt, um deren Wachstum fortzusetzen. Es ist zu erkennen, dass innerhalb von 4 Stunden der Prozess in einen stationären Zustand übergeht. Danach bleiben die Partikeldurchmesser in der Schicht und beim Produkt konstant.

Im stationären Zustand, bei den im Modell getroffenen Annahmen (siehe Abschnitt 2.4), entspricht die Masse an zugefügten Keimen und eingedüstem Feststoff dem Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$ . Der Verlauf von  $\dot{M}_{out}$  weist einen Anstieg zum Beginn des Prozesses auf. Danach wird ein konstanter Wert erreicht, der in die Wirbelschicht der zugefügten Masse entspricht. Für die Berechnung des Produktmassenstromes wurde eine Verweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr von  $\tau_3 = 1000$  s angenommen. Dieser Wert wurde experimentell ermittelt, siehe Abschnitt 4.2.1. Ein Vergleich mit aus der Literatur bekannten Modellen wird ausführlich in Abschnitt 6.1.2.4 diskutiert.

Um die Dauer der Anfahrphase des Prozesses so kurz wie möglich zu halten, ist eine konstante Bettmasse  $M_{bed}$  notwendig. Die Schichtmasse wird in diesem Fall mit Hilfe der Änderung der Klassierluftgeschwindigkeit  $u$  geregelt, berechnet nach der Gleichung 2.35, siehe Abbildung

2.7(c). Dabei führt eine Erhöhung der Schichtmasse zu einer Absenkung in der Klassierluftgeschwindigkeit und umgekehrt. Auf der Abbildung ist es wieder zu erkennen, dass die Dauer der Anfahrphase ca. 4 Stunden beträgt. Danach bleibt die Bettmasse, bzw. die Gasgeschwindigkeit im Rohr, mit der Zeit unverändert.

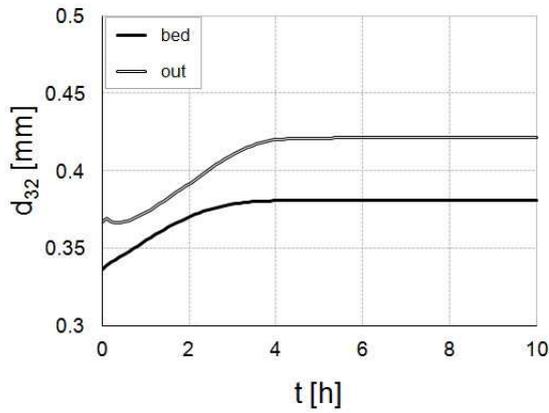
Die Anzahldichteverteilungen  $q_0$  in der Schicht und am Produktaustrag (Abbildung 2.7(d)) weisen unterschiedliche Breiten und Formen auf. Bei einem Vergleich zwischen Anfangs- ( $t = t_0$ ) und Endverteilung ( $t = t_{\text{end}}$ ) in der Schicht (bei  $t = t_0$ ) ist die Wanderung der Verteilung in Richtung größerer Partikel zu erkennen, was den Wachstumsprozess kennzeichnet. Die Verteilung wird dabei breiter, was eine Folge der permanenten Zugabe an neuen Kernen und des Wachstums ist. Auf Grund des im Modell integrierten Trennprozesses ist die Partikelgrößenverteilung am Produktaustrag (out) schmaler als diese in der Schicht.

Der Verlauf der Partikelanzahl in der Schicht  $N_{\text{bed}}$  weist eine Erhöhung direkt nach dem Beginn des Prozesses. Dieses Effekt ist mit der Zugabe neuer Kerne zu erklären. Nach dem Erreichen des stationären Zustandes bleiben die Anzahl der Partikel der Schicht konstant mit der Zeit.

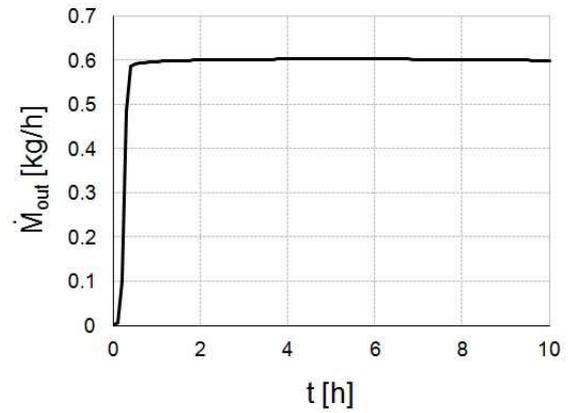
Die Varianz der Verteilung des Produktes  $\sigma_{\text{out}}^2$  gibt die enge Verteilung am Austrag wieder und ist kleiner als diese in der Schicht  $\sigma_{\text{bed}}^2$ . Die Absenkung der Varianzverläufe gleich nach dem Beginn des Prozesses lässt sich mit der Entfernung der groben Partikel aus der Bettmasse mit Hilfe der Trennfunktion erklären.

Tabelle 2.2: Simulationsparameter für den kontinuierlichen Prozess

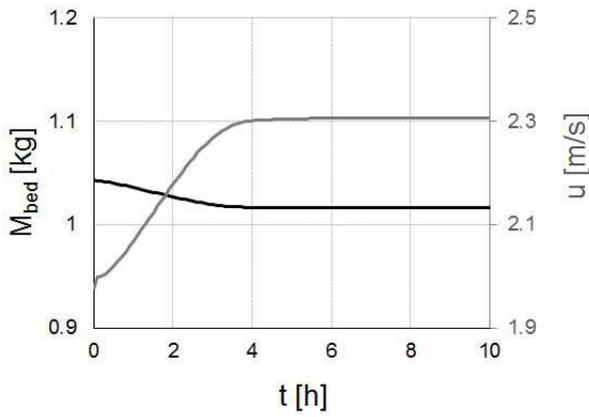
Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Anfangsgröße Partikel	$d_c$	0.34	mm
Varianz Kernpartikel	$\sigma_{bed}^2$	0.04	mm <sup>2</sup>
Anfangsbettmasse	$M_{bed}$	1.050	kg
Eindüsungsrate Coatinglösung	$\dot{M}_L$	0.98	kg/h
Keimzugaberate	$\dot{M}_{nuc}$	0.3	kg/h
Feststoffanteil Coatinglösung	$c$	30	Ma %
Dichte Feststoff	$\rho_s$	1450	kg/m <sup>3</sup>
Dichte Kernmaterial	$\rho_c$	1380	kg/m <sup>3</sup>
Porosität der Schicht	$\varepsilon_{sh}$	0	-
Volumenanteil der Sprühzone	$\alpha$	0.1	-
Verweilzeit in der Sprühzone	$\tau_1$	0.1	s
Verweilzeit bis zum Treffen auf das Abzugsrohr	$\tau_3$	1000	s
Durchmesser des Abzugrohres	$d_{tube}$	0.032	m
Länge des Abzugrohres	$L_{tube}$	1.1	m
Turbulenzkonstante	$k_t$	1	-
Konstante des Proportionalreglers	$K_R$	12	m/kg·s



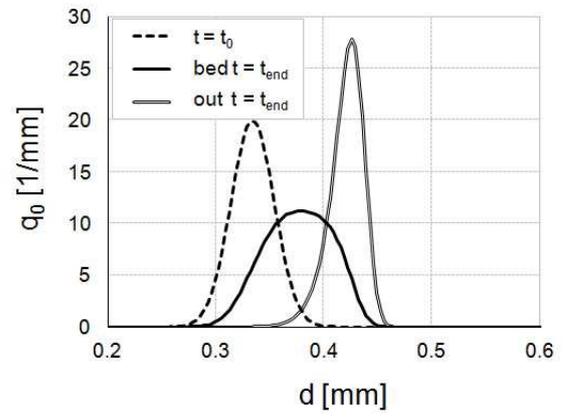
(a) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$



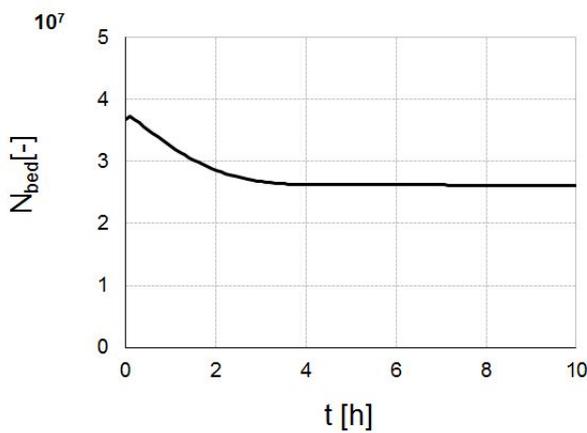
(b) Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



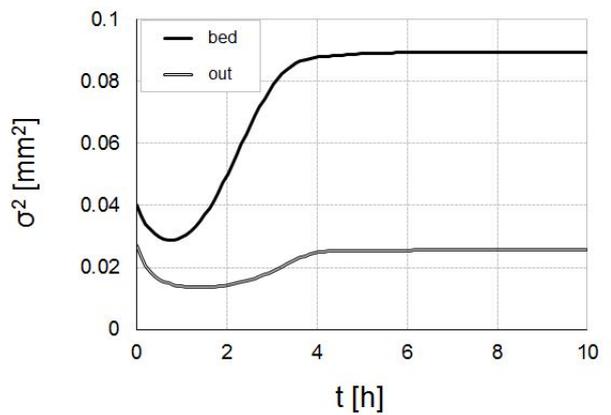
(c) Bettmasse  $M_{bed}$  und Klassierluftgeschwindigkeit  $u$



(d) Anzahldichteverteilungen in der Schicht  $q_{0,bed}$  und am Produktaustrag  $q_{0,out}$



(e) Partikelanzahl in der Schicht  $N_{bed}$



(f) Varianz der Verteilungen in der Schicht  $\sigma_{bed}^2$  und am Produktaustrag  $\sigma_{out}^2$

Abbildung 2.7: Ergebnisse einer Beispielsimulation für den kontinuierlichen Coatingprozess.



# 3 Ergebnisse der Modellierung

## 3.1 Modellverhalten beim diskontinuierlichen Coatingprozess

In diesem Abschnitt werden die Einflüsse unterschiedlicher Modellparameter für den diskontinuierlichen Coatingprozess veranschaulicht. Es werden folgende Modellparameter variiert:

- die Porosität der Hülle,
- der Volumenanteil der Sprühzone und
- die Verweilzeit in der Sprühzone.

Die verwendeten Simulationsparameter für die dargestellten Ergebnisse sind in der Tabelle 2.1 aufgelistet.

### 3.1.1 Variation der Schichtporosität

In der Abbildung 3.1 sind alle Prozess- und Partikelparameter für eine Variation der Schichtporosität dargestellt. Das auf der Basis von Hoffmann u. a. (2011) entwickelte Modell berücksichtigt den Aufbau von einer kompakten oder porösen Struktur der Schicht. Dies lässt sich durch die Schichtdichte definieren, siehe Gleichung 2.16. Um den Einfluss der Schichtporosität  $\varepsilon_{sh}$  zu untersuchen, wurden drei Simulationen durchgeführt, in denen die Schichtporosität vorgegebene Werte von  $\varepsilon_{sh} = 0, 0.3$  und  $0.6$  hat.

Wie es zu erwarten ist, nehmen mit steigender Porosität der Schicht der Sauter-Durchmesser  $d_{32}$  und die Bettoberfläche  $A_{bed}$  zu, Abbildungen 3.1(a) und 3.1(d). Das ist durch die größere Wachstumsgeschwindigkeit  $G$ , die nach Gleichung 2.19 berechnet wird, zu erklären, siehe (Abbildung 3.1(c)). Der zeitliche Verlauf der Bettmasse  $M_{bed}$  (Abbildung 3.1(b)) ist hingegen für alle drei Fälle gleich. Dies muss aus Gründen der Massenerhaltung erfüllt sein, da sowohl die Anfangsmasse als auch der eingedüste Feststoffmassenstrom in den Simulationen übereinstimmen.

In Abbildung 3.1(e) sind für eine Prozessdauer von 5 h die  $q_0$ -Verteilungen für den gemeinsamen Anfang und für das Ende der drei Simulationen dargestellt. Die drei berechneten Verteilun-

gen werden aufgrund des Wachstumsprozesses entlang der internen Koordinate verschoben. Dieses Verhalten ist beim Wachstumsprozess mit poröser Granulathülle stärker ausgeprägt, als bei kompakter Hülle. Bei gleichen Anfangsbedingungen erhält man demnach bei einem Wachstumsprozess mit poröser Granulathülle erwartungsgemäß größere Partikel. Die Verteilungen unterscheiden sich in ihrer Form und Breite kaum. Dies lässt sich mit Hilfe der Varianz der Verteilungen  $\sigma^2$  besser interpretieren. In der Abbildung 3.1(f) ist zu erkennen, dass alle drei Verläufe keine ausgeprägten Abweichungen in der Varianz aufweisen. Es ist eine leichte Tendenz zu erkennen, dass mit steigender Schichtporosität die Verteilungen minimal breiter werden, was aber vernachlässigt werden kann.

#### 3.1.2 Variation der Verweilzeit in der Sprühzone

Ein wichtiger Parameter in dem im Kapitel 2 präsentierten Zwei-Zonen Modell ist die Verweilzeit der Partikel in der Eindüsungszone  $\tau_1$ . In der Literatur ist lediglich eine Variation dieses Parameters in einem diskontinuierlichen Coatingprozess bekannt, Priese (2014). Im Modell wurden aber keine konstante Anzahl der Partikel in der beiden Modellzonen angenommen.

Es wurden drei Simulationen durchgeführt, um den Einfluss der Verweilzeit auf die Prozessparameter und die Partikeleigenschaften zu untersuchen. Die Ergebnisse dieser Parametervariation sind in der Abbildung 3.2 dargestellt.

Die Änderung der Verweilzeit hat einen Einfluss auf die Partikelanzahlverteilungen  $q_0$ , siehe Abbildung 3.2(e). Mit der Erhöhung der Verweilzeit wird die Partikelgrößenverteilung in der Schicht enger. In diesem Fall haben die Partikel einen längeren Aufenthalt in der Eindüsungszone und werden regelmäßiger und homogener beschichtet.

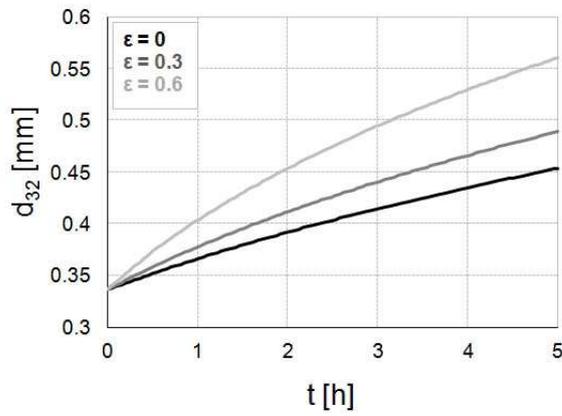
Die Verläufe des Sauter-Durchmessers (Abbildung 3.2(a)), der Bettmasse (Abbildung 3.2(b)), der Wachstumsgeschwindigkeit (Abbildung 3.2(f)) und der Partikeloberfläche (Abbildung 3.2(d)) bleiben unverändert mit der Erhöhung der Partikelverweilzeit in der Eindüsungszone.

#### 3.1.3 Variation des Volumenanteils der Sprühzone

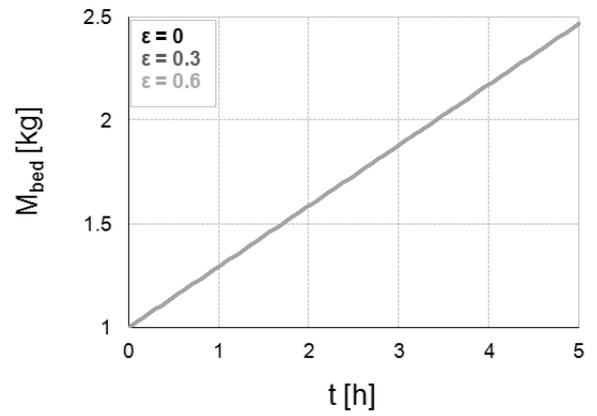
In diesem Abschnitt wird der Einfluss des Volumenanteils der Partikel in der Sprühzone  $\alpha$  dargestellt. Es wurden drei Simulationen durchgeführt mit folgenden Anteilen der Sprühzone: 0.001, 0.01 und 0.1. Die Abbildung 3.3 präsentiert die Variation dieses Parameters, wobei mathematisch betrachtet, eine Erhöhung des Anteils der Eindüsungszone gleichzeitig zu einer Erhöhung der Verweilzeit in der Eindüsungszone führt, siehe Gleichung 2.25.

In der Darstellung treten keine Änderungen in den drei Verläufen des Sauter-Durchmessers  $d_{32}$  für das Bett auf. Wie erwartet, bleibt die Bettmasse  $M_{bed}$  mit der Variation des Anteils der Eindüsungszone unverändert.

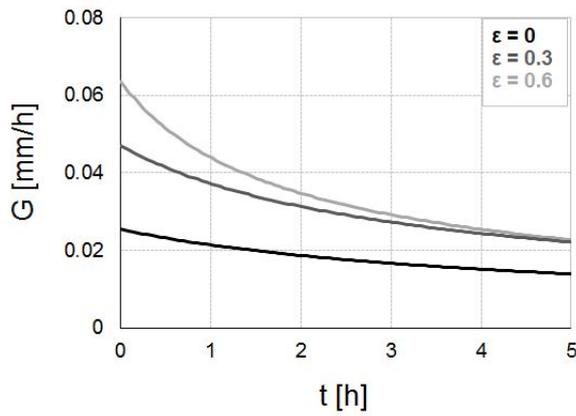
### 3.1 MODELLVERHALTEN BEIM DISKONTINUIERLICHEN COATINGPROZESS



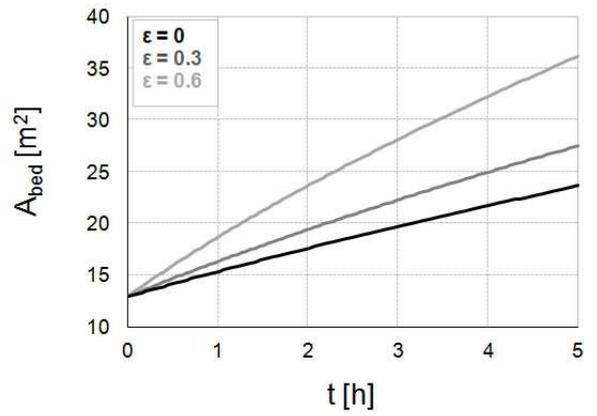
(a) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$



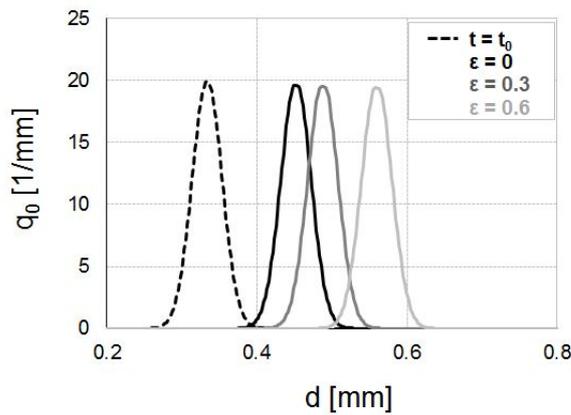
(b) Bettmasse  $M_{bed}$



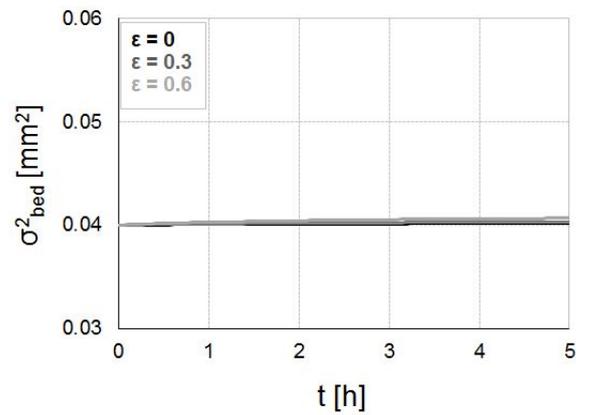
(c) Wachstumsgeschwindigkeit  $G$



(d) Partikeloberfläche  $A_{bed}$

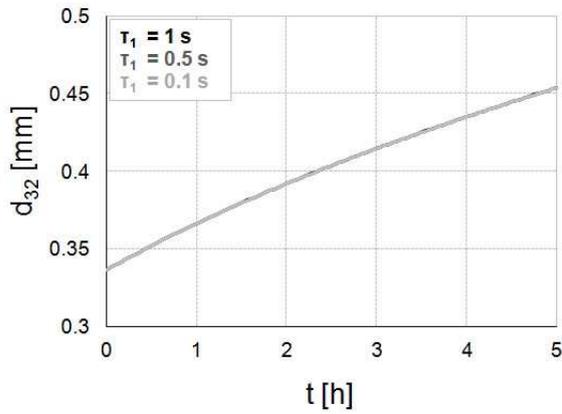


(e) Anzahldichteverteilungen  $q_0$

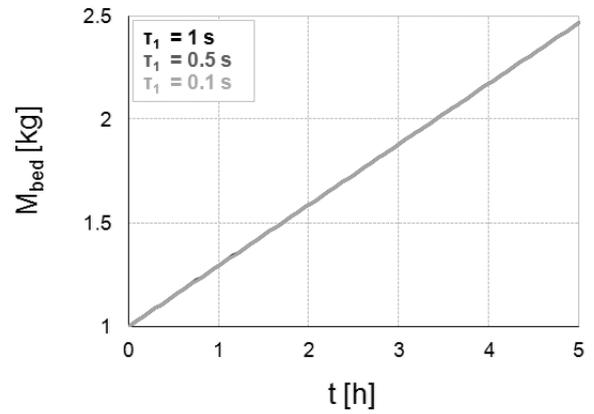


(f) Varianz der Partikelverteilungen  $\sigma^2$

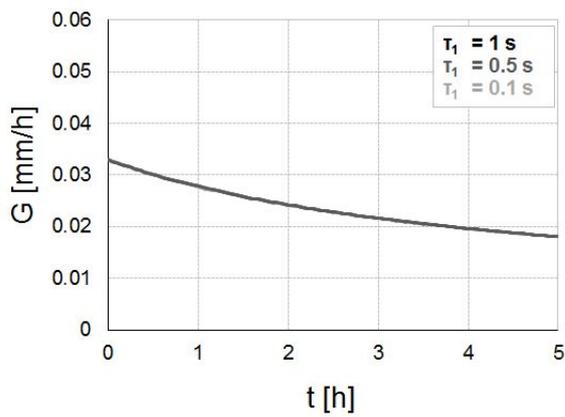
Abbildung 3.1: Variation der Schichtporosität  $\epsilon_{sh}$  im Modell für das diskontinuierliche Coating.



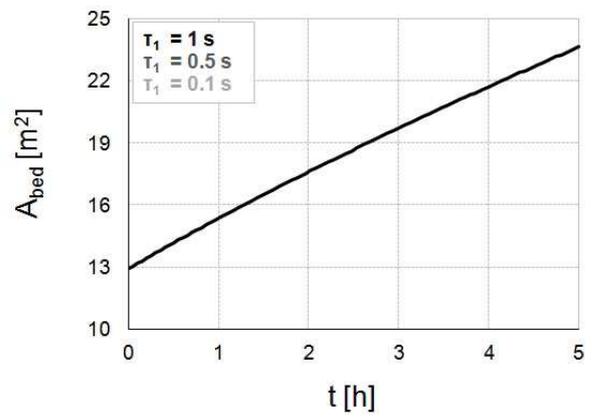
(a) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$



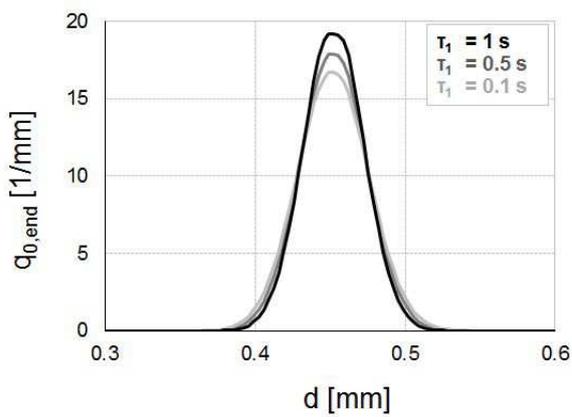
(b) Bettmasse  $M_{bed}$



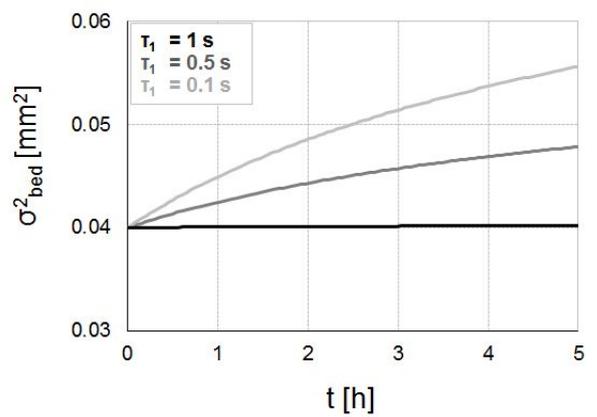
(c) Wachstumsgeschwindigkeit  $G$



(d) Partikeloberfläche  $A_{bed}$



(e) Anzahldichteverteilungen  $q_0$



(f) Varianz der Partikelverteilungen  $\sigma^2$

Abbildung 3.2: Variation der Partikelverweilzeit in der Eindüsungszone  $\tau_1$  im Modell für das diskontinuierliche Coating.

Da die Partikelanzahl in den beiden Modellzonen konstant bleibt (siehe Abschnitt 2.3.1), ändert sich die gesamte Bettoberfläche  $A_{bed}$  und die Wachstumsgeschwindigkeit  $G$  bei einer Erhöhung des Anteils der Eindüsungszone nicht.

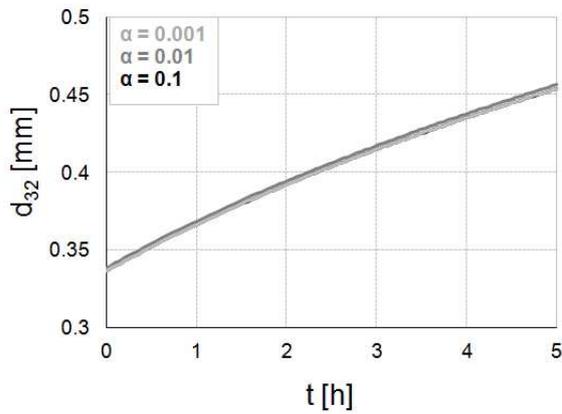
Die Variation des Anteils der Eindüsungszone führt zu Änderungen in der Breite der Verteilungen  $q_0$  in der Schicht. Mit zunehmender Größe der Sprühzone wird die Partikelgrößenverteilung enger. Dies wird auch vom Verlauf der Varianz  $\sigma^2$  in der Abbildung 3.3(f) deutlich veranschaulicht.

#### 3.1.4 Zusammenfassung der Ergebnisse der Parametervariationen

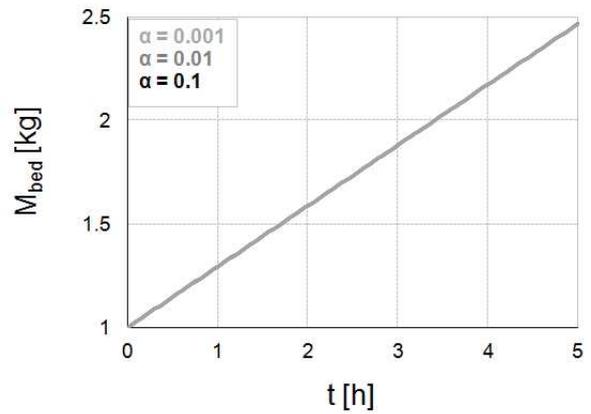
Im Abschnitt 3.1 wurde das dynamische Verhalten des diskontinuierlichen Coatingprozess anhand von Simulationen beschrieben. Hierbei wurden verschiedene, als einflussreiche betrachtete Parameter variiert, Diese sind die Schichtporosität der Coatingschicht  $\varepsilon_{sh}$ , die Partikelverweilzeit in der Eindüsungszone  $\tau_1$  und der Volumenanteil der Sprühzone  $\alpha$ .

Die Auswertung der Tendenzen erfolgt der Entwicklung der Partikelgröße  $d_{32}$ , der Bettmasse  $M_{bed}$ , der Wachstumsgeschwindigkeit  $G$ , der Bettoberfläche  $A_{bed}$ , der Anzahldichteverteilung  $q_0$ , und der Varianz der Partikelverteilungen  $\sigma^2$ . Die Dauer der Prozesssimulation wurde bei allen Variationen auf eine Zeit von 5 Stunden begrenzt.

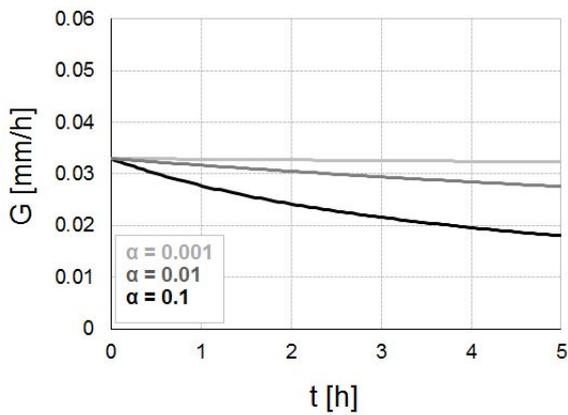
Die Variationen der gewählten Parameter haben zu eindeutigen Tendenzen im Prozessverhalten geführt. Diese sind in der Tabelle 3.1 zusammengefasst.



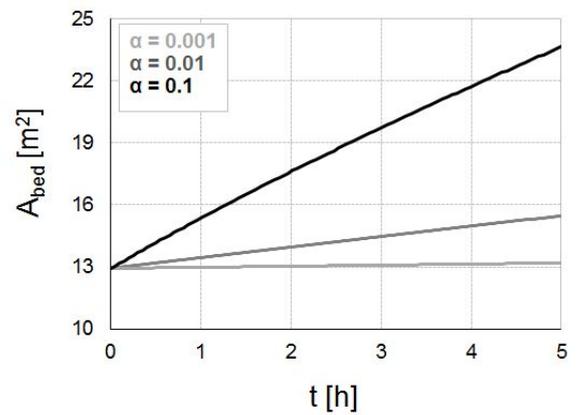
(a) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$



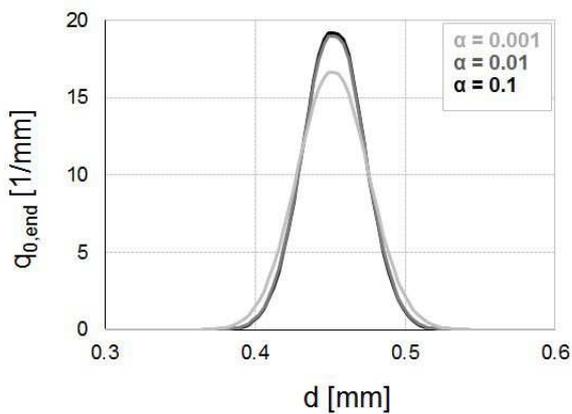
(b) Bettmasse  $M_{bed}$



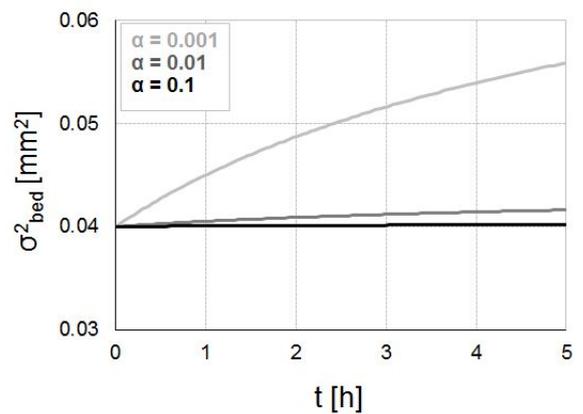
(c) Wachstumsgeschwindigkeit  $G$



(d) Partikeloberfläche  $A_{bed}$



(e) Anzahldichteverteilungen  $q_0$



(f) Varianz der Partikelverteilungen  $\sigma^2$

Abbildung 3.3: Variation des Anteils der Eindüsungszone  $\alpha$  im Modell für das diskontinuierliche Coating.

Tabelle 3.1: Auflistung der Ergebnisse der Variation der Modellparameter für den diskontinuierlichen Coatingprozess.

Parametervariation	Simulationsergebnis	Begründung
Porosität der Schicht $\varepsilon_{sh}$	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Mit steigender Porosität nehmen <math>d_{32}</math> und <math>A_{bed}</math> zu, <math>G</math> nimmt ab</li> <li>• Die Breite der Verteilungen bleibt unverändert</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Die höhere Schichtporosität entspricht einem größeren Volumen und einer größeren Oberfläche der Hülle</li> <li>• Die höhere Schichtporosität ändert die Partikelanzahl in der Schicht nicht</li> <li>• Die Schichtporosität hat einen direkten Einfluss nur auf die Partikelgröße</li> </ul>
Partikelverweilzeit in der Eindüsungszone $\tau_1$	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Mit einer Erhöhung der Verweilzeit in der Eindüsungszone keine Änderung in <math>A_{bed}</math> und <math>G</math></li> <li>• Die Erhöhung der Verweilzeit führt zu einer engeren Partikelgrößenverteilung</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Die Partikel haben längeren Aufenthalt in der Eindüsungszone und werden homogener beschichtet</li> </ul>
Volumenanteil der Eindüsungszone $\alpha$	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Mit einer Erhöhung von <math>\alpha</math> steigt die Verweilzeit der Partikel in der Eindüsungszone</li> <li>• Mit einer Erhöhung von <math>\alpha</math> keine Änderung in <math>A_{bed}</math> und <math>G</math></li> <li>• Die Partikelgrößenverteilungen werden enger</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Die Partikel haben längeren Aufenthalt in der Eindüsungszone und werden homogener beschichtet</li> </ul>

## 3.2 Modellverhalten beim kontinuierlichen Coatingprozess

Bei der kontinuierlichen Wirbelschichtgranulation mit klassierendem Austrag wird der Partikelstrom über ein Abzugsrohr entfernt. Aufgrund der unterschiedlichen Sinkgeschwindigkeiten der Partikel findet ein Klassiervorgang statt. Dabei wird die Klassierluft so reguliert, dass die Schichtmasse konstant bleibt. In diesem Abschnitt werden die Einflüsse folgender Modellparameter untersucht:

- Porosität der Hülle,
- Partikelverweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr,
- Parameter der Trennfunktion, wie die Turbulenzkonstante,
- Durchmesser des Abzugrohres,
- Länge des Abzugrohres.

Die sonstigen Bedingungen entsprechen der Beispielsimulation für den kontinuierlichen Prozess, siehe Tabelle 2.2.

### 3.2.1 Variation der Schichtporosität

Um weitere Einflüsse der Schichtporosität bei einem kontinuierlichen Coatingprozess zu verfolgen, wurde die Variation, analog der Simulation für das diskontinuierliche Coating durchgeführt. Die Ergebnisse sind in der Abbildung 3.4 dargestellt.

Bei einer Variation der Schichtporosität im kontinuierlichen Coatingprozess werden keine deutlichen Unterschiede in den Produkt- und Prozessmerkmalen, wie dem Sauter-Durchmesser  $d_{32}$  in der Schicht und am Produktaustrag, der Klassierluftgeschwindigkeit  $u$ , den Anzahldichteverteilungen der Partikel in der Schicht und im Produkt  $q_0$ , sowie deren Varianz erkannt. Die im Modell integrierte Trennfunktion (Gleichung 2.43), sorgt dafür, dass Partikel einer bestimmten Größe entfernt werden. In der Trennfunktion ist die Sinkgeschwindigkeit  $u_{\text{sink}}(d_P, \rho_P)$  (Gleichung 2.37) von großer Bedeutung für den Separationsprozess. Bei der Variation der Schichtporosität ändert sich grundsätzlich die Partikelgröße  $d_P$  (siehe Abbildung 3.1(a)) und die Partikeldichte  $\rho_P$  (Gleichung 2.38). Diese beiden Parameter haben eine gegenläufige Wirkung auf die Sinkgeschwindigkeit. Mit der Zunahme der Schichtporosität nimmt der Partikeldurchmesser zu und die Partikeldichte  $\rho_P$  ab.

Als Einziges ändert sich deutlich der ausgetragene Produktstrom  $\dot{M}_{\text{out}}$  am Anfang des Prozesses. Dies ist eine Folge der ermittelten Anfangswerte der Wachstumsgeschwindigkeit  $G$  nach der Gleichung 2.19, in der bei einer Zunahme der Schichtporosität  $\varepsilon_{\text{sh}}$  die Wachstumsgeschwindigkeit verringert wird.

Wie in der Abbildung 3.4(a) zu sehen ist, ist am Anfang des Prozesses kein schneller Unterschied in der Partikelgröße bei den verschiedenen Schichtporositäten deutlich. Da beim kontinuierlichen Prozess gleich nach dem Beginn des Prozesses Partikel beschichtet und gleichzeitig ausgetragen werden, ist kein ausgeprägter Einfluss der Schichtporosität  $\varepsilon_{sh}$  auf die Partikelgröße zu erwarten. Die Dichte des Partikels (siehe Gleichung 2.38) sinkt mit der Erhöhung der Schichtporosität. Da aber die Partikel eine kurze Verweilzeit in der Wirbelschicht haben und dementsprechend nur eine sehr dünne Coatingschicht erhalten, ist die Abnahme in der Partikeldichte gering. Die beiden Parameter (Partikelgröße und Partikeldichte) lassen sich mit der Variation der Schichtporosität  $\varepsilon_{sh}$  nicht deutlich ändern. Dadurch bleiben die Klassierluftgeschwindigkeit und die Partikelverteilungen in der Schicht und am Produktaustrag nahezu unverändert.

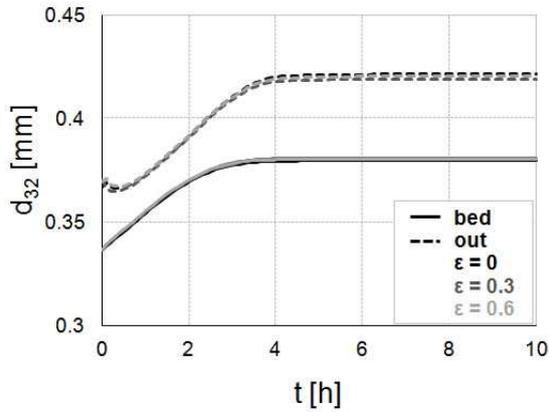
Der zeitliche Verlauf der Bettmasse ist für alle drei Fälle gleich. Dies muss aufgrund der Bettmassenregelung erfüllt sein.

### 3.2.2 Variation der Partikelverweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr

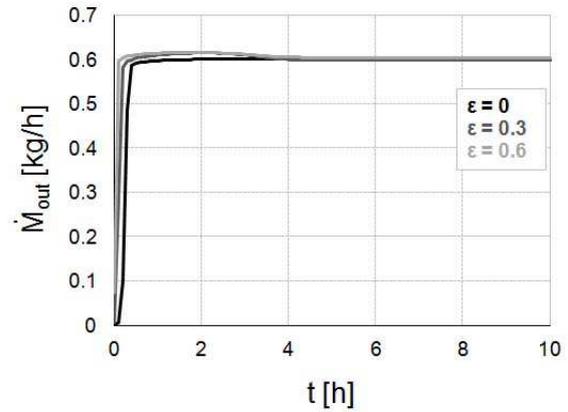
Die Partikelverweilzeit bis zum Erreichen des Klassierrohrs ist ein Teil des Trennprozesses im Modell für den kontinuierlichen Betrieb, siehe Gleichung 2.31. Um den Einfluss der Partikelverweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr  $\tau_3$  zu untersuchen, wurden drei Simulationen mit unterschiedlichen Werten der Verweilzeit (1000 s, 2000 s und 3000 s) durchgeführt. Die Bettmasse  $M_{bed}$  bleibt in allen drei Simulationen gezielt konstant. Die Verweilzeit hat einen direkten Einfluss auf die Menge der Partikel, welche das Klassierrohr erreichen. Danach aber spielt die Trennfunktion eine für die Klassierung entscheidende Rolle. Unabhängig von der Verweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr werden nur die größeren Partikel ausgetragen. Aus diesem Grund führt die Parametervariation in der obengenannten Größenordnung zu keinen ausgeprägten Änderungen der Partikelparameter, siehe Abbildungen 3.5(a), 3.5(e) und 3.5(f). Mit einer Erhöhung der Verweilzeit wird der Verlauf der Geschwindigkeit im Klassierrohr  $u$  zu geringeren Werten verschoben. Die erhöhte Verweilzeit entspricht einem längeren Aufenthalt der Partikel in der Schicht, siehe Gleichung 2.31. Dadurch werden die Partikel erst spät aus der Schicht ausgetragen. Dies würde zu einer Zunahme der Bettmasse führen. Damit die Bettmasse konstant bleiben kann, ist eine Absenkung der Geschwindigkeit im Klassierrohr  $u$  notwendig, siehe Abbildung 3.5(c).

### 3.2.3 Variation der Parameter der Trennfunktion

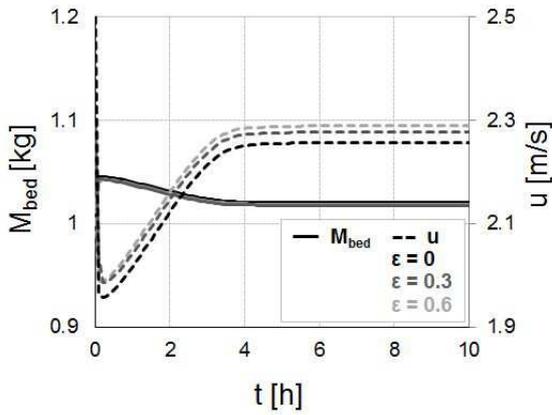
Die Ermittlung der im Modell integrierten Trennfunktion für das kontinuierliche Pelletcoating wurde im Abschnitt 2.4.1 ausführlich dargestellt. Die Parameter der Trennfunktion wie die Tur-



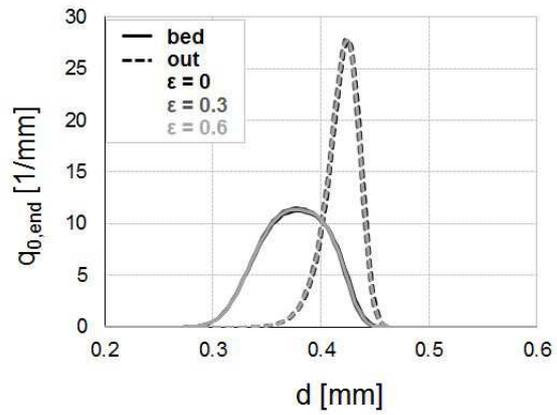
(a) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$



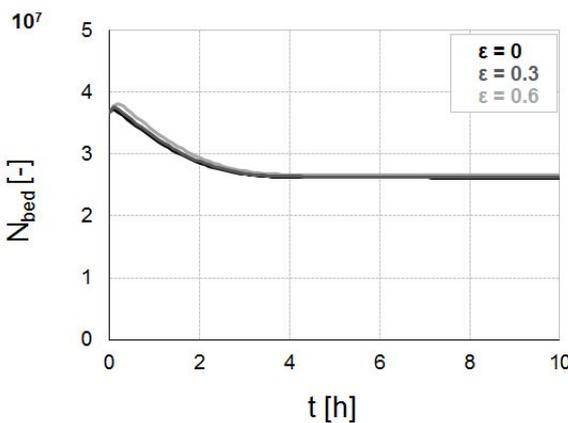
(b) Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



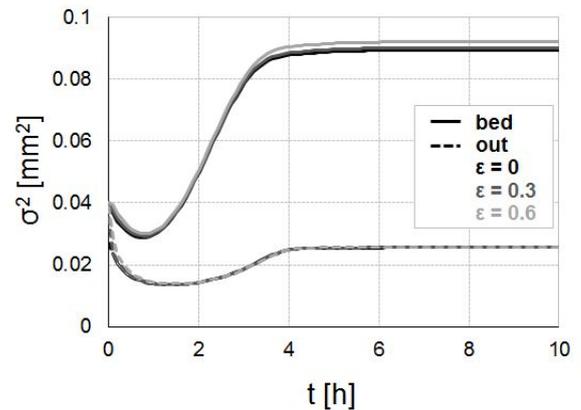
(c) Bettmasse  $M_{bed}$  und Klassierluftgeschwindigkeit  $u$



(d) Anzahldichteverteilungen  $q_{0,end}$  in der Schicht und am Produktaustrag



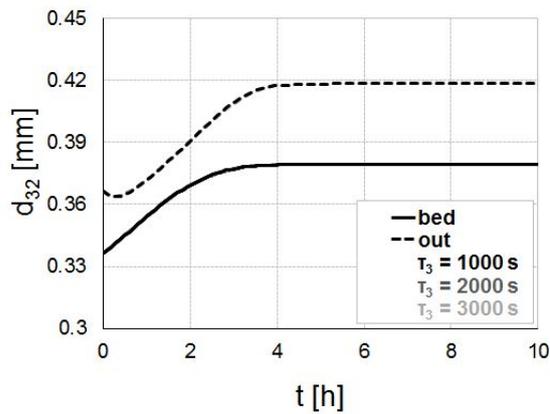
(e) Partikelanzahl in der Schicht  $N_{bed}$



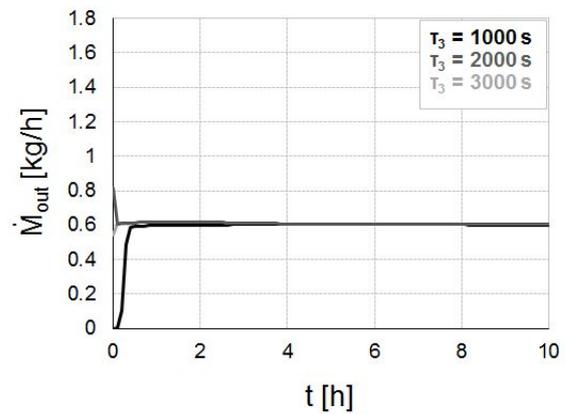
(f) Varianz der Verteilungen in der Schicht  $\sigma_{bed}^2$  und am Produktaustrag  $\sigma_{out}^2$

Abbildung 3.4: Variation der Schichtporosität  $\epsilon_{sh}$  im Modell für das kontinuierliche Coating.

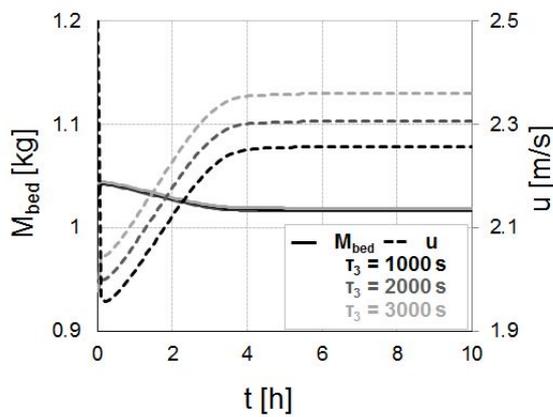
### 3.2 MODELLVERHALTEN BEIM KONTINUIERLICHEN COATINGPROZESS



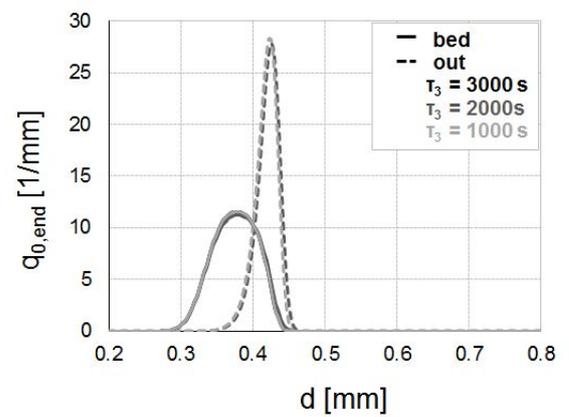
(a) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$



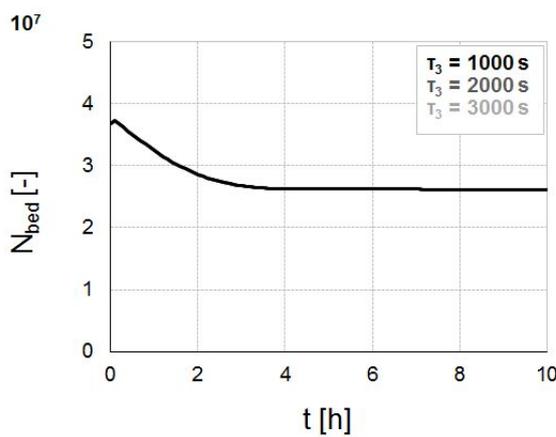
(b) Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



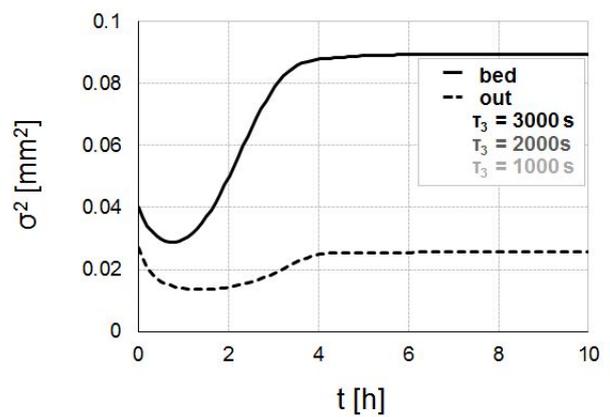
(c) Bettmasse  $M_{bed}$  und Klassierluftgeschwindigkeit  $u$



(d) Anzahldichteverteilungen  $q_{0,end}$  in der Schicht und am Produktaustrag



(e) Partikelanzahl in der Schicht  $N_{bed}$



(f) Varianz der Verteilungen in der Schicht  $\sigma_{bed}^2$  und am Produktaustrag  $\sigma_{out}^2$

Abbildung 3.5: Variation der Partikelverweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr  $\tau_3$  im Modell für das kontinuierliche Coating.

bulenzkonstante  $k_t$ , der Durchmesser  $d_{\text{tube}}$  und die Länge  $L_{\text{tube}}$  des Abzugrohres können angepasst oder gewählt werden. Der Einfluss dieser Parameter auf den kontinuierlichen Coatingprozess wird in diesem Abschnitt analysiert.

#### 3.2.3.1 Variation der Turbulenzkonstante

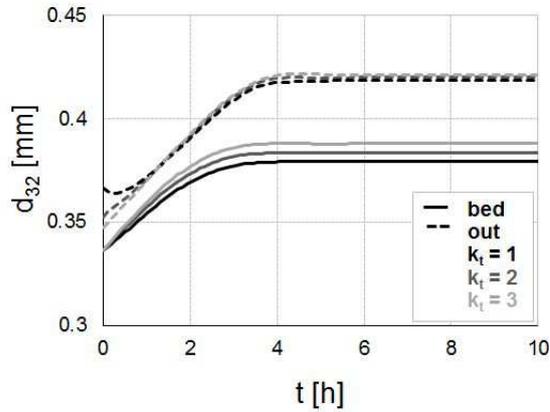
Die Variation der Turbulenzkonstante  $k_t$  hat einen indirekten Einfluss auf die im Modell integrierte Trennfunktion (Gleichung 2.43), der sich durch den axialen Diffusionskoeffizienten  $D$  in der Gleichung 2.47 ausdrücken lässt. Die Turbulenzkonstante  $k_t$  ist eine apparatespezifische Größe und muss für jeden Anwendungsfall angepasst werden. Um den Einfluss der Turbulenzkonstante im Modell für den kontinuierlichen Coatingprozess darzustellen, wurden drei Simulationen durchgeführt. Die Ergebnisse dieser Variation sind in der Abbildung 3.6 dargestellt.

Grundsätzlich führt eine Erhöhung des Wertes für die Konstante  $k_t$  zu einem verschlechterten Trenneffekt. Dies ist eindeutig in den Partikelgrößenverteilungen und deren Varianzen zu erkennen. Die Verteilungen am Produktaustrag werden mit einer Erhöhung des Wertes von  $k_t$  breiter, die Varianzen haben einen höheren Wert, siehe Abbildungen 3.6(d) und 3.6(f). Auf der Abbildung 3.6(e) ist zu erkennen, dass die erhöhten  $k_t$ -Werte zu einer Abnahme der Partikelanzahl in der Schicht führen.

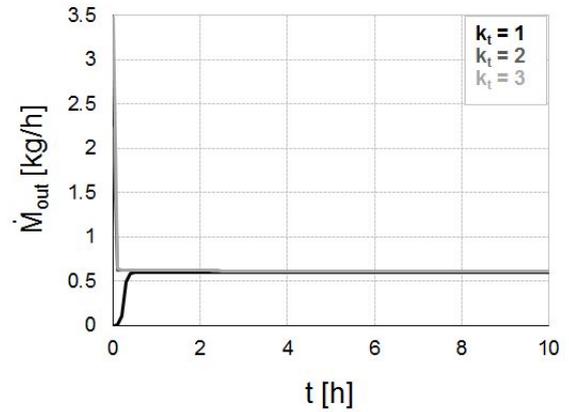
Die Erhöhung der Turbulenzkonstante  $k_t$  führt zu einer Zunahme der Gasgeschwindigkeit im Klassierrohr  $u$ , siehe 3.6(c). Das ist eine Folge des schlechten Klassiereffekts mit einem großen Anteil an Fehlaustrag. Zur Konstanthaltung der Bettmasse ist eine Zunahme der Klassierluftgeschwindigkeit notwendig. In diesem Fall bedeutet dies eine schlechtere Separation der Partikel, sodass Partikel nahezu unklassiert zurückgeführt werden. Das ist in den Verläufen des Sauter-Durchmessers in der Schicht zu beobachten. Der Sauter-Durchmesser nimmt mit steigendem Wert von  $k_t$  zu, Abbildung 3.6(a). Trotz der unterschiedlichen Breite in den Verteilungen des Produktes ändert sich deren berechneter Sauter-Durchmesser mit abweichenden Werten von  $k_t$  aber nur wenig. Diese Unempfindlichkeit entsteht durch die Berechnung des Sauter-Durchmessers, wobei hierfür das gesamte Volumen der Partikel der Verteilung in Relation zu der Oberfläche gesetzt wird.

#### 3.2.3.2 Variation des Durchmessers des Abzugsrohres

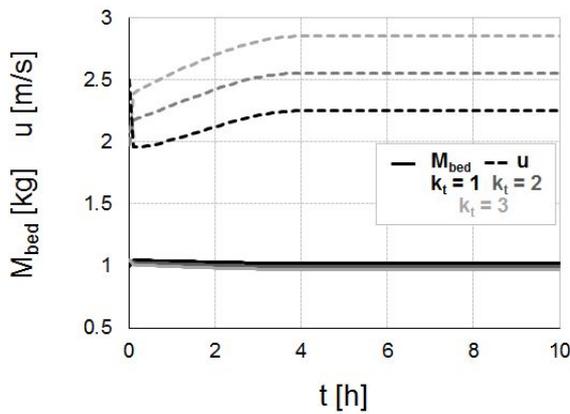
Der Durchmesser des Abzugsrohres  $d_{\text{tube}}$  ist eine apparatespezifische Größe, deren Änderung einen indirekten Einfluss auf die im Modell integrierte Trennfunktion (Gleichung 2.43) hat. Mit Hilfe des Durchmessers der Klassiereinrichtung wird der axiale Dispersionskoeffizient  $D$  durch Gleichung 2.47 ermittelt.



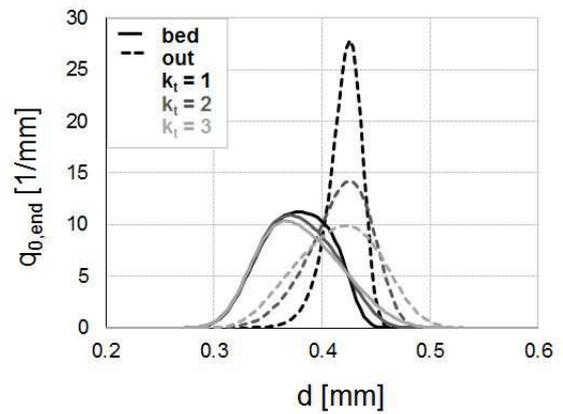
(a) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$



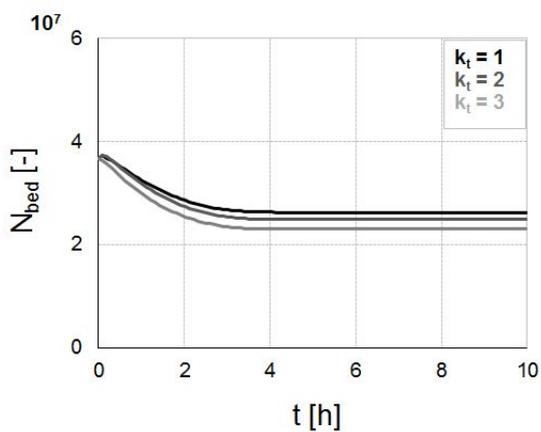
(b) Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



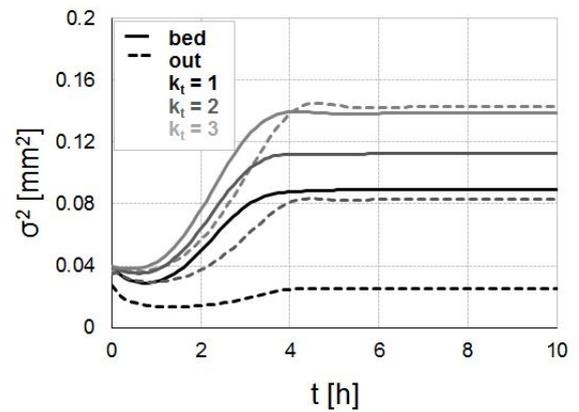
(c) Bettmasse  $M_{bed}$  und Klassierluftgeschwindigkeit  $u$



(d) Anzahldichteverteilungen  $q_{0,end}$  in der Schicht und am Produktaustrag



(e) Partikelanzahl in der Schicht  $N_{bed}$



(f) Varianz der Verteilungen in der Schicht  $\sigma_{bed}^2$  und am Produktaustrag  $\sigma_{out}^2$

Abbildung 3.6: Variation der Turbulenzkonstante  $k_t$  im Modell für das kontinuierliche Coating.

Ähnlich zur Variation der Turbulenzkonstante (Abschnitt 3.2.3.1) bewirkt eine Erhöhung des Klassierrohrdurchmessers einen flacheren Verlauf der Trennfunktion, siehe Abbildung 2.6. Hiermit wird im Allgemeinen die Klassierung schlechter. Eine Folge davon sieht man in den Partikelanzahldichteverteilungen  $q_0$  in der Schicht und am Produktaustrag, welche bei Erhöhung des Klassierrohrdurchmessers breiter werden, siehe Abbildungen 3.7(d) und 3.7(f). Je enger das Rohr ist, desto besser wird der Trenneffekt und umso schmaler werden die Partikelgrößenverteilungen. Die Erhöhung des Durchmessers führt zu einer Zunahme der Gasgeschwindigkeit im Klassierrohr  $u$ , siehe Abbildung 3.7(c). Dies ist eine Folge eines schlechten Klassiereffekts mit einem großen Anteil an Fehlaustrag. Um die Bettmasse konstant zu halten, ist eine Zunahme der Klassierluftgeschwindigkeit notwendig.

Trotz der unterschiedlichen Breite der Verteilungen, ändern sich die berechneten Werte des Sauter-Durchmessers in der Schicht und am Produktaustrag mit der Variation von  $d_{\text{tube}}$  nur geringfügig (Abbildung 3.7(a)). Dieses Verhalten ist ebenso eine Folge der Berechnung des Sauter-Durchmessers.

Auf der Abbildung 3.7(e) ist es zu erkennen, dass die erhöhten  $d_{\text{tube}}$ -Werte zu keiner ausgeprägten Änderung in der Partikelanzahl in der Schicht führen. Der zeitliche Verlauf des Produktmassenstroms  $\dot{M}_{\text{out}}$  bleibt ebenso näherungsweise konstant (Abbildung 3.7(b)). Dieses ist auf die im Modell integrierte Regelung zurückzuführen.

