

**Charakteristika der „effervescent atomization“
rheologisch komplexer und mehrphasiger Flüssigkeiten**

zur Erlangung des akademischen Grades eines
DOKTORS DER INGENIEURWISSENSCHAFTEN (Dr.-Ing.)

der Fakultät für Chemieingenieurwesen und Verfahrenstechnik des
Karlsruher Instituts für Technologie (KIT)

genehmigte
DISSERTATION

von
Dipl.-Ing. Jewe Schröder
aus Heidelberg

Referentin: Prof. Dr.-Ing. Heike P. Schuchmann
Korreferent: Prof. Dr.-Ing. Matthias Kind
Tag der mündlichen Prüfung: 21.09.2012

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek

Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

ISBN 978-3-8439-0699-9

© Verlag Dr. Hut, München 2012
Sternstr. 18, 80538 München
Tel.: 089/66060798
www.dr.hut-verlag.de

Die Informationen in diesem Buch wurden mit großer Sorgfalt erarbeitet. Dennoch können Fehler nicht vollständig ausgeschlossen werden. Verlag, Autoren und ggf. Übersetzer übernehmen keine juristische Verantwortung oder irgendeine Haftung für eventuell verbliebene fehlerhafte Angaben und deren Folgen.

Alle Rechte, auch die des auszugsweisen Nachdrucks, der Vervielfältigung und Verbreitung in besonderen Verfahren wie fotomechanischer Nachdruck, Fotokopie, Mikrokopie, elektronische Datenaufzeichnung einschließlich Speicherung und Übertragung auf weitere Datenträger sowie Übersetzung in andere Sprachen, behält sich der Autor vor.

1. Auflage 2012

Danksagung

Der Lebensmittelverfahrenstechnik in Karlsruhe war ich knapp zehn Jahre als studentische Hilfskraft, Student und zuletzt als Doktorand verbunden. Da sich die Lebensmittelverfahrenstechnik in Karlsruhe durch ihre fachliche und menschliche Vielseitigkeit auszeichnet, stellten sich mir immer aufs Neue abwechslungsreiche und interessante Aufgaben. Daher bedanke ich mich bei all denen, die mir die Lebensmittelverfahrenstechnik in diesen Jahren als Fachgebiet aber auch menschlich als Institut nahe gebracht haben.

Frau Prof. Heike P. Schuchmann vertraute mir zu Beginn meiner Promotion die Aufgabe an, nach einer Unterbrechung von über 20 Jahren die Sprühtrocknung an der Lebensmittelverfahrenstechnik in Karlsruhe als Forschungsbereich wieder zu etablieren. Dabei hat sie mir Freiraum gelassen, was mir erlaubt hat vieles auszuprobieren und kennenzulernen, was mir in meiner weiteren Arbeit geholfen hat. Mit meinen Ideen fand ich meist ein offenes, aber auch immer kritisches Ohr und daraus entstand das eigentliche Projekt und Thema meiner Dissertation. Für die damit geschaffenen Rahmenbedingungen und Unterstützung für meine Arbeit bedanke ich mich herzlich.

Herrn Prof. Matthias Kind danke ich für die Übernahme des Korreferats und die Anregungen zu meiner Arbeit.

I thank Prof. Paul E. Sojka for the inspiration, support, cooperation and reassurance for this work on the effervescent atomization.

Herrn Dr. Volker Gaukel übernahm im Laufe meiner Promotion sehr engagiert die Leitung der Gruppe „Thermophysikalische Verarbeitungsprozesse“. So war er trotz seiner vielfältigen weiteren Aufgaben immer für eine rege, aber auch kritische Diskussion meiner Vorhaben und Ergebnisse da, wofür ich mich sehr herzlich bei ihm bedanke.

Ohne die Mitarbeiter und das Umfeld der Karlsruher Lebensmittelverfahrenstechnik wäre es nicht möglich gewesen, diese Arbeit durchzuführen. Ich bedanke mich für alle kleinen und großen Beiträge im technischen und administrativen Bereich unter anderem bei Tanja Baumgärtner, Annette Berndt, Renate Genzer, Matthias Himberg, Holger Hube, Jürgen Kraft, Klaudia Merkle, Silvia Rösner, Lydia Schütz, Erika Sonnenburg, Heinrich Steigleder und Nina Weis sowie für die rege Diskussion bei allen wissenschaftlichen Mitarbeitern – insbesondere bei Richard Bernewitz, Azad Emin,

Mario Hirth, Karsten Köhler, Stefan Kraus, Matthias Rother, Marc Schlender, Philipp Stähle und Frederik Wolf. Ganz besonders danke ich Andrea Butterbrodt, die zusammen mit mir die Sprühtrocknung wieder und die Zerstäubung neu an der Lebensmittelverfahrenstechnik in Karlsruhe aufgebaut hat. Ohne ihre engagierte Mitarbeit wäre diese Dissertation nicht in dieser Form entstanden.

Über die Jahre habe ich mit vielen Studenten zusammengearbeitet und dabei vieles gelernt, was in meine Arbeit und diese daraus resultierende Dissertation eingeflossen ist. Dank gilt hier vor allem den Studienarbeitern, Diplomanden/innen, studentischen Hilfskräften und Praktikantinnen, die mit ihrer Arbeit direkt zu dieser Dissertation beigetragen haben: Rebecca Preiß, Bruna Bertolla Rocha, Stefan Kraus, Marc Schlender, Tainara Rodriguez Santamaria, Daniela Kadau, Marie-Luise Lederer, Fabian Werner, Svenja Beck, Philipp Büser und Agnes Kleinhans.

Eine sehr zentrale Rolle in den letzten drei Jahren meiner Arbeit hat das DFG Schwerpunktprogramm 1423 „Prozess-Spray“ gespielt. Ohne die Förderung der DFG wäre das Projekt, die „effervescent atomization“ in der Sprühtrocknung einzusetzen, nicht in dieser Tiefe untersucht worden. Neben dem rein finanziellen Aspekt hat aber auch die Gemeinschaft, die sich um das Schwerpunktprogramm gebildet hat, durch die zahlreichen Diskussionen, Anregungen und Kooperationen entscheidend zu meiner Arbeit direkt oder indirekt beigetragen. Auf unterschiedliche Art haben vor allem Prof. Stefan Drusch, Astrid Günther, Axel Mescher, Britta Schlinge, Dr. Yvonne Serfert, Magnus Tewes, Prof. Peter Walzel sowie die Firma BASF SE vertreten durch Dr. Christian Eichholz, Dr. Michael Schönherr und Dr. Robert Wengeler beigetragen. Für all diese Unterstützung bedanke ich mich herzlich.

Weiterhin danke ich Dr. Daniel Guildenbecher, Dr. Bernhard Hochstein, Anne Kowalczyk und Prof. Helmar Schubert für die Unterstützung und die Diskussion verschiedener Aspekte meiner Arbeit.

Abschließend danke ich sehr herzlich Barbara Freudig, Volker Gaukel, Jacqueline Klimesch und Leonie Sautter für das Korrekturlesen und die Diskussion der vorliegenden Arbeit.

Karlsruhe, September 2012

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	i
Formelzeichen und Abkürzungen	iv
1 Einleitung	1
2 Stand des Wissens	3
2.1 Grundlagen der Zerstäubung	3
2.1.1 Tropfenbildungsmechanismen	3
2.1.2 Zerstäuberformen	8
2.2 „effervescent atomization“	9
2.2.1 Sprayunstetigkeit bei der „effervescent atomization“	14
2.2.2 Einflussgrößen bei der „effervescent atomization“	15
2.2.3 „effervescent atomization“ von Polymerlösungen	18
2.2.4 Räumliche Abhängigkeit der Tropfengrößenverteilung	20
2.2.5 Modellierung der Spraytropfengröße	22
2.3 Zerstäubungseffizienz	26
2.4 Grundlagen des Tropfenabruchs in Emulsionen	28
2.5 Zerstäubung von Emulsionen	31
3 Zielsetzung	33
4 Materialien und Methoden	35
4.1 Verwendete Stoffsysteme	35
4.1.1 Polyvinylpyrrolidon	35
4.1.2 Öl-in-Wasser-Modellemulsion	35
4.2 Materialcharakterisierung	36
4.2.1 Rheologische Eigenschaften	36
4.2.2 Grenz- und Oberflächenspannungen	38
4.2.3 Öltropfengrößenverteilung	41
4.3 Zerstäuber	41

4.4	Sprühtrocknung.....	44
4.5	Spraycharakterisierung.....	45
4.5.1	Versuchsstand und -durchführung.....	45
4.5.2	Laserbeugungsspektrometrie.....	47
4.5.3	Lokale Spraytropfengrößenverteilung – Abel Inversion	54
4.5.4	Schattenaufnahmen.....	58
4.5.5	Bestimmung der Sprayunstetigkeit	59
4.6	Partikelcharakterisierung	61
5	Materialcharakterisierung	63
5.1	Polyvinylpyrrolidonlösungen	63
5.2	Öl-in-Wasser-Modellemulsion.....	70
5.3	Scherrheologischer Vergleich der ein- und mehrphasigen Stoffsysteme.....	73
6	Spraymorphologie	75
6.1	Spraywinkel	75
6.2	Flüssigkeitsaufbruch	76
6.3	Tropfengrößenverteilung im Spray.....	84
6.3.1	Einfluss der Stoffeigenschaften.....	84
6.3.2	Einfluss der Düsengeometrie	90
6.3.3	Lokale Tropfengrößenverteilung im Spray	95
6.3.4	Vergleich der Zerstäuberformen	97
6.4	Sprayunstetigkeit	98
6.4.1	Vergleich der Mess- und Auswertemethoden	98
6.4.2	Einfluss von Stoff- und Prozessparametern.....	101
6.5	Auswirkung der Sprayunstetigkeit auf die Tropfengrößenverteilung	105
6.6	Modellierung resultierender Tropfengrößen.....	107
6.6.1	Modell von Lund.....	107
6.6.2	Erweiterung des Modells von Lund.....	109

6.7	Effizienz der Zerstäubung	119
7	Flüssigkeitsbeanspruchung	123
7.1	Einfluss des Viskositätsverhältnisses auf den Öltropfenaufbruch	124
7.2	Einfluss der Düsenform auf den Öltropfenaufbruch	127
7.3	Vergleich mit pneumatischer Zerstäubung.....	129
7.4	Diskussion	129
8	Applikation in der Sprühtrocknung.....	131
9	Zusammenfassung und Ausblick.....	137
	Summary	I
	Literaturverzeichnis	V
	Anhang 1: Zerstäuber.....	XII
	Anhang 2: Laserbeugungsspektrometrie.....	XV
	Anhang 3: Materialcharakterisierung	XIX
	Anhang 4: Spraymorphologie	XXI
	Anhang 5: Tropfengrößenmessung	XXVIII
	Anhang 6: Pulsationsbestimmung	XXX
	Anhang 7: Auswirkung der Unstetigkeit.....	XXXV
	Anhang 8: Modellierung.....	XXXVIII
	Anhang 9: Effizienz der Zerstäubung	XLII
	Anhang 10: Flüssigbeanspruchung	XLIII
	Anhang 11: Druckberechnung.....	XLV
	Anhang 12: Applikation.....	XLVII

Formelzeichen und Abkürzungen

<i>A</i>	Fläche / mm ²
<i>A</i>	Amplitude / (abhängig von Bezugsgröße)
<i>A_v</i>	Streuquerschnitt / 1/m
<i>ALR</i>	Air-to-Liquid Ratio by mass (dt.: Luft-Flüssigkeit-Verhältnis bez. auf Masse) / -
<i>c</i>	Konzentration / %
<i>c_v</i>	Volumenkonzentration / -
<i>Ca</i>	Kapillarzahl / -
<i>d</i>	Durchmesser / mm
<i>e</i>	Effizienzkoeffizient / -
<i>E</i>	Extinktion / -
<i>f_P</i>	Pulsationsfrequenz / Hz
FFT	fast Fourier transformation (dt.: schnelle Fourier-Transformation)
<i>g</i>	Erdbeschleunigung / 9,81 m/s ²
<i>G</i>	Gasmassenstromflux / kg/(cm ² ·h)
<i>H</i>	Formfaktor / -
<i>I</i>	Intensität / W/m ²
<i>l</i>	Länge / mm
LBS	Laserbeugungsspektrometrie
<i>ṁ</i>	Massenstrom / kg/h
<i>M_w</i>	molekulare Masse / Da
MD	Maltodextrin
<i>Oh</i>	Ohnesorge-Zahl / -
<i>p</i>	Druck / bar
<i>P</i>	Leistung / W
PEO	Polyethylenoxid
PVP	Polyvinylpyrrolidon
<i>R</i>	spezifische Gaskonstante / -
<i>Re</i>	Reynolds-Zahl / -
<i>q₂</i>	oberflächenspezifische Verteilungsdichte / μm ⁻¹
<i>q₃</i>	volumenspezifische Verteilungsdichte / μm ⁻¹
<i>Q₃</i>	volumenspezifische Verteilungssumme / -
<i>s</i>	Schichtdicke / mm

s_2	Standardabweichung der oberflächenspezifischen Verteilungssumme / μm
sr	Slip Ratio (dt.: Schlupfverhältnis) / -
t	Zeit / s
T	Transmission / -
v	Geschwindigkeit / m/s
\dot{V}	Volumenstrom / l/h
x	Tropfengröße / μm
x	Massenverhältnis (gas/flüssig) / -
$x_{50,3}$	volumenspezifischer Mediandurchmesser / μm
$x_{10,3}$	Tropfengröße bei 10 % der volumenspezifischen Verteilungssumme / μm
$x_{90,3}$	Tropfengröße bei 90 % der volumenspezifischen Verteilungssumme / μm
$x_{1,2}$	Sauterdurchmesser / μm
x_{max}	maximale Tropfengröße / μm
W	Arbeit / J
α	Gasanteil / -
α	Parameter zu Charakterisierung der Strömungsform / -
γ	Grenzflächenspannung (flüssig/flüssig) / mN/m
γ	Deformation bei oszillatorischen rheologischen Messungen / %
$\dot{\gamma}$	Scherrate / 1/s
$\dot{\epsilon}$	Dehnrate / 1/s
ζ	Dichtefaktor / -
η	dynamische Viskosität / mPa·s
θ	Kontaktwinkel / °
λ	Viskositätsverhältnis / -
μ	Flüssigkeit-Gas-Massenverhältnis / -
\bar{E}	normalisierte Konzentration / -
ρ	Dichte / g/cm ³
σ	Oberflächenspannung (flüssig/gas) / mN/m
τ	Schubspannung / Pa
τ	halbe Periode / s
χ	normalisierter Mediandurchmesser / -
Ψ	Stoffeigenschaftsfaktor / -

Index

0	Ursprungs-/Umgebungswert
1	Äquatorialdurchmesser / mm
2	Durchmesser in Höhe d_1 oberhalb des Tropfenendes / mm
a	außen
c	Kapillar
d	disperse Phase
de	Dehnung
def	Deformation
D	Düsenkanal
e	Emulsion
exp.	experimentell
f	Flüssigkeit
F	Filament
g	Gas
i	innen
I	Injektion
k	kontinuierliche Phase
K	Kern
L	Ligament
M	Mischkammer
mod.	berechnet nach Modellierung
rel	relativ
sch	Schattenaufnahmen
σ	Oberfläche

Exponent

' mit korrespondierender Größe von Wasser bzw. Luft normierte Größe bei Standardbedingungen

1 Einleitung

Die industrielle Sprühtrocknung ist ein in der chemischen oder Lebensmittelindustrie weit verbreitetes Verfahren zur Herstellung von pulverförmigen Produkten, welches eine Vielzahl an Möglichkeiten zur Kontrolle der Partikeleigenschaften bietet [1(1-2)]. Dabei ist neben der eigentlichen Trocknung die Zerstäubung der Flüssigkeit der zentrale Prozessschritt. Hierzu kommen zumeist Zentrifugal-, Druck- oder pneumatische Zerstäuber zum Einsatz, wobei der Betrieb von pneumatischen Zerstäubern bei hohen Durchsätzen im industriellen Maßstab aufgrund des benötigten Zerstäubungsgasmassenstroms kostenintensiv ist. Daher werden diese nur in speziellen Fällen eingesetzt, wenn andere Zerstäuberformen beispielsweise aufgrund hoher Viskosität der Flüssigkeit nicht in der Lage sind die benötigte Tropfengröße zu erzielen. Pneumatische Zerstäuber sind gut für hochviskose und polymerhaltige Flüssigkeiten geeignet [1(41-8)].

Bei der Zerstäuberwahl ist auch zu beachten, ob eine enge oder breite Verteilung der Tropfengrößen erforderlich ist. Zumeist ist es unerwünscht, eine breite Verteilung zu haben, da dabei feine Tropfen eine zu hohe thermische Belastung erfahren und große Tropfen nur unvollständig trocknen. Dies kann zum Beispiel bei Lebensmitteln negative Effekte auf die Erhaltung von Inhaltsstoffen oder die Lagerstabilität haben [2(141-57)].

Die „effervescent atomization“ ist eine spezielle Form der pneumatischen Zerstäubung, bei der bereits vor dem Austritt aus dem Zerstäuber eine Zweiphasenströmung in einer Mischkammer vorliegt, die die Zerstäubung positiv beeinflusst. Die „effervescent atomization“ zeichnet sich bei einfacher, wartungsarmer Bauweise durch einen vergleichsweise geringen Zerstäubungsgasmassenstrom und -druck und eine große Austrittsöffnung aus. Letztere ist vorteilhaft um Verstopfungsprobleme zu vermeiden [3]. Neben einer Vielzahl von grundlegenden Untersuchungen gibt es diverse Arbeiten mit dem Ziel, die „effervescent atomization“ in der Verbrennungstechnik [4,5] oder zur Einbringung von Klebe- oder Verkapselungsmaterial [6,7] einzusetzen.

Nach Kenntnis des Autors gibt es bisher keine Arbeiten zum Einsatz der „effervescent atomization“ in der Sprühtrocknung. Die bisher berichteten Charakteristika versprechen aber eine gute Eignung, da sie für schwierig, sonst nur kostenintensiv mit herkömmlichen pneumatischen Zerstäubern handhabbare Flüssigkeiten vorteilhaft sind. Bei der Sprühtrocknung von Lebensmitteln sind viele Flüssigkeiten polymerhal-

tige Systeme wie beispielsweise Kohlenhydratlösungen, die mit steigendem Trockensubstanzgehalt ein rheologisch komplexes Verhalten – hohe Viskosität, elastisches Verhalten – aufweisen können. Da es sich zumeist um natürliche Grundstoffe handelt, ist je nach Zusammensetzung von einer Schwankung der Stoffeigenschaften – unter anderem der Viskosität – auszugehen [8]. Viele Lebensmittelflüssigkeiten liegen als mehrphasige Systeme wie zum Beispiel Emulsionen vor, in denen in einer flüssigen Phase eine oder mehrere weitere flüssige Phasen dispergiert sind. Je nach Zielsetzung – Erhalt oder gezielte Beeinflussung der inneren Struktur – ist eine Veränderung dieses mehrphasigen Systems durch Belastungen bei der Zerstäubung erwünscht oder nicht. Eine kostengünstige Erhöhung der bei der Zerstäubung handhabbaren Viskosität ist eine Randbedingung um die Kapazität vorhandener Sprühtrockner ohne kostenintensive Veränderung an der bestehenden Anlage durch höheren Trockensubstanzgehalt der Flüssigkeitszufuhr zu steigern.

Für den Einsatz der „effervescent atomization“ in der Sprühtrocknung von den beschriebenen rheologisch komplexen einphasigen und mehrphasigen Flüssigkeiten ist es entscheidend, Kenntnis über die Auswirkung der Stoff- und Prozessparameter auf das resultierende Spray und die Beanspruchung der Flüssigkeiten selbst zu haben. Dies ist das zentrale Ziel dieser Arbeit. Darüber hinaus soll die grundsätzliche Anwendbarkeit der „effervescent atomization“ in der Sprühtrocknung gezeigt werden.

Die aus dieser Motivation und dem Stand des Wissens folgende, konkrete Zielsetzung für die vorliegende Arbeit wird in Kapitel 3 ausgeführt.

2 Stand des Wissens

2.1 Grundlagen der Zerstäubung

2.1.1 Tropfenbildungsmechanismen

Nach Lefebvre [9(1)] ist Zerstäubung der Vorgang der Zerteilung einer zusammenhängenden Masse Flüssigkeit in Einzeltropfen. Dieser Vorgang arbeitet gegen die zusammenhaltende Wirkung der Oberflächenspannung, die die Flüssigkeit bei Abwesenheit angreifender Kräfte in Kugelform bringt – den Zustand minimaler Oberflächenenergie. Die Flüssigkeitsviskosität dämpft die Wirkung der angreifenden aerodynamischen Kräfte, wobei der dämpfende Effekt mit steigender Viskosität stärker wird. Ein Aufbruch der zusammenhängenden Masse tritt ein, sobald die angreifenden Kräfte größer als die zusammenhaltenden Kräfte sind.

Der Aufbruch von Flüssigkeit kann in zwei Teilvorgänge unterteilt werden: Primärer Aufbruch beispielsweise eines Strahls und sekundärer Aufbruch eines Tropfens [9(37)]. Im einfachen Fall eines aus einer Blende austretenden Flüssigkeitsstrahls in ruhende Umgebung kann der primäre Aufbruch in fünf unterschiedliche Formen der Tropfenbildung eingeteilt werden, die sich durch die ansteigende Austrittsgeschwindigkeit der Flüssigkeit aus der Blende unterscheiden [9(44-5),10(31-7)]:

- Abtropfen – der Austritt wird alleine durch die Erdbeschleunigung und die resultierende Gewichtskraft bewirkt, dem die Oberflächenspannung der Flüssigkeit am Austritt entgegenwirkt. Der Zerfall erfolgt direkt an der Blende. Die resultierende Tropfengröße ist in Bezug auf den Blendendurchmesser verhältnismäßig groß.
- Rayleigh Zerfall (auch als Zertropfen bezeichnet) erfolgt aufgrund des Wachstums asymmetrischer Schwingungen an der Oberfläche, die durch die Oberflächenspannung verursacht werden. Der Zerfall tritt erst in einer Entfernung von vielen Strahldurchmessern vom Strahlaustritt auf. Die resultierenden Tropfen sind größer als der Strahldurchmesser.
- Erster windinduzierter Zerfall erfolgt aufgrund Verstärkung des Oberflächenspannungseffekts durch Bildung einer Verteilung des statischen Drucks an der Oberfläche, die durch Relativgeschwindigkeit von Flüssigkeit und Gas verursacht wird. Der Zerfall tritt erst in einer Entfernung von vielen Strahldurchmes-

sen vom Strahlaustritt auf. Die resultierenden Tropfen sind etwa so groß wie der Strahldurchmesser.

- Zweiter windinduzierter Zerfall erfolgt aufgrund instabilen Wachstums kurzwelliger Schwingungen an der Oberfläche, die durch die Relativgeschwindigkeit von Flüssigkeit und Gas verursacht wird. Die Oberflächenspannung wirkt diesem Effekt entgegen. Der Zerfall tritt erst in einer Entfernung von vielen Strahldurchmessern vom Strahlaustritt auf. Die resultierenden, mittleren Tropfengrößen sind kleiner als der Strahldurchmesser.
- Zerstäubung – direkt beim Austritt erfolgt der vollständige Zerfall des Strahls. Die resultierenden, mittleren Tropfengrößen sind viel kleiner als der Strahldurchmesser.

Vereinfachend werden erster und zweiter windinduzierter Zerfall auch unter der Bezeichnung Zerwellen zusammengefasst. Die durch die Austrittsgeschwindigkeit bestimmte Relativgeschwindigkeit zwischen Flüssigkeit und umgebendem Gas steigt von Rayleigh-Zerfall über die windinduzierten Zerfallsformen zur Zerstäubung hin. Diese vier Formen der Tropfenbildung werden als Strahlzerfall bezeichnet. Die unterschiedlichen Formen des Strahlzerfalls sind in Abbildung 2.1 schematisch dargestellt.

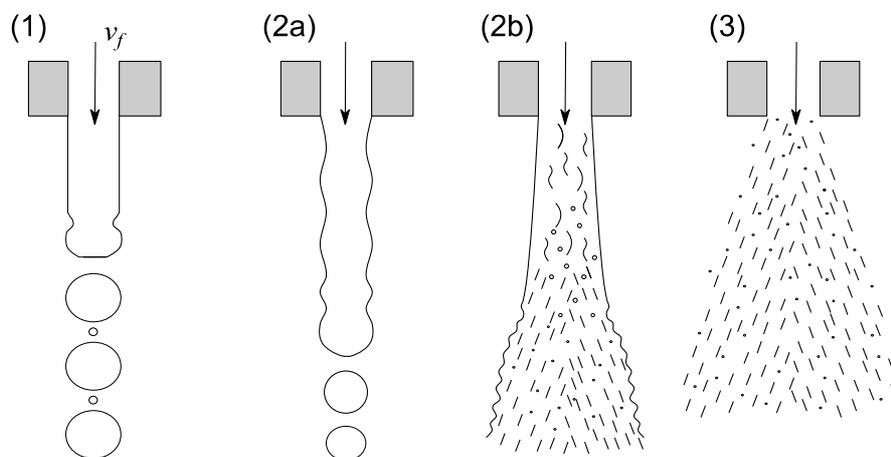


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der unterschiedlichen Formen des Strahlzerfalls [nach 10(36)]. Rayleigh-Zerfall (1), Erster windinduzierter Zerfall (2a), Zweiter windinduzierter Zerfall (2b), Zerstäubung (3).

Rayleigh [11] hat in einer der ersten theoretischen Arbeiten die Bedingungen beschrieben, die vorliegen müssen, damit ein Flüssigkeitsstrahl bei geringer Relativgeschwindigkeit aufbricht. Weber [12] hat dies um den Einfluss der rheologischen Eigenschaften der Flüssigkeit erweitert. Die hier gezeigte Einordnung dieser vier Zerfallsformen hat Reitz basierend auf der Arbeit von Ohnesorge [13] beschrieben [9(44-

5)]. Ohnesorge hat den Einfluss der Oberflächenspannung auf die Zerfallsformen beschrieben. Die Ohnesorge-Zahl Oh wurde von Ohnesorge als Z mit der Flüssigkeitsviskosität η_f , der Flüssigkeitsdichte ρ_f , der Oberflächenspannung σ und dem Düsen- bzw. Strahldurchmesser d_D eingeführt – siehe Gleichung 2.1. Sie beschreibt dabei den Zusammenhang zwischen den Zähigkeitskräften und den Oberflächenkräften [13].

$$Oh = \frac{\eta_f}{\sqrt{\rho_f \cdot \sigma \cdot d_D}} \quad (2.1)$$

Der Einfluss der Relativgeschwindigkeit zwischen Flüssigkeit und umgebendem Gas wird durch die Flüssigkeits-Reynolds-Zahl Re_f berücksichtigt – siehe Gleichung 2.2 mit der Geschwindigkeit v_f . Unter Annahme einer ruhenden Umgebung entspricht die Geschwindigkeit der Flüssigkeit der Relativgeschwindigkeit. Die Reynolds-Zahl beschreibt den Zusammenhang von Trägheitskräften und Zähigkeitskräften.

$$Re_f = \frac{\rho_f \cdot v_f \cdot d_D}{\eta_f} \quad (2.2)$$

In Abbildung 2.2 ist die Einordnung der Formen des Strahlzerfalls nach Reitz [9(45)] in Abhängigkeit von Reynolds-Zahl und Ohnesorge-Zahl dargestellt. Durch steigende Relativgeschwindigkeit wechselt mit steigender Reynolds-Zahl der Zerfall von Rayleigh-Zerfall über die windinduzierten Zerfallsformen zur Zerstäubung bei unveränderter Ohnesorge-Zahl. Ebenso kann durch Veränderung der Oberflächenspannung und damit der Ohnesorge-Zahl bei konstanten Reynolds-Zahl ein Wechsel über alle vier Zerfallsformen hinweg beobachtet werden.

Neben der Relativgeschwindigkeit spielt auch die Strömungsform bzw. das Geschwindigkeitsprofil innerhalb des Flüssigkeitsstrahls eine Rolle. Während bei einem laminar ausströmenden Strahl erst mit einigem Abstand zum Austritt aufgrund von Reibung und Oberflächenspannung ein Aufbruch beobachtet wurde, wurde für einen turbulent ausströmenden Strahl auch bei geringen Relativgeschwindigkeiten bereits nahe am Austritt ein Aufbruch beobachtet, der alleine auf die Turbulenz zurückzuführen ist [9(45-7)].

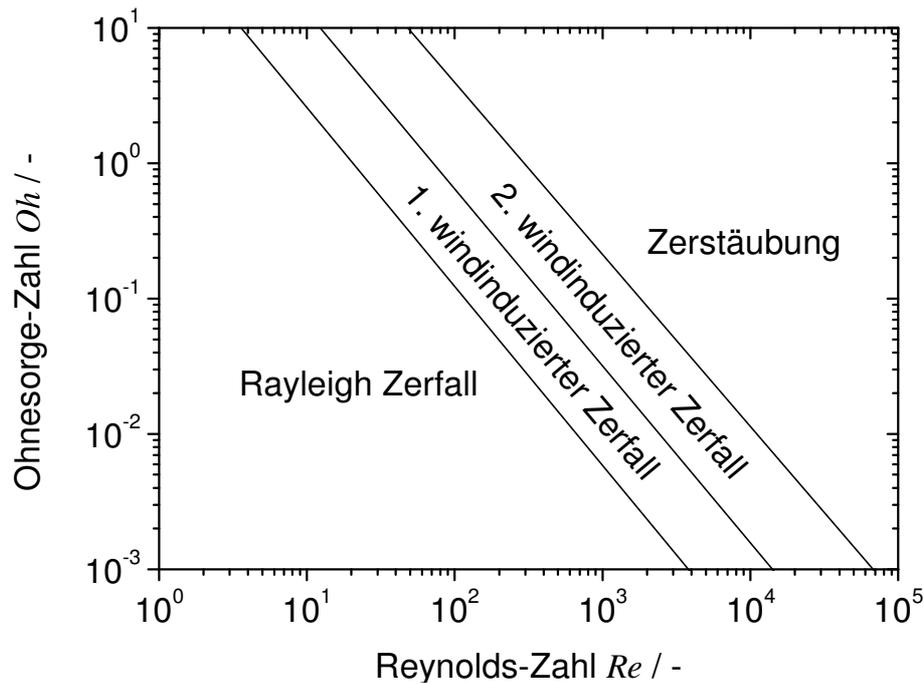


Abbildung 2.2: Einordnung der Formen des Strahlzerfalls durch Reitz in Abhängigkeit von Reynolds- und Ohnesorge-Zahl nach Lefebvre [9(45)].

Als sekundärer Aufbruch wird der Vorgang bezeichnet, bei dem ein sphärischer Tropfen mit einer Relativgeschwindigkeit zu einer Gasströmung vorliegt und durch die angreifenden aerodynamischen Kräfte nicht nur deformiert, sondern weiter aufgebrochen wird [14]. Unterschiedliche Zerfallsformen wurden dabei beobachtet: Schwingungszерfall, Taschenzerfall, Taschen- und Stamenzerfall, Lamellenzerfall und katastrophaler Zerfall sowie unterschiedliche Übergangsformen [14]. Die Abhängigkeit der Deformations- bzw. Zerfallsformen von den Eigenschaften des Tropfen und den Prozessbedingungen lässt sich durch die Ohnesorge-Zahl und die Gas-Weber-Zahl We_g beschreiben – siehe Gleichung 2.3 mit Dichte des Gases ρ_g , der Relativgeschwindigkeit v_{rel} und der Tropfengröße x [15]. Die Ohnesorge-Zahl ist in diesem Fall anstatt auf den Strahldurchmesser ebenfalls auf die Tropfengröße als charakteristische Länge bezogen.

$$We_g = \frac{\rho_g \cdot v_{rel}^2 \cdot x}{\sigma} \quad (2.3)$$

In Abbildung 2.3 ist die Abhängigkeit der Deformations- und Zerfallsformen von Ohnesorge-Zahl und Gas-Weber-Zahl auf Basis von experimentellen Daten von Hsiang und Faeth [15] dargestellt. Hierbei haben die Autoren wie in den meisten bekannten Forschungsarbeiten – u. a. zusammengefasst von Guildenbecher et al. [14] – Trop-

fen betrachtet, die entweder durch einen Druckstoß oder Eintritt in eine kontinuierliche Strömung beschleunigt werden. Dies entspricht zumeist nicht dem Vorgang im Spray, wird aber üblicherweise dennoch darauf übertragen. Bei konstanten Eigenschaften des Tropfens (konstanter Ohnesorge-Zahl) kann mit steigender Relativgeschwindigkeit (steigende Weber-Zahl) zunächst die Deformation und dann der Zerfall des Tropfens in der genannten Reihenfolge beobachtet werden. Bei niedrigen Ohnesorge-Zahlen wird kein Einfluss der Stoffeigenschaften des Tropfens beobachtet, bei höheren Ohnesorge-Zahl zeigt sich dahingegen eine Abhängigkeit. Der Übergang liegt im Bereich der Ohnesorge-Zahl von 0,05 bis 0,5. Oberhalb dieses Übergangs treten die Deformations- und Zerfallsformen mit steigender Ohnesorge-Zahl bei größeren Gas-Weber-Zahlen auf. D. h. bei konstanter Tropfengröße und Gasdichte tritt erst bei höherer äußerer Beanspruchung sekundärer Aufbruch auf.

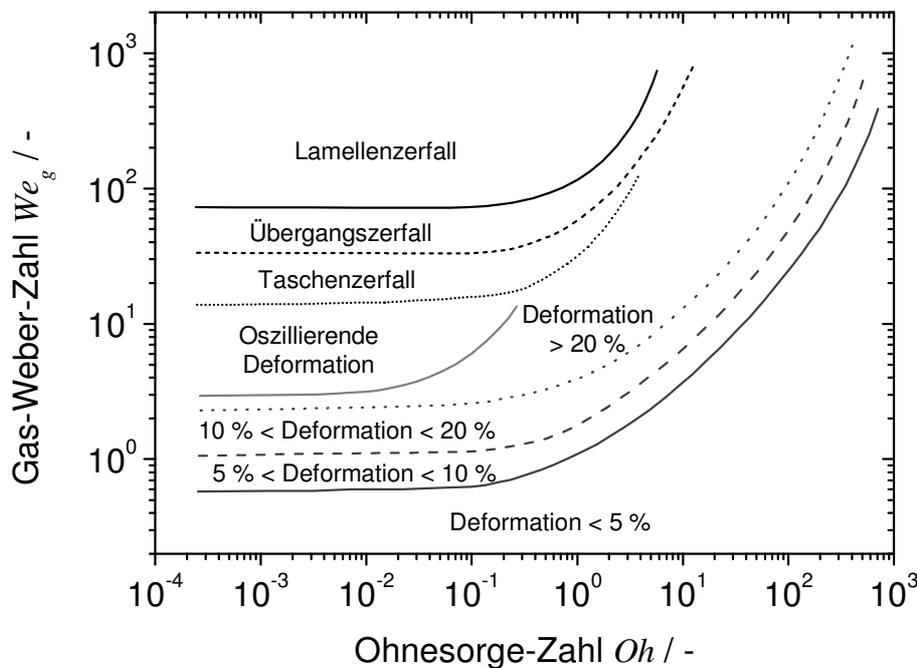


Abbildung 2.3: Abhängigkeit der Deformations- und Zerfallsformen von Ohnesorge-Zahl Oh und Gas-Weber-Zahl We_g nach Hsiang und Feath [15].