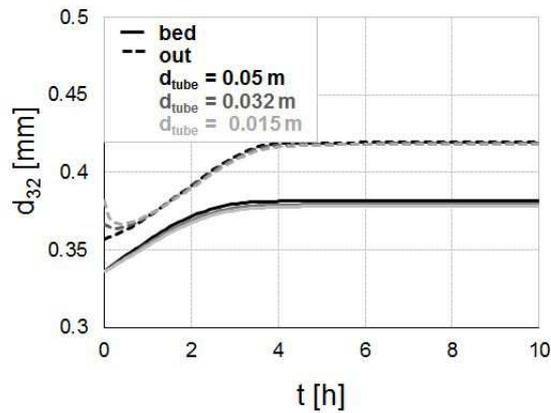
#### 3.2.3.3 Variation der Länge des Klassierrohres

Die Länge des Klassierrohres  $L_{\text{tube}}$  ist eine apparatespezifische Größe und spielt eine bedeutende Rolle in der Praxis. Die Änderung der Länge des Abzugrohres  $L_{\text{tube}}$  hat einen direkten Einfluss auf die im Modell integrierte Trennfunktion (Gleichung 2.43). Die Erhöhung der Länge führt zu einem steileren Verlauf der Trennfunktion, siehe Abbildung 2.6. Die Ergebnisse der Variation dieses Parameters sind auf der Abbildung 3.8 dargestellt.

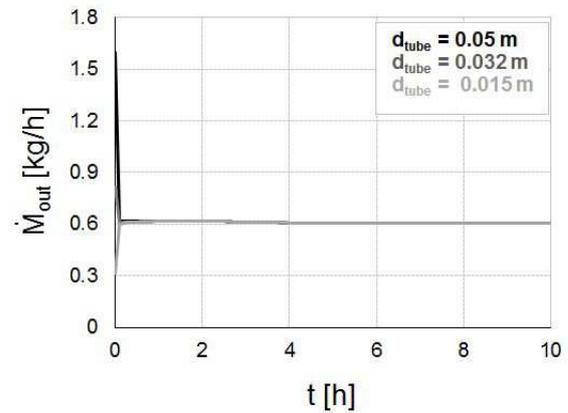
Eine gute Partikelklassierung erzeugt eine sehr enge Verteilung des Produktes, siehe Abbildungen 3.8(d) und 3.8(f). In dieser Verteilung besitzt ein großer Teil der Partikel den gleichen Durchmesser. Da sich die Effektivität des Klassiervorganges mit der Verlängerung des Abzugrohres erhöht, werden aus der Schicht nur gleich große Partikel ausgetragen. Je länger das Rohr ist, desto besser ist der Trenneffekt und umso geringer ist die Varianz der Partikelgrößenverteilungen. Die Erhöhung der Länge führt zu einer Abnahme der Gasgeschwindigkeit im Klassierrohr  $u$ , siehe Abbildung 3.8(c). Dies kann als Folge eines guten Klassiereffekts mit einem geringen Anteil an Fehlaustrag gewertet werden. Hierdurch sinkt die Bettmasse. Zur Konstanthaltung der Bettmasse ist eine Erhöhung der Klassierluftgeschwindigkeit notwendig.

Die berechneten Werten des Sauter-Durchmessers in der Schicht und am Produktaustrag ändern sich mit der Variation von  $L_{\text{tube}}$  nur geringfügig (Abbildung 3.8(a)). Auf der Abbildung

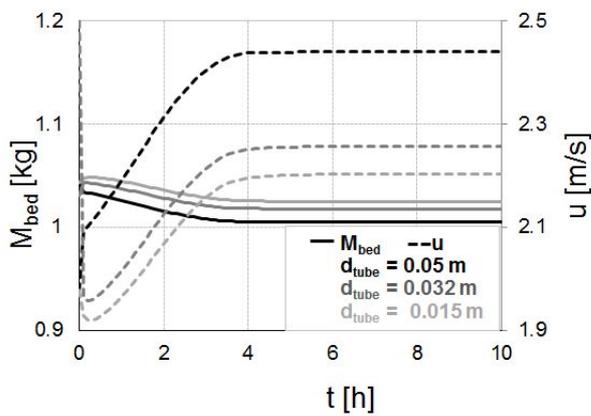
### 3.2 MODELLVERHALTEN BEIM KONTINUIERLICHEN COATINGPROZESS



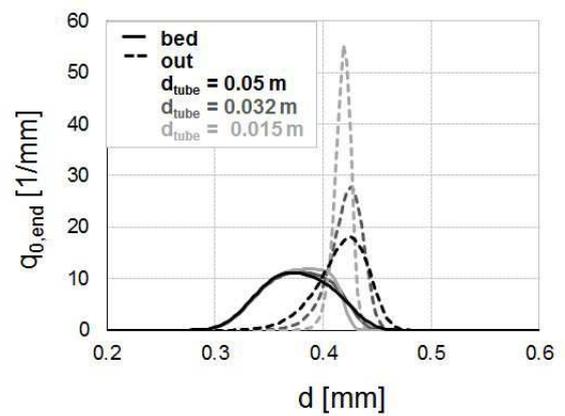
(a) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$



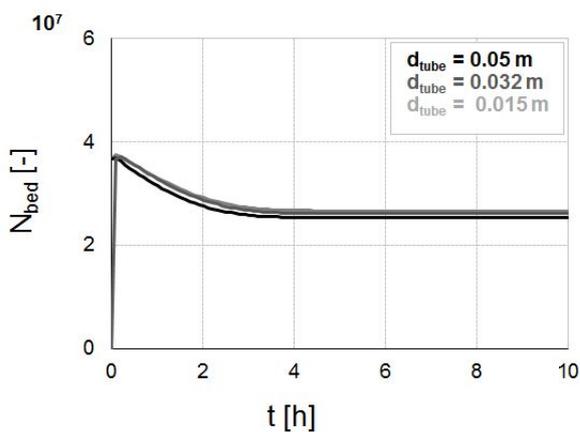
(b) Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



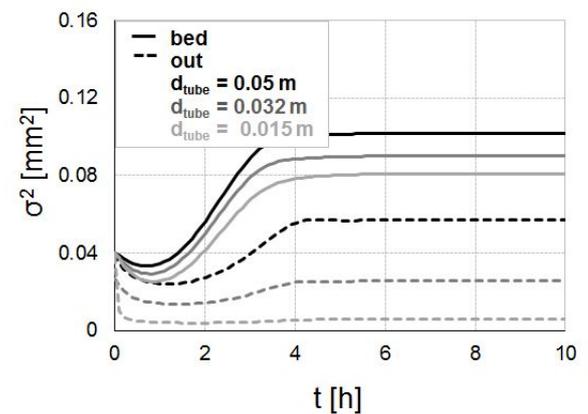
(c) Bettmasse  $M_{bed}$  und Klassierluftgeschwindigkeit  $u$



(d) Anzahldichteverteilungen  $q_{0,end}$  in der Schicht und am Produktaustrag



(e) Partikelanzahl in der Schicht  $N_{bed}$



(f) Varianz der Verteilungen in der Schicht  $\sigma_{bed}^2$  und am Produktaustrag  $\sigma_{out}^2$

Abbildung 3.7: Variation des Abzugsrohrdurchmessers  $d_{tube}$  im Modell für das kontinuierliche Coating.

3.8(e) ist zu erkennen, dass eine größere Länge des Rohrs zu keiner ausgeprägten Änderung in der Partikelanzahl der Schicht und führt.

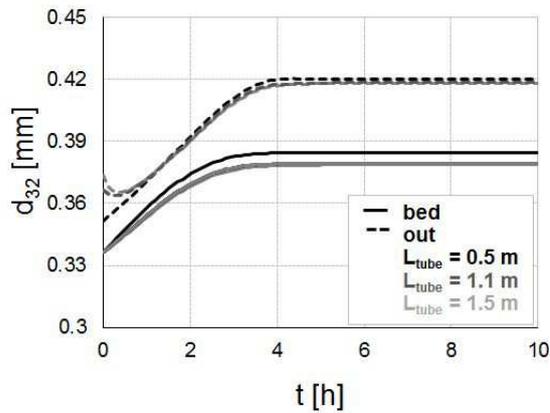
#### 3.2.4 Zusammenfassung der Ergebnisse der Parametervariationen

Zur Prüfung des Modellverhaltens für den kontinuierlichen Coatingprozess wurden einflussreiche Parameter einer Variation unterzogen, welche die Prozesstendenzen aufzeigen soll. Hierfür wurden die Schichtporosität  $\varepsilon_{sh}$ , die Verweilzeit bis zum Auftreffen von Partikeln auf das Klassierrohr  $\tau_3$  und grundlegende Parameter der Trennfunktion T (Turbulenzkonstante  $k_t$ , Durchmesser  $d_{tube}$  und Länge  $L_{tube}$  des Abzugrohres) verändert.

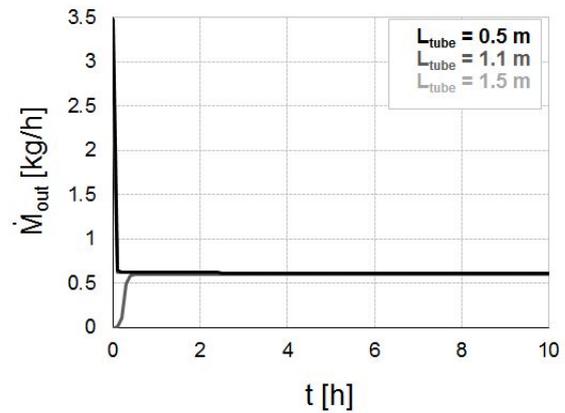
Die Auswertung des Einflusses auf den Coatingprozess wurde für die genannten Parametervariationen anhand der Partikelgröße  $d_{32}$ , des Produktmassenstroms  $\dot{M}_{out}$ , der Bettmasse  $M_{bed}$ , der Anzahldichteverteilungen  $q_0$  der Schicht und des Produktaustrags, der Partikelanzahl in der Schicht  $N_{bed}$  und der Varianz der Anzahldichteverteilungen im Bett  $\sigma_{bed}^2$  und am Produktaustrag  $\sigma_{out}^2$  vorgenommen.

Die Simulationen wurden gesamtheitlich für einen Zeitraum von 10 Stunden vorgenommen, um sowohl das transiente Systemverhalten zu Prozessbeginn als auch das stationäre Verhalten darzustellen.

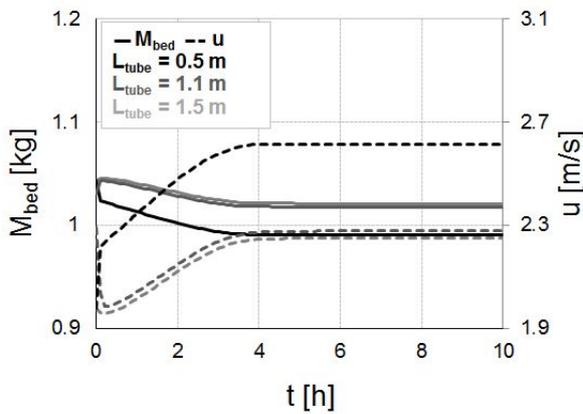
In der Tabelle 3.2 werden qualitative Ergebnisse der Parametervariationen mit Hilfe des kontinuierlichen Prozessmodells wiedergegeben. Hierbei sind bei den Variationen der Trennfunktionsparameter eindeutige Tendenzen zu verzeichnen.



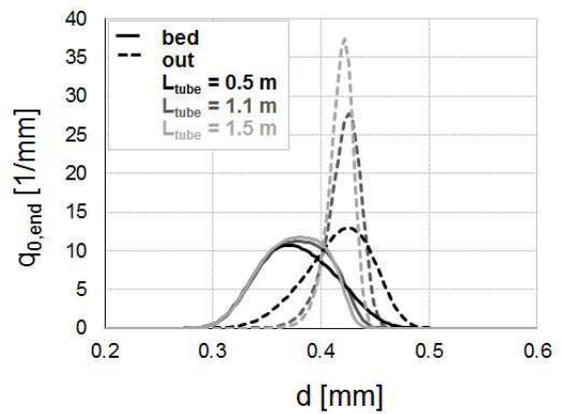
(a) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$



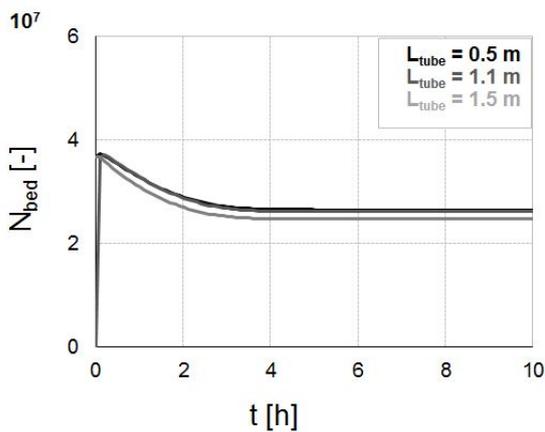
(b) Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



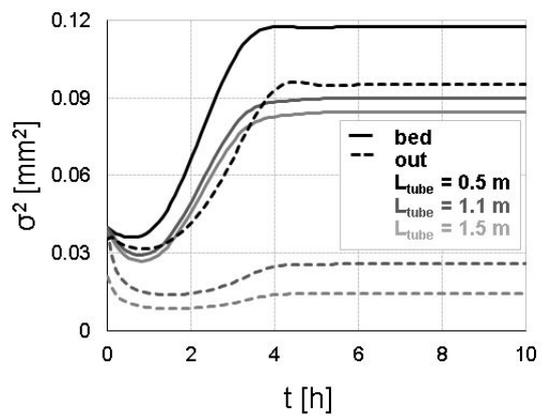
(c) Bettmasse  $M_{bed}$  und Klassierluftgeschwindigkeit  $u$



(d) Anzahldichteverteilungen  $q_{0,end}$  in der Schicht und am Produktaustrag



(e) Partikelanzahl in der Schicht  $N_{bed}$



(f) Varianz der Verteilungen in der Schicht  $\sigma_{bed}^2$  und am Produktaustrag  $\sigma_{out}^2$

Abbildung 3.8: Variation der Länge  $L_{tube}$  von dem Klassierrohr im Modell für das kontinuierliche Coating.

Tabelle 3.2: Aufüstung der Ergebnisse zum Modelverhalten für den kontinuierlichen Coatingprozess.

Parametervariation	Simulationsergebnis	Begründung
Porosität der Schicht $\epsilon_{sh}$	<ul style="list-style-type: none"> <li>Keine ausgeprägten Änderungen in den Produkt- und Prozessparametern</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>Gegenläufige Wirkung des Partikeldurchmessers und der Partikeldichte in der Gleichung der Trennfunktion</li> </ul>
Partikelverweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr $\tau_3$	<ul style="list-style-type: none"> <li>Keine ausgeprägten Änderungen in den Produkt- und Prozessparametern</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>Die Verweilzeit hat keinen direkten Einfluss auf die in dem Modell integrierte Trennfunktion</li> </ul>
Turbulenzkonstante $k_t$	<ul style="list-style-type: none"> <li>Bei erhöhter Turbulenzkonstante nehmen die Klassierluftgeschwindigkeit <math>u</math>, der Sauter-Durchmesser <math>d_{32}</math> in der Schicht und die Breite der Verteilungen zu</li> <li>Mit Erhöhung der Turbulenzkonstante tritt eine leichte Zeiterzögerung des stationären Zustandes auf</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>Erhöhte Turbulenzkonstante führt zu schlechterer Trennung im Klassierrohr mit höherem Fehlastrag</li> <li>Bei höherer Turbulenzkonstante sinkt die Partikelanzahl in der Schicht</li> </ul>
Durchmesser des Klassierrohres $d_{tube}$	<ul style="list-style-type: none"> <li>Mit steigendem Durchmesser sinkt die Partikelanzahl in der Schicht</li> <li>Mit Erhöhung des Durchmessers steigt die Klassierluftgeschwindigkeit <math>u</math></li> <li>Bei erhöhtem Durchmesser werden die Partikelverteilungen breiter</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>Mit Erhöhung des Durchmessers verschiebt sich die Trennfunktion des Klassierrohres, dadurch schlechtere Partikelseparation</li> </ul>
Länge des Klassierrohres $L_{tube}$	<ul style="list-style-type: none"> <li>Die Verlängerung des Klassierrohres führt zu einer leichten Absenkung des Partikeldurchmessers <math>d_{32}</math> in der Schicht</li> <li>Mit steigender Länge des Klassierrohres sinkt die Klassierluftgeschwindigkeit <math>u</math></li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>Mit Erhöhung der Länge verschiebt sich die Trennfunktion des Klassierrohres, dadurch bessere Partikelseparation</li> </ul>

## 4 Experimentelle Grundlagen

In diesem Kapitel wird die Wirbelschichtversuchsanlage und deren Modifizierung zur Durchführung des kontinuierlichen Coatingprozesses ausführlich beschrieben. Es werden die Versuchsmaterialien, die Messtechnik, sowie die für die Untersuchung verschiedener Partikeleigenschaften angewendeten Geräte dargestellt.

### 4.1 Die Wirbelschichtversuchsanlage

Die in diesem Abschnitt dargestellte Anlage wurde für die Durchführung des diskontinuierlichen und kontinuierlichen Beschichtungsprozesses verwendet. Hierfür wurde ein Wurster-Apparat gewählt, dessen Funktionsprinzip in Abbildungen 1.3 und 1.5 dargestellt wird. Das Fließschema der verwendeten Wirbelschichtversuchsanlage wird in Abbildung 4.2 präsentiert. Das Wursterverfahren wird im Allgemeinen industriell zum Layering (Granulation arteigenen Kernmaterials) und Coating von Pellets (teilweise auch von Tabletten) angewendet.

Zur Untersuchung des Coatingprozesses wurde die Wirbelschichtanlage Procell der Firma Glatt GmbH verwendet (siehe Abbildung 4.1). Die Anlage kann für Machbarkeitsstudien im Bereich Trocknung, Granulation, Agglomeration und Coating bis zu einem Schichtvolumen von 20 l eingesetzt werden. Vorteilhaft ist hierbei, dass der Prozessraum schwenk- und klappbar ist und damit eine vollständige Entleerung der Schicht ermöglicht. Für den Flüssigkeitseintrag in die Schicht wird eine konzentrisch angeordnete Zweistoffdüse in Top- oder Bottom-Spray-Konfiguration verwendet. Das Kernstück der Anlage bildet eine Wirbelkammer, die eine konische Form aufweist, siehe Abbildung 1.5. Die Anlagenparameter können aus der Abbildung D.1 im Anhang entnommen werden.

Der Granuliereinsatz kann um 180° gedreht werden, so dass das Einfüllen des Materials erleichtert wird. Die maximal erreichbare Gaseintrittstemperatur beträgt 200°C. Thermoelemente für die Bestimmung der Gastemperatur sind unter dem Anströmboden, sowie im Wirbelbett und oberhalb der Schicht installiert. Die Absolutdrücke in der Anlage werden vor dem Anströmboden und oberhalb der Wirbelschicht erfasst. Die Fluidisierung erfolgt mit konditionierter (vorgetrockneter) Luft, um Witterungseinflüsse zu minimieren. Hierfür steht eine Luftkonditionierungsanlage der Fa. MUNTERS, Typ ML270, zur Verfügung.

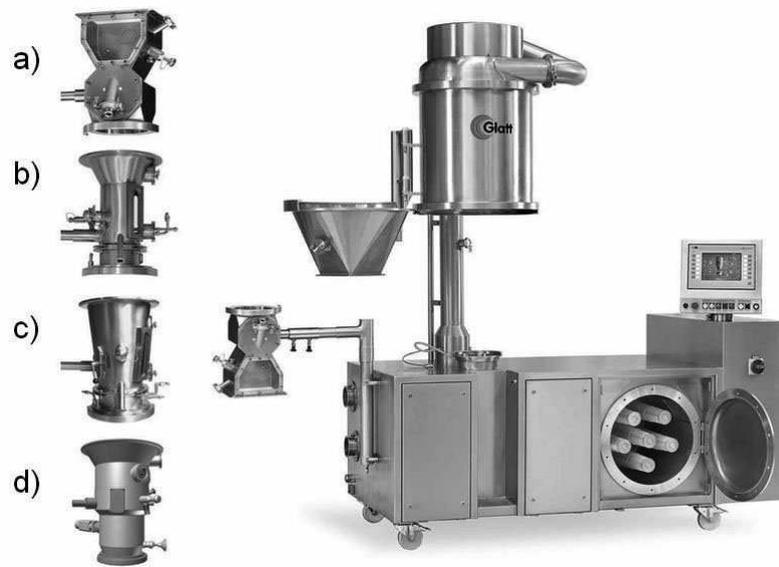


Abbildung 4.1: Versuchsanlage mit vier unterschiedlichen Einsatzmöglichkeiten; a) Strahlschicht, b) Wirbelschicht, zylindrisch; c) Wirbelschicht, konisch mit Wurstein-einsatz; d) Wirbelschicht mit tangentialem Spray (Glatt GmbH).

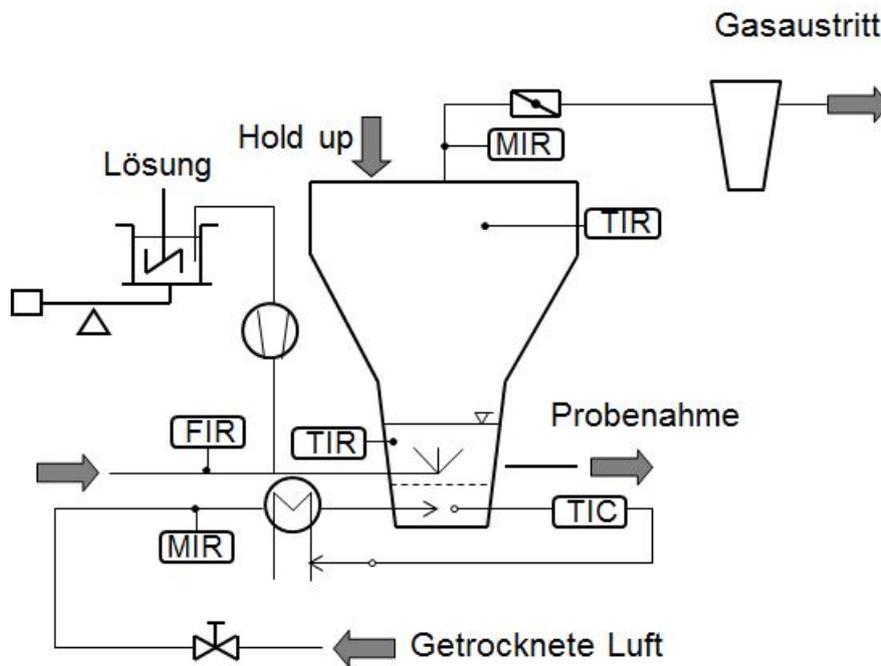


Abbildung 4.2: Fließschema der Wirbelschichtanlage.

Der Gasverteiler der Anlage mit der Wurster-Konfiguration besteht aus einer Sintermetallplatte, die aus Edelstahl gefertigt ist. Der Bodenverteiler ist in Zonen mit unterschiedlicher Porengröße geteilt, siehe Abbildung 5.1. Der Einfluss der Größe und die Verteilung der Poren auf den Prozess und die Produkteigenschaften ist in Abschnitt 5.1.1 analysiert. In der Mitte des Verteilers ist eine außenmischende Zweistoffdüse Typ 970/0 S4 der Firma Düsen-Schlick GmbH vorhanden, die im Bottom-Spray arbeitet. Diese ist in einer Höhe von 60 mm oberhalb des Anströmbodens angeordnet. Die Sprühflüssigkeit wird mit Hilfe einer Kolbenpumpe (Typ LDP-31, Fa. Labortechnik Sewald) gefördert, womit ein konstanter Flüssigkeitsstrom gewährleistet werden kann.

Im Wursterrohr befindet sich die Zweistoffdüse. Die Höhe des Rohres kann zwischen 0 und 60 mm gewählt werden. Die genauen Abmessungen des Wursterrohres sind im Anhang D auf der Abbildung D.1 schematisch dargestellt und aufgelistet.

Die Abscheidung ausgetragener Staubpartikel wird mit Hilfe eines der Wirbelschichtkammer nachgeschalteten Zyklons vorgenommen.

Die Versuchsparameter werden mit Hilfe einer speicherprogrammierbaren Steuerung im Verlauf der Experimente konstant gehalten. Auf diese Weise werden die Gaseintrittstemperatur, der Absolutdruck und der Gasdurchsatz reguliert. Zur Aufzeichnung der Prozessgrößen wie Gas- und Betttemperatur, Gasfeuchten, Absolutdrücke, eingedüste Lösungsmasse, Luftmassenstrom und Bettmasse ist ein zusätzliches Messwerterfassungssystem Typ ISK 100, Fa. GANTNER, an der Anlage installiert. Die Prozessdaten werden in einem Zeitintervall von 10 s (diskontinuierlicher Fall) bzw. 30 s (kontinuierlicher Fall) aufgezeichnet und datentechnisch gespeichert.

## 4.2 Modifizierung der Anlage für den kontinuierlichen Betrieb

Um den kontinuierlichen Betrieb an der Wirbelschichtanlage (siehe Abbildungen 4.1 und 4.2) durchzuführen, wurde der Granulator modifiziert, siehe Abbildung 4.3. Der Produktaustrag wurde mit Hilfe eines am Granulator eingebauten, optionalen externen Klassierrohres realisiert. Dieses ist aus Stahl hergestellt und hat eine Länge  $L_{\text{tube}}$  von 1.1 m, sowie einen Durchmesser  $d_{\text{tube}}$  von 0.032 m. Der Klassiervorgang wird mit Hilfe von das Klassierrohr durchströmender Klassierluft realisiert. Der Gasmassenstrom, bzw. die Luftgeschwindigkeit  $u$  wird mit einem Drosselventil und einem Mass Flow Messer des Typs IP40, Fa. Bronkhorst Mättig, gemessen, wobei die Geschwindigkeit zwischen 0-10 m/s variiert werden kann. Der Partikelstrom in das Klassierrohr ist auf der Abbildung 4.3 mit 1 gekennzeichnet, so dass es gilt:  $\dot{M}_1 = \dot{M}_{\text{out}}$ , vgl. Abbildung 2.4. Nach dem Klassierrohr teilt sich dieser Strom in Strom 2 der zurückgeführten

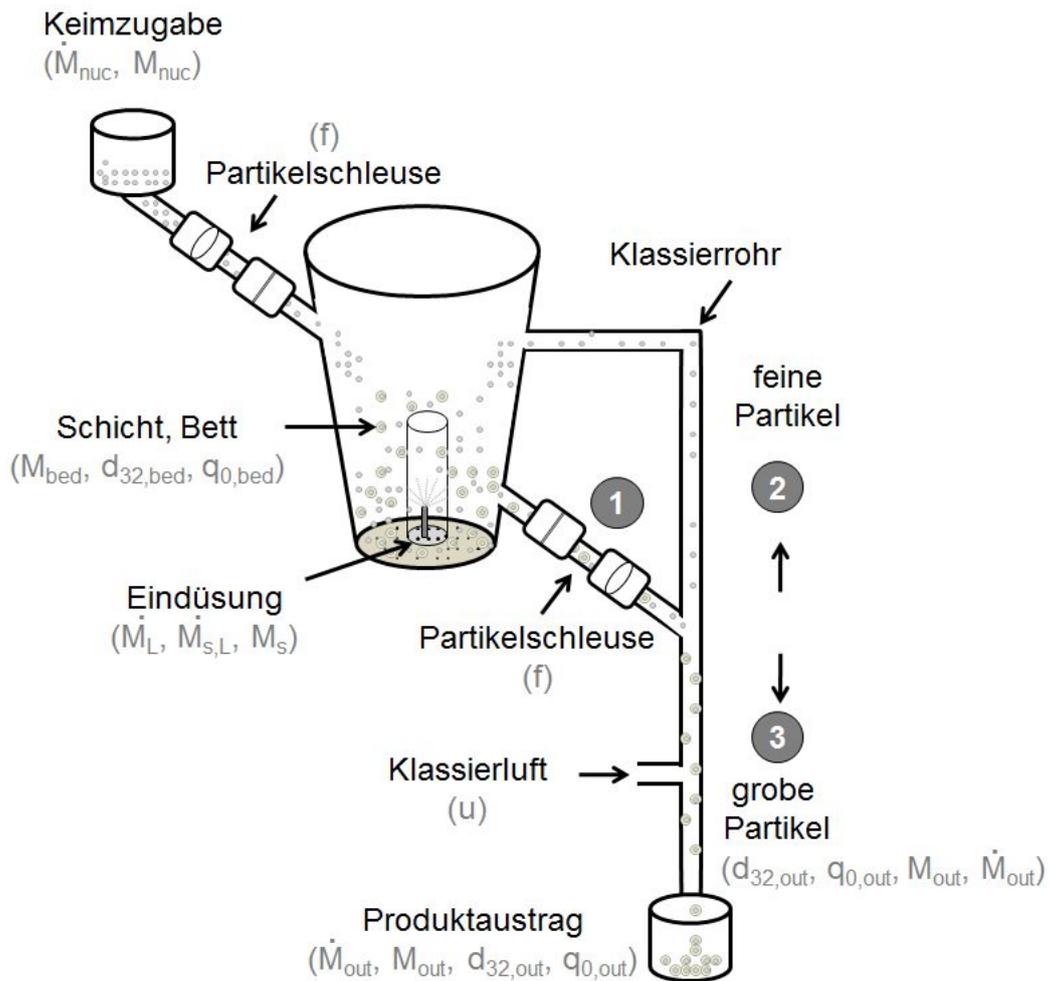


Abbildung 4.3: Schematische Darstellung der Modifikation an der Wirbelschichtanlage mit Wurstereinsatz.

feinen Partikel ( $\dot{M}_2 = \dot{M}_{rec}$ ) und Strom 3 der gröberen abgeführten Produktpartikel ( $\dot{M}_3 = \dot{M}_{out}$ ). Daher gilt folgendes:

$$\dot{M}_{tube}(1) = \dot{M}_{rec}(2) + \dot{M}_{out}(3) \quad . \quad (4.1)$$

Im eingebauten Rohr wurde ein zusätzliches Thermoelement integriert. Die Überwachung und Kontrolle der Prozessparameter in der Klassiereinrichtung wird mit Hilfe des integrierten Messrechners ermöglicht. Die Partikel wirbeln in der Schicht und treffen gelegentlich auf die Öffnung des Zulaufs zum Klassierrohr. Dort werden sie nach ihrer Sinkgeschwindigkeit bzw. ihrer aufgetragenen Schichtdicke gesichtet. Partikel, deren Sinkgeschwindigkeit bzw. Schichtdicke kleiner sind als die Zielgröße entsprechend der Klassierluftgeschwindigkeit, kehren zurück in die Schicht. Die anderen Partikel werden als Produkt in einen Sammelbehälter ausgetragen.

Um kontinuierlich einen Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$  auszutragen, werden parallel kontinuierlich neue Keime des Trägermaterials  $\dot{M}_{nuc}$  zugegeben. Der Austrag und die Zugabe von Partikeln werden mit Hilfe von Partikelschleusesystemen realisiert. Funktionsweise und Beschreibung dieser Systeme aus Quetschventilen der Fa. AKO GmbH sind in den Abschnitten 4.2.1 und 4.2.2 detailliert dargestellt.

#### 4.2.1 Das System für kontinuierlichen Produktaustrag

Der kontinuierliche Partikelaustrag ist an der vorliegenden Anlage mit Hilfe eines Partikelschleusesystems mit zwei Quetschventilen realisiert (siehe Abbildung 4.4). Die gemessenen Abstände zwischen allen Bestandteilen sind auf der Abbildung D.2 im Anhang dargestellt. Die beiden Ventile arbeiten asynchron, so dass stets ein Ventil geöffnet während das andere geschlossen ist. Die Taktfrequenz  $f$  des Umschaltens ist bei beiden Ventilen gleich. Dadurch werden die Partikel direkt durch die Schleuse in das Klassierrohr transportiert. Die quasi kontinuierliche Förderung der Partikel durch die Schleuse wird volumetrisch realisiert. Eine Änderung der Frequenz der Ventile führt somit zur Änderung in der Menge an geförderten Partikeln. Die experimentelle Untersuchung dieses Einflusses ist in Abbildung 4.5 illustriert, und die dazu gehörigen Versuchsparameter sind in der Tabelle 4.1 aufgelistet. Mit unterschiedlichen Taktfrequenzen der Schleuse wurden hierbei Partikel durch die Schleuse transportiert. Dabei wurde weder Klassierluft eingesetzt, noch wurden externe Partikel oder Feststoff durch Sprühflüssigkeit in das System eingebracht. Als Versuchsmaterial wurden kugelförmige Partikel aus mikrokristalliner Zellulose (siehe Abschnitt 4.3) verwendet. Die Masse der als Produkt ausgetragenen Partikel wurde für ein Taktintervall gravimetrisch ermittelt.

In Abbildung 4.5 ist zu erkennen, dass eine Erhöhung der Taktfrequenz  $f$  zu einer Absenkung der geförderten Partikelmasse  $M_{out}$  führt. Bei Frequenzen unter 1 Hz tritt keine deutliche Änderung der Partikelmasse auf. Der Grund hierfür ist, dass die Umschaltintervalle dann ausreichend lang sind, um den Raum zwischen den beiden Ventilen vollständig mit Partikeln zu

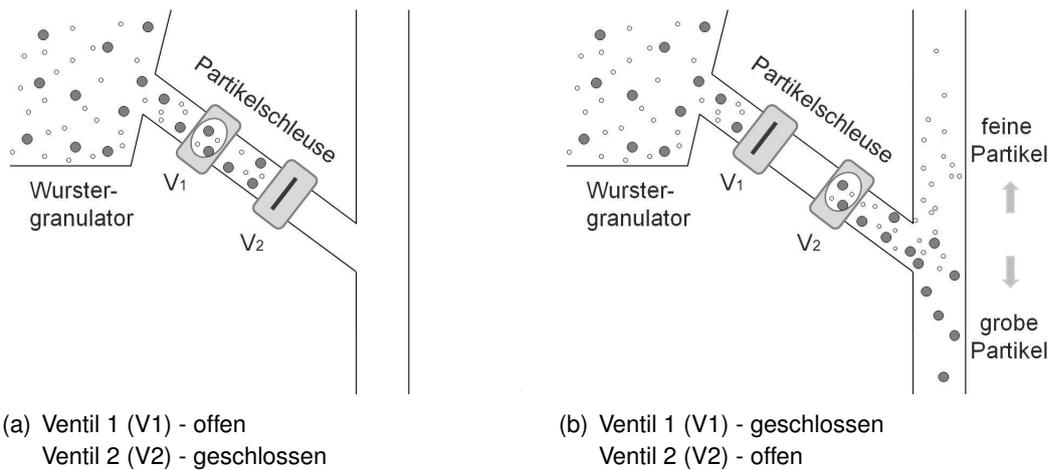


Abbildung 4.4: Funktionsprinzip der Partikelschleuse zum Austrag der Schichtpartikel in eine externe Klassiereinheit; (a) Füllen der Schleuse, (b) Entleeren der Schleuse.

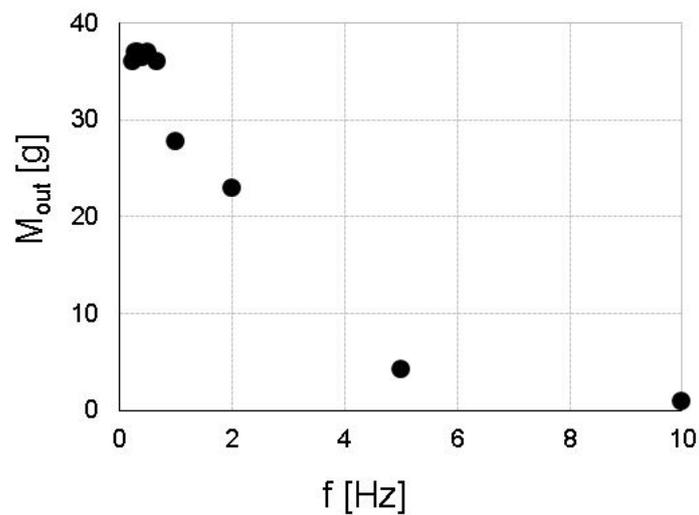


Abbildung 4.5: Darstellung des Partikelaustrags während eines Taktintervalls in Abhängigkeit der Taktfrequenz.

Tabelle 4.1: Betriebsparameter zur Überprüfung des Systems für den kontinuierlichen Produktaustrag.

Symbol	Parameter	Wert	Einheit
Gaseintrittstemperatur	$v_{g,in}$	25	°C
Gasdurchsatz	$\dot{M}_g$	70	kg/h
Anfangsbettmasse	$M_{bed}$	1	kg

befüllen, bzw. das maximale Füllvolumen zu erreichen.

Mit einer Erhöhung der Frequenzen werden die Zeitintervalle beim Umschalten der Ventile kürzer, und der Raum zwischen den Ventilen wird mit einer geringeren Partikelmasse gefüllt. Bei der Taktfrequenz von 10 Hz sind die Umschaltintervalle so kurz, dass nahezu keine Partikel in den Zwischenraum fallen.

Die Beaufschlagung des Klassierrohres spielt eine entscheidende Rolle für die Partikelseparation, so dass durch Einstellung der Taktung der Schleuse hierauf Einfluss genommen werden kann. Dieser Parameter wird in der Trennfunktion des Modelles im Abschnitt 2.4.1 nicht berücksichtigt.

Um eine bessere Effektivität des Systems für kontinuierlichen Produktaustrag zu erzielen, wurden eine Reihe von experimentellen Untersuchungen durchgeführt. Wichtige Merkmale hierbei sind:

- die Trennschärfe am Produktaustrag,
- die Austragsdauer der Partikel mit der gewünschten Größe des Produktes.

#### 4.2.1.1 Ermittlung der Trennschärfe am Produktaustrag

Für diese Untersuchung wurde eine breite Partikelanzahlverteilung (Partikelgröße von 0.2 bis 0.8 mm, siehe Abbildung 4.7) aus mit Natriumbenzoat beschichteten Cellets (siehe Abschnitt 4.3) genutzt. Dabei wurde die Gasgeschwindigkeit in dem Klassierrohr konstant gehalten und gleichzeitig die Partikelschüttung in Produkt und feine Fraktion klassiert. Um den Einfluss der Taktfrequenz auf den Trenneffekt zu untersuchen, wurde die Taktfrequenz von 1, 2, 4, 5, 7 Hz bis 10 Hz variiert. Diese Untersuchung ist in Abbildung 4.6(a) schematisch illustriert, wobei Abbildung 4.6(b) die Ergebnisse davon darstellt. Die Versuchsparameter wurden von der Tabelle 4.1 übernommen. Dabei wurde die Klassierluftgeschwindigkeit  $u$  konstant bei 2.5 m/s gehalten. In Abbildung 4.6(b) ist zu erkennen, dass sich die Trennschärfe  $\kappa$  im Klassierrohr mit der Zunahme der Taktfrequenz erhöht. Grund hierfür ist, dass mit steigender Taktfrequenz  $f$  die Menge an Partikeln, die klassiert werden müssen, sinkt. Eine ausreichend gute Trennschärfe von  $\kappa > 0.9$  wird bei Taktfrequenzen  $f > 7$  Hz erreicht. Die Definition der Trennschärfe  $\kappa$  wurde in Abschnitt 2.4.1 beschrieben. Die experimentell ermittelte Trennfunktion wurde mit Hilfe folgender Gleichung berechnet:

$$T(d) = \frac{1 - q_{FP}(d)/q_{IP}(d)}{1 - q_{FP}(d)/q_{CP}(d)}, \quad (4.2)$$

wo  $q_{FP}$ ,  $q_{CP}$  und  $q_{IP}$  entsprechend die Partikelgrößenverteilungen des Feinprodukts, des Produktes und des Ausgangsmaterials kennzeichnen. Im Fall, dass die Partikelgrößenverteilung am Produktaustrag sehr eng ist, hat die Trennschärfe  $\kappa$  meist einen Wert größer als 0.9.

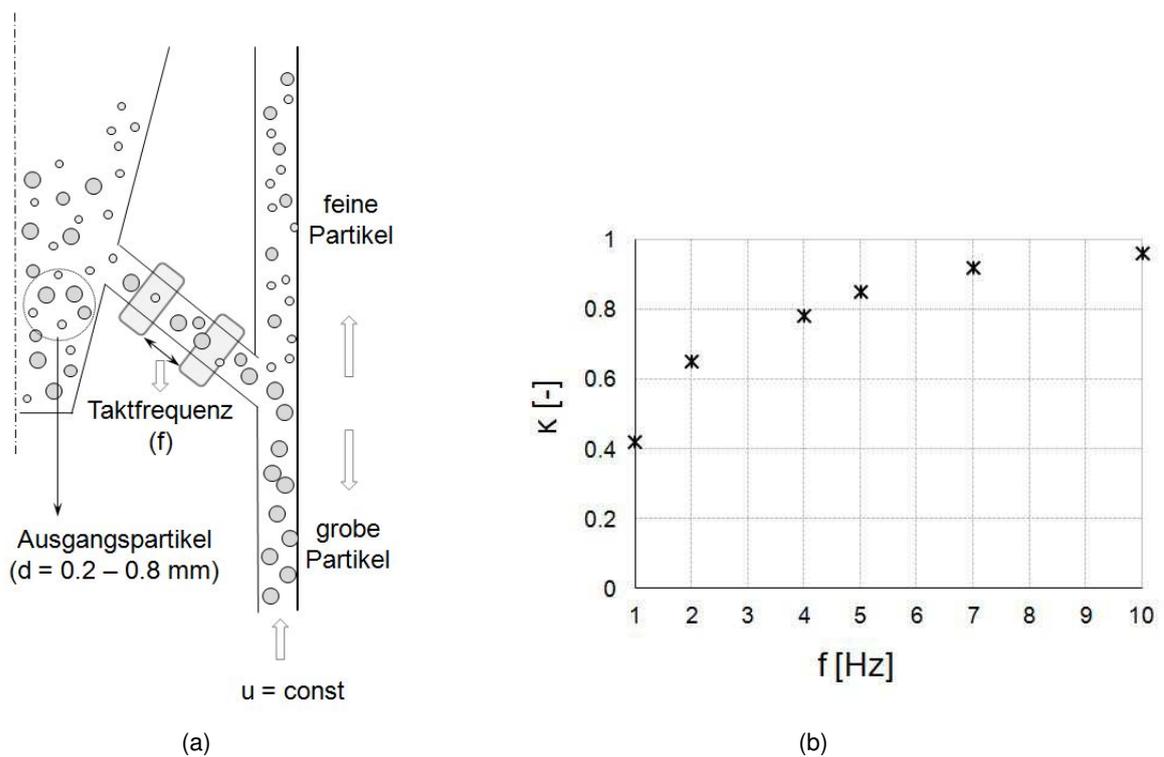


Abbildung 4.6: Ermittlung der Trennschärfe für eine breite Partikelgrößenverteilung in Abhängigkeit der Taktfrequenz der Partikelschleuse: (a) schematische Darstellung der Experimente und (b) quantitative Ergebnisse der Untersuchung.

Die Partikelgrößenverteilungen in der Schicht und am Produktaustrag bei drei unterschiedlichen Taktfrequenzen – 2 Hz, 7 Hz und 10 Hz – sind in Abbildung 4.7 dargestellt. Hierbei ist zu erkennen, dass die Verteilungen am Produktaustrag mit der Erhöhung der Taktfrequenz enger werden und sich in Richtung größerer Partikeldurchmesser verschieben. Die schmalen Verteilungen lassen sich mit einem abgesenkten Partikelstrom im Austrag und dadurch mit einem präziseren Trenneffekt erklären. Die Verschiebung der Partikelgrößenverteilungen ist eine Folge des besseren Klassiervorgangs, d.h. geringeren Fehlaustrags feiner Partikel.

#### 4.2.1.2 Ermittlung der Austragsdauer des Produktes

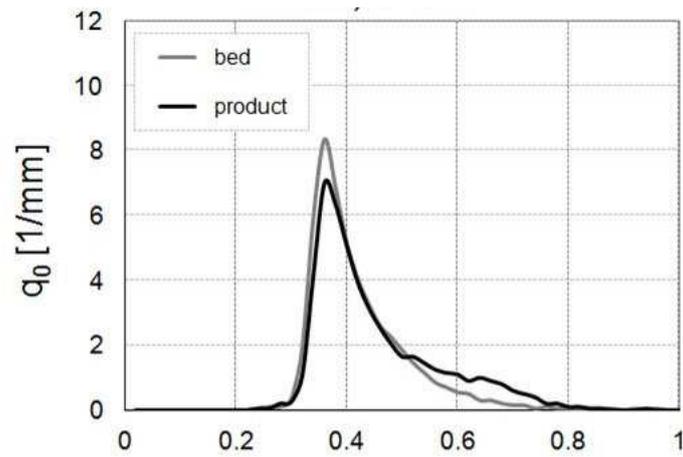
Um die Limitierung der Partikelumwälzung durch die Taktfrequenz  $f$  zu untersuchen, wurden Messungen zur Ermittlung der Austragsdauer des Produktes durchgeführt. Hierfür wurde eine Partikelmischung aus zwei Partikelfractionen vorbereitet – feine und grobe kugelförmige Partikel aus mikrokristalliner Zellulose (siehe Abschnitt 4.3) mit einer mittleren Korngröße von entsprechend 0.2 mm und 0.6 mm.

Die Partikelschüttung aus feinen und groben Partikeln lag in einem Verhältnis von 1:1 vor. Die groben Partikel wurden farblich (rot), als Tracer gekennzeichnet. Die Partikelmischung wurde bei konstanter Gasgeschwindigkeit  $u = 2.5$  m/s in dem Abzugsrohr klassiert (siehe Abbildung 4.8(b)). Die Versuchsparameter wurden von der Tabelle 4.1 übernommen. Hierbei wurde die Taktfrequenz von 4 Hz, 5 Hz, 7 Hz bis 10 Hz variiert. In bestimmten Zeitintervallen wurde die ausgetragene Produktmasse gravimetrisch ermittelt. Die Partikel waren alle rot, d.h. die Trennschärfe  $\kappa$  des Prozesses lag bei nahezu 1. Die restliche Menge an Tracer-Partikeln in der Schicht kann wie folgt berechnet werden:

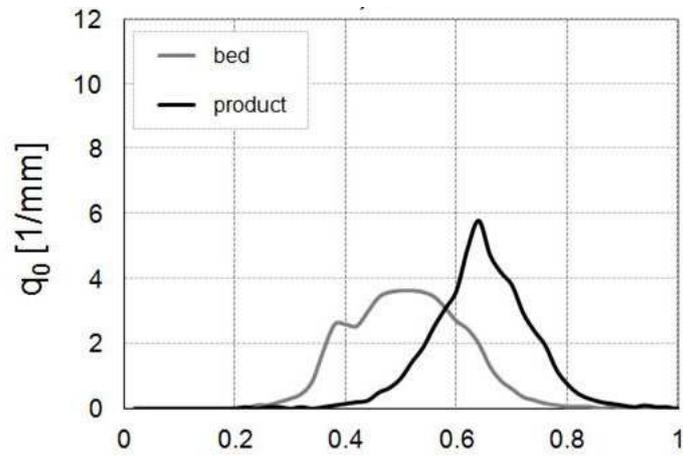
$$M_{T,bed}(t) = M_{T,bed}(t = 0) - M_{T,out}(t) \quad . \quad (4.3)$$

Die Ergebnisse stellen das Verhältnis der sinkenden Tracermasse in der Schicht  $M_{T,bed}(t)$  zur Ausgangstracermasse  $M_{T,bed}(t = 0)$  dar. In Abbildung 4.8(b) ist dieses Verhältnis über die Zeit bei unterschiedlichen Taktfrequenzen  $f$  illustriert. Hierbei ist zu erkennen, dass sich die Austragsdauer von Tracer mit der Zunahme der Taktfrequenz deutlich erhöht.

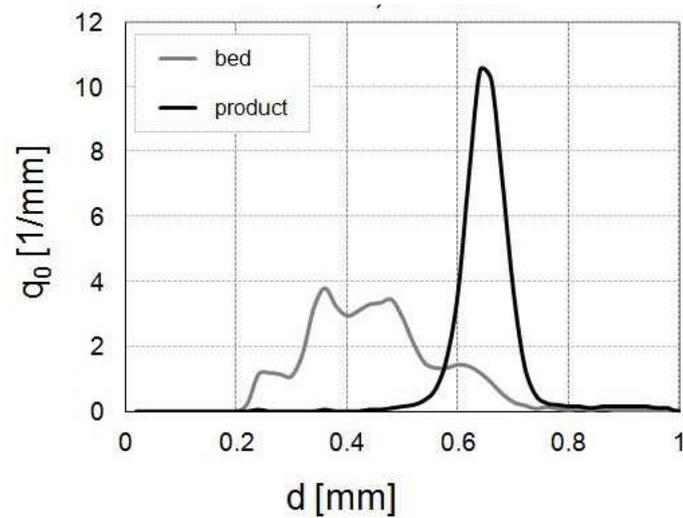
Das Ziel der Arbeit ist, einen maximalen Produktaustrag mit einer guten Klassierung der Partikel zu realisieren. Die maximal erzielte Trennschärfe bei einer Taktfrequenz von  $f = 10$  Hz ist nicht optimal, da sie zu einer Verzögerung des Produktaustrags und zur weiteren Partikelumwälzung in der Wirbelschicht führt. Für die durchgeführten kontinuierlichen Versuche wurde die Taktfrequenz von 7 Hz ausgewählt, als Kompromisslösung zwischen einer ausreichend guten Trennschärfe und hohem Produktstrom. Bei dieser Frequenz ist zu erkennen, dass innerhalb von 35 min ein sehr großer Anteil, nämlich 70 % der Tracer-Partikel, als Produkt separiert wurde.



(a)  $f_{V1} = f_{V2} = 2 \text{ Hz}$ ,  $\kappa = 0.4$



(b)  $f_{V1} = f_{V2} = 7 \text{ Hz}$ ,  $\kappa = 0.8$



(c)  $f_{V1} = f_{V2} = 10 \text{ Hz}$ ,  $\kappa = 0.9$

Abbildung 4.7: Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht und am Produktaustrag bei unterschiedlichen Taktfrequenzen  $f$ .

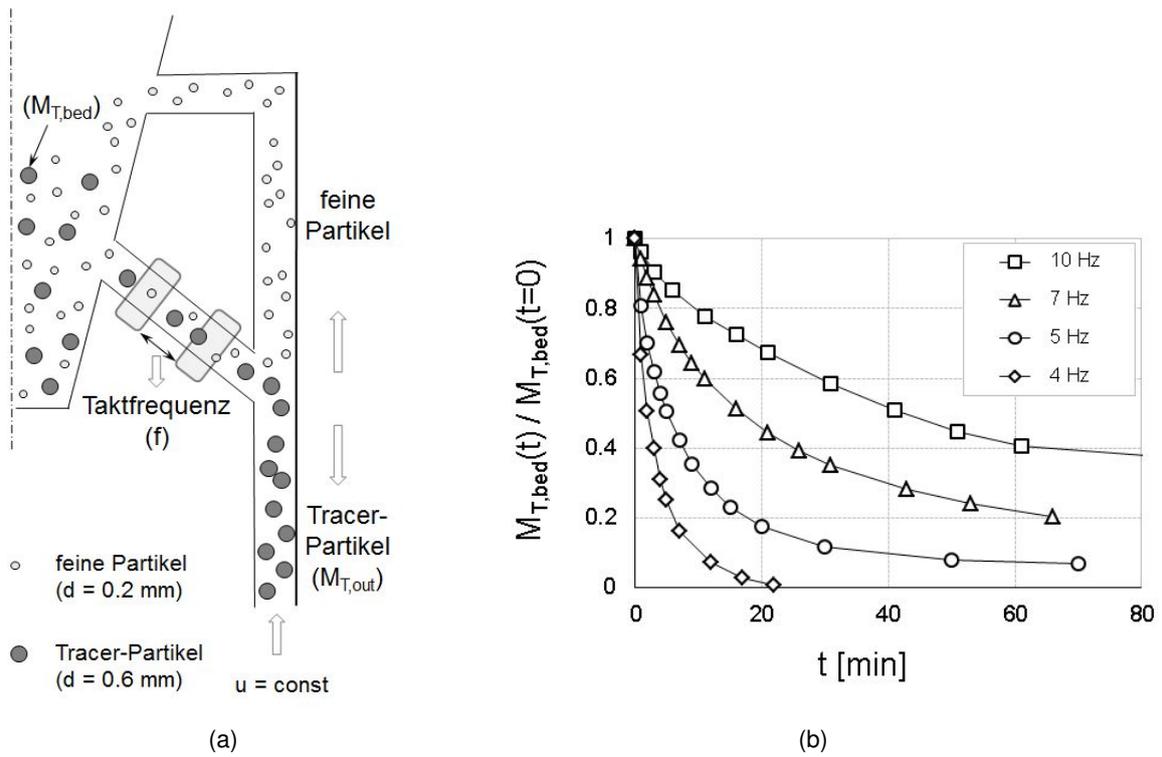


Abbildung 4.8: Ermittlung der Austragsdauer in Abhängigkeit von der Taktfrequenz der Partikelschleuse: (a) schematische Darstellung der Experimente und (b) quantitative Ergebnisse der Untersuchung.

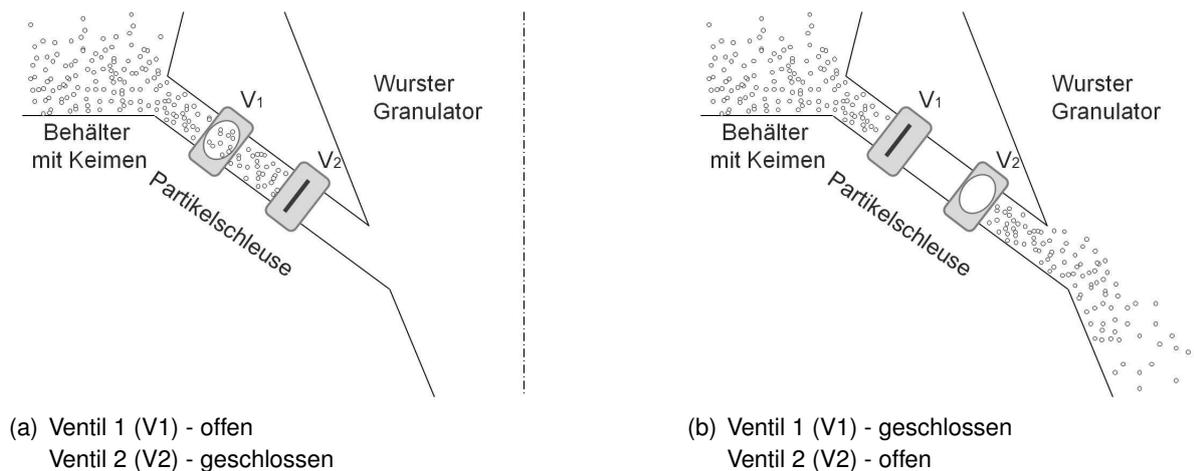


Abbildung 4.9: Funktionsprinzip der Partikelschleuse bei der Keimzugabe in die Schicht; (a) Füllen der Schleuse, (b) Entleeren der Schleuse.

#### 4.2.2 Das System für kontinuierliche Keimzugabe

Nach einer umfangreichen Marktrecherche wurde kein passendes Dosiersystem, welches eine geeignete kontinuierliche Keimzugabe realisieren kann, gefunden. Aus diesem Grund wurde ein System aus zwei Quetschventilen an die Wirbelschichtanlage angebracht. Mit der Variation der Taktfrequenz der beiden Quetschventile konnte die gewünschte Menge von Keimen zudosiert werden. Das Funktionsprinzip der Taktventile ist ähnlich wie für den kontinuierlichen Produktaustrag (siehe Abschnitt 4.2.1) und in Abbildung 4.9 dargestellt.

Wie im System für den kontinuierlichen Produktaustrag, arbeiten die beiden Ventile bei der Keimzugabe ebenfalls asynchron, aber mit unterschiedlichen Taktfrequenzen. Um eine schlagartige Änderung der Bettmasse, d.h. des Druckverlustes in der Schicht, zu verhindern, wurde eine Funktionsweise der Ventile mit geringen Frequenzen und dementsprechend geringerer Partikelmasse pro Takt ausgewählt. Aus diesem Grund arbeitet Ventil 2 immer mit einer hohen Frequenz. Mit unterschiedlichen Frequenzen des Ventils 1 ist es somit möglich, eine gezielte Zugabe an Keimen genau einzustellen.

Es wurde der Keimzugabestrom  $\dot{M}_{\text{NUC}}$  bei unterschiedlichen Frequenzen des Ventils 1 untersucht. Dabei wurde die Taktfrequenz des Ventils 2 konstant bei 10 Hz gehalten. Die Erhöhung der Frequenz von Ventil 1 bedeutet, dass sich die Zeitdauer im offenen Zustand des Ventiles verkürzt hat. Damit nimmt die Menge an zugegebenen Keimen ab.

Durch die Einstellung der Taktfrequenz der Ventile kann die gewünschte Menge an Keimen erreicht werden. Um die Reproduzierbarkeit dieser Ergebnisse zu überprüfen, wurde die Masse der Partikel aus zudosierter mikrokristalliner Zellulose (siehe Abschnitt 4.3) bei unterschiedlichen Zeitintervallen gravimetrisch ermittelt, um dadurch den Partikelstrom zu berechnen. Da-

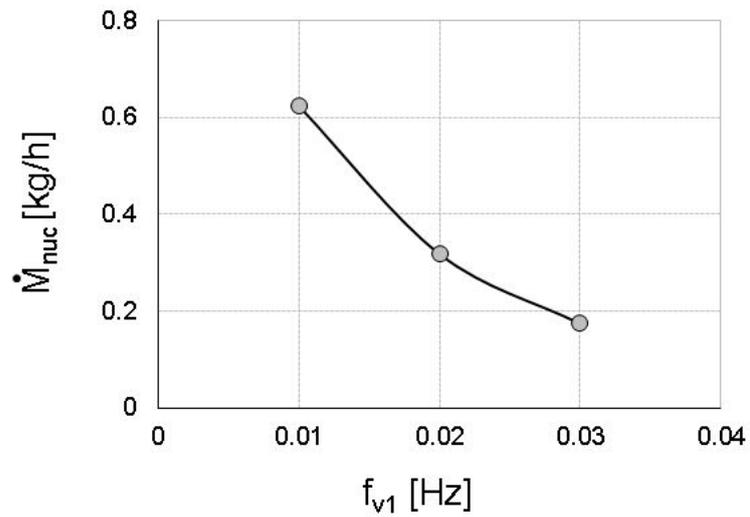


Abbildung 4.10: Massenstrom an zugegebenen Keimen  $\dot{M}_{nuc}$  in Abhängigkeit von der Taktfrequenz des Ventils 1 bei einer konstanten Taktfrequenz des Ventils 2 –  $f_{v2} = 10$  Hz.

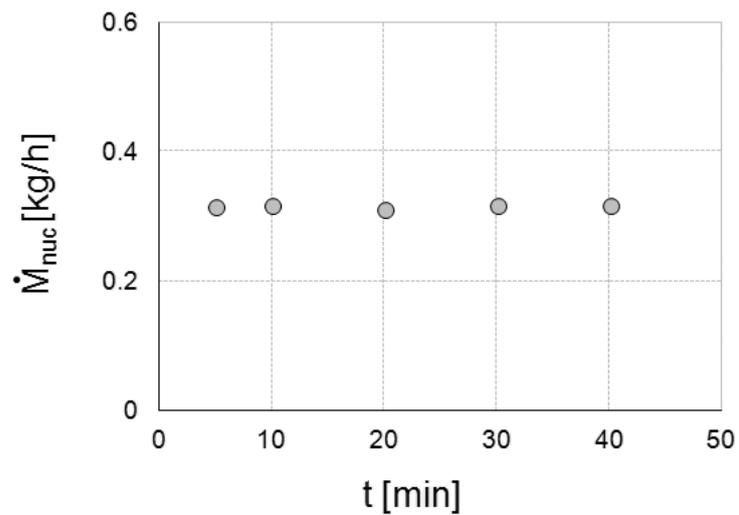


Abbildung 4.11: Überprüfung der zeitlichen Konstanz der Keimzugaberrate  $\dot{M}_{nuc}$ .

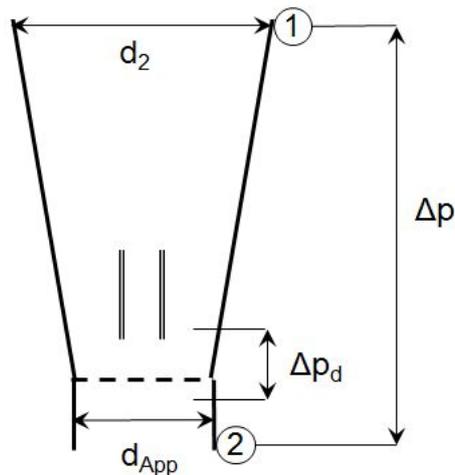


Abbildung 4.12: Darstellung der Vermessung des Druckverlustes in der Wirbelschichtversuchsanlage.

bei wurden die Taktfrequenzen der beiden Ventile konstant gehalten, d.h.  $f_{v1} = 0.02$  Hz und  $f_{v2} = 10$  Hz. Die dabei verwendeten Betriebsparameter sind in der Tabelle 4.1 aufgelistet. Die experimentellen Daten sind in Abbildung 4.11 illustriert und bleiben mit der Zeit unverändert. Diese Möglichkeit der Einstellung bildet die Grundlage für die Durchführung kontinuierlicher Coatingversuche mit einer guten Genauigkeit und Zuverlässigkeit in der Funktionsweise des Systems für die kontinuierliche Keimzugabe. Für die durchgeführten kontinuierlichen Coatingversuche, die in Abschnitt 5.3 dargestellt sind, wurden die Taktfrequenzen der Ventile  $f_{v1} = 0.02$  Hz und  $f_{v2} = 10$  Hz verwendet.