Es kann also zusammengefasst werden, dass bei konstantem Strahl- oder Tropfendurchmesser die Stoffgrößen Viskosität, Oberflächenspannung sowie Dichte von beiden Phasen und die Prozessgröße Relativgeschwindigkeit zwischen Flüssigkeit und Gas entscheidend für den Zerstäubungsvorgang sind.

2.1.2 Zerstäuberformen

Für die Zerstäubung von Flüssigkeiten gibt es eine Vielzahl von Zerstäuberformen, die sich hinsichtlich der Einbringung der benötigten Energie unterscheiden [10(58)]:

- Druckzerstäuber (auch als Einstoffdüsen bezeichnet)
- Pneumatische Zerstäuber (auch als Zwei- oder Mehrstoffdüsen bezeichnet)
- Rotations- oder Zentrifugalzerstäuber
- Ultraschallzerstäuber
- Elektrostatische Zerstäuber und weitere spezielle Formen

Strahlbildende Druckzerstäuber (Abbildung 2.4 links) sind dabei eine der einfachsten Formen, die direkt mit dem zuvor beschriebenen Strahlzerfall vergleichbar sind. Hier wird die Energie ausschließlich über die kinetische Energie der Flüssigkeit zugeführt. Bei Zentrifugalzerstäubern (Abbildung 2.4 Mitte) wird die Flüssigkeit durch Fliehkräfte beschleunigt. Bei der Ultraschallzerstäubung wird die Flüssigkeit in Schwingung versetzt, wodurch sich Kapillarwellen bilden und Tropfen abgelöst werden können. Bei pneumatischen Zerstäubern wird die benötigte Energie hauptsächlich durch die kinetische Energie des Zerstäubungsgases aufgebracht.

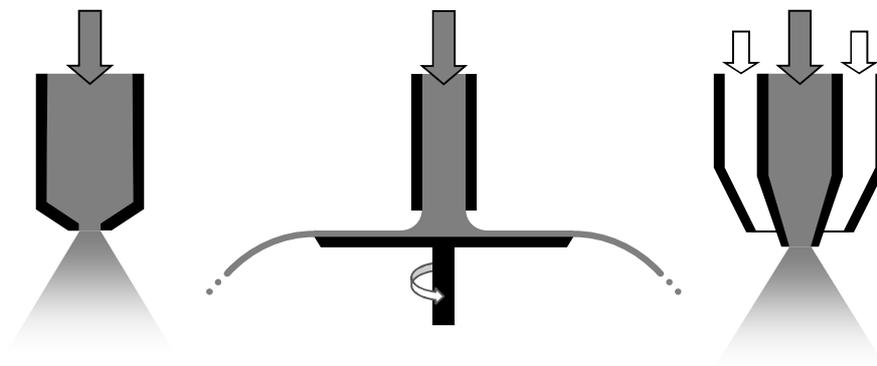


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung eines Druckzerstäubers (links), eines Zentrifugalzerstäubers (Mitte) und eines außenmischenden pneumatischen Zerstäubers (rechts).

Pneumatische Zerstäuber werden je nach Ort des Zusammentreffens der flüssigen und gasförmigen Phase in zwei Untergruppen unterteilt: Pneumatische Zerstäuber innen- oder außenmischender Form. Letztere Form ist in Abbildung 2.4 rechts dargestellt; das Zerstäubungsgas trifft erst außerhalb des Zerstäubers auf den Flüssigkeitsstrom. In innenmischenden pneumatischen Zerstäubern wird das Zerstäubungsgas im Gegensatz zur außenmischenden Form bereits innerhalb des Zerstäubers in Kontakt mit dem Flüssigkeitsstrom gebracht und die beiden treten in einer Zweiphasenströmung gemeinsam aus der Düse aus. Neben geometrischen Faktoren ist das

„Air-to-Liquid Ratio by mass“ ALR (dt.: Luft-Flüssigkeit-Verhältnis bezogen auf die Masse; häufig auch als Beladung bezeichnet) bei der pneumatischen Zerstäubung relevant – siehe Gleichung 2.4 mit Gas- und Flüssigkeitsmassenstrom \dot{m}_g bzw. \dot{m}_f [10(67-8)].

$$ALR = \dot{m}_g / \dot{m}_f \quad (2.4)$$

Der Flüssigkeitsaufbruch bei einfachen, außenmischenden pneumatischen Zerstäubern kann auch mit den grundlegenden Strahlzerfallsformen beschrieben werden, da hier eine langsamer ausströmende Flüssigkeit mit einem schneller ausströmenden Gas beaufschlagt wird, wodurch eine Relativgeschwindigkeit vorliegt und die zuvor beschriebenen Zerfallsformen auftreten können. Die Relativgeschwindigkeit wird dabei unter anderem vom ALR beeinflusst. Es ist aber zu berücksichtigen, dass sich ein Geschwindigkeitsprofil innerhalb des Flüssigkeitsstrahls ausbildet.

2.2 „effervescent atomization“

Die „effervescent atomization“ ist eine spezielle Form der innenmischenden pneumatischen Zerstäubung, bei der das Zerstäubungsgas vor dem Austritt aus dem Zerstäuber mit vergleichsweise geringer Geschwindigkeit in die Flüssigkeit fein verteilt eingebracht wird und sich so eine blasenförmige Zweiphasenströmung bildet. Hierdurch liegt im Düsenkanal nur ein dünnes Flüssigkeitsfilament vor, welches kranzförmig austritt und durch die Expansion des Gases zunächst in Ligamente und dann Einzeltropfen aufbricht [3]. Abbildung 2.5 zeigt die schematische Darstellung eines „effervescent atomizer“. Andere Formen innenmischender pneumatischer Zerstäuber, die auch als Mischdüsen bezeichnet werden, sind solche mit Vorkammer, mit separater Mischkammer, Abwandlungen der Venturi-Düse und Y-Zerstäuber [10(70-3),16,17(110-7)]. Diese Formen unterscheiden sich in Bau und Funktionsweise stark voneinander, weshalb für die in der vorliegenden Arbeit untersuchten Zerstäubung die Bezeichnung „effervescent atomization“ verwendet wird, da keine eindeutige deutsche Bezeichnung bekannt ist. Das Adjektiv „effervescent“ wird aus dem Englischen als schäumend, sprudelnd oder aufbrausend übersetzt und stammt vom lateinischen Verb „effervescere“, im Deutschen sieden oder aufbrausen.

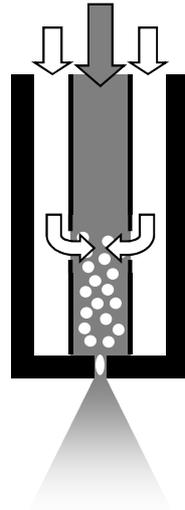


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung eines "outside-in" "effervescent atomizer".

Erste Veröffentlichungen zur „effervescent atomization“ finden sich bei Chawla (deutsche Patente zur Idee) ab 1977 [18,19] und (Abhandlung über Bildung der Zweiphasenströmung) ab 1981 [20], bei der Forschungsgruppe um Lefebvre (erste veröffentlichte experimentelle Zerstäubungsdaten) ab 1988 [21] und erneut bei Chawla (internationale Patente zur technischen Umsetzung des Zerstäubers) ab 1990 [22,23,24,25,26]. Chawla nennt dabei als wichtigste Charakteristik, „daß die Austrittsgeschwindigkeit gleich der Schallgeschwindigkeit des Zweiphasen-Gemisches wird und daß das Gemisch beim Austritt aus der Mischkammer eine sprunghafte Druckerniedrigung erfährt“ [18]. Die von Chawla entwickelten Zerstäuber werden von der Fa. CALDYN Apparatebau GmbH als „Zweistoffdüse CSL“ vermarktet aber weit verbreitet als „Caldyn-Düsen“ [10(72)] bezeichnet. Lefebvre et al. [21] führten sie zunächst als „aerated-liquid pressure atomizer“ ein, wechselte aber bereits 1989 zur Bezeichnung „effervescent atomizer“ [9(142)]. Da die Dicke bzw. der Durchmesser eines Flüssigkeitsvolumens nach Rizk und Lefebvre [27] entscheidend für die resultierende Tropfengröße ist, sehen Lefebvre et al. [21] als wichtigste Charakteristik der „effervescent atomization“, dass die Flüssigkeit durch die Gasphase im Düsenkanal in kleine Fetzen und Ligamente gepresst wird. Sowohl Chawla [18] als auch Lefebvre et al. [21] hoben bereits in den ersten Veröffentlichungen hervor, dass mit einem geringen Zerstäubungsgasstrom ein Ergebnis erzielbar ist, wofür sonst höhere Drücke (Druckzerstäuber) oder Zerstäubungsgasströme (pneumatische Zerstäuber) benötigt werden. Lefebvre et al. [21] wiesen auch auf den vergleichsweise großen Düsenkanaldurchmesser hin, was von Vorteil beim Zerstäuben von Suspensionen

oder Flüssigkeiten mit hoher Viskosität ist, die zur Verstopfung anderer Zerstäuber mit kleineren Querschnitten neigen.

In der Literatur finden sich zwei weitere Zerstäubungsverfahren, bei denen die Triebkraft zur Zerstäubung unter anderem die Expansion von Gas ist: Die Zerstäubung überhitzter Flüssigkeiten (engl.: „flash atomization“) [28] und die Zerstäubung mittels überkritisch eingelöstem Gas (engl.: „supercritical assisted atomization“) wie beispielsweise in den Verfahren „Particles from Gas Saturated Solutions“ (PGSS) und „Concentrated Powder Form“ (CPF) [29]. Im ersten Fall erhält man durch den Übergang des Wassers in die Gasphase und im zweiten Fall durch das Auslösen des eingelösten Gases das Zerstäubungsgas, das durch Expansion und die Relativgeschwindigkeit zur flüssigen Phase die Zerstäubung bewirkt. Die Zerstäubung mittels überkritischem eingelöstem Gas hat bereits Lefebvre [21] zur „effervescent atomization“ abgegrenzt, da bei der „effervescent atomization“ das Ein- und wieder Auslösen aufgrund von Verlusten der zur Zerstäubung verfügbaren Energie unerwünscht ist. Ebenso kann die Zerstäubung überhitzter Flüssigkeiten zur „effervescent atomization“ abgegrenzt werden, da bei der Zerstäubung überhitzter Flüssigkeiten zunächst thermische Energie zugeführt werden muss anstatt direkt eine komprimierte Gasphase. Die Abgrenzung der „effervescent atomization“ zu den beiden genannten Verfahren wird allerdings in der Literatur nicht einheitlich dargestellt. In der vorliegenden Arbeit wird als „effervescent atomization“ ausschließlich das nach Lefebvre [21] definierte Verfahren verstanden.

Es wurden in der Vergangenheit eine Vielzahl von Untersuchungen zur „effervescent atomization“ veröffentlicht, die unter anderem von Sovani et al. [3] und in jüngster Zeit von Konstantinov et al. [30] zusammengefasst wurden. Den unterschiedlichen Beschreibungen ist gemein, dass eine der entscheidenden Eigenschaften für die „effervescent atomization“ die Form der Strömung in der Mischkammer und im Düsenkanal ist. In der Mischkammer soll demnach eine möglichst feine, homogene Blasenströmung vorliegen und je nach Betriebsbedingungen (ALR , Drücke, Stoffeigenschaften der Fluide, Düsengeometrie) bildet sich im Düsenkanal eine Blasen-, Pfropfen-, Schwall-, oder Ringströmung aus [3]. Die unterschiedlichen Strömungsformen sind in Abbildung 2.6 dargestellt. Spritzer- und Ringströmung unterscheiden sich hinsichtlich vorliegender oder nicht vorliegender Tropfen („Spritzer“) in der Gasphase.

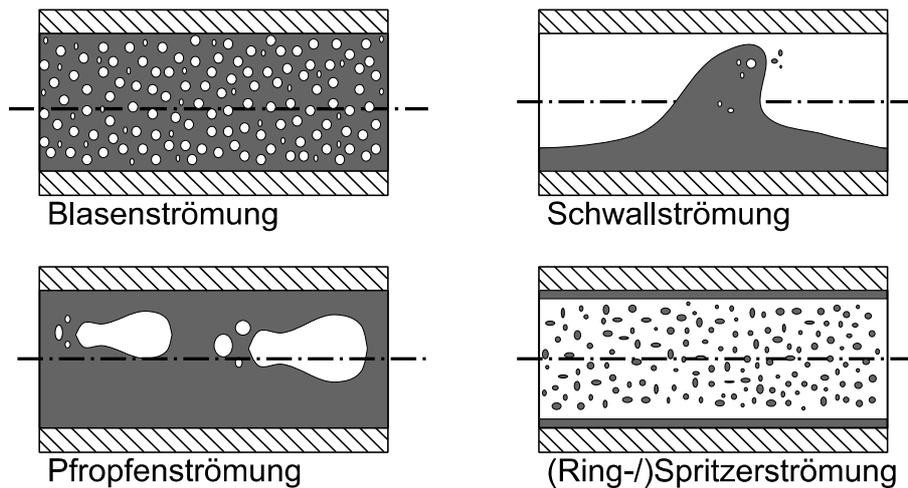


Abbildung 2.6: Darstellung unterschiedlicher zweiphasiger Strömungsformen verändert nach Richter [17(92)].

Die im Vergleich zum Düsenkanaldurchmesser dünnen Flüssigkeitsfilamente werden beim Austritt aus dem Düsenkanal durch das schnell expandierende Gas zunächst in Ligamente und weiter in einzelne Tropfen aufgebrochen – der primäre Aufbruch. Abhängig von Prozess- und Stoffparametern kann es anschließend noch zum sekundären Aufbruch kommen.

Zur Injektion des Gases in die Flüssigkeit gibt es unterschiedliche Bauformen. Entweder wird das Gas von außen in die Mischkammer mit der Flüssigkeit eingebracht, sogenannte „outside-in“ Geometrie, siehe auch Abbildung 2.5, oder durch einen zentralen Gasinjektor, um den die Flüssigkeit geführt wird. Das Gas wird entweder durch definierte Injektionslöcher oder über poröse Materialien eingebracht. Zum Einfluss der Injektionsgeometrie gibt es einige Untersuchungen, auf die in Kapitel 2.2.2 eingegangen wird.

Zur Auslegung eines „effervescent atomizer“ haben Chin und Lefebvre [31] auf Basis der Untersuchungen von Baker zu unterschiedlichen Strömungsgebieten ein Vorgehen beschrieben, um die gewünschte Blasenströmung in der Mischkammer zu erzielen. Hierbei werden die Stoffeigenschaften Dichte ρ , Oberflächenspannung σ und Viskosität der Flüssigkeit η_f entsprechend der Gleichungen 2.5 und 2.6 sowie die Volumenströme \dot{V} und der Gasmassenstromflux G über den Rohrquerschnitt berücksichtigt. Alle Stoffgrößen werden mit der korrespondierenden Stoffeigenschaft von Wasser bzw. Luft bei Standardbedingungen normiert, was mit dem Apostroph ‘ kenntlich gemacht wird. Entsprechend Abbildung 2.7 kann daraus unter Annahme

einer vollständig ausgebildeten Strömung die vorliegende Strömungsform bestimmt werden.

$$\zeta = (\rho'_g \cdot \rho'_f)^{1/2} \quad (2.5)$$

$$\psi = (\sigma')^{-1} \cdot (\eta'_f)^{1/3} \cdot (\rho'_f)^{-2/3} \quad (2.6)$$

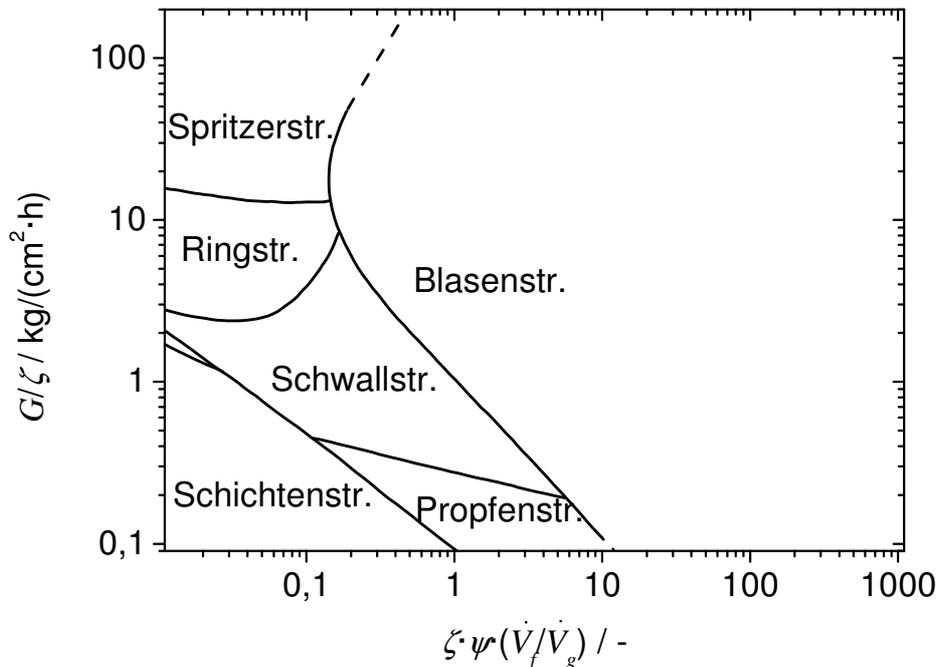


Abbildung 2.7: Übersicht unterschiedlicher Strömungsgebiete nach Baker (nach Chin und Lefebvre [31]), gestrichelte Linien durch Autor extrapoliert.

Die in Abbildung 2.7 dargestellte Übersicht von Baker bezieht sich auf horizontale Strömungen. Da in Fällen wie beispielsweise der schnellen Entspannung einer Zweiphasenströmung in einem Zerstäuber aber die Trägheits- und Druckverlustterme vollständig gegenüber der Schwerkraft dominieren [32(68-9)], können die Zusammenhänge nach Baker auf die Zweiphasenströmung im vertikal ausgerichteten „effervescent atomizer“ übertragen werden. In weitere Arbeiten – unter anderem von Steiner, Hewitt und Roberts sowie Taitel und Dukler [in 33] – wurden Zweiphasenströmungen in ähnlichen Strömungskarten anhand der gleichen oder abgeleiteten Stoff- und Prozessparameter beschrieben. Im Fall vertikaler Strömungen (Gasbewegung aufwärts) wurde darüber hinaus die Schwerkraft berücksichtigt. Diese Strömungskarten beschreiben die gleichen Trends aber mit leichten Abweichung, was auf die unterschiedlichen untersuchten Systeme zurückzuführen ist, in den meisten Arbeiten zur „effervescent atomization“ werden die Daten aber anhand der Strömungskarte nach Baker diskutiert werden.

Zur Bestimmung der für die Strömungsform idealen Gasinjektionsquerschnittsfläche A_I haben Chin und Lefebvre [31] die in Gleichung 2.7 gezeigte Beziehung in Abhängigkeit der Düsenkanalquerschnittsfläche A_D und des ALR empirisch aufgestellt.

$$A_D / A_I = 6,3 \cdot ALR \quad (2.7)$$

Chin und Lefebvre [31] haben weiterhin gezeigt, dass das Verhältnis von Düsenkanallänge l_D zu Düsenkanaldurchmesser d_D einen signifikanten Einfluss auf das Zerstäubungsergebnis besitzt. So verringert sich mit sinkendem l_D/d_D die mittlere Tropfengröße, was sie auf geringere Reibungsverluste im Düsenkanal zurückführten.

Zur Relevanz der sekundären Aufbruchs zeigten unter anderem Buckner und Sojka [34,35] und einige von Konstantinov et al. [30] zitierte Arbeiten, dass dieser aufgrund hoher Relativgeschwindigkeiten zumeist das Zerstäubungsergebnis maßgeblich beeinflusst. Xiong et al. [36] beobachteten in Simulationen für höhere Gasinjektionsdrücke ebenfalls einen relevanten sekundären Aufbruch, im Falle kleinerer Düsenkanaldurchmesser zeigte sich aber, dass der primäre Aufbruch dominiert.

2.2.1 Sprayunstetigkeit bei der „effervescent atomization“

Luong und Sojka [37] veröffentlichten eine der ersten Arbeiten, die spezifisch die Sprayunstetigkeit bei der „effervescent atomization“ adressiert, verweisen aber auf frühere Beobachtungen in anderen Arbeiten. Es stellte sich vor allem die Strömungsform als relevant für die Unstetigkeit heraus, wobei mit steigendem ALR die Blasenströmung zunächst in eine Schwall-/Propfenströmung (orig.: „chugging flow“) und dann in eine Ringströmung übergeht. Im Bereich der Schwall-/Propfenströmung kommt es verstärkt zu Unstetigkeit. Kim und Lee [38] konnten diese Beobachtungen später auch bestätigen. Gadgil und Raghunandan [39] konnten zeigen, dass die starke Unstetigkeit bei niedrigem ALR auf das Zerplatzen vereinzelt auftretender Gasblasen zurückzuführen ist. Mit steigendem ALR liegt eine kontinuierliche Zweiphasenströmung vor, wodurch eine kontinuierliche Gasexpansion zu einer geringeren Unstetigkeit führt.

Die in Abbildung 2.8 dargestellten Hochgeschwindigkeitsaufnahmen zeigen exemplarisch den Einfluss des ALR auf die Zerstäubung bei konstanten Stoffeigenschaften. Es sind für einen niedrigen ALR (0,07; oben) und einen hohen ALR (0,50; unten) jeweils fünf Aufnahmen zu unterschiedlichen Zeitpunkten dargestellt. Bei niedrigem ALR ist zeitweise eine vollständige Zerstäubung zu beobachten, die von Phasen des

Ausströmens eines durchgängigen Flüssigkeitsstrahls unterbrochen wird. Bei hohem ALR ist hingegen zu allen Zeitpunkten eine vollständige Zerstäubung zu sehen [40].

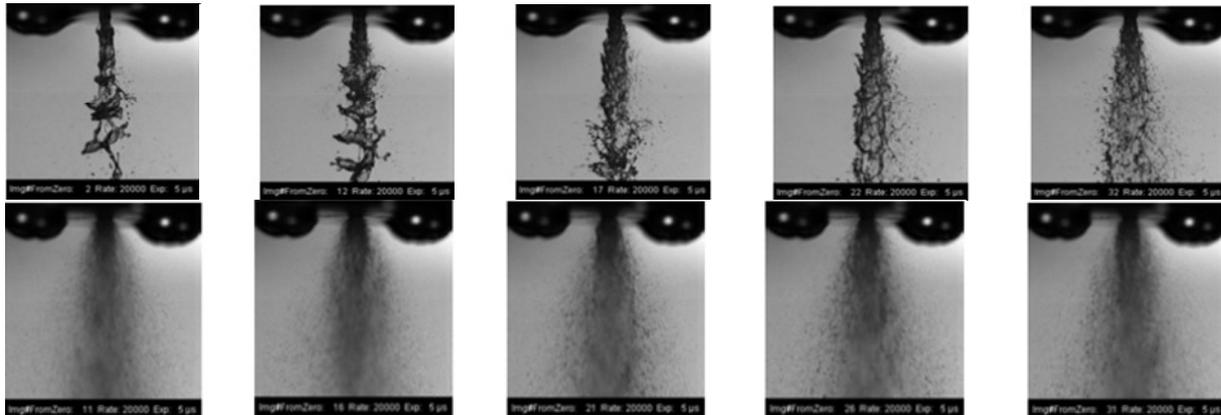


Abbildung 2.8: Hochgeschwindigkeitsaufnahmen der „effervescent atomization“ von verkleisterten Maisstärkesuspensionen mit sichtbarer Unstetigkeit. 4,5 gew.-% bei $ALR = 0,07$ (oben) und $ALR = 0,50$ (unten) [40].

Luong und Sojka [37] zeigten, dass bei niedrigerem ALR und einer Blasen- oder Schwallströmung die Unstetigkeit durch niedrige Viskosität und/oder hohe Oberflächenspannung gefördert wird, und dass Turbulenzen in der Gasphase nicht für die Sprayunstetigkeit verantwortlich sind. Für hohe ALR und eine Ringströmung zeigten die Flüssigkeitseigenschaften hingegen kaum Einfluss. In einigen Untersuchungen [37,41] wurde weiterhin beobachtet, dass die Sprayunstetigkeit zum Rand des Sprays hin zunimmt. Liu et al. [42] konnten dies hinsichtlich des Abstands zum Zerstäuber differenzieren. Bei einem Abstand von 20 cm zeigte sich mit steigendem Radius ein Abfall der Sprayunstetigkeit wohingegen in größeren Abständen ebenfalls ein Ansteigen der Unstetigkeit zum Rand des Sprays hin zu beobachten war.

2.2.2 Einflussgrößen bei der „effervescent atomization“

Air-to-Liquid Ratio by mass (ALR)

Für die pneumatische Zerstäubung ist der ALR entscheidend. Dies ist auch übertragbar auf die „effervescent atomization“. Sovani et al. [3] fassten zusammen, dass der Sauterdurchmesser $x_{1,2}$ der zerstäubten Flüssigkeit eine nichtlineare Funktion des ALR ist und mit steigendem ALR sinkt, wie exemplarisch in Abbildung 2.9 [43] dargestellt ist. Ebenso wiesen sie auf mehrere Arbeiten hin, die zeigten, dass sowohl für newtonsche als auch für nichtnewtonsche Flüssigkeiten mit Viskositäten größer 10 mPa·s der Injektionsdruck bei konstantem ALR keinen Einfluss auf die Tropfengröße zeigt. Konstantinov et al. [30] geben basierend auf anderen Arbeiten einen

ALR-Bereich von 0,08 bis 0,2 als ideal für die „effervescent atomization“ an, da hier vorwiegend eine Ringströmung beobachtet wird. Sie sehen dies aber nicht als absolute Grenzen des Betriebsbereichs an.

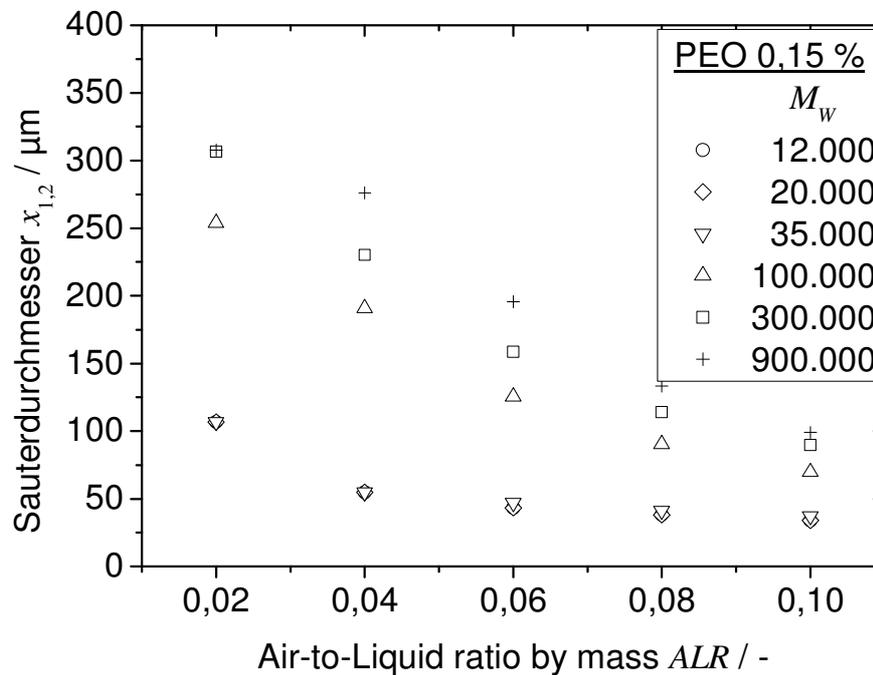


Abbildung 2.9: Sauterdurchmesser von zerstäubten Polyethylenoxidlösungen (PEO; in Glycerin-Wasser-Gemisch mit Verhältnis 60:40) mit unterschiedlicher molekularer Masse M_w bei konstanter Konzentration von 0,15 % in Abhängigkeit vom *ALR* nach Geckler [43].

Der *ALR* beeinflusst weiterhin den Spraywinkel. Chen und Lefebvre [44] beobachteten bei Zerstäubungsdrücken im Bereich von 1 bis 20 bar und ohne Abstufungen am Austritt des Düsenkanals Spraywinkel zwischen 10° und maximal 23°, die mit steigendem *ALR* zunächst anstiegen, aber bei Werten größer 0,08 wieder abfielen. Sie zeigten weiterhin, dass steigende Viskosität und/oder Grenzflächenspannung den Winkel weiter verringerte.

Flüssigkeitseigenschaften

In der Literatur werden die Viskosität und die Oberflächenspannung als die Flüssigkeitseigenschaften mit dem größten Einfluss auf die Zerstäubung aufgeführt [3,30]. Neben der Zerstäubung beeinflussen diese auch die Strömungsbildung im Zerstäuber – siehe Abbildung 2.7. Die Oberflächenspannung zeigte in gezielten Untersuchungen der Arbeitsgruppe Sojka gegensätzliche Effekte auf den Sauterdurchmesser. Unter anderem Lund et al. [45] beobachteten mit steigender Oberflächenspannung eine Verringerung des Sauterdurchmessers während Sutherland et al. [46] für

den gleichen Bereich der Oberflächenspannung einen gegensätzlichen Trend beobachtete. Bei letzterer Untersuchung kam allerdings ein Zerstäuber mit einem porösen Einsatz im Düsenkanal zum Einsatz, der möglicherweise den Zerstäubungsmechanismus beeinflusst. Insgesamt zeigt die Oberflächenspannung aber nur einen geringen Einfluss auf den Sauterdurchmesser.

Zum Einfluss der Viskosität bzw. der rheologischen Eigenschaften findet sich oft die allgemeine Aussage, dass die mittlere Tropfengröße des Sprays weitgehend unabhängig von der Flüssigkeitsviskosität ist [3]. Dies wird von verschiedenen Untersuchungen gestützt, die keinen oder nur sehr geringen Einfluss der Viskosität feststellten [34,35,45,46,47]. Es finden sich aber auch Arbeiten, die einen stärkeren Einfluss der Viskosität zeigen, wie beispielsweise die Arbeit von Santangelo und Sojka [48]. Sie zeigten, dass mit steigender Viskosität der Durchmesser der sich ausbildenden Ligamente und der resultierende Sauterdurchmesser anwächst, was aber erst bei einem Viskositätsanstieg oberhalb von 400 mPa·s stark ausgeprägt ist. Polymere bzw. deren Kettenlänge und die daraus resultierende molekulare Masse beeinflussen die rheologischen Eigenschaften ihrer Lösungen, worauf in Kapitel 2.2.3 eingegangen wird.

Gaseigenschaften

Wie Sovani et al. [3] zusammengefasst haben, beeinflussen die Dichte des Zerstäubungsgases und der Atmosphäre, in die zerstäubt wird, die Zerstäubung. So steigt der Spraywinkel und sinkt die mittlere Tropfengröße mit steigender Dichte des Zerstäubungsgases. Mit steigender Atmosphärendichte verschlechtert sich zunächst die Zerstäubung, da die Druckdifferenz zwischen Zerstäubungsgas und Atmosphäre sinkt und das Zerstäubungsgas damit seine Wirkung verliert. Bei weiterem Dichteanstieg verbessert sich die Zerstäubung wieder, was durch den Anstieg der Weber-Zahl (siehe Gleichung 2.3) erklärbar ist. Die Dichte des Zerstäubungsgases zeigt darüber hinaus ebenso wie die Flüssigkeitseigenschaften einen Einfluss auf die Strömungsform im Zerstäuber, siehe Abbildung 2.7. Rahman et al. [49] zeigten aber, dass eine Verringerung der Gasdichte um über 70 % ausgehend von Luft nur einen geringen Einfluss auf die Strömung bzw. die Blasengröße im Zerstäuber und den Sauterdurchmesser im Spray hat.

Düsengeometrie

Um die Strömungsform unabhängig von den Stoff- und Prozessparametern zu beeinflussen, haben mehrere Arbeitsgruppen den Einfluss der Gasinjektionsgeometrie untersucht. In den meisten Fällen wurden durch kleinere Durchmesser der Injektionslöcher [41] oder feinere poröse Medien [50] eine Reduzierung der Unstetigkeit erzielt. Ghaemi et al. [50] konnten hierbei auch eine Verkleinerung der Gasblasen zeigen und eine Verringerung des Anteils großer Tropfen im Spray. Liu et al. [51] beobachteten für eine Vergrößerung angewinkelter Injektionslöcher für ein Glycerin-Wasser-Xanthan-Gemisch die zu erwartende Erhöhung der Sprayunstetigkeit, aber im Falle von Wasser zeigte sich ein entgegengesetzter Trend. Dies lässt sich bei konstantem *ALR* möglicherweise durch eine andere Strömungsform aufgrund der Stoffeigenschaften erklären. Liu et al. [51] zeigten weiterhin, dass ein Anwinkeln der Injektionslöcher keinen Einfluss hat. Jedelsky et al. [41] stellten fest, dass eine kurze Mischkammer (Bereich der Gasinjektion und Distanz Gasinjektion bis Düsenkanal) vorteilhaft ist, um die Unstetigkeit zu reduzieren.

Jedelsky et al. [52] beobachteten in weiteren Arbeiten, dass eine Verlängerung des Düsenkanals durch bessere Strömungsbildung die Turbulenz im Spray reduziert, was unter anderem in einer Verringerung des Spraywinkels resultiert.

Die Mehrheit der bisherigen Arbeiten zur „effervescent atomization“ nutzten Zerstäuber mit einem flachen, rechtwinkligen Auslass des Düsenkanals. Arbeiten mit einem abgestuften, rechtwinkligen Auslass von Sathapathy et al. zeigten nach Sovani et al. [3] durch das Abbremsen der Tropfen und der daraus folgenden Koaleszenz deutlich größere Tropfengrößen. Sovani et al. [3] zitieren Arbeiten von Whitlow et al., die mit Hilfe eines „conical-sheet effervescent atomizer“ ein Hohlkegelspray mit einem größeren Spraywinkel als den sonst beobachteten maximal 23°. Der Spraywinkel der „effervescent atomization“ ist im Vergleich zu anderen Zerstäubern sehr gering. Druckzerstäuber erreichen Winkel über 100° und Zentrifugalzerstäuber bedingt durch das Zerstäubungsprinzip bis zu 180°.