## 4.2.3 Berechnung und Steuerung der Bettmasse

### 4.2.3.1 Berechnung der Bettmasse

Im kontinuierlichen Wirbelschichtcoating ist eine konstante Partikelbettmasse aus Gründen der Partikelverweilzeit, der maximalen Ausnutzung der Kapazität der Anlage und des verringerten Energiebedarfs vorteilhaft. In der vorliegenden Arbeit wurde die aktuelle Partikelmasse im Granulator mit Hilfe der Vermessung des Druckverlustes in der Schicht ermittelt. Die schematische Darstellung der Vermessung des Druckverlustes in der Anlage wird in der Abbildung 4.12 illustriert. Die Angaben der entsprechenden Apparatedurchmesser sind im Anhand D auf Abbildung D.1 zu finden. Der Gesamtdruckverlust  $\Delta p$  der Wirbelschichtanlage setzt sich additiv aus dem Schichtdruckverlust  $\Delta p_{bed}$ , dem kinetischen Druckverlust  $\Delta p_{kin}$  und dem Druckverlust des Verteilerbodens  $\Delta p_d$  zusammen:

$$\Delta p = \Delta p_{bed} + \Delta p_{kin} + \Delta p_d \quad (4.4)$$

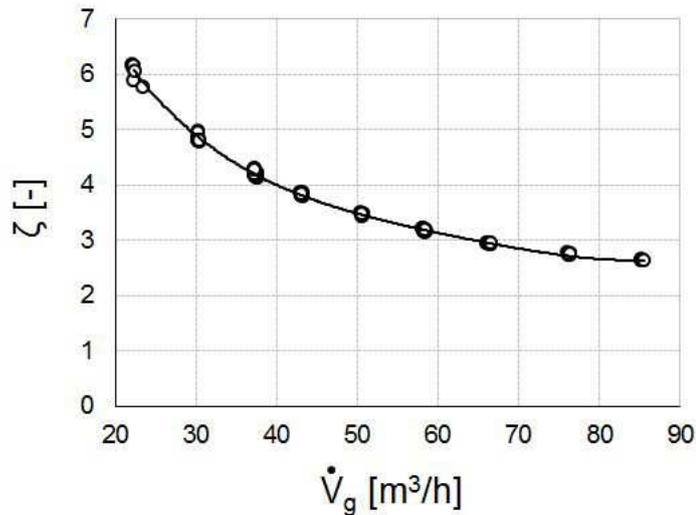


Abbildung 4.13: Abhängigkeit des Widerstandsbeiwertes  $\zeta$  vom Gasdurchsatz  $\dot{V}_g$ .

Der Gesamtdruckverlust  $\Delta p$  in der vorhandenen Anlage wird mit Hilfe von Drucksensoren an zwei Messpunkten (1 und 2 auf der Abbildung 4.12) ermittelt. Der kinetische Druckverlust wird nach dem ersten Hauptsatz für stationäre Fließprozesse (Bernoulli-Gleichung) unter der Annahme, dass die Gasdichte  $\rho_g$  an beiden Messpunkten identisch ist, berechnet:

$$\Delta p_{\text{kin}} = \frac{\rho_g}{2} (u_{0,2}^2 - u_{0,1}^2) \quad . \quad (4.5)$$

Hierbei sind  $u_{0,1}$  und  $u_{0,2}$  die Leerrohrgeschwindigkeiten entsprechend am Messpunkt 1 bzw. 2.

Aufgrund der Strömung in der Wirbelschichtanlage treten Reibungen und folglich ein Druckverlust des Verteilers auf, definiert als

$$\Delta p_d = \zeta \cdot \frac{\rho_g}{2} \cdot u_{0,2}^2 \quad . \quad (4.6)$$

Für Bauteile in Rohrleitungen ist es üblich, Gesamtdruckverlustbeiwerte  $\zeta$  anzugeben. Diese ermöglichen die Vorausberechnung der zu erwartenden Druckverluste in Abhängigkeit von der Strömungsgeschwindigkeit. Der anlagen- und apparatespezifische Gesamtdruckverlustbeiwert  $\zeta$  wurde im leeren Apparat experimentell ermittelt und in Abhängigkeit vom Gasdurchsatz in Abbildung 4.13 dargestellt. Eine abnehmende Tendenz von  $\zeta$  mit zunehmendem Gasdurchsatz wird hier deutlich. Mit der Erhöhung des Durchsatzes hat  $\zeta$  weniger Einfluss auf den Druckverlust. Der Wert von  $\zeta$  kann mit Hilfe folgender Korrelation ermittelt werden:

$$\zeta = 5 \cdot 10^{-7} \cdot \dot{V}_g^4 - 1 \cdot 10^{-4} \cdot \dot{V}_g^3 + 1.22 \cdot 10^{-4} \cdot \dot{V}_g^2 - 0.5638 \cdot \dot{V}_g + 13.839, \dot{V}_g \text{ in m}^3/\text{h} \quad . \quad (4.7)$$

Aus den Gleichungen 4.4, 4.5 und 4.6 ergibt sich für den Schichtdruckverlust  $\Delta p_{\text{bed}}$  folgende Abhängigkeit:

$$\Delta p_{\text{bed}} = \Delta p - \frac{\rho_g}{2} (u_{0,2}^2 - u_{0,1}^2) - \zeta \cdot \frac{\rho_g}{2} \cdot u_{0,2}^2 \quad . \quad (4.8)$$

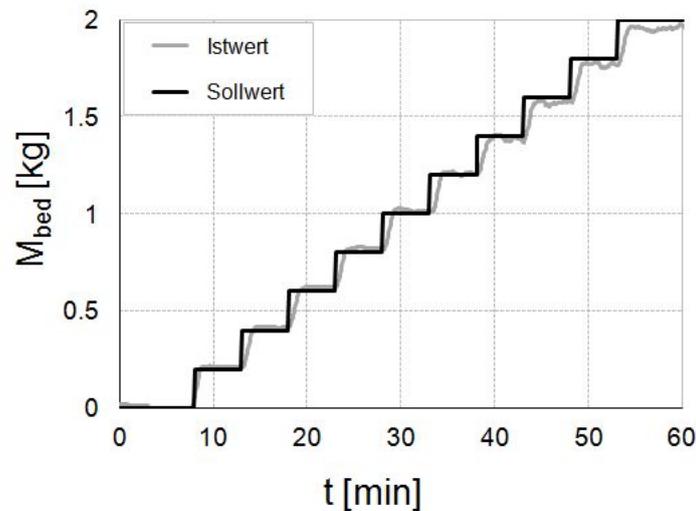


Abbildung 4.14: Überprüfung der errechneten Partikelmasse  $M_{\text{bed}}$  in der Schicht bei Zugabe von Partikeln in bestimmten Zeitintervallen.

Die aus der Wirbelschicht resultierende Druckdifferenz lässt sich mit dem mittleren Apparatequerschnitt  $A_{\text{App}}$  zu einer Druckkraft umrechnen, die dem Feststoffgewicht gleich sein soll. Daher lässt sich die Feststoffmasse  $M_{\text{bed}}$  mit Gleichung 4.9 ermitteln (Uhlemann und Mörl (2000)):

$$M_{\text{bed}} = \frac{\Delta p_{\text{bed}} \cdot A_{\text{App}}}{g} \quad (4.9)$$

Für die Berechnung der Bettmasse wurde der Mittelwert der Apparatequerschnitte 1 und 2 in Abbildung 4.12 angenommen.

Voraussetzung für die Durchführung des kontinuierlichen Coatings ist die Steuerung der Bettmasse. Die berechneten Werte der Partikelmasse in der Schicht müssen hierfür eine hohe Genauigkeit aufweisen. Dies wird mit einer Testmessung überprüft. Hierzu wurde die Messung ohne Partikel in der Schicht gestartet, wobei in bestimmten Zeitintervallen jeweils 0.2 kg Partikelmasse über die Schleuse der Keimzugabe eingebracht wurden. In Abbildung 4.14 sind sowohl der Istwert als auch der Sollwert der Bettmasse dargestellt. Zwischen realer und berechneter Bettmasse ist eine gute Übereinstimmung erkennbar. Die Kurve des Istwertes weist jedoch eine gewisse Verzögerung auf. Diese Verzögerung resultiert aus der Mittelwertbildung des Schichtdruckverlustes als Grundlage für die Ermittlung der Bettmasse. Bei einem Sollwert größer als 1.6 kg entstehen deutliche Abweichungen zum Istwert. Diese sind mit großen Schwankungen bei der Druckverlustmessung zu erklären. Die festgestellte maximale Abweichung hinsichtlich der Bettmasse beträgt  $M_{\text{bed}} = 0.0135 \text{ kg}$ .

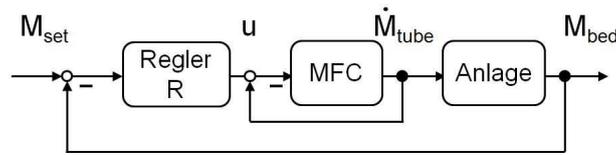


Abbildung 4.15: Kaskadenregelung-Struktur für die Rückkopplungsregelung der Schichtmasse.

#### 4.2.3.2 Regelung der Bettmasse

Ein Weg, die Bettmasse während des Beschichtungsprozesses konstant zu halten, ist die sorgfältige Manipulation des Partikelaustritts. Wie zuvor beschrieben, werden die Partikel aus der Wirbelschicht mittels Schleuse zum Klassierrohr transportiert. Dort werden sie dem Gasstrom ausgesetzt. Der Gasdurchsatz ist durch einen Massendurchflussregler einstellbar, der einen Teil der Basis der Regelung bildet. Die Gasgeschwindigkeit im Klassierrohr definiert die Menge an Partikeln, die als Produkt austragen werden, sowie die Menge von Feinpartikeln, welche in die Schicht zurückkehren. Dadurch ist die Gasgeschwindigkeit als Stellgröße für die Regelung der Schichtmasse sehr gut geeignet.

Das Ziel ist der Entwurf einer automatischen Steuerung, welche den erforderlichen Sollwert der Bettmasse  $M_{\text{set}}$  generiert und in einer Änderung der Klassierluft  $\dot{M}_{\text{tube}}$  umsetzt. Die Steuerstruktur, bestehend aus zwei Steuerungen, kann als eine Kaskade von Rückkopplungsreglern verstanden werden (siehe Abbildung 4.15). Im Folgenden werden der Sollwert-Regler und die Massenflusskontrollvorrichtung als Teile der Anlage betrachtet. Die Stellgröße – der Ausgang der Sollwert-Steuerung – entspricht hierbei der Eingangsspannung der Massenflusskontrollvorrichtung. Das Ziel ist es, einen Regler  $R(s)$  zu generieren (Sollwert-Generator für die Massenflusskontrollvorrichtung), wobei der Gasmassenstrom in der Lage sein soll, die Bettmasse  $M_{\text{bed}}$  konstant zu halten. Der Regler zunächst als PID-Regler mit Übertragungsfunktion

$$R(s) = K_R \cdot \left( 1 + \frac{1}{T_V \cdot s + T_V \cdot s} \right) \quad (4.10)$$

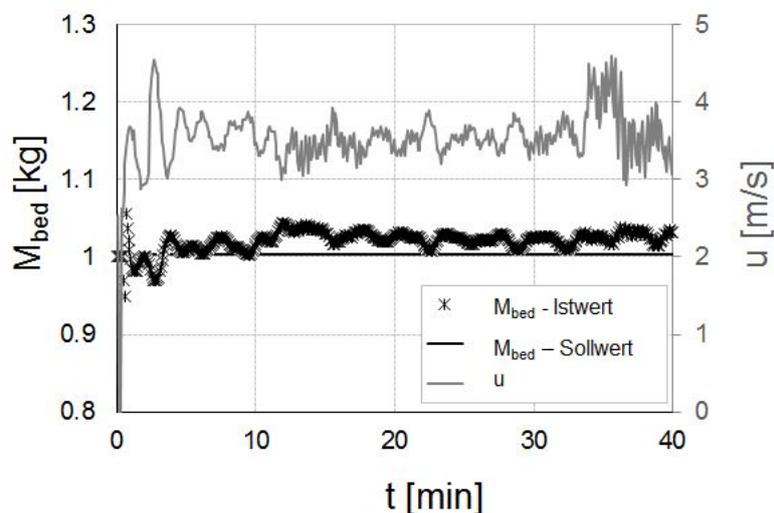
angesetzt, wobei der D-Anteil ( $T_V = 0$ ) ausgeschaltet wurde. Da durch einen Messfilters mit gleitendem Mittelwert wurden große Zeitverzögerungen in der Regelung eingeführt. Dieser verzögert die Messung der Schichtmasse. Zusätzliche Zeitverzögerungen werden durch das Abtasten der Auslassventile verursacht. Daher wurde der I-Anteil entfernt und durch einen aktiven D-Anteil ersetzt.

Der differentiale Ausdruck  $D_R$  ( $0 < D_R < 1$ ) begegnet damit den Zeitverzögerungen. In der Gleichung 4.10 ist  $s$  die Variable des Reglers.

Um die Dynamik des Partikelaustritts bezüglich des Gasmassenstromes im Klassierrohr  $\dot{M}_{\text{tube}}$  zu erhalten, wurde eine online Anpassung an der Anlage als Sprungantwort durchgeführt.

Tabelle 4.2: Auflistung der Prozessparameter zur Überprüfung der Steuerung der Bettmasse.

Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Gaseintrittstemperatur	$\vartheta_{g,in}$	25	°C
Gasdurchsatz	$\dot{M}_g$	70	kg/h
Eindüsungsrate Coatinglösung	$\dot{M}_L$	0	kg/h
Keimzugaberate	$\dot{M}_{nuc}$	0.25	kg/h
Anfangsbettmasse	$M_{bed}$	1.0	kg
Taktfrequenz der Austragsventile	f	7	Hz

Abbildung 4.16: Überprüfung der Steuerung der Bettmasse  $M_{bed}$  mit Hilfe der Gasgeschwindigkeit im Klassierrohr  $u$ .

Für diese Untersuchung wurden Partikel aus mikrokristalliner Zellulose (siehe Abschnitt 4.3) genutzt. Die Parameter für den Regler wurden ermittelt, so dass eine akzeptable Regelabweichung, eine gute Dynamik und eine Übereinstimmung mit den Eingangseinschränkungen möglich sind. Eine Überprüfung dieses Reglers mit  $K_R = 10$  und  $D_R = 40$  wurde mit Hilfe eines Experimentes realisiert. Die entsprechenden Betriebsparameter sind in der Tabelle 4.2 zusammengefasst. Hierbei wurde eine Anfangsbettmasse in die Vorrichtung gegeben und dann unter ständiger Zugabe von Keimen fluidisiert. Der Verlauf des Ist- und Sollwertes der Bettmasse im Granulatorraum und die Geschwindigkeit im Klassierrohr sind auf der Abbildung 4.16 aufgezeichnet.

Auf der Abbildung 4.16 ist zu erkennen, dass die Steuerung der Bettmasse mit Hilfe der Gasgeschwindigkeit im Klassierrohr stabil ist und eine Dynamik ohne zu viel Überschwingen besitzt. Dies ist besonders wichtig bei der praktischen Realisierung, da die Steuerung nicht in der Lage

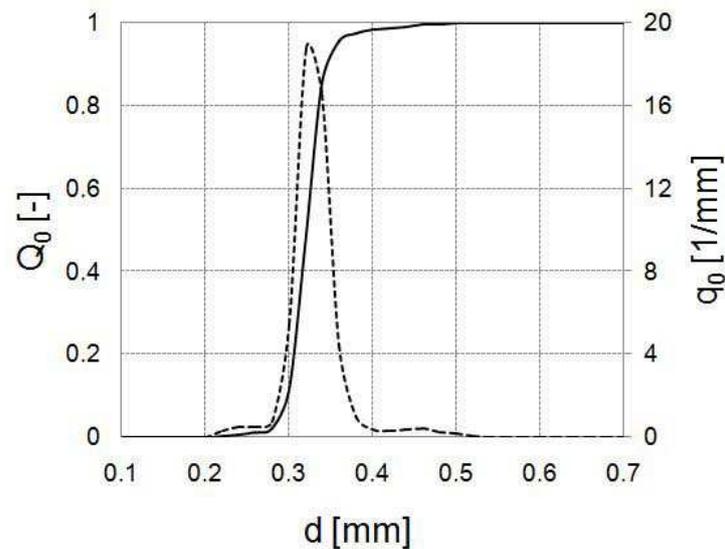


Abbildung 4.17: Anzahldichteverteilung  $q_0$  und Anzahlsummenverteilung  $Q_0$  der Cellets als Kernmaterial.

ist, Partikelmasse in das System hineinzubringen. Jede Erhöhung der Masse ist eine Folge der versprühten Suspension und des Keimzugabestroms, die von der Steuerung nicht beeinflusst werden können.

## 4.3 Versuchsmaterialien

### 4.3.1 Das Trägermaterial

Als Ausgangsstoff für die Beschichtung werden kleine Partikel aus mikrokristalliner Zellulose (Cellets 200) der Firma Syntapharm GmbH verwendet. Diese Partikel weisen einen Durchmesser zwischen 200 und 400  $\mu\text{m}$  auf. Nach der Geldart-Klassifikation, Geldart (1973), können die Partikel der Gruppe B zugeordnet werden. Die Cellets haben eine hohe Sphärizität und gute chemische, mechanische und thermische Beständigkeit. Die Anzahldichteverteilung der Partikel ist in Abbildung 4.17 dargestellt. Es ist zu sehen, dass das Trägermaterial eine sehr enge Verteilung aufweist. Da dieses Material in Chargenproduktion hergestellt wurde, variiert die Partikelgrößenverteilung bei den durchgeführten Coatingversuchen, die in Kapitel 5 dargestellt sind. Für die mathematische Beschreibung des Beschichtungsprozesses wurde die gemessene Ausgangsverteilung des Kernmaterials (Anfangsbettmasse und Partikel der Keimzugabe) durch eine Gaußverteilung approximiert und für die Berechnung des Partikeldurchmessers und der Anzahldichteverteilungen verwendet, siehe Abschnitt 6.2 und Anhang E.

Die spezifischen Eigenschaften des gebrauchten Trägermaterials laut den Herstellerdaten befinden sich in der Tabelle 4.3. Um optisch die Partikeloberfläche, -struktur und -morphologie

Tabelle 4.3: Eigenschaften des Trägermaterials.

Eigenschaft	Einheit	Wert
Sauter-Durchmesser, $d_{32}$	0.32	mm
Partikeldichte, $\rho_c$	1380	kg /m <sup>3</sup>
Sphärizität	0.94	-
Porosität, $\varepsilon_c$	12	%

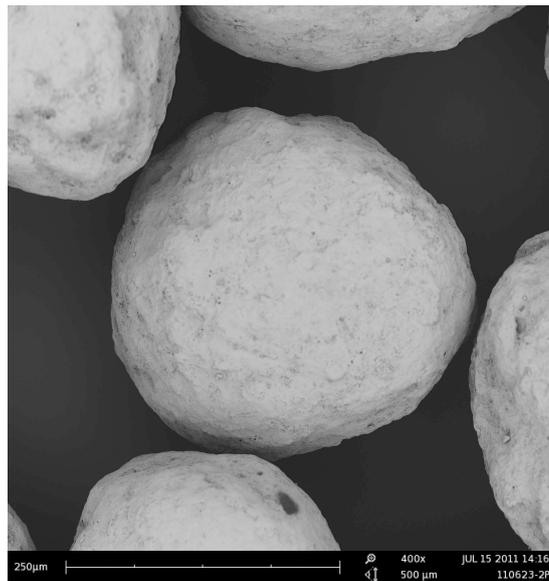


Abbildung 4.18: REM-Aufnahme eines Partikels aus mikrokristalliner Zellulose.

zu beurteilen, wurden REM (Raster-Elektronen-Mikroskop) Aufnahmen gemacht, siehe Abbildung 4.18. Es ist zu erkennen, dass die Cellets eine sphärische Form und kompakte, glatte Oberfläche besitzen.

Der Coatingprozess ist sowohl mit der Befeuchtung als auch der Trocknung der Pellets verbunden. Aus diesem Grund wurde das Sorptionsverhalten des Trägermaterials untersucht. Hierzu wurde die Sorptionsisotherme der Cellets gemessen. Als Messgerät kam hierbei das Sorptionswaagensystem DVS der Fa. Porotec zum Einsatz. Die Sorptionsisotherme wurde bei einer Temperatur von 30°C bestimmt, siehe Abbildung 4.19. Die wenig porösen Partikel zeigen hierbei kein besonders ausgeprägtes Sorptionsverhalten. Die festgestellte maximale Beladung der Partikel für 30°C bei einer relativen Luftfeuchte  $\varphi = 0.98\%$  beträgt  $X_{\max} = 14.8 \text{ g/kg}$ .

Zwischen Adsorption und Desorption besteht eine schwache Hysterese, welche laut Bathen und Breitbach (2001) unterschiedliche Ursachen haben kann. Eine mögliche Ursache ist der Flaschenhals-Effekt, wobei eine verengte Pore eine Verminderung des Dampftransportes bewirkt. Selbst wenn die Pore größer ist als der engste Porenquerschnitt tritt diese Erscheinung

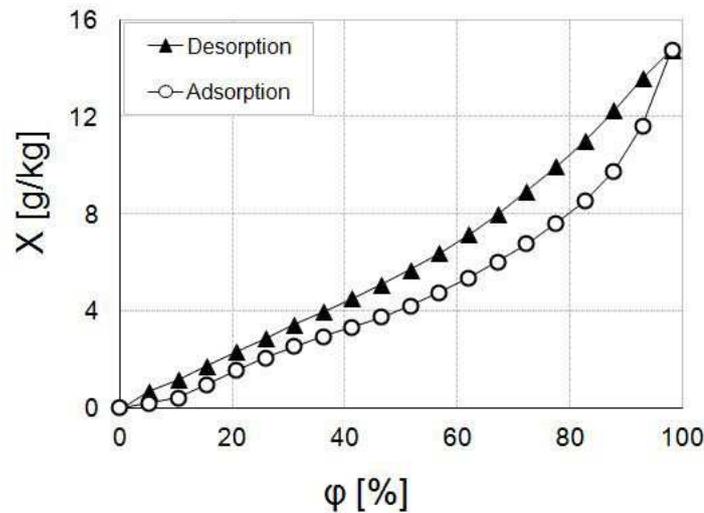


Abbildung 4.19: Adsorptions- und Desorptionsisothermen für Trägerpartikel aus mikrocristalline Cellulose bei einer Temperatur von 30°C.

auf. Dieser Effekt kann durch flüssigkeitsbenetzte Porenwände noch verstärkt werden, was die Ausprägung der Hysterese bei erhöhter Feststofffeuchte vergrößert. Bei den vorliegenden Messungen stellt sich das Maximum der Hysterese in einem Bereich der relativen Feuchte zwischen  $80\% < \varphi < 90\%$  ein. Die maximale Hystereabweichung beträgt hier  $\Delta X_{\max} = 2.5$  g/kg.

### 4.3.2 Die Coatinglösung

Als Modellsubstanz für das Coating wurde Natriumbenzoat ausgewählt. Natriumbenzoat ist das Natriumsalz der Benzoesäure (siehe Abbildung 4.20), auch bekannt als Antimol und ist ein weißer und geruchloser kristalliner Feststoff, welcher schwach hygroskopisch und gut in Wasser löslich ist. In der Lebensmittelindustrie wird dieser Stoff als Konservierungsmittel angewendet, da er bakterio- und fungistatische Eigenschaften besitzt. Weitere Anwendungsgebiete sind die Medizin, z.B. als Diagnostikum, und die Pharmaindustrie (Bruchhausen u. a. (1999)). Das bei den Experimenten verwendete Natriumbenzoat, hergestellt von Fa. Trigon Chemie GmbH und in Pulverform geliefert, wurde in Wasser mit einem Massenanteil von 30% gelöst. Um optisch die Oberfläche, Struktur und Morphologie dieses Feststoffes zu beurteilen, wurden REM (Raster-Elektronen-Mikroskop) Aufnahmen einer Coatinghülle aus Natriumbenzoat gemacht, siehe Abbildung 4.18. Es ist zu erkennen, dass die aufgetragene Schicht eine poröse Oberfläche besitzt. Die spezifischen Eigenschaften des verwendeten Feststoffes der Coatinglösung laut den Herstellerdaten befinden sich in der Tabelle 4.4.

Tabelle 4.4: Eigenschaften des Coatingmaterials.

Eigenschaft	Einheit	Wert
Summenformel	$C_7H_5NaO_2$	
Feststoffdichte, $\rho_s$	1440	$kg/m^3$
Löslichkeit	0.6	$kg/l$ in $H_2O$ bei $20^\circ C$

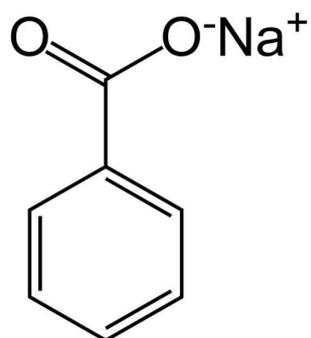


Abbildung 4.20: Chemische Formel von Natriumbenzoat.

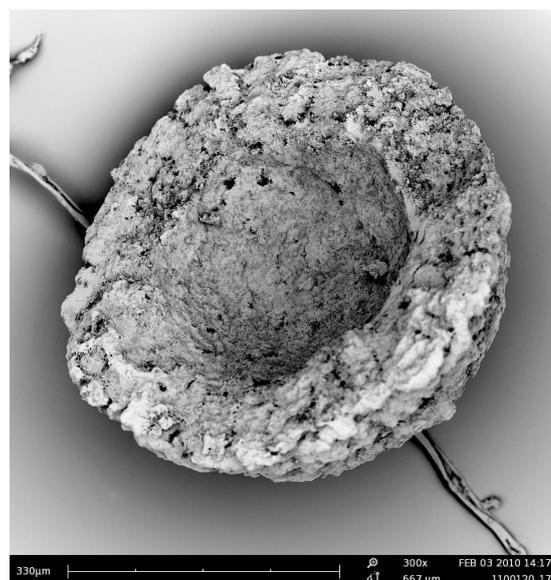


Abbildung 4.21: REM-Aufnahme einer festen Hülle aus Natriumbenzoat.

## 4.4 Messtechnik und Methoden zur Analyse der Partikeleigenschaften

Bei der Untersuchung des diskontinuierlichen und kontinuierlichen Coatingverfahrens in Wirbelschichten ist die Analyse der Partikeleigenschaften von großer Bedeutung. Die Partikelgrößenverteilung wird nicht nur für die Partikel in der Schicht, sondern auch für das Produkt analysiert. Zur Verfügung steht hierfür ein Offline-Analysator des Typs CAMSIZER. Um die Porosität der Partikel zu analysieren, wurde ein Röntgen-Mikro-Tomograph verwendet.

### 4.4.1 Analyse der Partikelgröße

Während des Prozesses werden Proben (8 - 10 g jede) in bestimmten Zeitintervallen entnommen. Die Proben wurden in Probebehältern verschlossen und einer externen Vermessung für ihre Korngröße zugeführt, Merkus (2009).

Hierbei kommt der offline optische Partikelanalysator CAMSIZER der Fa. Retsch GmbH und Co KG in Anwendung. Die Funktionsweise ist in Abbildung 4.23 dargestellt. Die Messung basiert auf der Auswertung von Partikelprojektionen. Sie entstehen durch herabfallende, trocken dispergierte Partikel vor einer Lichtquelle. Die Projektionen werden von zwei Kameras gleichzeitig erfasst. Die Aufnahmen werden durch digitale Bildanalyse rechentechnisch ausgewertet.

Das Produkt wird über einen Probentrichter auf eine Vibrationsrinne (Breite 60 mm) geleitet, welche das Probenhaufwerk durch gerichtete Vibration dispergiert und zum Messschacht befördert. Die Partikel treten in einen Messschacht ein. Dort fallen sie zwischen die LED-Lichtquelleneinheit und zwei CCD-Kameras (CCD: charge-coupled device), welche eine unterschiedliche Auflösung haben und aus lichtempfindlichen elektronischen Bauelementen bestehen. Die Fördergeschwindigkeit wird mit Hilfe eines Abschattungsgrades geregelt. Sie hängt davon ab, welchen Anteil die von Partikelprojektionen abgedeckte Fläche im Gesamtbild einnimmt. Der Messbereich für das gesamte System erstreckt sich von 0.02 mm bis 30 mm.

Die Messung der Partikelgrößenverteilung basiert auf der Häufigkeit von Partikeln mit bestimmter Größe. Der Wert der Anzahlsumme  $Q_0(x)$  an der Stelle  $x_j$  wird aus der Summe der Partikelanzahl  $N_i$  für das Intervall  $[0, x_j]$  und der Partikelanzahl der gesamten Probe  $N_{\text{tot}}$  zu

$$Q_0(d) = \frac{\sum_{i=1}^j N_i}{N_{\text{tot}}} \quad (4.11)$$

berechnet. Die vom Messsystem ermittelten Rohdaten bestehen aus der Anzahlsummenverteilung  $Q_0(x)$  und können in andere Mengenarten oder Dichteverteilungen umgerechnet werden. Anschließend werden die Ergebnisse jeder Messung in einer bestimmten Anzahl von Größenklassen gespeichert.

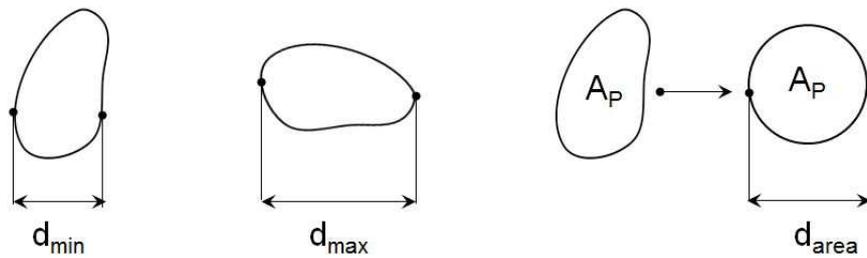


Abbildung 4.22: Methoden zur Festlegung des Partikeldurchmessers nach der kleinsten maximalen Sehnenlänge  $d_{\min}$ , dem maximalen Feret-Durchmesser  $d_{\max}$  und nach der kreisförmigen Projektionsfläche  $d_{\text{area}}$  für unregelmäßig geformte Partikel.

Die gemessene Größe eines in der Projektion erkannten Partikels kann mit dem verwendeten Messgerät auf unterschiedlicher Basis interpretiert werden. Verschiedene Auswertungsmodelle für die Partikelgröße sind in diesem Fall möglich. Dazu zählen u. a. die kleinste maximale Sehnenlänge  $d_{\min}$ , der maximale Feret-Durchmesser  $d_{\max}$  oder der Durchmesser der kreisförmigen Projektionsfläche  $d_{\text{area}}$ .

Zur Ermittlung der kleinsten maximalen Sehnenlänge  $d_{\min}$  wird die Projektionsfläche des Partikels aus verschiedenen Richtungen gemessen, siehe Abbildung 4.22. Im Gegensatz dazu beschreibt der maximale Feret-Durchmesser einer Partikelprojektion  $d_{\max}$  die maximale Sehnenlänge. Dementsprechend wird mit dieser Vorstellung immer eine maximale Partikelgrößenverteilung erwartet. Die Flächenmethode berücksichtigt die gesamte Projektionsfläche eines Partikels  $d_{\text{area}}$  als Kreisfläche und ermittelt deren Durchmesser als Partikelgröße, siehe Abbildung 4.22. Der Vorteil dieser Methode ist, dass in diesem Fall zwei Dimensionen des Partikels berücksichtigt werden. Beim Vorhandensein von abgeschatteten Bereichen innerhalb der Projektion werden diese ausgefüllt und flächenmäßig verrechnet.

Beim Vermessen eines ideal sphärischen Partikels würden identische Partikelgrößenverteilungen für alle Größenmodelle erhalten. Da aber reale Partikel keine ideal sphärische Form haben, werden entsprechend des Größenmodells keine identischen, sondern lediglich ähnlichen Partikelgrößenverteilungen gemessen.

In dieser Arbeit wird das Partikelvolumen als interne Koordinate verwendet. Demzufolge liegt die Verwendung der zweidimensionalen Auswertung, d.h. mit  $d_{\text{area}}$ , näher. Je unregelmäßiger die Form eines Partikels wird, desto höher ist die Differenz zwischen der eindimensional gemessenen Größe  $d_{\min}$  und  $d_{\text{area}}$ . Der maximale Feret-Durchmesser weist im Normalfall eine Überschätzung der Größe auf. Aus diesem Grund wird in dieser Arbeit das flächenbasierte Größenmodell mit  $d_{\text{area}}$  verwendet.

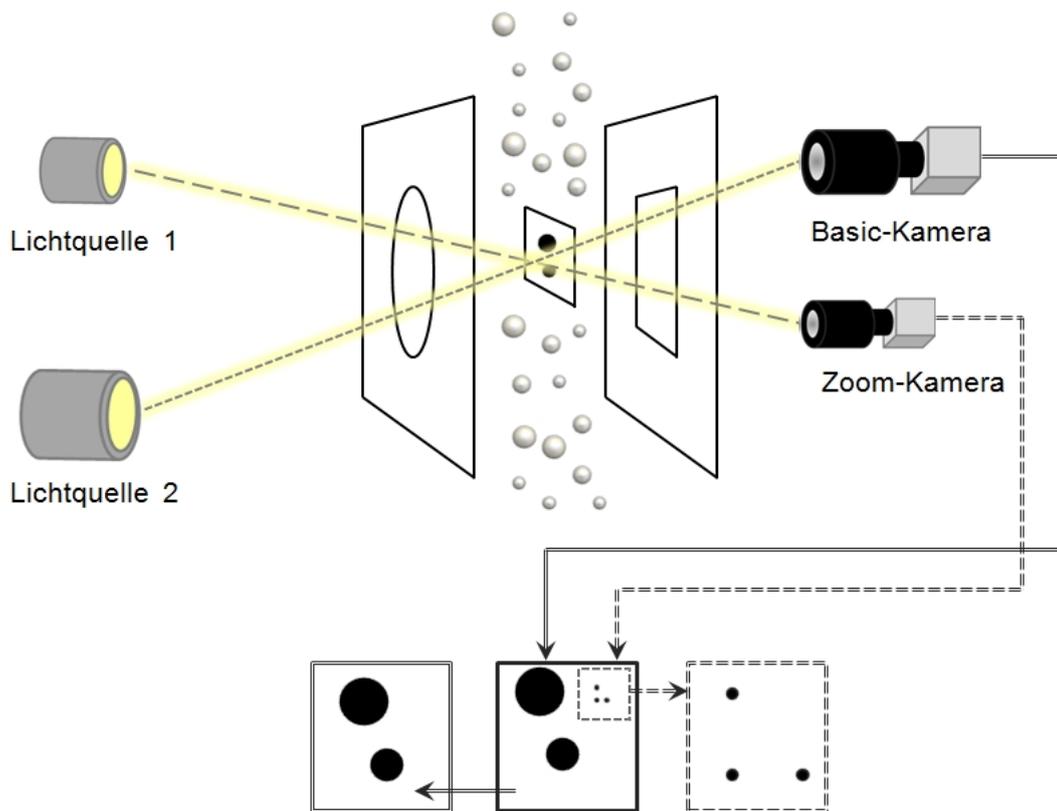


Abbildung 4.23: Schematischer Aufbau des Partikelgrößenanalyzers CAMSIZER.

#### 4.4.2 Das Rasterelektronenmikroskop

Das Rasterelektronenmikroskop (REM) ist ein Mikroskop, das im Vakuum mit Hilfe eines fokussierten Elektronenstrahles die Oberfläche einer Probe rasterförmig abtastet. Auf diese Weise werden Informationen über die Oberflächenbeschaffenheit erstellt. Auflösungen von bis zu 1 nm sind möglich. Typische Anwendungsgebiete sind u.a. die Materialforschung, die Qualitätskontrolle oder die Schadensanalyse. Abbildung 4.24 zeigt den schematischen Aufbau eines Rasterelektronenmikroskops. Bevor die Proben unter dem Rasterelektronenmikroskop untersucht werden können, müssen sie mit Metall (z.B. Gold, Platin) beschichtet werden. Dies ist notwendig, da sich nur elektrisch leitende Oberflächen zur Vermessung eignen, und wird auch Sputtern genannt. Weiterhin muss die Probe von beweglichen Partikeln oder Partikelteilen befreit werden und wasserfrei sein, da im REM ein Hochvakuum herrscht. Der Elektronenstrahl wird in einer Elektronenquelle erzeugt. Aus der Glühkathode werden Elektronen emittiert und durch eine anliegende hohe Spannung (10-50 kV) zur Anode beschleunigt. Der bei diesem Vorgang entstehende Elektronenstrahl wird anschließend gebündelt und auf die Probe gelenkt. Die Ablenkspule lenkt den Elektronenstrahl in x-y-Richtung ab. Dadurch wird die Probenoberfläche Zeile für Zeile abgetastet, auch Rastern genannt. Dieser Vorgang wird durch den Rastergenerator gesteuert. Beim Auftreffen des Elektronenstrahles auf die Probe wer-

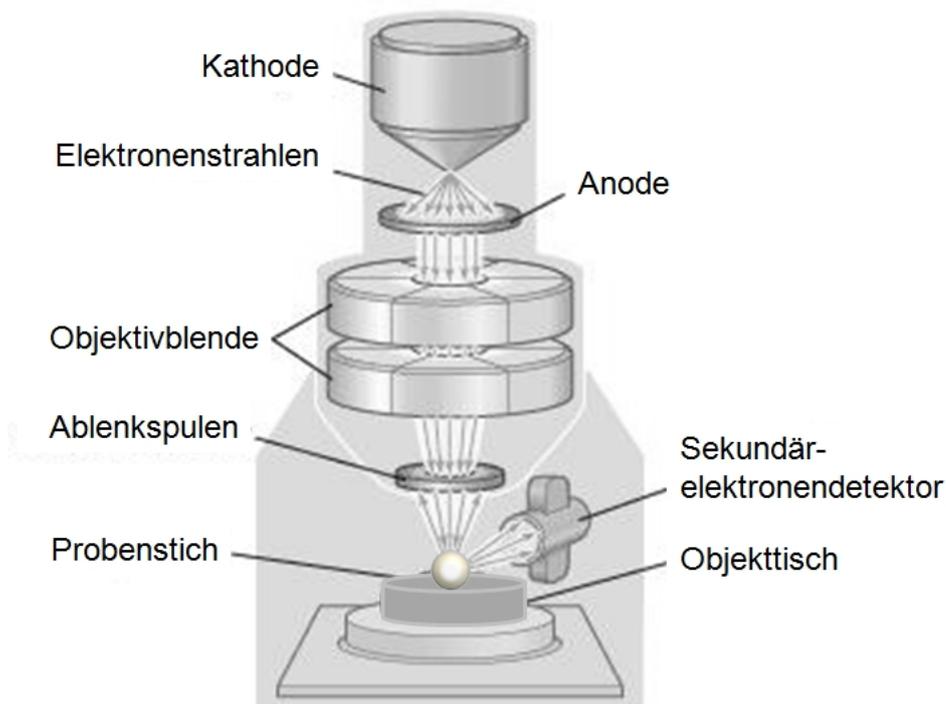


Abbildung 4.24: Schematischer Aufbau des Rasterelektronenmikroskops, Heine (2003).

den die Elektronen abgebremst und geben dabei ihre kinetische Energie ab. Das führt dazu, dass sich sogenannte Sekundärelektronen aus der Oberfläche lösen. Damit werden Signale unterschiedlicher Stärke vom Sekundärdetektor registriert und in Grauwertinformationen umgewandelt. Das von diesen Informationen erzeugte Bild der Probenoberfläche wird zeitgleich auf einem Monitor dargestellt (Heine (2003)).

In dieser Arbeit wurde ein Mikroskop der Fa. Phenom, Typ PRO, verwendet. Damit ist ein optischer Vergleich der Porosität an der Oberfläche der Granulate möglich.

### 4.4.3 Analyse der Partikelporosität

Zur Charakterisierung und zerstörungsfreien Untersuchung der Granulatporosität in drei Dimensionen wurde ein Röntgentomographiesystem CT-Alpha der Fa. Procon X-ray verwendet. Im Gegensatz zu den medizinischen Geräten rotieren dabei nicht der Detektor und die Röhre, sondern die Probe (Krenkel (2009), Landis und Keane (2010), Vormann (2008)). Zu den typischen Anwendungsbereichen der Computermikrotomographie zählen die Materialwissenschaft, die Medizin und die Partikeltechnologie (Moreno-Atanasio u. a. (2010)).

Das Gerät erlaubt die Messung von Poren- und Volumenverteilungen sowie der inneren Mikrostruktur von Einzelpartikeln, Partikelschüttungen oder beliebiger Art von Fasermaterialien. Die Elemente der Röntgentomographie sind eine Röntgenquelle, ein drehbarer Probensträger

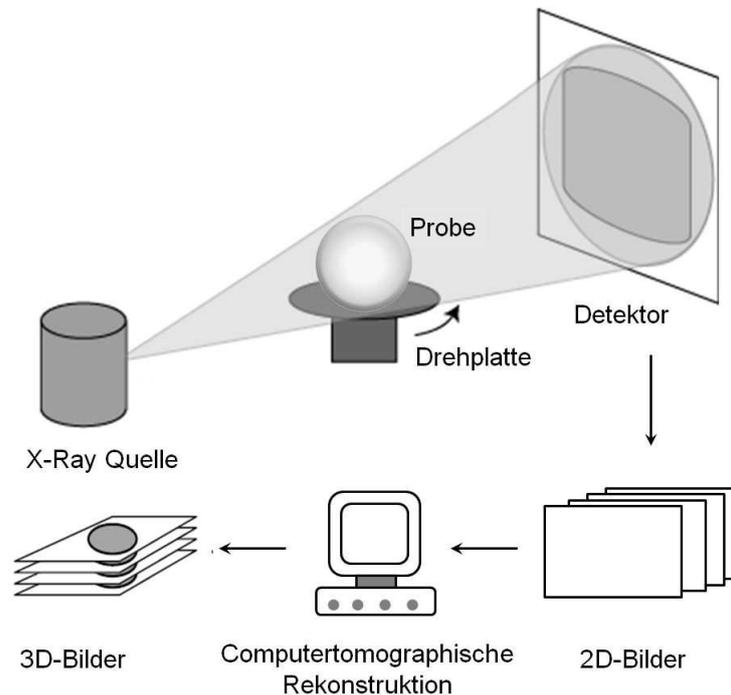


Abbildung 4.25: Schematische Darstellung des Funktionsprinzips des Röntgentomographiesystems CT-Alpha (Landis und Keane (2010), Wildenschild und Sheppard (2013)).

und ein Detektor (siehe Abbildung 4.25). Die Röntgenquelle liegt gegenüber dem Detektor, und das Objekt (Probe) ist dazwischen positioniert. Es werden Projektionen des Objektes aus verschiedenen Winkeln durch Rotation der Probe aufgenommen.

Das verwendete Röntgentomographiesystem zeichnet sich durch einen großen Probenraum aus, sodass interne Einbauten zur Trocknung oder mechanischen Beanspruchung zwischen den Messungen möglich sind. Die Röntgenröhre verfügt über mehrere Targetmaterialien, die austauschbar und damit an die jeweilige Messaufgabe anpassbar sind. Die maximale Röhrenspannung beläuft sich auf 160 kV, wobei ein Brennfleck von  $1 \mu\text{m}$  Größe realisiert werden kann. Dadurch wird auch die maximal mögliche Auflösung des Tomographen auf ca.  $1 \mu\text{m}$  limitiert. Proben von bis zu 5 cm Ausdehnung in jede Raumrichtung und einem Gewicht bis zu 5 kg können vermessen werden. Es wird ein Transmissions- oder Direktstrahler als Röntgenröhre verwendet, was den Vorteil eines großen Öffnungswinkels bietet. Das Detektorfeld weist eine Größe von  $10 \times 10 \text{ cm}$  auf. Dies entspricht  $2300 \times 2300$  Pixeln, die mit Grauwertinformationen (Krenkel (2009), Landis und Keane (2010)) während der Messung belegt werden. Durch die Rotation des Probenkörpers während der Messung wird aus dieser 2-dimensionalen Information dann ein Volumendatensatz, wobei die Pixel eine Tiefeninformation erhalten. Der verwendete Detektor lässt die Energie der Röntgenstrahlung in optisches

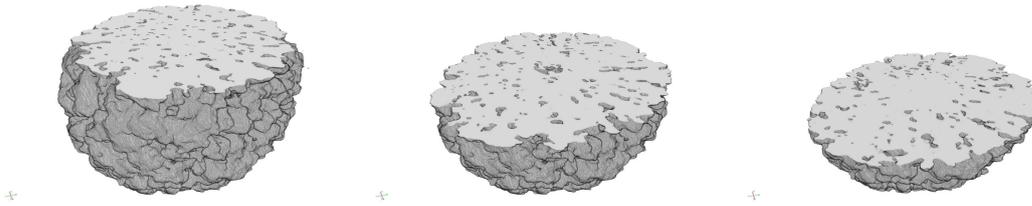


Abbildung 4.26: Originalaufnahme eines Partikels mit drei Schnitten aus der  $\mu$  CT-Messung.

Licht umwandeln und dann über Photodioden erfassen. Zur Steuerung des Tomographen wird die Software VOLEX eingesetzt. Die Auswertung der Volumendatensätze erfolgt mittels der Software MAVI des Fraunhofer Instituts für Techno- und Wirtschaftsmathematik .

Aufgrund der verschiedenen Dichten von Kern und Coatingschicht wird die Röntgenstrahlung in diesen Zonen unterschiedlich stark absorbiert. Das ermöglicht die Aufnahme eines Absorptionsprofils. Die Aufnahmen werden aus verschiedenen Richtungen bzw. Winkeln wiederholt, sodass aus den Daten die Volumenstruktur des Partikels rekonstruiert werden kann. Dabei können deutlich die verschiedenen Grauwerte von Feststoff und Hohlraum der Hülle sowie des Kerns unterschieden werden. Bei der weiteren Verarbeitung findet eine Trennung von Kern und Hülle des Partikels statt. Der nächste Schritt ist das Füllen der rekonstruierten porösen Granulathülle mit geometrischen Elementen, das das Gesamtvolumen der Hülle ergibt. Daraus und aus dem Volumen der mit Feststoff belegten Teile kann die Porosität der Hülle berechnet werden. Eine ausführliche Beschreibung der Bildverarbeitung ist in Dadkhah u. a. (2012) zu finden.

Aus dem Grund jedoch, dass die Dichten des Kernmaterials und des Feststoffes in der Coatinglösung nah beieinander liegen, gab es Schwierigkeiten bei der Trennung des Partikels in Kern und Hülle. In der Abbildung 4.26 sind drei Aufnahmen eines Partikels mit drei Schnitten des Partikels dargestellt. Dabei ist keine deutliche Trennung in Kern und Hülle zu erkennen.

Um die Bilder richtig interpretieren zu können, wurden  $\mu$  CT-Bilder aufgenommen, in denen auf dem Probeträger gleichzeitig sich das Kernmaterial und das beschichtete Partikel befunden haben, siehe Abbildung 4.27. Als erstes fällt auf der Abbildung 4.27 auf, dass das Kernmaterial keine homogene Struktur hat. In seinem Zentrum ist ein großer Teil mit hoher Porosität zu erkennen. Der Rest von dem Partikel weist eine kompakte und homogene Struktur auf.

Als zweites ist es zu bemerken, dass kein ausgeprägter Unterschied in den Graustufen zwischen der Hülle und dem Kernmaterial in der Aufnahme zu erkennen ist. Dadurch wird die Trennung des Partikels in Hülle und Kern verhindert. In diesem Fall wird dieser Vorgang manuell durchgeführt. Auf der rechten Seite der Abbildung 4.27 ist die manuelle Trennung durch die durchgestrichene Linie zu sehen. Die hergestellte Schicht nach dieser Linie weist eine höhere Porosität als die Partikelstruktur davor auf. Die Trennfläche zwischen den beiden Zonen ent-

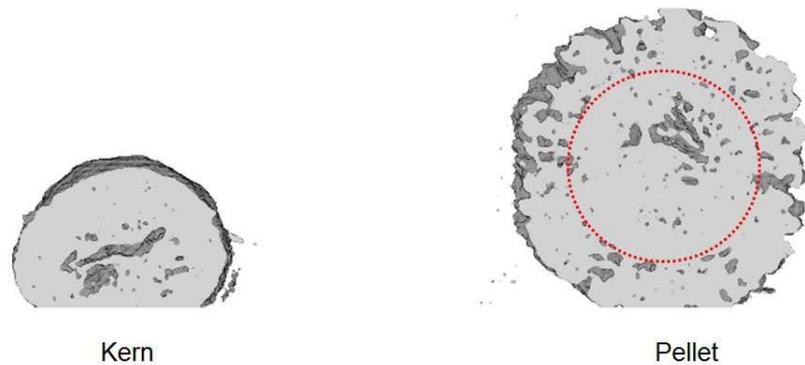


Abbildung 4.27: Aufnahmen des Kernmaterials und des hergestellten Pellets.

spricht der gemessenen Fläche des Startkerns.

Die Vermessung einer Probe dauert dabei typischerweise 7 bis 8 Stunden, wodurch eine Analyse großer Anzahl von Partikeln unmöglich wurde. Aus diesem Grund wurde auch eine analytische Methode zur Ermittlung der Partikelporosität entwickelt. Diese Methode wird im nächsten Abschnitt 4.4.4 präsentiert. Die Vermessung mittels  $\mu$  CT wurde in diesem Fall nur als Referenzmethode verwendet.

#### 4.4.4 Analytische Methode zur Ermittlung der Partikelporosität

Es gibt eine Reihe von Merkmalen, die Aufschluss über die Qualität von Coatingschichten geben können, z. B. die Größe der Coatingoberfläche, die Adhäsion zwischen Kernpartikel und Coatingschicht, die Struktur der Coatingschicht (Porosität, Risse, Lufteinschlüsse) sowie die Coatingschichtdicke, wobei die beiden letzteren Eigenschaften zu den Wichtigsten zählen.

Es wird in dieser Arbeit eine analytische Methode präsentiert, um die Porosität der Schicht zu berechnen. Die analytische Methode basiert auf der Ermittlung der Porosität von einzelnen Partikeln. Es wurden bei jedem Versuch Proben mit Partikeln entnommen. Von einigen ausgewählten Proben wurden jeweils 10 Partikel vermessen und analysiert. Die Schichtporosität  $\varepsilon_{sh}$  ist nach Schlünder und Tsotsas (1988) als

$$\varepsilon_{sh} = \frac{V_H}{V_{sh}} = \frac{V_{sh} - V_s}{V_{sh}} = 1 - \frac{V_s}{V_{sh}} \quad (4.12)$$

definiert. Hierbei sind  $\varepsilon_{sh}$  die Schichtporosität,  $V_H$  das Hohlräumvolumen,  $V_s$  das Feststoffvolumen und  $V_{sh}$  das Gesamtvolumen der Coatingschicht. Für die Berechnung der Porosität werden die Coatingschichtmasse,  $M_{sh}$ , sowie die Durchmesser der gecoateten Partikel,  $d_p$ , und ungecoateten Partikel,  $d_c$ , benötigt. Es wurden die Masse jedes Partikels mit Hilfe einer Präzisionswaage gravimetrisch ermittelt und der Partikeldurchmesser mittels REM gemessen. Anschließend wurde die Coatingschicht der Partikel abgewaschen, und die Kernpartikel wur-

den im Trockenschrank über 10 Stunden bei 60°C getrocknet. Danach wurde die Korngröße jedes Kernpartikels mittels REM bestimmt. Über die Durchmesser erfolgt die Berechnung des Volumens für die beschichteten und unbeschichteten Partikel:

$$V_P = \frac{1}{6} \pi \cdot d_P^3, \quad (4.13)$$

$$V_C = \frac{1}{6} \pi \cdot d_C^3 \quad . \quad (4.14)$$

Die Berechnung des Schichtvolumens erfolgt durch die Differenz beider Volumina:

$$V_{sh} = V_P - V_C \quad . \quad (4.15)$$

Die Berechnung der Masse des Kernpartikels erfolgt über die Dichte des Kernmaterials:

$$M_C = V_C \cdot \rho_C \quad . \quad (4.16)$$

Die Coatingschichtmasse wird über die Differenz aus der Masse des Pellets und des Kernpartikels bestimmt:

$$M_{sh} = M_P - M_C \quad . \quad (4.17)$$

Aus dem Schichtvolumen  $V_{sh}$  und der Schichtmasse  $M_{sh}$  kann die Dichte der Schicht  $\rho_{sh}$  berechnet werden:

$$\rho_{sh} = \frac{M_{sh}}{V_{sh}} \quad . \quad (4.18)$$

Bei Angabe der Dichte des Coatingmaterials  $\rho_s$  erfolgt schließlich die Berechnung der Schichtporosität aus:

$$\varepsilon_{sh} = 1 - \frac{6M_P - \pi \cdot \rho_C \cdot d_C^3}{\pi \cdot \rho_s \cdot (d_P^3 - d_C^3)} \quad . \quad (4.19)$$

# 5 Experimentelle Untersuchungen

Die in dieser Arbeit durchgeführten experimentellen Untersuchungen bilden die Grundlage für die Quantifizierung des diskontinuierlichen und kontinuierlichen Beschichtungsverhaltens in der Wirbelschicht mit einem Wurster-Einsatz. In diesem Kapitel sind Versuche zur Charakterisierung der Wurster-Konfiguration dargestellt. Zusätzlich werden die experimentellen Parametervariationen bei der diskontinuierlichen und kontinuierlichen Beschichtung in der Wirbelschichtanlage untersucht und präsentiert.

## 5.1 Charakterisierung des Wurster-Prozesses

Zur Charakterisierung des Wurster-Prozesses wurden experimentelle Untersuchungen mit vier verschiedenen Geometrien des Anströmbodens durchgeführt. Zusätzlich wurde der Wurster-Prozess mit anderen Wirbelschichtkonfigurationen, wie Wirbelschicht in Top- und Bottom-Spray, verglichen.

### 5.1.1 Vergleich unterschiedlicher Durchströmungsplatten

Zu den charakteristischen geometrischen Merkmalen einer Wirbelschichtanlage mit Wursterkonfiguration zählen folgende Parameter:

- Höhe des Wursterrohres,
- Durchmesser des Wursterrohres,
- Einsatzhöhe, d.h. der Abstand zwischen dem Steigrohr und dem Anströmboden,
- Öffnungsverhältnis des Anströmbodens im Trocknungsbereich.

Durch die Wurster-Wirbelschichtkonstruktion wird angestrebt, dass die Hüllmasse häufig dünn auf eine noch feuchte Schicht aufgetragen wird. Kollisionen der Partikel sollen möglichst nicht auftreten. Die Verwendung eines Zylinders mit einem Steigrohr und einer Bodenplatte mit unterschiedlich großen Bohrlöchern sorgt für eine zirkulierende Wirbelschicht. Die größeren Bohrlöcher unter dem Steigrohr bewirken einen stärkeren Gasdurchsatz, sodass die sich darin befindenden Partikel beschleunigt werden und sich aufwärts bewegen. Die Düse sprüht die Sprühflüssigkeit von unten im Gleichstrom in das Steigrohr, wodurch die Partikel in der fluidi-

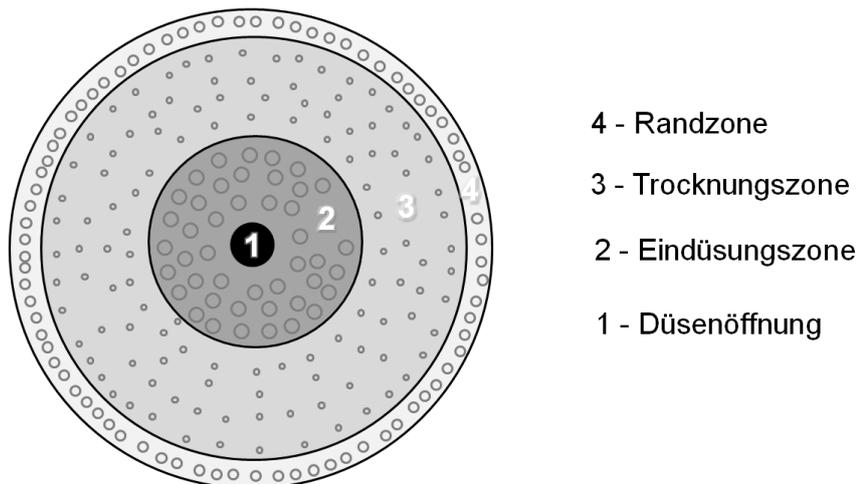


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung des Wurster-Anströmbodens.

sierten Schicht benetzt werden. Bei weiterem Aufsteigen der Teilchen im Steigrohr werden die Partikel getrocknet und an der Oberkante ausgetragen. Sie werden von der Gasströmung aufgrund der Dichteunterschiede zwischen den Wirbelschichten am Außenrohr und am Innenrohr mitgerissen (Uhlemann und Mörl (2000)).

Der Anströmboden einer Wirbelschicht ist ein entscheidendes Element für die Funktionsweise der Schicht. Die einfachste Ausführung sind gelochte Platten, deren Druckverlustberechnung z.B. nach Hunt und Brennan (1965) und McAllister u. a. (1958) erfolgt. Die Anwendung von Böden mit unterschiedlichen Öffnungsverhältnissen bei parallelem Anströmen bringt Vorteile für den Wirbelschichtprozess. Beim Wursterinsatz handelt es sich um einen Anströmboden mit drei Zonen mit unterschiedlichen Öffnungsverhältnissen – Randzone (4), Trocknungszone (3), Eindüsungszone (2). Zusätzlich gibt es die Düsenöffnung (1), wie in Abbildung 5.1 schematisch dargestellt. Die Öffnungen der Randzone werden von einem Flansch bedeckt, deswegen werden sie nicht weiter berücksichtigt.

Um den passenden Lochboden für die vorliegende Partikelbeschichtung zu finden, wurden vier Anströmböden an einer Wirbelschichtanlage GPCG 1 (Glatt GmbH) untersucht. Der Unterschied zwischen den vier Böden (A, B, C und D) besteht in unterschiedlich großen Öffnungsverhältnissen in der Trocknungszone, die das Wursterrohr umgibt. Die Durchmesser der Bohrlöcher blieben konstant: 3 mm in der Eindüsungszone, 1 mm in der Trocknungszone und 2 mm in der Randzone. Die variierten Öffnungsverhältnisse in der Trocknungszone wurden mittels der Gleichung 5.1 von Hunt und Brennan (1965) und McAllister u. a. (1958) berechnet. Hier wird das Öffnungsverhältnis  $\eta$  als das Verhältnis aus der Lochfläche  $A_h$  und der Dreiecksfläche  $A_\Delta$ , die zwischen drei Löchern aufgespannt wird, definiert (siehe Abbildung 5.2):

$$\eta = \frac{A_h}{A_\Delta} \quad . \quad (5.1)$$

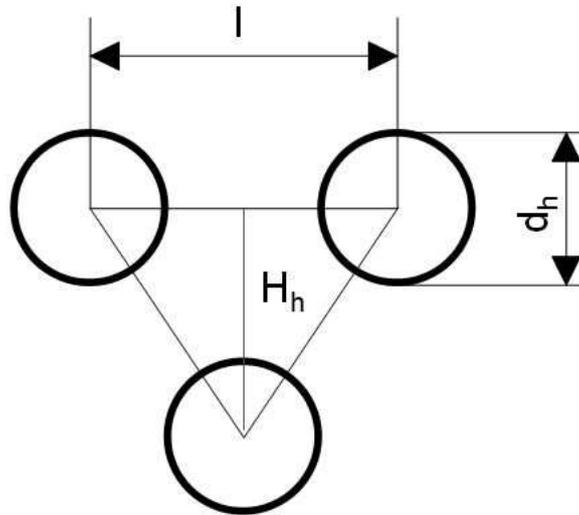


Abbildung 5.2: Schematische Darstellung der Berechnung eines Öffnungsverhältnisses  $\eta$ .

Tabelle 5.1: Öffnungsverhältnisse und Abstand zwischen den Bohrungen der unterschiedlichen Anströmböden für die Trocknungszone bei  $d_h = 1$  mm.

Anströmboden	Abstand $l$ [mm]	Öffnungsverhältnis $\eta$ [-]
A	13	0.005
B	9	0.011
C	8	0.014
D	5	0.036

Die Lochfläche  $A_h$ , Dreiecksfläche  $A_\Delta$  und die Dreieckshöhe  $H_\Delta$  werden wie folgt berechnet:

$$A_h = \frac{\pi}{4} d_h^2, \quad (5.2)$$

$$A_\Delta = \frac{l \cdot H_\Delta}{2}, \quad (5.3)$$

$$H_\Delta = \frac{l}{2 \cdot \tan(30^\circ)}. \quad (5.4)$$

Hierbei sind  $d_h$  und  $l$  der Bohrungsdurchmesser und der Abstand zwischen den Zentren zweier Bohrungen. Die Gleichungen 5.2, 5.3 und 5.4 werden in die Gleichung 5.1 eingesetzt. Es ergibt sich daraus:

$$\eta = 0.907 \frac{d_h^2}{l^2}. \quad (5.5)$$

Tabelle 5.2: Betriebsparameter zur Überprüfung der unterschiedlichen Anströmböden.

Symbol	Parameter	Wert	Einheit
Gaseintrittstemperatur	$\vartheta_{g,in}$	80	°C
Gasdurchsatz	$\dot{M}_g$	50	kg/h
Eindüsungsrate Coatinglösung	$\dot{M}_L$	0.5	kg/h
Anfangsbettmasse	$M_{bed,0}$	0.5	kg

Die berechneten Öffnungsverhältnisse der Trocknungszone aller vier Anströmböden sind in der Tabelle 5.1 aufgelistet. Es ist zu bemerken, dass sich bei den Anströmböden A, B und C das Öffnungsverhältnis schrittweise erhöht, während der Anströmboden D ein deutlich größeres Öffnungsverhältnis der Trocknungszone hat. Dieses garantiert eine bessere Fluidisation der Partikel. Die Prozessparameter der Versuche sind in der Tabelle 5.2 aufgelistet.

Der Verlauf des Verhältnisses zwischen laufendem ( $d_{32}$ ) und anfänglichem ( $d_{32,0}$ ) Wert des Sauter-Durchmessers ist in Abbildung 5.3 dargestellt.

Das Wachstum der Partikel wird durch das Verhältnis des aktuellen Durchmessers zum Ausgangsdurchmesser repräsentiert. Bei einem größeren Öffnungsverhältnis  $\eta$  ist ein stärkeres Wachstum durch Coating zu beobachten. Das größere Öffnungsverhältnis führt zu einer größeren Gasgeschwindigkeit in der Trocknungszone, siehe Abbildung 5.1 und rein optisch wurde eine bessere Durchmischung der Partikel in der Wirbelschicht beobachtet. REM-Aufnahmen von fertigen Granulaten aller vier Versuche sind auf der Abbildung 5.4 dargestellt. Die Oberfläche des Granulates, welches mit Hilfe von Anströmboden D hergestellt wird, ist poröser als die anderen drei Granulate. Damit ist auch das stärkere Wachstum der Partikel bei der Anwendung dieses Anströmbodens erklärbar.

Aufgrund der optisch beobachteten homogenen und guten Partikelfluidisation und der guten Eigenschaften der hergestellten Granulate wurde in dieser Arbeit bei der Durchführung der diskontinuierlichen und kontinuierlichen Coatingversuche Anströmboden D verwendet.

### 5.1.2 Vergleich unterschiedlicher Wirbelschichtkonfigurationen

Um den Einfluss unterschiedlicher Wirbelschichtkonfigurationen zu untersuchen, wurden drei Versuche bei gleichen Betriebsbedingungen (siehe Tabelle 5.2) und Ausgangsmaterialien mit Top-Spray, Wurster bzw. Bottom-Spray Konfigurationen durchgeführt, siehe Abbildung 1.2.

Für den Wursterprozess kam der Anströmboden D zum Einsatz. Die Öffnungsverhältnisse bei Top- und Bottom-Spray waren gleich dem Öffnungsverhältnis der Trocknungszone im Wurster-Einsatz. Im Top-Spray Verfahren wurde die Düse in einer Höhe von 0.3 m von dem Boden

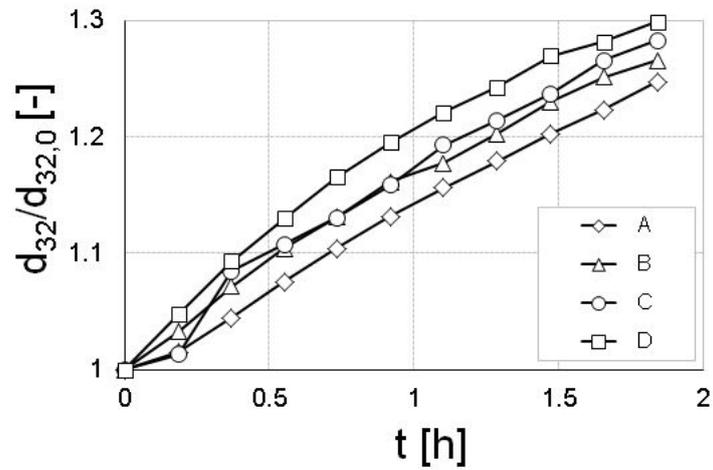


Abbildung 5.3: Verläufe des Sauter-Durchmessers  $d_{32}$  bei gleichen Versuchsbedingungen und unterschiedlichen Anströmböden.

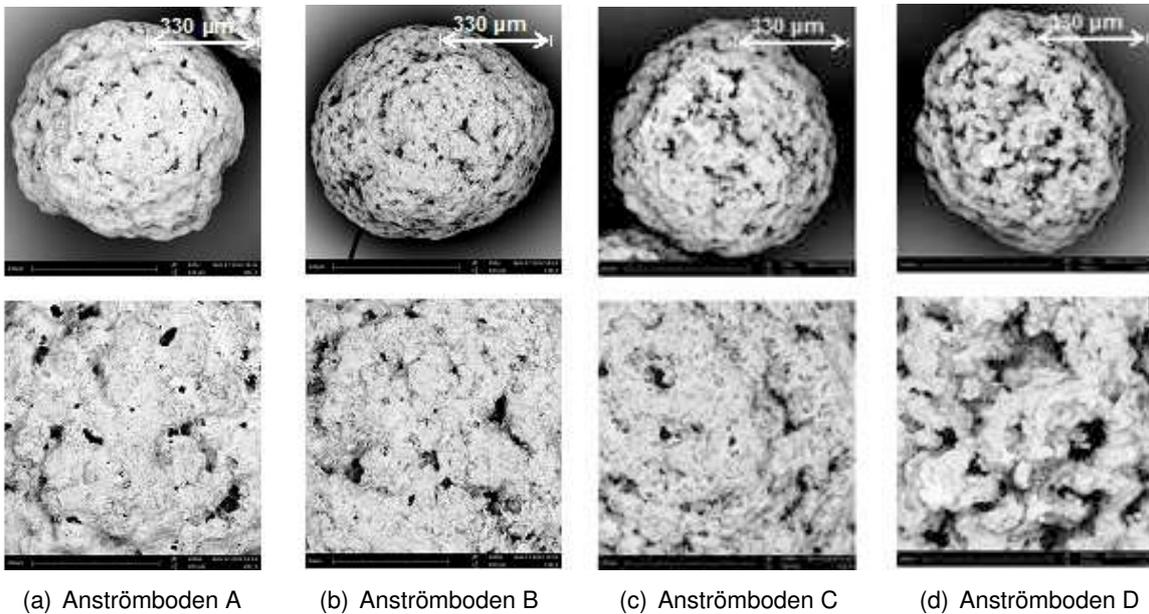


Abbildung 5.4: REM-Aufnahmen der Endproben mit verschiedenen Anströmböden.

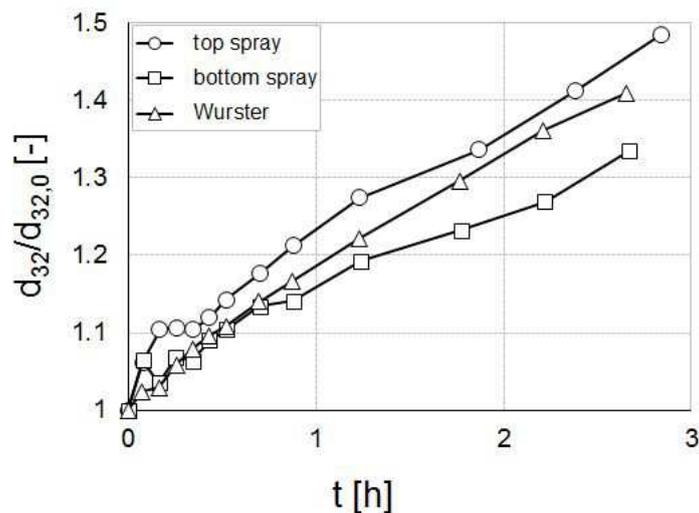


Abbildung 5.5: Der Verlauf des normierten Sauterdurchmessers  $d_{32}/d_{32,0}$  bei gleichen Betriebsbedingungen und unterschiedlichen Wirbelschichtkonfigurationen.

positioniert. Dabei unterscheiden sich alle drei Wirbelschichtkonfigurationen voneinander in der Partikelströmung. Bei dem Top- und Bottom-Spray tauchen die Partikel ein bzw. ab in den Düsenstrahl, siehe Abbildung 1.2. Der Wurster-Prozess charakterisiert sich mit der definierten Partikelbewegung in Bahnen, siehe Abbildung 1.5.

Im Rahmen der Coatingversuche wurden nach bestimmten Zeitintervallen Proben aus der Schicht entnommen und diese mit dem Partikelanalysator CAMSIZER hinsichtlich der Partikelgrößenverteilung vermessen. Dieses Vorgehen wurde bis zum Ende des Prozesses durchgeführt.

Mit Hilfe der gemessenen Verteilungen wird der Sauter-Durchmesser ermittelt. Die Verläufe des normierten Sauter-Durchmessers  $d_{32}/d_{32,0}$  sind in Abbildung 5.5 dargestellt. Alle drei Kurven weisen ähnliche Verläufe auf. Der Sauter-Durchmesser bei Bottom-Spray zeigt ein geringeres Wachstum als bei den anderen Konfigurationen.

Aufgrund des im Wursterrohr vorherrschenden Gleichstroms zwischen Tropfen und Partikeln ist mit dem Auftreten von Overspray zu rechnen, vgl. Uhlemann (1990). Beim Versuch lag der Overspray-Anteil zwischen 3 und 5 % der versprühten Masse der Coatinglösung. Diese Werte konnten durch Wägung der im Zyklon befindlichen Staubmasse ermittelt werden.

Es sind leichte Schwankungen in den Verläufen des Sauter-Durchmessers direkt nach dem Beginn der Versuche in Bottom- und Top-Spray Konfigurationen zu erkennen. Es ist anzunehmen, dass dies die Folge einer unerwünschten Agglomeratbildung ist. Die in der Schicht enthaltenen Agglomerate tragen zu einer Erhöhung des Sauter-Durchmessers bei. Um die Gleichartigkeit der Pellets zu untersuchen, wurden die Partikelgrößenverteilungen bei  $t = t_{\text{end}}$  der drei

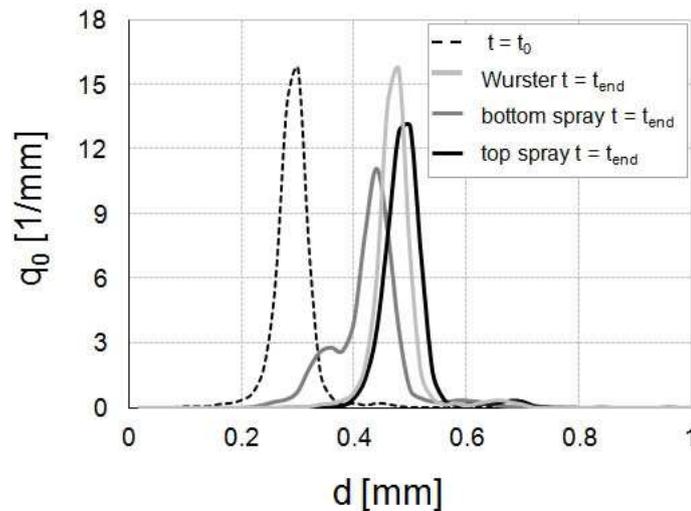


Abbildung 5.6: Die Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  der entnommenen Proben bei gleichen Betriebsbedingungen und unterschiedlichen Wirbelschichtkonfigurationen.

Wirbelschichtkonfigurationen gegenübergestellt, siehe Abbildung 5.6. Für alle drei Fälle ist ein Partikelwachstum daran zu erkennen, dass die Verteilungen in die Richtung größerer Partikeldurchmesser verschoben sind. Beim Vergleich der Breite der Verteilungen sind deutliche Unterschiede zu beobachten. Die im Bottom-Spray Verfahren hergestellten Granulate haben eine breite Verteilung. Anhand der Form der Verteilung ist es zu erkennen, dass im Laufe des Prozesses Totzonen im Apparat entstanden sind. Diese verhindern das gleichmäßige Wachstum aller Partikel in der Schicht. Im Top-Spray Verfahren ist Agglomeratbildung bei der Partikelgrößenverteilung des Endproduktes des Versuchs zu erkennen. Eine ähnliche Tendenz ist beim Wurster-Versuch nicht zu beobachten. In diesem Fall hat das Endprodukt die engste Produktverteilung, während eine Agglomeratbildung nicht auftritt.

Für die in der vorliegenden Arbeit verwendeten Versuchsmaterialien hat sich damit herausgestellt, dass eine Wirbelschichtanlage mit Wurster-Einsatz die optimale geometrische Konfiguration für einen effektiven Beschichtungsprozess darstellt, siehe Abschnitt 4.3. Um die Granulate optisch zu bewerten, wurden REM-Bilder aufgenommen. In allen drei Untersuchungen ist eine sphärische Form der Partikel erkennbar. Auf den Abbildungen werden keine ausgeprägten Unterschiede in der Oberflächenporosität deutlich. Eine Wirbelschichtanlage mit Wurster-Konfiguration hat im Vergleich zu anderen Wirbelschichtgeometrien folgende Vorteile:

- geringe Möglichkeit zur Bildung von Totzonen,
- geringe Agglomeratbildung,
- optisch keine negative Änderung an der Partikeloberfläche im Vergleich zu anderen Konfigurationen.

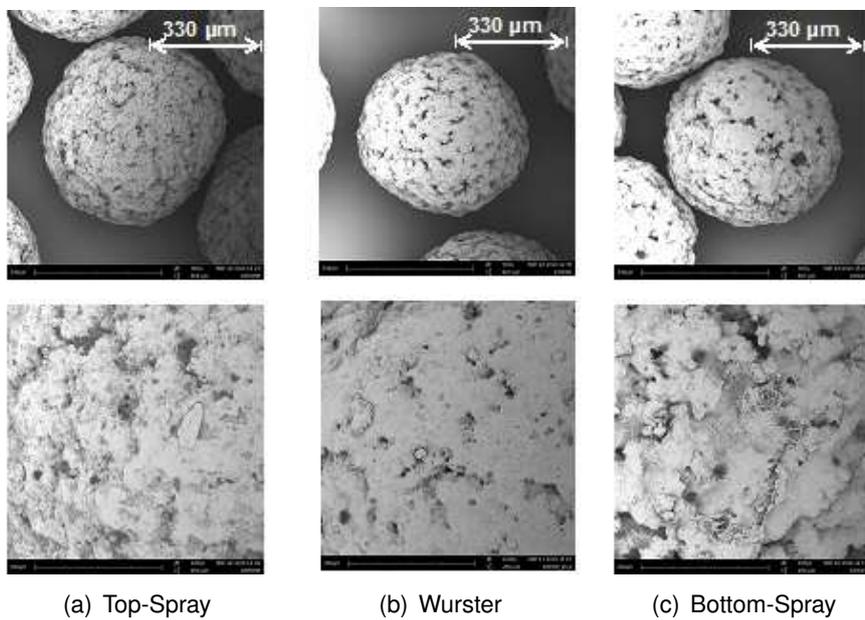


Abbildung 5.7: REM-Aufnahmen der Endprobe aller durchgeführten Experimente mit unterschiedlichen Wirbelschichtkonfigurationen.

## 5.2 Diskontinuierliche Coatingversuche

In diesem Abschnitt sind die Beschreibung der Versuchsdurchführung, die Versuchsergebnisse und die Ergebnisse der Prozessparametervariation für diskontinuierliche Coatingversuche dargelegt. In der Literatur sind analoge diskontinuierliche Versuche von Hoffmann u. a. (2011) sowie Priese und Wolf (2013) bekannt.

### 5.2.1 Durchführung und Auswertung

Alle Versuche werden auf gleiche Weise nach folgender Reihenfolge durchgeführt:

- Vor der Inbetriebnahme der Wirbelschichtanlage (d.h. vor jedem Versuchsbeginn), werden alle Düsenbestandteile vollständig gereinigt, um Verstopfungen während des Prozesses vorzubeugen. Diese können zu einem unerwünschten Abbruch des Experimentes führen. Zudem werden die Luftkappenstellung an der Zweistoffdüse (Wert 2.5) und der Düsenvordruck ( $p = 1.5 \text{ bar}$ ) überprüft bzw. neu justiert. Außerdem wird die Förderpumpe für die vorbereitete Coatinglösung auf Verschmutzungen und Funktionssicherheit getestet und der Totraum im Fördersystem mit Binderlösung (30% Massenanteil) gespült. Diese vorbereitenden Maßnahmen sind Grundlage für einen gleichmäßigen und gasfreien Flüssigkeitstransport bis zur Wirbelschicht.
- Die Feuchtemesstechnik (Taupunktspiegel) wird eingeschaltet.
- Die Einsatzhöhe des Steigrohres wird eingestellt. Sie beträgt bei allen Versuchen 20 mm. Diese Höhe sichert eine gute Fluidisation der zukünftigen Granulate.
- Die Masse der Anfangspartikel wird abgewogen, um gleiche Ruhebetthöhen und Versuchsbedingungen zu erhalten. Bei allen Versuchen hat die Anfangsbettmasse einen Wert von 1 kg. Der Keimbehälter wird vollständig gefüllt. Die Partikel werden auf eine Fraktion von 280 bis 400  $\mu\text{m}$  reduziert, siehe Abbildung 4.17.
- Die Wirbelschichtanlage wird mit dem eingefüllten Material unter Verwendung der gewünschten Prozessparameter in einen thermisch stationären Betriebspunkt gefahren. Dieser gilt als erreicht, wenn die Gasbeladungen am Ein- und Austritt identisch und konstant sind. In der Aufheizphase wird der Treibgasstrom der Düse in Betrieb genommen. In diesem Abschnitt kommt es zur Trocknung und zur Aufheizung der Anfangspartikel.
- Nachdem in der Anlage konstante Temperaturen und Luftfeuchten vorherrschen, wird eine Probe aus der Wirbelschicht entnommen. Die Probe wird zur Ermittlung der Partikelgrößenverteilung der Anfangspartikel genutzt.
- Nach der Entnahme der Probe wird die Flüssigkeitsförderung der Eindüsung in Betrieb genommen. Der eigentliche Prozessbeginn ist durch das Eintreten der Lösung in die

Wirbelschicht gekennzeichnet. Um diesen Zeitpunkt genau zu erfassen, wird nach dem Start der Flüssigkeitsförderung eine zuvor ermittelte Zeitspanne überbrückt, welche zur Förderung innerhalb des Hohlraumvolumens der Düse notwendig ist. Die aus dem Vorlagebehälter entnommene Lösung zur Füllung des Hohlraumvolumens wird registriert und bei der Auswertung der eingedüsten Flüssigkeitsmenge berücksichtigt.

- Während des Prozesses werden in definierten Intervallen Proben in Abhängigkeit von der eingedüsten Flüssigkeitsmenge aus der Wirbelschicht entnommen und in abgeschlossenen Behältern bei Umgebungstemperatur aufbewahrt.
- In definierten Intervallen wird der Gasdurchsatz in dem Taupunktspiegel überprüft und bei Bedarf korrigiert.
- Das Experiment wird nach einer bestimmten Dauer beendet. Kurz vor der Unterbrechung des Prozesses wird die letzte Probe aus der Schicht zum Zeitpunkt  $t = t_{\text{end}}$  entnommen.
- Nachdem der Fluidisierungsgasstrom und die Eindüsung außer Betrieb genommen worden sind, wird die gesamte Bettmasse entnommen und überprüft. Es werden die Feinpartikel im Zyklon ausgetragen und gewogen. Die Menge an Overspray lag zwischen 3 und 5% der eingedüsten Feststoffmasse und wurde für die weitere Betrachtung vernachlässigt. Dann erfolgt eine Reinigung der Wirbelkammer, der Düse und der Pumpe. Die von der Schicht entnommenen Proben werden mit der offline Messung der Partikelgrößenverteilung analysiert, siehe Abschnitt 4.4.1.

Nach jedem Versuch wurden die Messdaten vom Datenerfassungssystem exportiert und für die Versuchsauswertung verwendet.

Die in die Schicht eingedüste Feststoffmasse lässt sich wie folgt berechnen:

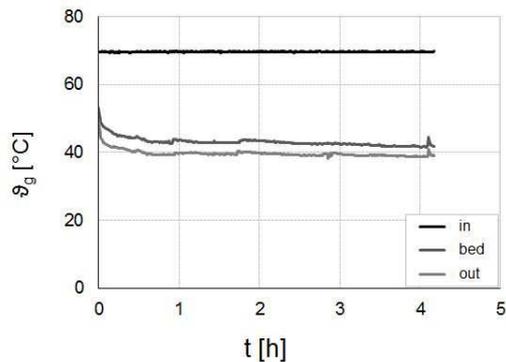
$$M_s(t_i) = \dot{M}_L \cdot t_i \cdot c \quad (5.6)$$

Der Anstieg der Bettmasse wird mit Hilfe der Massenbilanz

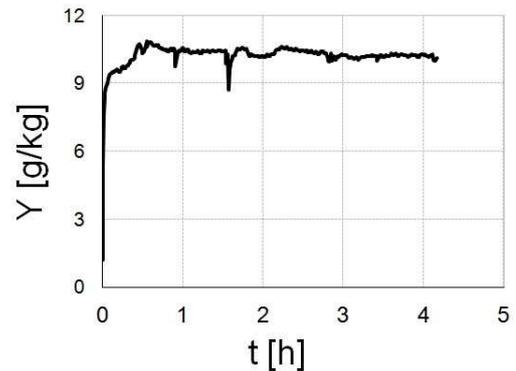
$$M_{\text{bed}}(t_i) = M_s(t_i) + M_{\text{bed}}(t_0) \quad (5.7)$$

ermittelt. Die Ergebnisse werden im Allgemeinen auf die eingedüste Masse an trockenem Natriumbenzoat  $M_s$  bezogen. Die Prozesszeit wird hierbei durch die eingedüste Flüssigkeitsmasse substituiert. Die bis zum Zeitpunkt  $t_i$  eingedüste Feststoffmasse  $M_s(t_i)$  kann nach Gleichung 5.6 aus dem gravimetrisch ermittelten Flüssigkeitsstrom durch die Düse  $\dot{M}_L = \text{const.}$  und dem Massenanteil der Natriumbenzoatlösung  $c$  berechnet werden.

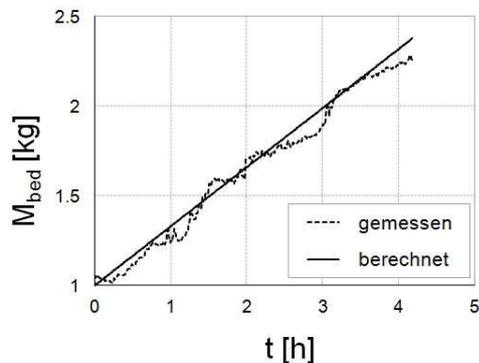
Zur Demonstration des Coatingprozesses werden die Versuchsergebnisse des Experiments 120802, siehe Tabelle 5.3, vorgestellt. Die Gaseintrittstemperatur bleibt während des Prozesses unverändert bei  $\vartheta_{g,\text{in}} = 70 \text{ }^\circ\text{C}$ . Nach dem Einsetzen der Eindüsung zeigt sich eine Absenkung der Temperatur am Austritt  $\vartheta_{g,\text{out}}$  und der Wirbelschicht  $\vartheta_{g,\text{bed}}$ . Die Verläufe der gemessenen Gastemperaturen sind in der Abbildung 5.8(a) dargestellt. Nach dem thermischen



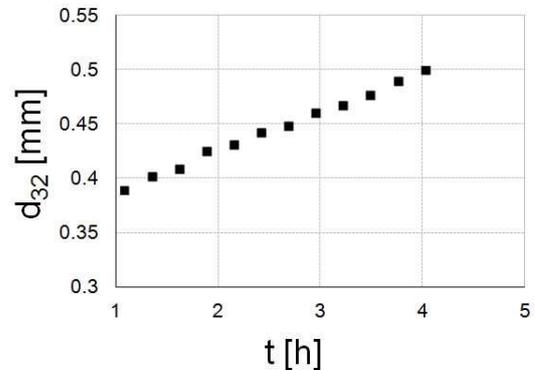
(a) Gastemperaturen am Eintritt  $\vartheta_{g,in}$ , Austritt  $\vartheta_{g,out}$  und in der Schicht  $\vartheta_{g,bed}$



(b) Gasbeladung  $Y$  am Austritt der Wirbelschicht



(c) Bettmasse  $M_{bed}$



(d) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$

Abbildung 5.8: Prozess- und Partikelparameter beim diskontinuierlichen Coatingversuch 120802.

Anlauf stellten sich konstante Werte für die Temperatur in der Wirbelschicht  $\vartheta_{g,bed}$  und am Austritt  $\vartheta_{g,out}$  ein. Abbildung 5.8(b) stellt die Messwerte der Gasbeladung  $Y$  am Austritt der Wirbelschicht dar. Am Austritt der Wirbelschicht nimmt die Gasbeladung nach der Inbetriebnahme der Eindüsung einen ansteigenden Verlauf an. Im Laufe des Prozesses stellt sich eine konstante Beladung von  $Y = 11$  g/kg ein. Die Zunahme der Partikelmasse in der Schicht  $M_{bed}$  ist in der Abbildung 5.8(c) dargestellt. Die erwarteten und die gemessenen Werte stimmen gut überein. Es ist eine konstante Steigung im zeitlichen Verlauf erkennbar.

Im Laufe des Prozesses wurden Proben aus der Schicht entnommen. Diese Proben wurden vermessen und der Sauter-Durchmesser der Partikel berechnet. Auf der Abbildung 5.8(d) ist dessen Verlauf dargestellt. Es ist ein monoton steigender Verlauf zu beobachten, bzw. ein konstantes Partikelwachstum. In Abbildung 5.9 sind die Anfangsverteilung und die  $q_0$ -Verteilungen der im Laufe des Prozesses entnommenen Proben dargestellt. Die Verteilungen wurden mit der Zeit aufgrund des Wachstumsprozesses entlang der internen Koordinate verschoben. Bis

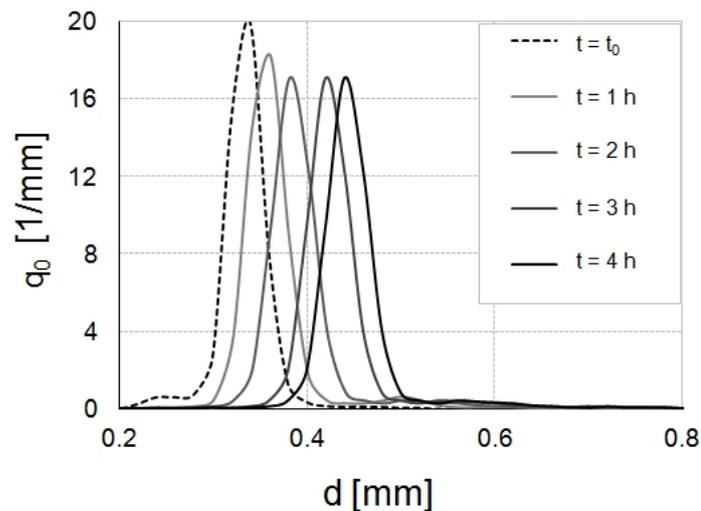


Abbildung 5.9: Änderung der Partikelanzahlverteilungsdichte  $q_0$  in der Schicht mit der Zeit beim diskontinuierlichen Versuch 120802.

zu einem bestimmten Zeitpunkt werden die Partikelgrößenverteilungen breiter, danach bleiben deren Breite und Form nahezu konstant, was für eine gleichmäßige Beschichtung aller Partikel spricht.

### 5.2.2 Analyse der Partikelporosität

Um die Porosität der Coatingschicht des oben beschriebenen diskontinuierlichen Versuches 120802 zu bestimmen, wurden vier ausgewählte entnommene Proben analysiert. Mit Hilfe der entwickelten Methode zur Bestimmung der Schichtporosität, siehe Abschnitt 4.4.4, wurde die Coatingschichtdicke berechnet. Die Differenz beim Durchmesser des Einzelpartikels bei der Messung der Partikeldurchmesser mittels REM vor und nach dem Auflösen der Beschichtung im Wasser ergibt die Schichtdicke. Wie erwartet, steigt mit der Zunahme der Partikelgröße bei gleichem Ausgangsmaterial die Dicke  $s$  der aufgetragenen Schicht mit der Zeit an. In der Abbildung 5.10 ist der Verlauf der gebildeten Schichtdicke dargestellt. Bei zwei der Proben sind größere Abweichungen vom Mittelwert zu erkennen. Dies ist eine Folge des Messfehlers bei der Vermessung mittels REM. Da die Partikel keine ideale sphärische Form aufweisen, weichen die gemessenen Durchmesser je nach Lage des Partikels auf dem Probenträger voneinander ab. Die Ergebnisse zur Schichtporosität sind in der Abbildung 5.11 dargestellt. Die Mittelwerte aller zehn Partikel für die vier Proben sind dort zu sehen. Es ist zu erkennen, dass die Mittelwerte sehr ähnlich sind und einen Wert von ca.  $\varepsilon_{sh} = 0.43$  haben. Die Porosität der gebildeten Schicht ändert sich demnach im Laufe des Prozesses nicht. Die entstandenen Abweichungen haben ihre Ursache in der Vermessung der Masse des Granulates. Da

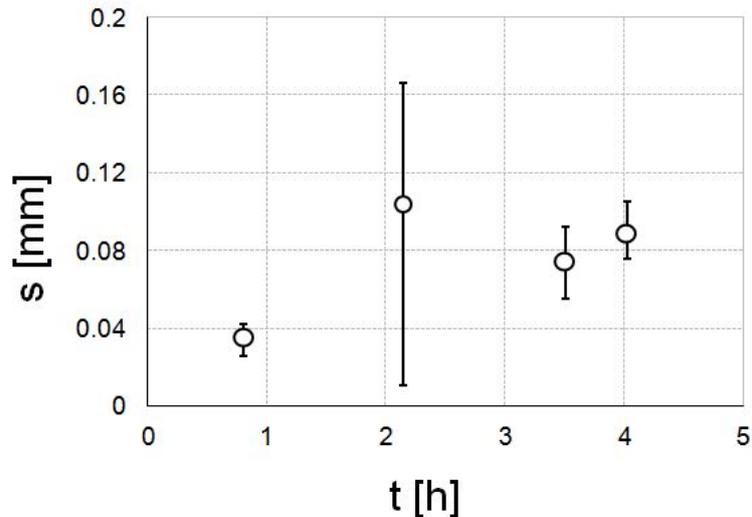


Abbildung 5.10: Schichtdicke  $s$  über der Zeit für den diskontinuierlichen Versuch 120802.

die Granulatmasse in der Größenordnung von  $2 \cdot 10^{-8}$  kg bis  $8 \cdot 10^{-8}$  kg liegt, kam es zu Ungenauigkeiten bei der Vermessung mit einer Präzisionswaage. Als Referenz wurde das Ergebnis der Vermessung eines Partikels von der letzten entnommenen Probe im Mikro-Tomographen verwendet. Dieses Ergebnis zeigt eine sehr gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen der analytischen Methode.

### 5.2.3 Experimentelle Parametervariationen

Es wurden insgesamt 7 Versuche durchgeführt, um den Einfluss der Gaseintrittstemperatur der Fluidisierungsluft, des Fluidisierungsmassenstroms und der Eindüsungsrates der Coatinglösung zu untersuchen. Eine Übersicht aller durchgeführten diskontinuierlichen Versuche wird in Tabelle 5.3 aufgeführt.

Um einen Vergleich der Partikelgrößen zu ermöglichen, wird im Folgenden das Verhältnis zwischen laufendem und anfänglichem Wert des Sauter-Durchmessers aufgetragen.

#### 5.2.3.1 Variation der Gaseintrittstemperatur

Die Temperatur der Fluidisierungsluft stellt einen einflussreichen und zugleich einfach zu steuernden Betriebsparameter für die partikelbildenden Prozesse in der Wirbelschicht dar. Beim Coating mit Natriumbenzoat wird eine moderate Eindüsungsrates mit hoher Zulufttemperatur kombiniert, was nach Tsotsas (2011), Tzika u. a. (2003) zu relativ kompakten und glatten Partikeln führt.

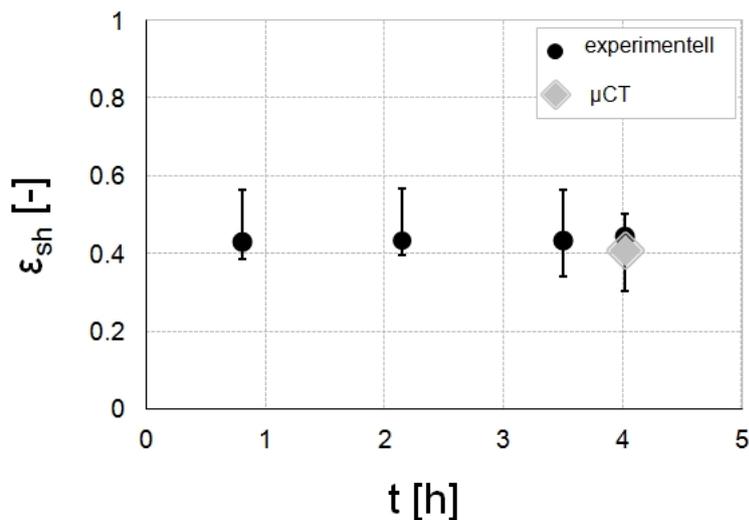
Abbildung 5.11: Schichtporosität  $\varepsilon_{sh}$  für den diskontinuierlichen Versuch 120802.

Tabelle 5.3: Auflistung der diskontinuierlichen Versuche.

Versuchsnummer	$\vartheta_{g,in}$ [°C]	$\dot{M}_g$ [kg/h]	$\dot{M}_L$ [kg/h]
100621	80	70	1.1
100817	70	85	1.1
100824	70	70	1.5
110504	90	70	1.1
120802	70	70	1.1
120803	70	70	0.8
120804	70	100	1.1

Durch die Temperatur werden im Wesentlichen thermische Prozesse beeinflusst. In den experimentellen Arbeiten wird die Eintrittstemperatur des Fluidisierungsgases in einem Bereich zwischen 70 °C und 90 °C variiert, siehe Tabelle 5.3. Die Temperaturbereiche unter 70 °C und höher als 90 °C werden nicht untersucht. Bei geringeren Temperaturen entsteht eine Neigung zu Agglomeration. Prozesse mit einer höheren Gaseintrittstemperatur verursachen größere Energiekosten.

Die erhaltenen Ergebnisse werden für die Versuche 120802 ( $\vartheta_{g,in} = 70$  °C), 100621 ( $\vartheta_{g,in} = 80$  °C) und 110504 ( $\vartheta_{g,in} = 90$  °C) in der Abbildung 5.12 veranschaulicht. Hierbei lässt sich bei der vorliegenden Parametervariation kein eindeutiger Trend beobachten. Es ergeben sich nahezu identische Verläufe für die verschiedenen Gaseintrittstemperaturen.

Die Partikelgrößenverteilungen der beschichteten Pellets weisen kleinere Unterschiede in

Form und Breite auf (siehe Abbildung 5.12(c)). Mit der Erhöhung der Gaseintrittstemperatur werden die Verteilungen breiter, d.h. inhomogener. Dies könnte eine Folge der elektrostatischen Effekte sein, die bei höheren Betttemperaturen entstehen. Dabei nehmen nicht alle Partikel am Wachstumsprozess teil. Da bei den Versuchen von unterschiedlichen Sauter-Durchmessern des Ausgangsmaterials  $d_{32,0}$  ausgegangen wird, sind die Partikelgrößenverteilungen entlang der Achse der Partikeldurchmesser nicht entsprechend dem Partikelwachstum geordnet.

Die aus der Massenbilanz des Prozesses erhältlichen Anstiege der Bettmasse weisen für die drei Versuche ähnliche Verläufe auf.

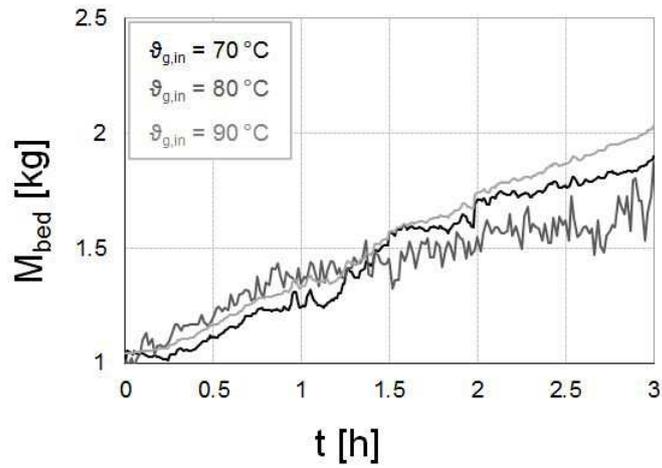
Die Oberflächenstruktur der Granulate, die bei unterschiedlichen Gaseintrittstemperaturen hergestellt wurden, ist in Abbildung 5.13 zu sehen. Dabei scheint die aufgetragene Schicht mit zunehmender Gaseintrittstemperatur etwas kompakter zu sein.

### 5.2.3.2 Variation des Fluidisierungsmassenstroms

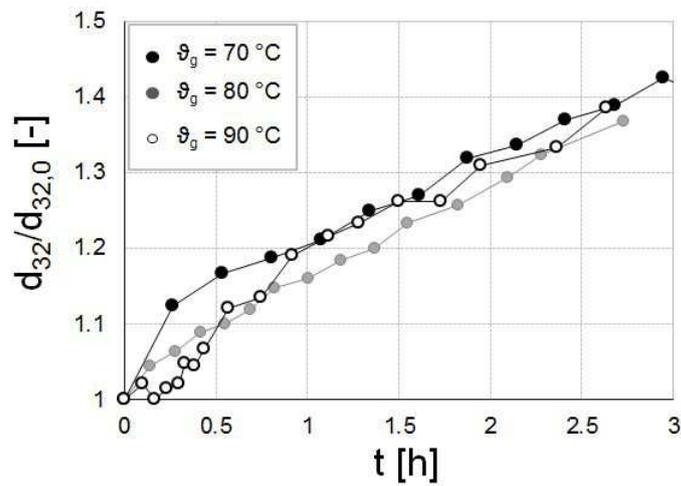
Neben der Gastemperatur ist der Gasmassenstrom der Fluidisierungsluft eine häufig genutzte Größe zur Steuerung von Wirbelschichtprozessen. In der vorliegenden Arbeit wird dieser in einem Bereich von  $70 \text{ kg/h} < \dot{M}_g < 100 \text{ kg/h}$  variiert. Zur Demonstration des Einflusses des Gasmassenstromes werden die Versuche 120802 ( $\dot{M}_g = 70 \text{ kg/h}$ ), 100817 ( $\dot{M}_g = 85 \text{ kg/h}$ ) und 120804 ( $\dot{M}_g = 100 \text{ kg/h}$ ) herangezogen, siehe Tabelle 5.3. Bei geringeren Gasdurchsätzen ist die Durchmischung der Partikel im Bett verringert und dadurch erhöht sich die Agglomerationsneigung. Größere Gasmassenströme können Overspray und Abrieb bewirken. In der Abbildung 5.14 werden die Messergebnisse der Variation des Gasmassenstromes veranschaulicht. Wird die Gasgeschwindigkeit erhöht, steigt die Porosität in der Wirbelschicht und damit die Schichthöhe  $H_{\text{bed}}$ . Die veränderte Schichthöhe bewirkt Abweichungen bei der Messung des Druckverlustes. Dabei wird dieser größer als bei der Kalibrierung (siehe Abschnitt 4.2.3.1) und liegt außerhalb des Kalibrierungsbereiches. Damit kommt es zu Abweichungen bei der weiteren Ermittlung der Schichtmasse, siehe Abbildung 5.14(a).

In Abbildung 5.14(b) wird der Verlauf der Partikelgröße  $d_{32}/d_{32,0}$  dargestellt. Hier lässt sich eine Tendenz in Abhängigkeit vom Fluidisierungsmassenstrom erkennen. Mit erhöhtem Gasmassenstrom werden etwas größere Partikel erzeugt.

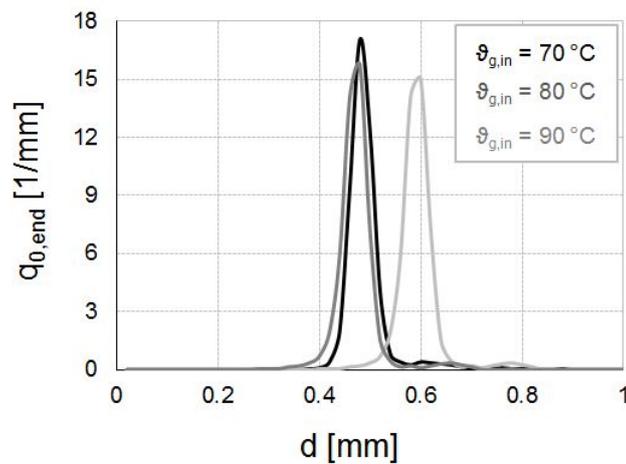
In Abbildung 5.15 wird die optische Bewertung der Oberflächenbeschichtung dargestellt. Hierbei wird deutlich, dass mit steigendem Gasmassenstrom die Porosität der Oberfläche qualitativ ansteigt. Diese Beobachtung unterstützt die in Abbildung 5.14(b) aufgezeigte Entwicklung der Partikelgröße. Darüber hinaus ist anzunehmen, dass die erhöhte Gasgeschwindigkeit in der Schicht das Fluidisationsregime verändert und damit die Partikelkollisionen, siehe Abschnitt 2.4.2.1. Die Partikelumlaufzeit im Wursterrohr wird geringer, die Anzahl der Umläufe steigt,



(a) Bettmasse  $M_{bed}$



(b) Normierter Sauter-Durchmesser  $d_{32}/d_{32,0}$



(c) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$

Abbildung 5.12: Darstellung der Ergebnisse bei Variation der Gaseintrittstemperatur  $\vartheta_{g,in}$ .

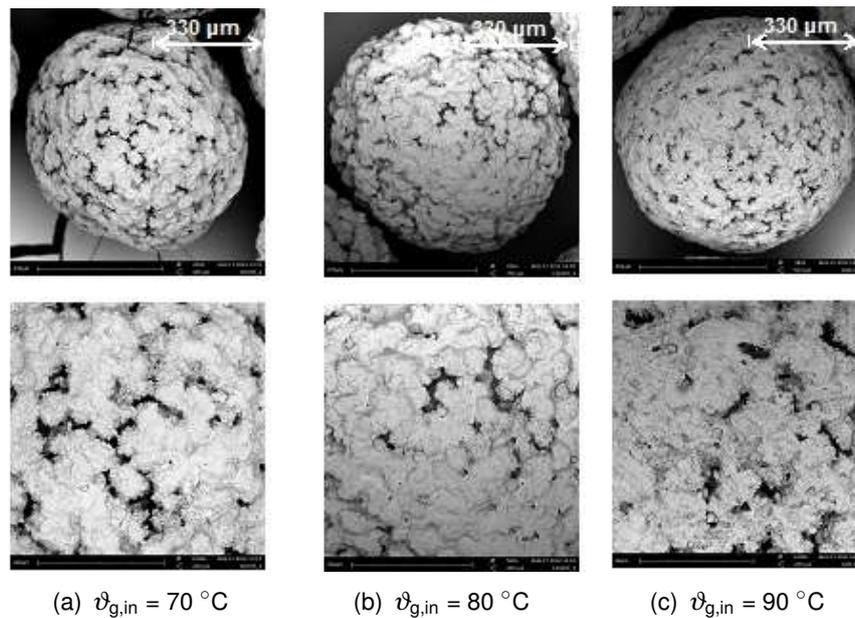


Abbildung 5.13: REM-Aufnahmen von Partikeln aus den Endproben von Versuchen bei verschiedener Gaseintrittstemperatur  $v_{g,in}$ .

siehe Becher und Schlünder (1997), Fries u. a. (2013), Börner (2013), Shelukar u. a. (2009), Cronin u. a. (2010), Palmer u. a. (2007), Fitzpatrick u. a. (2003), Karlsson u. a. (2006).

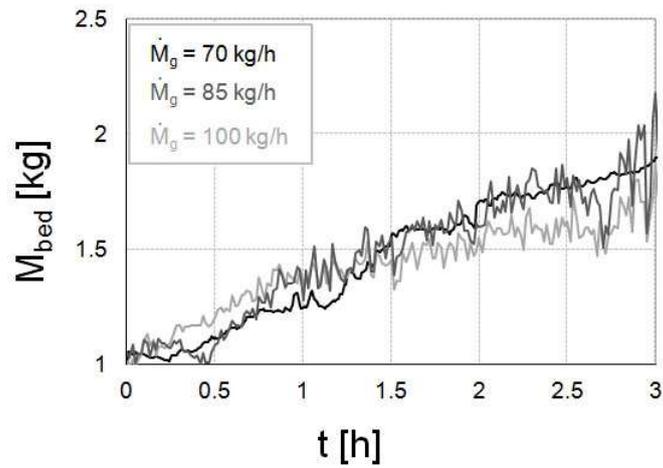
Die Erhöhung des Gasdurchsatzes führt nicht nur zu einem schnelleren Umlauf der Partikel, sondern auch zur verstärkten Blasenbildung in der Schicht. Aus diesem Grund entsteht eine unregelmäßige Beschichtung der Partikel, die in der Breite der Partikelgrößenverteilungen der Endprodukte zu erkennen ist, siehe Abbildung 5.14(c).

### 5.2.3.3 Variation der Eindüsungsrate

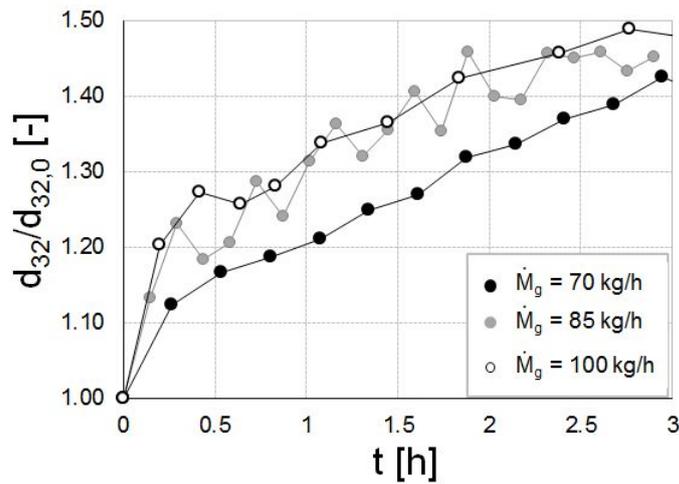
Der Eindüsungsmassenstrom der Coatinglösung  $\dot{M}_L$  wird in dieser Untersuchung in drei Variationen (0.8 kg/h, 1.1 kg/h und 1.5 kg/h) realisiert. Diese Durchsätze wurden ausgewählt, um Agglomeratbildung bei höheren Durchsätzen zu vermeiden. Im Fall von geringem Eindüsungsmassenstrom kann der Prozess als energetisch ineffektiv betrachtet werden.

Die Änderung des Flüssigkeitsdurchsatzes hat einen Einfluss auf die Größe und Anzahl der Sprühtropfen und den Tropfenanzahlstrom, Hampel (2010). Bei der Erhöhung des Durchsatzes wird die Tropfengröße erhöht.

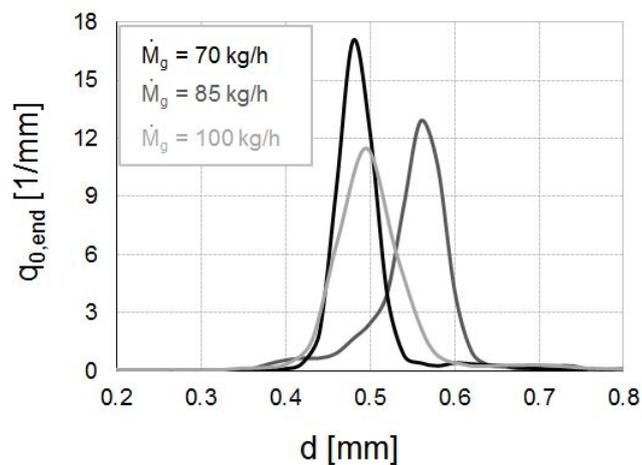
Die Ergebnisse der Variation (Versuche 120802, 110824 und 120803) sind in der Abbildung 5.16 dargestellt. Hinsichtlich der Partikelgröße ist zu erkennen, dass ein Anstieg der Eindüsungsrate ein verstärktes Wachstum bewirkt, siehe Abbildung 5.16(b). Die Ergebnisse in der Abbildung 5.16(c) zeigen, dass mit der Erhöhung der Eindüsungsrate die Partikel-



(a) Bettmasse  $M_{bed}$



(b) Normierter Sauter-Durchmesser  $d_{32}/d_{32,0}$



(c) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$

Abbildung 5.14: Darstellung der Ergebnisse bei Variation des Fluidisierungsmassenstroms  $\dot{M}_g$ .

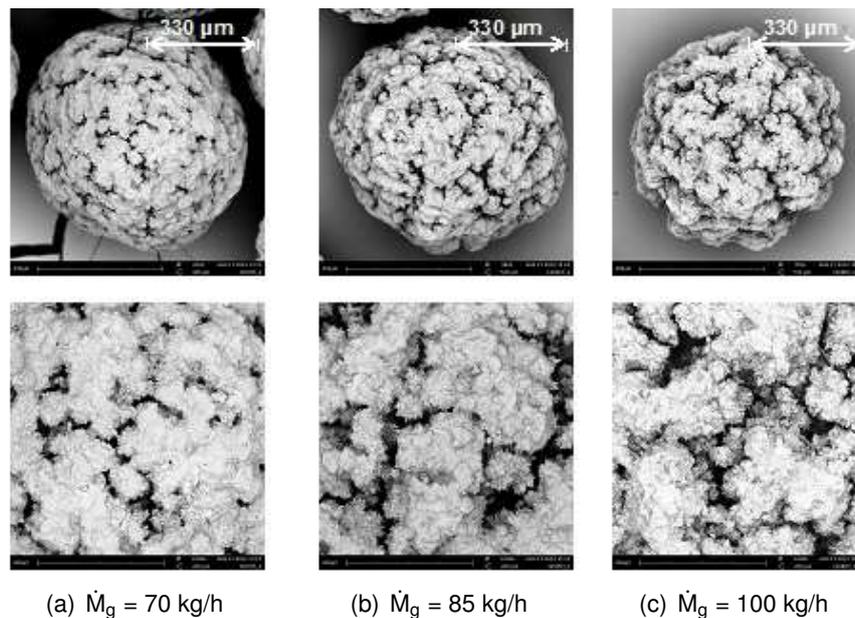


Abbildung 5.15: REM-Aufnahmen von Partikeln aus den Endproben von Versuchen bei verschiedenen Gasmassenströmen  $\dot{M}_g$ .

größenverteilungen sich in Richtung größerer Partikel verschieben. Die Form und Breite der Verteilungen bleiben dabei unverändert.

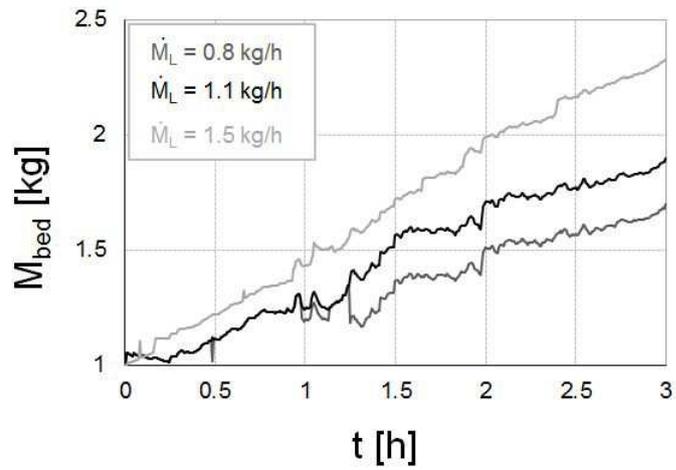
Die optische Analyse mittels REM zeigt keine eindeutige Änderung an der Partikeloberfläche mit der Erhöhung des Eindüsungsmassenstroms, siehe Abbildung 5.17.

#### 5.2.3.4 Zusammenfassung der Ergebnisse der Parametervariation

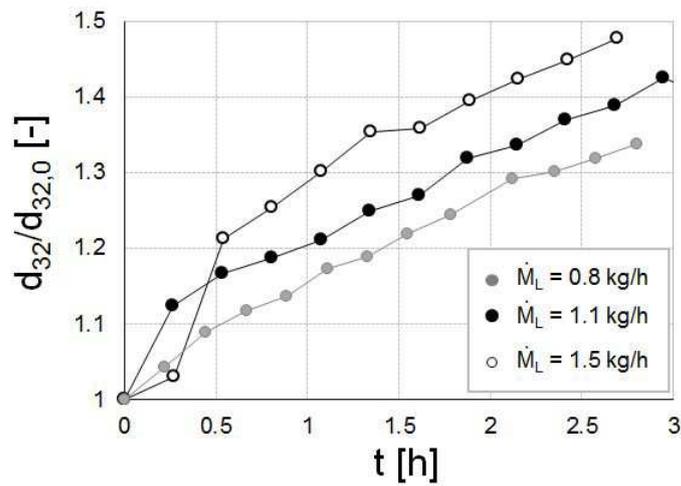
Um das Prozessverständnis für grundlegende Tendenzen des vorliegenden Coatingprozesses zu erhalten, wurden experimentelle Parameterstudien betrieben. Dies wurde zunächst für den diskontinuierlichen Coatingprozess durchgeführt.

Die hierbei variierten Prozessparameter sind die Gaseintrittstemperatur  $\vartheta_{g,in}$ , der Fluidisierungsmassenstrom  $\dot{M}_g$  und die Eindüsungsrate der Coatingflüssigkeit  $\dot{M}_L$ . Zur Auswertung der resultierenden Tendenzen wurde der zeitliche Verlauf der messtechnisch kalkulierten Bettmasse  $M_{bed}$ , der normierten Partikelgröße  $d_{32}/d_{32,0}$  und Anzahldichteverteilung  $q_0(t = t_0)$  herangezogen. Darüber hinaus werden zum qualitativen Vergleich der Partikeloberfläche aus den verschiedenen Variationen rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen präsentiert. Diese stellen einen Vergleich von Partikelproben zum Zeitpunkt  $t = t_{end}$  dar.

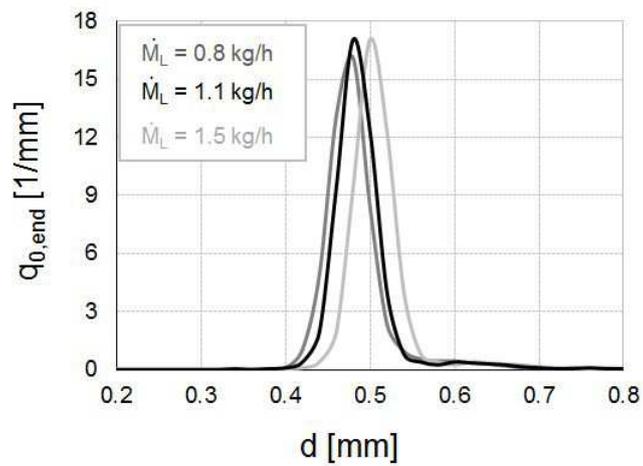
Für alle Experimente der Variationen wird eine Prozessdauer von 3 Stunden zur Bewertung der Tendenzen herangezogen. Die qualitativen Tendenzen und Schlussfolgerungen der Variationen werden in Tabelle 5.4 zusammengefasst.



(a) Bettmasse  $M_{bed}$



(b) Normierter Sauter-Durchmesser  $d_{32}/d_{32,0}$



(c) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$

Abbildung 5.16: Darstellung der Ergebnisse bei Variation der Eindüsungsrates.

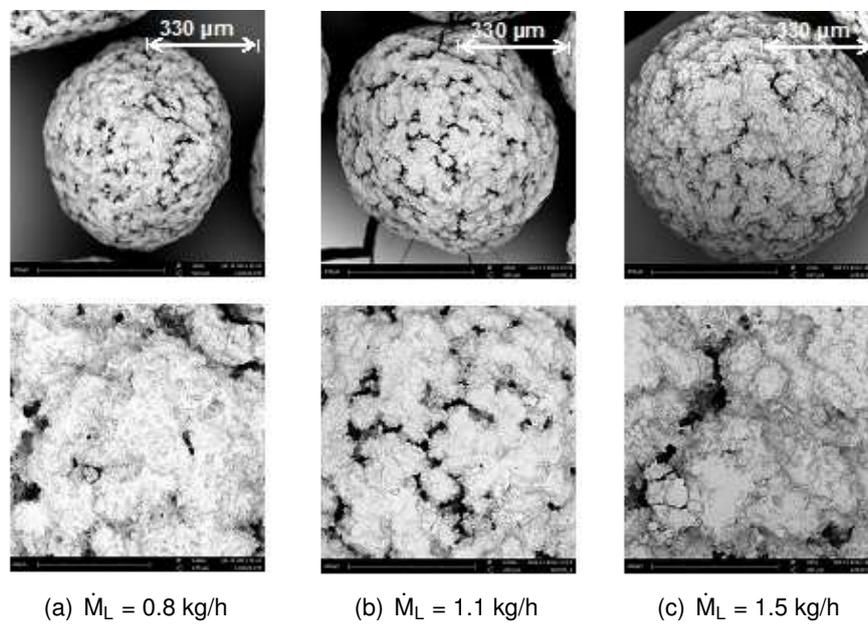


Abbildung 5.17: REM-Aufnahmen von Partikeln aus den Endproben von Versuchen bei verschiedenen Eindüsungsraten der Sprühlösung  $\dot{M}_L$ .

Tabelle 5.4: Auflistung der Versuchsergebnisse der Parametervariationen für den diskontinuierlichen Coatingprozess.

Parametervariation	Experimentelles Ergebnis	Begründung
steigende Gaseintritts-temperatur $\uparrow v_{g,in}$	<ul style="list-style-type: none"> <li>keine konkrete Tendenz beim Wachstum <math>G</math></li> <li>breitere Partikelgrößenverteilungen <math>q_0</math></li> <li>kompakte und glatte Partikeloberfläche</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>keine Neigung zur Agglomeration und konstante versprühte Feststoffmasse <math>M_s</math></li> <li>Entstehung von elektrostatischen Effekten, das Wachstum <math>G</math> wird vermindert</li> <li>stoffspezifische Eigenschaften der gebildeten Schicht, abhängig von den Trocknungsbedingungen</li> </ul>
steigender Gasmassenstrom $\uparrow \dot{M}_g$	<ul style="list-style-type: none"> <li>Abweichungen in den Verläufen der Bettmasse <math>M_{bed}</math></li> <li>in geringem Maßstab erhöhtes Partikelwachstum <math>G</math></li> <li>breitere Partikelgrößenverteilungen <math>q_0</math></li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>erhöhte Schichthöhe <math>H_{bed}</math>, Abweichungen in der Druckverlustmessungen</li> <li>mehr Partikelkollisionen, erhöhte Anzahl an Umläufen im Wursterrohr, erhöhte Partikelporosität <math>\varepsilon_{sh}</math></li> <li>erhöhte Blasenbildung, die zu unregelmäßiger Beschichtung führt</li> </ul>
steigende Eindüsungsrate $\uparrow \dot{M}_L$	<ul style="list-style-type: none"> <li>Verstärkung des Wachstums <math>G</math></li> <li>die Partikelverteilungen <math>q_0</math> bleiben unverändert</li> <li>keine eindeutige Änderung an der Partikeloberfläche</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>Erhöhung des Tropfenanzahlstroms bzw. -durchmessers</li> <li>keine Neigung zur Agglomeration</li> <li>die Änderung an den Trocknungsbedingungen in diesen Grenzen hat keine deutliche Wirkung auf die Porosität <math>\varepsilon_{sh}</math> der gebildeten Schicht</li> </ul>

## 5.3 Kontinuierliche Coatingversuche

### 5.3.1 Durchführung und Auswertung

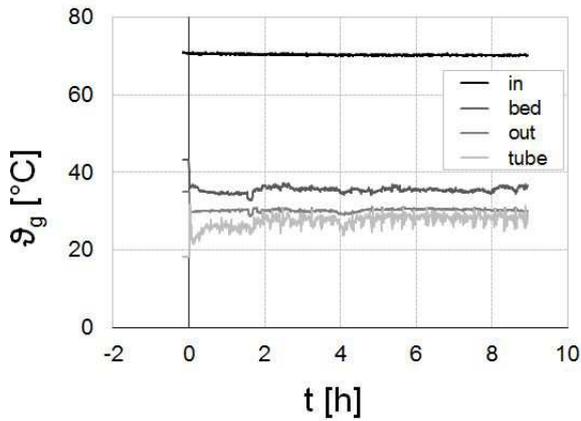
Alle kontinuierlichen Beschichtungsversuche werden in der gleichen Reihenfolge von Handlungen durchgeführt wie die diskontinuierlichen Experimente. Das Besondere bei den kontinuierlichen Versuchen ist, dass nach der Entnahme der ersten Probe die Messwertaufzeichnung zusammen mit der Steuerung der Bettmasse gestartet und die Flüssigkeitsförderung der Eindüsung in Betrieb genommen wird. Gleichzeitig werden die Partikelschleusen der kontinuierlichen Keimzugabe und des Austrages eingeschaltet. Im Laufe des Prozesses werden Proben in bestimmten Zeitintervallen aus der Schicht und am Produktaustrag entnommen und in abgeschlossenen Behältern bei Umgebungstemperatur aufbewahrt. Diese werden mit der offline Messung der Partikelgrößenverteilung analysiert, siehe Abschnitt 4.4.1.