2.2.3 „effervescent atomization“ von Polymerlösungen

Zur „effervescent atomization“ von Polymerlösungen haben unter anderem Buckner und Sojka [34,35] Untersuchungen durchgeführt. Anhand von wässrigen Xanthan-Glycerin-Lösungen stellten sie hierbei die Annahme auf, dass sich aufgrund von Fließgrenzen die Zerstäubung im Vergleich zu newtonschen Lösungen unterschei-

det. Geckler und Sojka [43] zeigten für Polyethylenoxidlösungen, dass die molekulare Masse im Bereich von 10^4 bis 10^6 Da bereits bei geringer Konzentration von bis zu 0,5 % und Nullviskositäten von bis zu 18.2 mPa·s einen entscheidenden Einfluss auf das Zerstäubungsergebnis hat – siehe Abbildung 2.9.

Mit der „effervescent atomization“ wässriger Lösungen von Polyvinylpyrrolidon (PVP) haben sich in der Vergangenheit zwei Forschungsgruppen befasst und dabei Polymere mit molekularer Masse im Bereich von $4,5 \cdot 10^4$ - $5,5 \cdot 10^4$ Da (K30) und $1,2 \cdot 10^6$ - $2,0 \cdot 10^6$ Da (K90) eingesetzt. Petersen et al. [6] untersuchten dabei PVP-K30-Lösungen bis zu 30 % (angegebene Scherviskosität 30 mPa·s) und PVP-K90-Lösungen bis zu 5 % (angegebene Scherviskosität 25 mPa·s) und Mischungen der beiden Polymere. Die gemessenen Sauterdurchmesser dieser Mischungen in Abhängigkeit vom *ALR* sind in Abbildung 2.10 dargestellt. Mit steigendem Anteil des langkettigeren Polymers (K90) steigt dabei der Sauterdurchmesser. Die Werte wurden im Abstand von 15 cm vom Zerstäuber mit einem Laserbeugungsspektrometer (Malvern 2600c, 100 mm Linse, Messbereich 1,9 - 188 μm) ermittelt.

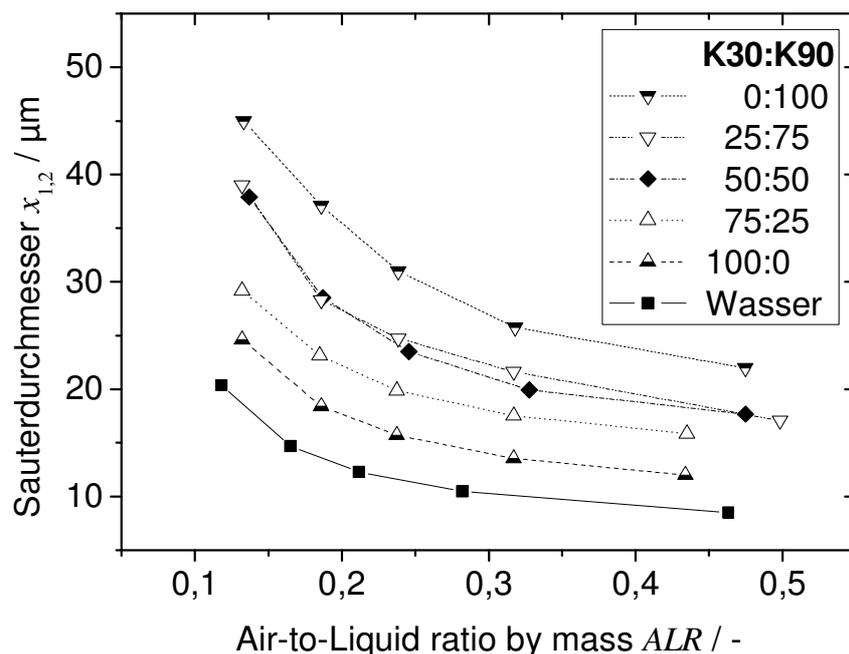


Abbildung 2.10: Sauterdurchmesser bei der „effervescent atomization“ von 5%igen PVP-Lösungen mit unterschiedlichen Verhältnissen der mittleren molekularen Masse in Abhängigkeit vom *ALR* nach Petersen et al. [6].

Nielsen et al. [7] untersuchten die Zerstäubung von PVP-K90-Lösungen mit einer Konzentration von bis zu 15 % (angegebene Scherviskosität (Ostwald-Gesetz) 5 % 32 mPa·s mit Index 0,90, 10 % 175 mPa·s mit Index 0,85) und verglichen pneumati-

sche Zerstäubung und „effervescent atomization“. Sie konnten allerdings bei maximal 11,7 bar Zerstäubungsgasdruck keine Experimente mit Konzentrationen über 10 % durchführen. Für Konzentrationen von bis zu 10 % und einem ALR von 1,4 wurden Sauterdurchmesser kleiner 20 μm beobachtet. Die Werte wurden im Abstand von 15 cm vom Zerstäuber mit einem Laserbeugungsspektrometer (Malvern Spraytec, 200 mm Linse, Messbereich unbekannt) ermittelt.

Neben Polymeren für den Einsatz in der chemischen oder pharmazeutischen Verfahrenstechnik wurde ebenfalls die Zerstäubung wässriger, verkleisterter Suspensionen des Biopolymergemischs Stärke, bestehend aus Amylose ($M_w \approx 1,5 \cdot 10^5 - 7,5 \cdot 10^5$ Da) und Amylopektin ($M_w \approx 5 \cdot 10^7 - 5 \cdot 10^8$ Da), untersucht [47]. Dabei zeigte sich im untersuchten Konzentrationsbereich bis zu einer Scherviskosität von 100 mPa·s nur ein geringer Einfluss der Konzentration auf den Sauterdurchmesser.

2.2.4 Räumliche Abhängigkeit der Tropfengrößenverteilung

Hinsichtlich der Verteilung der Tropfengrößen innerhalb des Spraykegels haben einige von Sovani et al. [3] zusammengefasste Arbeiten übereinstimmend gezeigt, dass bei einphasigen Flüssigkeiten mit steigendem radialen Abstand zur Spraymitte der Sauterdurchmesser ansteigt, was mit dem größeren Impuls größerer Tropfen zu erklären ist. Dieser Trend der Sauterdurchmesser ist in Abbildung 2.11 anhand von Daten von Lund [53] exemplarisch für unterschiedliche axiale Abstände zur Düse dargestellt. Ein Radius von 0 entspricht dem Sprayzentrum. In einigen Fällen zeigte sich aber ein Abweichen von diesem Verhalten. Panchagnula und Sojka [54] beobachteten bei Versuchen mit unterschiedlichen Glucosesirupkonzentrationen eine weitgehende Unabhängigkeit des Sauterdurchmessers vom Radius, was durch eine starke Turbulenz begründet wurde.

Für mehrphasige Systeme beobachteten Schmidt und Mewes [55] anhand von Glaskugelsuspensionen einen gegensätzlichen Trend. Wie in Abbildung 2.12 zu sehen ist, bildet sich im Sprayzentrum ein Maximum für den Sauterdurchmesser, was bei geringem Gasvolumenanteil am stärksten ausgeprägt ist. Dies wird mit der höheren Konzentration partikelbeladener Tropfen in der Mitte des Sprays und der dort dominierenden Wirkung des Zerstäubungsgases begründet, während am Rand des Sprays die Interaktion mit der ruhenden Umgebung entscheidend sein soll.

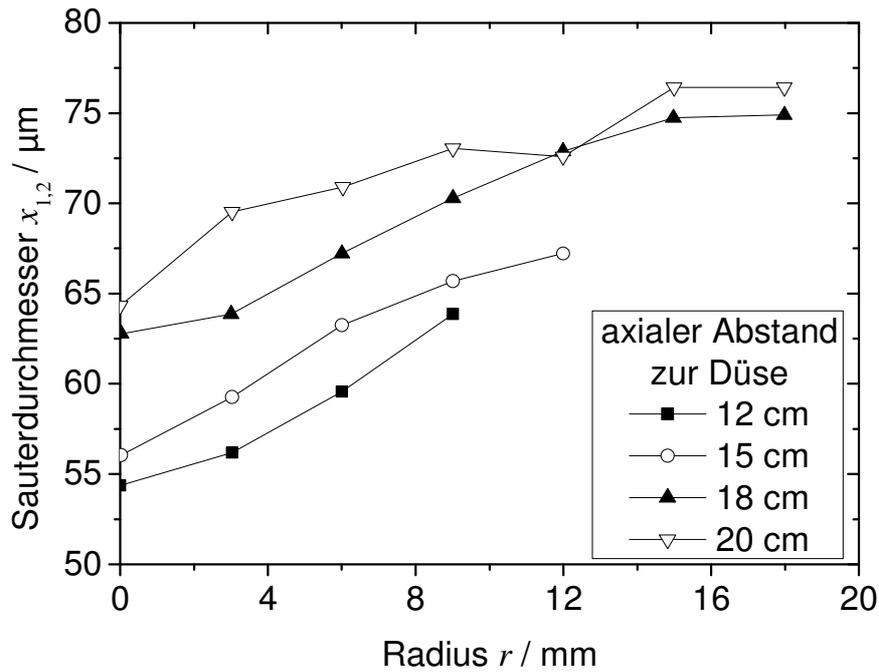


Abbildung 2.11: Sauterdurchmesser in Abhängigkeit vom Radius und axialen Abstand zur Düse ($ALR = 0,034$, $p = 3,77$ bar) nach Lund [53].

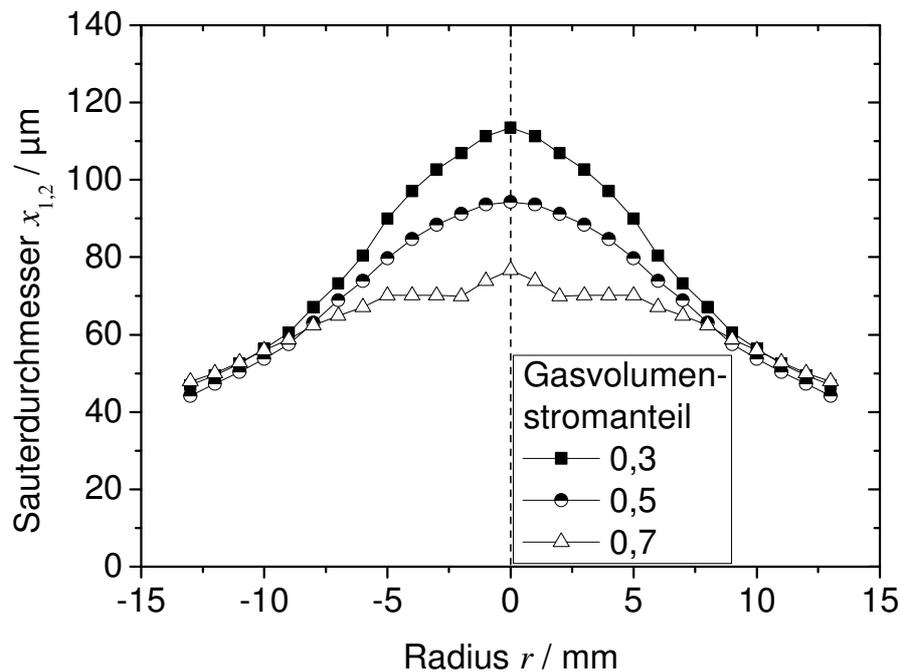


Abbildung 2.12: Lokal aufgelöste Sauterdurchmesser zerstäubter Glaskugelsuspensionen bei konstantem Ausgangsdruck von 6,5 bar und Glaskugelpartikeldurchmesser zwischen 40 und 80 μm in Abhängigkeit des Gasvolumenstromanteils 50 mm unterhalb des Zerstäubers nach Schmidt und Mewes [55].

Sovani et al. [3] fassten zusammen, dass in den meisten Arbeiten in großem Abstand zum Zerstäuber ein leichter Anstieg der Tropfengröße zu beobachten ist.

2.2.5 Modellierung der Spraytropfengröße

Um die Zusammenhänge der Einflussfaktoren bei der Zerstäubung auf das Endergebnis – die Tropfengrößenverteilung im Spray oder einer davon abgeleiteten, repräsentativen Tropfengröße wie dem Sauterdurchmesser – einschätzen zu können, wurden für alle Formen der Zerstäubungen eine Vielzahl von Korrelationen oder Modellen postuliert. Als Korrelationen werden in dieser Arbeit rein auf Basis experimenteller Daten empirisch ermittelte Zusammenhänge bezeichnet, wohingegen Modelle die mechanistischen (Teil-)Schritte der Zerstäubung zu beschreiben versuchen und daraus eine resultierende Tropfengröße oder Verteilung bestimmt wird.

Lefebvre [56] entwickelte ein einfaches Modell zur Berechnung des Sauterdurchmessers bei direkter pneumatischer Zerstäubung, bei der Strömungs- und Oberflächeninstabilitäten nicht zum Tragen kommen. Zur Überwindung der Oberflächenkräfte berücksichtigt er ausschließlich die kinetische Energie des Gases. Für den Fall der „effervescent atomization“ gilt dies nur bei hohem ALR oder hohen Zerstäubungsdrücken. Als relevante Schichtdicke postuliert Lefebvre die mittlere Flüssigkeitsdicke zwischen angrenzenden Gasblasen.

Lund et al. [45] haben ein detaillierteres Modell zur „effervescent atomization“ veröffentlicht. Hierbei wird die Zerstäubung in drei Teilschritte unterteilt – siehe auch Abbildung 2.13 Mitte:

1. Berechnung der Filamentschichtdicke s_F um die Gasphase,
2. Berechnung des Ligamentdurchmessers d_L ,
3. Berechnung der kritischen Wellenlänge nach Weber.

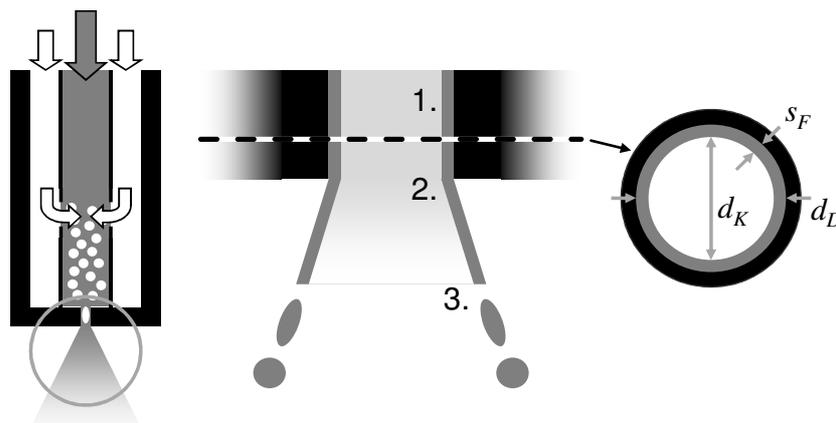


Abbildung 2.13: Vorgehensweise des Modells von Lund [45]. Schematische Darstellung eines "outside-in" "effervescent atomizer" mit Markierung des relevanten Bereichs (links); schematische Darstellung des durch das Modell beschriebenen Prozessbereichs mit Lokalisierung der einzelnen Teilschritte und des rechts dargestellten Schnitts (Mitte); Schnitt durch Düsenkanal mit Durchmesser d_D , Kerndurchmesser d_K und Filamentschichtdicke s_F (rechts).

Im 1. Schritt wird die Schichtdicke des Flüssigkeitsfilaments unter der Annahme einer idealen Ringströmung berechnet. Hierzu müssen zusätzlich zum ALR das Schlupfverhältnis (engl.: slip ratio) sr und die Dichten von Flüssigkeit ρ_f und Gas ρ_g berücksichtigt werden. Da die Geschwindigkeiten von Gas v_g und Flüssigkeit v_f nicht bekannt sind, muss der Gasphasenanteil α bestimmt werden. Hierzu schlägt Lund die Nutzung der iterativen Methode von Ishii vor. Der dadurch gegebene Zusammenhang von Schlupfverhältnis und Gasphasenanteil ist in den Gleichungen 2.8 und 2.9 dargestellt.

$$sr = \frac{v_g}{v_f} = \sqrt{\frac{\rho_f}{\rho_g}} \cdot \sqrt{\frac{\sqrt{\alpha}}{1 + 75 \cdot (1 - \alpha)}} \quad (2.8)$$

$$\alpha = \frac{1}{1 + \frac{\rho_g \cdot sr}{\rho_f \cdot ALR}} \quad (2.9)$$

Mit Kenntnis des Schlupfverhältnisses und des Düsenkanaldurchmessers d_D kann der Durchmesser des Gaskerns d_K entsprechend Gleichung 2.10 und daraus die Schichtdicke des Flüssigkeitsfilaments s_F entsprechend Gleichung 2.11 berechnet werden.

$$d_K = \sqrt{\frac{\rho_f \cdot ALR \cdot d_D^2}{\rho_f \cdot ALR + \rho_g \cdot sr}} \quad (2.10)$$

$$s_F = \frac{d_D - d_K}{2} \quad (2.11)$$

Im 2. Schritt wird ohne Berücksichtigung von Stoffeigenschaften auf Basis von Düsenkanaldurchmesser und der zuvor berechneten Schichtdicke der Durchmesser des Ligaments bestimmt, welches nach Austritt aus dem Düsenkanal durch Aufbruch des Filaments entsteht. Entsprechend Gleichung 2.12 wird der mittlere Umfang des Filamentrings durch die Schichtdicke geteilt, um die Anzahl n der Ligamente zu bestimmen, in die das Filament aufbricht. Die Querschnittsfläche eines Ligaments A_L mit Durchmesser d_L entspricht dementsprechend der durch n geteilten Querschnittsfläche des Filaments A_F , siehe Gleichung 2.13. Aus Gleichungen 2.10 bis 2.13 ergibt sich Gleichung 2.14 zur Bestimmung des Ligamentdurchmessers.

$$n = \frac{\pi \cdot (d_D - s_F)}{s_F} \quad (2.12)$$

$$\frac{\pi}{4} \cdot d_L^2 = A_L = \frac{A_F}{n} = \frac{\pi}{4} \cdot \frac{(d_D^2 - d_K^2)}{n} \quad (2.13)$$

$$d_L = \frac{d_D - d_K}{\sqrt{\pi}} \quad (2.14)$$

Im 3. Schritt wird die kritische Wellenlänge für den Ligamentzerfall unter Berücksichtigung der Flüssigkeitsviskosität, -dichte und Grenzflächenspannung σ nach Weber [12] bestimmt. Anhand des Ligamentdurchmessers und der kritischen Wellenlänge wird entsprechend Gleichung 2.15 der Durchmesser einer Kugel mit gleichem Volumen berechnet. Lund et al. [45] definieren dies als Sauterdurchmesser $x_{1,2}$, welcher im Vergleich zum volumenspezifischen Mediandurchmesser $x_{50,3}$ eine bessere Übereinstimmung mit den experimentell gemessenen Tropfengrößenverteilungen aufweist [40].

$$x_{1,2} = \left[\frac{3}{2} \cdot d_L^3 \cdot \sqrt{2} \cdot \pi \cdot \sqrt{1 + \frac{3 \cdot \eta_f}{\sqrt{\rho_f \cdot \sigma \cdot d_L}}} \right]^{1/3} \quad (2.15)$$

Hervorzuheben ist, dass im 1. und 2. Schritt die Viskositäten der beiden Phasen und die Grenzflächenspannung vernachlässigt werden. Das Modell beschreibt weiterhin nur den primären Aufbruch und vernachlässigt unter Annahme geringerer Relativgeschwindigkeiten den sekundären Aufbruch.

Das von Lund beschriebene Modell wurde in einigen Forschungsarbeiten genutzt und zeigte weitestgehend eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen [40,43]. Sutherland et al. [46] haben eine Erweiterung des Modells zur Berücksichtigung der Relativgeschwindigkeit zwischen Ligament und umgebendem Gas eingeführt. In weiteren Arbeiten, die auf unterschiedliche Weise den sekundären Aufbruch und die weitere Beschaffenheit des Sprays beschreiben, wird zur Bestimmung der Tropfengröße nach dem primären Aufbruch das Modell von Lund beziehungsweise Erweiterungen dessen herangezogen [36,57,58,59,60]. So haben Qian et al. [57,58,60] die Lösung der linearen Stabilitätsanalyse nach Senecal et al. [61] zur Bestimmung der Wachstumsrate von Oberflächenstörungen berücksichtigt.

Das Modell von Lund et al. [45] und auch die Erweiterungen beispielsweise von Qian et al. [57,58,60] nutzen zur Bestimmung des Gasphasenanteils α im Düsenkanal die iterative Methode von Ishii. Diese berücksichtigt nicht die Dichte und die Viskosität der Gas- und Flüssigkeitsphase. Butterworth [62] hat einige Korrelationen zur Beschreibung von Zweiphasenströmungen zusammengefasst, die das Verhältnis der Dichten und Viskositäten berücksichtigen. Anstatt des ALR wird dabei der Massenstromanteil x entsprechend Gleichung 2.16 verwendet. Die Korrelation von Baroczy ist in Gleichung 2.17 dargestellt, die von Thom in Gleichung 2.18 und die von Turner & Wallis in Gleichung 2.19.

$$x = \frac{\dot{m}_g}{\dot{m}_g + \dot{m}_f} \quad (2.16)$$

$$\frac{1-\alpha}{\alpha} = \left(\frac{1-x}{x}\right)^{0.74} \cdot \left(\frac{\rho_g}{\rho_f}\right)^{0.65} \cdot \left(\frac{\eta_f}{\eta_g}\right)^{0.13} \quad (2.17)$$

$$\frac{1-\alpha}{\alpha} = \left(\frac{1-x}{x}\right) \cdot \left(\frac{\rho_g}{\rho_f}\right)^{0.89} \cdot \left(\frac{\eta_f}{\eta_g}\right)^{0.18} \quad (2.18)$$

$$\frac{1-\alpha}{\alpha} = \left(\frac{1-x}{x}\right)^{0.72} \cdot \left(\frac{\rho_g}{\rho_f}\right)^{0.4} \cdot \left(\frac{\eta_f}{\eta_g}\right)^{0.08} \quad (2.19)$$

Zur Beschreibung der Filamentdicke am Austritt haben Esfarjani und Dolatabadi [63] und Rhamamurthi et al. [64] zweiphasige Simulationen der Gas-Flüssigkeit-Strömung innerhalb des Zerstäubers durchgeführt und konnten verschiedene Strömungsformen beobachten. Im ersten Fall wurde die Simulation dreidimensional durchgeführt und zur Beschreibung des Einflusses von suspendierten Partikeln wurde die Dichte und Viskosität der Flüssigkeit angepasst. Es konnte eine Übereinstimmung der Filamentdicke mit Literaturdaten erzielt werden. Im letzteren Fall war die Simulation zweidimensional und es konnten im Vergleich mit experimentellen Daten gute Übereinstimmungen der Strömungsformen erzielt werden.

Gadgil und Raghunandan [65] haben unter Annahme einer idealen Blasenströmung einen weiteren Ansatz beschrieben. Das Modell beschreibt die „effervescent atomization“ unter Berücksichtigung von Energie bzw. Energieerhaltung und Entropie des Systems. Beim primären Aufbruch wird dabei davon ausgegangen, dass die expandierenden Gasblasen die Flüssigkeit zerteilen. Die Kräfte die durch die umgebende

Luft auf die resultierenden Tropfen beim sekundären Aufbruch wirken werden ebenfalls berücksichtigt.

Zur Beschreibung des Einflusses molekularer Masse bei der „effervescent atomization“ haben Broniarz-Press et al. [66] eine Korrelation für den resultierenden Sauterdurchmesser aufgestellt, die ausschließlich den Düsenkanaldurchmesser, die molekulare Masse und den ALR berücksichtigt. Sie ist allerdings nur für eine konstante Konzentration und in einem Bereich der molekularen Masse von $1 \cdot 10^6$ bis $8 \cdot 10^6$ Da gültig.

2.3 Zerstäubungseffizienz

Zur Beurteilung der Energieumwandlung bei Zerstäubungsvorgängen hat Walzel [67] den Effizienzkoeffizienten e eingeführt, der als Verhältnis der zur Oberflächenerzeugung benötigten Leistung P_σ und der in das System eingebrachten Leistung P definiert ist, siehe Gleichung 2.20. Die Leistung P_σ ergibt sich entsprechend Gleichung 2.21 aus der Oberfläche, die bei einem Sauterdurchmesser $x_{1,2}$ der Tropfengrößenverteilung und einem Flüssigkeitsvolumenstrom \dot{V}_f erzeugt wird, und der Oberflächenspannung σ . Der so definierte Effizienzkoeffizient berücksichtigt allerdings nicht die zur Beschleunigung der Tropfen benötigte Leistung, die gerade bei hohem Gasanteil im sich bildenden Spraykegel signifikant sein kann.

$$e = \frac{P_\sigma}{P} \quad (2.20)$$

$$P_\sigma = \frac{6 \cdot \dot{V}_f \cdot \sigma}{x_{1,2}} \quad (2.21)$$

Die durch Flüssigkeits- und Gasstrom eingebrachten Leistungen P_f und P_g im Fall von Druck- oder pneumatischen Zerstäubern können entsprechend Gleichungen 2.22 und 2.23 vereinfacht berechnet werden. Unter Annahme der Inkompressibilität im vorliegenden Druckbereich setzt sich die Leistung P_f aus der Druckdifferenz dem absoluten Flüssigkeitsdruck p_f und dem Umgebungsdruck p_0 und dem Flüssigkeitsvolumenstrom zusammen. Für Druckzerstäuber ergibt sich daraus der Effizienzkoeffizient als Verhältnis von P_σ zu P_f .

$$P_f = (p_f - p_0) \cdot \dot{V}_f \quad (2.22)$$

Die Leistung P_g ist dabei entsprechend der thermischen Zustandsgleichung idealer Gase vereinfacht ein Produkt aus dem Gasmassenstrom \dot{m}_g , der spezifischen Gaskonstante R_g , der Temperatur T (in Kelvin), dem absoluten Gasdruck p_g und dem Umgebungsdruck. Für außenmischende pneumatische Zerstäuber kann davon ausgegangen werden, dass in das System alleine durch den Gasstrom Leistung eingebracht wird, da hier die durch die Flüssigkeit eingebrachte Leistung vernachlässigt werden kann. Da allerdings die innere Flüssigkeit durch die äußere Flüssigkeit im Strahl abgeschirmt wird und nicht die volle Gasgeschwindigkeit erfährt, ist nach Walzel [67] davon auszugehen, dass nur maximal 25 % der Gasenergie auf die Flüssigkeit übertragen werden kann.

$$P_g = \dot{m}_g \cdot R_g \cdot T \cdot \ln(p_g / p_0) \quad (2.23)$$

In Abbildung 2.14 sind Daten für den Effizienzkoeffizienten bei pneumatischer Zerstäubung in Abhängigkeit vom normierten Sauterdurchmesser dargestellt. Zur Normierung wird der hydraulische Durchmesser – hier gleich dem Durchmesser des Düsenkanals – genutzt. Die Gas-Weber-Zahl beschreibt hierbei den Energieeintrag durch die Gasgeschwindigkeit, das Flüssigkeit-Gas-Massenverhältnis μ (siehe Gleichung 2.24) die effektiv wirkende Gasgeschwindigkeit. Für $\mu \ll 1$ wirkt die Gasgeschwindigkeit annähernd vollständig. Für $\mu = 1$ wird in Abbildung 2.14 die höchste Effizienz erzielt, was sich nach Walzel mit der Aussage deckt, dass im Idealfall maximal 25 % der Gasenergie in kinetische Flüssigkeitsenergie umgewandelt werden können. Dieser Fall tritt ebenfalls für $\mu = 1$ ein.

$$\mu = M_f / M_g = (\dot{m}_g / \dot{m}_f)^{-1} = ALR^{-1} \quad (2.24)$$

Für innenmischende pneumatische Zerstäuber darf die durch die Flüssigkeit eingebrachte Leistung nicht vernachlässigt werden, weshalb sich der Effizienzkoeffizient entsprechend Gleichung 2.25 ergibt.

$$e = \frac{P_\sigma}{P_g + P_f} \quad (2.25)$$

Walzel [67] stellt für unterschiedliche Zerstäuberformen folgende Bereiche des Effizienzkoeffizienten dar: Druckzerstäuber 0,001 - 0,1, Zentrifugalzerstäuber 0,001 - 0,01, pneumatische Zerstäuber 0,00001 - 0,01. Als thermodynamisches Limit gibt er 0,6 an.

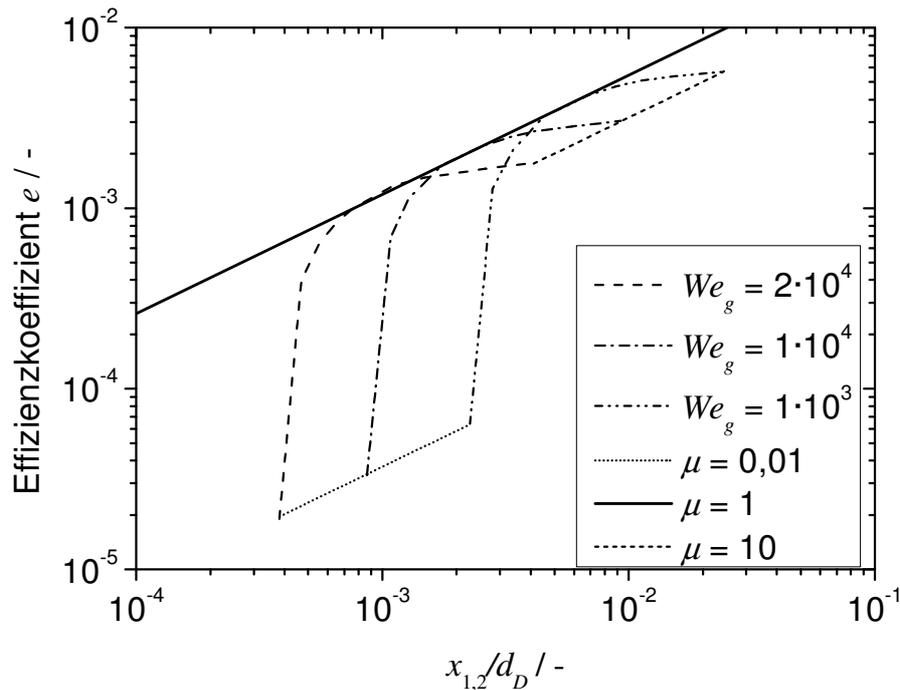


Abbildung 2.14: Theoretische Daten für Effizienzkoeffizienten bei pneumatischer Zerstäubung von Wasser nach Walzel [67].

2.4 Grundlagen des Tropfenaufbruchs in Emulsionen

Ein heterogenes System von wenigstens zwei flüssigen Phasen, wovon eine als kontinuierliche Phase vorliegt und die weiteren Phasen in Tropfen in der kontinuierlichen Phase dispergiert sind, wird als Emulsion bezeichnet und die Herstellung dieser als Emulgieren [68].

Emulsionen bestehen aus einer oder mehreren hydrophilen (wässriger) und einer oder mehreren lipophilen (ölicher) Phasen. Abhängig davon welche Phase die kontinuierliche Phase bildet, wird von Öl-in-Wasser- oder Wasser-in-Öl-Emulsionen gesprochen. Sie sind durch die erzeugte Oberfläche thermodynamisch nicht stabil und streben daher danach, die Oberfläche beispielsweise durch Koaleszenz wieder zu minimieren. Um dies zu vermeiden, kommen Emulgatoren und/oder Stabilisatoren zum Einsatz – sowohl in industriellen als auch in natürlichen Emulsionen wie beispielsweise Milch. Emulgatoren adsorbieren an der Grenzfläche zwischen hydrophiler und lipophiler Phase. Dadurch können sie unter anderem Koaleszenz der Tropfen vermeiden und es wird die Grenzflächenspannung zwischen den beiden Phasen verringert. Stabilisatoren sind meist in der kontinuierlichen Phase löslich und verringern durch Viskositätserhöhung die Tropfengeschwindigkeit, was unter anderem Koaleszenz und Sedimentation verlangsamt [69].

Die mechanische Herstellung von Emulsionen lässt sich grundlegend in drei Abschnitte unterteilen:

1. Zusammenbringen der beiden Phasen (Premix),
2. Aufbruch der inneren Phase durch mechanische Energie (Zerkleinerung),
3. Erhalt der Tropfen durch Emulgatoren und/oder Stabilisatoren (Stabilisierung).

Die Verfahren zur Einbringung mechanischer Energie lassen sich in die folgenden Systeme einteilen: Rotor-Stator- bzw. Rotor-Rotor-Systeme, Ultraschallhomogenisatoren, Membransysteme, Hochdruckhochhomogenisatoren und Kombinationen dieser Systeme. Je nach Verfahren wird die Tropfenzerkleinerung durch laminare Scher- und Dehnströmungen, turbulente Strömungen und/oder Kavitation erreicht [69].

Der Einfluss von Materialeigenschaften und die Belastung beim Tropfenaufbruch in Emulsionen kann mit der Kapillarzahl Ca beschrieben werden, die das Verhältnis von deformierenden zu formerhaltenden Kräften beschreibt. In Gleichung 2.26 ist die Definition der Kapillarzahl in laminarer Scherströmung in Abhängigkeit von der Viskosität der kontinuierlichen Phase η_k , der Scherrate $\dot{\gamma}$, der Tropfengröße x und der Grenzflächenspannung γ dargestellt.

$$Ca = \frac{\eta_k \cdot \dot{\gamma} \cdot x}{2 \cdot \gamma} \quad (2.26)$$

Um die für einen Tropfenaufbruch benötigte Belastung zu erzielen, muss der Wert der kritischen Kapillarzahl erreicht oder überstiegen werden. Dieser Zustand muss wenigstens für die kritische Deformationszeit $t_{def,krit}$ vorliegen, welche entsprechend Gleichung 2.27 von der deformierenden Spannung τ_{def} , der Viskosität der dispersen Phase η_d und dem Kapillardruck p_c – und damit der Ausgangstropfengröße – abhängt [70].

$$t_{def,krit} = \frac{\eta_d}{\tau_{def} - p_c} \quad (2.27)$$

Grace [71] zeigte, dass das Viskositätsverhältnis λ (Verhältnis der Viskositäten von dispersen Phase zur kontinuierlichen Phase, siehe Gleichung 2.28) entscheidend für den Wert der kritischen Kapillarzahl ist. Grace zeigte weiterhin, dass für newtonsche Flüssigkeiten in laminarer Scherströmung die kritische Kapillarzahl ein Minimum für Viskositätsverhältnisse im Bereich zwischen 0,5 und 1 aufweist und dass für Viskositätsverhältnisse größer 4 kein Aufbruch in laminarer Scherströmung möglich ist. Dies

ist in Abbildung 2.15 am Verlauf der kritischen Kapillarzahl für $\alpha = 0$ zu sehen. α beschreibt den Typ der Strömung, die an dem Tropfen angreift. Ein Wert von 0 beschreibt dabei reine Scherströmung, ein Wert von 1 reine Dehnströmung [72].

$$\lambda = \eta_d / \eta_k \quad (2.28)$$

Bentley und Leal [72] haben den Einfluss von Dehnströmung auf den Tropfenauflbruch von newtonschen Flüssigkeiten bei unterschiedlichen Anteilen von Dehn- und Scherströmung untersucht. Die Kapillarzahl muss in diesem Fall mit einem Geschwindigkeitsgradienten anstatt der Scherrate berechnet werden, um sowohl die Dehn- als auch die Scherströmung zu berücksichtigen. Mit steigendem Anteil von Dehnströmung (ansteigendes α in Abbildung 2.15) wurde grundsätzlich ein Abfall der kritischen Kapillarzahl beobachtet. Außerdem konnte mit steigendem Dehnanteil Tropfenauflbruch bei steigenden Viskositätsverhältnissen größer 4 festgestellt werden.

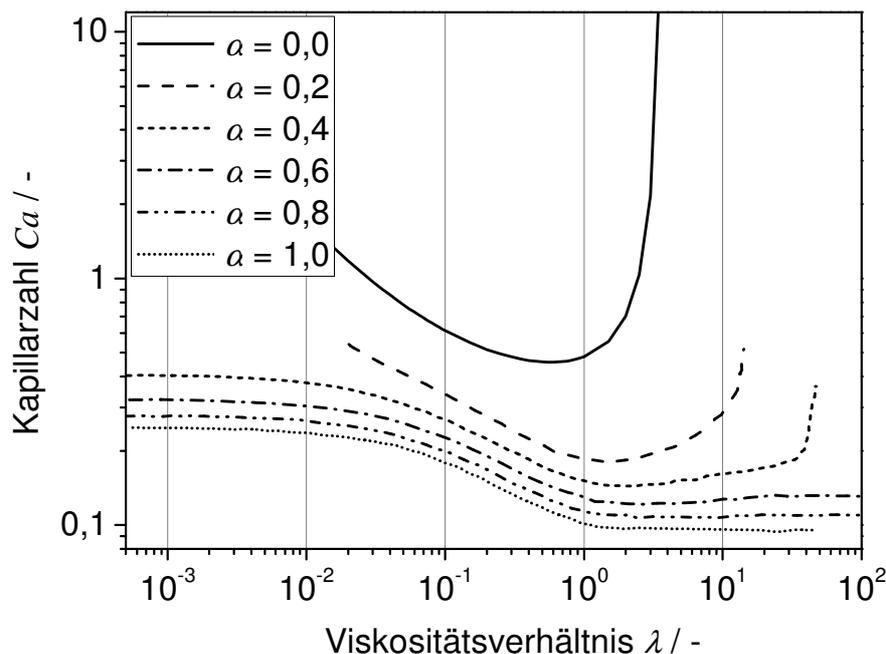


Abbildung 2.15: Verlauf der kritischen Kapillarzahl in Abhängigkeit vom Viskositätsverhältnis λ (nach Gleichung 2.28) bei unterschiedlichen Anteilen von Dehn- und Scherströmung ($\alpha = 0$ reine Scherströmung, $\alpha = 1$ reine Dehnströmung) nach Grace [71] und Bentley und Leal [72].

Armbruster [73] und Jansen et al. [74] haben gezeigt, dass im Fall konzentrierter Emulsionen die Viskosität der Emulsion η_e anstatt der Viskosität der kontinuierlichen Phase zur Berechnung von λ benutzt werden muss – siehe Gleichung 2.29.

$$\lambda = \eta_d / \eta_e \quad (2.29)$$

In vielen Anwendungen weisen die eingesetzten Flüssigkeiten allerdings kein newtonsches Verhalten auf. Im Fall von strukturviskosem Verhalten können bei Kenntnis der auftretenden Scherraten im Prozess die rheologischen Eigenschaften berücksichtigt werden. Viele Forschungsgruppen haben den Effekt von viskoelastischem Verhalten auf den Tropfenaufbruch untersucht, was unter anderem von Guido [75] zusammengefasst worden ist. Demnach haben zwar theoretische Untersuchungen gezeigt, dass newtonsche Tropfen in viskoelastischer Matrix geringere Deformation aufwiesen, aber einige experimentelle Untersuchungen zeigten einen gegenteiligen Trend.

2.5 Zerstäubung von Emulsionen

Die Zerstäubung von Emulsionen ist weit verbreitet in technischen Prozessen: So werden beispielsweise in der Produktion von milchhaltigen Instantgetränken und Babynahrung milchhaltige Konzentrate für die Sprühtrocknung zerstäubt. Ein wichtiges Ziel hierbei ist die Verkapselung des Fettanteils in einer amorphen Matrix um Fettoxidation zu vermeiden [76]. Die Verkapselung von gezielt eingebrachten Nährstoffen oder pharmazeutischen Wirkstoffen in der dispersen Phase ist bei der Sprühtrocknung ebenfalls eine häufige Aufgabe [77,78,79]. Über die Lebensmittel- oder Pharmaindustrie hinaus ist die Zerstäubung von Emulsionen beispielsweise in der Verbrennungstechnik von Interesse: Wasser-in-Diesel- oder Diesel-in-Wasser-in-Diesel-Emulsionen werden eingesetzt, um die Emissionen von Stickoxiden und Ruß zu reduzieren und gleichzeitig die Verbrennungseffizienz zu steigern [80]. Bei der Zerstäubung von Düngemitteln wird durch den Einsatz von Öl-in-Wasser-Emulsionen eine Tropfengrößenverteilung des Sprays erreicht, die den Drift des Sprays reduziert und so eine gezieltere Ausbringung erlaubt [81]. Es wurde darüber hinaus auch die Formulierung einer Emulsion für die Sprühtrocknung direkt im Zerstäuber untersucht [82].

Einige Untersuchungen in eigenen Arbeiten haben gezeigt, dass mit ansteigender Belastung aufgrund der Zerstäubung eine Verringerung der Tropfengröße der dispersen Phase zu beobachten ist [83,84,85]. In einigen Anwendungen ist die Belastung aufgrund der Zerstäubung zwar nicht ausreichend um einen Tropfenaufbruch zu verursachen, aber es wird angenommen, dass die Deformation der Tropfen die Form der Spraybildung beeinflusst [81].

Die unterschiedlichen Prozesse, bei denen Emulsionen zerstäubt werden, haben gemein, dass die Tropfengröße der dispersen Phase und somit auch der Einfluss der Zerstäubung auf diese relevant für den Gesamtprozess sind: Bei der Verkapselung von Aromen wurde durch die Verringerung der Tropfengröße der dispersen, mit Aroma beladenen Phase eine verringerte Retention beobachtet [86]. Der gleiche Trend wurde in weiteren Publikationen hinsichtlich der Verkapselungseffizienz von Aroma und Öl festgestellt, wie Jafari et al. [77] zusammengefasst haben. Als sehr entscheidend hat sich die Tropfengröße auch im Bereich der Verbrennung von Wasser-in-Diesel-Emulsionen erwiesen. Eine zu geringe Tropfengröße der dispersen Phase verursacht kleinere Verpuffungen an der Spraytropfenoberfläche und verhindert somit Mikroexplosionen der ganzen Spraytropfen und sekundären Aufbruch, was aber für die Emissionsreduzierung von Stickoxiden und anderen Schadstoffen erforderlich ist [87].

Nach aktuellem Kenntnisstand gibt es bisher keine Untersuchungen zur „effervescent atomization“ von Emulsionen und zum Einfluss auf die Tropfengrößenverteilung der dispersen Phase.

3 Zielsetzung

Motiviert durch das Potential für einen Einsatz der „effervescent atomization“ in der Sprühtrocknung rheologisch komplexer und mehrphasiger Flüssigkeiten ergeben sich die folgenden Zielsetzungen für diese Arbeit:

- Es soll untersucht werden, ob der „effervescent atomizer“ eine effiziente Zerstäubung in einem weiten Bereich der rheologischen Eigenschaften von rheologisch komplexen und mehrphasigen Flüssigkeiten ermöglicht und zur herkömmlichen außenmischenden pneumatischen Zerstäubung vergleichbare Kenngrößen aufweist.
- Um den Einfluss der Stoff- und Prozessparameter auf die Spraytropfengröße zu beschreiben soll ein Modell für die untersuchten rheologisch komplexen und mehrphasigen Flüssigkeiten aufgestellt und validiert werden.
- Es soll untersucht werden, ob ein Zusammenhang von Spraybild – u. a. Stetigkeit und Pulsation – und der Spraytropfengrößenverteilung besteht und wie dieser von Stoff- und Prozessparametern beeinflusst wird. Es soll geklärt werden, in welcher Form dies genutzt werden kann um die für die Sprühtrocknung wichtigen Kenngrößen (mittlere Tropfengröße und Breite der Verteilung) gezielt zu beeinflussen.
- Bei der „effervescent atomization“ mehrphasiger Flüssigkeiten soll untersucht werden, ob durch die Beanspruchung beim Zerstäubungsvorgang abhängig von den Stoffeigenschaften die innere Struktur der Flüssigkeit beeinflusst wird und ob dies gezielt kontrolliert werden kann.
- Es soll geklärt werden, ob und unter welchen Rahmenbedingungen mit dem „effervescent atomizer“ in vorhandenen Sprühtrocknern ein stabiler Betrieb und Partikelherstellung möglich ist.

Für die angedachte Anwendung in der industriellen Sprühtrocknung begrenzen sich die relevanten Stoff- und Prozessparameter dabei auf die Flüssigkeitseigenschaften,

Zuführung der Fluide (Druck, Volumen-/Massenströme) sowie die Düsengeometrie. Eine Anpassung des Zerstäubungsgases (Dichte) oder eine Veränderung der Atmosphäre (Dichte, Druck) ist in der industriellen Sprühtrocknung irrelevant.

Wie einleitend erwähnt wurde, weisen natürliche Grundstoffe oft eine starke Schwankung der Stoffeigenschaften auf. Daher wird in dieser Arbeit anstatt eines natürlichen Polymers – beispielsweise Stärke – ein synthetisches Polymer zur reproduzierbaren Einstellung der rheologischen Eigenschaften eingesetzt.

4 Materialien und Methoden

4.1 Verwendete Stoffsysteme

Für die Untersuchungen wurden zwei Stoffsysteme eingesetzt: Als einphasiges System wurden wässrige Polyvinylpyrrolidonlösungen verwendet und als zweiphasiges System Öl-in-Wasser-Modellemulsionen.

4.1.1 Polyvinylpyrrolidon

Polyvinylpyrrolidon (PVP) ist ein wasserlösliches Polymer, welches aus dem Monomer Vinylpyrrolidon hergestellt wird. Die Eigenschaften von PVP hängen stark vom Polymerisationsgrad und, im Fall von Lösungen, von der Konzentration ab. Der Polymerisationsgrad wird in der Polymerchemie üblicherweise mit dem sogenannten K-Wert charakterisiert, der mit steigendem Wert einen steigenden Polymerisationsgrad anzeigt. PVP wird unter anderem weit verbreitet als Klebe- oder pharmazeutisches Bindemittel eingesetzt [88].

Zur Herstellung der PVP-Lösungen wurden pulverförmiges Luvitec K30 ($M_W \approx 4,5 \cdot 10^4 - 5,5 \cdot 10^4$ Da) und Luvitec K90 ($M_W \approx 1,2 \cdot 10^6 - 2,0 \cdot 10^6$ Da) (beide BASF SE) und demineralisiertes Wasser verwendet. Der Wassergehalt der Pulver wurde regelmäßig überprüft und bei der Herstellung der Lösungen berücksichtigt. Alle Prozentangaben sind Massenprozent.

4.1.2 Öl-in-Wasser-Modellemulsion

Auf Basis vorangegangener Untersuchungen [85] wurde eine Modellemulsion eingesetzt, deren kontinuierliche Phase sich aus demineralisiertem Wasser, Maltodextrin (MD, Cargill C*Dry MD 01910, Dextroseäquivalentwert 12,5 - 15,5, $M_W \approx 10^4$ Da [89]) und Milchprotein (Arla Foods GmbH Lacprodan 87) als Emulgator zusammensetzte. Bei der dispersen Phase handelte es sich um reines Pflanzenöl (St. Wendeler Ölsaaten). Der Dispersphasenanteil wurde auf 20 % der Gesamtmasse eingestellt, der Anteil des Emulgators auf 2 % der Gesamtmasse. Die Viskosität der kontinuierlichen Phase wurde durch unterschiedliche MD-Anteile im Bereich von 0 bis 50 % der kontinuierlichen Phase festgelegt.

Zur Herstellung der Emulsion wurde eine Kolloidmühle (FrymaKoruma MZ80/A) eingesetzt. Um die Herstellung bei konstanten Stoffbedingungen (u. a. Viskosität) durchzuführen und dadurch eine konstante Ausgangstropfengröße für alle Rohemulsionen zu erzielen, wurden zur Herstellung einer Voremulsion nur die disperse Phase

sowie der Emulgator und 18 % Wasser (Flüssigkeitsvolumen 4,8 l) bei einer Spaltweite von 0,3 mm und einer Rotordrehzahl von 2885 min^{-1} für 8 min emulgiert. Das verbleibende Wasser und das MD wurden separat zu einer Lösung vermischt. Abschließend wurden die Voremulsion und die MD-Lösungen mit unterschiedlichen MD-Konzentrationen zusammengegeben um unterschiedliche Viskositätsverhältnisse zu erzielen. Dies wurde vorsichtig vermischt um die Tropfengrößenverteilung der Rohemulsion nicht zu beeinflussen.

4.2 Materialcharakterisierung

Für die eingesetzten Stoffsysteme wurden die bei der Zerstäubung relevanten Stoffgrößen charakterisiert: rheologische Eigenschaften (4.2.1), Oberflächen- und Grenzflächenspannung (4.2.2) und Dichte. Die Dichte wurde mittels eines Messzylinders (meist 100 ml) und einer Waage in Dreifachmessung ermittelt. Mit Hilfe eines Refraktometers (Carl-Zeiss) wurde für die transparenten PVP-Lösungen der Brechungsindex in Dreifachmessung gemessen. Zur Charakterisierung der Emulsionen wurde deren Öltropfengrößenverteilung vor und nach der Zerstäubung bestimmt (4.2.3).

4.2.1 Rheologische Eigenschaften

Grundlagen

Rheologie ist die Wissenschaft, die das Fließen beschreibt [90(3)]. Eine der einfachsten Beschreibungen von Fließen ist die Scherung eines Fluids. Den Zusammenhang zwischen der Scherrate $\dot{\gamma}$ und der Schubspannung τ beschreibt die (dynamische) Scherviskosität η wie in Gleichung 4.1 gezeigt [91(5)].

$$\eta = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} \quad (4.1)$$

In Abbildung 4.1 sind drei grundlegende rheologische Verhalten dargestellt. Ein newtonsches Fluid (1, beispielsweise Wasser) weist keine Abhängigkeit der Scherviskosität von der Scherrate auf. Ein strukturviskoses Fluid (2, auch als scherverdünnend bezeichnet) zeigt hingegen eine Abhängigkeit und die gemessene Scherviskosität sinkt mit steigender Scherrate. Bei einem dilatanten Fluid (3, auch als scherverdickend bezeichnet) steigt im Gegensatz hierzu die gemessene Scherviskosität mit steigender Scherrate an [91(6)].

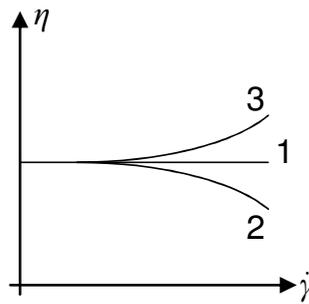


Abbildung 4.1: Beispielhafte Abhängigkeit der Scherviskosität η von der Scherrate $\dot{\gamma}$; newtonsches (1), strukturviskoses (2) und dilatantes (3) Verhalten.

Die zuvor beschriebene Theorie ist in der Lage rein viskose Fluide zu beschreiben, kann aber kein elastisches Verhalten beschreiben. Aus oszillatorischen Messungen können das Speichermodul G' und das Verlustmodul G'' bestimmt werden [91(12-8)], die mit den viskosen und elastischen Eigenschaften korrespondieren. Für $G' = 0$ liegt ideal viskoses Verhalten vor und umgekehrt für $G'' = 0$ ideal elastisches Verhalten [90(53)].

Die rheologischen Eigenschaften von Polymerlösungen werden stark von der Kettenlänge der Polymere und der Konzentration der Lösungen beeinflusst. Mit steigender Konzentration steigt allgemein die, bei konstanter Scherrate gemessene, Viskosität. Bei niedrigen Scherraten haben die Lösungen meist ein quasinewtonsches Verhalten, bei hohen Scherraten tritt hingegen oft ein strukturviskoses Verhalten auf. Diese Effekte verstärken sich meist mit steigender Kettenlänge, da hierdurch die Kontaktwahrscheinlichkeit der Moleküle ansteigt [90(127-8)]. In Abhängigkeit der Kettenlängenverteilung und der Konzentration treten in vielen Polymerlösungen auch elastische Eigenschaften auf [90(150-1)].

Neben der Scherrheologie ist für die Zerstäubung auch die Dehnrheologie relevant, da beispielsweise beim Ligamentaufbruch auch Dehnbelastungen auftreten können. Die Dehnviskosität η_{de} wird, nach Gleichung 4.2, aus der Schubspannung und der Dehnrate $\dot{\epsilon}$ berechnet. Trouton [92] hat gezeigt, dass im Falle einer newtonschen Flüssigkeit und uniaxialer Dehnung die Dehnviskosität dem dreifachen der Scherviskosität entspricht – siehe Gleichung 4.3. Für nichtnewtonsches Verhalten sind keine Beziehungen bekannt.

$$\eta_{de} = \frac{\tau}{\dot{\epsilon}} \quad (4.2)$$

$$\eta_{de} = 3 \cdot \eta \quad (4.3)$$

Bei der Messung der Dehnrheologie wird zumeist der zeitliche Verlauf des Fadendurchmessers einer Probe, die zwischen zwei, unter definierten Bedingungen auseinanderbewegten Platten aufgebracht ist, optisch erfasst und in Abhängigkeit von der notwendigen Zugspannung betrachtet. Wird hierbei der Fadendurchmesser nur an einer Position betrachtet, kann dies zu Fehlern führen, da von einem Zylinderfaden ausgegangen wird, der in vielen Fällen nicht vorliegt [93]. Darüber hinaus können bei Polymerlösungen Effekte wie „beads on a string“ die Erfassung des Fadendurchmessers stören [94]. Neben der Bestimmung der Dehnaviskosität kann aber auch die Fadenabrisszeit eine qualitative Auskunft über die Probe geben.

Messtechnik

Zur rheologischen Charakterisierung wurden beide Stoffsysteme bei 25 °C mit Hilfe eines Rotationsrheometers (Anton-Paar Physica MCR 101 oder 301) mit steigender Scherrate von 0,1 bis 1000 1/s untersucht. Mit einzelnen Proben wurden darüber hinaus oszillatorische Messungen zur Bestimmung der elastischen Eigenschaften durchgeführt. Je nach Viskosität wurde eine Kegel-Platte-Geometrie ($d = 50,0$ mm, Winkel 1°, CP-50-1/TG) oder eine Koaxialzylindergeometrie ($d_i = 26,7$ mm, $d_a = 28,9$ mm, CC27) genutzt. Die Messungen wurden dreifach mit jeweils neuem Probenmaterial durchgeführt.

Zur Bestimmung weiterer scherrheologischer und dehnrheologischer Eigenschaften wurden die PVP-Lösungen bei 25 °C mit Hilfe eines Kapillarrheometers (Rosand Rh2000, Kreiskapillare) und eines Dehnrheometers (HAAKE CaBER 1) untersucht. Die Kapillare hatte einen Durchmesser von 0,315 mm und eine Länge von 149,75 mm. Die Messwerte wurden bei stabilisiertem Druck und für PVP K30 dreifach bzw. für PVP K90 zweifach aufgenommen. Im Dehnrheometer wurde mit einer Startspaltweite von 3,0 mm und einem Plattendurchmesser von 6,0 mm gemessen. Die Messwerte für PVP K30 wurden vierfach, für PVP K90 fünffach aufgenommen. Die Messungen mittels Dehn- und Kapillarrheometer wurden bei der Firma BASF SE im Rahmen des DFG Schwerpunktprogramm 1423 „Prozess-Spray“ durchgeführt.

4.2.2 Grenz- und Oberflächenspannungen

Grundlagen

Die Oberflächenspannung σ zwischen einer Flüssigkeit und einer Gasphase beziehungsweise die Grenzflächenspannung γ zwischen zwei Flüssigkeiten beschreibt die

Arbeit ΔW , die erforderlich ist, um die Änderung der Ober-/Grenzfläche ΔA zu erzielen [95(214)], siehe Gleichung 4.4. Die Berechnung von γ ist analog zu σ und daher im Weiteren nicht separat aufgeführt.

$$\sigma = \frac{\Delta W}{\Delta A} \quad (4.4)$$

Die Messung mit der Wilhelmy-Platte ist eine der grundlegendsten Möglichkeiten zur Bestimmung der Ober-/Grenzflächenspannung, deren Aufbau in Abbildung 4.2 beschrieben ist. Zur Berechnung kann entsprechend Gleichung 4.5 vorgegangen werden. Durch Verwendung einer Platinplatte mit einem Kontaktwinkel θ von annähernd 0° vereinfacht sich die Gleichung weiter ($\cos \theta = 1$) [95(216-7)].

$$\sigma = \frac{F}{2 \cdot (b + l) \cdot \cos \theta} \quad (4.5)$$

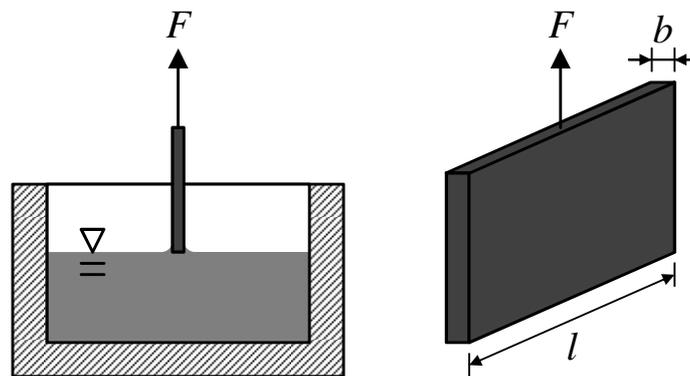


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung der Oberflächenspannungsmessung mittels Wilhelmy-Platte.

Bei der sogenannten „pendant drop“ (dt.: hängender Tropfen) Messung wird ein Tropfen definierten Volumens entweder in die Gasphase oder eine andere Flüssigkeit durch eine Spritze eingebracht. Mit einer Kamera und durch rechnergestützte Bildauswertung wird die Kontur des Tropfens erfasst. Der Messaufbau ist in Abbildung 4.3 dargestellt [96].

Die Ober-/Grenzflächenspannung wird unter Berücksichtigung der Flüssigkeitsdichte des Tropfens ρ_f , der Erdbeschleunigung g , dem Äquatorialdurchmesser d_1 und dem Formfaktor H entsprechend Gleichung 4.6 bestimmt. Der Formfaktor ist abhängig von dem Durchmesser Verhältnis s , siehe Gleichung 4.7. Die Durchmesser d_1 und d_2 sind in Abbildung 4.4 erläutert [97].

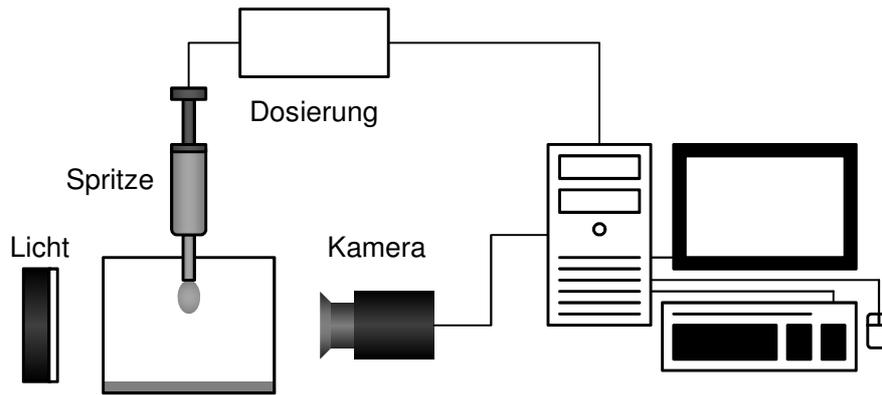


Abbildung 4.3: Schematische Darstellung des „pendant drop“ Messaufbaus nach Drusch et al. [96].

$$\sigma = \frac{\rho_f \cdot g \cdot d_1^2}{H(s)} \quad (4.6)$$

$$s = \frac{d_1}{d_2} \quad (4.7)$$

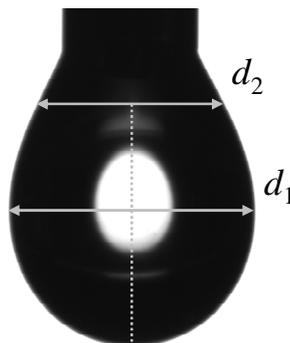


Abbildung 4.4: Exemplarisches Bild eines „pendant drop“ mit Äquatorialdurchmesser d_1 und Durchmesser d_2 in Höhe d_1 von Tropfenende.

Beide beschriebenen Messverfahren erlauben es grundsätzlich Ober- und Grenzflächenspannung und, bei vorhandener Temperierung, die Abhängigkeit dieser von der Temperatur zu bestimmen.

Messtechnik

Die Oberflächenspannung der PVP-Lösungen und der Modellemulsionen sowie die Grenzflächenspannung zwischen disperser und kontinuierlicher Phase der Modellemulsionen wurden mittels eines Tensiometers (DataPhysics Instruments DCAT 21) und einer Wilhelmy-Platte bei Raumtemperatur dreifach bestimmt. Als Stabilitätskriterium für die Messung der Oberflächenspannung der Modellemulsionen wurde hier

eine Veränderung von weniger als 0,3 mN/m in 10 s festgelegt. Weiterhin wurde die Oberflächenspannung der kontinuierlichen Phase der Modellemulsionen mittels der „pendant drop“ (dt.: hängender Tropfen) Methode (DataPhysics Instruments OCA 20) bei 25 °C zweifach bestimmt.

Die Nutzung des DataPhysics Instruments OCA 20 war in Zusammenarbeit mit Prof. Stephan Drusch, Beuth Hochschule für Technik Berlin (zwischenzeitlich Technische Universität Berlin), im Rahmen des DFG Schwerpunktprogramms 1423 „Prozess-Spray“ möglich.

4.2.3 Öltropfengrößenverteilung

Zur Bestimmung der Öltropfengrößenverteilung der Emulsionen wurde ein Laserbeugungsspektrometer (Beckman Coulter LS 13320, Wellenlänge 780 nm, zusätzlich PIDS-Technologie) eingesetzt. Grundlegende Informationen zur Laserbeugungsspektrometrie finden sich in Kapitel 4.5.2. Die Streulichtdaten wurden unabhängig von der MD-Konzentration nach der Theorie von Mie mit einem optischen Modell für Pflanzenöl in Wasser (Brechungsindex: Wasser Re. 1,332, Im. 0,0; Öl Re. 1,473, Im. 0,0) ausgewertet. Als Kenngröße für die Tropfengrößenverteilung wurde der volumenspezifische Mediandurchmesser verwendet. Die Öltropfengrößenverteilung jeder Probe wurde dreifach mit jeweils neuem Material der Probe gemessen.

Zur besseren Darstellung des Zerstäubungseinflusses wird der normalisierte Mediandurchmesser χ entsprechend Gleichung 4.8 eingeführt.

$$\chi = x_{50,3;nach\ Zerstäubung} / x_{50,3;vor\ Zerstäubung} \quad (4.8)$$

4.3 Zerstäuber

Für die Versuche wurden „effervescent atomizer“ entsprechend der Auslegungsvorschrift von Chin und Lefebvre [31] konstruiert. Zur leichten Modifikation einzelner Teile der Zerstäuber wurde ein modulares Design gewählt, welches Abbildung 4.5 zeigt. Die Flüssigkeit wird zentral von oben zugeführt und das Gas (Zuführung über Kopfplatte, nicht dargestellt) von außen durch Injektionslöcher mit dem Durchmesser d_I in die Mischkammer mit dem Durchmesser d_M eingebracht. Das Zweiphasengemisch wird durch eine auswechselbare Düsenplatte mit Durchmesser d_D und Länge l_D des Düsenkanals gefördert. Der Durchmesser der Düsenplatte vor der Verjüngung entspricht d_M . In Abbildung 4.5 sind die Befestigungsschrauben der Düsenplatte noch

auflegend, im Laufe der Arbeit wurden diese zur besseren Spraybeobachtung versenkt, siehe Foto in Abbildung 4.9.

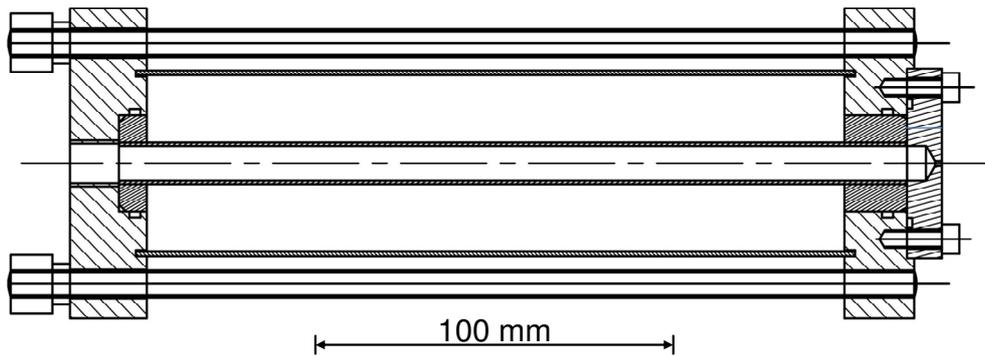


Abbildung 4.5: Skizze des modularen „effervescent atomizer“. Von links Flüssigkeitszufuhr, Gaszufuhr über Kopfplatte (nicht dargestellt), rechts Sprayaustritt durch variable Düsenplatte.

In Abbildung 4.6 ist die genaue Geometrie der Mischkammer und des Düsenkanals mit den relevanten Größen dargestellt. Eine Auflistung der untersuchten Düsengeometrien sowie der verwendeten Bezeichnungen zeigt Tabelle 4.1.

Die Geometrien D15 bis D150 unterscheiden sich in der Düsenkanallänge l_D – im Fall der Geometrie D150 wurde die Dicke der Düsenplatte verdoppelt. Die Geometrien D10, D15 und D20 unterscheiden sich sowohl in Düsenkanallänge l_D als auch Düsendurchmesser d_D . Diese wurden so gewählt, dass ein konstantes l_D/d_D Verhältnis von 1 erreicht wurde. D15 und D15 minimix unterscheiden sich im Mischkammerdurchmesser d_M . Die Gasinjektionsbohrungen wurden entsprechend Abbildung A1.2 in Anhang 1 in zwei Ebenen asymmetrisch angeordnet, da dies laut Sojka [98] vorteilhaft für die Strömungsbildung in der Mischkammer und das resultierende Spray ist. Für die meisten Untersuchungen wurde die in Abbildung 4.6 links dargestellte Injektionsgeometrie mit 9 Bohrungen mit Durchmesser $d_I = 0,5$ mm genutzt.

Für einige Untersuchungen wurde die in Abbildung 4.6 rechts dargestellte Geometrie mit 25 Bohrungen mit Durchmesser $d_I = 0,3$ mm eingesetzt. Die Querschnittsfläche der Gasinjektion blieb dabei konstant. Die Bohrungen wurden hier in fünf Ebenen entsprechend Abbildung A1.2 in Anhang 1 „1. Ebene“ mit jeweils 90° Versatz angeordnet. Die Nutzung dieser Gasinjektionsgeometrie wird im Weiteren mit dem Zusatz „fein“ bei der Düsengeometrie angezeigt.

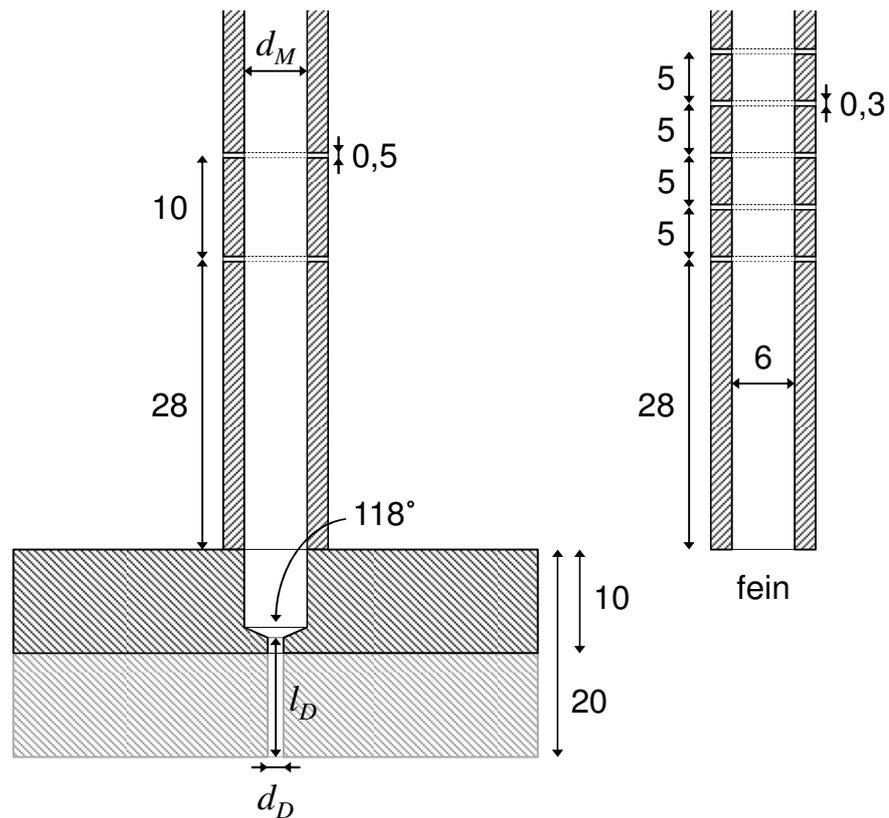


Abbildung 4.6: Skizze der Düsengeometrie mit folgenden veränderten Größen: Durchmesser der Mischkammer d_M , des Düsenkanals d_D und Länge des Düsenkanals l_D . Gesamtdicke der Düsenplatte immer 10 mm außer für D150 20 mm. Standardgasinjektionsgeometrie links ($d_I = 0,5$ mm), feine Gasinjektionsgeometrie rechts ($d_I = 0,3$ mm).

Tabelle 4.1: Übersicht der Maße aller Düsengeometrien mit zugeordneten Bezeichnungen.

Bezeichnung	d_M / mm	l_D / mm	d_D / mm	l_D/d_D / -
D15	6	1,5	1,5	1
D30	6	3,0	1,5	2
D45	6	4,5	1,5	3
D60	6	6,0	1,5	4
D150	6	15,0	1,5	10
D15 minimix	4	1,5	1,5	1
D10	6	1,0	1,0	1
D20	6	2,0	2,0	1

Für Vergleichsversuche wurde ein herkömmlicher, außenmischender pneumatischer Zerstäuber eingesetzt, siehe Abbildung A1.3 in Anhang 1. Hierbei tritt die Flüssigkeit

zentral ($d_f \approx 2,1$ mm) und das Zerstäubungsgas durch den Ringspalt ($d_{innen} = 4,7$ mm, $d_{außen} = 5,2$ mm) aus. Es wurden keine Variationen dieser Geometrie vorgenommen.