Bei allen Versuchen wurden folgende Parameter konstant gehalten:

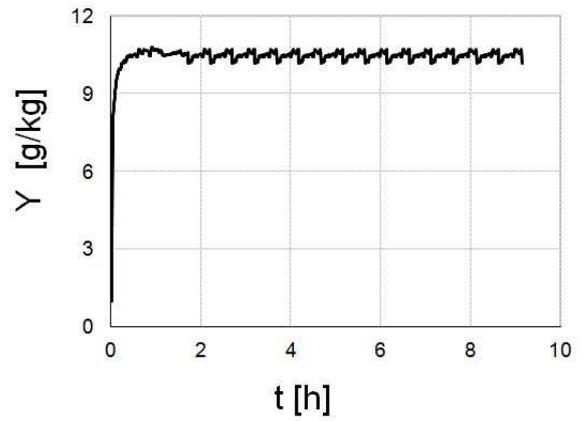
- Anfangsbettmasse  $M_{bed,0}$  und die Sollbettmasse in der Regelung  $M_{set}$  (1 kg),
- Konzentration der Coatinglösung (30 Ma%),
- Düsenvordruck (1.5 bar),
- Luftkappenstellung der Düse (2.5),
- Wurstereinsatzhöhe (20 mm).

In den folgenden Abbildungen sind die Messwerte zur Beschreibung der Versuchsergebnisse für den Versuch 120118 dargestellt. Dieser Beispielversuch wurde mit den in Tabelle 5.5 aufgeführten Betriebsparametern durchgeführt. Im Versuchsverlauf wurden wichtige Größen wie die in Abbildung 5.18(a) dargestellten Temperaturen am Gaseintritt  $\vartheta_{g,in}$ , in der Schicht  $\vartheta_{g,bed}$ , am Gasaustritt der Wirbelschicht, vor dem Zyklon  $\vartheta_{g,out}$ , siehe Abbildung 4.2, und im Klassierrohr  $\vartheta_{g,tube}$  dargestellt. Vor dem Beginn des Prozesses sind alle Temperaturwerte konstant. Zum Zeitpunkt  $t = 0$  s beginnt die Eindüsung der wässrigen Lösung auf die bereits vorge-trockneten fluidisierten Partikel. Hierbei senken sich die Temperatur in der Schicht  $\vartheta_{g,bed}$  und die Gasaustrittstemperatur  $\vartheta_{g,out}$ . Da nach Prozessbeginn die vorgetrockneten und erwärmten Partikel das Klassierrohr erreichen, steigt die Temperatur im Klassierrohr. Mit fortschreitender Prozessdauer gleichen sich die Temperaturen im Klassierrohr, am Austrag und in der Schicht einander an. Dies ist mit der permanenten Partikelzirkulation zwischen der Wirbelschicht und dem Klassierrohr zu erklären.

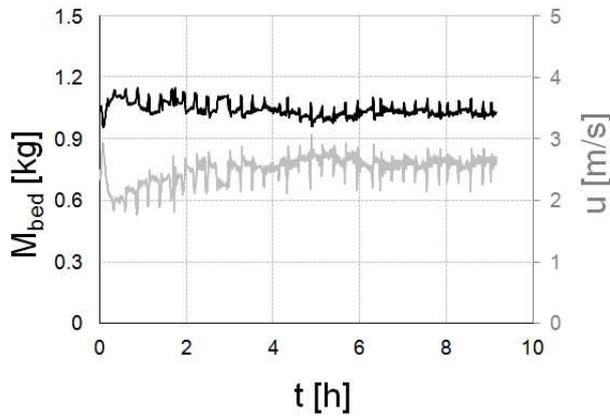
Eine weitere Größe, welche Aussagen hinsichtlich der Trocknungsbedingungen und eine Überwachung der Konsanz der Flüssigkeitseindüsung zulässt, ist die Gasbeladung  $Y$  am Austritt der Wirbelschicht. Der Verlauf dieser Feuchtebeladung der Luft ist in Abbildung 5.18(b) dargestellt. Es ist zu erkennen, dass die Luftbeladung im Prozessverlauf konstant bleibt, was



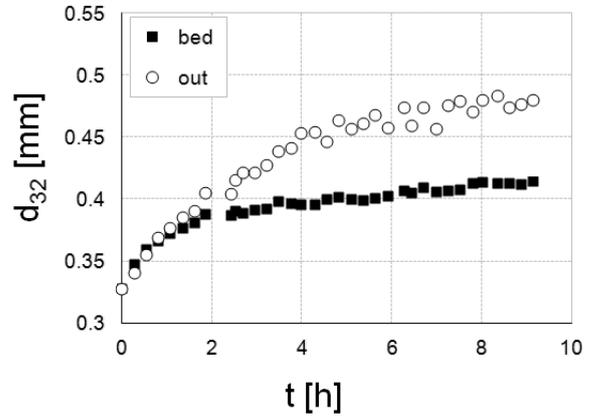
(a) Temperaturen am Gaseintritt  $\vartheta_{g,in}$ , Gasaustritt  $\vartheta_{g,out}$ , in der Schicht  $\vartheta_{g,bed}$  und im Klassierrohr  $\vartheta_{g,tube}$



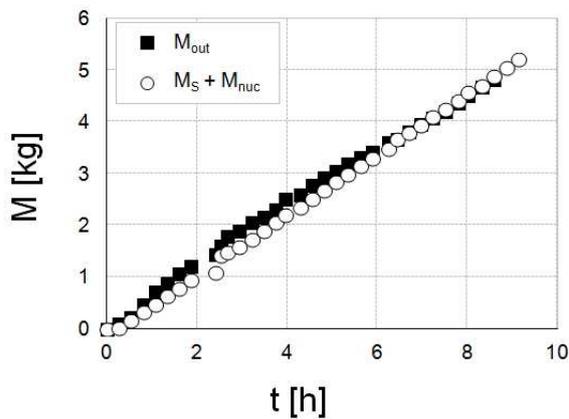
(b) Gasbeladung Y am Austritt der Wirbelschicht



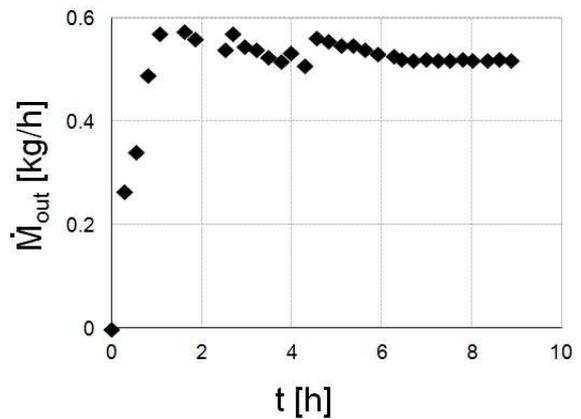
(c) Bettmasse  $M_{bed}$  und Klassierluftgeschwindigkeit  $u$



(d) Sauter-Durchmessers in der Schicht  $d_{32,bed}$  und am Produktaustrag  $d_{32,out}$



(e) Zugefügte ( $M_S + M_{nuc}$ ) und ausgetragene Masse  $M_{out}$  im Prozessraum



(f) Ausgetragener Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$

Abbildung 5.18: Prozess- und Partikelparameter beim kontinuierlichen Coatingversuch 120118.

auf die Annäherung an einen thermisch stationären Zustand zurückzuführen ist. Die Beladung wird mit Hilfe eines Taupunktspiegels gemessen. Die Funktionsweise eines Taupunktspiegels wird in Anhang A kurz beschrieben.

Auf der nächsten Abbildung 5.18(c) sind die Bettmasse  $M_{\text{bed}}$  und die Gasgeschwindigkeit im Klassierrohr  $u$  über die Prozessdauer dargestellt. Zum Prozessbeginn startet die kontinuierliche Zugabe an Trägermaterial. Aus diesem Grund ist eine leichte Erhöhung der Bettmasse zu verzeichnen. Als Reaktion darauf sinkt die Gasgeschwindigkeit  $u$  im Klassierrohr. Die Verläufe beider Größen konvergieren nach 4 Stunden Prozessdauer gegen konstante Werte.

Um den Coatingprozess hinsichtlich der Partikelgröße auszuwerten, ist es notwendig, die Partikelgrößenverteilung zu bestimmen. Hierbei wird der Sauter-Durchmesser  $d_{32}$  aller Proben herangezogen, und die Verläufe in der Schicht und im Produkt werden in Abhängigkeit der Prozesszeit dargestellt, siehe Abbildung 5.18(d). In der Anfahrphase ist in beiden Verläufen ein Anstieg zu erkennen. Nach ca. 4.5 h laufen die Sauter-Durchmesser auf konstante Werte zu. Danach geht der Prozess in einen stationären Zustand über. In dieser Prozessphase bleiben alle Prozess- und Partikelparameter konstant.

Wie bereits erwähnt, wurden im Laufe des Prozesses regelmäßig Proben aus der Schicht und am Produktaustrag entnommen. Die in einem Probenahmeintervall ausgetragene Produktmasse  $M_{\text{out}}$  wurde gesammelt und gravimetrisch ermittelt. Der daraus errechnete Verlauf des Produktmassenstromes  $\dot{M}_{\text{out}}$  mit der Zeit ist in Abbildung 5.18(f) dargestellt. Im Verlauf ist zu erkennen, dass in den ersten zwei Stunden der Produktmassenstrom  $\dot{M}_{\text{out}}$  linear steigt. Danach stellt sich ein nahezu konstanter Wert ein.

Mit Hilfe der gemessenen Produktmasse  $M_{\text{out}}$  lässt sich die Massenbilanz für den Coatingprozess ermitteln. Die zugegebene Menge an Keimen  $M_{\text{nuc}}$  und der eingedüste Feststoff der Coatinglösung  $M_{\text{s}}$  sollen der Masse des ausgetragenen Produktes  $M_{\text{out}}$  entsprechen. Die Gegenüberstellung der zugegebenen Masse ( $M_{\text{s}} + M_{\text{nuc}}$ ) und der ausgetragenen Masse  $M_{\text{out}}$  ist in der Abbildung 5.18(e) dargestellt. Die Ergebnisse weisen eine sehr gute Übereinstimmung auf. Dies ist ein Nachweis dafür, dass die eingedüsten Flüssigkeitströpfchen die Partikeloberfläche direkt erreicht haben. Zusätzlich wird die Konstanz und Präzision der Keimzugabe damit überprüft.

Die Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht und am Produktaustrag zu unterschiedlichen Zeitpunkten sind in der Abbildung 5.19 dargestellt. Die Verteilung des Produktes liegt rechts im jeweiligen Diagramm und entspricht einem größeren Partikeldurchmesser. Aufgrund des Klassiervorgangs ist die Verteilung des Produktes optisch schmaler als diese in der Schicht für den gleichen Zeitpunkt. Die Partikelgrößenverteilungen in der Schicht werden mit der Zeit breiter. Im Gegensatz hierzu behält die Partikelgrößenverteilung am Produktaustrag ihre Form und Breite. Das ausgetragene Produkt besteht aus Partikeln im Bereich zwischen  $300 \mu\text{m}$  und  $600 \mu\text{m}$ . Die Überlappung zwischen den beiden Verteilungen ist groß. Der Prozess könnte da-

her von einer besseren Klassierung profitieren. Eine alternative Möglichkeit der Klassierung ist die Anwendung eines Zick-Zack-Sichters, wobei der Fehlaustrag kleiner ist und eine geringere Überlappung zwischen den Partikelgrößenverteilungen auftreten sollte.

Eine chronologische Reihe von REM-Bildern in den Proben entnommener Partikel ist in Abbildung 5.20 dargestellt. Optisch ist ein Partikelwachstum erkennbar. Die Granulate behalten ihre sphärische Form im Laufe des Prozesses. Die Partikeloberfläche und -struktur bleiben optisch unverändert.

### 5.3.2 Analyse der Partikelporosität

Hierbei kam die in dieser Arbeit entwickelte Methode zur Bestimmung der Schichtporosität zum Einsatz, siehe Abschnitt 4.4.4. Da beim kontinuierlichen Prozess im stationären Zustand die Partikelgröße konstant bleibt, ändert sich die Schichtdicke  $s$  mit der Zeit nicht, siehe Abbildung 5.21. Sie steigt im Laufe des Prozesses bis zu einem Wert von  $s = 60 \mu\text{m}$  und bleibt dann unverändert. Wie beim diskontinuierlichen Prozess diskutiert wurde, ist die vermerkte Streuung der Werte der Schichtdicke eine Folge des Fehlers beim optischen Vermessen der Partikelgröße. Für fünf im Laufe des Prozesses entnommene Proben sind die ermittelten Schichtporositäten in der Abbildung 5.22 dargestellt. Die Porosität der gebildeten Hülle ändert sich mit der Zeit nicht. Die Mittelwerte aller zehn Partikel (für jede Probe) sind für jede der fünf Proben dargelegt. Es ist zu erkennen, dass die Mittelwerte sehr ähnliche Werte aufweisen und nur zwischen den Werten  $\varepsilon_{\text{sh}} = 0.44$  und  $\varepsilon_{\text{sh}} = 0.48$  schwanken.

Ein Partikel der letzten entnommenen Probe wurde auch im Mikrotomographen analysiert. Die durchgeführte Referenzvermessung zeigt eine gute Übereinstimmung mit der in dieser Arbeit entwickelten und verwendeten Methode zur Bestimmung der Schichtporosität.

### 5.3.3 Experimentelle Parametervariationen

Um den Einfluss verschiedener Prozessparameter auf den Verlauf des Coatingprozesses und die Eigenschaften der gebildeten Granulate zu untersuchen, wurden diese in mehreren Wirbelschichtversuchen variiert. Der Einfluss folgender Betriebsparameter wird untersucht:

- Eintrittstemperatur der Fluidisierungsluft ( $\vartheta_{\text{g,in}}$ ),
- Fluidisierungsmassenstrom ( $\dot{M}_{\text{g}}$ ),
- Eindüsungsrate der Coatinglösung ( $\dot{M}_{\text{L}}$ ),
- Keimzugaberate ( $\dot{M}_{\text{nuc}}$ ),
- Taktfrequenz am Produktaustrag ( $f$ ).

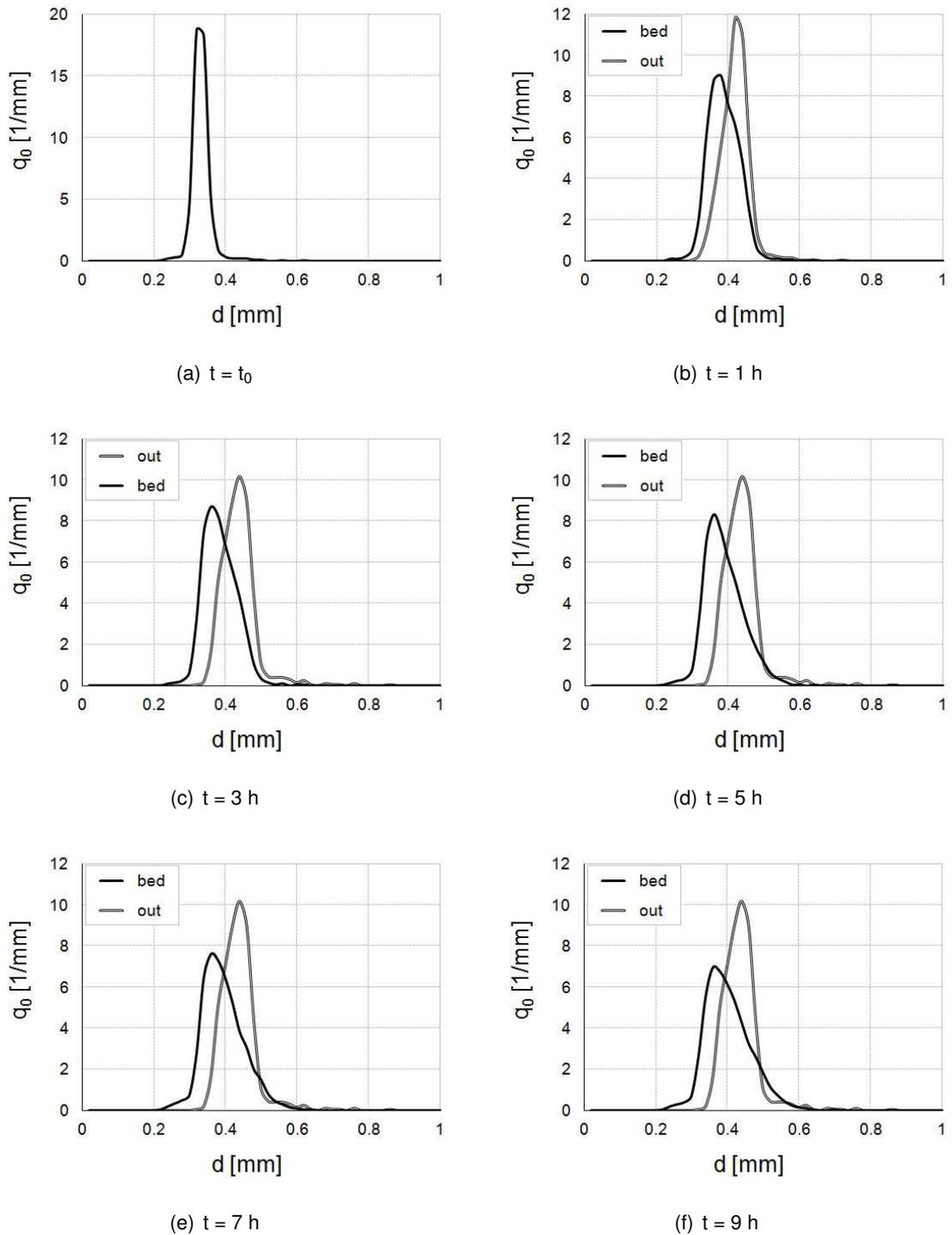


Abbildung 5.19: Darstellung der Partikelanzahldichteverteilungen  $q_0$  in der Schicht und am Produktaustrag für den kontinuierlichen Versuch 120118.

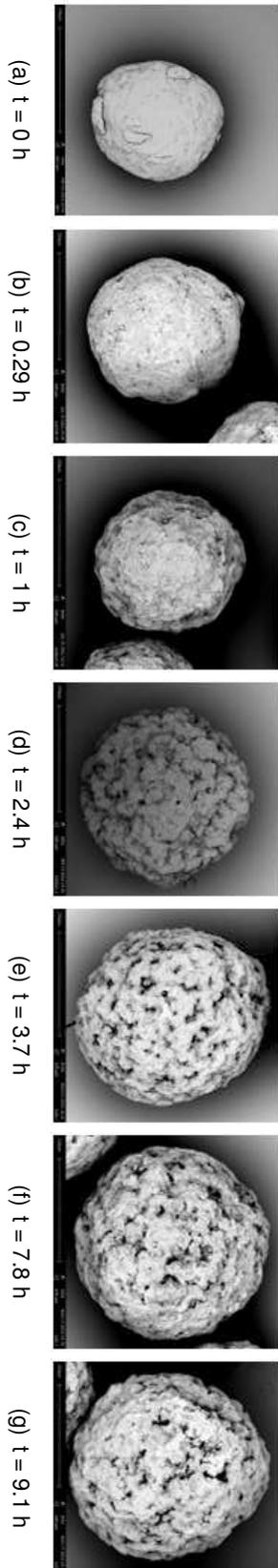


Abbildung 5.20: REM-Bilder des Anfangspartikels und der im Laufe des kontinuierlichen Prozesses hergestellten Partikel.

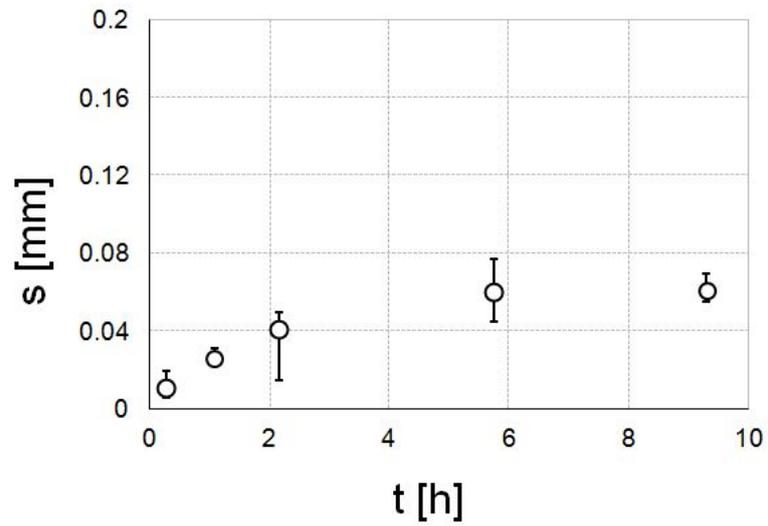


Abbildung 5.21: Schichtdicke  $s$  über der Zeit für den kontinuierlichen Versuch 120118.

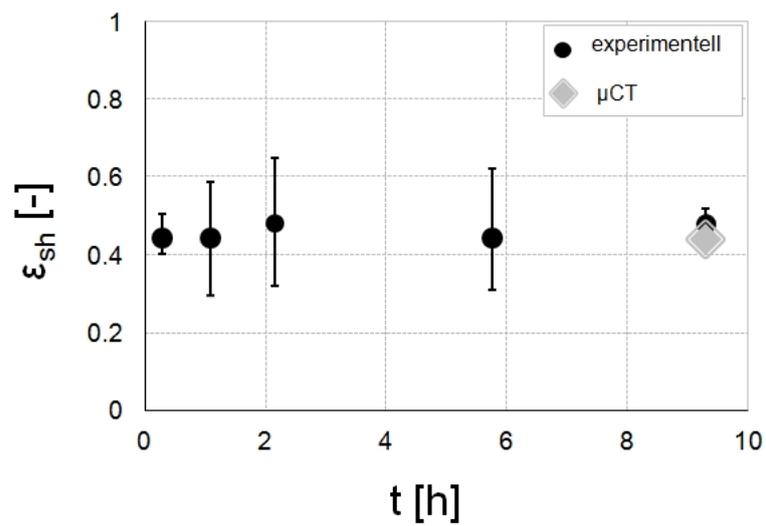


Abbildung 5.22: Schichtporositäten  $\epsilon_{sh}$  für den kontinuierlichen Versuch 120118.

Tabelle 5.5: Auflistung der kontinuierlichen Versuche.

Versuchsnummer	$\vartheta_{g,in}$ [°C]	$\dot{M}_g$ [kg/h]	$\dot{M}_L$ [kg/h]	$\dot{M}_{nuc}$ [kg/h]	f [Hz]
120130	70	70	1.1	0.15	7
120116	90	70	1.1	0.25	7
120118	70	70	1.1	0.25	7
120119	110	70	1.1	0.25	7
120124	70	70	1.5	0.25	7
120125	70	70	0.8	0.25	7
120126	70	70	1.1	0.6	7
120208	70	70	1.1	0.25	10
120201	70	70	1.1	0.25	5
120209	70	100	1.1	0.25	7
120210	70	85	1.1	0.25	7

Die kontinuierlichen Versuche mit den zugehörigen Versuchsparametern sind in der Tabelle 5.5 aufgelistet.

Da die Korngrößenverteilungen der Anfangsbettmassen nicht bei allen Versuchen exakt gleich waren, wurde für die Analyse des Partikelwachstums der laufende Wert des Sauter-Durchmessers  $d_{32}$  auf seinen Anfangswert  $d_{32,0}$  bezogen. Dieser lag in dem Bereich zwischen 0.30 und 0.36 mm.

### 5.3.3.1 Variation der Gaseintrittstemperatur

Die Gaseintrittstemperatur ist eine häufig genutzte Größe zur Steuerung von Wirbelschichtprozessen. In der vorliegenden Arbeit wird diese in einem Bereich von  $70\text{ °C} < \vartheta_{g,in} < 110\text{ °C}$  variiert. Zur Demonstration der Ergebnisse aus der Variation der Gaseintrittstemperatur werden die Versuche 120118 ( $\vartheta_{g,in} = 70\text{ °C}$ ), 120116 ( $\vartheta_{g,in} = 90\text{ °C}$ ) und 120119 ( $\vartheta_{g,in} = 110\text{ °C}$ ) herangezogen. Die entsprechenden Versuchsparameter sind in der Tabelle 5.5 aufgelistet.

Da mit der Änderung der Temperatur des Gases keine Massenzugabe in der Schicht erfolgt, ist kein Unterschied im Produktmassenstrom zu erkennen, siehe Abbildung 5.23(a).

Die auf der Abbildung 5.23(b) dargestellten Daten des zeitlich errechneten Sauter-Durchmessers bezogen auf seinen Anfangswert  $d_{32}/d_{32,0}$  zeigen alle ähnliche Verläufe. Der Versuch mit einer Gaseintrittstemperatur von  $\vartheta_{g,in} = 70\text{ °C}$  hat einen steigenden Verlauf der Partikelgröße im Vergleich zu den anderen beiden Experimenten, durchgeführt bei  $\vartheta_{g,in} = 90\text{ °C}$  und  $\vartheta_{g,in} = 110\text{ °C}$ . Hier sind größere Schwankungen um einen Mittelwert zu erkennen. Die Endwerte des Sauter-Durchmessers bei den zuletzt genannten Experimenten liegen etwas

höher als  $\vartheta_{g,in} = 70 \text{ }^\circ\text{C}$ .

Die Partikelgrößenverteilungen in der Schicht am Ende der durchgeführten Experimente mit verschiedenen Gaseintrittstemperaturen unterscheiden sich im Wesentlichen in der Breite, siehe Abbildung 5.23(c). Wie bei den diskontinuierlichen Versuchen, könnte dies eine Folge der elektrostatischen Effekte sein, die bei höheren Betttemperaturen entstehen. In diesem Fall nehmen nicht alle Partikel am Wachstumsprozess teil, da diese an der Apparatewand haften.

Die Partikelgrößenverteilung des Produktes am Ende der Versuche ergibt sich aus der Partikelgrößenverteilung in der Schicht nach dem Separationsprozess. Da im Prozess keine ideale Trennung vorherrscht, lässt sich die Änderung der Breite der Verteilung am Produktaustrag wiedererkennen, Abbildung 5.23(d).

Da die Anzahl der neuen Keime und die Verweilzeit der Partikel in der Schicht unverändert bleibt, ist die Dauer der Anfahrphase bei den verschiedenen Temperaturniveaus in etwa gleich.

### 5.3.3.2 Variation des Fluidisierungsmassenstroms

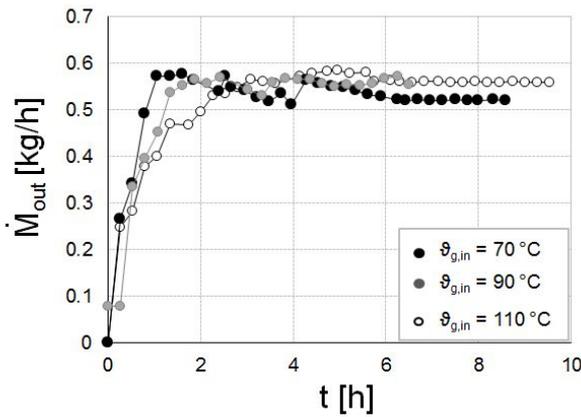
In der vorliegenden Arbeit wurde bei den kontinuierlichen Versuchen der Fluidisierungsmassenstrom in einem Bereich von  $70 \text{ kg/h} < \dot{M}_g < 100 \text{ kg/h}$  variiert. Zur Demonstration der Ergebnisse aus der Variation des Gasmassenstroms werden die Versuche 120118 ( $\dot{M}_g = 70 \text{ kg/h}$ ), 120210 ( $\dot{M}_g = 85 \text{ kg/h}$ ) und 120209 ( $\dot{M}_g = 100 \text{ kg/h}$ ) herangezogen.

In der Abbildung 5.24 werden die Messergebnisse der Variation veranschaulicht. Der Fluidisierungsmassenstrom beeinflusst im Wesentlichen das Fluidisationsverhalten der Wirbelschicht. Mit der Zunahme der Gasgeschwindigkeit in der Schicht lässt sich die Betthöhe und damit die Bettporosität erhöhen.

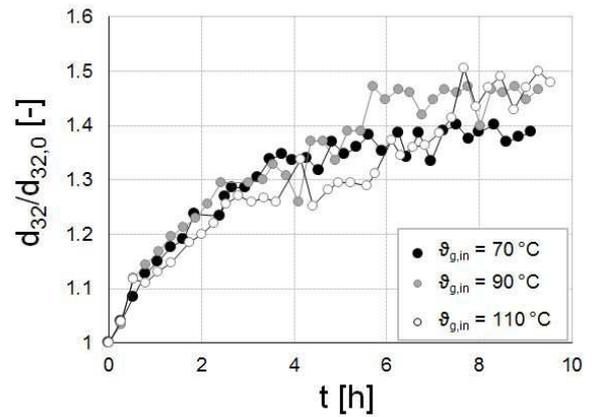
Die erhöhte Gasgeschwindigkeit im Granulatorraum beeinflusst in erster Linie die Partikelkollisionsfrequenz und damit auch den Coatingprozess. Die Partikelumlaufzeit in dem Wursterrohr wird geringer und die Anzahl der Umläufe steigt, siehe Becher und Schlünder (1997), Fries u. a. (2013), Börner (2013), Shelukar u. a. (2009), Cronin u. a. (2010), Palmer u. a. (2007), Fitzpatrick u. a. (2003), Karlsson u. a. (2006). Im Rahmen der Experimente ist zu erkennen, dass die durch den Gasmassenstrom erhöhte Partikelumlauftrate einen Einfluss auf den Massenstrom durch die Partikelschleuse hat. Dieser wird mit Hilfe der Partikelschleuse gesteuert.

Bei der Variation des Fluidisierungsmassenstroms erfolgt keine Massenzugabe in der Schicht. Aus diesem Grund ist kein Unterschied im ausgetragenen Produktmassenstrom zu erkennen, siehe Abbildung 5.24(a).

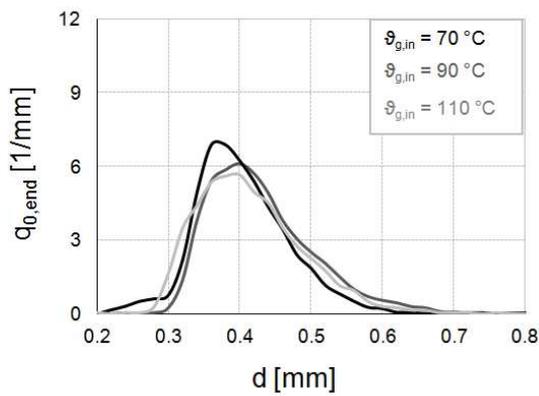
Ähnlich wie beim diskontinuierlichen Coating lässt der Partikeldurchmesser für die Experimente eine leichte Tendenz erkennen. Ein erhöhter Gasdurchsatz erhöht geringfügig das Wachs-



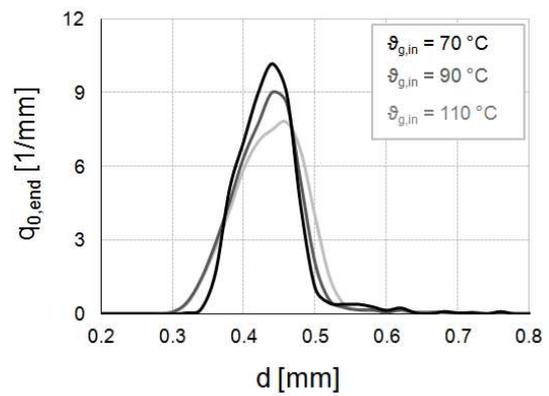
(a) Ausgetragener Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



(b) Normierter Sauter-Durchmesser des Produktes  $d_{32}/d_{32,0}$

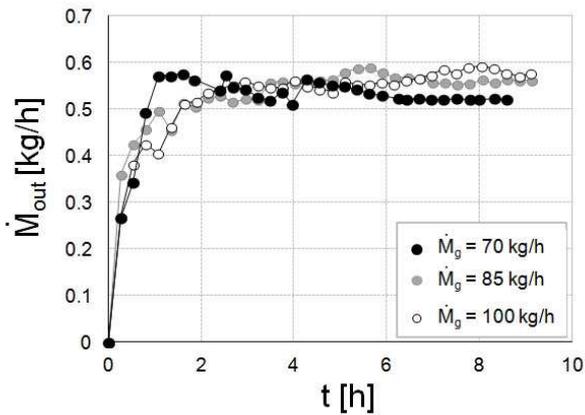


(c) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht

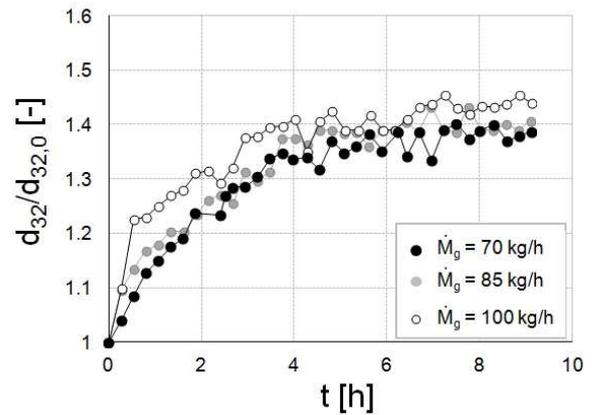


(d) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  des Produktes

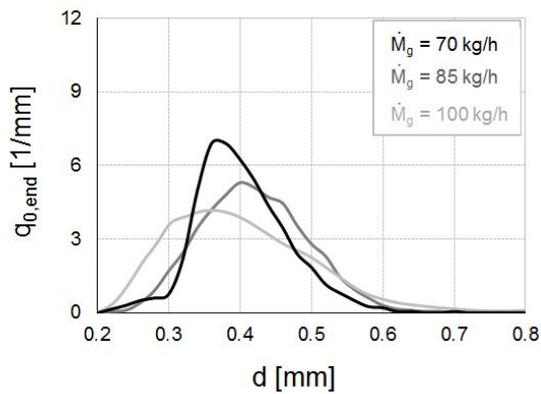
Abbildung 5.23: Darstellung der Ergebnisse der Variation der Gaseintrittstemperatur  $\vartheta_{g,in}$  für den kontinuierlichen Prozess.



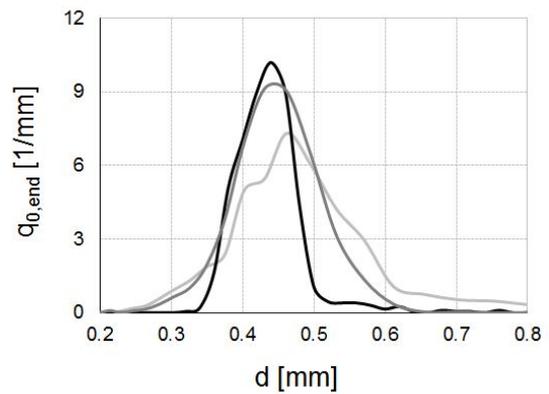
(a) Ausgetragener Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



(b) Normierter Sauter-Durchmesser des Produktes  $d_{32}/d_{32,0}$



(c) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht



(d) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  des Produktes

Abbildung 5.24: Darstellung der Ergebnisse der Variation des Fluidisierungsmassenstroms  $\dot{M}_g$  für den kontinuierlichen Prozess.

tum, siehe Abbildung 5.24(b).

Eine Veränderung der Dauer der Anfahrphase kann nicht festgestellt werden. Der stationäre Zustand tritt in allen drei Fällen nach einer Prozessdauer von vier Stunden auf.

Bei höheren Geschwindigkeiten entstehen breitere Verteilungen in der Wirbelschicht und am Produktaustrag, siehe Abbildungen 5.24(c) und 5.24(c) und 5.24(d). Grund hierfür sind der schnellere Umlauf der Partikel und die Blasenbildung in der Schicht mit der Erhöhung des Gasdurchsatzes. Dies führt zu einer unregelmäßigen Beschichtung der Partikel. Die Partikelgrößenverteilungen im Produkt weisen eine ähnliche Tendenz wie in der Schicht auf.

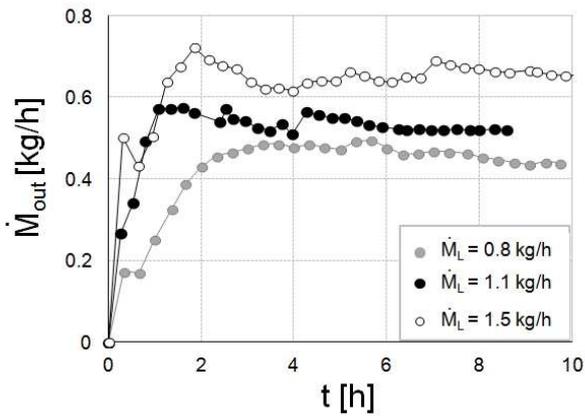
### 5.3.3.3 Variation der Eindüsungsrate

Zur Variation der Eindüsungsrate wurden drei Versuche durchgeführt. Dabei blieben alle anderen Prozessparameter unverändert. Auf der Abbildung 5.25 werden Versuchsergebnisse der Variation der eingedüsten Menge an Coatinglösung veranschaulicht. Es ist zu erkennen, dass mit der Erhöhung der Eindüsungsrate ein Produkt mit größerem Partikeldurchmesser erzeugt wird (siehe Abbildung 5.25(b)).

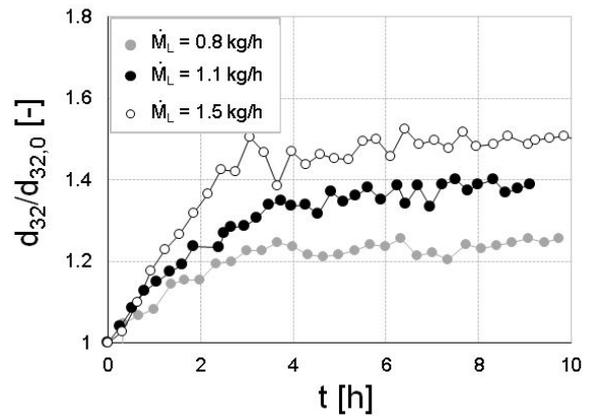
Mit der Zunahme in der Eindüsungsrate steigen die Anzahl an Flüssigkeitstropfen im System und die eingedüste Feststoffmasse des Produktmassenstroms bei der gleich bleibenden Bettmasse in der Wirbelschicht. Somit erhöht sich die Wachstumsgeschwindigkeit des Prozesses. Dieses Verhalten ist anhand der Sauter-Durchmesser in der Schicht und am Produktaustrag zu erkennen, siehe Abbildung 5.25(a).

Der Versuch 120118 mit einer Eindüsungsrate von 1.1 kg/h zeigt, dass die Anfahrphase etwa drei Stunden bis zum Erreichen des stationären Zustandes dauert. Im Gegensatz dazu, wird der stationäre Zustand beim Versuch 120124 mit einer Eindüsungsrate von 1.5 kg/h erst nach 4 Stunden erreicht. Im Versuch mit der geringsten Eindüsungsrate von 0.8 kg/h kann auch die kürzeste Anfahrphase von ca. 2 h festgestellt werden. Hinsichtlich der experimentellen Ergebnisse kann zusammengefasst werden, dass je schneller die Partikel in der Schicht wachsen, desto länger die Anfahrphase dauert.

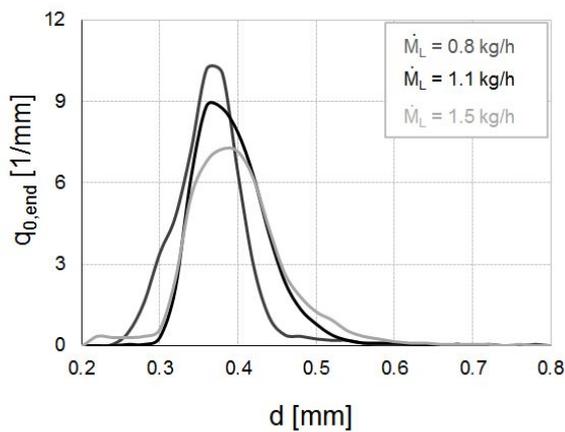
Ein Vergleich der Anzahldichteverteilungen der Endproben in der Schicht und vom Produkt wird in Abbildungen 5.25(c) und 5.25(d) dargestellt. Die Verteilungen wandern mit wachsender Eindüsungsrate hin zu größeren Partikeldurchmessern. Die Wachstumsrate  $G$  erhöht sich mit steigender Masse an eingedüstem Feststoff, siehe Gleichung 2.19. Es ist keine ausgeprägte Änderung der Verteilungen im Bereich feiner Partikel erkennbar. Grund dafür ist die konstante Keimzugabe. Die Verteilungen unterscheiden sich eher im Bereich der gröberen Partikel. Die Partikelgrößenverteilungen beim Produkt weisen eine ähnliche Form wie in der Schicht auf und sind entsprechend der Eindüsungsrate zu größerer Partikelgröße versetzt.



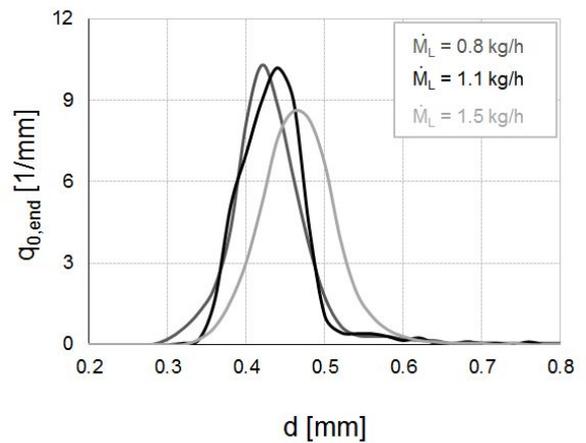
(a) Ausgetragener Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



(b) Normierter Sauter-Durchmesser des Produktes  $d_{32}/d_{32,0}$



(c) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht



(d) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  des Produktes

Abbildung 5.25: Darstellung der Ergebnisse der Variation der Eindüsungsrates  $\dot{M}_L$  für den kontinuierlichen Prozess.

### 5.3.3.4 Variation der Keimzugaberate

Zur Variation der Keimzugaberate wurden drei Versuche durchgeführt. Dabei blieben die Eindüsungsrate bei 1.1 kg/h und der Feststoffanteil in der Sprühflüssigkeit von 30 Ma% konstant. Die Ergebnisse für die drei Versuche mit Keimzugaberaten von 0.15 kg/h (Versuch 120130), 0.25 kg/h (Versuch 120118) und 0.6 kg/h (Versuch 120126) sind in Abbildung 5.26 veranschaulicht.

Aufgrund der Bettmassenregelung nimmt bei gleicher Eindüsungsrate der Produktstrom mit zunehmender Keimzugaberate zu, siehe Abbildung 5.26(a).

Heinrich u. a. (2003) stellen fest, dass eine Erhöhung der Keimmenge im System zu einer Verminderung der Partikelgröße in der Schicht und beim Produktaustrag führt, siehe Abbildung 5.26(b). In diesem Fall erhöht sich die Partikelanzahl in der Schicht, die Partikeloberfläche steigt und dadurch nimmt die Wachstumsgeschwindigkeit ab. Dieses Verhalten ist beim Produkt in der Abbildung 5.26(b) wiederzuerkennen.

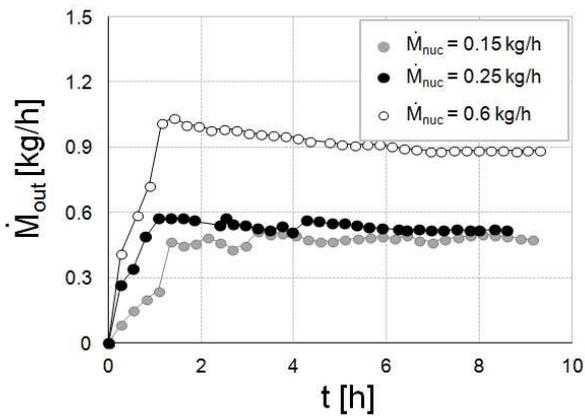
Weiterhin ist zu beobachten, dass bei einer Keimzugaberate von 0.15 kg/h die Dauer der Anlaufphase länger als vier Stunden ist. Hingegen kann bei einer Keimzugaberate von 0.25 kg/h eine Anfahrphase von weniger als 4 h beobachtet werden. Eine deutliche Absenkung der Dauer der Anfahrphase ist bei 0.6 kg/h als Keimzugaberate zu erkennen. Diese ist bereits nach zwei Stunden beendet, und der Prozess geht in den stationären Zustand über. Schließlich kann zusammengefasst werden, dass je größer die Produktgröße im stationären Zustand ist, desto mehr wird eine Verlängerung der Anfahrphase bewirkt.

Bei der Variation der Menge der zugeführten Keime unterscheiden sich die Partikelgrößenverteilungen im Bett (Abbildung 5.26(c)) bzw. am Produktaustrag (Abbildung 5.26(d)) in ihrer Form. Dies kann mit der kürzeren Verweilzeit der Partikel in der Wirbelschicht erklärt werden.

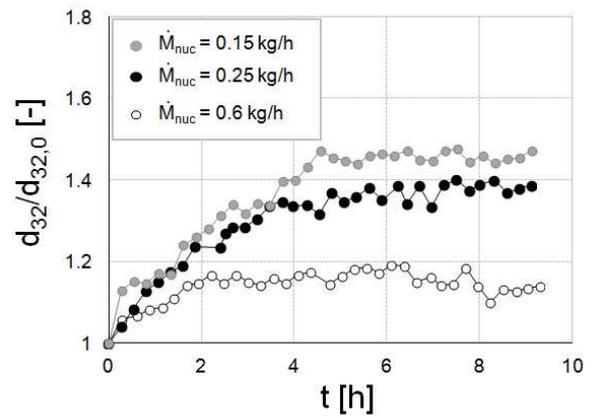
### 5.3.3.5 Variation der Taktfrequenz der Austragsventile

Um einen kontinuierlichen Klassiervorgang zu realisieren, wurde das System für kontinuierlichen Partikelaustrag verwendet, siehe Abschnitt 4.2.1. Die Menge an ausgetragenen Partikeln wird dabei mit Hilfe einer Schleuse aus Quetschventilen gesteuert. Diese Ventile arbeiten synchron, sodass eines geschlossen und eines geöffnet ist. Das Umschalten der Ventile wird durch eine Frequenz  $f$  charakterisiert.

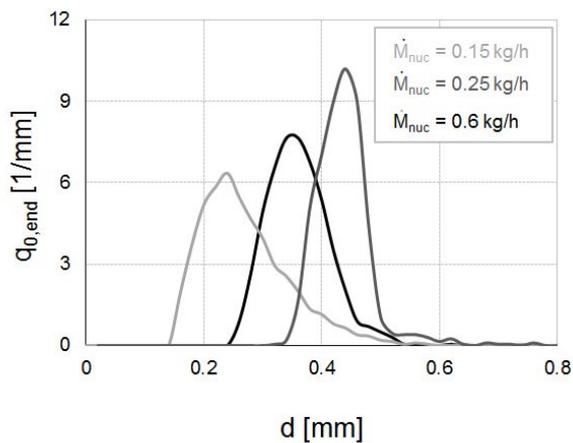
Der Einfluss unterschiedlicher Frequenzen ist auf der Abbildung 5.27 dargestellt. Es wurden drei Versuche durchgeführt und miteinander verglichen, für  $f_{V1} = f_{V2} = 5$  Hz (Versuch 120201), 7 Hz (Versuch 120118) und 10 Hz (Versuch 120802). Wie im Abschnitt 4.2.1.1 erläutert wurde, bekommen die Verteilungen am Produktaustrag mit der Erhöhung der Taktfrequenz eine



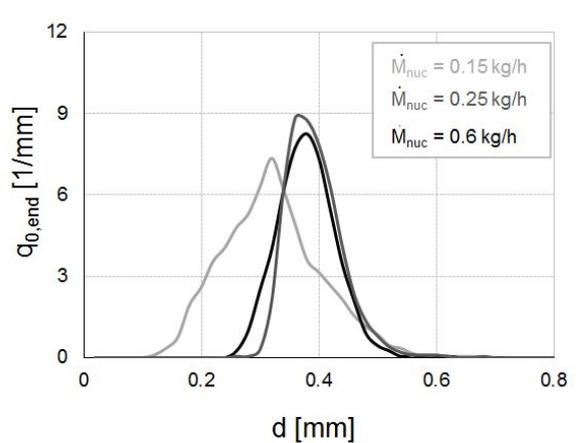
(a) Ausgetragener Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



(b) Normierter Sauter-Durchmesser des Produktes  $d_{32}/d_{32,0}$

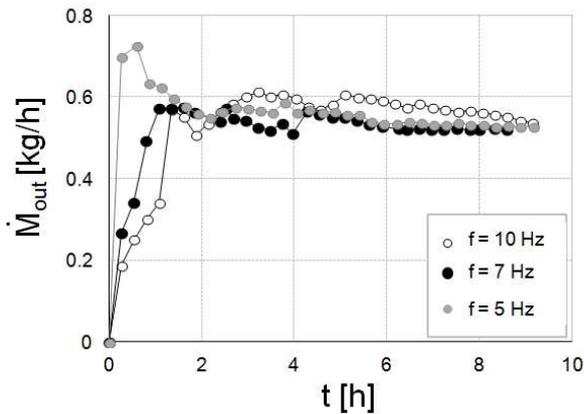


(c) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht

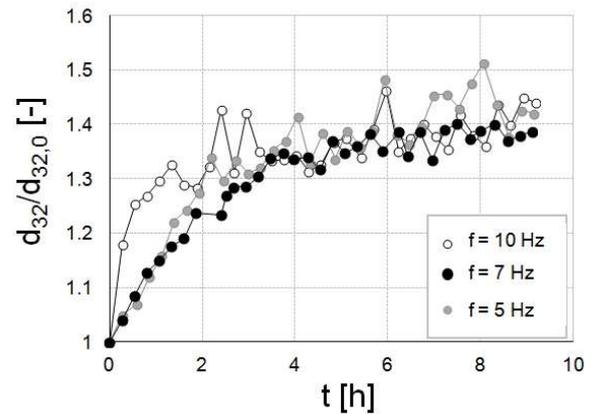


(d) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  des Produktes

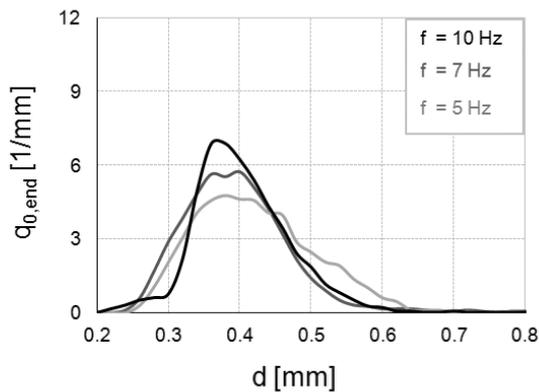
Abbildung 5.26: Darstellung der Ergebnisse der Variation der Keimzugaberate  $\dot{M}_{nuc}$  für den kontinuierlichen Prozess.



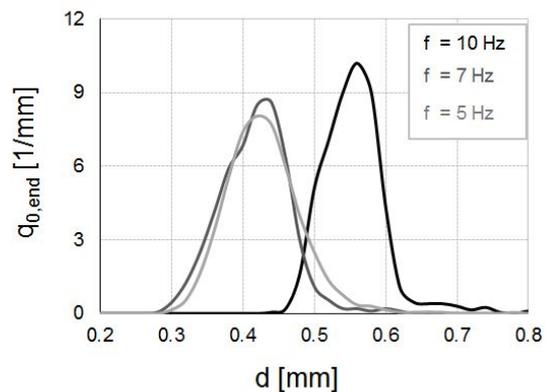
(a) Ausgetragener Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



(b) Normierter Sauter-Durchmesser des Produktes  $d_{32}/d_{32,0}$



(c) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht



(d) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  des Produktes

Abbildung 5.27: Darstellung der Ergebnisse der Variation der Taktfrequenz  $f$  für den kontinuierlichen Prozess.

engere Form, siehe Abbildung 5.27(d).

Die Absenkung der Taktfrequenz führt jedoch auch zu einer weniger effektiven Separation, siehe Abschnitt 4.2.1.1. Dabei nimmt das Umschaltintervall der beiden Ventile zu und somit die Partikelmasse, die durch die Ventile transportiert wird. Eine schlechtere Klassierung sorgt dafür, dass ein Teil der feinen Partikel nicht richtig von den größeren separiert wurde und als Produkt aus dem System entfernt wurde. Andererseits verbleibt ein Teil der Partikel, die größer als die Trenngröße sind, weiter in der Schicht und setzt ihr Wachstum fort. Damit entstehen breitere Verteilungen in der Schicht bzw. am Produktaustrag. Auf Grund des verschlechterten Klassiervorgangs bei der geringsten Taktfrequenz von 5 Hz ist zu Beginn des Prozesses eine Erhöhung des Produktstroms  $\dot{M}_{out}$  zu erkennen.

### 5.3.3.6 Zusammenfassung der Ergebnisse der Parametervariation

Für jeden der durchgeführten Versuche wurden REM-Bilder der Partikel aufgenommen. Bei der Variation der Gaseintrittstemperatur, des Gasmassenstroms und der Eindüsungsrate sind analoge Effekte wie bei den diskontinuierlichen Versuchen zu beobachten. Daher wurden diese in den Ergebnissen nicht weiter diskutiert. Die Variation der Keimzugaberate und der Taktfrequenz ergeben keine ausgeprägten Einflüsse auf die Oberflächenstruktur bzw. die Form der gebildeten Partikel.

Um den Prozess eines kontinuierlichen Pelletcoatings experimentell abzubilden, wurden in Rahmen eines einstufigen und kontinuierlichen Coatingapparates Versuche durchgeführt. Diese wurden mit verschiedenen Variationen von Betriebsparametern geführt, siehe Tabelle 5.6. Hierzu zählen die Gaseintrittstemperatur des Fluidisierungsgases in den Wurster-Apparat  $\vartheta_{g,in}$ , der Fluidisierungsmassenstrom  $\dot{M}_g$ , die Eindüsungsrate  $\dot{M}_L$ , die Keimzugaberate  $\dot{M}_{nuc}$  und die Taktfrequenz der Produktaustragsschleuse.

Die Auswertung der sich aus den Variationen ergebenden Prozesstendenzen erfolgte anhand der normierten Partikelgröße, der Anzahldichteverteilung zum Ende des Prozesses  $q_{0,end}$  für die Schicht im Wurster-Apparat und am Produktaustrag, sowie des ausgetragenen Produktmassenstroms  $\dot{M}_{out}$ .

Aufgrund der abweichenden Prozessparameter wurden die Experimente über eine unterschiedliche Versuchsdauer zwischen 6 und 10 Stunden durchgeführt.

Die sich aus der Parametervariation ergebenden qualitativen Prozesstendenzen werden in der Tabelle 5.6 zusammengefasst und prozesstechnisch begründet.

Tabelle 5.6: Auflistung der Versuchsergebnisse der Parametervariationen für den kontinuierlichen Coatingprozess.

Parametervariation	Experimentelles Ergebnis	Begründung
steigende Gaseintritts-temperatur $\uparrow v_{g,in}$	<ul style="list-style-type: none"> <li>keine konkrete Tendenz beim Wachstum G</li> <li>breitere Partikelgrößenverteilungen <math>q_0</math> in der Schicht und beim Produkt</li> <li>keine Änderung in der Dauer der Antfahrphase</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>keine Neigung zur Agglomeration und keine zusätzlich versprühte Feststoffmasse <math>M_s</math></li> <li>Entstehung von elektrostatischen Effekten, das Wachstum G für einige Partikel wird verhindert</li> <li>keine Änderung in der Partikelanzahl</li> </ul>
steigender Gasmassenstrom $\uparrow M_g$	<ul style="list-style-type: none"> <li>in geringem Maße erhöhtes Partikelwachstum G</li> <li>breitere Partikelgrößenverteilungen <math>q_0</math></li> <li>keine Änderung in der Dauer der Antfahrphase</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>größere Schichthöhe <math>H_{bed}</math>, kein Einfluss auf den Partikelstrom zum Klassierrohr</li> <li>mehr Partikelkollisionen, erhöhte Anzahl an Umläufen im Wursterrohr, erhöhte Blasenbildung, die zu unregelmäßiger Beschichtung führt</li> <li>keine Änderung in der Partikelanzahl</li> </ul>
steigende Eindüsungsrate $\uparrow M_L$	<ul style="list-style-type: none"> <li>stärkeres Wachstum G</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>Erhöhung des Tropfenanzahlstroms</li> </ul>
steigende Keim-zugaberrate $\uparrow M_{nuc}$	<ul style="list-style-type: none"> <li>geringerer Partikeldurchmesser <math>d_{32}</math> in der Schicht und am Produktaustrag</li> <li>engere Partikelgrößenverteilungen in der Schicht</li> <li>kürzere Antfahrphase</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>geringere Verweilzeit der Partikel in der Schicht</li> <li>größere Anzahl an Partikeln in der Schicht mit gleichem Durchmesser und langsames Wachstum wegen der steigenden Partikeloberfläche</li> <li>schnellerer Austausch der Hold up Partikel durch neue Keime</li> </ul>
steigende Takt-frequenz $\uparrow v_1 = v_2$	<ul style="list-style-type: none"> <li>schmalere Partikelgrößenverteilungen <math>q_0</math> in der Schicht und am Produktaustrag</li> <li>steigender Produktmassenstrom <math>M_{out}</math></li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>steigende Trennschärfe <math>\kappa</math></li> <li>abnehmender Fehlaustrag</li> </ul>

# 6 Diskussion der Ergebnisse

## 6.1 Festlegung der frei wählbaren Modellparameter

In den Modellen für das diskontinuierliche und kontinuierliche Coating sind einige Modellparameter frei wählbar. Zunächst wird eine Erläuterung der Festlegung dieser Parameter gegeben.

### 6.1.1 Diskontinuierlicher Coatingprozess

Parameter wie die Schichtporosität, der Volumenanteil der Sprühzone und die Verweilzeit in der Sprühzone sind im dargestellten Modell frei wählbar. Über das Modellverhalten bei deren Variation wurde ausführlich im Abschnitt 3.1 diskutiert.

#### 6.1.1.1 Schichtporosität

Das auf der Basis der Populationsbilanzen entwickelte Modell berücksichtigt die Porosität der gebildeten Hülle. Diese wurde experimentell anhand von zwei Methoden ermittelt. Es wurde eine analytische Methode verwendet, in der die Vermessung der Granulat- und Kernpartikelmasse und deren Durchmesser die Ermittlung der Schichtporosität ermöglicht, siehe Abschnitt 4.4.4. Zusätzlich erfolgte eine Referenzvermessung am einzelnen Partikel in einem Röntgentomographiesystem. Bei einer Gegenüberstellung der beiden Methoden ist für den diskontinuierlichen Coatingprozess eine sehr gute Übereinstimmung zu erkennen, siehe Abschnitt 5.2.2. Aus diesem Grund wurde für die Simulationen zur Beschreibung der experimentellen Daten eine Porosität der Hülle von  $\varepsilon_{sh} = 0.43$  angenommen. Die Wirkung dieses Modellparameters auf das Coating im diskontinuierlichen Verfahren ist im Abschnitt 3.1.1 präsentiert. Für die angenommenen Werte der Partikelporosität sind Einflüsse der Betriebsparameter nicht berücksichtigt.