4.4 Sprühtrocknung

Für Sprühtrocknungsversuche wurden zwei Pilotsprühtrockner mit einer kompakten Variante des „effervescent atomizer“ verwendet. Der Karlsruher Sprühtrockner (Industriewerke Karlsruhe (IWK) C117A, Baujahr 1961, letzte Runderneuerung 2007, Abbildung A12.1 in Anhang 12) hat einen Trocknungsraum mit einer Gesamthöhe (Zylinder und Konus) von circa 1,5 m und einen maximalen Durchmesser von 0,95 m. Das gesamte Produkt wird über den Zyklon vom Luftstrom abgeschieden.

Der Dortmunder Sprühtrockner (Eigenbau Prof. Peter Walzel et al., Abbildungen A12.2 und A12.3 in Anhang 12) hat einen Trocknungsraum mit einer Gesamthöhe (Zylinder und Konus) von circa 3,7 m und einen Durchmesser von maximal 2,7 m. Im Gegensatz zum Pilotsprühtrockner in Karlsruhe wird nicht der gesamte Produktstrom über den Zyklon abgeschieden, sondern eine Grobfraktion am Untereinde des Konus und eine Feinfraktion über den Zyklon. Aus Erfahrungswerten liegt die Trennkorngröße zwischen den beiden Fraktionen an diesem Trockner bei circa 75 μm . Ein Schema zum Vergleich der Produktentnahme ist in Abbildung 4.7 dargestellt.

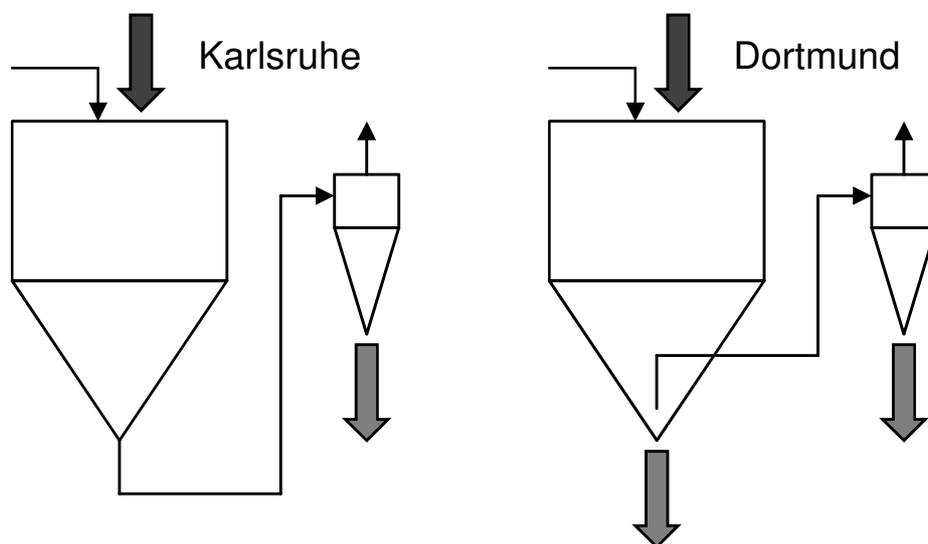


Abbildung 4.7: Schema der beiden eingesetzten Sprühtrockner in Karlsruhe (links) und Dortmund (rechts) zum Vergleich der Produktentnahme (graue Pfeile).

Die Nutzung des Dortmunder Pilotsprühtrockners war in Zusammenarbeit mit Axel Mescher, Technische Universität Dortmund, im Rahmen des DFG Schwerpunktprogramms 1423 „Prozess-Spray“ möglich.

Die kompakte Variante des „effervescent atomizer“ ermöglicht ebenfalls das flexible Austauschen der Düsengeometrie. Eine Konstruktionsskizze ist in Abbildung A1.2 in Anhang 1 abgebildet sowie ein Foto ist in Abbildung A1.1 rechts in Anhang 1. Vor Durchführung der Sprühtrocknungsversuche wurde verifiziert, dass die Spraytropfengrößenverteilungen vom modularen und kompakten Zerstäuber vergleichbar sind, siehe Abbildung A12.4 in Anhang 12.

4.5 Spraycharakterisierung

Zur Spraycharakterisierung wurde ein Versuchsstand aufgebaut, der es ermöglichte die resultierenden Sprays unter definierten Prozessbedingungen mittels Laserbeugungsspektrometrie und anhand von Schattenaufnahmen hinsichtlich der Spraytropfengrößenverteilung, dem Flüssigkeitsaufbruchverhalten und der Sprayunstetigkeit zu charakterisieren.

4.5.1 Versuchsstand und -durchführung

Der in Abbildung 4.8 schematisch dargestellte Versuchsstand erlaubt es, den Flüssigkeits- und Gasstrom zu regeln. Die Flüssigkeit wird volumetrisch durch eine Pumpe (Exzentrerschneckenpumpe (seepex MD 006-12) oder Zahnradpumpe (Doppelzahnrad, Antrieb VEM K21R 63 K2)) pulsationsarm gefördert. Der Flüssigkeitsvolumenstrom wird mit Hilfe eines Zahnradvolumenstromsensors (VSE VSI 04/16) bestimmt. Der relative Druck wird vor der Zuführung in die Düse gemessen. Zum Spülen und Anfahren des Systems kann die Flüssigkeitszufuhr im Betrieb von Probe auf Wasser und umgekehrt umgestellt werden. Die Druckluft wird gefiltert mit maximal 8 bar dem Hausversorgungsnetz entnommen und durch einen Massenflussregler (Bronkhorst High-Tech EL-FLOW) basierend auf Messung der Wärmekapazität eingestellt. Es wird ebenfalls der relative Druck vor der Zuführung in die Düse gemessen. Um Rückverwirbeln des Sprays in die Messzone zu vermeiden, befindet sich unterhalb der Messzone ein Auffangbehälter durch den ein Gebläse mit maximal 300 m³/h den Luftstrom und das dadurch mitgeführte Spray leitet. Die Flüssigkeit wird im Auffangbehälter größtenteils abgeschieden.

Bei allen Versuchen wurde zunächst mit Wasser bei hohem Volumenstrom das Spray angefahren, um sicherzustellen, dass keine Lufteinschlüsse im System vorhanden sind. Anschließend wurde auf Probenflüssigkeit umgestellt und der Volumenstrom für alle Versuche konstant auf 12 l/h eingestellt. Nach Einstellung des niedrigsten Gasmassenstroms wurde abgewartet bis das Messsignal (nur bei Laser-

beugungsspektrometrie) und die Fluiddrücke konstant waren, um Anfahreffekte bei der Messung auszuschließen. Im Weiteren wurden die gewünschten Einstellungen des Gasmassenstroms aufsteigend eingestellt und das Spray charakterisiert. In Abbildung 4.9 ist ein Foto eines Sprayversuchs mit Laserbeugungsspektrometer zu sehen.

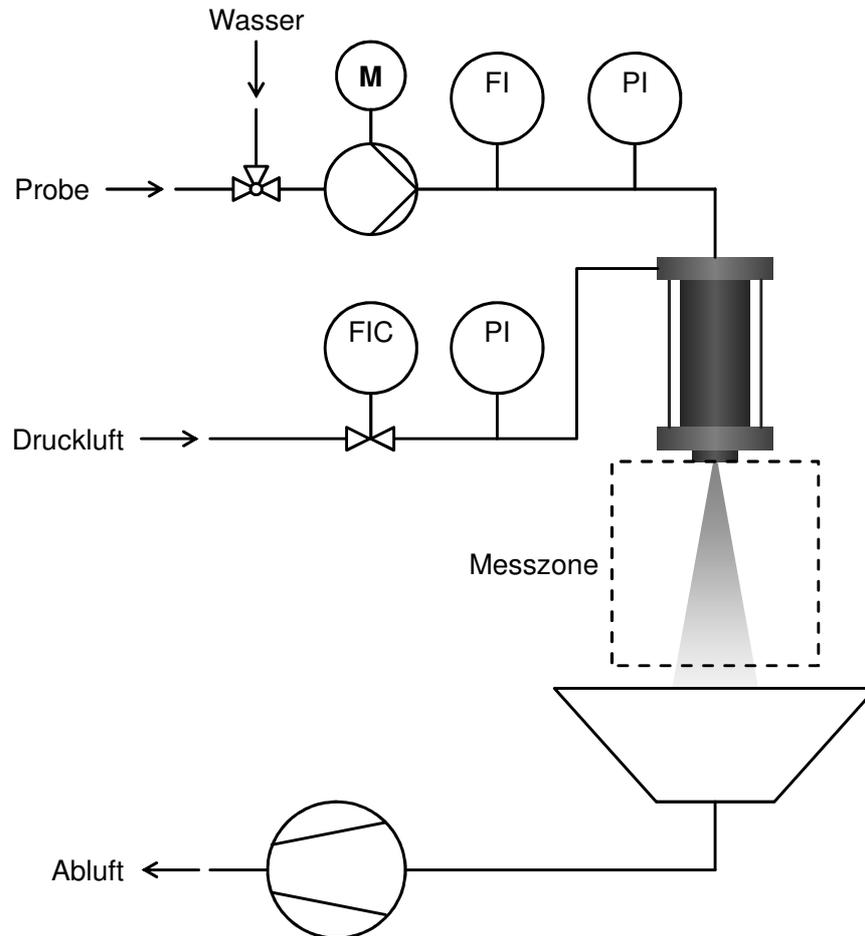


Abbildung 4.8: Fließbild des Versuchsstands mit Gas- und Flüssigkeitszuführung inkl. Druck- und Durchflussmessung sowie Sprayauffangeinrichtung mit angeschlossenem Gebläse.

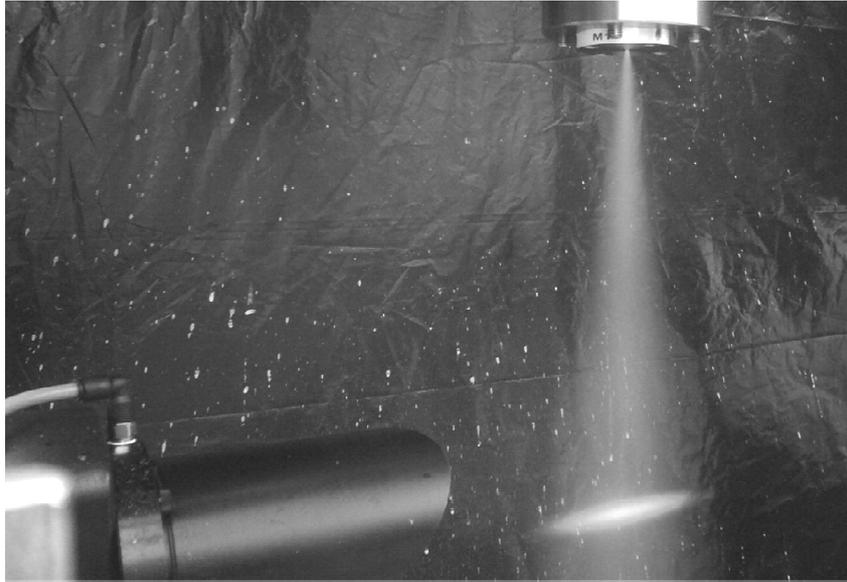


Abbildung 4.9: Foto einer Spraymessung. „effervescent atomizer“ mit Geometrie D15 (rechts oben), Empfängerseite des Spraytec (links unten) und Leuchten des Lasers im Spray (rechts unten).

4.5.2 Laserbeugungsspektrometrie

Grundlagen

Die Messung einer Tropfengrößenverteilung mittels Laserbeugungsspektrometrie (LBS) beruht auf der größenabhängigen Streuung von Licht an Tropfen durch Beugung und, im Falle transparenter Tropfen, Brechung. Das Licht wird dabei umso stärker gebeugt, je kleiner ein Tropfen ist. Zur Messung wird hierbei monochromatisches Laserlicht eingesetzt und das Beugungsmuster wird entsprechend dem in Abbildung 4.10 gezeigten Schema von Detektoren erfasst. Das Verhältnis der Intensität des ungebeugten Laserlichts I und der Ursprungsintensität I_0 wird als Transmission T bezeichnet, siehe Gleichung 4.9.

$$T = \frac{I}{I_0} \quad (4.9)$$

Für monodisperse Größenverteilungen ergibt sich nach der Theorie von Fraunhofer ein einfaches Beugungsmuster. Aber da in der Realität zumeist polydisperse Größenverteilungen vorliegen, wird eine Überlagerung einer Vielzahl von Beugungsmustern gemessen. Die Theorie von Fraunhofer ist allerdings nur für vollständig intransparente Tropfen gültig. Bzgl. der Mindesttropfengröße zur Anwendbarkeit der Theorie von Fraunhofer unterscheiden sich die Angaben in der Literatur allerdings stark; so gibt Merkes [99(264)] eine Größe von mindestens $50 \mu\text{m}$ an. Nach ISO 13320

[100(26-9)] ist im Bereich zwischen 2 und 50 μm entscheidend, ob opake oder transparente Tropfen vorliegen. Für opake Tropfen erzielt in diesem Bereich die Theorie nach Fraunhofer die gleichen Ergebnisse wie die Theorie von Mie [101]. Letztere ermöglicht unter anderem durch Berücksichtigung von stoffspezifischen Brechungsindizes die Bestimmung von Größenverteilungen transparenter Tropfen kleiner 50 μm . Die Transparenz wird dabei über den Imaginärteil des Brechungsindex berücksichtigt. In der Praxis wird bei der Laserbeugungsspektrometrie grundsätzlich die Annahme sphärischer Tropfen vorausgesetzt.

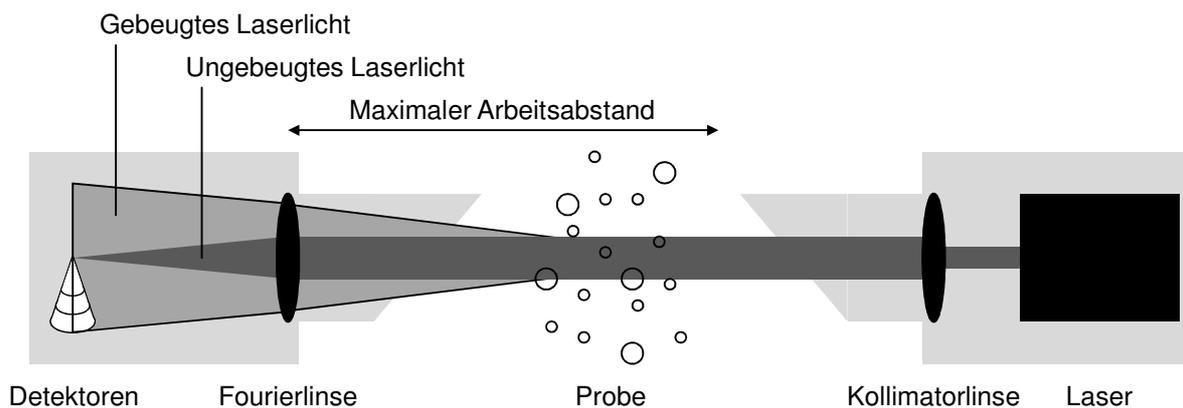


Abbildung 4.10: Schematische Darstellung des Messprinzips der Laserbeugungsspektrometrie. Das Laserlicht wird durch die Kollimatorlinse aufgeweitet und gleichgerichtet, durch die Probe teilweise gestreut und durch die Fourierlinse gebündelt. Dabei wird das ungebeugte Laserlicht in die Mitte gelenkt und das gebeugte auf die Detektoren. Die Brennweite der Fourierlinse bedingt den maximalen Arbeitsabstand.

Die Streuung des Laserlichts wird allerdings auch durch Unterschiede im Brechungsindex beeinflusst. Derartige Unterschiede können auch innerhalb der Gasphase durch unterschiedliche Dichten der vorliegenden Gase, Druckdifferenzen bei der Gasexpansion oder durch Beladung des Gases mit Lösungsmittel verursacht werden. Dieser Effekt wird zumeist als „beam steering“ bezeichnet und wurde von einige Autoren beschrieben [102,103]. Dies führt oft zu einer Phantommodalität im oberen Messgrößenbereich des Geräts, da die innersten, zur Laserachse nächsten Detektoren durch diese Streuung ein nicht durch Tropfen verursachtes Signal aufnehmen.

Messtechnik

Zur Bestimmung der Spraytropfengrößenverteilung kam ein Laserbeugungsspektrometer (Malvern Spraytec, Wellenlänge 632,8 nm) mit 750 mm Fourierlinse zum Einsatz, welches laut Hersteller einen Größenbereich von 2 bis 2000 μm ($x_{50,3}$ 5 bis 1600 μm) abdeckt. Das Messsystem verfügt über eine patentierte Option zum Aus-

gleich von Mehrfachstreuung, die beispielsweise bei hoher Spraydichte (hohe Abschattung, niedrige Transmission) zu erwarten ist. In der Untersuchung von Triballier [104] zeigte sich allerdings, dass der Ausgleich für inhomogene Sprays nicht zufriedenstellend funktioniert und bei Anwendung ohne vorliegende Mehrfachstreuung die Messdaten verfälschen kann. Daher wurde bei den hier vorgestellten Messungen die Option deaktiviert und eine Transmission von größer 0,4 angestrebt. Berrocal et al. [105] geben den Bereich der Einfachstreuung für eine Transmission größer 0,36 an. Die Laserachse wurde bei der Messung rechtwinklig zur Sprayachse angeordnet und befindet sich 25 cm (für D150 24 cm) mittig unterhalb des Düsenaustritts. Die Düse ist so positioniert, dass der gesamte Kegel innerhalb des maximalen Arbeitsabstands von 50 cm liegt. Zur Vermeidung von Ablagerungen auf der Fourierlinse oder der Kollimatorlinse ist ein Spülluftsystem installiert, welches diese reduziert. Ein Schema zeigt Abbildung 4.11.

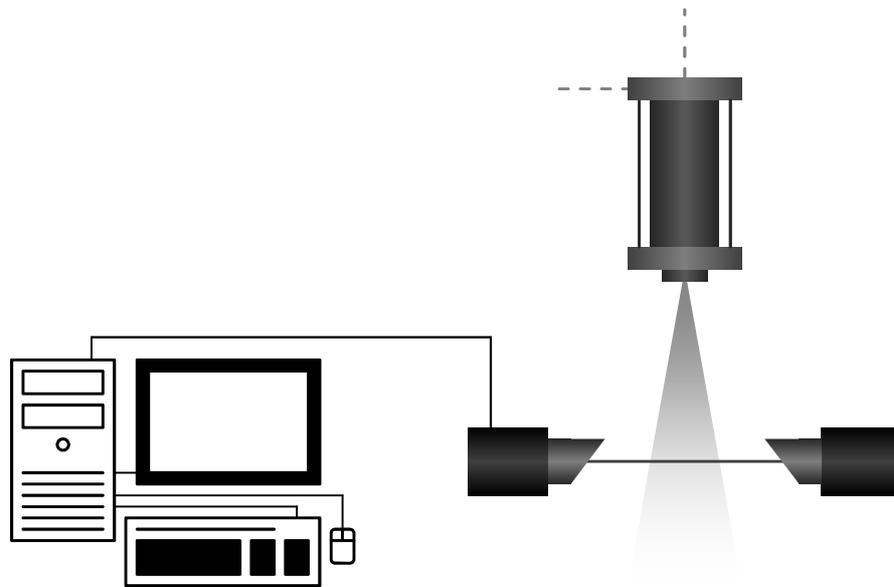


Abbildung 4.11: Schematische Darstellung des Messaufbaus zur Tropfengrößenmessung mittels Laserbeugungsspektrometrie.

Die Spraytropfengrößenverteilungen wurden aus gemittelten Beugungssignalen von wenigstens 20 s Messzeit mit 1 Hz Auflösung im „Continuous Mode“ für jeden Messpunkt mindestens dreifach bestimmt. Die Messdaten der PVP-Lösungen wurden entsprechend der Theorie von Mie mit den ermittelten Brechungsindizes, siehe Tabelle 5.1 in Kapitel 5.1, und einem Imaginärteil von 0 ausgewertet, da die Lösungen vollständig transparent sind. Die Messdaten der Emulsionen wurden aufgrund nur

schwierig bestimmbarer Brechungsindizes und sehr niedriger Transparenz nach der Theorie von Fraunhofer ausgewertet.

Bei den Messungen kam es zu „beam steering“, welches vermutlich durch die Expansion der Gasphase und Verdunstungseffekte verursacht wurde. Zur Vermeidung von Verfälschungen der ermittelten Tropfengrößenverteilung haben Mescher und Walzel [103] als Vorgehen vorgeschlagen, die innersten, für die Messung der Phantommodalität verantwortlichen Detektoren zu deaktivieren bzw. das von diesen aufgenommene Messsignal nicht zu verwerten. In dieser Arbeit wurde die Abschaltung nur der innersten beiden Detektoren als geeignet angesehen, um den Effekt des „beam steering“ zu reduzieren, ohne den tatsächlich vorhandenen Grobgutanteil zu vernachlässigen.

Für einige Messungen war die Phantommodalität klar von den Modalitäten der Spraytropfengrößenverteilung abtrennbar. Daher wurde die Anwendbarkeit einer Korrektur überprüft, bei der mit Hilfe einer an die Phantommodalität angepassten Gaussfunktion (mittels OriginLab Origin 8G) die Phantommodalität entfernt wurde. In Abbildung 4.12 und Abbildung 4.13 ist der Sauterdurchmesser in Abhängigkeit vom ALR bei Auswertung des Messsignals ab Detektor 1 (innerster Detektor), ab Detektor 3 und bei Korrekturberechnung mit angepasster Gaussfunktion für PVP-K30-Lösungen mit 20 und 40 % abgebildet. In Abbildung 4.14 und Abbildung 4.15 sind korrespondierende volumenspezifische Verteilungssummen dargestellt – für die niedrige Konzentration mit einem hohen ALR (0,29), für die hohe Konzentration mit einem niedrigen ALR (0,14). Bei der niedrigen Konzentration konnte die Phantommodalität klar abgetrennt werden, für die höhere Konzentration war dies besonders bei geringem ALR nicht der Fall. Im Vergleich ist erkennbar, dass, im Falle einer klaren Trennbarkeit der Phantommodalität (20 %) durch die Korrekturberechnung mit angepasster Gaussfunktion, eine genauere Bestimmung der eigentlichen Spraytropfengrößenverteilung möglich ist. Sobald allerdings die klare Trennbarkeit nicht mehr vorliegt (40 %), wird durch die Korrekturberechnung mit angepasster Gaussfunktion der Grobanteil der eigentlichen Spraytropfengrößenverteilung verfälscht, was zu den abweichenden Werten in Abbildung 4.13 bei niedrigem ALR führt. Anhand des Vergleichs in Abbildung 4.12 und Abbildung 4.14 ist allerdings davon auszugehen, dass durch die Deaktivierung der beiden innersten Detektoren eine leichte Überschätzung der tatsächlichen Spraytropfengrößenverteilung vorliegt. Dennoch führt dieses Vorgehen insgesamt dennoch zu einer geringeren Verfälschung und ist auch für eine

große Anzahl an Messwerten anwendbar. In Anhang 2 ist in Abbildung A2.1 und Abbildung A2.2 der korrespondierende Vergleich der Standardabweichung s_2 dargestellt sowie in den Abbildung A2.3 und Abbildung A2.4 die mit den in Abbildung 4.14 und Abbildung 4.15 gezeigten volumenspezifische Verteilungssummen korrespondierenden volumenspezifische Verteilungsdichten. Die dort dargestellten Daten bestätigen die zuvor diskutierten Aspekte.

Daher wurden für die Auswertung aller Versuche die Messdaten der innersten zwei Streulicht erfassenden Detektoren nicht berücksichtigt. Laut Hersteller sind diese beiden Detektoren für die Messung des Beugungssignals volumenspezifischer Mediandurchmesser von 949 und 798 μm unter Annahme von Fraunhoferbeugung und eines Punktstrahlers verantwortlich, siehe auch Tabelle A2.1 in Anhang 2. Die Software extrapoliert allerdings das Beugungssignal und ermittelt dadurch eine Spraytropfengrößenverteilung im gesamten angegebenen Größenbereich.

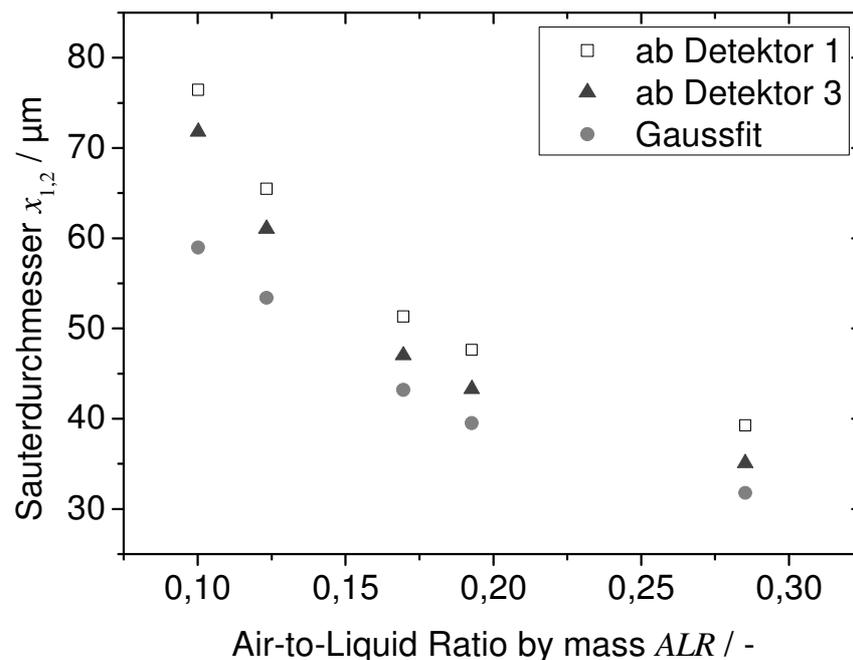


Abbildung 4.12: Vergleich der Sauterdurchmesser $x_{1,2}$ bei Auswertung des Messsignals ab Detektor 1 (innerster Detektor), ab Detektor 3 und bei Korrekturberechnung mit angepasster Gaussfunktion für PVP K30 20 % (D15, nach Fraunhofer).

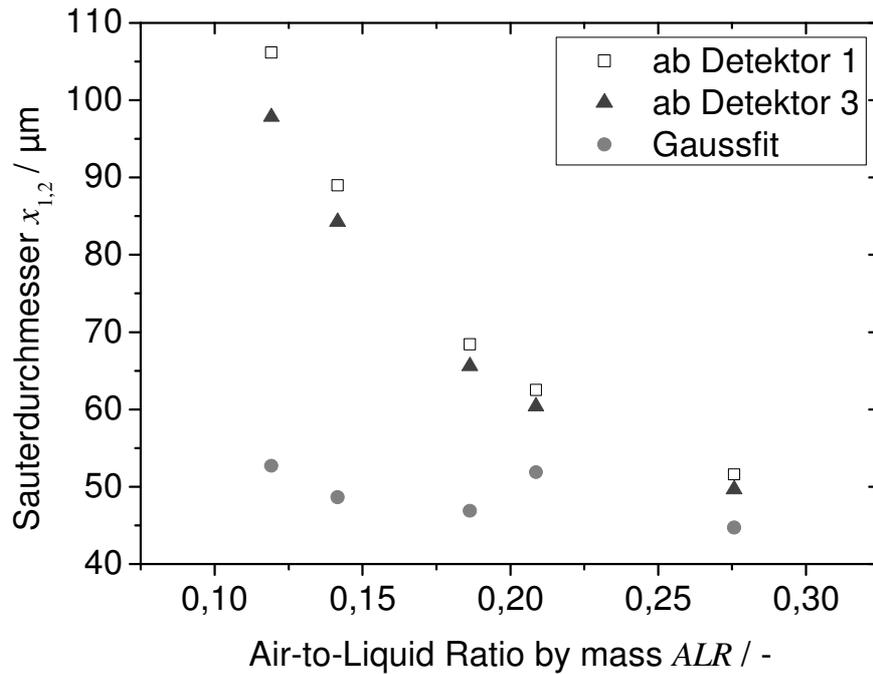


Abbildung 4.13: Vergleich der Sauterdurchmesser $x_{1,2}$ bei Auswertung des Messsignals ab Detektor 1 (innerster Detektor), ab Detektor 3 und bei Korrekturberechnung mit angepasster Gaussfunktion für PVP K30 40 % (D15, nach Fraunhofer).

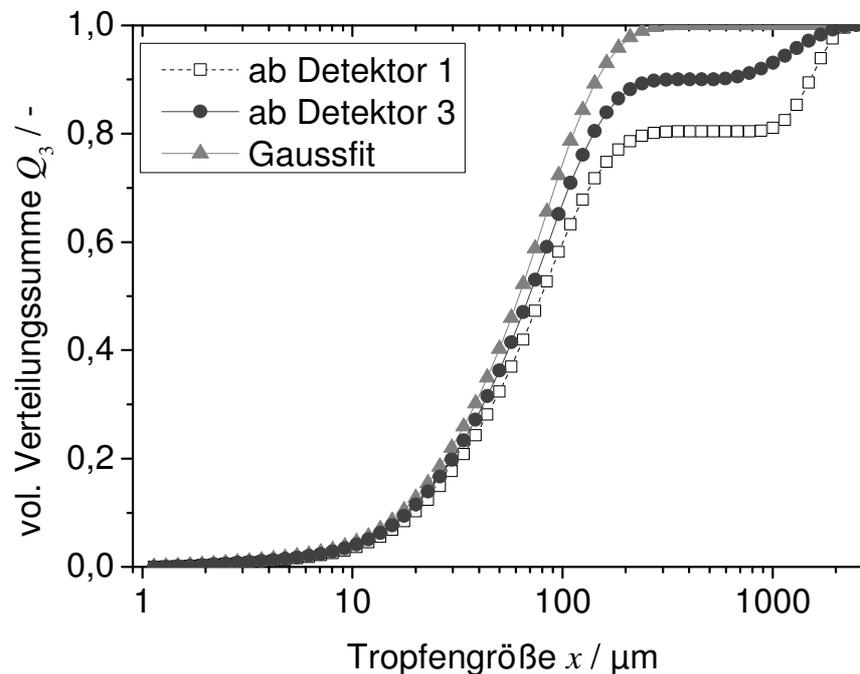


Abbildung 4.14: Volumenspezifische Verteilungssumme Q_3 bei Auswertung des Messsignals ab Detektor 1 (innerster Detektor), ab Detektor 3 und bei Korrekturberechnung mit angepasster Gaussfunktion für PVP K30 20 % (D15, $ALR = 0,29$, nach Fraunhofer).

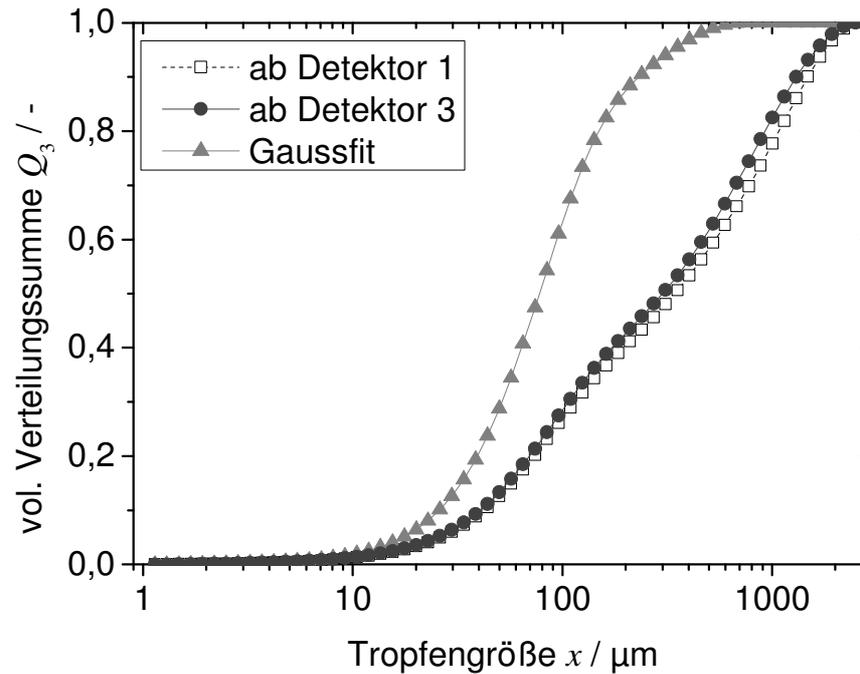


Abbildung 4.15: Volumenspezifische Verteilungssumme Q_3 bei Auswertung des Messsignals ab Detektor 1 (innerster Detektor), ab Detektor 3 und bei Korrekturberechnung mit angepasster Gaussfunktion für PVP K30 40 % (D15, $ALR = 0,14$, nach Fraunhofer).

Charakteristische Kenngrößen

Als charakteristische Kenngrößen zur Beschreibung der Spraytropfengrößenverteilung werden in der Literatur zumeist der Sauterdurchmesser $x_{1,2}$ (nach DIN ISO 9276-2 [106] mit Makron, aber in dieser Arbeit ohne Makron dargestellt) oder der volumenspezifische Mediandurchmesser $x_{50,3}$ als Mittelwert und der Span als Maß für die Verteilungsbreite verwendet. Der Sauterdurchmesser wird auch als gewogener mittlerer Flächendurchmesser bezeichnet [106] und ist der Tropfendurchmesser einer monodispersen Verteilung mit gleicher volumenbezogener Oberfläche wie die der charakterisierten polydispersen Verteilung [17(139)]. Der Span ergibt sich entsprechend Gleichung 4.10 aus den Quantilen $x_{10,3}$ und $x_{90,3}$ der volumenspezifischen Verteilungssumme und dem volumenspezifischen Mediandurchmesser.

$$\text{Span} = \frac{x_{90,3} - x_{10,3}}{x_{50,3}} \quad (4.10)$$

Zur Charakterisierung der Spraytropfengrößenverteilung wurde in dieser Arbeit der Sauterdurchmesser als Mittelwert genutzt, da dieser auch die für die Sprühtrocknung relevante Oberfläche berücksichtigt. Als Maß für die Breite wurde anstatt des Spans die Standardabweichung s_2 der oberflächenspezifischen Verteilungssumme gewählt.

Dies liegt darin begründet, dass bei konstanter absoluter Größe des Intervalls zwischen den Quantilen eine Veränderung des Mediandurchmessers zu einer starken Veränderung des Spans führt. Die Standardabweichung gibt für eine Normalverteilung die Differenz der Ober- und Untergrenze vom Modalwert für den Bereich an, in dem 68,3 % der Werte der Verteilung vorliegen und wird nicht durch den Medianwert beeinflusst. Sie wird nach Gleichung 4.11 anhand der oberflächenspezifischen Verteilungsdichte q_2 berechnet wird [106]. Im Weiteren wird das Formelzeichen s_2 im Text mitgeführt, um eine Verwechslung mit der Standardabweichung von Mehrfachmessungen zu vermeiden.

$$s_2^2 = \int_{x_{min}}^{x_{max}} (x - x_{1,2})^2 \cdot q_2(x) dx \quad (4.11)$$

4.5.3 Lokale Spraytropfengrößenverteilung – Abel Inversion

Mittels der Laserbeugungsspektrometrie ist es nur möglich, die integrale Tropfengrößenverteilung in der Schnittmenge des Sprays und des Laserstrahls innerhalb des Messbereichs der Optik zu erfassen. Andere Messtechniken wie beispielsweise Phasendoppleranemometer (PDA) oder Laserlichtschnittverfahren in Kombination mit Bildanalyse sind in der Lage Tropfengrößenverteilungen an einem definierten Ort im Raum zu bestimmen. Um dies auch mittels Laserbeugungsspektrometrie zu erreichen, haben unter anderem Schmidt und Mewes [55] die Abel Inversion zur Berechnung lokaler Tropfengrößenverteilungen aus integralen Messdaten eingesetzt.