#### 6.1.1.2 Volumenanteil der Sprühzone

In der Literatur gibt es eine Vielzahl von Angaben für die Aufteilung des Granulatorraumes in zwei Zonen (Börner (2013), Fries u. a. (2013), Priese (2014), Rieck u. a. (2014)). Die fluid-dynamische Analyse bei Fries u. a. (2013) ergibt einen Anteil der Sprühzone  $\alpha$  von 8.9 %. Zur

Beschreibung des diskontinuierlichen Coatingprozesses in den Modellen geben Priese (2014) und Rieck u. a. (2014) einen Anteil der Sprühzone von 10 % vor.

In der vorliegenden Arbeit wird zur Prozessbeschreibung ein Massenanteil der Eindüsungszone von  $\alpha = 10 \%$  angenommen. Der Einfluss dieses Parameters auf den diskontinuierlichen Coatingprozess ist im Abschnitt 3.1.3 dargestellt.

### 6.1.1.3 Verweilzeit der Partikel in der Sprühzone

Börner u. a. (2011) untersuchten die Verweilzeit der Partikel in der Sprühzone in einer Strahlschicht und einem Wurster-Prozess. Wie in der Literatur bekannt (Fries u. a. (2013)), kann die Verweilzeit der Partikel im Steigrohr durch die Prozessparameter Zuluftvolumenstrom und Sprühdruk beeinflusst werden. Börner u. a. (2011) analysierten die Verweilzeit der Partikel in der Sprühzone mit einer Strahlschicht und einem Bottom-Spray-Verfahren mit Wursterrohr. Die Verweilzeit der Partikel im Wursterrohr lässt sich von den Prozessparametern Zuluftvolumenstrom und Sprühdruk beeinflussen. Bei diesem Ansatz wurde eine konstante Verweilzeit angenommen, die unabhängig von der Partikelgröße ist. In einem erweiterten Ansatz von Börner (2013) wurde ein Verweilzeitmodell in Abhängigkeit von der Partikelgröße entwickelt, was bei einem deutlichen Größenzuwachs der Partikel zu einer realistischeren Modellierung führen kann. In dem in dieser Arbeit dargestellten Modell wird eine Verweilzeit der Partikel in der Sprühzone von  $\tau_1 = 0.1 \text{ s}$  angesetzt, was mit den Untersuchungen von Rieck u. a. (2014) und Priese (2014) korrespondiert.

### 6.1.2 Kontinuierlicher Coatingprozess

Im Modell für das kontinuierliche Coating sind Parameter wie Porosität der Hülle, Volumenanteil und Verweilzeit in der Eindüsungszone, Partikelverweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr und der Parameter der Trennfunktion – die Turbulenzkonstante – frei wählbar. Zunächst wird eine Erläuterung der Festlegung dieser Parameter gegeben. Deren Einfluss im Modell wurde im Abschnitt 3.2 analysiert.

#### 6.1.2.1 Schichtporosität

Die Schichtporosität wurde, genauso wie beim diskontinuierlichen Coatingprozess, experimentell ermittelt. Die analytische Methode und die Vermessung der Partikelporosität mittels Mikrotomograph haben eine Schichtporosität von  $\varepsilon_{sh} = 0.45$  ergeben.

### 6.1.2.2 Volumenanteil der Sprühzone

Der Volumenanteil der Eindüsungszone in der Schicht bei dem Modell für kontinuierliches Coating unterscheidet sich nicht von diesem bei dem diskontinuierlichen Coating. Dabei hat der Volumenanteil  $\alpha$  einen Wert von 10 %.

### 6.1.2.3 Verweilzeit der Partikel in der Sprühzone

Die Vorgaben der Partikelverweilzeit in der Eindüsungszone  $\tau_1$  wurden vom Modell des diskontinuierlichen Coatingprozesses übernommen.

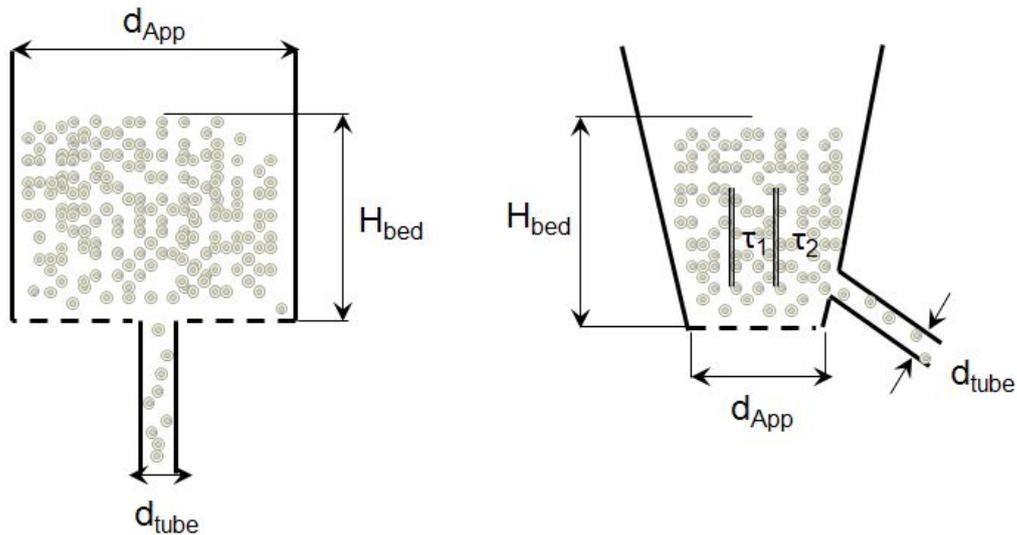
### 6.1.2.4 Partikelverweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr

Für die Ermittlung des Modellparameters Partikelverweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr  $\tau_3$  existieren drei Möglichkeiten. Zwei davon sind bekannt aus der Literatur. Die eine davon ist die Ermittlung der Partikelverweilzeit aus der Trefferwahrscheinlichkeit auf das Klassierrohr nach Heinrich u. a. (2002). Diese wurde im Abschnitt 2.4.2.1 detailliert beschrieben. Eine andere aus der Literatur bekannte Alternative ist die strömungstechnische Ermittlung der Verweilzeit anhand der Wirbelschichtkenngößen, Burgschweiger und Tsotsas (2002), die im Abschnitt 2.4.2.2 vorgestellt wurde. Eine dritte Möglichkeit ist die experimentelle Ermittlung dieses Parameters.

#### **Ermittlung der Trefferwahrscheinlichkeit auf die Klassiereinrichtung**

Die in dieser Arbeit verwendete Wirbelschichtversuchsanlage, siehe Abbildung 4.1, unterscheidet sich in ihrer apparativen Gestaltung von der Modellvorstellung nach Heinrich u. a. (2002). Schematische Darstellungen des Modells nach Heinrich u. a. (2002) und eine an der Versuchsanlage angepasste Vorstellung sind auf der Abbildung 6.1 dargestellt. Im Original wird ein zylindrischer Apparat mit einem integrierten internen Klassierrohr berücksichtigt. Die in der vorliegenden Arbeit verwendete Wirbelschichtanlage weist eine konische Apparatenform auf. Dabei ist das Klassierrohr seitlich positioniert.

Im Beitrag von Heinrich u. a. (2002) werden das Öffnungsverhältnis  $\eta$ , die Betthöhe  $H_{\text{bed}}$  und die Umlaufzeit der Partikel  $t_U$  ermittelt. Die mittlere Partikelgeschwindigkeit  $\bar{u}_p$  wird als Gasgeschwindigkeit angenommen  $u_g$ , siehe Tabelle 6.1. Für die Wirbelschichtanlage sind diese Berechnungen aufgrund der konischen Form nicht zutreffend. Die Berechnung der Trefferwahrscheinlichkeit ist für die klassischen Wirbelschichten ausgelegt und berücksichtigt nicht die typische Partikelbewegung im Wursterrohr. Deshalb wird für den vorliegenden Apparat eine Schichthöhe von  $H_{\text{bed}} = 0.3$  m experimentell abgeschätzt. Dieser Wert wurde optisch beobachtet und ist größer als die Höhe des Wursterrohres  $H_{\text{WT}}$ , siehe Abbildung D.1. Mit Hilfe der Betthöhe  $H_{\text{bed}}$  wird das Öffnungsverhältnis im Apparat ermittelt. Für die Umlaufzeit der



(a) Vorstellung nach Heinrich u. a. (2003)

(b) Angepasste Vorstellung

Abbildung 6.1: Trefferwahrscheinlichkeit auf das Klassierrohr; (a) nach Heinrich u. a. (2003), (b) angepasste Vorstellung.

Tabelle 6.1: Auflistung der Prozessparameter und deren Auswertung zur Ermittlung der Trefferwahrscheinlichkeit auf das Klassierrohr.

Parameter	nach Heinrich u. a. (2002)	angepasste Vorstellung
Öffnungsverhältnis $\eta$ in [-]	Gl. 2.49, $\eta = 0.023$	$\eta = \frac{d_{\text{tube}}^2}{4 \cdot d_{\text{App}} \cdot H_{\text{bed}}} = 0.019$
Schichthöhe $H_{\text{bed}}$ in [m]	Gl. C.5, $H_{\text{bed}} = 0.064$	$H_{\text{bed}} = 0.3$
Umlaufzeit $t_U$ in [s]	Gl. 2.52, $t_U = 0.646$	$t_U = \tau_1 + \tau_2 = 1$
Partikelgeschwindigkeit $\bar{u}_P$ in [m/s]	$\bar{u}_P = u_g = \frac{4 \cdot \dot{M}_g}{\pi \cdot d_{\text{App}}^2 \cdot \rho_g}$	–

Tabelle 6.2: Auflistung der Prozessparameter zur Berechnung der Trefferwahrscheinlichkeit auf das Klassierrohr.

Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Gaseintrittstemperatur	$v_{g,in}$	70	°C
Fluidisierungsmassenstrom	$M_g$	70	kg/h
Apparatedurchmesser	$d_{App}$	0.18	m
Durchmesser des Klassierrohres	$d_{tube}$	0.032	m
Volumenanteil der Sprühzone	$\alpha$	0.1	-
Verweilzeit in der Sprühzone	$\tau_1$	0.1	s
Partikeldurchmesser	$d_P$	0.34	mm
Partikeldichte	$\rho_P$	1380	kg/m <sup>3</sup>
Bettmasse	$M_{bed}$	1	kg

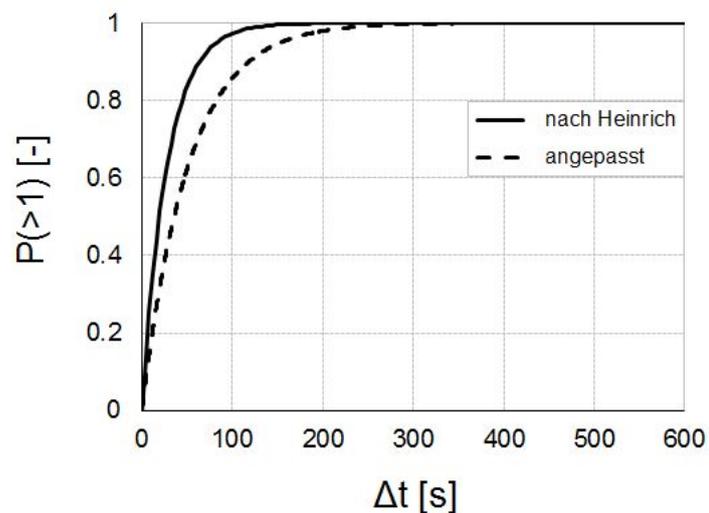


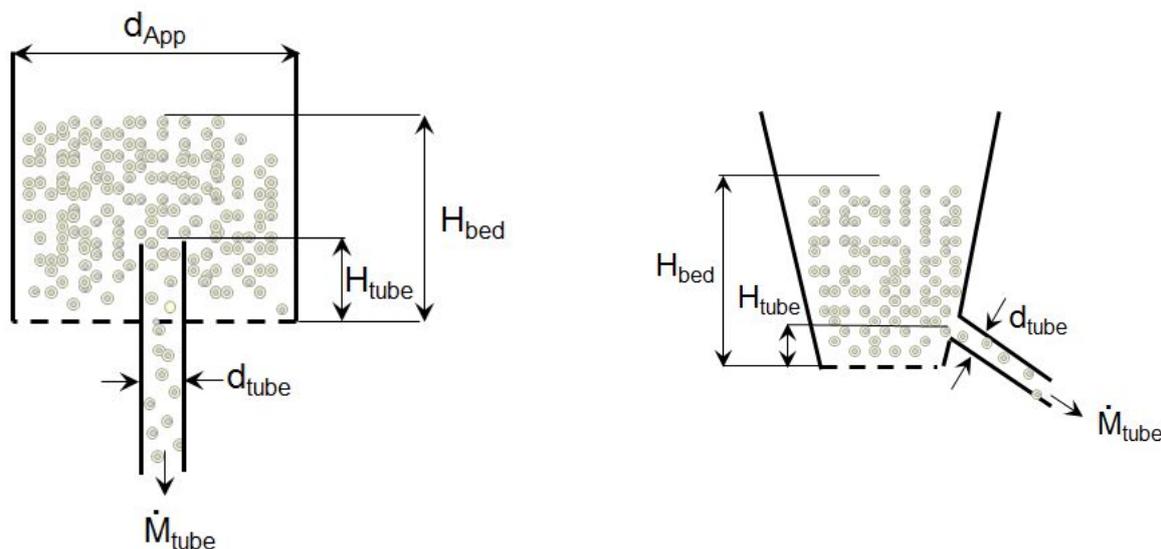
Abbildung 6.2: Berechnete Trefferwahrscheinlichkeit auf das Klassierrohr.

Partikel wird die Summe der Partikelverweilzeiten in der Sprüh- und Trocknungszone,  $\tau_1$  und  $\tau_2$ , siehe Abschnitt 2.3.1, angenommen. Die Verweilzeit in der Sprühzone hat einen Wert von  $\tau_1 = 0.1$  s. Nach der Gleichung 2.25 lässt sich mit der Annahme  $\alpha = 10\%$  die Verweilzeit in der Trocknungszone zu  $\tau_2 = 0.9$  s ermitteln.

In der Abbildung 6.2 wird der zeitliche Verlauf der Trefferwahrscheinlichkeit nach Heinrich u. a. (2002) dem in dieser Arbeit ermittelten Verlauf gegenüber gestellt. Die dafür notwendigen Betriebs- und Anlagenparameter sind in der Tabelle 6.2 zusammengefasst. Die Ermittlung nach Heinrich u. a. (2002) zeigt, dass nach spätestens 150 s alle Partikel auf das Klassierrohr treffen. Die angepasste Berechnung ergibt eine Verweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr  $\tau_3$  aller Partikel von mindestens 300 s.

### Strömungstechnische Ermittlung der Partikelverweilzeit

Das Modell nach Burgschweiger und Tsotsas (2002) ist auf der Abbildung 6.3(a) schematisch dargestellt. Sie berücksichtigen einen zylindrischen Apparat mit einem integrierten internen Klassierrohr. Das Klassierrohr endet in einer bestimmten Höhe oberhalb des Anströmbodens in der Wirbelschicht  $H_{\text{tube}}$ . Die strömungstechnische Ermittlung der Verweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr beinhaltet die Abflussgleichung 2.56 zur Ermittlung des Partikelmassenstroms durch das Rohr.



(a) Vorstellung nach Burgschweiger und Tsotsas (2002)

(b) konische Anlage

Abbildung 6.3: Abflussverhalten in einer Wirbelschichtanlage (a) nach Burgschweiger und Tsotsas (2002), (b) angepasste Verhältnisse in der konischen Anlage.

In der Abbildung 6.3(b) werden die geometrischen Bezugsgrößen der konischen Anlage denen aus dem Modell von Burgschweiger und Tsotsas (2002) gegenüber gestellt und die verwendete

Tabelle 6.3: Auflistung der Prozessparameter bei der strömungstechnischen Ermittlung der Verweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr.

Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Gaseintrittstemperatur	$\vartheta_{g,in}$	70	°C
Fluidisierungsmassenstrom	$\dot{M}_g$	70	kg/h
Apparatedurchmesser	$d_{App}$	0.18	m
Apparatedurchmesser	$d_2$	0.24	m
Durchmesser des Klassierrohres	$d_{tube}$	0.032	m
Partikeldurchmesser	$d_P$	0.34	mm
Partikeldichte	$\rho_P$	1380	kg/m <sup>3</sup>
Bettmasse	$M_{bed}$	1	kg
Ausflussbeiwert nach Burgschweiger und Tsotsas (2002)	$\lambda$	0.0316	-
Pulsationsfaktor nach Burgschweiger und Tsotsas (2002)	$m$	0.2605	-

ten Parameter aufgezeigt. Der Abstand zwischen dem Anströmboden und dem Klassierrohr ist in diesem Fall die Wehrhöhe  $H_{tube}$ . Die Abflussgleichung ist für die klassischen Wirbelschichten hergeleitet und berücksichtigt nicht die typische Partikelbewegung im Wursterrohr. Aus diesem Grund wurde wiederum die optisch ermittelte Schichthöhe  $H_{bed} = 0.3$  m ( $H_{bed} > H_{WT}$ ) angenommen. Damit ergab die strömungstechnische Ermittlung der Verweilzeit im Klassierrohr einen Wert von  $\tau_3 = 28$  s.

### Experimentelle Ermittlung der Partikelverweilzeit

Eine schematische Darstellung der Massenströme am Partikelaustrag der angewendeten Versuchsanlage ist auf der Abbildung 6.4 gegeben. Nach einer bestimmten Verweilzeit  $\tau_3$  treffen die Partikel, die sich in der Wirbelschicht mit der Masse  $M_{bed}$  befinden, auf das Klassierrohr mit einem Massenstrom  $\dot{M}_{tube}$ . Danach müssen sie über die Schleuse mit einem Massenstrom  $\dot{M}_V$  transportiert werden. Dieser hängt von der Taktfrequenz der Ventile  $f$  und dem Massenstrom  $\dot{M}_{tube}$  ab. Im Fall, dass  $\dot{M}_V$  einen geringen Wert hat, entspricht der Massenstrom zum Klassierrohr dem Massenstrom hinter der Partikelschleuse, also  $\dot{M}_{tube} = \dot{M}_V$ . Im Realfall ist jedoch  $\dot{M}_{tube} \gg \dot{M}_V$ , woraus sich eine Zeitverzögerung durch den Partikeltransport über die Austragsschleuse ergibt.

Sobald die Partikel aus der Partikelschleuse in das Klassierrohr strömen, erfolgt der Separationsprozess. Hier werden die Partikel entweder als Produkt mit einem Massenstrom  $\dot{M}_{out}$  ausgetragen oder kehren mit Massenstrom  $\dot{M}_{rec}$  zum Granulator zurück. Hierbei gilt:

$$\dot{M}_V = \dot{M}_{rec} + \dot{M}_{out} \quad (6.1)$$

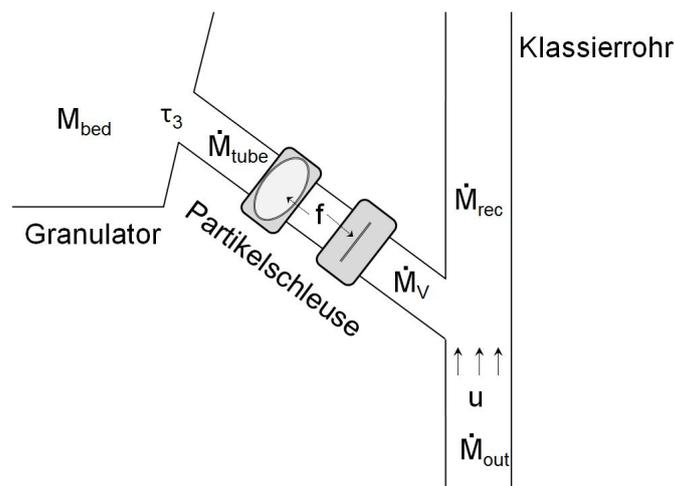


Abbildung 6.4: Berechnete Trefferwahrscheinlichkeit auf das Klassierrohr.

Wie im Abschnitt 4.2.1.2 beschrieben wurde, sind Experimente zur Ermittlung der Austragsdauer des Produktes durchgeführt worden. Der Versuchsverlauf sowie die Betriebs- und Partikelparameter sind entsprechend auf der Abbildung 4.8(b) und in der Tabelle 4.1 dargestellt. Für die Versuche wurde eine bimodale Partikelgrößenverteilung aus feinen  $d_{32} = 0.2$  mm und groben  $d_{32} = 0.6$  mm Partikeln verwendet. In der Untersuchung wurden nur die größeren Partikel als Produkt nach dem Treffen auf das Klassierrohr ausgetragen. Der rezirkulierende Partikelmassenstrom  $\dot{M}_{rec}$  dieser Partikel war null und damit ergibt sich nach Gleichung 6.1, dass der Massenstrom grober Partikel nach der Partikelschleuse gleich dem Austragsmassenstrom ist,  $\dot{M}_v = \dot{M}_{out}$ . Bei der angewendeten Taktfrequenz der Ventile  $f = 7$  Hz ist zu erkennen, dass innerhalb von 33 min ein sehr großer Anteil (nämlich 70 %) als Produkt separiert wurde, siehe Abbildung 4.8(b).

Die in dieser Arbeit verwendete Partikelverweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr  $\tau_3$  wird vorwiegend für kontinuierliches Pelletcoating entwickelten Modell (Abschnitt 2.4) eingesetzt. Im Modell wird keine Zeitverzögerung durch die Partikelschleuse berücksichtigt, d.h. es wird  $\dot{M}_{tube} = \dot{M}_v$  angenommen.

Da die Ermittlung der Trefferwahrscheinlichkeit und die strömungstechnische Ermittlung der Partikelverweilzeit  $\tau_3$  die Zeitverzögerung durch die Partikelschleuse nicht berücksichtigen, wurde die experimentell ermittelte Verweilzeit bis zum Treffen auf das Klassierrohr im Modell übernommen und für die Simulationen zum Vergleich mit experimentellen Daten angewendet.

### 6.1.2.5 Die Turbulenzkonstante

Die Turbulenzkonstante in der Trennfunktion wurde anhand der experimentellen Daten der Partikelgrößenverteilungen beim Produkt angepasst, und für alle kontinuierlichen Prozesssimulationen wurde der Wert von  $k_t = 2$  übernommen. Der Einfluss der Turbulenzkonstante auf den kontinuierlichen Prozess ist im Abschnitt 3.2.3.1 dargestellt.

## 6.2 Vergleich zwischen experimentellen Daten und Simulation

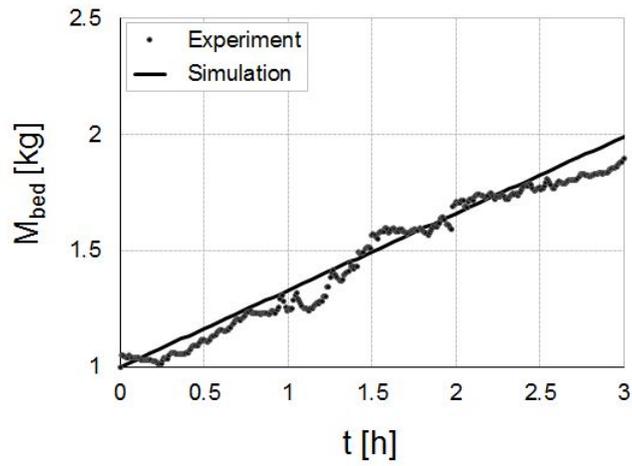
Um die im Kapitel 2 dargestellten Modelle für den diskontinuierlichen und den kontinuierlichen Coatingprozess zu überprüfen, wurden experimentelle Daten und Simulationen miteinander verglichen.

### 6.2.1 Diskontinuierlicher Coatingprozess

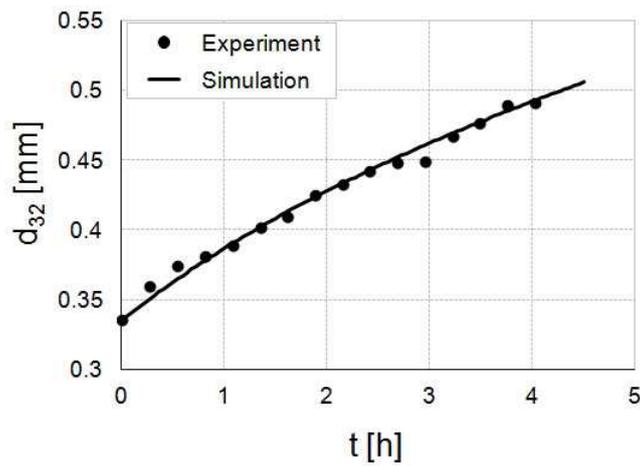
Die Simulationsergebnisse der Populationsbilanz werden am Beispielversuch 120802 erläutert. Die experimentellen und Simulationsparameter sind in der Tabelle 6.4 zusammengefasst.

Tabelle 6.4: Simulationsparameter und Prozessparameter für den diskontinuierlichen Coatingversuch 120802.

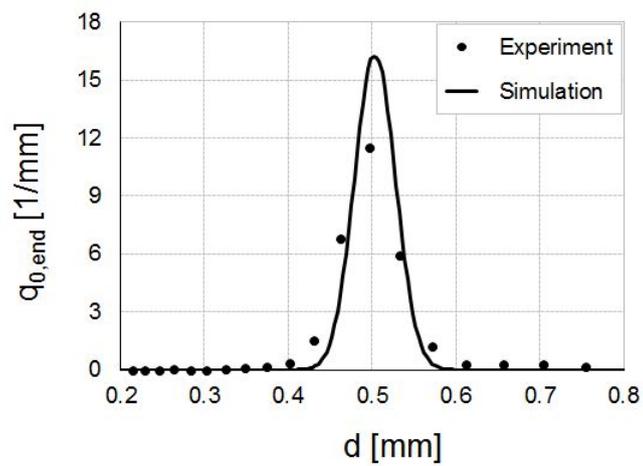
Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Anfangsgröße Partikel	$d_c$	0.34	mm
Varianz Kernpartikel	$\sigma^2$	0.04	mm <sup>2</sup>
Anfangsbettmasse	$M_{bed}$	1	kg
Eindüsungsrate Coatinglösung	$\dot{M}_L$	1.1	kg/h
Feststoffanteil Coatinglösung	$c$	30	Ma %
Dichte Feststoff	$\rho_s$	1450	kg/m <sup>3</sup>
Dichte Kernmaterial	$\rho_c$	1380	kg/m <sup>3</sup>
Gaseintrittstemperatur	$\vartheta_{g,in}$	70	°C
Gasdurchsatz	$\dot{M}_g$	70	kg/h
Porosität der Schicht	$\varepsilon_{sh}$	0.43	-
Volumenanteil der Sprühzone	$\alpha$	0.1	-
Verweilzeit in der Sprühzone	$\tau_1$	0.1	s



(a) Bettmasse  $M_{bed}$



(b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$



(c) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  bei  $t = t_{end}$

Abbildung 6.5: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experiment 120802 und Simulation.

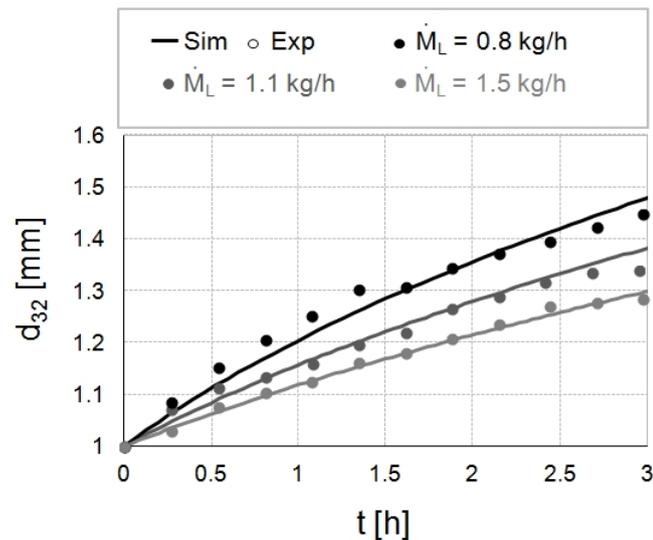


Abbildung 6.6: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experimente und Simulationen bei der Variation der Eindüsungsrate.

Die in Abbildung 6.5 dargestellten Vergleiche zwischen Simulationsergebnissen und Versuchsdaten zeigen, dass eine sehr gute Übereinstimmung der Prozess- und Produktparameter erzielt werden kann. Auf der Abbildung sind die Verläufe der Bettmasse  $M_{\text{bed}}$  und des Sauter-Durchmessers  $d_{32}$  der Partikel in der Schicht sowie die Partikelanzahldichteverteilung  $q_0$  zum Ende des Prozesses  $t = t_{\text{end}}$  veranschaulicht. Die lineare Steigung der Bettmasse auf der Abbildung 6.5(a), die von dem eingedüsten Feststoff in der Coatinglösung hervorgerufen wird, wird vom Modell aufgrund der Massenbilanzen gut widerspiegelt. Die Gegenüberstellung des experimentellen und berechneten Sauter-Durchmessers  $d_{32}$  ist auf der Abbildung 6.5(b) dargestellt. Der Verlauf wird vom Modell präzise beschrieben. Die Form der Partikelgrößenverteilung  $q_0$  zum Ende des Prozesses und deren Lage auf der Achse werden vom Modell gut widerspiegelt. Ein Vergleich zwischen Versuchsdaten und Simulation für alle diskontinuierlichen Coatingversuche (siehe Tabelle 5.3) wird in Anhang E.1 wiedergegeben. Die Effekte der experimentellen Parametervariation, die in Abschnitt 5.2.3 dargestellt wurden, können gut repräsentiert werden. Das im Abschnitt 2.3 beschriebene Modell für diskontinuierliches Coating berücksichtigt keine Wärme- und Stoffübertragung in der Wirbelschicht. Aus diesem Grund, können Effekte wie die Variation der Gaseintrittstemperatur und des Fluidisierungsmassenstroms vom Modell nicht beschrieben werden.

Der Vergleich zwischen experimentellen und berechneten Daten bei der Variation der Einfluss der Eindüsungsrate zeigt zum einen, dass die Modellierung für die untersuchten Prozesse eine hinreichende Genauigkeit aufweist, siehe Abbildung 6.6. Zum anderen das Modell ist in der Lage die Verstärkung des Wachstums in der Wirbelschicht mit der Erhöhung der Eindüsungsrate zu beschreiben.

### 6.2.2 Kontinuierlicher Coatingprozess

Anhand des im Kapitel 2 beschriebenen Modells für den kontinuierlichen Coatingprozess und des Versuches 120118 werden die experimentellen Daten mit der Simulation verglichen. Alle dafür notwendigen Parameter sind in der Tabelle 6.5 zusammengefasst.

Auf der Abbildung 6.7 sind die Mess- und Simulationswerte des ausgetragenen Produktmassenstroms  $\dot{M}_{\text{out}}$ , des Sauter-Durchmessers  $d_{32}$  in der Schicht und beim Produkt, der Bettmasse  $M_{\text{bed}}$ , der Klassierluftgeschwindigkeit  $u$  und der Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht und am Produktaustrag bei  $t = t_{\text{end}}$  vergleichend dargestellt.

Die berechneten und experimentellen Verläufe des ausgetragenen Produktstroms  $\dot{M}_{\text{out}}$  unterscheiden sich in der Anfangsphase im Anstieg. Bei den experimentellen Ergebnissen ist eine Zeitverzögerung durch die Partikelschleuse am Austrag (siehe Abschnitt 4.4) zu erkennen. Der berechnete konstante Wert des Produktmassenstromes im stationären Zustand wird vom Experiment gut wiedergegeben.

Der Sauter-Durchmesser  $d_{32}$  in der Schicht weist einen erhöhten Anfangswert bei der Simulation auf. Der Unterschied im Vergleich zum Experiment liegt in der Annäherung der Partikelgrößenverteilung in der Simulation aufgrund der gemessenen Partikelgrößenverteilung. Ähnliche Tendenzen sind beim zeitlichen Verlauf des Sauter-Durchmessers  $d_{32}$  des Produktes zu erkennen. Der höher berechnete Anfangswert ist in Bezug auf den Sauter-Durchmesser verteilt. In der Partikelgrößenverteilung befinden sich grobe Partikel, die laut Simulation sofort aus dem System entfernt wurden. Aufgrund der Partikelschleuse wird in der Realität aber eine längere Verweilzeit benötigt, um die gröberen Partikel abzutrennen.

Durch die verlängerte Verweilzeit bis zum Austrag steigt die Bettmasse  $M_{\text{bed}}$ . Aus diesem Grund ist eine Erhöhung der Bettmasse in der Anfangsphase des Prozesses zu erkennen. Im Laufe der Zeit erreicht die Bettmasse einen konstanten Wert.

Aufgrund der Konstanzhaltung der Bettmasse sinkt zunächst die Geschwindigkeit im Klassierrohr  $u$  mit dem Anstieg der Bettmasse. Analog zur Bettmasse konvergiert die Geschwindigkeit auf einen konstanten Mittelwert.

Die gemessenen Partikelgrößenverteilungen für die Partikel in der Schicht und die ausgetragenen Partikel weisen am Ende des Prozesses eine sehr gute Übereinstimmung mit den simulierten Daten auf.

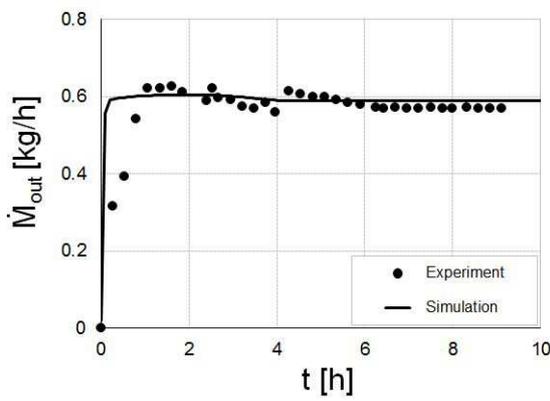
Schließlich kann zusammengefasst werden, dass das Modell in der Lage ist, den kontinuierlichen Coatingprozess zu beschreiben.

Der Vergleich zwischen experimentellen Daten und Simulation wird für alle kontinuierlichen Coatingversuche (siehe Tabelle 5.5) im Anhang E.2 veranschaulicht.

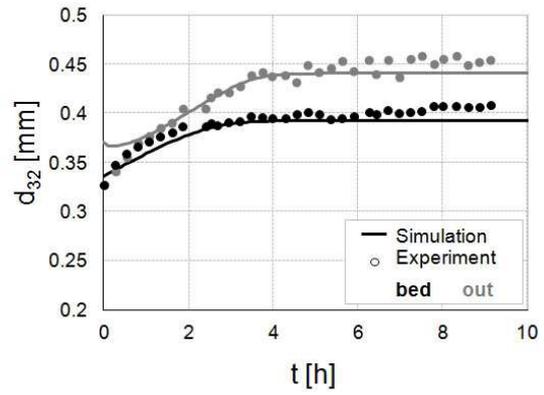
Die Effekte der experimentellen Parametervariation, die im Abschnitt 5.3.3 dargestellt wurden,

Tabelle 6.5: Simulationsparameter und Prozessparameter für den kontinuierlichen Coatingversuch 120118.

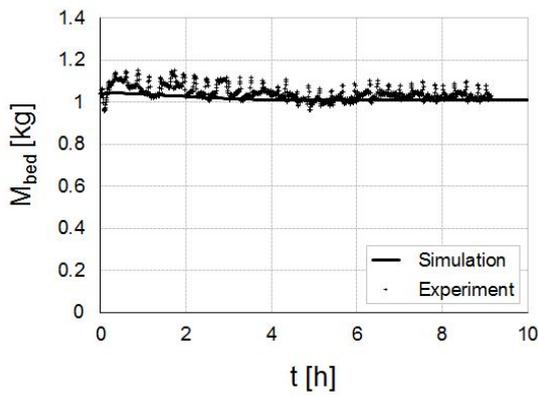
Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Anfangsgröße Partikel	$d_c$	0.34	mm
Varianz Kernpartikel	$\sigma^2$	0.04	mm <sup>2</sup>
Anfangsbettmasse	$M_{bed}$	1	kg
Eindüsungsrate Coatinglösung	$\dot{M}_L$	1.1	kg/h
Feststoffanteil Coatinglösung	$c$	30	Ma %
Dichte Feststoff	$\rho_s$	1450	kg/m <sup>3</sup>
Keimzugaberate	$\dot{M}_{nuc}$	0.25	kg/h
Dichte Kernmaterial	$\rho_c$	1380	kg/m <sup>3</sup>
Gaseintrittstemperatur	$\vartheta_{g,in}$	70	°C
Gasdurchsatz	$\dot{M}_g$	70	kg/h
Porosität der Schicht	$\varepsilon_{sh}$	0.43	-
Volumenanteil der Sprühzone	$\alpha$	0.1	-
Verweilzeit in der Sprühzone	$\tau_1$	0.1	s
Verweilzeit bis zum Treffen auf das Abzugsrohr	$\tau_3$	2000	s
Durchmesser des Abzugrohres	$d_{tube}$	0.032	m
Länge des Abzugrohres	$L_{tube}$	1.1	m
Taktfrequenz der Austragsventile	$f$	7	Hz
Turbulenzkonstante	$k_t$	2	-
Konstante des Proportionalreglers	$K_R$	12	-



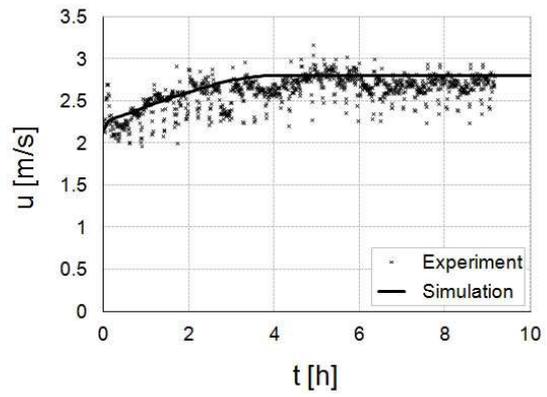
(a) Ausgetragener Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



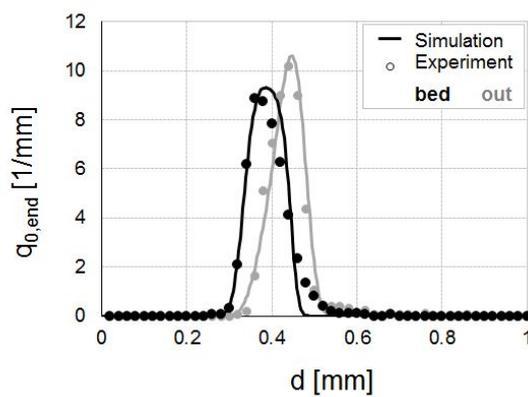
(b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$  in der Schicht und des Produktes



(c) Bettmasse  $M_{bed}$



(d) Gasgeschwindigkeit  $u$  in dem Klasierrohr



(e) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht und am Produktaustrag bei  $t = t_{end}$

Abbildung 6.7: Darstellung der Ergebnisse aus dem Vergleich zwischen Experiment 120118 und Simulation.

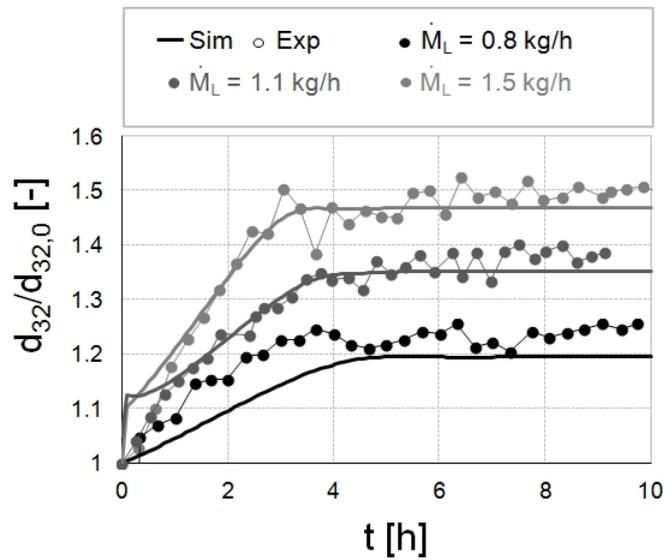
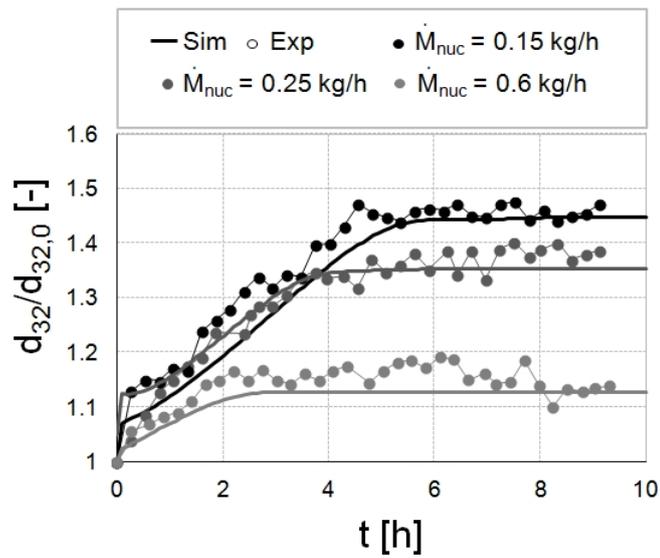
(a) Variation der Eindüsungsrates  $\dot{M}_L$ (b) Variation der Keimzugaberates  $\dot{M}_{nuc}$ 

Abbildung 6.8: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experimente und Simulationen bei der Variation der (a) Eindüsungsrates  $\dot{M}_L$  und (b) Keimzugaberates  $\dot{M}_{nuc}$ .

können gut repräsentiert werden. Das im Abschnitt 2.4 dargestellte Modell für kontinuierliches Coating berücksichtigt keine Wärme- und Stoffübertragung in der Wirbelschicht. Aus diesem Grund können Effekte wie Variation der Gaseintrittstemperatur und des Fluidisierungsmassenstroms nicht vom Modell beschrieben werden. In diesen Fällen bleiben die Effekte, wie die Verteilungen der Partikelgrößenverteilungen und das erhöhte Partikelwachstum, unauffällig. Die Taktfrequenzen der Ausgangsventile werden im Modell nicht berücksichtigt, weshalb deren Einfluss vom Modell nicht wiedergegeben wird.

Die Ergebnisse eines Vergleichs zwischen Experimente und Simulationen bei der Variation der Eindüsungsrates und Keimzugaberrate (siehe Abbildung 6.8) zeigen zum einen, dass das Modell für kontinuierliches Coating Experimente mit einer Zeitdauer von über 9 Stunden gut beschreiben kann. Zu anderen ist deutlich zu erkennen, dass das Modell in der Lage ist, die Einflüsse beider Parameter zu erfassen.

## **6.3 Vergleich diskontinuierlicher und kontinuierlicher Coatingprozesse**

In der Industrie wird immer öfter eine Umstellung von diskontinuierlichen auf kontinuierliche Prozesse angestrebt. Im Allgemeinen hat der kontinuierliche Betrieb einige Vorteile im Vergleich zu der Chargen-Produktion.

In diesem Abschnitt werden erst die beiden Betriebsarten auf Basis der Produktqualität, der Kosten und Energieeffizienz, der Stillstandzeiten und der Flexibilität miteinander verglichen. Danach wird ein direkter Vergleich zwischen Partikelwachstum und Partikeleigenschaften beider Betriebsarten gezogen.

### **6.3.1 Die Produktqualität**

Beim kontinuierlichen Prozessverlauf werden die Prozessdaten unmittelbar erfasst und überwacht. Die Prozesskontrolle steigert die Prozessqualität und verringert das Risiko, Produkt aufgrund von Nichtübereinstimmung mit Spezifikationen zu verlieren. Die Prozesssicherheit erlaubt auf Anhieb eine gute und gleichbleibende Produktqualität. Auf Grund der permanenten Zugabe an neuen Keimen erfolgt ein konstanter Produktstrom.

Im Gegensatz zum kontinuierlichen Betrieb ist der Chargenbetrieb mit Qualitätsschwankungen behaftet. Vorteil im Fall eines diskontinuierlichen Prozesses ist die gleiche Verweilzeit aller Partikel in der Anlage.

### **6.3.2 Kosten und Energieeffizienz**

Im Vergleich zum diskontinuierlichen Prozess sind die Investitionskosten des kontinuierlichen Prozesses höher. In der Industrieproduktion zahlen sich aber diese in einem kurzen Zeitraum aus und bringen Einsparungen im Vergleich zu Batch-Prozessen. Dabei können die Anlagen im Betrieb maximal ausgelastet werden. Weiterhin können die Kosten für Produkttests im Labor eingespart werden, was zu einer schnelleren Anwendung des Produktes führt. Beim diskontinuierlichen Prozess ist eine Nachkontrolle des Produktes erforderlich.

### **6.3.3 Stillstandzeiten**

Die Totzeiten durch Füllen, Entleeren, Aufheizen, Abkühlen und Reinigen werden beim kontinuierlichen Prozess eingespart. Diese sind in einem kontinuierlichen Betrieb bedeutend geringer.

### 6.3.4 Flexibilität der Ausrüstung

Der diskontinuierliche Prozess charakterisiert sich durch eine hohe Flexibilität. Eine Anlage ist für die Herstellung verschiedenster Produkte nutzbar. Beim kontinuierlichen Verfahren sind nur geringe Parameteränderungen möglich. Dabei ist eine gleichbleibende Rohstoffqualität erforderlich.

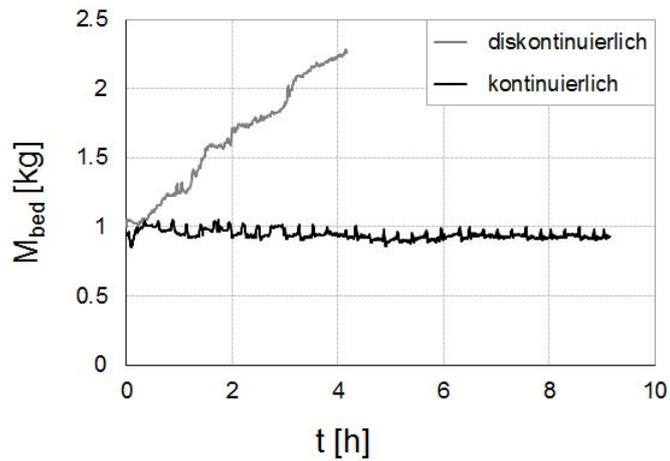
### 6.3.5 Allgemeine Bemerkungen und direkter Vergleich

Im Allgemein weisen die kontinuierlichen Prozesse eindeutige Vorteile bei der Produktqualität, der Energieeffizienz und den Stillstandzeiten auf. Diese Vorteile spielen eine bedeutende Rolle bei Entwicklungsverfahren in der Industrie.

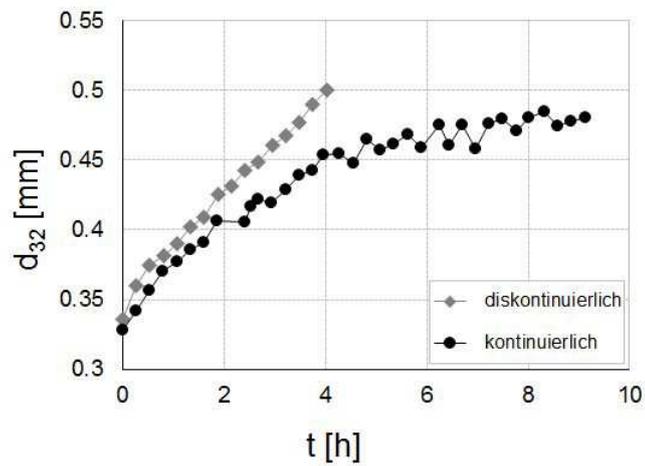
Durch kontinuierliche Produktionsprozesse kann der Bedarf an Energie, eingesetzten Rohstoffen und Lösungsmitteln gegenüber diskontinuierlichen Verfahren verringert werden; Abfallmengen lassen sich reduzieren. Zudem laufen kontinuierliche Prozesse oftmals stabiler und gleichmäßiger, was zu besseren Ausbeuten und Selektivitäten der Produkte führt. Schließlich wird auch die Sicherheit verbessert, da das Reaktionsvolumen im Allgemeinen deutlich kleiner ist als bei diskontinuierlichen Verfahren.

Ein direkter Vergleich zwischen diskontinuierlichem und kontinuierlichem Coatingprozess ist in der Abbildung 6.9 dargestellt. Die Schichtmasse steigt im diskontinuierlichen Prozess permanent, während sie im kontinuierlichen Betrieb mit Hilfe einer Prozessregelung konstant gehalten wird, siehe Abbildung 6.9(a). Aus diesem Grund hat das Partikelwachstum bei den beiden Prozessen unterschiedliche Verläufe (Abbildung 6.9(b)). Der Partikeldurchmesser steigt beim diskontinuierlichen Versuch permanent mit der Zeit, zeigt im kontinuierlichen Verfahren aber unterschiedliche Ergebnisse. Hierbei sind zwei Prozessphasen, die Anfahrphase und die Phase des stationären Zustandes zu erkennen. Im diskontinuierlichen Prozess bleibt die Partikelanzahl konstant, und mit der Zeit wächst der Partikeldurchmesser ununterbrochen. Im Gegensatz dazu werden beim kontinuierlichen Prozess permanent neue Keime zugefügt und gleichzeitig andere ausgetragen. In der Anfahrphase ändert sich die Partikelanzahl mit der Zeit. Im stationären Zustand bleiben Partikelanzahl und -größe konstant, siehe Abschnitt 2.4.

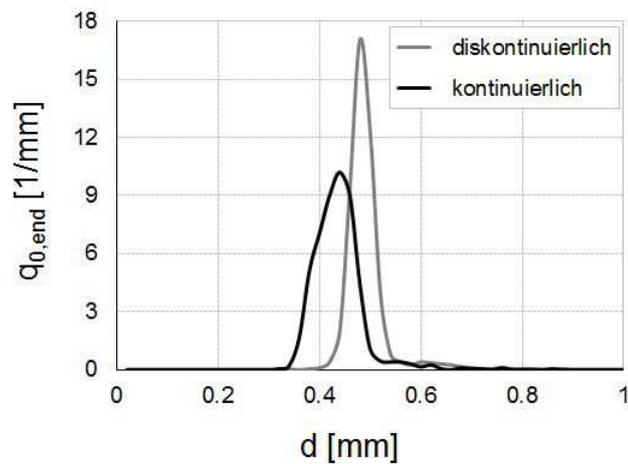
Um in den beiden Verfahren bestimmte Partikeldurchmesser zu erzielen, müssen die Prozesszeiten individuell angepasst werden. Im diskontinuierlichen Versuch wird z.B. ein Sauter-Durchmesser von  $d_{32} = 0.47$  mm nach ca. 3.7 h erreicht. Im Gegensatz dazu benötigt man im kontinuierlichen Prozess ca. 4.3 h. Hier stellt sich der stationäre Zustand ein, erst nachdem alle Keime der Anfangsbettmasse durch neue Keime von der Keimzugabe ersetzt worden sind.



(a) Bettmasse  $M_{bed}$



(b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$  des Produktes



(c) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  bei  $t = t_{end}$

Abbildung 6.9: Darstellung der Ergebnisse aus dem Vergleich zwischen diskontinuierlichem Coating (120802) und kontinuierlichem Coating (120118).

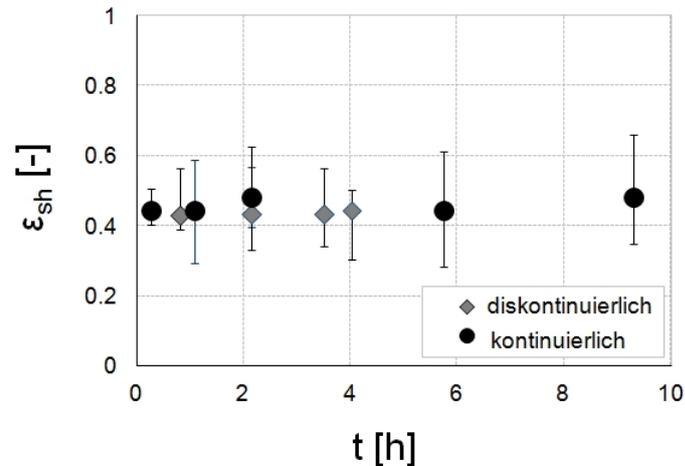


Abbildung 6.10: Darstellung der Ergebnisse der experimentell ermittelten Porositäten der Coatingschicht für einen diskontinuierlichen (120802) und kontinuierlichen (120118) Coatingprozess.

Ein Vergleich der Anzahldichteverteilungen  $q_0$  des fertigen Produktes beider Experimente ist in der Abbildung 6.9(c) dargestellt. Die Partikelgrößenverteilungen weichen teilweise deutlich voneinander ab, was mit der entsprechenden Prozesscharakteristik (Keimzugabe und Produktabzug) zu erklären ist. Die Verteilung des kontinuierlichen Prozesses weist eine breitere Form auf, was eine Folge des unvollständigen Klassiereffektes im Klassierrohr ist. Das hergestellte Produkt besitzt ein breiteres Spektrum von Partikeln mit unterschiedlichen Größen. Dies führt in diesem Fall zu einer schlechteren Produktqualität (breiteres Partikelgrößenspektrum) als im diskontinuierlichen Prozess erzielt werden kann. Da der kontinuierliche Prozess diverse Vorteile im Vergleich zum diskontinuierlichen Prozess aufweist, kann herausgestellt werden, dass das Wursterverfahren für praktische Belange im kontinuierlichen Betrieb anwendbar ist. In der vorliegenden Anlagenkonfiguration ist jedoch eine verringerte Trennschärfe vorhanden, welche im Anwendungsfall als Verbesserungspotential angesehen werden kann.

Die experimentell ermittelten Partikelporositäten haben für den diskontinuierlichen und kontinuierlichen Coatingprozess nahezu gleiche und konstante mit der Prozessdauer Werte ergeben, siehe Abbildung 6.10. Die Porosität der gebildeten Schicht hängt nicht von der Prozessführung, sondern von den im Prozess herrschenden Trocknungsbedingungen ab.

## 6.4 Optimierung des Trenneffektes in der Klassiereinrichtung

Im Abschnitt 3.2 wurde festgestellt, dass sowohl eine Verlängerung des Klassierrohres als auch die Verringerung des Klassierrohrdurchmessers zu einer besseren Separation führen. Deshalb wurden Untersuchungen durchgeführt, in denen das Klassierrohr verlängert wurde. Schematische Darstellungen des verwendeten Klassierrohres und des Optimierungsvorschlages für eine Verlängerung werden in Abbildung 6.11 veranschaulicht. Hierzu wurde zum Einen die wirksame Länge des Klassierrohres um 0.4 m erhöht. Darüber hinaus wurde die Höhe des Eintrittspunktes des Zulaufs aus der Partikelschleuse angehoben.

Für diese Untersuchungen wurde die Bettmasse zum Ende des Versuches 120118 (siehe Abschnitt 5.3.1) verwendet. Die Partikelmasse wurde in einem Probenteiler in zwei Proben geteilt. Die beiden Proben wurden für zwei Untersuchungen verwendet, in denen das Klassierrohr eine Länge von 1.1 m bzw. 1.5 m hatte. Dabei wurden die Schüttungen bei einer konstanten Klassierluftgeschwindigkeit separiert. Die Verteilung im Bett und die Korngrößenverteilungen der beiden Untersuchungen im Produkt sind in der Abbildung 6.12 gegenübergestellt.

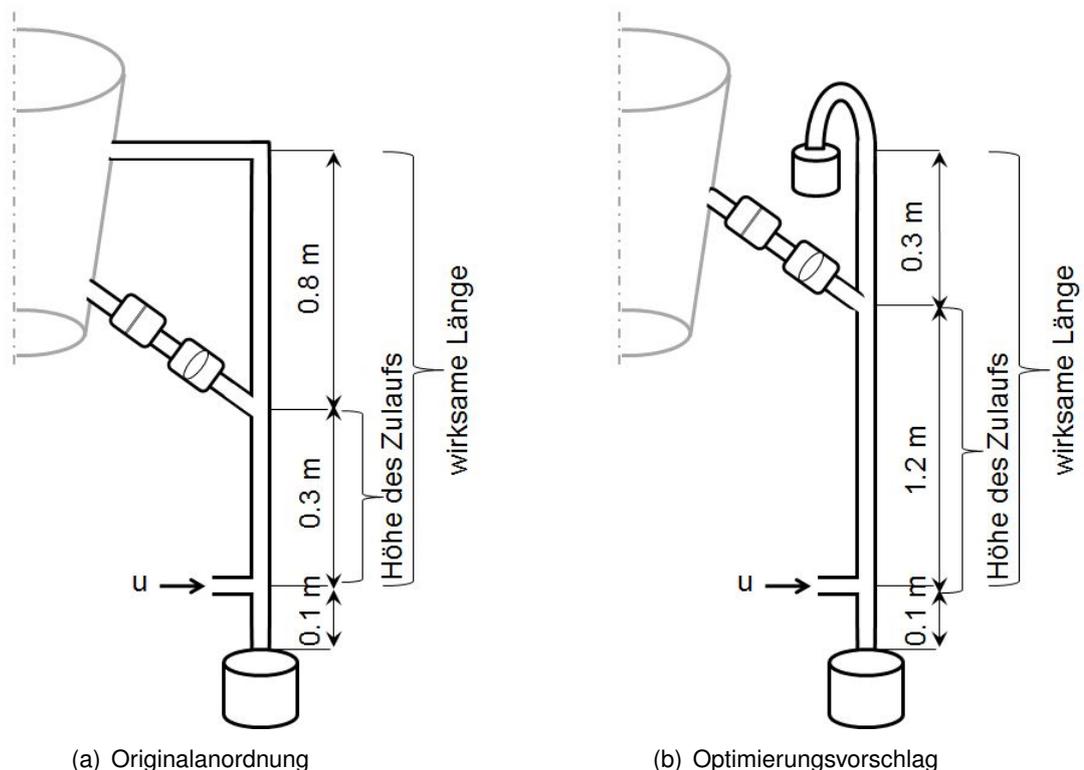


Abbildung 6.11: Schematische Darstellung des Klassierrohres: (a)Originalanordnung und (b) Optimierungsvorschlag für einen höheren Trenneffekt in der Klassiereinrichtung.

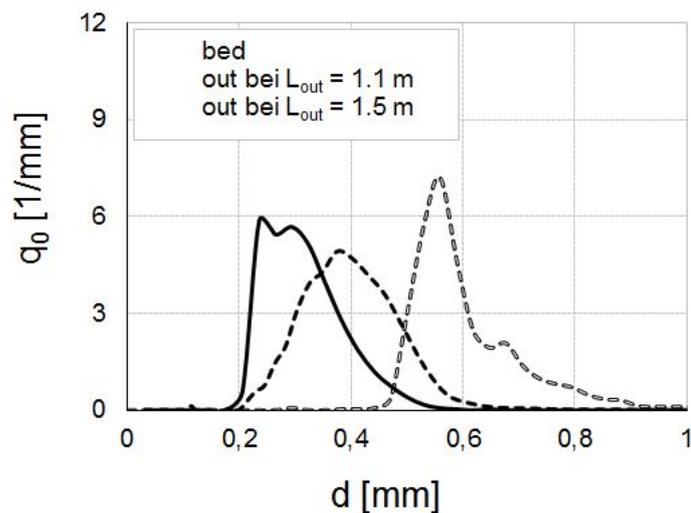


Abbildung 6.12: Vergleich des bei unterschiedlichen Längen des Klassierrohres separierten Produktes.

Die ermittelte Trennschärfe hat in dem Fall von  $L_{\text{tube}} = 1.1$  m einen Wert von  $\kappa = 0.8$ . Für eine Klassierrohrlänge von  $L_{\text{tube}} = 1.5$  m beträgt diese  $\kappa = 0.9$ . Hieraus wird ersichtlich, dass die steigende Rohrlänge zu einer höheren Trennschärfe führt. Die Partikelgrößenverteilung des Produktes wird wesentlich schmaler und verschiebt sich in Richtung größerer Partikel (bei  $L_{\text{tube}} = 1.1$  m ist  $d_{32} = 0.45$  mm und bei  $L_{\text{tube}} = 1.5$  m ist  $d_{32} = 0.65$  mm). Damit werden nur die groben Partikel aus dem Prozess entnommen.

Die schärfere Klassierung aufgrund des längeren Klassierrohres ist mit der höheren Partikelverweilzeit im Klassierrohr erklärbar. Durch den verlängerten Aufenthalt der Partikel im Abzugrohr kommt es zu Auflösung/Verhinderung von Schwarmeffekte zwischen den Partikeln.

Ein Nachteil dieses Optimierungsvorschlages ist die Erhöhung der im Klassierrohr befindlichen Menge an Partikeln. Diese nehmen während des Aufenthaltes im Klassierrohr nicht am Beschichtungsprozess im Bett teil.

Mit Hilfe von Simulationsstudien ist ein weiterer Parameter identifiziert worden, welcher zu einer verbesserten Partikelklassierung führt: Bei einem geringeren Durchmesser des Klassierrohres entstehen engere Partikelgrößenverteilungen des Produktes. Eine experimentelle Überprüfung wurde nicht durchgeführt. Es ist aber fraglich, ob es im Fall eines geringeren Durchmessers nicht zu einer geringeren Trefferwahrscheinlichkeit der Partikel in die Klassiereinrichtung kommt. Damit würde eine geringere Menge an Partikeln im Klassierrohr vorhanden sein. Es wurde experimentell nachgewiesen, dass die Trennschärfe der Klassierung mit einer geringeren Partikelmasse im Klassierrohr ansteigt, siehe Abschnitt 4.2.1.1. Schließlich würde die bessere Klassierung, die von der Verkleinerung des Durchmessers des Abzugroh-

res hervorgerufen wird, zu einer geringeren Trefferwahrscheinlichkeit und zur Verzögerung des Austrages der großen Partikel aus dem System führen. Diese Abhängigkeiten führen damit zu einem vom Apparat und Stoffsystem spezifischen Optimierungsproblem zwischen Klassierrohrdurchmesser und der Verweilzeit im Klassierrohr, dessen Lösung in der vorliegenden Arbeit nicht weiter verfolgt wird.



# 7 Zusammenfassung und Ausblick

## 7.1 Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit gliedert sich in fünf Hauptkapitel. Kapitel 2 der Arbeit beschäftigt sich mit der Modellierung des Wirbeschicht-Coatingprozesses. Aufbauend auf dem Modell von Hoffmann u. a. (2011) erfolgt die populationsdynamische Berechnung des Partikelwachstums für den diskontinuierlichen und kontinuierlichen Coatingprozess. Im Kapitel 3 werden die Simulationsergebnisse und das Verhalten der beiden Modelle dargestellt. Kapitel 4 der Arbeit schildert die experimentellen Grundlagen wie den Aufbau der Wirbeschichtversuchsanlage und deren Modifikation für den kontinuierlichen Betrieb. Die verwendeten Materialien sowie die verwendete Messtechnik werden eingehend erläutert. Kapitel 5 der Arbeit ist durch die experimentellen Untersuchungen geprägt. Hierbei werden die Parametervariationen detailliert beleuchtet. Darüber hinaus werden verschiedene Versuche zur Charakterisierung des Einflusses der Wurster-Versuchsanlage präsentiert. Im Kapitel 6 werden schließlich die spezifischen Modellparameter bestimmt und die Ergebnisse aus den Experimenten und der Simulation verglichen und diskutiert. Desweiteren wird ein direkter Vergleich zwischen dem diskontinuierlichen und dem kontinuierlichen Beschichtungsprozess vorgenommen. Letztlich werden apparative Optimierungsvorschläge zur Verbesserung der Selektivität der Klassiervorrichtung beleuchtet.

Bei der Modellierung des diskontinuierlichen und kontinuierlichen Coatingprozesses in der Wirbeschicht wird die populationsdynamische Beschreibung der Partikelphase auf Basis reinen Wachstums und unter Ausschluss von Aggregation und Keimbildung durchgeführt. Zur Beschreibung der Kinetik des Prozesses wird ein oberflächenproportionales Wachstum unter Berücksichtigung der Porosität der Coatinghülle vorgestellt und diskutiert. Darüber hinaus wird der Granulatorraum in zwei Zonen unterteilt. In der Eindüsungszone werden die Partikel beschichtet und in der Trocknungszone werden sie getrocknet und durchmischt. Die beiden Zonen stehen im permanenten Partikelaustausch. Diese Modellvorstellung wurde ursprünglich von Hoffmann u. a. (2011) entwickelt. In der Modellierung des kontinuierlichen Coatingprozesses wird der Partikelaustrag auf Basis eines externen Klassierrohres beschrieben. Der Separationsprozess wird mit Hilfe der von Molerus und Hoffmann (1969) entwickelten Trennfunktion beschrieben. Dabei werden die Partikel entsprechend ihrer Sinkgeschwindigkeit separiert. Ist die Sinkgeschwindigkeit größer als die Geschwindigkeit der Klassierluft, werden sie als Pro-

dukt aus dem System ausgetragen. Andernfalls erfolgt eine Rückführung in den Prozessraum. Anschließend werden rechentechnische Ergebnisse der beiden Modelle dargestellt. Bei dem diskontinuierlichen Coatingprozess wird die Variation folgender Modellparameter untersucht: Porosität der Coatingschicht, Volumenanteil und Partikelverweilzeit in der Eindüsungszone. Die Variationen ergeben folgende Tendenzen:

- Die Erhöhung der Schichtporosität führt zu einer Erhöhung des Partikelwachstums bei gleicher aufgetragener Masse.
- Die Erhöhung der Partikelverweilzeit in der Eindüsungszone bewirkt eine engere Partikelgrößenverteilung.
- Die Steigerung des Volumenanteils der Eindüsungszone führt zu einer Erhöhung der Verweilzeit in der Eindüsungszone.

Im kontinuierlichen Modell wurden Variationen der Schichtporosität und der Partikelverweilzeit bis zum Auftreffen auf das Klassierrohr untersucht. Zusätzlich wurden die Einflüsse einiger Parameter der Trennfunktion, wie die Turbulenzkonstante, Durchmesser und Länge des Klassierrohres analysiert. Die Ergebnisse der Variationen dieser Parameter zeigen folgende Tendenzen:

- Die Erhöhung der Schichtporosität führt zu keiner ausgeprägten Änderung der Prozess- und Partikelparameter.
- Die Steigerung der Verweilzeit bis zum Erreichen des Klassierrohres ergibt keine ausgeprägte Änderung der Prozess- und Partikelparameter.
- Bei der Erhöhung der Turbulenzkonstante wird der Klassiervorgang qualitativ schlechter und die Anfahrphase verzögert sich.
- Eine Erhöhung des Durchmessers des Klassierrohres bewirkt einen weniger effektiven Klassiervorgang.
- Eine Verlängerung des Klassierrohres führt zu einer Verbesserung des Klassiervorgangs.

Kapitel 4 der Arbeit ist durch experimentelle Grundlagen geprägt. Es wird die Wirbelschichtversuchsanlage vorgestellt und die Modifizierung der Anlage zur Realisierung des kontinuierlichen Prozesses erläutert. Zu der Anlagenmodifikation sind der Einbau und die Erprobung eines Systems für die kontinuierliche Keimzugabe bzw. den kontinuierlichen Produktabzug aus dem Prozessraum zu zählen. Zusätzlich werden die Berechnung und die Steuerung der Bettmasse beim kontinuierlichen Betrieb ausführlich dargestellt.

Die in den Coatingexperimenten verwendeten Versuchsmaterialien sind Natriumbenzoatlösung als Coatinglösung und Partikel aus mikrokristalliner Cellulose (Pellets) als zu beschichtendes Startmaterial. Die Pellets werden hinsichtlich ihrer Eigenschaften untersucht.

Desweiteren werden in diesem Kapitel die Feuchtemesstechnik und die Messtechnik zur Feststellung charakteristischer Partikeleigenschaften präsentiert. Für die Gasfeuchtemessung kommt ein Taupunktspiegelhygrometer zum Einsatz. Um die Partikelgröße der Schüttung und der entnommenen Proben zu vermessen, wird der Partikelanalysator CAMSIZER<sup>®</sup> verwendet. Die Größe der einzelnen Partikel und deren Oberflächenstruktur werden mit Hilfe eines Rasterelektronenmikroskops untersucht. Um die Porosität der Coatingschicht auf der Partikeloberfläche zu untersuchen, werden einzelne beschichtete Partikel mit einem Mikrotomographen vermessen. Gleichzeitig ist die Ermittlung der Porosität der Hülle anhand einer analytischen Methode möglich.

Im Kapitel 5 werden die experimentellen Untersuchungen zur Charakterisierung des Wursterprozesses sowie des diskontinuierlichen und kontinuierlichen Coatingprozesses durchgeführt. Der Wursterprozess wurde genauer untersucht, indem vier unterschiedliche Anströmböden miteinander verglichen wurden. Die Ergebnisse des Wursterprozesses werden mit dem Coatingprozess in der klassischen Wirbelschicht bei gleichen Parametern für Bottom- und Top-Spray Konfigurationen verglichen.

Im Rahmen von diskontinuierlichen Coatingexperimenten wurden breite Variationen maßgeblicher Prozessparameter durchgeführt. Hierzu zählen die Fluidisierungsgastemperatur, der Fluidisierungsgasmassenstrom und die Eindüsungsrate der Coatinglösung. Die Ergebnisse der Parametervariationen zeigen folgende qualitative Tendenzen:

- Die Erhöhung der Fluidisierungsgastemperatur ergibt keine klar erkennbare Änderung des Wachstumsverhaltens.
- Mit der Steigerung des Gasmassenstroms steigt die Porosität der gebildeten Schicht.
- Die Erhöhung der Eindüsungsrate verstärkt das Partikelwachstum.

Bei der experimentellen Parametervariation der kontinuierlichen Versuche wurden fünf Prozessparameter variiert: Die drei genannten Prozessparameter, sowie zusätzlich die Keimzugaberate und die Abzugsgeschwindigkeit am Produktaustrag. Die Variation dieser zusätzlichen Parameter ergab folgende qualitative Tendenzen in Bezug auf die Produktfraktion:

- Die Erhöhung der Keimzugaberate vermindert die Partikelgröße des Produktes.
- Mit der Steigerung der Taktfrequenz verbessert sich der Trenneffekt des Klassierrohres.

Im Kapitel 6 der vorliegenden Arbeit werden spezifische Modellparameter festgelegt. Zusätzlich werden diskontinuierliche und kontinuierliche Coatingexperimente hinsichtlich der Entwicklung der Partikelgrößenverteilung mit dem eindimensionalen Populationsbilanzansatz beschrieben. Anhand der Prozesssimulation der partikulären Phase für Coating kann für beide Betriebsarten gezeigt werden, dass die entwickelte Modellierung die Messergebnisse zufriedenstellend beschreibt. Darüber hinaus wird ein direkter Vergleich des diskontinuierlichen und kontinu-

ierlichen Coatingprozesses dargestellt. Zuerst werden die beiden Prozesse hinsichtlich der Produktqualität, der Kosten, der Energieeffizienz, der Stillstandszeiten und der Flexibilität der Ausrüstung qualitativ miteinander verglichen. Anschließend werden zwei konkrete Experimente auf Basis des Partikelwachstumsverhaltens gegenübergestellt. Desweiteren wird ein Optimierungsvorschlag bezüglich des Produktaustrages im kontinuierlichen Prozess gemacht. Hierbei wird eine Verlängerung des Klassierrohres vorgesehen. Die Wirksamkeit dieser Maßnahme wird experimentell bestätigt, indem eine engere Produktgrößenverteilung erzielt wird.

### **7.2 Ausblick**

Die vorliegende Arbeit hat sich darauf konzentriert, das Partikelwachstum im diskontinuierlichen und kontinuierlichen Coatingprozess zu untersuchen und mathematisch zu beschreiben. Zusätzlich wäre mit Hilfe der gesammelten Messdaten eine Berücksichtigung des Einflusses des Wärme- und Stoffübergangs auf den Wurster-Coatingprozess möglich, und diese Daten wären für eine modelltechnische Validierung nutzbar.

In dieser Arbeit wurden kontinuierliche Versuche mit einer Dauer von maximal 10 h durchgeführt. Um die Stabilität des stationären Zustands des kontinuierlichen Coatings genauer zu untersuchen, wäre eine längere Prozessdauer (über 24 h) sinnvoll.

Beim kontinuierlichen Coating wurde das Zusammenspiel zwischen der vorgestellten Klassiereinrichtung und dem Wurster-Einsatz experimentell untersucht. Die Anwendung dieser Einrichtung ist genau so für die klassischen Wirbelschichten möglich.

# A Feuchtemesstechnik

Taupunktspiegel gehören zu den präzisesten Messgeräten für Gasfeuchten. Der Aufbau eines Taupunktsensors ist in der Abbildung A.1 schematisch dargestellt. In der vorliegenden Arbeit wurde ein einstufiges Taupunkt-Hygrometer der Fa. Michell Instruments vom Typ Optidew Vision verwendet. Der Messbereich erstreckt sich über Taupunkttemperaturen von  $-30$  bis  $30^{\circ}\text{C}$ .

Die Bestimmung des Taupunktes erfolgt mit Hilfe eines blanken und temperierbaren Spiegels. Gelangt feuchte Luft in die Nähe des Spiegels, sorgt das Messgerät für eine kontinuierliche Abkühlung des Spiegels und damit auch für ein Absinken der Temperatur der umgebenden Luft. Diese Temperaturerniedrigung hat zur Folge, dass das Wasseraufnahmevermögen der Luft sinkt und der Sättigungsdampfdruck erreicht wird. Schlägt sich der Wasserdampf nun in flüssiger Form auf dem Spiegel nieder, wird das Licht einer auf den Spiegel gerichteten LED gestreut und dies von einem optischen Empfänger registriert. Die Temperatur des Spiegels wird nun als Taupunkttemperatur gemessen und dient zur Berechnung der absoluten Feuchte (Wernecke (2003), Hampel (2010)).

Die gemessene Taupunkttemperatur  $\vartheta_{\text{sat}}$  wird durch die folgenden Gleichungen in den Sättigungsdruck  $p_{\text{sat}}$  umgerechnet. Für die Sättigungsdruckkurve über Wasser gilt (Hygrotec (1998)):

$$p_{\text{sat}} = 288.68 \left( 1.098 + \frac{\vartheta_{\text{sat}}}{100} \right)^{8.02} \quad \text{in Pa bei } 0^{\circ}\text{C} < \vartheta_{\text{sat}} < 30^{\circ}\text{C} \quad . \quad (\text{A.1})$$

Die Sättigungskurve über Eis lässt sich mit der folgenden Gleichung berechnen:

$$p_{\text{sat}} = 4.869 \left( 1.486 + \frac{\vartheta_{\text{sat}}}{100} \right)^{12.3} \quad \text{in Pa bei } -20^{\circ}\text{C} < \vartheta_{\text{sat}} < 0^{\circ}\text{C} \quad . \quad (\text{A.2})$$

Beim Abkühlen der Luft bleibt die absolute Feuchte konstant. Ist die Taupunkttemperatur erreicht, entspricht der Wasserdampfdruck  $p_{\text{vap}}$  dem Sättigungsdruck  $p_{\text{sat}}$ . Die Luft ist an diesem Punkt mit Wasserdampf gesättigt und besitzt eine relative Feuchte von  $\varphi = 1$ . Die relative Feuchte gibt das Verhältnis zwischen dem vorhandenen Dampfdruck und dem Sättigungsdruck an:

$$\varphi = \frac{p_{\text{vap}}}{p_{\text{sat}}(\vartheta)} \quad . \quad (\text{A.3})$$

Die Beladung der Luft wird mit Hilfe der molaren Massen von Wasser  $\tilde{M}_{\text{H}_2\text{O}}$  und Luft  $\tilde{M}_{\text{g}}$  sowie

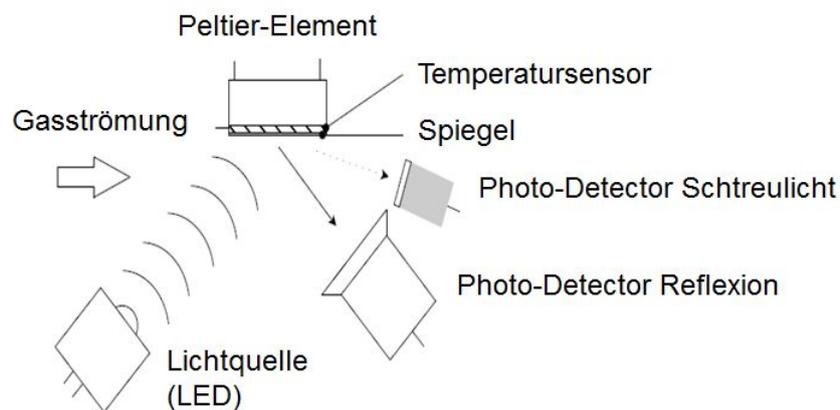


Abbildung A.1: Schema des Aufbaus einer Messzelle in einem Taupunkt-Hygrometer zur Messung von Gasfeuchten (Hampel (2010)).

des Absolutdruckes  $P$  und des Dampfdruckes  $p_{\text{vap}}$  berechnet,

$$Y = \frac{\tilde{M}_{\text{H}_2\text{O}}}{\tilde{M}_{\text{g}}} \cdot \frac{p_{\text{vap}}}{P - p_{\text{vap}}} \quad . \quad (\text{A.4})$$

Mit Hilfe von Gleichung A.4 und einer relativen Feuchte von  $\varphi = 1$  kann die Beladung der Luft aus der gemessenen Taupunkttemperatur  $\vartheta_{\text{sat}}$  berechnet werden.

$$Y = 0.622 \frac{p_{\text{sat}}(\vartheta_{\text{sat}})}{P - p_{\text{sat}}(\vartheta_{\text{sat}})} \quad . \quad (\text{A.5})$$

## B Charakterisierung von Partikelgrößenverteilungen

Die Ermittlung einer normierten Verteilung geschieht hinsichtlich einer Verteilungseigenschaft  $d$ , die beispielsweise durch die Partikelgröße einer Partikelschüttung repräsentiert wird. Da bei der Auswertung von Proben nicht die gesamte Masse berücksichtigt werden kann, wird die Verteilung auf den Gesamtwert der Individuen (z.B. Gesamtmasse der Probe) normiert. Somit wird die Vergleichbarkeit zwischen unterschiedlichen Proben bzw. der Gesamtheit der Individuen hergestellt. Entsprechend der Ermittlungsmethode einer Partikelgrößenverteilung wird eine diskrete Summenverteilung  $Q(d)$  einer bestimmten Mengengart  $r$  erhalten. Die Verteilungsfunktion  $Q(d)$  ist an die Bedingungen geknüpft, dass sie

1. einen stetigen Funktionsverlauf annimmt,
2. nicht monoton fallend ist, d.h.  $Q(d_1) \leq Q(d_2)$  bei  $d_1 < d_2$  und
3. den Randbedingungen (1):  $Q(d \leq d_{\min}) = 0$  und (2):  $Q(d \geq d_{\max}) = 1$  unterliegt.

Aus der kontinuierlichen Summenverteilung lässt sich durch Ableitung nach der Eigenschaft  $d$  die Dichteverteilung  $q(d)$  bestimmen

$$q(d) = \frac{dQ(d)}{dd} . \quad (\text{B.1})$$

Im Fall einer Messung lässt sich die Dichteverteilung in diskreter Form aus der Summenverteilung anhand der Differenzen der Klassengrenzen  $d_1$  und  $d_2$  ermitteln

$$q(\bar{d}_i) = \frac{\Delta Q(d)}{\Delta d} . \quad (\text{B.2})$$

Die Werte der Verteilungsdichte beziehen sich hierbei auf die Klassenmitte

$$\bar{d}_i = \frac{d_1 + d_2}{2} . \quad (\text{B.3})$$

Bei der Bestimmung einer Partikelgrößenverteilung muss die Mengengart  $r$  berücksichtigt werden. Die am häufigsten verwendeten Mengengarten von Partikelgrößenverteilungen sind in der Tabelle B.1 dargestellt. Wenn eine vorgegebene Bestimmungsmethode die gewünschte Mengengart messtechnisch nicht zugänglich macht, erfordert dies eine Umrechnung der Mengengarten. Dies geschieht mit Hilfe des statistischen Momentes  $M$  der Dichteverteilung  $q(d)$ . Das

Tabelle B.1: Indizes von Mengenarten und ihre Einheiten zur Verwendung bei Partikelgrößenverteilungen.

Index r	Mengenart	Einheit [Partikelgröße]
0	Anzahl	m <sup>0</sup>
1	Länge	m <sup>1</sup>
2	Fläche	m <sup>2</sup>
3	Masse/Volumen	m <sup>3</sup>

vollständige statistische Moment lässt sich für eine gegebene kontinuierliche Dichtefunktion  $q_r(d)$  mit dem Ausdruck

$$M_{j,r} = \int_0^{\infty} d^j q_r(d) dd \quad (\text{B.4})$$

darstellen. Für die diskreten Daten einer Messung ergibt sich unter Berücksichtigung des Integrationsintervalles  $[d_{\min}, d_{\max}]$  das unvollständige Moment

$$M_{j,r} = \int_{d_{\min}}^{d_{\max}} d^j q_r(d) dd \approx \sum_{i=1}^n d^j q_r(\bar{d}_i) \Delta d_i \quad (\text{B.5})$$

Das nullte Moment einer Verteilung einer beliebigen Mengenart r ist stets  $M_{0,r} = 1$ . Die Umrechnung einer Dichteverteilung  $q_r(d)$  in eine Verteilung  $q_j(d)$  kann mit Hilfe des statistischen Momentes und den angegebenen Bedingungen von Verteilungsfunktionen mit

$$q_j = \frac{d^{r-j} q_r(d)}{M_{j-r,r}} \quad (\text{B.6})$$

geschehen. Die Berechnung einer Volumenverteilung ( $r = 3$ ) aus einer gegebenen Anzahlverteilung ( $j = 0$ ) ergibt sich aus dem entsprechenden Ausdruck

$$q_{3-0}(d) = \frac{d^{3-0} q_0(d)}{M_{3-0,0}} \quad (\text{B.7})$$

Wird in Gleichung B.6  $j = 0$  gesetzt und der entsprechende Ausdruck in die Definition des unvollständigen Momentes in Gleichung B.5 eingefügt, so ergibt sich der Ausdruck

$$M_{j,r} = \int_{d_{\min}}^{d_{\max}} d^j \frac{d^r q_0(d)}{M_{r,0}} dd \quad (\text{B.8})$$

Bei weiterer Umformung erhält man die Darstellung eines beliebigen Momentes

$$M_{j,r} = \frac{1}{M_{r,0}} \int_{d_{\min}}^{d_{\max}} d^j d^r q_0(d) dd = \frac{M_{j+r,0}}{M_{r,0}}, \quad (\text{B.9})$$

---

welches eine physikalische Deutung zulässt.

Anhand der statistischen Momente ist damit die Beschreibung von Zusammenhängen einzelner Eigenschaften der gesamten Partikelschüttung möglich. Ein häufig verwendetes Beispiel ist das Verhältnis des Volumens zur Oberfläche des Partikelkollektivs. Diese Größe wird als Sauterdurchmesser  $d_{32}$  bezeichnet und durch das Moment

$$d_{32} = M_{1,2} = \frac{M_{3,0}}{M_{2,0}} = \frac{\int_{d_{\min}}^{d_{\max}} d^3 q_0(d) dd}{\int_{d_{\min}}^{d_{\max}} d^2 q_0(d) dd} . \quad (\text{B.10})$$

beschrieben.



## C Kenngrößen der Wirbelschicht

Wirbelschichten existieren entsprechend den Feststoff- und Fluideigenschaften in einem Bereich der durch die Grenzen Wirbelpunkt (Minimalfluidisation, Lockerungspunkt) und Austragspunkt gekennzeichnet ist. Die herrschenden Strömungsbedingungen lassen sich für Gas-Feststoffwirbelschichten mit der Ar-Zahl

$$Ar = \frac{g \cdot d^3 (\rho_P - \rho_g)}{v_g^2 \cdot \rho_g} \quad (C.1)$$

darstellen. Diese stellt das Verhältnis zwischen Auftriebs- und Reibungskraft dar.

In der Literatur sind für die  $Re_{mf}$ -Zahl der Minimalfluidisation verschiedene empirische Korrelationen angegeben. Eine häufig benutzte Beziehung ist

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

von Martin (1994).

Die Re-Zahl an einem Betriebspunkt der Wirbelschicht ergibt sich unter Berücksichtigung der Partikelgröße  $d_P$  zu

$$Re = \frac{u \cdot d_P}{v_g} \quad (C.3)$$

Das Lückenvolumen der Wirbelschicht unterliegt bei Steigerung der Gasgeschwindigkeit einer steten Erhöhung bis zum Erreichen des Austragspunktes. Die Porosität der Wirbelschicht  $\varepsilon_{bed}$  (relatives Lückenvolumen) ist der Quotient aus dem Lückenvolumen und dem Gesamtvolumen der Wirbelschicht. Die dem Betriebspunkt entsprechende Bettporosität kann empirisch durch

$$\varepsilon_{bed} = \frac{V_g}{V_P + V_g} = \left( \frac{18Re + 0.36Re^2}{Ar} \right)^{0.21} \quad (C.4)$$

bestimmt werden (Todes (1972)). Für  $u < u_{mf}$  kann die Porosität mit  $\varepsilon_{bed} \approx 0.4$  für eine monodisperse Kugelschüttung im Festbett angesetzt werden. Der Volumenanteil des Feststoffes in der Wirbelschicht ergibt sich entsprechend zu  $(1 - \varepsilon_{bed})$ . Die resultierende Wirbelschichthöhe  $H_{bed}$  lässt sich mit Hilfe der Bettporosität und den geometrischen Abmessungen des Apparates sowie der Bettmasse  $M_{bed}$  berechnen

$$H_{bed} = \frac{4 \cdot M_{bed}}{(1 - \varepsilon_{bed}) \rho_P \cdot \pi \cdot d_{App}^2} \quad (C.5)$$



## D Anlagenparameter

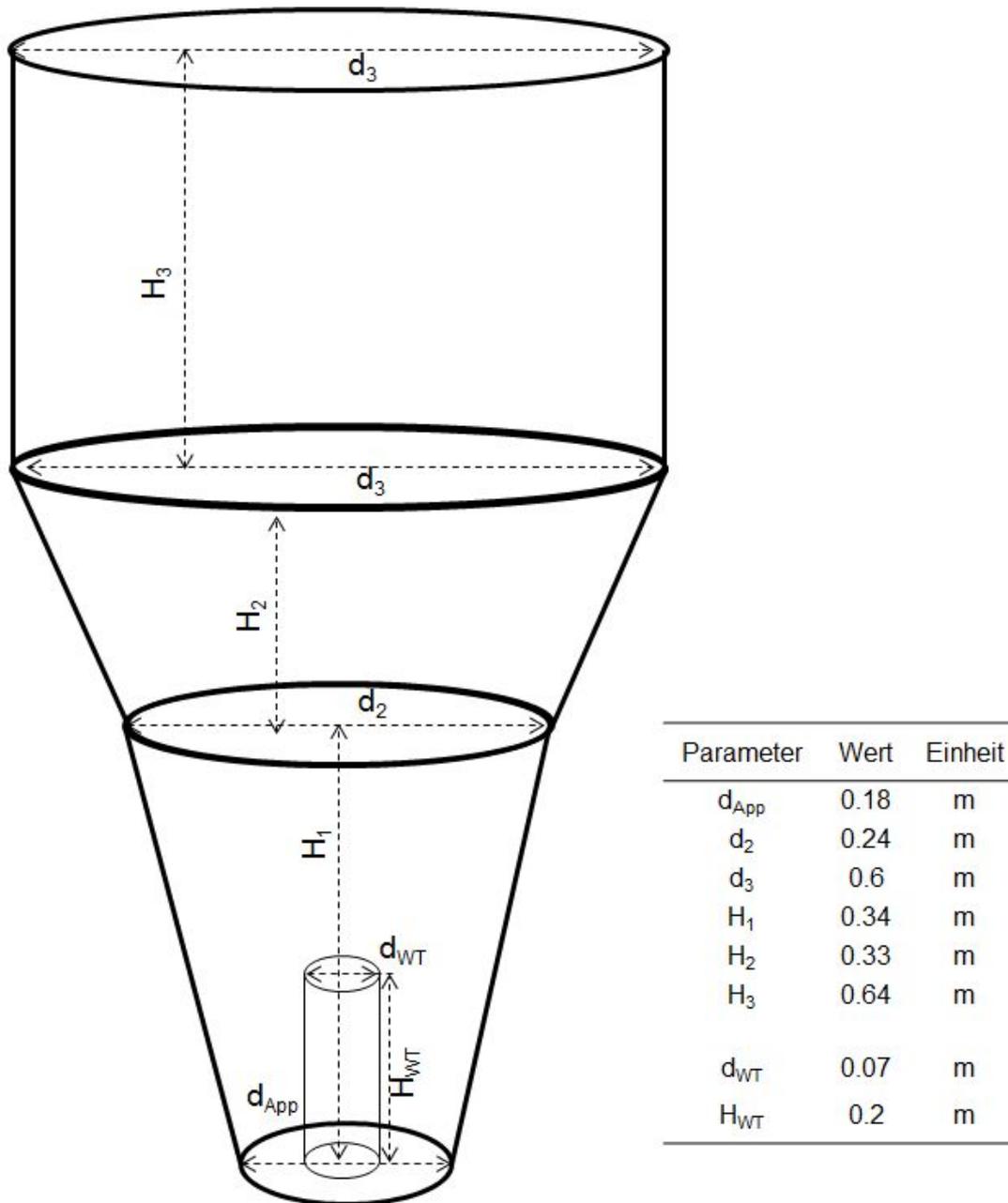


Abbildung D.1: Schematische Darstellung und geometrische Parameter der ProCell-Anlage.

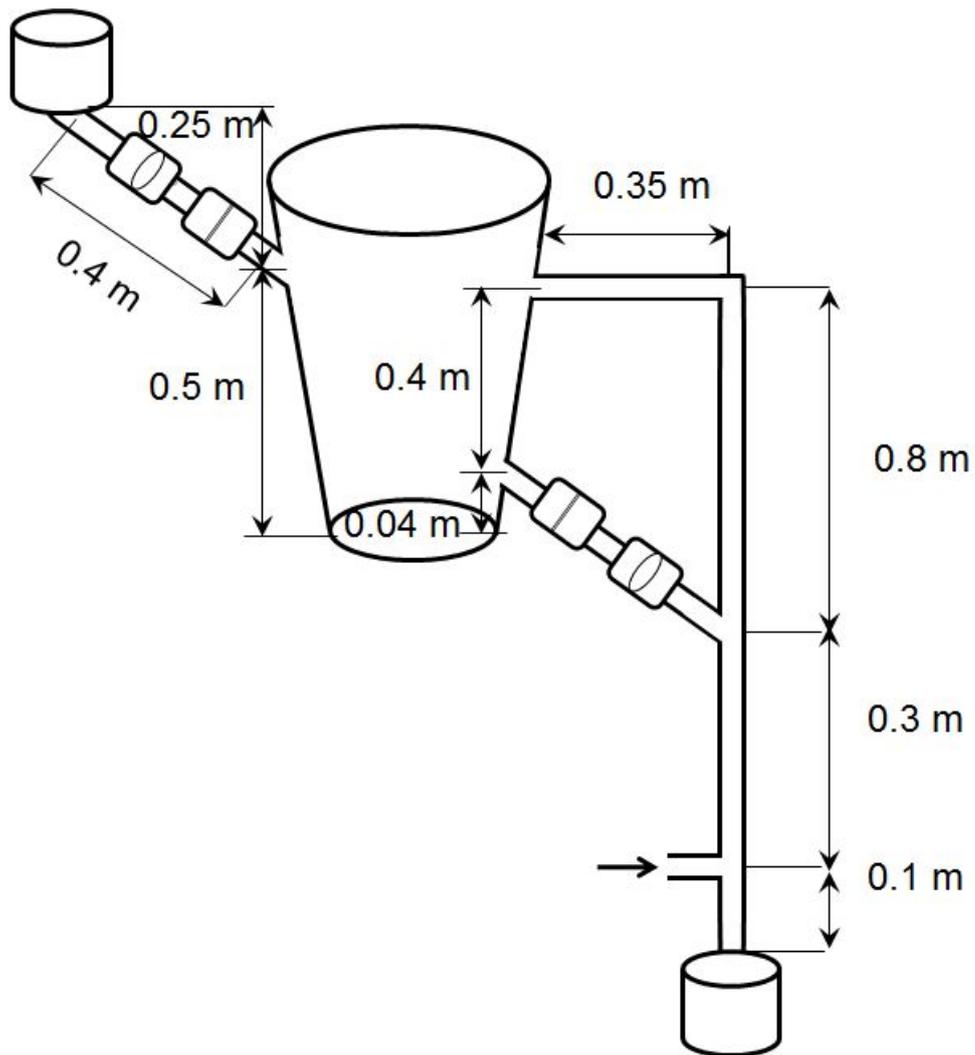
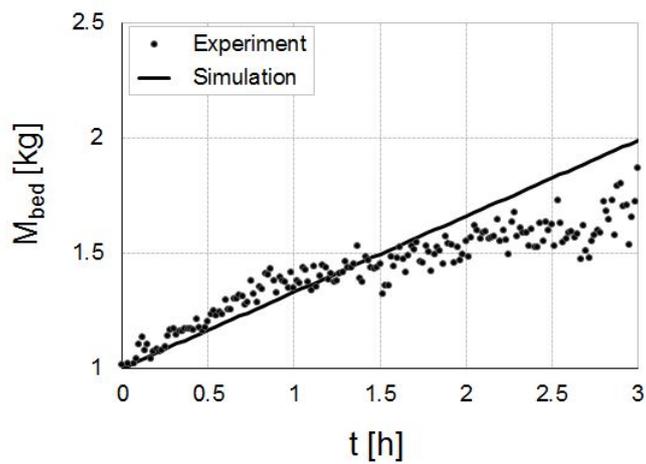


Abbildung D.2: Skizze der modifizierten Anlage mit Abmessungen.

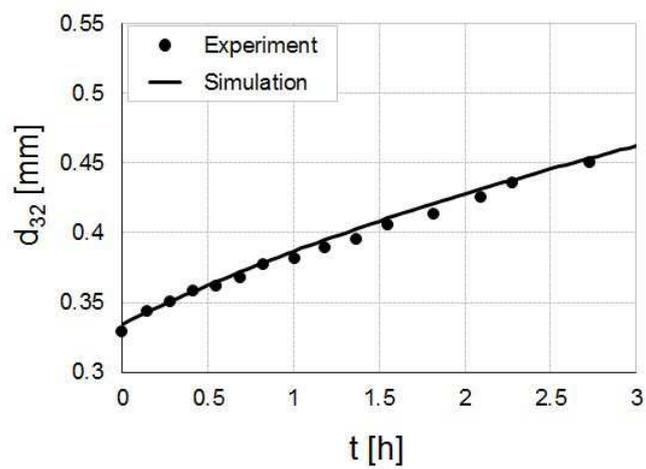
# E Darstellung der Ergebnisse

## E.1 Diskontinuierliches Coating

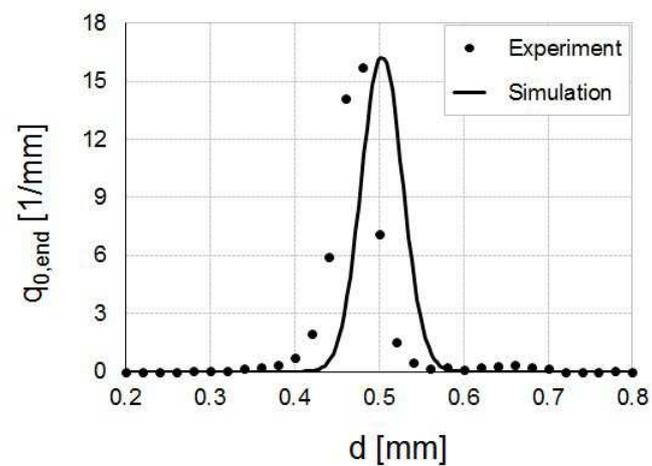
Im Folgenden werden die Ergebnisse aus den Messungen (siehe Tabelle 5.3) und den Modellberechnungen (siehe Abschnitt 2.3) der diskontinuierlichen Coatingversuche dargestellt. Für jedes Experiment werden insgesamt drei Diagramme verwendet. In dem ersten Diagramm (a) wird der Verlauf der Bettmasse  $M_{bed}$  aus dem Experiment und der Simulation dargestellt. Das zweite Diagramm (b) veranschaulicht den Verlauf des Sauter-Durchmessers aus experimentellen Daten und der Simulation. Im dritten Diagramm (c) werden die gemessene und simulierte Partikelgrößenverteilung  $q_0$  zum Zeitpunkt  $t = t_{end}$  abgebildet.



(a) Bettmasse  $M_{\text{bed}}$



(b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$



(c) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$

Abbildung E.1: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experiment und Simulation für den Versuch 100621.

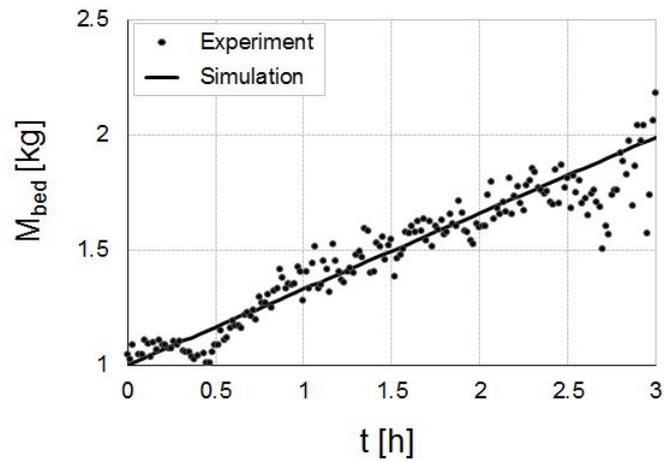
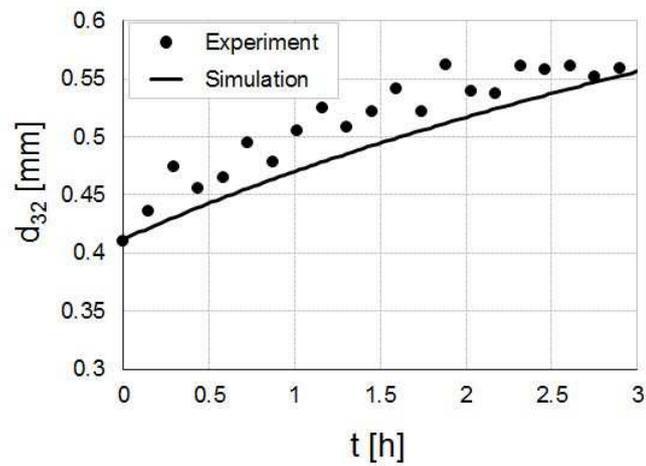
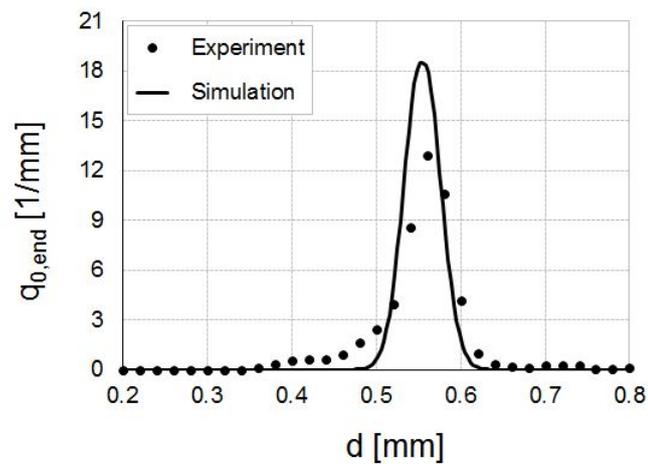
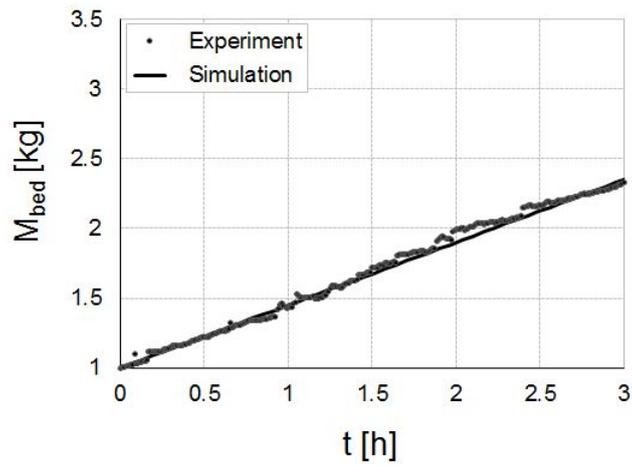
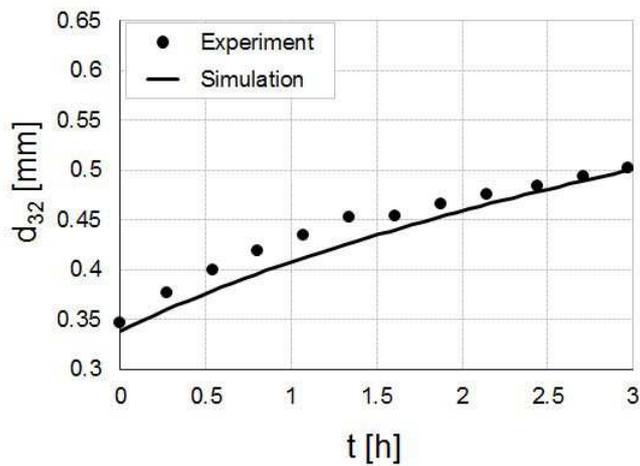
(a) Bettmasse  $M_{\text{bed}}$ (b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$ (c) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$ 

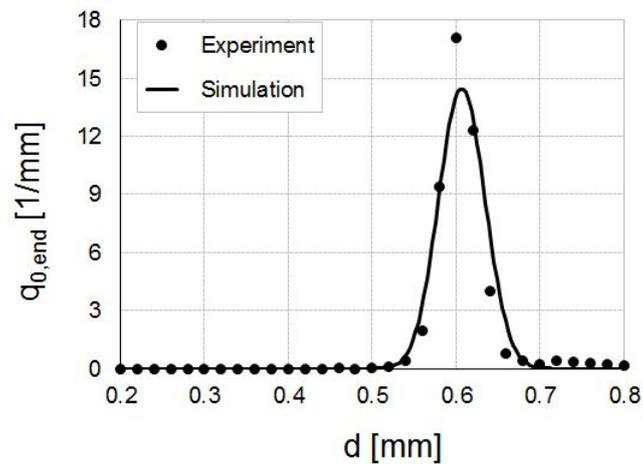
Abbildung E.2: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experiment und Simulation für den Versuch 100817.



(a) Bettmasse  $M_{bed}$



(b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$



(c) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$

Abbildung E.3: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experiment und Simulation für den Versuch 100824.

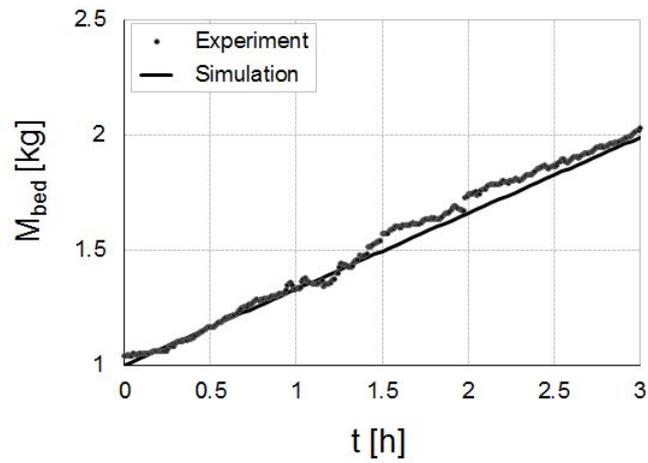
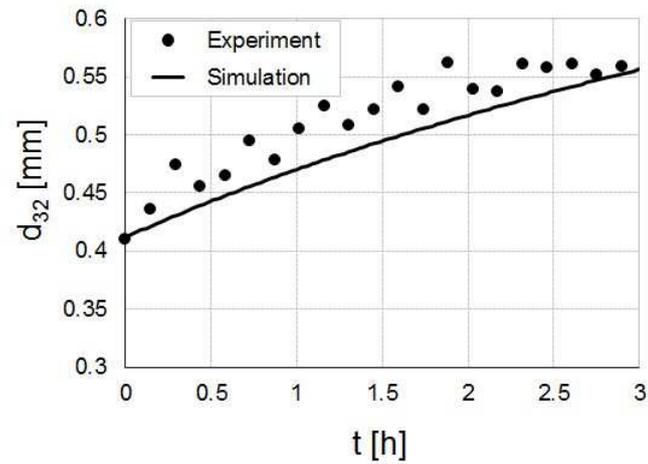
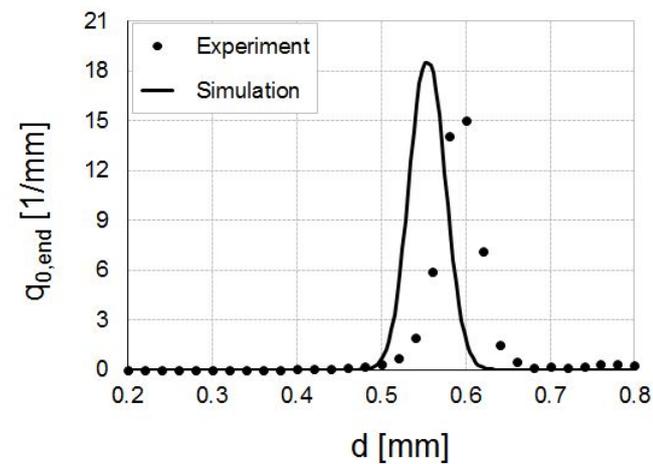
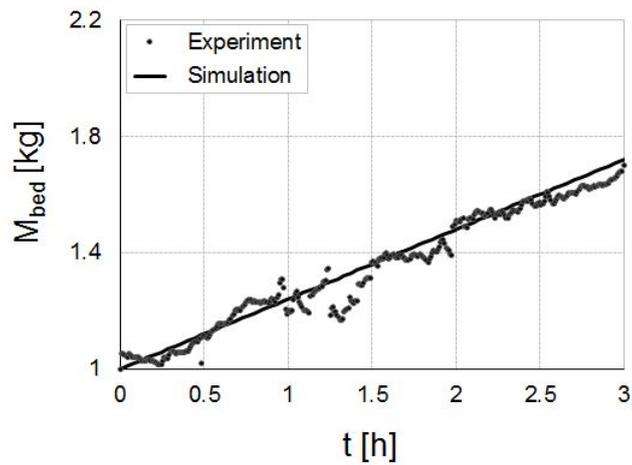
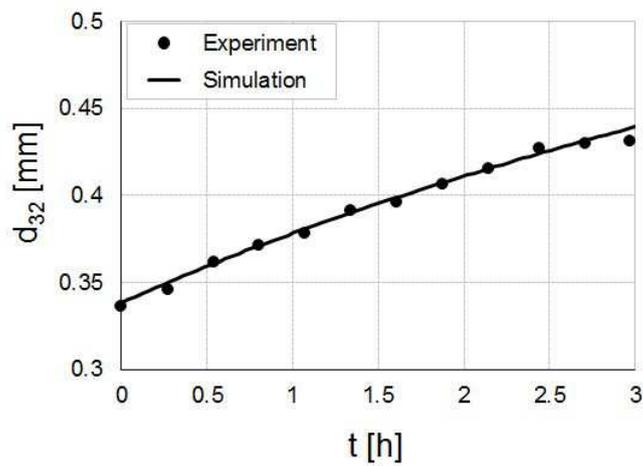
(a) Bettmasse  $M_{\text{bed}}$ (b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$ (c) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$ 

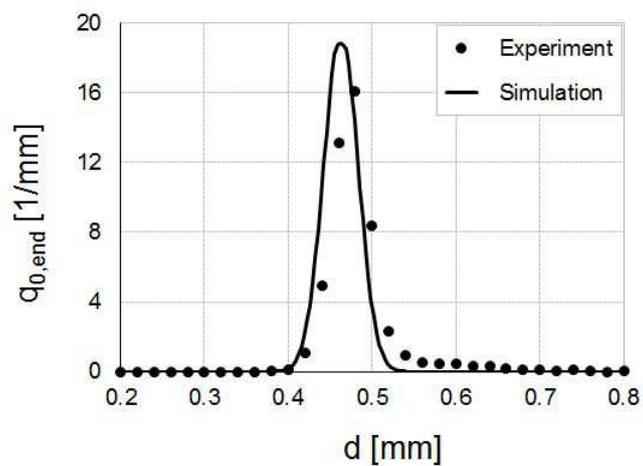
Abbildung E.4: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experiment und Simulation für den Versuch 110504.



(a) Bettmasse  $M_{bed}$



(b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$



(c) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$

Abbildung E.5: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experiment und Simulation für den Versuch 120803.

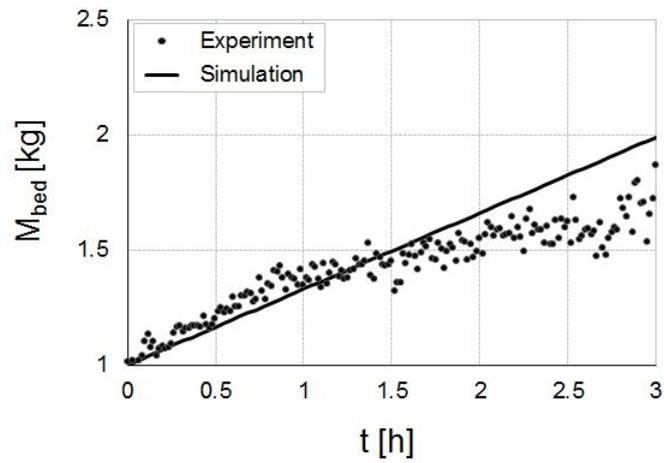
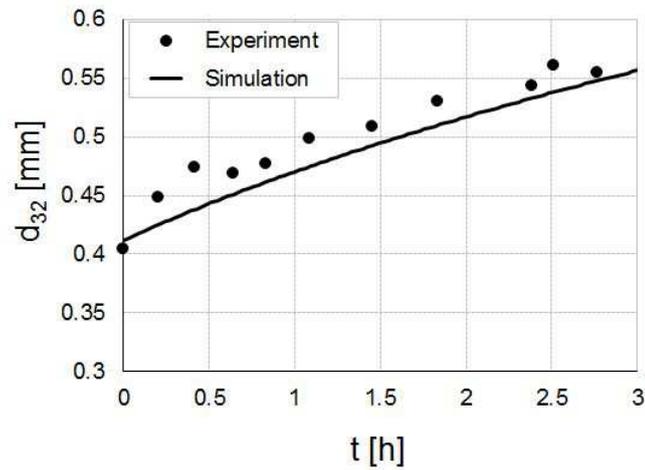
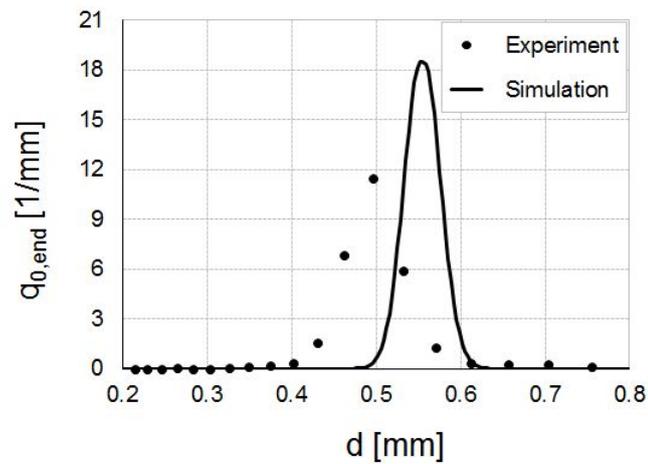
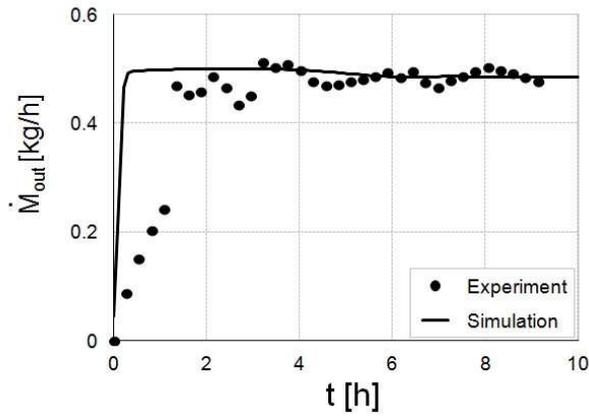
(a) Bettmasse  $M_{\text{bed}}$ (b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$ (c) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$ 

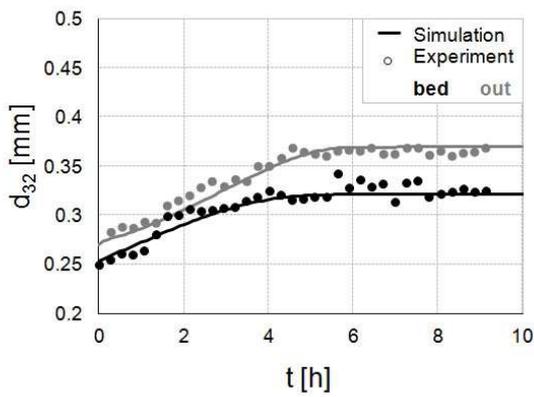
Abbildung E.6: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experiment und Simulation für den Versuch 120804.

## E.2 Kontinuierliches Coating

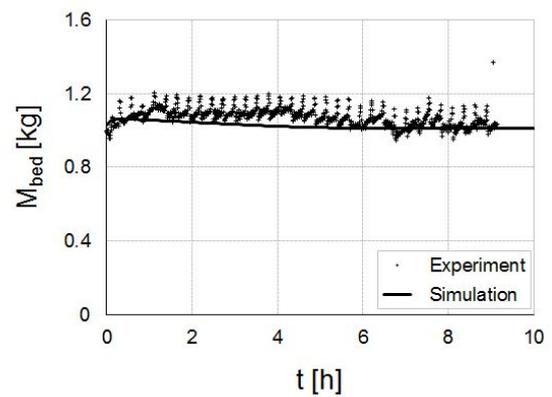
Im Folgenden werden die Ergebnisse aus den Messungen (siehe Tabelle 5.5) und den Modellberechnungen (siehe Abschnitt 2.4) der kontinuierlichen Coatingversuche dargestellt. Für jedes Experiment werden insgesamt fünf Diagramme verwendet. In dem ersten Diagramm (a) wird der Verlauf des ausgetragenen Produktmassenstroms  $\dot{M}_{\text{out}}$  aus dem Experiment und der Simulation dargestellt. Das zweite Diagramm (b) veranschaulicht den Verlauf des Sauter-Durchmessers in der Schicht und am Produktaustrag. In dem dritten Diagramm (c) wird der Verlauf der Bettmasse  $M_{\text{bed}}$  dargestellt. Das vierte Diagramm (d) präsentiert die Gasgeschwindigkeit  $u$  im Klassierrohr, die die Bettmasse  $M_{\text{bed}}$  steuert und konstant hält. Im fünften Diagramm (e) werden die gemessenen und simulierten Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  zum Zeitpunkt  $t = t_{\text{end}}$  in der Schicht und beim Produkt abgebildet.



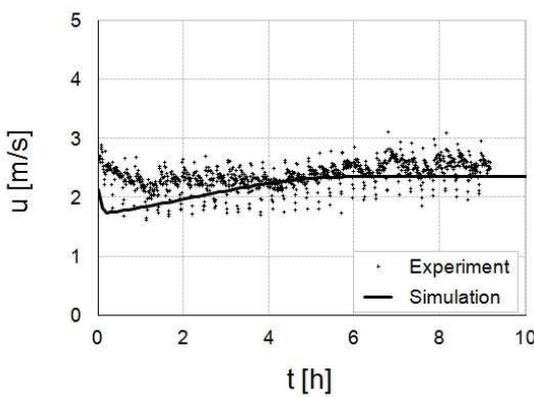
(a) Ausgetragener Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



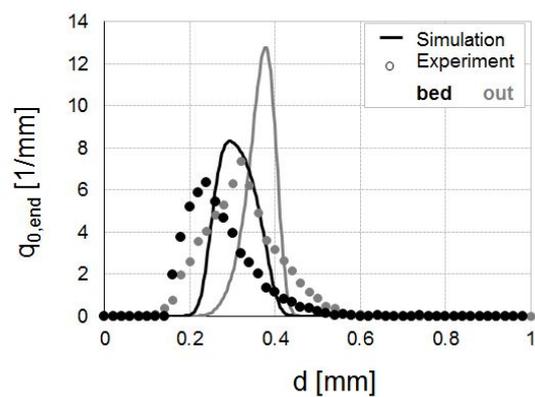
(b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$  in der Schicht und des Produktes



(c) Bettmasse  $M_{bed}$

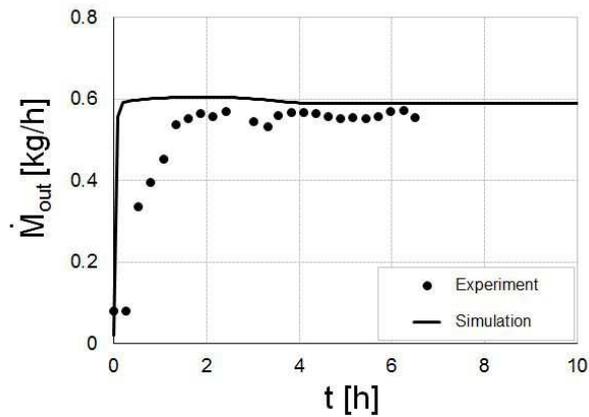


(d) Gasgeschwindigkeit  $u$  in dem Klasierrohr

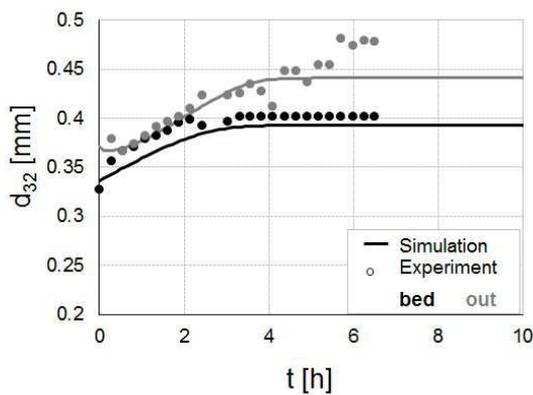


(e) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht und am Produktaustrag bei  $t = t_{end}$

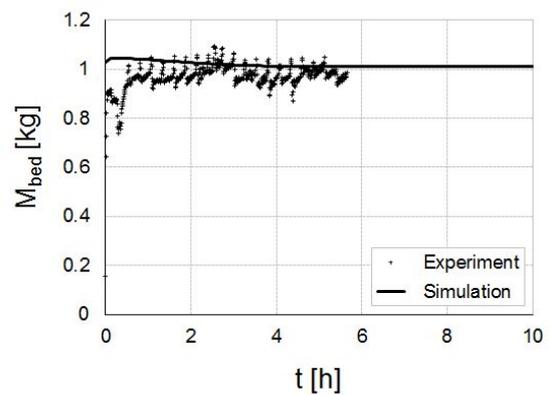
Abbildung E.7: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experiment 120130 und Simulation.