Die Abel Inversion ist eine mathematische Operation, die es erlaubt, integral bestimmte Daten (hier: Schnittmenge Laser und Spray) eines zweidimensionalen Datensatzes (hier: Spray) in lokal aufgelöste Daten umzurechnen. Eine der wichtigsten Voraussetzungen für die Anwendbarkeit der Abel Inversion ist hierbei die radiale Symmetrie bzw. die daraus folgende axiale Symmetrie der integral bestimmten Daten. In Abbildung 4.16 links ist der Messvorgang für ein Spray schematisch dargestellt, bei dem nacheinander an mehreren Messpositionen integrale Daten (hier: Tropfengrößenverteilungen) aufgenommen werden. In Abbildung 4.16 Mitte und rechts sind beispielhaft die Funktionen in Abhängigkeit der Messposition y (Mitte) und des Radius r (rechts) gezeigt. Der mathematische Zusammenhang ist in den Gleichungen 4.12 (Abel Transformation) und 4.13 (Abel Inversion) dargestellt [107].

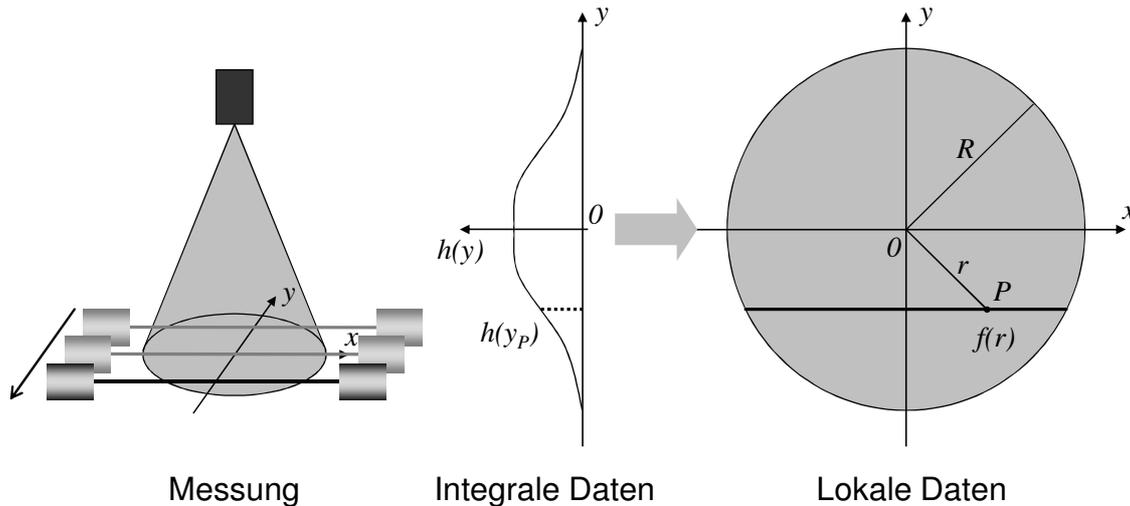


Abbildung 4.16: Darstellung des Messvorgangs an mehreren y -Positionen für die Abel Inversion (links); Zusammenhang zwischen der linearen Funktion (Mitte) und der radialen Funktion (rechts) nach Pretzler et al. [107].

$$h(y) = 2 \int_y^R f(r) \frac{r}{\sqrt{r^2 - y^2}} dr \quad (4.12)$$

$$f(r) = -\frac{1}{\pi} \int_y^R \frac{dh(y)}{dy} \cdot \frac{dy}{\sqrt{y^2 - r^2}} dr \quad (4.13)$$

Zur Bestimmung von lokal aufgelösten Tropfengrößenverteilungen eines Sprays in Abhängigkeit vom Radius müssen die integral gemessenen Daten (Abbildung 4.17 oben) zunächst mit der jeweiligen Volumenkonzentration gewichtet werden, um den Anteil an der gesamten Tropfengrößenverteilung zu berücksichtigen (Abbildung 4.17 Mitte). Die Volumenkonzentration c_v kann nach dem Lambert-Beerschen Gesetz mit der Extinktion E , dem Streuquerschnitt A_v und der durchstrahlten Weglänge l berechnet werden, siehe Gleichung 4.14. Die Extinktion kann aus der bei der Laserbeugungsspektrometrie gemessenen Transmission berechnet werden, siehe Gleichung 4.15. Der Streuquerschnitt ist abhängig von der Tropfengrößenverteilung sowie dem Extinktionskoeffizienten. Zur Berechnung des von der Tropfengröße und der Laserwellenlänge abhängigen Extinktionskoeffizienten wurde die Software BH-Mie-Rechner [108] verwendet [109(43-4)].

$$c_v = E / (A_v \cdot l) \quad (4.14)$$

$$E = -\ln(T) \quad (4.15)$$

Für jedes Größenintervall separat werden dann durch die Abel Inversion aus den gewichteten Daten die lokal aufgelösten Daten rekonstruiert [109(43-9)]. Für eine weitere Auswertung müssen zunächst negative Werte (Interpolationsfehler) durch Nullwerte ersetzt werden und die erhaltenen Verteilungsdichten wieder auf 1 normiert werden (Abbildung 4.17 unten).

Da für Messdaten meist keine Funktion bekannt ist, die die Abhängigkeit von der Messposition beschreibt, kann die Abel Inversion nicht direkt zur Rekonstruktion angewandt werden. Zur Bestimmung einer Funktion auf Basis von Messdaten kann beispielsweise eine Interpolation durchgeführt werden. Pretzler et al. [107] haben im Vergleich unterschiedliche Methoden zur Funktionsbestimmung und Abel Inversion von Daten die besten Ergebnisse durch Interpolation auf der f -Seite (Funktion mit radialer Abhängigkeit) erhalten. Die von Hipp et al. [110] ursprünglich zur Auswertung in der Interferometrie entwickelte Software IDEA (Interferometric Data Evaluation Algorithm) [111] verfügt darüber hinaus über eine auf Backus und Gilbert [112] basierende Methode, die für die hier gezeigten Daten eingesetzt wurde. Da jegliche Abweichungen von der axialen Symmetrie die Abel Inversion mathematisch unmöglich machen, kann zur Wahrung der vollständigen axialen Symmetrie diese entweder mittels der Software IDEA durch Ausgleich einer möglichen Schräglage und Mittelung der Daten oder durch manuelle Mittelung oder Spiegelung der Daten hergestellt werden. Eine Korrektur darf nur zum Ausgleich durch die Messungenauigkeit begründeter, minimaler Abweichungen durchgeführt werden, da sonst die Grundannahme der radialen Symmetrie für die Abel Inversion verletzt ist.

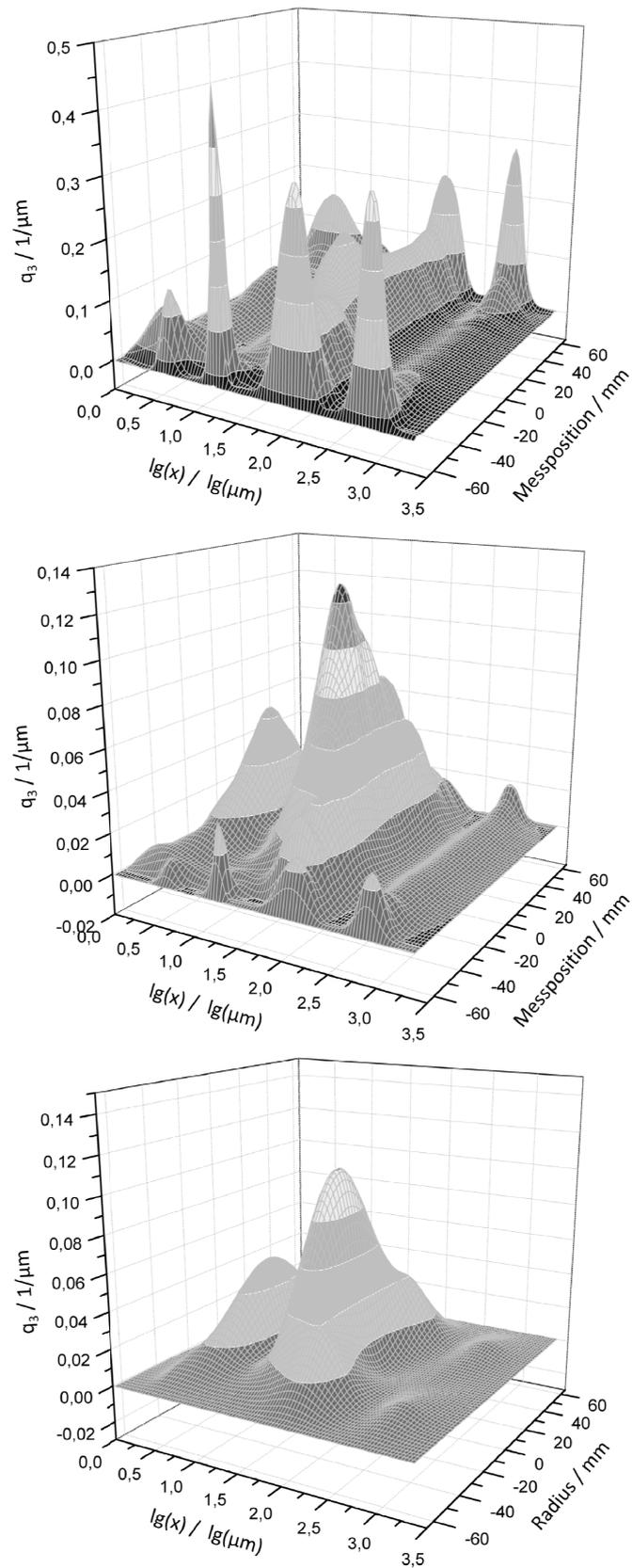


Abbildung 4.17: Beispielhafter Ablauf des Vorgehens zur Abel Inversion: Direkte Messdaten der Tropfengrößenverteilung (oben) und mit Volumenkonzentration gewichtete Messdaten (Mitte) in Abhängigkeit der Messposition; mittels Abel Inversion rekonstruierte lokale Tropfengrößenverteilung in Abhängigkeit vom Radius (unten).

4.5.4 Schattenaufnahmen

Zur optischen Bewertung des Zerstäubungsprozesses wurde ein System für Schattenaufnahmen (Hardware ILA, Software Oxford Lasers) eingesetzt. Dabei wird der Schatten eines von hinten beleuchteten Objekts durch eine Kamera erfasst. Das System besteht aus einer grünen LED-Beleuchtung und einer CCD-Kamera (PCO 2000, Brennweite der Linse 135 mm), die gegenüber der LED auf der anderen Seite des Sprays positioniert ist. Der Aufbau ist Abbildung 4.18 dargestellt. Das System wurde in vier Messpositionen eingesetzt: Direkt am Düsenaustritt sowie 7,75, 12,5 und 25 cm unterhalb des Düsenaustritts. Die Bilderfassung wurde mit 14 Hz (PVP K30 20 % 12 Hz) durchgeführt.

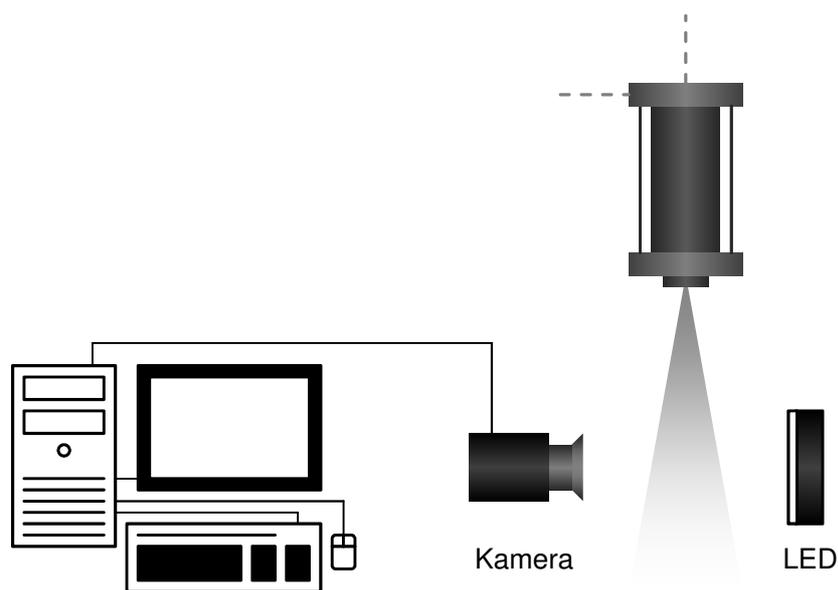


Abbildung 4.18: Schematische Darstellung des Messaufbaus für Schattenaufnahmen.

Aus den Bildern kann mit Einschränkungen eine Spraytropfengrößenverteilung bestimmt werden: Es ist zu berücksichtigen, dass nur die Tropfen in der Schärfeebene erfasst werden und dass für den verwendeten Aufbau Tropfengrößen unterhalb 200 μm nicht erfasst werden. Im Gegensatz zur Laserbeugungsspektrometrie kann über ein Sphärizitätskriterium festgelegt werden, welche Tropfen ausgewertet werden um nicht vollständig aufgebrochene Fäden auszuschließen.

Aus den überlagerten Bildern einer Messung direkt am Düsenaustritt – exemplarisch in Abbildung 4.19 dargestellt – kann der Winkel des Spraykegels (im Weiteren Spraywinkel) bestimmt werden. Der Spraywinkel wurde sowohl basierend auf dem gesamten erfassten Spraybild als auch für die Aufweitung 5 mm unterhalb des Düsenaustritts bestimmt. Die Winkelangaben beziehen sich auf den gesamten Kegel.



Abbildung 4.19: Überlagerte Bilder einer exemplarischen Messung (D15, PVP K30 30 %, $ALR = 0,14$).

Die Nutzung des Systems für Schattenaufnahmen war in Zusammenarbeit mit Astrid Günther, Universität Erlangen-Nürnberg, im Rahmen des DFG Schwerpunktprogramms 1423 „Prozess-Spray“ möglich.

4.5.5 Bestimmung der Sprayunstetigkeit

Zur Quantifizierung der Sprayunstetigkeit kann beispielsweise die Pulsationsfrequenz des Sprays herangezogen werden. Diese wurde mit Hilfe hochfrequenter Laserbeugungsspektrometrie sowie eines Stroboskops bestimmt. Weiterhin erlaubt die Auswertung der Schattenaufnahmen eine Bewertung der Unstetigkeit.

Laserbeugungsspektrometrie

Zur Bestimmung der Pulsationsfrequenz wurde entsprechend dem in Kapitel 4.5.2 beschriebenen Vorgehen die Spraytropfengrößenverteilung für jeden Messpunkt mindestens dreifach im „Rapid Mode“ bestimmt, was Messungen mit Aufnahmefrequenzen größer 1 Hz ermöglicht. Die Messungen wurden weitestgehend mit 250 Hz durchgeführt, zur Validierung aber auch mit 50 und 1000 Hz. Anhand dieser wurde der zeitliche Verlauf der charakteristischen Kenngrößen $x_{10,3}$, $x_{50,3}$, $x_{90,3}$ und $x_{1,2}$ sowie der Transmission T bestimmt. Ein exemplarischer Verlauf der Quantile $x_{10,3}$ und $x_{90,3}$ ist in Abbildung 4.20 dargestellt.

Die Pulsationsfrequenz kann hier grundsätzlich durch Zählen der Peaks pro Zeiteinheit, durch eine Fourier-Analyse oder durch Anpassung einer Funktion an den zeitlichen Verlauf ermittelt werden. Die Anpassung durch eine Sinusfunktion (mittels OriginLab Origin 8G) wies hierbei eine ausgeprägte Robustheit auf und wurde daher

für die Auswertung genutzt. Die verwendete Sinusfunktion ist in Gleichung 4.16 am Beispiel des mittleren, volumenspezifischen Tropfendurchmessers mit dessen Offset $x_{90,3;0}$, der Amplitude A , der Messzeit t , der Phasenverschiebung t_0 und der halben Periode τ dargestellt. Die Pulsationsfrequenz f_P kann entsprechend Gleichung 4.17 aus der Periode berechnet werden.

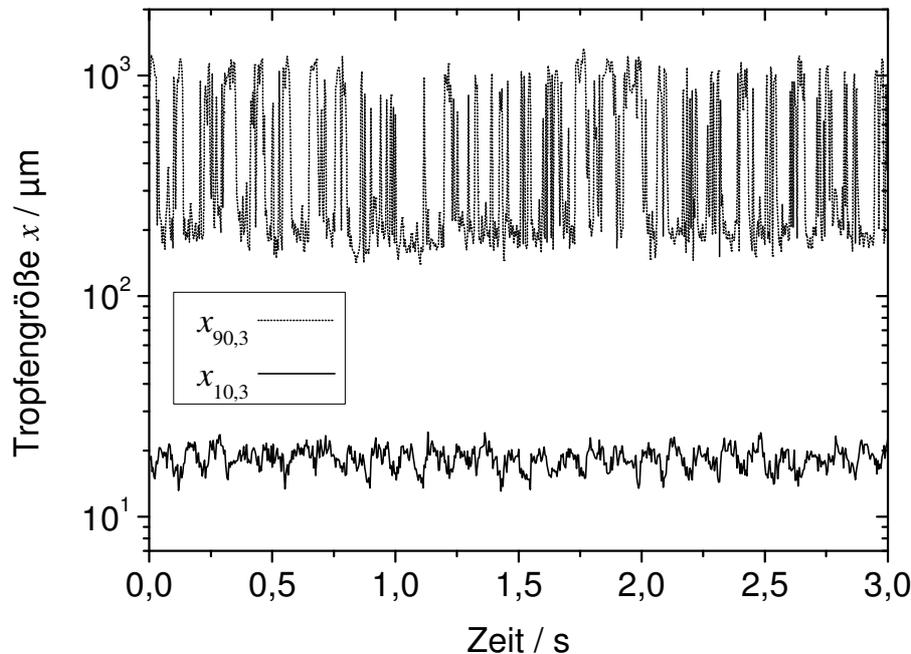


Abbildung 4.20: Exemplarischer zeitlicher Verlauf der Quantile $x_{90,3}$ und $x_{10,3}$ gemessen mit 250 Hz (D15, PVP K30 20 %, $ALR = 0,32$).

$$x_{90,3} = x_{90,3;0} + A \cdot \sin\left(\pi \cdot \frac{t - t_0}{\tau}\right) \quad (4.16)$$

$$f_P = \frac{1}{(2 \cdot \tau)} \quad (4.17)$$

Bei der Fourier-Analyse wurde anhand einer schnellen Fourier-Transformation (engl.: „fast Fourier transformation“ (FFT)) das Frequenzspektrum und dessen Maxima mittels Matlab 7 (The MathWorks) bestimmt. Zur weiteren Überprüfung wurde die Pulsationsfrequenz mit Hilfe eines Stroboskops (Rheintacho Pocket LED), vergleichbar mit einer Drehzahlbestimmung, gemessen. Die beschriebene Vorgehensweise zur Bestimmung der Pulsationsfrequenz auf Basis hochfrequenter Laserbeugungsspektrometrie wurde bereits mit optischer und akustischer Erfassung verglichen und zeigte eine gute Übereinstimmung [113].

Schattenaufnahmen

Die optische Konzentration c_{sch} der Schattenaufnahmen ist ein Maß für den abgeschatteten Anteil der Bilder. Da sich diese bei Unstetigkeit des Sprays ebenfalls zeitlich verändert, kann sie auch zur Bestimmung der Unstetigkeit genutzt werden. Um einen Vergleich verschiedener Sprays zu ermöglichen, wird die optische Konzentration in den einzelnen Bildern mit der gemittelten optischen Konzentration aller Bilder einer Messung normalisiert, siehe Gleichung 4.18. Der zeitliche Verlauf der resultierenden normalisierten Konzentration $\bar{\varepsilon}$ ist exemplarisch für zwei Messungen in Abbildung 4.21 dargestellt. Die Standardabweichung der normalisierten Konzentrationen der einzelnen Messungen wird im Weiteren als Maß zur Bewertung der Sprayunstetigkeit verwendet.

$$\bar{\varepsilon} = \frac{c_{sch}}{\frac{\sum_i^n c_{sch,i}}{n}} \quad (4.18)$$

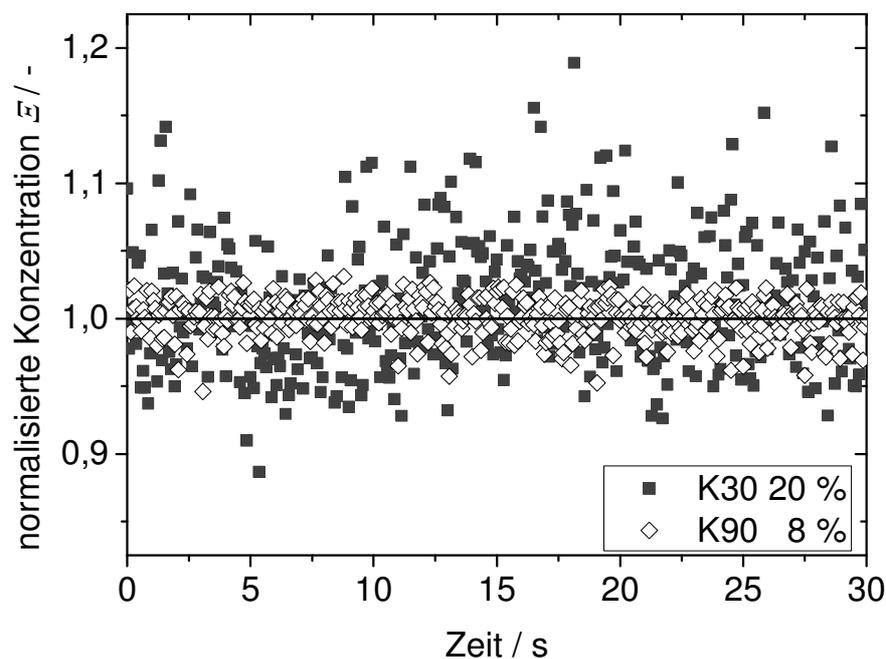


Abbildung 4.21: Exemplarischer zeitlicher Verlauf der normalisierten Pulsation $\bar{\varepsilon}$ beim Zerstäuben von zwei unterschiedlichen PVP-Lösungen (Messposition 12,5 cm, D15, $ALR = 0,32$).

4.6 Partikelcharakterisierung

Die in Sprühtrocknungsversuchen hergestellten PVP-Partikel wurden hinsichtlich des Wassergehalts, der Partikelform und -größenverteilung untersucht. Der Wasserge-

halt der Proben wurde mit Hilfe einer Infrarottrockenwaage (Kern MLS) bei 105 °C bestimmt. Jede Probe wurde dreifach mit jeweils neuem Material der Probe gemessen. Zur Beurteilung der Partikelform wurden mit Hilfe eines Lichtmikroskops (Carl Zeiss Axiolab re, 10x Vergrößerung) mit angeschlossener Digitalkamera Aufnahmen gemacht.

Zur Bestimmung der Partikelgrößenverteilung wurde ein Laserbeugungsspektrometer (Beckman Coulter LS 13320, Wellenlänge 780 nm) mit einer Trockendispergiereinheit (Tornado) eingesetzt. Grundlegende Informationen zur Laserbeugungsspektrometrie finden sich in Kapitel 4.5.2. Die Streulichtdaten wurden nach der Theorie von Fraunhofer ausgewertet, wobei zu beachten ist, dass die Partikelgrößenverteilungen sich im Grenzbereich der Anwendbarkeit (vergleiche Kapitel 4.5.2) befinden. Da der Brechungsindex von festem PVP allerdings nicht bekannt ist, kann eine fehlerhafte Angabe des Brechungsindex bei der Auswertung nach der Theorie von Mie ebenfalls zu Fehlern führen [99(265)]. Gleiches gilt für Partikel mit rauer Oberfläche [99(279)]. Als Kenngröße für die Partikelgrößenverteilung wurde der Sauterdurchmesser gewählt. Jede Probe wurde dreifach gemessen.

5 Materialcharakterisierung

Die relevanten Charakteristika der eingesetzten Materialien werden entsprechend des zuvor vorgestellten Stand des Wissens wie folgt definiert: Für die Zerstäubung sind die Dichte, Oberflächenspannung sowie die rheologischen Eigenschaften relevant. Für die Modellemulsion sind darüber hinaus die rheologischen Eigenschaften der einzelnen Phasen sowie die Grenzflächenspannung zwischen diesen relevant. Diese Größen wurden jeweils in Abhängigkeit von der Konzentration der Polymere bzw. des Maltodextrins untersucht.

5.1 Polyvinylpyrrolidonlösungen

In Tabelle 5.1 sind die Messergebnisse für Dichte, Brechungsindex und Oberflächenspannung in Abhängigkeit von der Konzentration und dem K-Wert des Polyvinylpyrrolidons (PVP) aufgelistet. Die Dichte zeigt hierbei wie erwartet für beide K-Werte mit steigender Konzentration einen leichten Anstieg. Ebenso steigt der Brechungsindex ausgehend von 1,33 (reines Wasser [114(B261)]) mit steigender Konzentration für beide K-Werte an. In Abbildung 5.1 ist die gemessene Oberflächenspannung in Abhängigkeit von der PVP-K30-Konzentration dargestellt. Unter Berücksichtigung der Standardabweichung (zur Übersichtlichkeit nur für einzelne Datenpunkte dargestellt) ist weder im zeitlichen Verhalten noch hinsichtlich des Absolutwerts eine signifikante Abhängigkeit erkennbar. Dies ist auch für den in Abbildung 5.2 dargestellte Abhängigkeit von der PVP-K90-Konzentration erkennbar. In Anhang 3 ist die Abhängigkeit der Oberflächenspannung von niedrigeren und höheren PVP-Konzentrationen für K30 (Abbildung A3.1) und K90 (Abbildung A3.2) abgebildet. Auch dort ist auf Basis der Standardabweichungen keine signifikante Abhängigkeit der Oberflächenspannung von der Konzentration erkennbar. Bei allen Messungen erreichte die gemessene Oberflächenspannung keinen stabilen Bereich, was ggf. auf Verunreinigungen zurückzuführen ist. Daher sind zum Vergleich in Tabelle 5.1 die Werte bei 300 s Messzeit angegeben. Für die in Kapitel 6.6 dargestellten Ergebnisse der Modellierung wurde ein Mittelwert von 64,5 mN/m sowohl für PVP K30 als auch PVP K90 eingesetzt.

Tabelle 5.1: Messwerte für Dichte, Brechungsindex und Oberflächenspannung von PVP-Lösungen in Abhängigkeit von K-Wert und Konzentration. Messwert der Oberflächenspannung bei 300 s Messzeit.

K-Wert & Konzentration	Dichte / g/cm ³	Brechungsindex / -	Oberflächenspannung σ bei 300 s / mN/m
K30 15 %	1,02 ± 0,00	1,36 ± 0,00	-
K30 20 %	1,05 ± 0,00	1,37 ± 0,00	64,4 ± 1,0
K30 30 %	1,06 ± 0,01	1,39 ± 0,00	65,2 ± 0,2
K30 40 %	1,08 ± 0,00	1,41 ± 0,00	64,6 ± 0,2
K30 45 %	1,10 ± 0,01	1,42 ± 0,00	-
K30 50 %	1,14 ± 0,01	-	63,0 ± 0,1
K90 4 %	1,00 ± 0,00	1,34 ± 0,00	65,0 ± 0,6
K90 6 %	1,01 ± 0,00	1,34 ± 0,00	64,6 ± 1,1
K90 8 %	1,01 ± 0,00	1,35 ± 0,00	64,4 ± 1,3

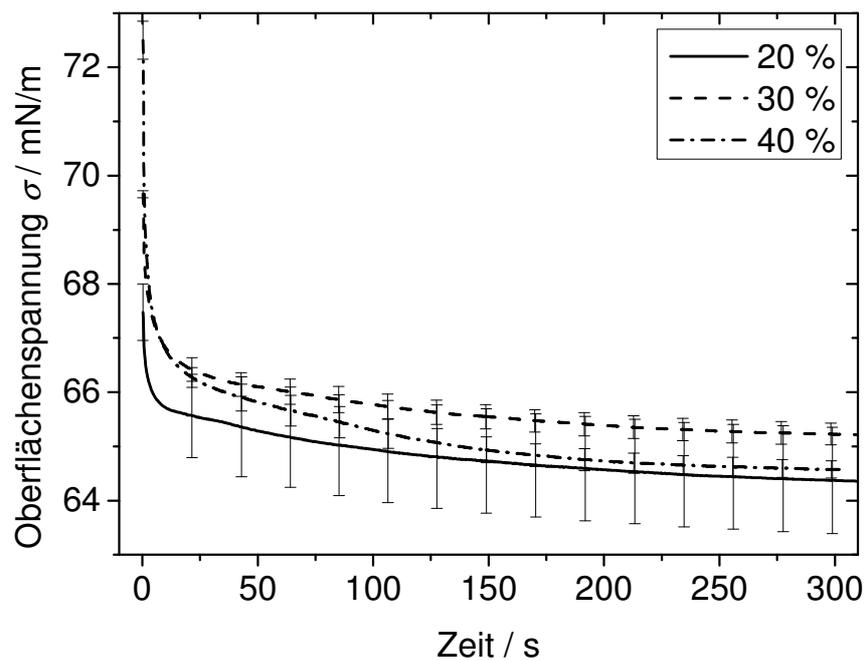


Abbildung 5.1: Oberflächenspannung in Abhängigkeit der PVP-K30-Konzentration.

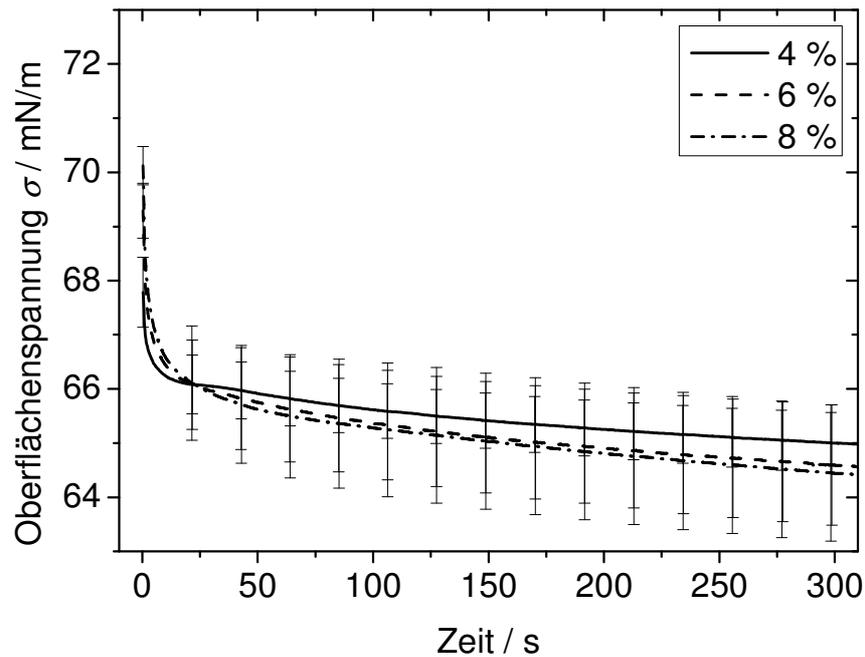


Abbildung 5.2: Oberflächenspannung in Abhängigkeit der PVP-K90-Konzentration.

Die Scherviskositäten von PVP-Lösungen in Abhängigkeit von der Scherrate und Konzentration sind für K30 in Abbildung 5.3 und für K90 in Abbildung 5.4 dargestellt. In Abbildung A3.3 in Anhang 3 sind Daten für Konzentration von 5 bis 50 % PVP K30 wiedergegeben. Geschlossene Symbole stehen für mit dem Rotationsrheometer gemessene Werte, offene Symbole sind mit dem Kapillarrheometer gemessen. Zur besseren Darstellung ist nur jeder zweite mit dem Rotationsrheometer gemessene Messwert dargestellt, die übrigen Werte stimmen mit dem Trend der dargestellten überein. Die mit unterschiedlichen Rheometern bestimmten Scherviskositäten stimmen im Rahmen der Messgenauigkeit überein. Für PVP-Lösungen beider K-Werte zeigt sich mit steigender Konzentration ein Anstieg der Scherviskosität. Mit steigender Scherrate geht ein quasinewtonsches Verhalten in ein strukturviskoses Verhalten über. Dies setzt mit steigender Konzentration bei geringeren Scherraten ein. Ein Anstieg des K-Werts führt ebenfalls zu einem Einsetzen des strukturviskosen Verhaltens bei geringeren Scherraten. Für die in Kapitel 6.6 dargestellten Ergebnisse der Modellierung werden die in Tabelle 5.2 aufgelisteten Scherviskositätswerte bei 1000 1/s verwendet. Diese Werte stimmen für K30 nicht mit den bisherigen Arbeiten zur „effervescent atomization“ von PVP-Lösungen überein. So haben Petersen et al. [6] für 30 % eine Scherviskosität von 30 mPa·s angegeben. Hinsichtlich K90 stimmen die Werte aber weitgehend mit denen von Petersen et al. (5 % 25 mPa·s) und Niel-

sen et al. [7] (Ostwald-Gesetz, 5 % 32 mPa·s mit Index 0,9, 10 %, 10 % 175 mPa·s mit Index 0,85) überein.

Tabelle 5.2: Übersicht der für weitere Berechnungen verwendeten Scherviskositätswerte von PVP-Lösungen in Abhängigkeit von K-Wert und Konzentration. Messung mit Rotationsrheometer bei 1000 1/s.