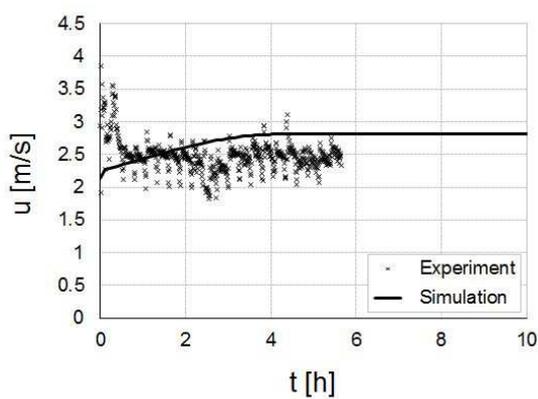
(a) Ausgetragener Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



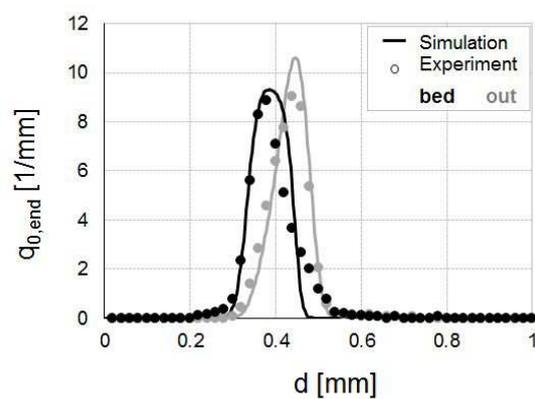
(b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$  in der Schicht und des Produktes



(c) Bettmasse  $M_{bed}$

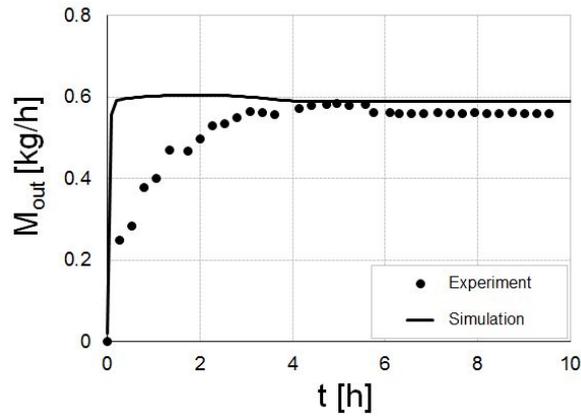


(d) Gasgeschwindigkeit  $u$  in dem Klasierrrohr

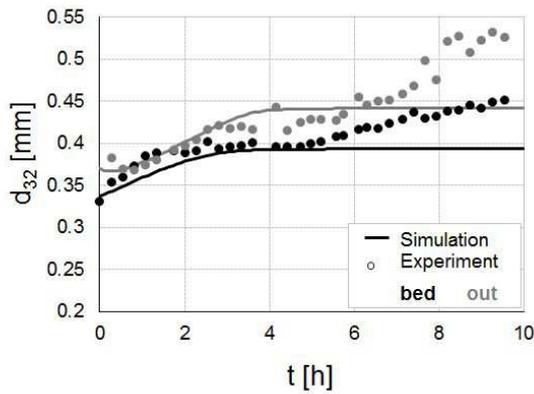


(e) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht und am Produktaustrag bei  $t = t_{end}$

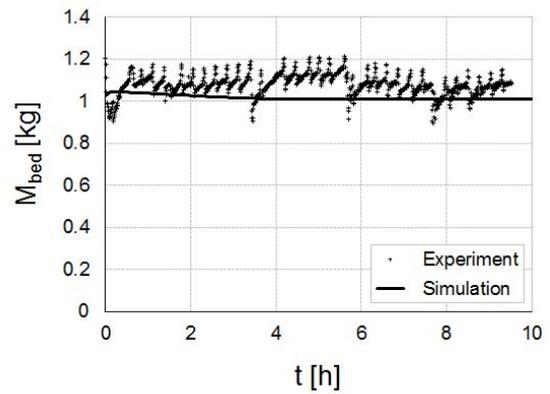
Abbildung E.8: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experiment 120116 und Simulation.



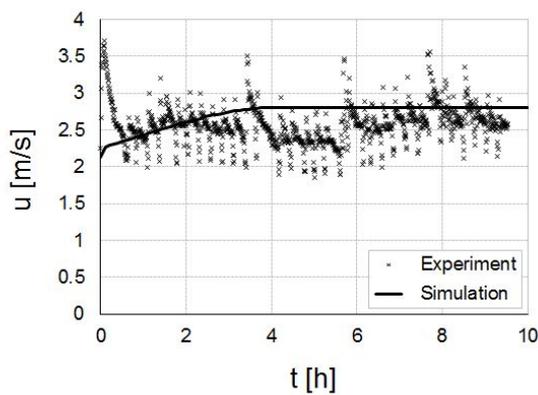
(a) Ausgetragener Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



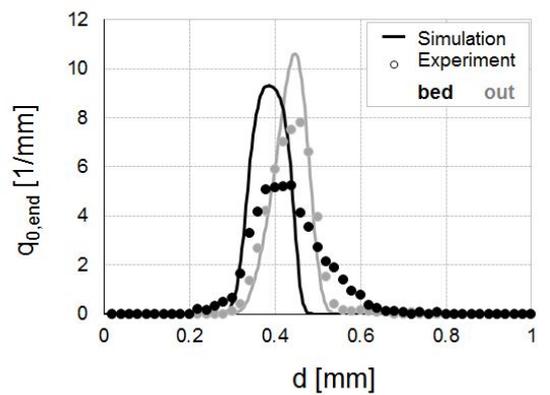
(b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$  in der Schicht und des Produktes



(c) Bettmasse  $M_{bed}$

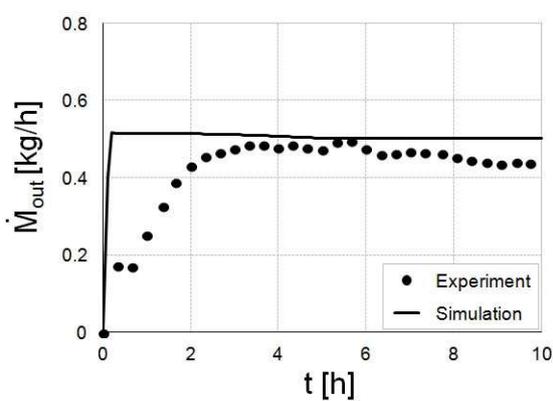


(d) Gasgeschwindigkeit  $u$  in dem Klasierrrohr

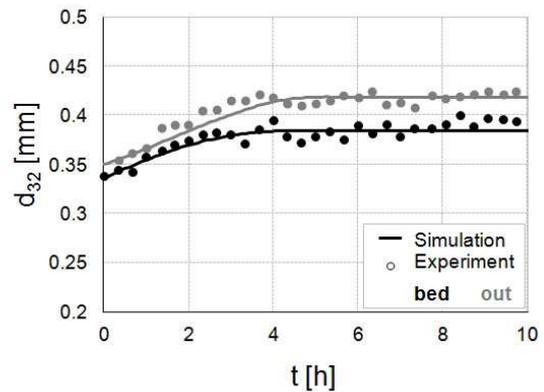


(e) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht und am Produktaustrag bei  $t = t_{end}$

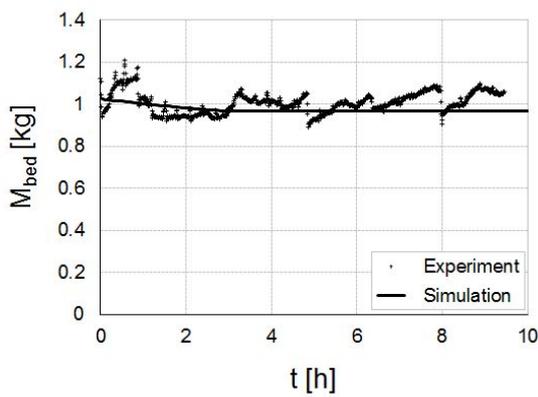
Abbildung E.9: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experiment 120119 und Simulation.



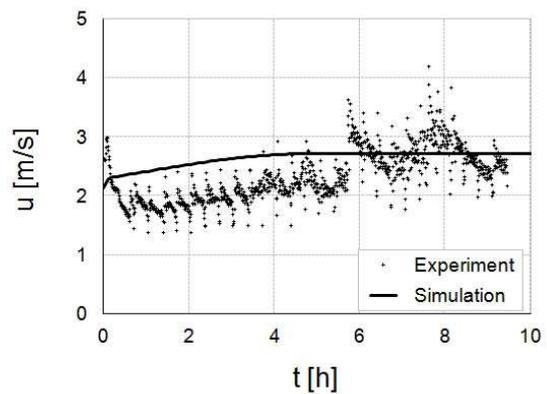
(a) Ausgetragener Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



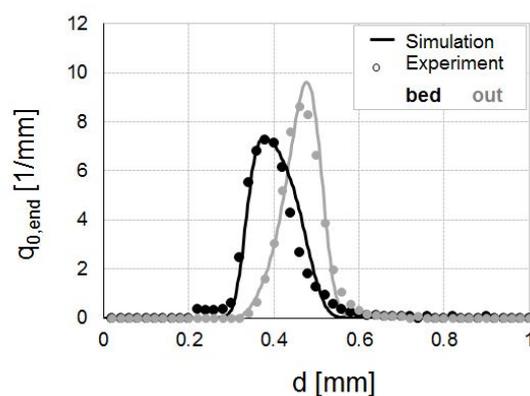
(b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$  in der Schicht und des Produktes



(c) Bettmasse  $M_{bed}$

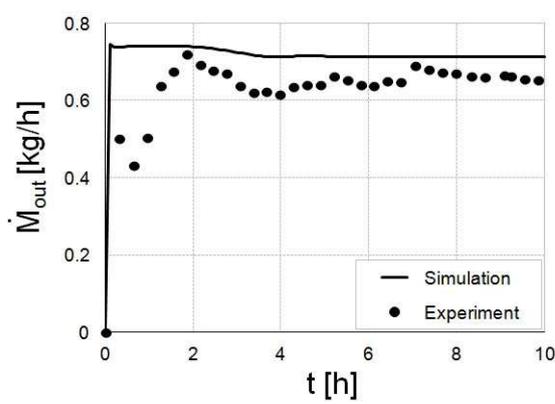


(d) Gasgeschwindigkeit  $u$  in dem Klasierrohr

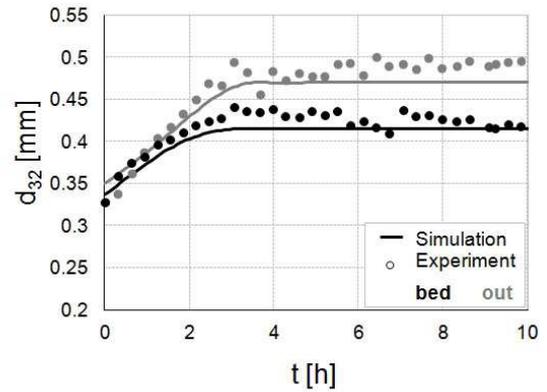


(e) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht und am Produktaustrag bei  $t = t_{end}$

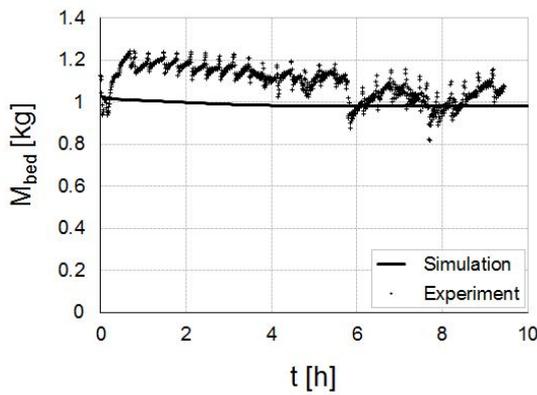
Abbildung E.10: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experiment 120124 und Simulation.



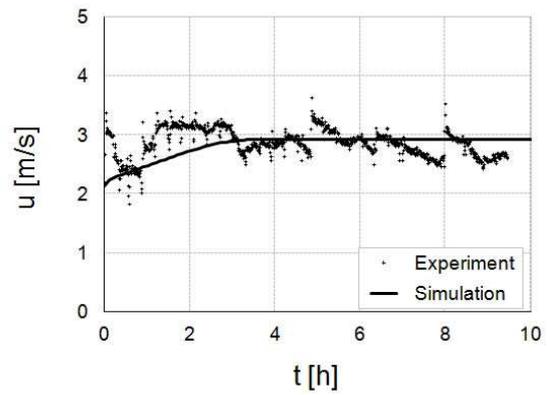
(a) Ausgetragener Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



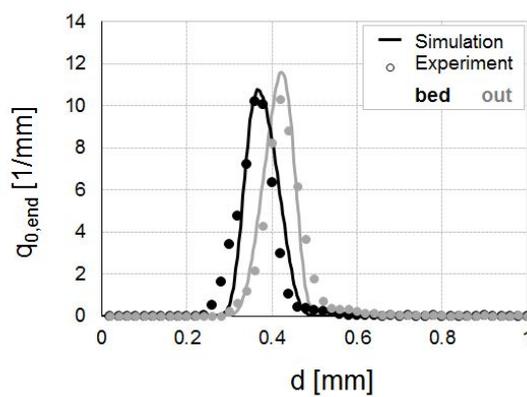
(b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$  in der Schicht und des Produktes



(c) Bettmasse  $M_{bed}$

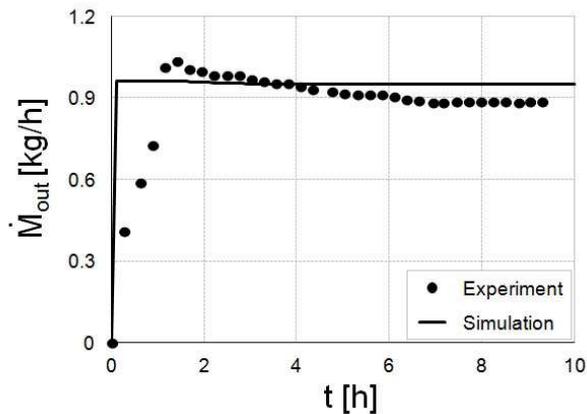


(d) Gasgeschwindigkeit  $u$  in dem Klasierrohr

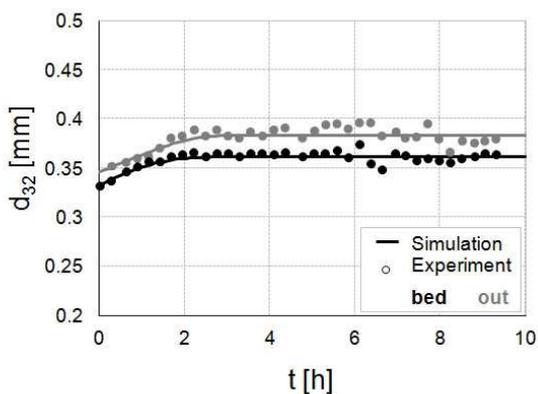


(e) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht und am Produktaustrag bei  $t = t_{end}$

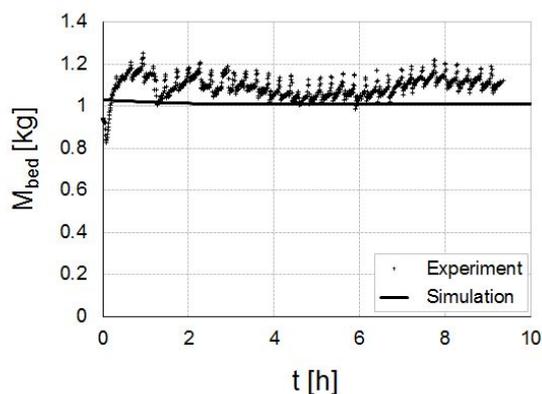
Abbildung E.11: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experiment 120125 und Simulation.



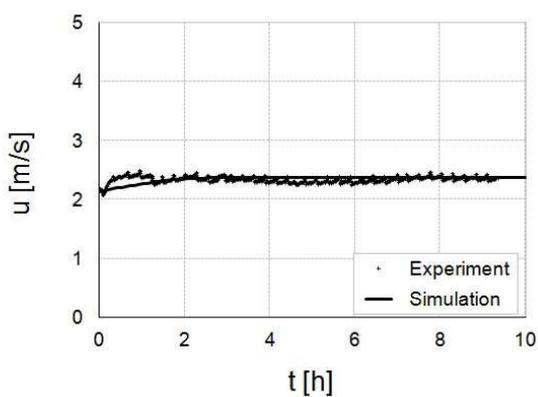
(a) Ausgetragener Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



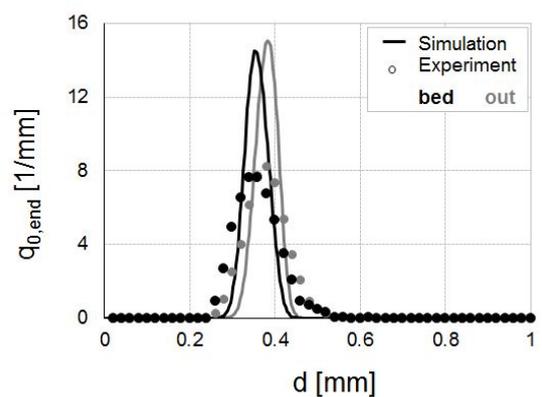
(b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$  in der Schicht und des Produktes



(c) Bettmasse  $M_{bed}$

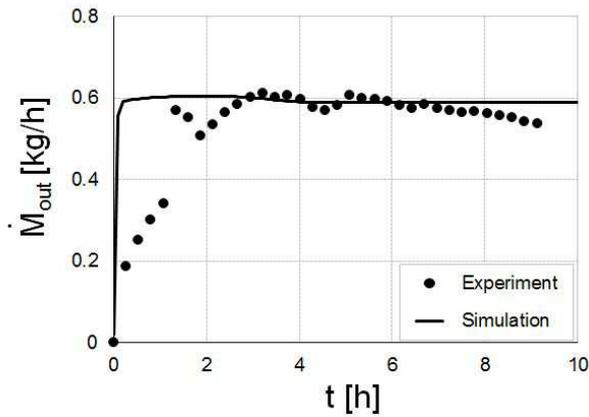


(d) Gasgeschwindigkeit  $u$  in dem Klasierrohr

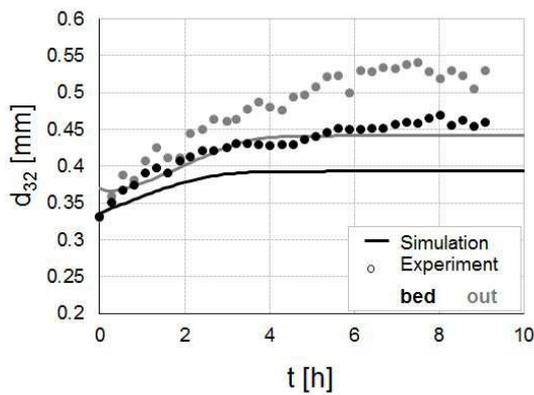


(e) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht und am Produktaustrag bei  $t = t_{end}$

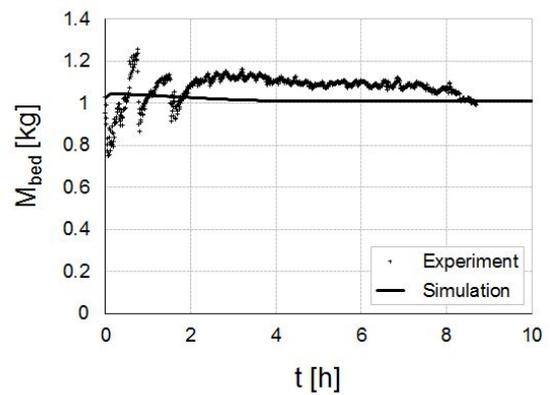
Abbildung E.12: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experiment 120126 und Simulation.



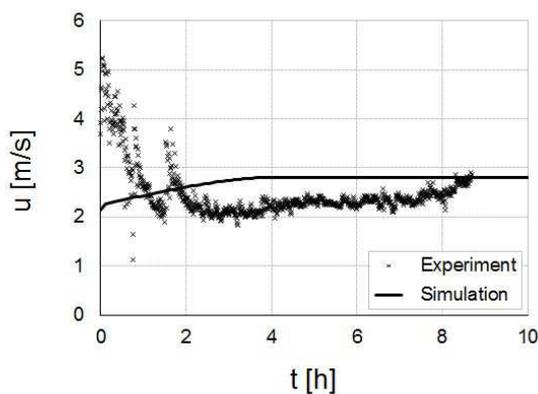
(a) Ausgetragener Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



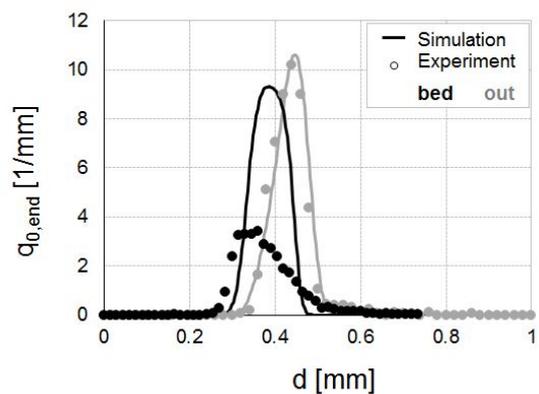
(b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$  in der Schicht und des Produktes



(c) Bettmasse  $M_{bed}$

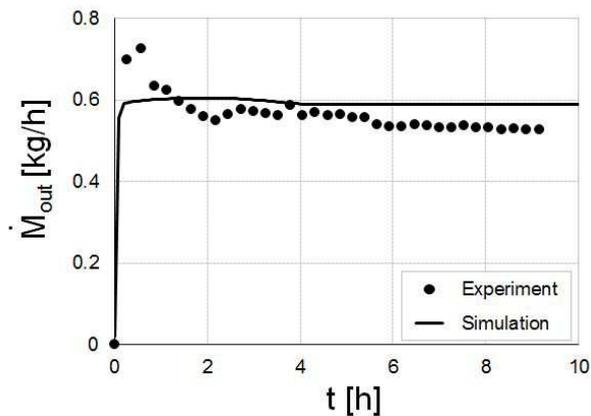


(d) Gasgeschwindigkeit  $u$  in dem Klasierrrohr

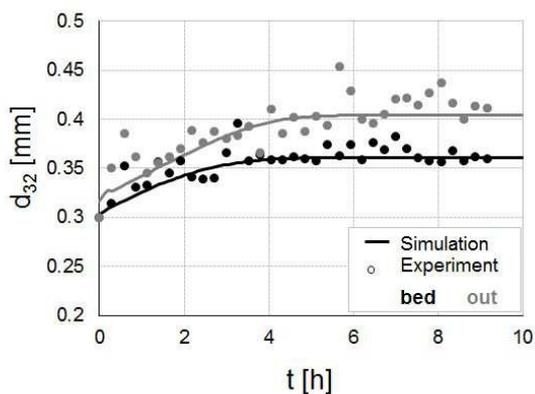


(e) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht und am Produktaustrag bei  $t = t_{end}$

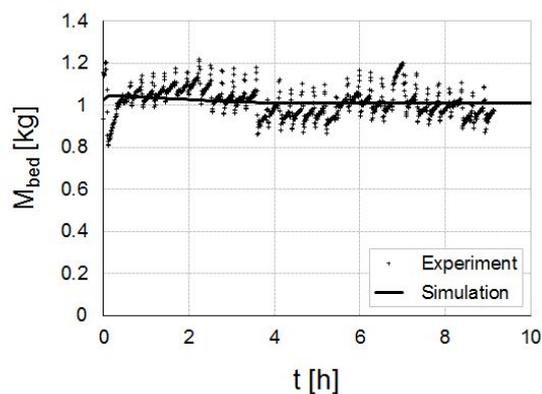
Abbildung E.13: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experiment 120208 und Simulation.



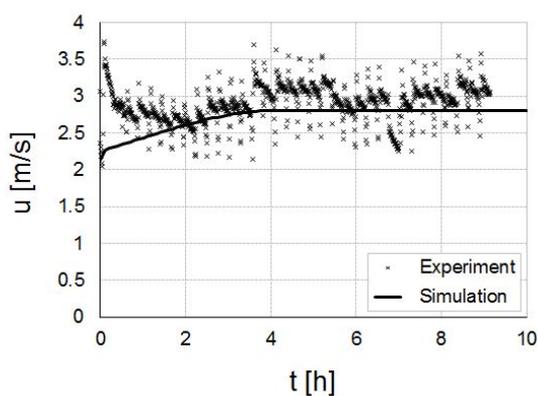
(a) Ausgetragener Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



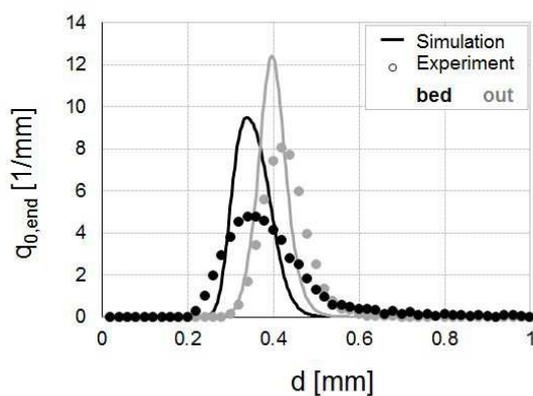
(b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$  in der Schicht und des Produktes



(c) Bettmasse  $M_{bed}$

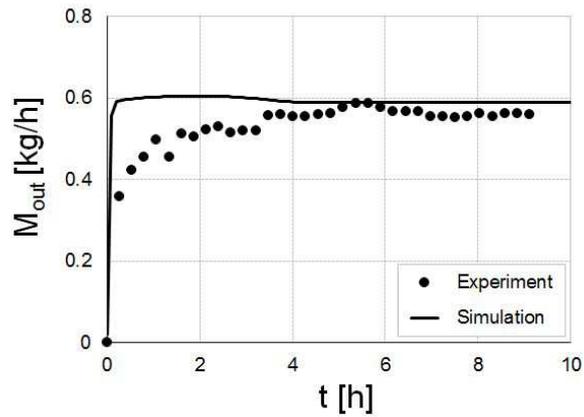


(d) Gasgeschwindigkeit  $u$  in dem Klasierrrohr

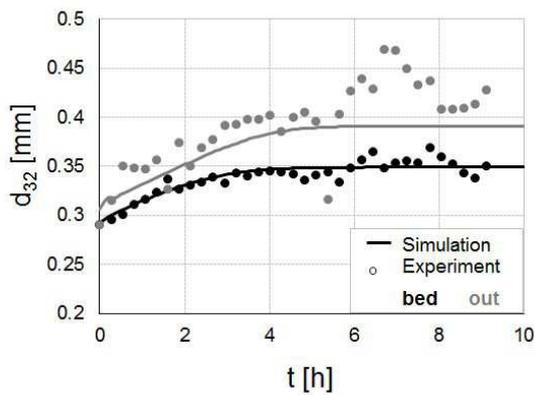


(e) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht und am Produktaustrag bei  $t = t_{end}$

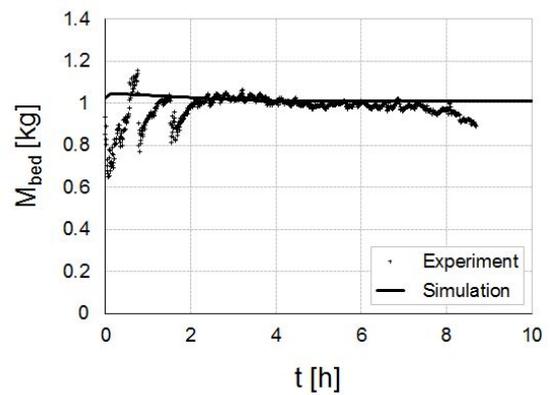
Abbildung E.14: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experiment 120201 und Simulation.



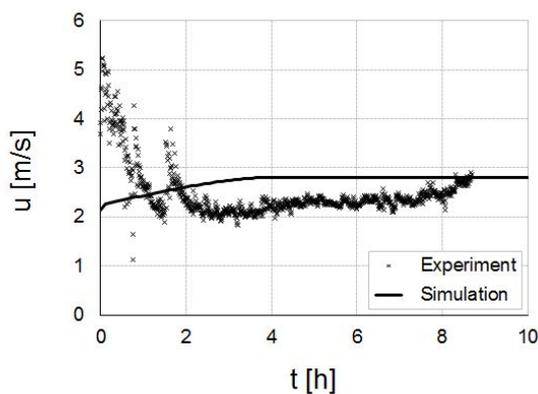
(a) Ausgetragener Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



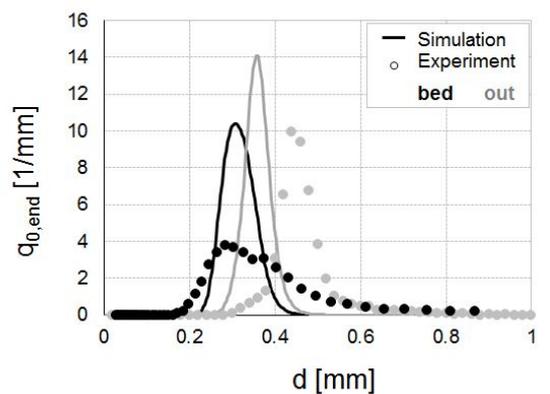
(b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$  in der Schicht und des Produktes



(c) Bettmasse  $M_{bed}$

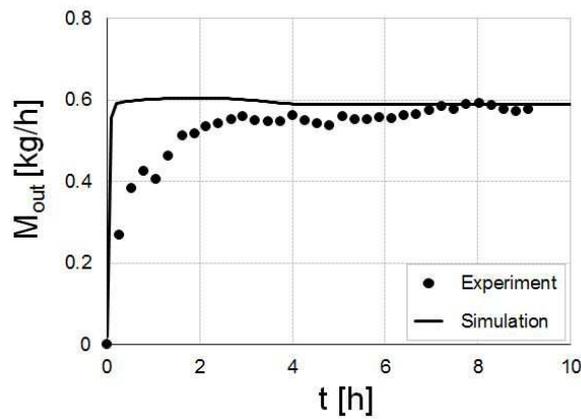


(d) Gasgeschwindigkeit  $u$  in dem Klasierrrohr

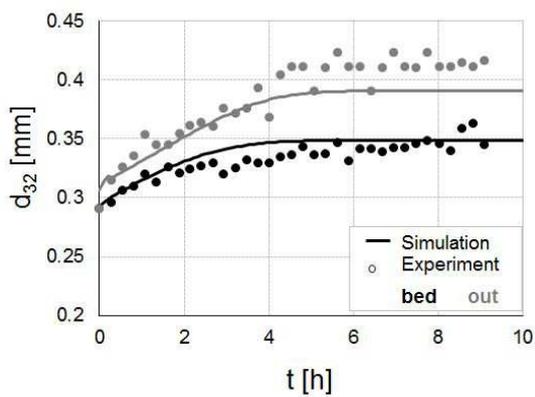


(e) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht und am Produktaustrag bei  $t = t_{end}$

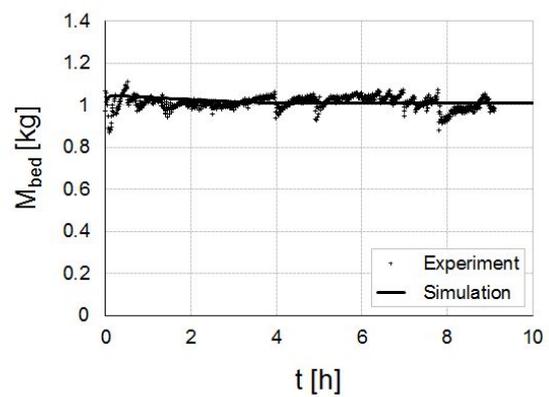
Abbildung E.15: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experiment 120209 und Simulation.



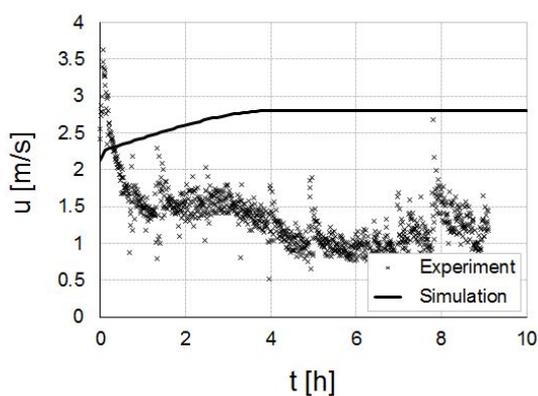
(a) Ausgetragener Produktmassenstrom  $\dot{M}_{out}$



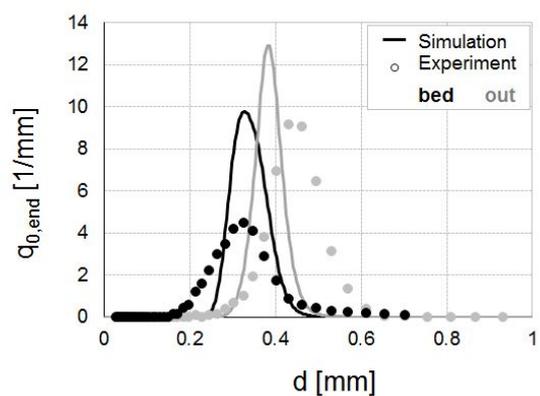
(b) Sauter-Durchmesser  $d_{32}$  in der Schicht und des Produktes



(c) Bettmasse  $M_{bed}$



(d) Gasgeschwindigkeit  $u$  in dem Klasierrrohr



(e) Partikelgrößenverteilungen  $q_0$  in der Schicht und am Produktaustrag bei  $t = t_{end}$

Abbildung E.16: Darstellung der Ergebnisse bei einem Vergleich zwischen Experiment 120210 und Simulation.

# Literaturverzeichnis

- [Alavi u. a. 2007] ALAVI, S.M. ; MIRMOMEN, L. ; SALEH, K.: Experimental study and particle population modeling of coating in a jet-fluidized bed. In: *Advanced Powder Technology* 18 (2007), Nr. 3, S. 311–327
- [Arimoto u. a. 2004] ARIMOTO, M. ; ICHIKAWA, H. ; FUKUMORI, Y.: Microencapsulation of water-soluble term macromolecules with acrylic terpolymers by the Wurster coating process for colon-specific drug delivery. In: *Powder Technology* 141 (2004), S. 177–186
- [Bachmann und Tsotsas 2014] BACHMANN, P. ; TSOTSAS, E.: Verweilzeituntersuchung partikulärer Produkte in der Wirbelschichttrinne. In: *Posterbeitrag am Jahrestreffen Trocknungstechnik und Mechanische Flüssigkeitsabtrennung* (2014)
- [Bathen und Breitbach 2001] BATHEN, D. ; BREITBACH, M.: *Adsorptionstechnik*. Bd. 1. Springer-Verlag, 2001
- [Becher und Schlünder 1997] BECHER, R. ; SCHLÜNDER, E.: Fluidized bed granulation: Gas flow, particle motion and moisture distribution. In: *Chemical Engineering and Processing* 36 (1997), Nr. 4, S. 261–269
- [Becher und Schlünder 1998] BECHER, R. ; SCHLÜNDER, E.: Fluidized bed granulation: The importance of a drying zone for the particle growth mechanism. In: *Chemical Engineering and Processing* 37 (1998), Nr. 1, S. 1–6
- [Börner 2013] BÖRNER, M.: *Feststoffdynamik und Partikelverweilzeiten am Beispiel der Top-Spray Wirbelschichtsprühgranulation*, Otto von Guericke Universität Magdeburg, Dissertation, 2013
- [Börner u. a. 2011] BÖRNER, M. ; PEGLOW, M. ; TSOTSAS, E.: Particle residence times in fluidized bed granulation equipments. In: *Chemical Engineering Technology* 37 (2011), Nr. 7, S. 1116–1122
- [Bruchhausen u. a. 1999] BRUCHHAUSEN, F. ; HAGER, H. ; EBEL, S. ; HACKENTHAL, E. ; HOLZGRABE, U.: *Hagers Handbuch der Pharmazeutischen Praxis, Stoffe L-Z*. Springer-Verlag, 1999

- [Bück 2012] BÜCK, A.: *Model-based measurement and control of fluidised bed spray granulation processes*. Magdeburg, Otto von Guericke Universität Magdeburg, Dissertation, 2012
- [Bück u. a. 2011] BÜCK, A. ; PEGLOW, M. ; TSOTSAS, E. ; MANGOLD, M. ; KIENLE, A.: Model-based measurement of particle size distributions in layering granulation processes. In: *AIChE Journal* 57(4) (2011), S. 929–941
- [Burgschweiger und Tsotsas 2002] BURGSCHWEIGER, J. ; TSOTSAS, E.: Experimental investigation and modelling of continuous fluidized bed drying under steady-state and dynamic conditions. In: *Chemical Engineering Science* 57 (2002), Nr. 24, S. 5021–5038. – ISSN 0009-2509
- [Chen u. a. 2009] CHEN, Y. ; YANG, J. ; MUJUMDAR, A. ; DAVE, R.: Fluidized bed film coating of cohesive Geldart group C powder. In: *Powder Technology* 189 (2009), S. 466–480
- [Christensen und Bartelsen 1997] CHRISTENSEN, F. N. ; BARTELSEN, P.: Qualitative Description of the Wurster-Based Fluid-Bed Coating Process. In: *Drug Development and Industrial Pharmacy* 23(5) (1997), S. 451–463
- [Cronin u. a. 2010] CRONIN, K. ; ÇATAK, M. ; TELLEZ-MEDINA, D. ; V.CREGAN ; BRIEN, S. O.: Modelling of particle motion in an internal re-circulatory fluidised bed. In: *Chemical Engineering Journal* 164 Issue 2-3 (2010), S. 393–402
- [Dadkhah u. a. 2012] DADKHAH, M. ; PEGLOW, M. ; TSOTSAS, E.: Characterization of the internal morphology of agglomerates produced in a spray fluidized bed by X-ray tomography. In: *Powder Technology* 228 (2012), Nr. 0, S. 349–358
- [Dernedde 2013] DERNEDDE, M.: *Modellierung der Wirbelschicht-Sprühagglomeration unter Berücksichtigung der Partikelstrukturbildung*, Otto von Guericke Universität Magdeburg, Dissertation, 2013
- [Dernedde u. a. 2012] DERNEDDE, M. ; PEGLOW, M. ; TSOTSAS, E.: A Novel, Structure-Tracking Monte Carlo Algorithm for Spray Fluidized Bed Agglomeration. In: *AIChE Journal* 58 (2012), Nr. 10, S. 3016–3029
- [Dewettinck und Huyghebaert 1998] DEWETTINCK, K. ; HUYGHEBAERT, A.: Top-Spray Fluidized Bed Coating: Effect of Process Variables on Coating Efficiency. In: *Lebensmittel-Wissenschaft und-Technologie* 31 (1998), S. 568–575
- [Drechsler u. a. 2005] DRECHSLER, D. ; PEGLOW, M. ; HEINRICH, S. ; IHLOW, M. ; MÖRL, L.: Investigating the dynamic behaviour of fluidized bed spray granulation processes applying numerical simulation tools. In: *Chemical Engineering Science* 60 (2005), S. 3817–3833

- [Ennis u. a. 1991] ENNIS, B. J. ; TARDOS, G. ; PFEFFER, R.: A microlevel-based characterization of granulation phenomena. In: *Powder Technology* 65 (1991), Nr. 1-3, S. 257–272
- [Fitzpatrick u. a. 2003] FITZPATRICK, S. ; DING, Y. ; SEILER, C. ; LOVEGROVE, C. ; BOOTH, S. ; FORSTER, R. ; PARKER, D. ; SEVILLE, J.: Positron emission particle tracking studies of a Wurster process for coating applications. In: *Pharmaceutical Technology* 9 (2003), S. 70–78
- [Fries u. a. 2013] FRIES, L. ; ANTONYUK, S. ; HEINRICH, S. ; NIEDERREITER, G. ; PALZER, S.: Product design based on discrete particle modeling of a fluidized bed granulator. In: *Particuology* (2013), S. 108–123
- [Geldart 1973] GELDART, D.: Types of gas fluidization. In: *Powder Technology* 7 (1973), S. 285–292
- [Grave und Pöllinger 2011] GRAVE, A. ; PÖLLINGER, N.: *Easy Coating – Grundlagen und Trends beim Coating pharmazeutischer Produkte, Kapitel 4: Glatt Wirbelschichttechnologie zum Coaten von Pulvern, Pellets und Mikropellets*. Kumpugdee-Vollrath, M., Krause, J., Vieweg und Teubner Verlag, 2011
- [Guignon u. a. 2003] GUIGNON, B. ; REGALADO, E. ; DUQUENOY, A. ; DUMOILIN, E.: Helping to choose operating parameters for a coating fluid bed process. In: *Powder Technology* 130 (2003), S. 193–198
- [Hampel 2010] HAMPEL, R.: *Beitrag zur Analyse von kinetischen Einflüssen auf die Wirbelschicht-Sprühagglomeration*, Otto von Guericke Universität Magdeburg, Dissertation, 2010
- [Hede u. a. 2007] HEDE, P. D. ; BACH, P. ; JENSEN, A. D.: Small-scale top-spray fluidised bed coating: Granule impact strength, agglomeration tendency and coating layer morphology. In: *Powder Technology* 176 (2007), S. 156–167
- [Heine 2003] HEINE, B.: *Werkstoffprüfung: Ermittlung von Werkstoffeigenschaften*. Fachbuchverlag, 2003
- [Heinrich 2011] HEINRICH, S.: *Modellierung des Wärme- und Stoffübergangs sowie der Partikelpopulationen bei der Wirbelschicht-Sprühgranulation*, Otto von Guericke Universität Magdeburg, Dissertation, 2011
- [Heinrich u. a. 2002] HEINRICH, S. ; M.PEGLOW ; MÖRL, L.: Unsteady and steady-state particle size distributions in batch and continuous fluidized bed granulation systems. In: *Chemical Engineering Journal* 86 (2002), Nr. 1-2, S. 223–231

- [Heinrich u. a. 2003] HEINRICH, S. ; PEGLOW, M. ; IHLOW, M. ; MÖRL, L.: Particle population modeling in fluidized bed-spray granulation—analysis of the steady state and unsteady behavior. In: *Powder Technology* 130 (2003), Nr. 1-3, S. 154–161
- [Hoffmann u. a. 2011] HOFFMANN, T. ; PEGLOW, M. ; TSOTSAS, E.: Prozessdynamik der Wirbelschichtgranulierung. In: *Chemie-Ingenieur-Technik* 5 (2011), S. 658–664
- [Hounslow 1998] HOUNSLOW, M.J.: The population balance as a tool for understanding particle rate processes. In: *Kona* (1998), S. 179–193
- [Hunt und Brennan 1965] HUNT, C. H. ; BRENNAN, D.: Estimation of spout diameter in a spouted bed. In: *Australian Journal of Chemical Engineering* (1965)
- [Hygrotec 1998] HYGROTEC: *Feuchtemesstechnik – Klimatechnische Begriffe, Feuchtemessverfahren, Formeln und Konstanten*. 4. Auflage, Eigenverlag, 1998
- [Idakiev und Mörl 2013] IDAKIEV, V. ; MÖRL, L.: Study of residence time of disperse materials in continuously operating fluidized bed apparatus. In: *Journal of Chemical Technology and Metallurgy* 48 (5) (2013), S. 451–456
- [Ilda u. a. 2005] ILDA, K. ; TODO, H. ; OKAMOTO, H. ; DANJO, K. ; LEUENBERGER, H.: Preparation of Dry Powder Inhalation with Lactose Carrier Particles Surface-Coated Using a Wurster Fluidized Bed. In: *Chemical and Pharmaceutical Bulletin* 53(4) (2005), S. 431–434
- [Jacob 2010] JACOB, M.: *Experimentelle Untersuchungen sowie Beiträge zur Modellierung von Prozessen in Wirbelschichtströmen am Beispiel der Sprühgranulation*, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, Dissertation, 2010
- [Jimenez u. a. 2006] JIMENEZ, T. ; C.TURCHIULI ; DUMOULIN, E.: Particles agglomeration in a conical fluidized bed in relation with air temperature profiles. In: *Chemical Engineering Science* 61 (2006), Nr. 18, S. 5954–5961
- [Jones 1989] JONES, D.M.: *Pharmaceutical Pelletization Technology, Kapitel: Solution and suspension layering*. Bd. 149. Ghebre-Sellassie, I., Marcel Dekker, 1989
- [Kage u. a. 2003] KAGE, H. ; ABE, R. ; R.HATTANDA ; ZHOU, T. ; OGURA, H. ; MATSUNO, Y.: Effect of solid circulation rate on coating efficiency and agglomeration in circulating fluidized bed type coater. In: *Powder Technology* 130 (2003), S. 203–210
- [Karlsson u. a. 2006] KARLSSON, S. ; BJÖRN, I. N. ; FOLESTAD, S. ; RASMUSON, A.: Measurement of the particle movement in the fountain region of a Wurster type bed. In: *Powder Technology* 165 (2006), Nr. 1, S. 22–29

- [Krenkel 2009] KRENKEL, W.: Vwebundwerkstoffe. In: *17. Symposium Verbundwerkstoffe und Werkstoffverbunde* (2009)
- [Kumar 2006] KUMAR, J.: *Numerical approximations of population balance equations in particulate systems*, Otto von Guericke Universität Magdeburg, Dissertation, 2006
- [Kürten u. a. 1966] KÜRTEEN, H. ; RAASCH, J. ; RUMPF, H.: Beschleunigung eines kugelförmigen Feststoffteilchens im Strömungsfeld konstanter Geschwindigkeit. In: *Chemie-Ingenieur-Technik* 38 (1966), S. 941–948
- [Laicher und Fuchs 1998] LAICHER, A. ; FUCHS, W. S.: Die Pellet-Technologie. In: *Arzneimittel-Forschung* 48 (1998), Nr. 5a, S. 540–547
- [Landis und Keane 2010] LANDIS, E. N. ; KEANE, D. T.: X-ray microtomography. In: *Materials Characterization* 61, Nr. 12 (2010), S. 1305–1316
- [Li u. a. 2011] LI, J. ; FREIREICH, B. ; WASSGREN, C. ; LITSTER, J.: A general compartment-based population balance model for particle coating and layered granulation. In: *AIChE Journal* 58 (2011), S. 1397–1408
- [Link und Schlünder 1997] LINK, C. K. ; SCHLÜNDER, E.: Fluidized bed spray granulation: Investigation of the coating process on a single sphere. In: *Chemical Engineering and Processing* 36 (1997), Nr. 6, S. 443–457
- [Lynch und Rao 1965] LYNCH, A. J. ; RAO, T. C.: Digital computer simulation of comminution systems. In: *8. Commonwealth Mining and Metall Congress (Australia and New Zealand)* 6 (1965), S. 597–606
- [Maronga und Wnukowski 1997] MARONGA, S. ; WNUKOWSKI, P.: Modelling of the three-domain fluidized-bed particulate coating process. In: *Chemical Engineering Science* 52 (1997), Nr. 17, S. 2915–2925
- [Martin 1994] MARTIN, H.: *Wärmeübergang in Wirbelschichten, Kapitel Mf in VDI-Wärmeatlas*. VDI-Verlag, 1994. – Mf1–Mf8 S
- [McAllister u. a. 1958] MCALLISTER, R. A. ; MCGINNIS, P. H. ; PLANK, C. A.: Perforated plate performance. In: *Chemical Engineering Science* 9 (1958), S. 25–35
- [Merkus 2009] MERKUS, H. G.: *Particle size measurements*. Springer-Verlag, 2009. – 349–364 S
- [Metha u. a. 1985] METHA, A. M. ; VALAZZA, M. J. ; ABELE, S. E.: Evaluation of fluid bed processes for enteric coating systems. In: *Pharmaceutical Technology* 10 (1985), S. 23–46

- [Metropolis und Ulam 1949] METROPOLIS, N. ; ULAM, S.: The Monte Carlo Method. In: *Journal of the American Statistical Association* 44 (1949), S. 335–341
- [Molerus 1967] MOLERUS, O.: Stochastisches Modell der Gleichgewichtssichtung. In: *Chemie-Ingenieur-Technik* 39 (1967), S. 792–796
- [Molerus und Hoffmann 1969] MOLERUS, O. ; HOFFMANN, H.: Darstellung von Windsichtertrennkurven durch ein stochastisches Modell. In: *Chemie-Ingenieur-Technik* 41 (1969), S. 792–796
- [Moreno-Atanasio u. a. 2010] MORENO-ATANASIO, R. ; WILLIAMS, R. A. ; JIA, X.: Combining X-ray microtomography with computer simulation for analysis of granular and porous materials. In: *Particuology* 8, Nr. 2 (2010), S. 81–99
- [Mörl 1981] MÖRL, L.: *Anwendungsmöglichkeiten und Berechnung von Wirbelschichtgranulationstrocknungsanlagen*, Otto-von-Guericke Universität Magdeburg, Habilitation, 1981
- [Mort 2007] MORT, P.: *Granulation, Kapitel 19: Scale-up of high-shear binder-agglomeration processes*. Bd. 11. Salman, A.D., Hounslow, M.J., Seville, J.P.K., Elsevier Science, 2007. – 853–896 S
- [Musko u. a. 2000] MUSKO, Z. ; PINTYE-HODI, K. ; SZABO-REVESEZ, P. ; JR., P. K. ; EROES, I. ; DEAK, D.: Study of the influence of polymer coating films on drug release. In: *Hungarian Journal of Industrial Chemistry* 28 (2000), S. 111–115
- [Olsen 1989] OLSEN, K. W.: Batch fluid-bed processing equipment—a design overview: Part I. In: *Pharmaceutical Technology* 13 (1) (1989), S. 34–46
- [Palis 2012] PALIS, S.: *Control of fluidized bed spray granulation processes*, Otto von Guericke Universität Magdeburg, Dissertation, 2012
- [Palmer u. a. 2007] PALMER, S. ; INGRAM, A. ; FAN, X. ; FITZPATRICK, S. ; SEVILLE, J.: Investigation of the Sources of Variability in the Wurster Coater: Analyse of Particle Cycle Times using PEPT. In: *International Conference of Fluidization - New Horizons in Fluidization Engineering* RP4 (2007), S. Article 52
- [Peglow 2005] PEGLOW, M.: *Beitrag zur Modellbildung von eigenschaftsverteilten dispersen Systemen am Beispiel der Wirbelschicht-Sprühagglomeration*, Otto von Guericke Universität Magdeburg, Dissertation, 2005
- [Plitt 1971] PLITT, L. R.: The analysis of solid–solid separations in classifier. In: *CIM Bulletin* 708 (1971), Nr. 5- 6, S. 42–47

- [Poon u. a. 2009] POON, J. ; RAMACHANDRAN, R. ; SANDERS, C. F. ; GLASER, T. ; IMMANUEL, C. D. ; DOYLE, F. J. ; LITSTER, J. D. ; STEPANEK, F. ; WANG, F. Y. ; CAMERON, I. T.: Experimental validation studies on a multi-dimensional and multi-scale population balance model of batch granulation. In: *Chemical Engineering Science* 64 (2009), Nr. 4, S. 775–786
- [Priese 2014] PRIESE, F.: *Entwicklung von überzogenen Pellets mit funktionellen Schichten in der diskontinuierlichen Wirbelschichttechnik*, Otto von Guericke Universität Magdeburg, Dissertation, 2014
- [Priese und Wolf 2013] PRIESE, F. ; WOLF, B.: Development of high drug loaded pellets by design of experiment and population balance model calculation. In: *Powder Technology* 241 (2013), S. 149–157
- [Rajniak u. a. 2007] RAJNIAK, P. ; MANCINELLI, C. ; CHERN, R. T. ; STEPANEK, F. ; FARBER, L. ; HILL, B. T.: Experimental study of wet granulation in fluidized bed: Impact of the binder properties on the granule morphology. In: *International Journal of Pharmaceutics* 334 (2007), Nr. 1-2, S. 92–102
- [Rieck u. a. 2014] RIECK, C. ; HOFFMANN, T. ; BÜCK, A. ; PEGLOW, M. ; TSOTSAS, E.: Influence of drying conditions on layer porosity in fluidized bed spray granulation. In: *Powder Technology* 272 (2014), S. 120–131
- [Saleh u. a. 2003] SALEH, K. ; STEINMETZ, D. ; HEMATI, M.: Experimental study and modeling of fluidized bed coating and agglomeration. In: *Powder Technology* 130 (2003), S. 116–123
- [Salman u. a. 2007] SALMAN, A. D. ; REYNOLDS, G. K. ; TAN, H. S. ; GABBOTT, I. ; HOUNSLOW, M. J.: *Granulation Handbook, Kapitel 21: Breakage in Granulation*. Salman, A.D., Hounslow, M.J. und Seville, J.P.K., Elsevier, 2007. – 979–1040 S
- [Schlünder und Tsotsas 1988] SCHLÜNDER, E.-U. ; TSOTSAS, E.: *Wärmeübertragung in Festbetten, durchmischten Schüttgütern und Wirbelschichten*. Georg Thieme Verlag, 1988
- [Serwanis u. a. 1999] SERWANIS, F.S. ; SZABO-REVESZ, P. ; PINTYE-HODI, K. ; KASA, J.R.P. ; EROES, I.: Surface treatment of acetylsalicylic acid with water-soluble lubricants in a fluid bed coater by the Wurster method. In: *Hungarian Journal of Industrial Chemistry* 27 (1999), S. 197–201
- [Shelukar u. a. 2009] SHELUKAR, S. ; HO, J. ; ZEGA, J. ; ROLAND, E. ; YEH, N. ; QUIRAM, D. ; NOLE, A. ; KATDARE, A. ; REYNOLDS, S.: Identification and characterization of factors controlling tablet coating uniformity in a Wurster coating process. In: *Powder Technology* 110 (2009), Nr. 1-2, S. 29–36

- [Stiess 2009] STIESS, M.: *Mechanische Verfahrenstechnik -Partikeltechnologie I*. Springer-Verlag, 2009
- [Ström u. a. 2005] STRÖM, D. ; KARLSSON, S. ; FOLESTAD, S. ; B., I. N. ; LAURELL, T. ; NILSSON, J. ; RASMUSON, A.: A new device for coating single particles under controlled conditions. In: *Chemical Engineering Science* 60 (2005), Nr. 16, S. 4647–4653
- [Terrazas-Velarde 2010] TERRAZAS-VELARDE, K.: *Monte Carlo Simulation of Fluidized Bed Spray Agglomeration*, Otto von Guericke Universität Magdeburg, Dissertation, 2010
- [Terrazas-Velarde u. a. 2009] TERRAZAS-VELARDE, K. ; PEGLOW, M. ; TSOTSAS, E.: Stochastic simulation of agglomerate formation in fluidized bed spray drying: A micro-scale approach. In: *Chemical Engineering Science* 64 (2009), Nr. 11, S. 2631–2643
- [Teunou und Poncelet 2002] TEUNOU, E. ; PONCELET, D.: Batch and continuous fluid bed coating - review and state of the art. In: *Journal of Food Engineering* 53 (2002), Nr. 4, S. 325–340
- [Todes 1972] TODES, O. M.: Kinetik der Massenkristallisation (II) Dehydratation und Granulierung von Lösungen in der Wirbelschicht. In: *Kristall und Technik* (1972)
- [Tomas und Gröger 2000] TOMAS, J. ; GRÖGER, T.: Assessment of multistage turbulent cross-flow aeroseparation of building rubble. In: *Oral Session Proceedings of the XXI International Mineral Processing Congress*. Elsevier, 2000
- [Tsotsas 2011] TSOTSAS, E.: On the combination of particle formation and drying kinetics. In: *Proceedings of the 3rd European Drying Conference*, 2011
- [Tsotsas und Mujumdar 2009] TSOTSAS, E. ; MUJUMDAR, A. S.: *Modern drying technology, Vol. 2: Experimental Techniques*. Wiley-VCH, 2009
- [Tzika u. a. 2003] TZIKA, M. ; ALEXANDRIDOU, S. ; KIPARISSIDES, C.: Evaluation of the morphological and release characteristics of coated fertilizer granules produced in a Wurster fluidized bed. In: *Powder Technology* 132 (2003), Nr. 1, S. 16–24
- [Uhlemann 1990] UHLEMANN, H.: Kontinuierliche Sprühgranulation. In: *Chemie-Ingenieur-Technik* 10 (1990), S. 822–834
- [Uhlemann und Mörl 2000] UHLEMANN, H. ; MÖRL, L.: *Wirbelschicht- Sprühgranulation*. Springer Verlag, 2000
- [Vollrath und Krause 2011] VOLLRATH, K. ; KRAUSE, M.: *Easy Coating: Grundlagen und Trends beim Coating pharmazeutischer Produkte*. Vieweg und Teubner, 2011

- [Vormann 2008] VORMANN, S.: *Die Mikro-Computertomographie zur Evaluierung des fetoplazentaren Gefäßsystems bei Diabetes mellitus und intrauteriner Wachstumsretardierung*, Justus-Liebig-Universität Giessen, Dissertation, 2008
- [Wang und Cameron 2007] WANG, F.Y. ; CAMERON, I.T.: A multi-form modelling approach to the dynamics and control of drum granulation processes. In: *Powder Technology* 179 (2007), Nr. 1-2, S. 2–11
- [Wernecke 2003] WERNECKE, R.: *Industrielle Feuchtemessung*. Wiley-VCH, 2003
- [Werner u. a. 2007] WERNER, S. R. ; JONES, J. R. ; PATERSON, A. H. ; ARCHER, R. H. ; PEARCE, D. L.: Air-suspension particle coating in the food industry: Part I – state of the art. In: *Powder Technology* 171 (2007), Nr. 1, S. 25–33
- [Wildenschild und Sheppard 2013] WILDENSCHILD, D. ; SHEPPARD, A. P.: X-ray imaging and analysis techniques for quantifying pore-scale structure and processes in subsurface porous medium systems. In: *Advances in Water Resources* 51 (2013), S. 217–246
- [Winkler 1926] WINKLER, F.: Verfahren zur Herstellung von Wasserglas. In: *Patentschrift: DE 437*, 1926
- [Wurster 1990] WURSTER, D. E. ; M. DEKKER, New Y. (Hrsg.): *Particle-coating methods, Pharmaceutical dosage forms - Tablets*. Bd. 3. H. A. Liebermann and I. Lachman and J. B. Schwartz, 1990



# Studentische Arbeiten

## **Zahari Hussein**

Experimentelle Untersuchung von  
kontinuierlichem Wirbelschichtcoating  
Otto von Guericke Universität Magdeburg,  
Bachelorarbeit, 2011

## **Christian Rieck**

Modellierung des Partikelwachstums  
für den Prozess der Wirbelschichtsprühgranulation  
für unterschiedliche Prozessbedingungen  
Otto von Guericke Universität Magdeburg,  
Masterarbeit, 2013

## **Katharina Koslowsky**

Methoden zur Bestimmung der  
Schichtdickenverteilung von in  
Sprühwirbelschichten ummantelten Partikeln  
Otto von Guericke Universität Magdeburg,  
Masterarbeit, 2013



# Veröffentlichungen

## Internationale Fachzeitschriften

- Hampel, N.; Bück, A.; Peglow, M.; Tsotsas, E.: Continuous pellet coating in a Wurster fluidized bed process, *Chemical Engineering Science* 86, 2013, Nr. 1, S. 87-98

## Konferenz-Proceedings

- Hampel, N.; Bück, A.; Peglow M.; Tsotsas, E.: Continuous pellet coating in a Wurster fluidized bed, 18th International Drying Symposium, 11-15. November 2012, Xiamen, Fujian, China
- Hampel, N.; Bück, A.; Peglow M.; Tsotsas, E.: Continuous pellet coating in a Wurster fluidized bed, International Congress on Particle Technology, 23-25 April 2013, Nuremberg, Deutschland
- Hampel, N.; Bück, A.; Peglow M.; Tsotsas, E.: Product control in pharmaceutical coating, 5th International Conference on Population Balances, 11-13 September 2013, Bangalore, Indien

## Konferenzbeiträge ohne Proceedings

- Ivanova, N.; Bück, A.; Peglow M.; Tsotsas, E.: Kontinuierliches Pelletcoating für die Pharmaindustrie, DECHEMA/VDI-GVC Fachausschüsse Agglomerations- und Schüttguttechnik und Trocknungstechnik, 14-15 Februar 2011, Hamburg, Deutschland
- Ivanova, N.; Bück, A.; Peglow M.; Tsotsas, E.: Continuous pellet coating for the pharmaceutical industry, 5th Granulation Workshop, 20-22 Juni 2011, Lausanne, Schweiz
- Hampel, N.; Bück, A.; Peglow M.; Tsotsas, E.: Continuous pellet coating for the pharmaceutical industry, 8th European Congress of Chemical Engineering (ECCE-8), 25-29 September 2011, Berlin, Deutschland
- Hampel, N.; Bück, A.; Peglow M.; Tsotsas, E.: Kontinuierliches Pelletcoating für

die Pharmaindustrie, DECHEMA/VDI-GVC Fachausschüsse Agglomerations- und Schüttguttechnik und Kristallisation, 5-6 März 2012, Wittenberg, Deutschland

- Hampel, N.; Bück, A.; Peglow M.; Tsotsas, E.: Regelung der Produktqualität im pharmaceutischen Coating, DECHEMA/VDI-GVC Fachausschüsse Agglomerations- und Schüttguttechnik und Trocknungstechnik, 19-21 Februar 2014, Karlsruhe, Deutschland

# Lebenslauf

## Persönliche Angaben

Name Neli Atanasova Hampel  
(geb. Neli Atanasova Ivanova)

Geburtsdatum 25. November 1984

Geburtsort Plovdiv, Bulgarien

## Schulbildung

09/1991-06/1993 Grundschule "Vasil Levski,, in Stara Zagora, Bulgarien

09/1993-06/1997 Allgemeinbildende Schule "Kiril und Metodii,,  
in Stara Zagora, Bulgarien

09/1997-06/2003 Fremdsprachengymnasium "Romen Rolan,,  
in Stara Zagora, Bulgarien

## Studium

09/2003-11/2008 Deutschsprachiger Studiengang der Verfahrenstechnik an  
der Universität für Chemische Technologie und Metallurgie  
in Sofia, Bulgarien

## Berufliche Tätigkeit

03/2009-08/2009 Otto von Guericke Universität Magdeburg, Lehrstuhl Chemi-  
scher Apparatebau, DBU-Stipendiatin

08/2009-10/2012 Otto von Guericke Universität Magdeburg, Lehrstuhl Thermi-  
sche Verfahrenstechnik, Wissenschaftliche Mitarbeiterin im  
Projekt WIGRATEC

seit 12/2013 Otto von Guericke Universität Magdeburg, Lehrstuhl Thermi-  
sche Verfahrenstechnik, Wissenschaftliche Mitarbeiterin im  
Projekt WIGRATEC+