K-Wert & Konzentration	Scherviskosität η / mPa·s
K30 15 %	13,3
K30 20 %	24,5
K30 30 %	102,7
K30 40 %	511,7
K30 45 %	1263,3
K30 50 %	3703,3
K90 4 %	25,3
K90 6 %	67,5
K90 8 %	123,9

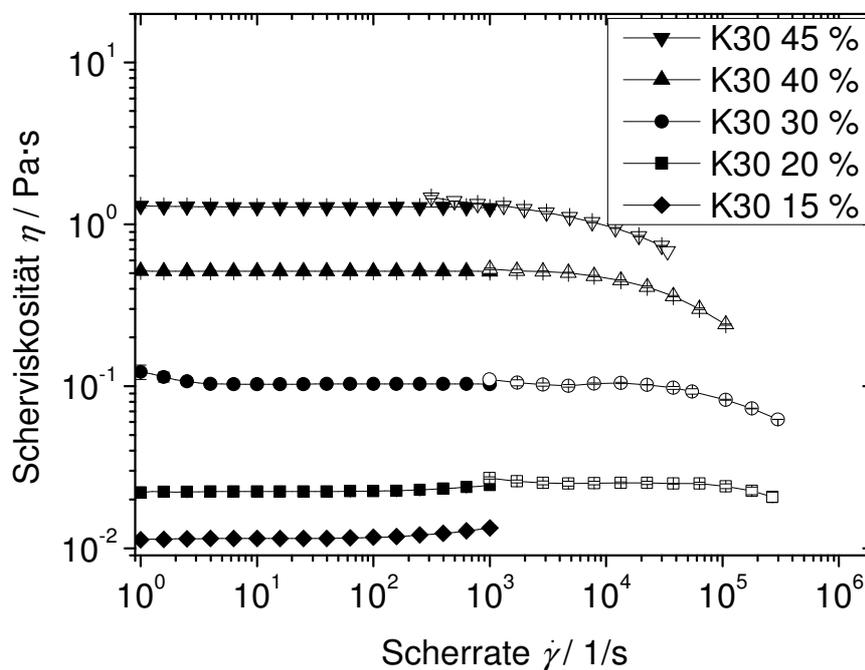


Abbildung 5.3: Mittlere Scherviskosität in Abhängigkeit der Scherrate und PVP-K30-Konzentration. Geschlossene Punkte mittels Rotationsrheometer gemessen, offene Punkte mittels Kapillarrheometer.

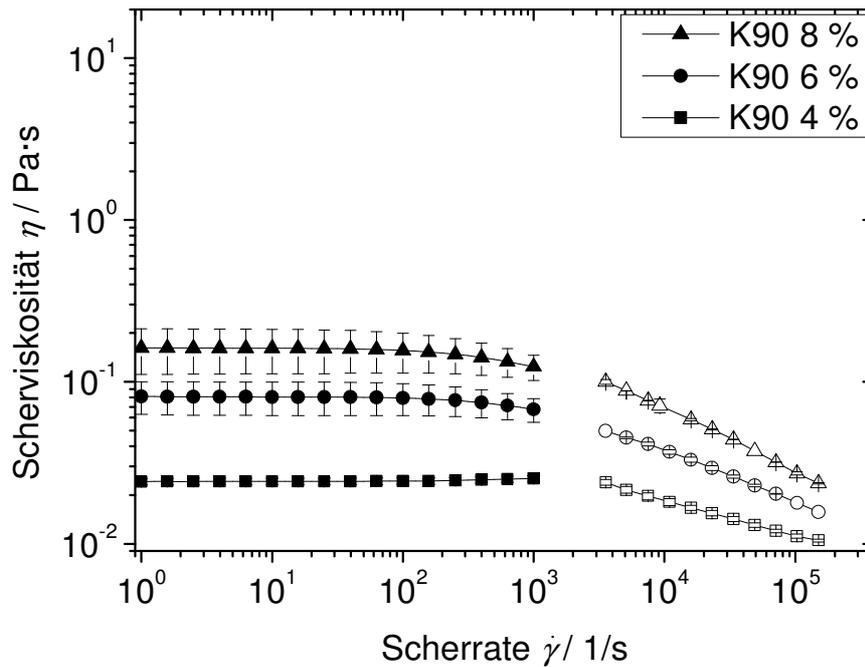


Abbildung 5.4: Mittlere Scherviskosität in Abhängigkeit der Scherrate und PVP-K90-Konzentration. Geschlossene Punkte mittels Rotationsrheometer gemessen, offene Punkte mittels Kapillarrheometer.

In Abbildung 5.5 ist die Dehnviskosität von PVP-K30-Lösungen unterschiedlicher Konzentrationen in Abhängigkeit von der Dehnrade aufgetragen. Nach Durchlaufen des Anlaufbereichs (logarithmischer Abfall unabhängig von Konzentration) zeigen alle Proben eine weitgehende Unabhängigkeit der Dehnviskosität von der Dehnrade. Dieser Effekt ist mit steigender Konzentration stärker ausgeprägt. Die Linien stellen entsprechend Gleichung 4.3 den dreifachen Wert der jeweils korrespondierenden Scherviskosität bei 1000 1/s dar. Dies zeigt mit Ausnahme der 20 %igen Lösung ebenfalls eine gute Übereinstimmung, was entsprechend Kapitel 4.2.1 die Aussage stützt, dass die PVP-K30-Lösungen im untersuchten Dehnratenbereich zumeist ein quasinewtonsches Verhalten aufweisen.

Abbildung 5.6 zeigt die Dehnviskosität von PVP-K90-Lösungen unterschiedlicher Konzentrationen in Abhängigkeit von der Dehnrade. Im Vergleich zu K30 ist hier weder ein ausgeprägter Anlaufbereich noch ein klarer Trend bei weiterem Anstieg der Dehnrade erkennbar. Bei einer Konzentration von 4 % ist bei drei von fünf Messungen ein konstantes Absinken und eine Stabilisierung zu beobachten. Die zwei weiteren Messungen bei 4 % zeigen wie alle Messungen bei höheren Konzentrationen einen abrupten Anstieg der Dehnviskosität auf, was möglicherweise auf eine nicht ideale Ausbildung eines zylindrischen Fadens hinweist. Die Ausbildung eines zylind-

rischen Fadens ist eine Grundannahme des Standard-CaBER-Experiments [93(1-5)]. Ein Nichtausbilden eines zylindrischen Fadens weist auf nichtnewtonsches, möglicherweise elastisches Verhalten hin. Dies kann allerdings mit dem Standard-CaBER-Experiment mit Fadenmessung nur am Mittelpunkt im Gegensatz zu einer Fadenkonturanalyse nicht verifiziert werden. Mit der verfügbaren Messtechnik kann daher keine klare Aussage über die dehnreologischen Eigenschaften der PVP-K90-Lösungen gemacht werden.

Im Vergleich der PVP-Lösungen kann geschlossen werden, dass PVP-K30-Lösungen ein quasinewtonsches dehnreologisches Verhalten aufweisen und PVP-K90-Lösungen im Gegensatz dazu kein newtonsches dehnreologisches Verhalten erkennen lassen.

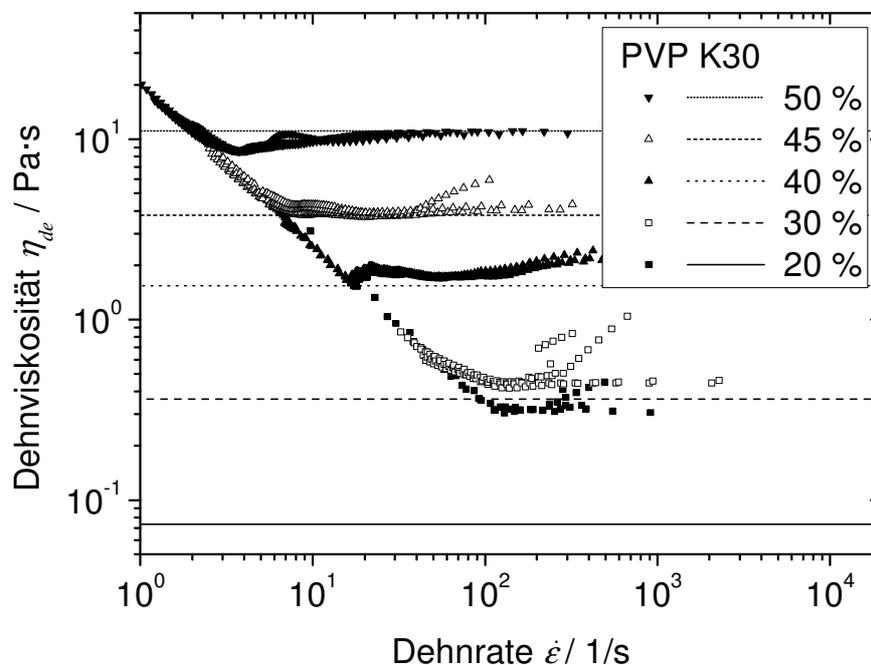


Abbildung 5.5: Dehnviskosität in Abhängigkeit der Dehnrates und PVP-K30-Konzentration. Linien stellen den dreifachen Wert der korrespondierenden Scherviskosität aus Tabelle 5.2 entsprechend Gleichung 4.3 dar.

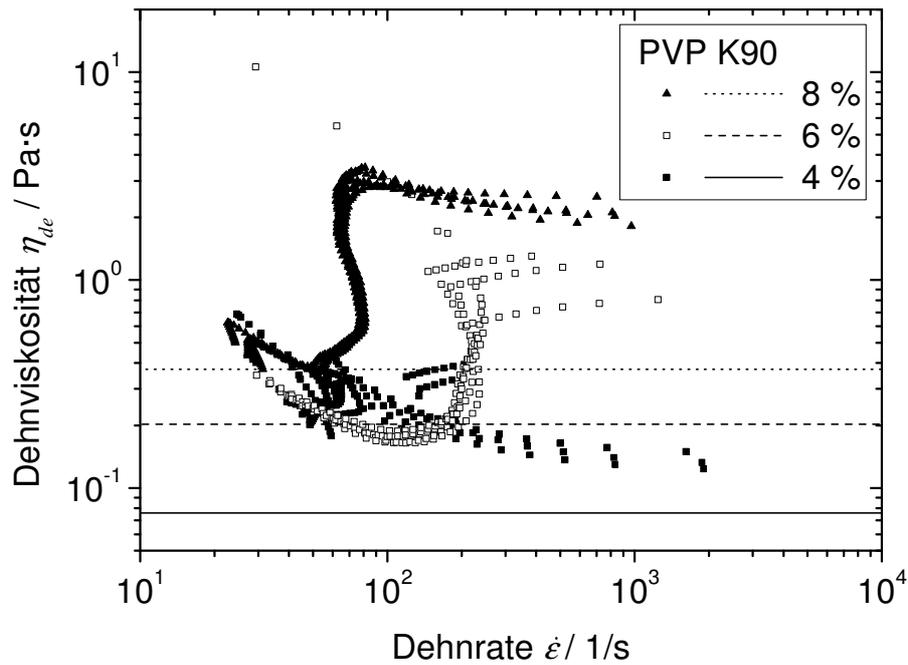


Abbildung 5.6: Dehnviskosität in Abhängigkeit der Dehnrate und PVP-K90-Konzentration. Linien stellen den dreifachen Wert der korrespondierenden Scherviskosität aus Tabelle 5.2 entsprechend Gleichung 4.3 dar.

In Tabelle 5.3 sind Fadenabrisszeiten in Abhängigkeit von der PVP-Konzentration und dem K-Wert aufgelistet. Mit steigender Konzentration steigt die Fadenabrisszeit für beide K-Werte signifikant an. Im Vergleich zur Konzentrationsabhängigkeit der Scherviskosität (vergleiche Tabelle 5.2) ist für beide K-Werte jeweils ein bezüglich der Größenordnung vergleichbarer Anstieg der Fadenabrisszeit zu beobachten.

Tabelle 5.3: Übersicht der Fadenabrisszeiten in Abhängigkeit von K-Wert und Konzentration der PVP-Lösungen.

K-Wert & Konzentration	Fadenabrisszeit / s
K30 20 %	0,024 ± 0,001
K30 30 %	0,039 ± 0,005
K30 40 %	0,158 ± 0,001
K30 45 %	0,377 ± 0,004
K30 50 %	0,962 ± 0,006
K90 4 %	0,047 ± 0,001
K90 6 %	0,051 ± 0,001
K90 8 %	0,124 ± 0,001

Entgegen der in 4.2.1 beschriebenen Erwartung aus der Literatur, dass Polymerlösungen meist einen elastischen Anteil aufweisen, können für die untersuchten PVP-K90-Lösungen bei oszillatorischen Messungen in Amplitudensweeps kein signifikantes Speichermodul gemessen und kein linear viskoelastischer Bereich bestimmt werden, siehe auch Abbildung A3.4 in Anhang 3. Daher wird im Weiteren davon ausgegangen, dass keine relevanten elastischen Eigenschaften vorliegen. Für PVP-K30-Lösungen kann in Amplitudensweeps nur bei Konzentrationen ab 40 % in einzelnen Messungen ein Speichermodul gemessen werden. Es wird daher hier davon ausgegangen, dass auch bei hohen K30-Konzentrationen nur geringe elastische Eigenschaften vorliegen.

Abschließend wird festgehalten, dass die Konzentration und der durch den K-Wert beschriebene Polymerisationsgrad der Polymere am stärksten die rheologischen Eigenschaften beeinflusst. Die Veränderung der Grenzflächenspannung liegt im Bereich der Standardabweichung und ist somit vernachlässigbar. Die Veränderung der Dichte wird bei den Berechnungen berücksichtigt, zeigt aber nur eine geringe Abhängigkeit von Konzentration und K-Wert.

5.2 Öl-in-Wasser-Modellemulsion

In Tabelle 5.4 sind die Messwerte der Dichte und der Oberflächenspannung der Emulsion und kontinuierlichen Phase sowie der Grenzflächenspannung zwischen den Phasen in Abhängigkeit von der Konzentration des Maltodextrins (MD) aufgelistet. Die angegebenen Werte für die Oberflächenspannung der kontinuierlichen Phase und der Grenzflächenspannung wurden bei 300 s Messzeit bestimmt, da hier wie beim PVP kein stabiler Wert erreicht wurde, was hier auf Verunreinigungen im Öl zurückzuführen ist. Bei der Herstellung der Emulsionen kommt es zu stabilen Lufteinschlüssen, was mit steigender Konzentration durch den stabilisierenden Effekt der höheren Viskosität zunimmt. Da die stabilen Lufteinschlüsse auch bei der Zerstäubung der Emulsion vorliegen, wurden diese auch bei der Dichtemessung berücksichtigt. Mit steigender Konzentration wird im Allgemeinen eine Erhöhung der Dichte erwartet. Dieser Trend ist für die Emulsion nicht zu erkennen, was auf die Lufteinschlüsse zurückzuführen ist. Hierdurch sind auch die im Vergleich zur Dichtemessung der PVP-Lösungen (siehe Tabelle 5.1) hohen Standardabweichungen begründet. Die Oberflächenspannung der Emulsion σ_e zeigt keinen klaren Trend: Mit steigender Konzentration werden steigende Mittelwerte beobachtet, der Anstieg liegt

aber innerhalb der Standardabweichung der Messungen. Die Oberflächenspannung der kontinuierlichen Phase σ_k steigt für 0 bis 15 % MD im Mittel um 2,8 mN/m an, schwankt aber bei weiterer Konzentrationserhöhung in einem Bereich von 1,6 mN/m. Die Mittelwerte der Grenzflächenspannung sinken bis 35 % MD innerhalb der Standardabweichung ab. Die Messungen weisen eine hohe Standardabweichung auf, was sich für Konzentration größer 30 % MD nochmals verstärkt. Daher kann kein klarer Trend festgestellt werden.

Tabelle 5.4: Übersicht der Dichte, Oberflächenspannung der Modellemulsion und kontinuierlichen Phase sowie Grenzflächenspannung zwischen den Phasen in Abhängigkeit von der MD-Konzentration.

MD-Konzentration	Dichte $\rho_e / \text{g/cm}^3$	Oberflächenspannung / mN/m		Grenzflächenspannung bei 300 s $\gamma / \text{mN/m}$
		σ_e	bei 300 s σ_k	
0 %	0,99 ± 0,00	46,0 ± 0,9	44,4 ± 0,6	12,1 ± 0,1
10 %	1,01 ± 0,00	46,1 ± 0,9	45,4 ± 0,1	11,7 ± 0,2
15 %	0,96 ± 0,08	46,5 ± 0,4	47,2 ± 0,0	11,7 ± 0,8
20 %	1,05 ± 0,02	46,3 ± 0,5	46,7 ± 0,2	11,4 ± 0,6
30 %	1,01 ± 0,05	47,1 ± 0,3	47,8 ± 0,0	10,6 ± 0,4
35 %	1,01 ± 0,03	46,9 ± 0,2	47,2 ± 0,1	9,3 ± 2,6
40 %	1,04 ± 0,07	47,0 ± 0,7	47,0 ± 0,0	12,3 ± 1,7
50 %	1,02 ± 0,03	46,7 ± 1,8	48,3 ± 0,2	12,8 ± 3,6

In Abbildung 5.7 ist die Scherviskosität der Modellemulsion für unterschiedliche MD-Konzentrationen in Abhängigkeit von der Scherrate dargestellt. Mit steigender Konzentration steigt die Scherviskosität an und bis zu einer Konzentration von 30 % wird im untersuchten Scherratenbereich ein quasinewtonsches Verhalten beobachtet. Der Anstieg der Viskosität bei hohen Scherraten und Konzentrationen von bis zu 15 % ist auf Taylorwirbel in der Messzelle zurückzuführen. Bei Konzentrationen von 35 bis 50 % wird dahingegen ein strukturviskoses Verhalten beobachtet. Das verwendete Pflanzenöl zeigte im untersuchten Scherratenbereich ebenfalls ein quasinewtonsches Verhalten und eine Scherviskosität von $59,3 \pm 1,6 \text{ mPa}\cdot\text{s}$. In Tabelle 5.5 sind die Mittelwerte der Scherviskosität bei 1000 1/s sowie die Mittelwerte der mit Gleichung 2.29 berechneten Viskositätsverhältnisse gezeigt. Bei der „effervescent atomization“ werden Scherraten von wenigstens 1000 1/s erwartet.

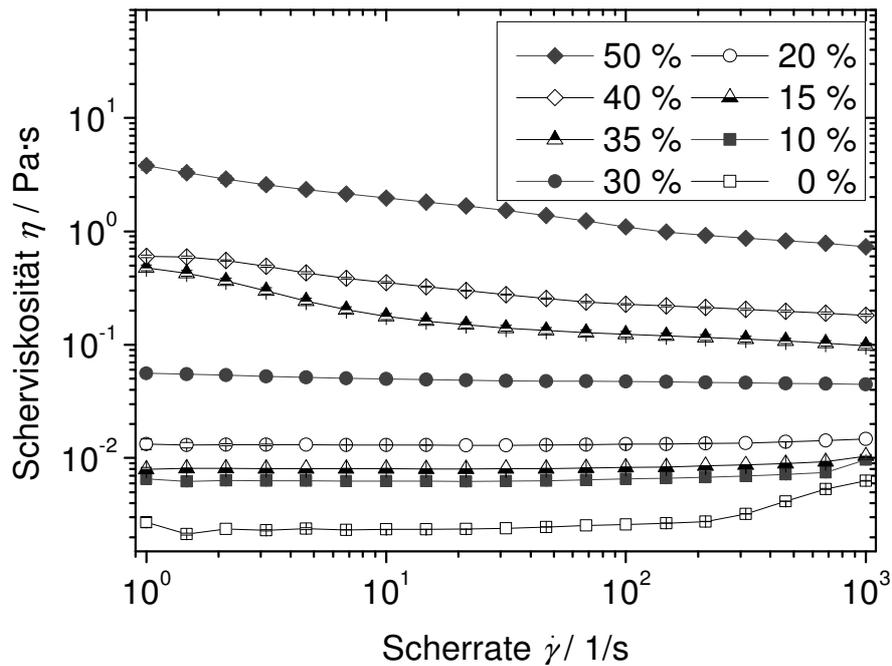


Abbildung 5.7: Scherviskosität der Modellemulsion in Abhängigkeit der Scherrate und der MD-Konzentration

Tabelle 5.5: Übersicht der Scherviskosität bei 1000 1/s und des Viskositätsverhältnisses entsprechend Gleichung 2.29 in Abhängigkeit der MD-Konzentration. Für Konzentrationen bis zu 15 % sind extrapolierte Werte angegeben.

MD-Konzentration	Scherviskosität η_e / mPa·s bei 1000 1/s	Viskositätsverhältnis λ / -
0 %	$2,4 \pm 0,1$	$24,89 \pm 0,54$
10 %	$5,3 \pm 0,3$	$11,22 \pm 0,67$
15 %	$8,4 \pm 0,4$	$7,11 \pm 0,35$
20 %	$13,7 \pm 0,2$	$4,33 \pm 0,06$
30 %	$45,8 \pm 2,0$	$1,30 \pm 0,06$
35 %	$88,2 \pm 4,8$	$0,67 \pm 0,04$
40 %	$181,5 \pm 20,5$	$0,33 \pm 0,03$
50 %	$728,9 \pm 83,2$	$0,08 \pm 0,01$

Es kann festgehalten werden, dass auch für die Modellemulsion die MD-Konzentration die rheologischen Eigenschaften am stärksten beeinflusst. Weder die Grenz- und Oberflächenspannungen noch die Dichten zeigen eine eindeutige Abhängigkeit, die Werte werden aber bei den weiteren Berechnungen berücksichtigt.

5.3 Scherrheologischer Vergleich der ein- und mehrphasigen Stoffsysteme

Wie in Kapitel 5.1 und 5.2 gezeigt wurde, hat die Konzentrationsänderung der jeweiligen, gelösten Trockensubstanz für alle untersuchten Stoffsysteme den stärksten Einfluss auf die rheologischen Eigenschaften. Zum direkten Vergleich der untersuchten Stoffsysteme ist in Abbildung 5.8 die Scherviskosität für ausgewählte Konzentrationsstufen dargestellt. Im Vergleich ist zu erkennen, dass die Modellemulsion das ausgeprägteste strukturviskose Verhalten im Scherratenbereich bis 1000 1/s zeigt.

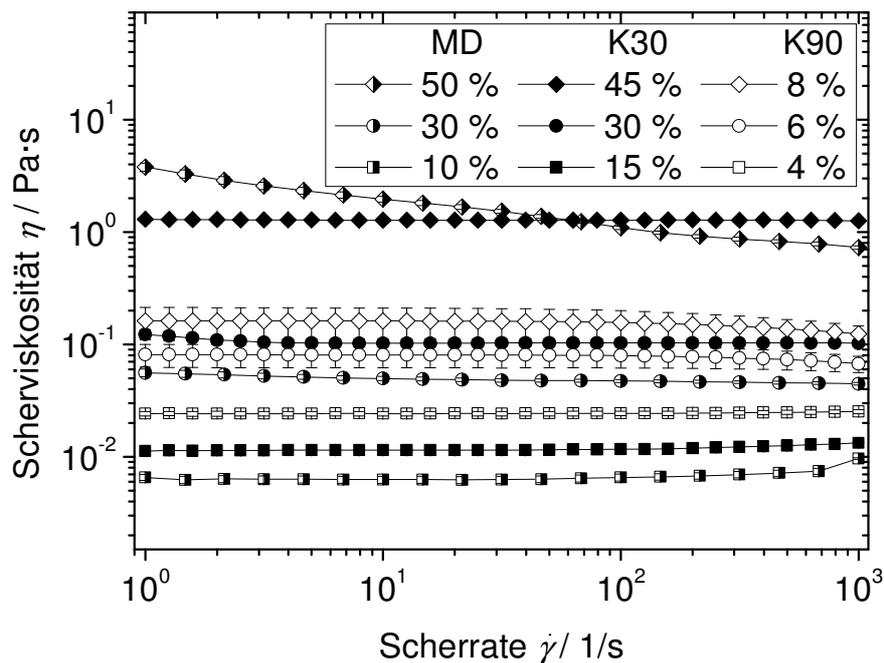


Abbildung 5.8: Vergleich der Scherviskosität der untersuchten Stoffsysteme in Abhängigkeit der Scherrate und der Konzentration der jeweiligen Trockensubstanz.

Für einen direkten Vergleich der nachfolgenden Ergebnisse werden im Weiteren teilweise vereinfacht die Scherviskositätswerte entsprechend Tabelle 5.6 genutzt. Es ist hierbei nochmals hervorzuheben, dass damit die drei Stoffsysteme (Modellemulsion, PVP K30 und PVP K90) aufgrund ihrer unterschiedlichen inneren Struktur (Polymerisationsgrad bzw. molekulare Masse, einphasig vs. zweiphasig) und die daraus resultierenden, unterschiedlichen rheologischen Eigenschaften nicht vollständig beschrieben sind.

Tabelle 5.6: Übersicht der Scherviskosität bei 1000 1/s in Abhängigkeit der Konzentration der jeweiligen Trockensubstanz für die untersuchten Stoffsysteme.

MD Konz. / %	Schervisk. η / mPa·s	PVP K30 Konz. / %	Schervisk. η / mPa·s	PVP K90 Konz. / %	Schervisk. η / mPa·s
0	2,4	15	13,3	4	25,3
10	5,3	20	24,5	6	67,5
15	8,4	30	102,7	8	123,9
20	13,7	40	511,7	-	-
30	45,8	45	1263,3	-	-
35	88,2	50	3703,3	-	-
40	181,5	-	-	-	-
50	728,9	-	-	-	-

6 Spraymorphologie

Zur Untersuchung der Anwendbarkeit der „effervescent atomization“ für die Sprühtrocknung wurde das Spray in Abhängigkeit von den Stoff- und Prozessparametern mit den in Kapitel 4.5 vorgestellten Methoden untersucht. Unter Spraymorphologie werden hierbei die folgenden Eigenschaften zusammengefasst: Winkel des Spraykegels, Aufbruch der Flüssigkeit bei der Zerstäubung, Spraytropfengrößenverteilung im Gesamtspray sowie deren lokale Auflösung und die Stetigkeit des Sprays.

6.1 Spraywinkel

In Tabelle 6.1 sind Mittelwerte der anhand von Schattenaufnahmen ermittelten Spraywinkel für Polyvinylpyrrolidon (PVP) K30 und K90 in Abhängigkeit von den Düsengeometrien D15 und D60 und des *ALR* aufgelistet. Eine Erhöhung des *ALR* führt zur Vergrößerung der Spraywinkel. Eine Ausnahme bildet der Messwert für PVP K90 bei D15 und einem *ALR* von 0,14, was aber aufgrund der hohen Standardabweichung als Messfehler anzusehen ist. Zwischen den Düsengeometrien ist kein relevanter Unterschied erkennbar, aber für PVP K30 werden grundsätzlich größere Spraywinkel als für PVP K90 beobachtet. Dies ist vermutlich auf den dämpfenden Effekt der vom Polymerisationsgrad abhängigen rheologischen Eigenschaften zurückzuführen, was aber anhand der Scherviskositätsdaten und mangels aussagekräftiger Messungen der Dehnviskosität nicht belegt werden kann. Insgesamt liegen alle Spraywinkel im Rahmen der in der Literatur bekannten Werte für vergleichbare Zerstäuber ohne Abstufungen am Austritt des Düsenkanals (siehe Kapitel 2.2.2). Die Auswertung des gesamten Sprayprofils im Vergleich zu dem bei 5 mm Abstand zum Zerstäuber zeigt zwar geringfügig kleinere Spraywinkel, aber die Abhängigkeit vom *ALR* ist unverändert. Siehe hierzu auch Abbildung A4.1 in Anhang 4.

Tabelle 6.1: Mittlere Spraywinkel (Vollwinkel) für PVP K30 und K90 bei der Zerstäubung mit Düsengeometrien D15 und D60 (Auswertung bei 5 mm Abstand zum Zerstäuber).

PVP	K30 (20, 30, 40 %)		K90 (4, 6, 8 %)	
	D15	D60	D15	D60
<i>ALR</i> / -	Spraywinkel / °			
0,14	12,0 ± 2,6	13,0 ± 1,7	14,7 ± 5,7	9,3 ± 2,3
0,23	13,0 ± 1,0	13,3 ± 1,2	9,0 ± 2,0	9,7 ± 1,5
0,32	16,7 ± 2,5	15,7 ± 3,1	14,7 ± 1,5	10,3 ± 2,5

6.2 Flüssigkeitsaufbruch

Anhand von Schattenaufnahmen kann der Aufbruch der Flüssigkeit am Austritt des Düsenkanals beobachtet werden. In Abbildung 6.1 ist exemplarisch eine Schattenaufnahme bei der Zerstäubung einer 30 %igen PVP-K30-Lösung mit Düsengeometrie D15 und einem ALR von 0,23 zu sehen. Es ist der Austritt des ringförmigen Filaments und der direkte Zerfall in einzelne Ligamente zu erkennen. Diese zerfallen mit steigendem Abstand zum Austritt in Teilstücke bzw. Einzeltropfen.



Abbildung 6.1: Beispiel einer Schattenaufnahme (D15, PVP K30 30 %, ALR 0,23).

In Abbildung 6.2 sind Schattenaufnahmen bei der Zerstäubung von reinem Wasser mit Düsengeometrie D15 für unterschiedliche ALR zu sehen. Für jeden ALR sind zwei Aufnahmen zu unterschiedlichen Zeitpunkten abgebildet um ggf. vorliegende Unstetigkeit und deren Auswirkung zu aufzuzeigen. Mit steigendem ALR ist die zuvor beschriebene Aufweitung des Spraywinkels zu erkennen. Für einen ALR von 0,14 sind im Gegensatz zu höheren ALR eine starke Inhomogenität und größere Einzeltropfen zu erkennen. Insgesamt zeigt sich für reines Wasser aber eine geringe Abhängigkeit des Aufbruchs vom ALR .

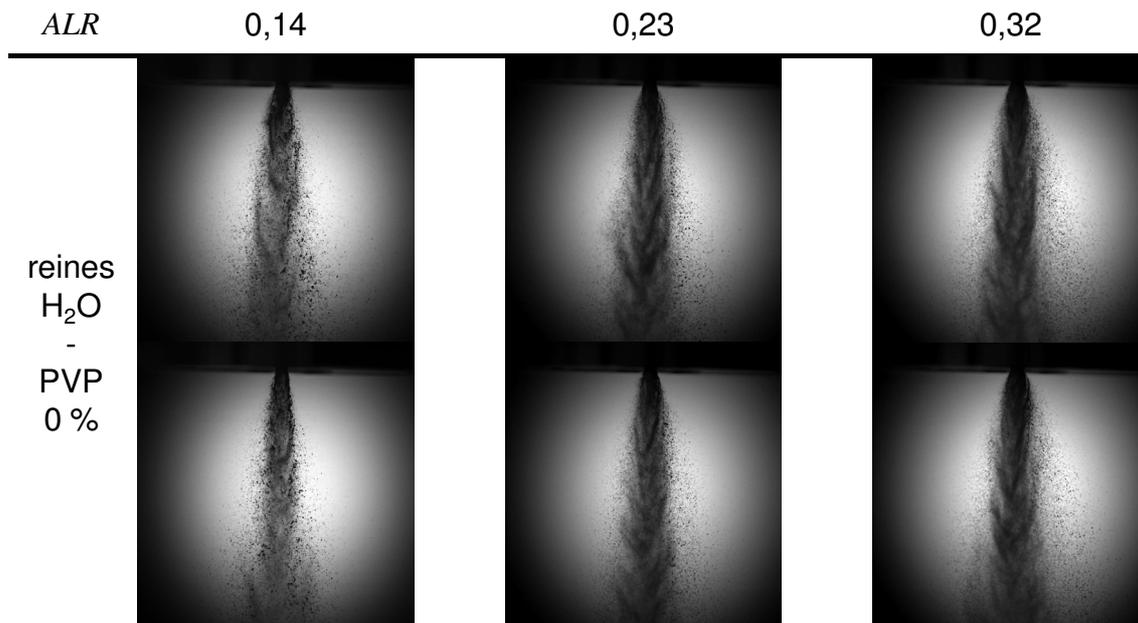


Abbildung 6.2: Schattenaufnahmen der „effervescent atomization“ von reinem Wasser für unterschiedliche *ALR* (D15). Je zwei Aufnahmen für jeden *ALR*.

Schattenaufnahmen der Zerstäubung von PVP-K30-Lösungen mit Konzentrationen von 20 bis 40 % mit Düsengeometrie D15 für unterschiedliche *ALR* sind in Abbildung 6.3 dargestellt. Mit steigender PVP-K30-Konzentration ist ein Übergang von direktem Aufbruch in Tropfen (20 %) zu Fadenbildung mit anschließendem Aufbruch in Tropfen (40 %) zu erkennen. Der *ALR* zeigt hier einen starken Einfluss. Für 30 % ist bei einem *ALR* von 0,23 noch eine Fadenbildung zu erkennen, bei einem *ALR* von 0,32 wird die Flüssigkeit fast direkt zu Tropfen aufgebrochen. Für 40 % ist erkennbar, dass mit steigendem *ALR* die gebildeten Fäden wesentlich feiner werden und der Tropfenanteil im betrachteten Bereich zunimmt.

In Abbildung 6.4 sind Schattenaufnahmen der Zerstäubung mit Düsengeometrie D15 von PVP-K90-Lösungen mit Konzentrationen von 4 bis 8 % für unterschiedliche *ALR* gezeigt. Für alle Konzentrationen zeigt sich unabhängig vom *ALR* eine starke Fadenbildung. Mit sinkender Konzentration und steigendem *ALR* sind deutlich feinere Fäden zu beobachten, aber es sind fast keine Tropfen im betrachteten Bildausschnitt zu finden. Der nicht vollständige Aufbruch im betrachteten Bereich geht einher mit den in Tabelle 6.1 gezeigten, vergleichsweise kleinen Spraywinkeln. Dies ist vermutlich durch die Trägheit der großen Flüssigkeitsfragmente gegenüber der Beschleunigung durch das expandierende Gas begründet.

Für K30 und K90 geht jeweils mit der steigenden Scherviskosität der schlechter werdende Aufbruch der Flüssigkeit mit steigender Konzentration einher. Der Unterschied

im Aufbruch zwischen K30 und K90 kann nicht durch das scherrheologische Verhalten beschrieben werden. Wie bereits in Kapitel 5.3 ausgeführt wurde, kann die Scherrheologie alleine nicht die rheologischen Unterschiede aufgrund des unterschiedlichen K-Werts beschreiben. Die durch den steigenden Polymerisationsgrad (steigender K-Wert) verursachte Veränderung in den dehnrrheologischen Eigenschaften (siehe Kapitel 5.1) ist hier vermutlich hauptverantwortlich: Das nichtnewtonsche Verhalten der PVP-K90-Lösungen erschwert im Gegensatz zum quasinewtonschen Verhalten PVP-K30-Lösungen den Aufbruch der Flüssigkeit.

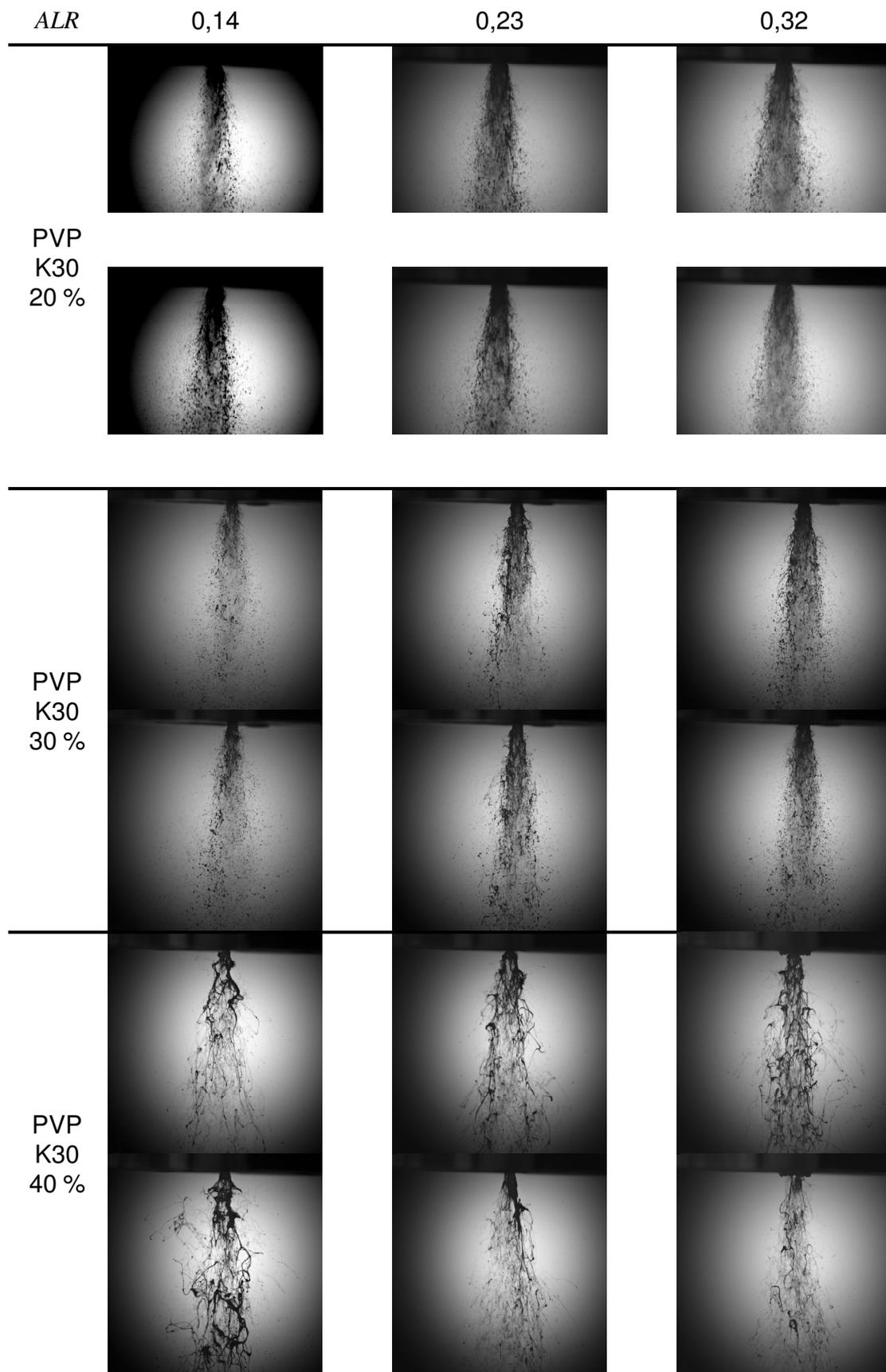


Abbildung 6.3: Schattenaufnahmen der „effervescent atomization“ von PVP-K30-Lösungen unterschiedlicher Konzentration für unterschiedliche *ALR* (D15). Je zwei Aufnahmen für jeden *ALR*.

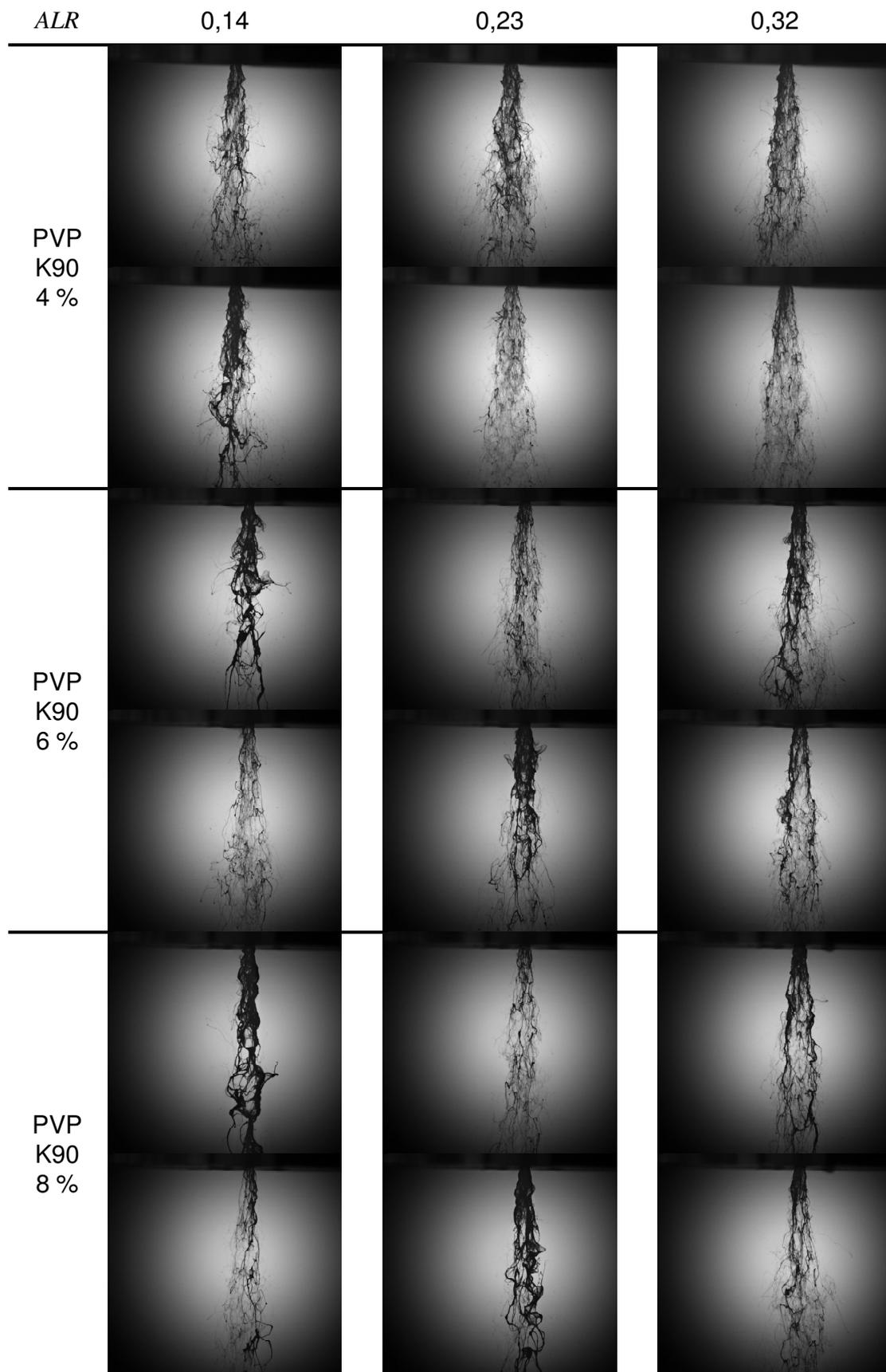


Abbildung 6.4: Schattenaufnahmen der „effervescent atomization“ von PVP-K90-Lösungen unterschiedlicher Konzentration für unterschiedliche *ALR* (D15). Je zwei Aufnahmen für jeden *ALR*.

Der Vergleich der unterschiedlichen Düsengeometrien (steigende Düsenkanallänge für D15, D30, D45, D60, D150; feine Gasinjektionsgeometrie für D15 fein; siehe Kapitel 4.3) hinsichtlich des Flüssigkeitsaufbruchs von PVP-K30-Lösungen mit einer Konzentration von 20 % zeigt keinen erkennbaren Einfluss der Düsenkanallänge bzw. der Injektionsgeometrie, siehe Schattenaufnahmen in Abbildung A4.2 und Abbildung A4.3 in Anhang 4. Bei PVP-K30-Konzentrationen von 20 bis 40 % ist im Vergleich der Düsengeometrien D15 (Abbildung 6.3) und D60 (Abbildung A4.4 in Anhang 4) kein Unterschied anhand der Schattenaufnahmen erkennbar.

Zur Charakterisierung des Verlaufs des Aufbruchs in größerem Abstand zum Düsenkanalausstritt sind Schattenaufnahmen der Zerstäubung mit Düsengeometrie D15 von PVP-Lösungen mit K30 Konzentration von 20 % (Abbildung 6.5) und K90 Konzentration von 8 % (Abbildung 6.6) direkt am Austritt des Düsenkanals (0,0 cm) und einem Abstand von 12,5 und 25,0 cm abgebildet. Für die PVP-K30-Lösung zeigen sich eine vollständige Zerstäubung nahe am Austritt und keine erkennbare weitere Veränderung (Koaleszenz bzw. sekundäre Zerstäubung). Für die PVP-K90-Lösung hingegen ist nahe am Düsenkanalausstritt kein direkter Aufbruch in Tropfen zu erkennen. Bei einem Abstand von 12,5 cm sind ebenfalls noch Fäden, aber mit steigendem *ALR* vermehrt Tropfen zu erkennen. Erst bei einem Abstand von 25,0 cm sind für die beiden höheren Werte des *ALR* hauptsächlich Tropfen, aber immer noch einzelne Ligamente bzw. verbundene Tropfen zu erkennen. Beim niedrigsten *ALR* treten diese verbundenen Tropfen noch verstärkt auf.

Wie in Abbildung 6.5 und Abbildung 6.6 zu erkennen ist, ist der Aufbruch der Flüssigkeit beim Abstand von 25,0 cm (Messposition Laserbeugungsspektrometrie) nicht für alle untersuchten Flüssigkeiten vollständig abgeschlossen bzw. es kann nicht immer von der Annahme sphärischer Tropfen ausgegangen werden. Dadurch kommt es bei der Messung mittels Laserbeugungsspektrometrie zu einer Überschätzung der Breite der Tropfengrößenverteilung, die zwar die Ergebnisse beeinflusst, aber die Grundaussagen nicht verändert. Dies wird in Anhang 5 anhand von Messdaten im Detail diskutiert.

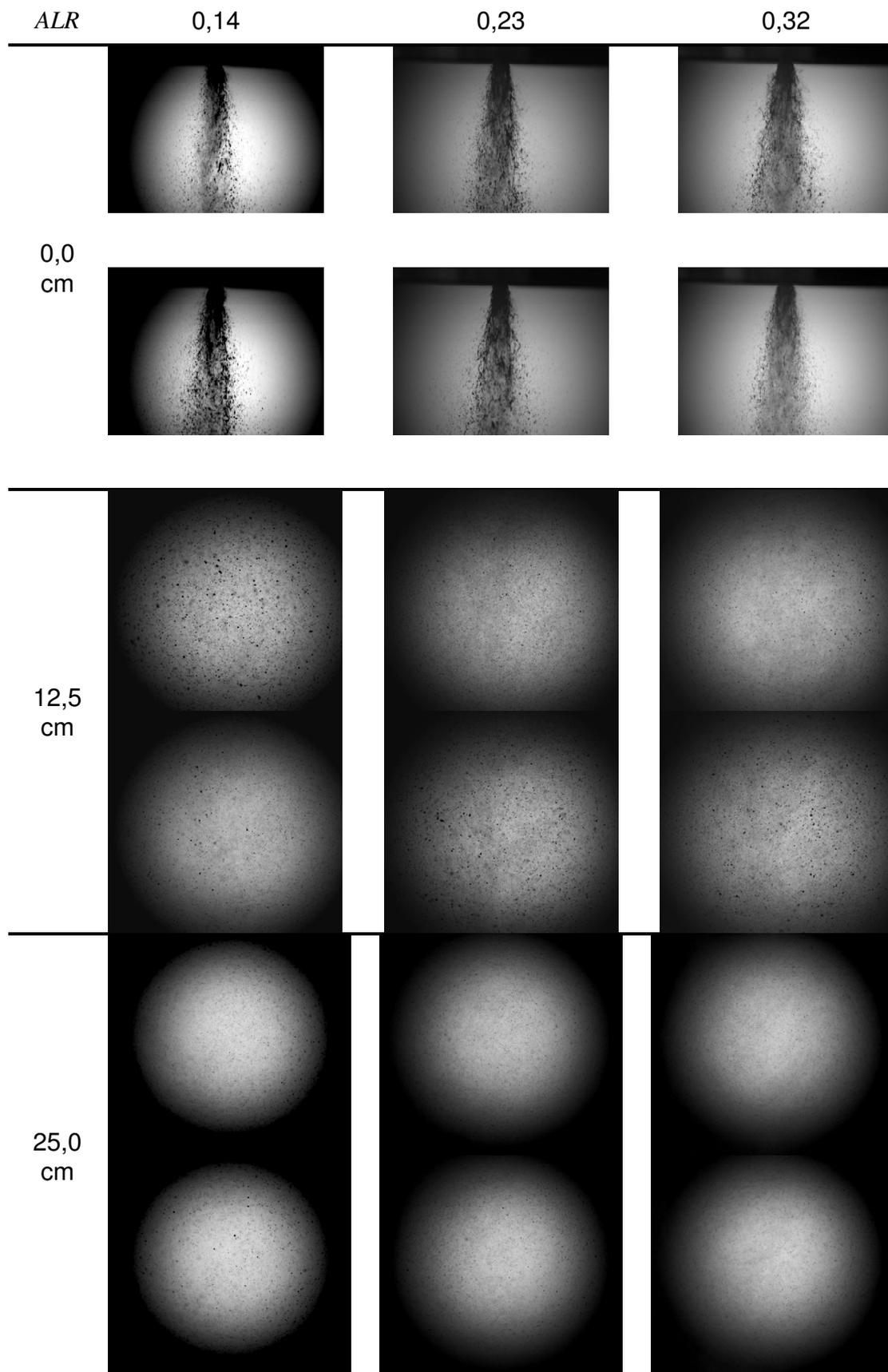


Abbildung 6.5: Schattenaufnahmen der „effervescent atomization“ von PVP-K30-Lösungen mit einer Konzentration von 20 % für unterschiedliche *ALR* und mit unterschiedlichen Abständen zum Zerstäuber (D15). Je zwei Aufnahmen für jeden *ALR*.

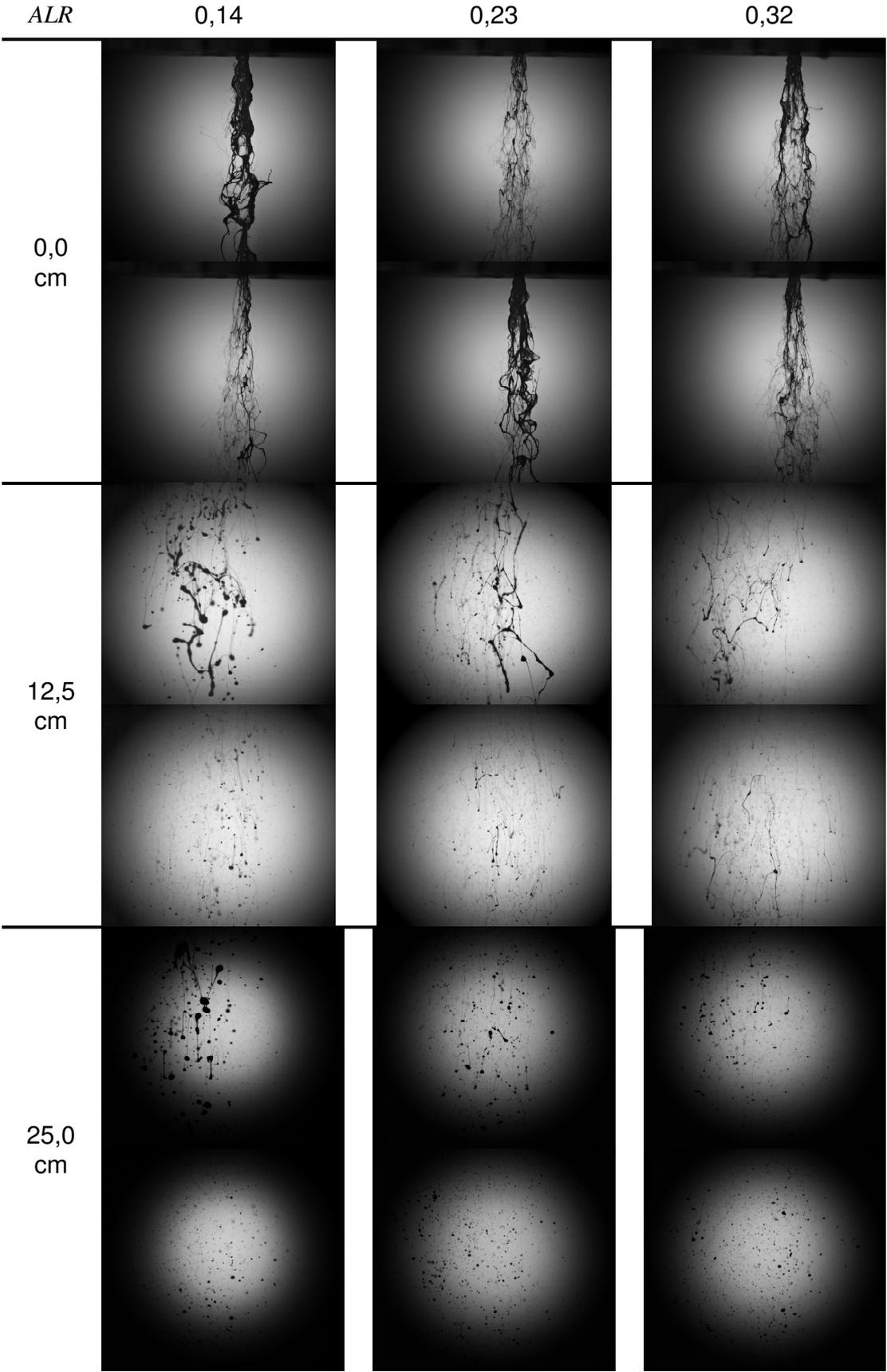


Abbildung 6.6: Schattenaufnahmen der „effervescent atomization“ von PVP-K90-Lösungen mit einer Konzentration von 8 % für unterschiedliche ALR und mit unterschiedlichen Abständen zum Zerstäuber (D15). Je zwei Aufnahmen für jeden ALR.

6.3 Tropfengrößenverteilung im Spray

Wie in Kapitel 2.2.3 und 2.5 ausgeführt wurde, gibt es in der Literatur einige Arbeiten zu resultierenden Tropfengrößenverteilung bei der „effervescent atomization“ von Polymerlösungen und keine von Emulsionen. Im Weiteren werden experimentelle Daten für diese Stoffsysteme und den Einfluss der Düsengeometrie betrachtet.

6.3.1 Einfluss der Stoffeigenschaften

Zum Vergleich der Stoffeigenschaften wird in diesem Kapitel nur die Düsengeometrie D15 mit unterschiedlichen Stoffsystemen betrachtet. In Abbildung 6.7 ist der Sauterdurchmesser von zerstäubten PVP-K30-Lösungen mit unterschiedlicher Konzentration in Abhängigkeit vom ALR dargestellt. Die korrespondierende Standardabweichung s_2 ist in Abbildung 6.8 zu sehen. Die Konzentration von 0 % entspricht reinem Wasser. Für alle Konzentrationen wird das aus der Literatur (siehe 2.2.2) erwartete Absinken der beiden Kenngrößen mit steigendem ALR beobachtet. Dabei wird mit steigendem ALR das Absinken der Kenngrößen geringer – ein ALR -unabhängiger Bereich wird allerdings nicht beobachtet. Bis zu einer Konzentration von 40 % ist dabei für beide Kenngrößen nur ein geringer Einfluss der Konzentration zu erkennen, wohingegen bei 45 % ein starker Anstieg der Kenngrößen zu beobachten ist. Bei Lösungen mit einer Konzentration von 50 % konnte keine Spraybildung mehr beobachtet werden.

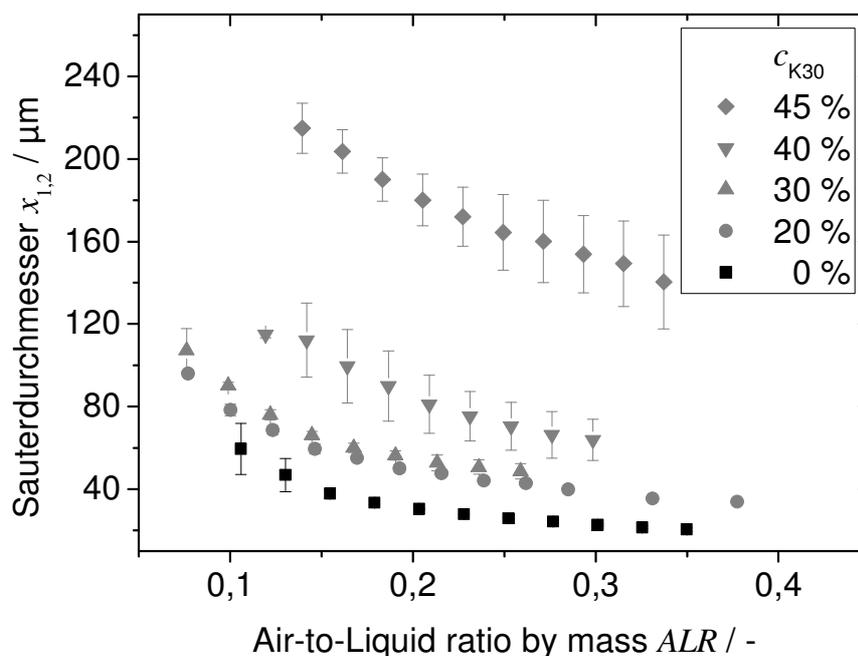


Abbildung 6.7: Sauterdurchmesser von zerstäubten PVP-K30-Lösungen mit unterschiedlicher Konzentration in Abhängigkeit vom ALR (D15).

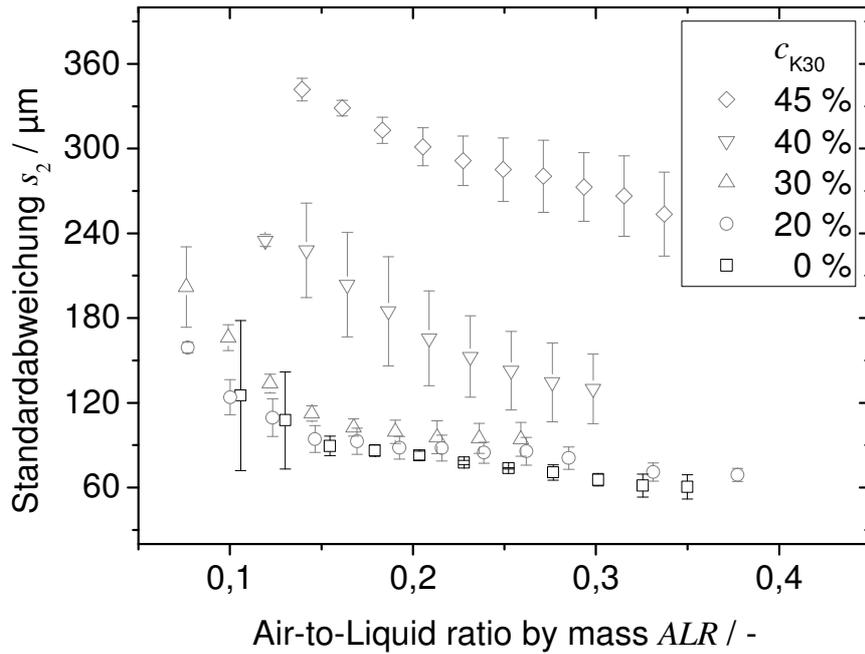


Abbildung 6.8: Standardabweichung s_2 von zerstäubten PVP-K30-Lösungen mit unterschiedlicher Konzentration in Abhängigkeit vom ALR (D15).

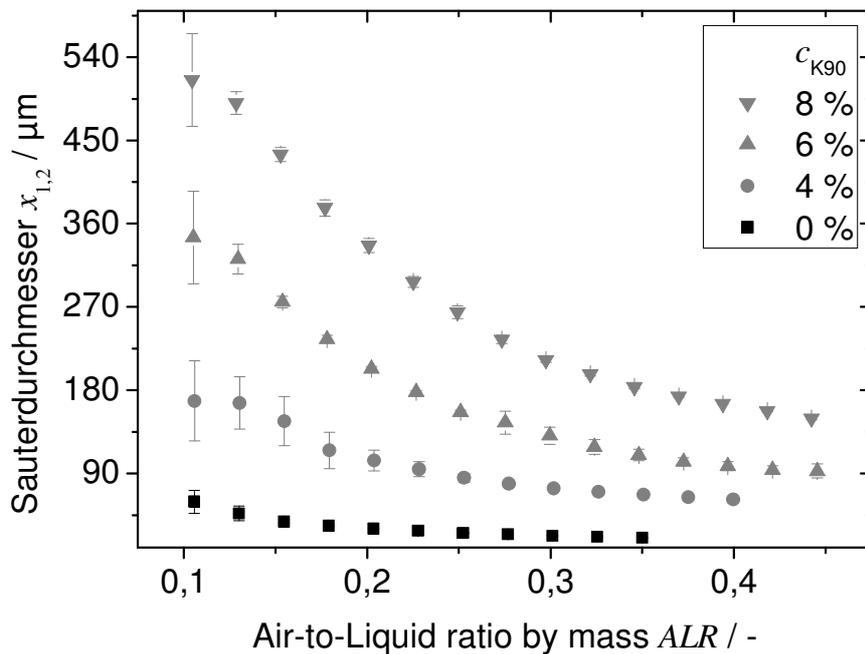


Abbildung 6.9: Sauterdurchmesser von zerstäubten PVP-K90-Lösungen mit unterschiedlicher Konzentration in Abhängigkeit vom ALR (D15).

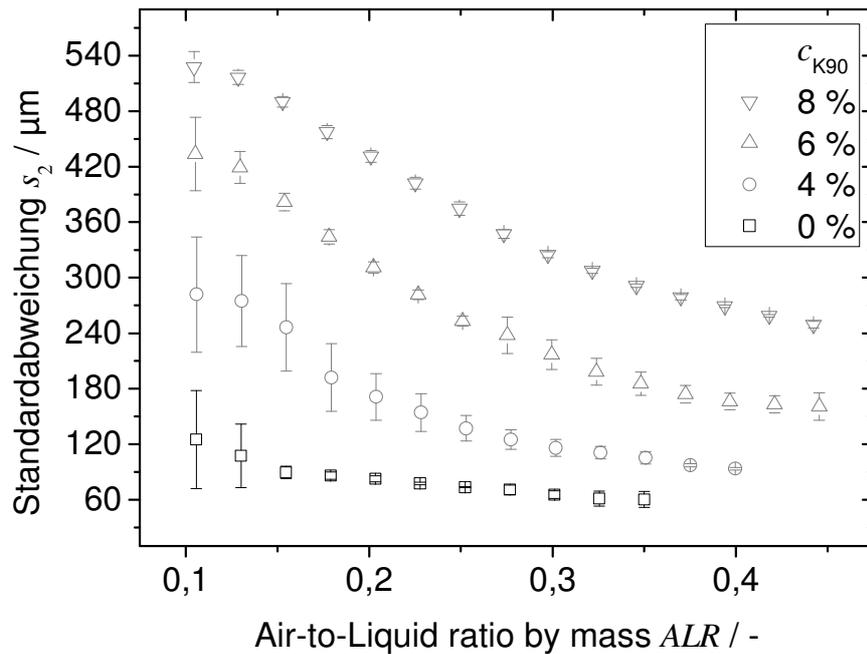


Abbildung 6.10: Standardabweichung s_2 von zerstäubten PVP-K90-Lösungen mit unterschiedlicher Konzentration in Abhängigkeit vom ALR (D15).

Die charakteristischen Kenngrößen der Tropfengrößenverteilungen von zerstäubten PVP-K90-Lösungen mit unterschiedlicher Konzentration in Abhängigkeit vom ALR sind in Abbildung 6.9 (Sauterdurchmesser) und Abbildung 6.10 (Standardabweichung s_2) dargestellt. Die Konzentration von 0 % entspricht reinem Wasser und ist dementsprechend identisch mit den Daten für 0 % in Abbildung 6.7 und Abbildung 6.8. Es wird ebenfalls das erwartete Absinken der beiden Kenngrößen mit steigendem ALR festgestellt, allerdings liegen die Werte mit steigender Konzentration deutlich oberhalb der Werte für PVP-K30-Lösungen mit weit höheren Konzentration. Eine mit PVP-K30-Lösungen vergleichbare Verringerung des ALR -Einflusses bei hohem ALR ist im untersuchten Bereich für PVP-K90-Lösungen nicht erkennbar.

Zur Einordnung der Tropfengrößenverteilungen anhand der scherrheologischen Charakterisierung sind in Abbildung 6.11 die Sauterdurchmesser von zerstäubten PVP-K30- und PVP-K90-Lösungen für unterschiedliche Scherviskositäten in Abhängigkeit vom ALR aufgetragen. Es handelt sich hierbei um die in Abbildung 6.7 und Abbildung 6.9 gezeigten Sauterdurchmesser für reines Wasser (0 % PVP), 30, 40 und 45 % K30 sowie 4, 6 und 8 % K90. Zur besseren Darstellung sind die Standardabweichungen nicht wiedergegeben. Bei konstantem K-Wert steigt mit steigender Scherviskosität der Sauterdurchmesser. Es ist aber erkennbar, dass die Schervisko-

sität keinen Anhaltspunkt zum Vergleich der Zerstäubungsergebnisse von K30 und K90 bieten kann. Mangels aussagekräftiger dehnreologischer Messdaten (siehe Kapitel 5.1) konnte kein Vergleich anhand der Dehnviskosität durchgeführt werden. Wie in Kapitel 6.2 diskutiert wurde, kann der Unterschied aber vermutlich auf das unterschiedliche dehnreologische Verhalten (K30 quasinewtonsches, K80 nichtnewtonsches) zurückgeführt werden.

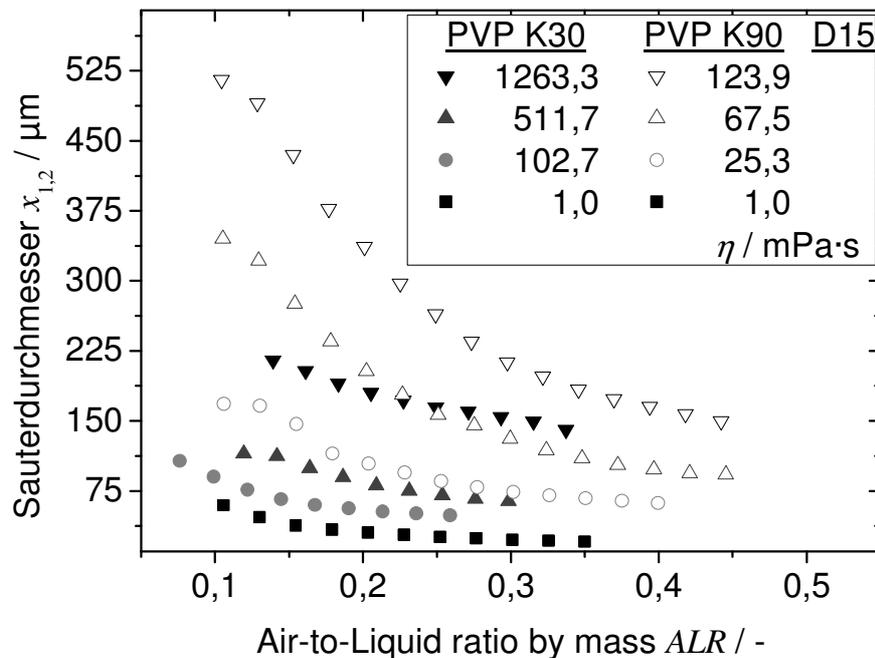


Abbildung 6.11: Vergleich der Sauterdurchmesser von zerstäubten PVP-K30- und PVP-K90-Lösungen anhand der Scherviskositäten in Abhängigkeit vom ALR (D15).

Gegenüber den bisher gezeigten Ergebnissen zur Spraytropfengrößenverteilungen von zerstäubten PVP-Lösungen haben Petersen et al. [6] und Nielsen et al. [7] teilweise wesentlich geringere Sauterdurchmesser (siehe Kapitel 2.2.3) vorgestellt. In der Arbeit von Petersen et al. [6] kam allerdings ein Messinstrument zum Einsatz, welches nur Tropfengrößen von bis zu 188 μm detektieren kann, wohingegen hier mit unterschiedlichen Instrumenten nachgewiesen werden konnte, dass vor allem für zerstäubten PVP-K90-Lösungen weitaus größere Flüssigkeitsfragmente vorliegen. Es ist daher davon auszugehen, dass durch die Limitierung des Messgeräts eine deutliche Unterschätzung der tatsächlich vorliegenden Tropfengröße verursacht wurde. In der Arbeit von Nielsen et al. [7] ist durch die Wahl einer geeigneteren Optik nicht von einer derartigen Unterschätzung auszugehen, aber im Vergleich zur Arbeit von Petersen et al. [6] und den hier vorgestellten Daten wurde bei einem ALR von ca. 1,4 gearbeitet. Dieser ALR -Wert liegt nach Konstantinov et al. [30] weit außerhalb

des eigentlichen Bereichs der „effervescent atomization“ und erbringt auch nicht mehr den deutlichen Vorteil gegenüber der herkömmlichen außenmischenden pneumatischen Zerstäubung durch Reduzierung des benötigten Zerstäubungsgasstroms.

In Abbildung 6.12 ist der Spraysauterdurchmesser von zerstäubten Emulsionen mit unterschiedlicher Konzentration von Maltodextrin (MD) in Abhängigkeit vom *ALR* dargestellt. Zur besseren Lesbarkeit der Grafik wurden die bei jedem zweiten *ALR* experimentell gemessenen Werte nicht dargestellt – sie stimmen aber mit dem Trend der gezeigten Daten gut überein. Bei den nicht abgebildeten Sauterdurchmessern für die MD-Konzentrationen 15 und 35 % entspricht die Abhängigkeit vom *ALR* den beobachteten Trends und die Werte liegen zwischen denen von 10 und 20 % bzw. 30 und 40 %. Eine Konzentration von 0 % entspricht hier nicht reinem Wasser sondern einer MD-freien kontinuierlichen Phase. Mit steigender Konzentration ab 30 % MD weisen die Messwerte eine stärker werdende Standardabweichung des *ALR* auf. Dies ist, wie in Kapitel 5.2 diskutiert, auf den Lufteinschluss durch die Herstellung und die dadurch fehlerbehaftete Dichtemessung zurückzuführen. Zur Mittelung der Mehrfachmessungen der Spraytropfengrößenverteilung wurden wie für alle Versuche die Messdaten mit gleichem Gasmassenstrom gemittelt. Zur Berechnung des *ALR* geht der Messwert der Dichte zur Umrechnung des Flüssigkeitsvolumenstroms ein. Wie bereits für beide einphasige Stoffsysteme kann auch für das zweiphasige Stoffsystem der Emulsion der erwartete Trend sinkender Sauterdurchmesser mit steigendem *ALR* festgestellt werden. Wie für PVP-K30-Lösungen wird mit steigendem *ALR* der Einfluss des *ALR* auf den Sauterdurchmesser deutlich geringer. Dies ist bei MD-Konzentrationen von bis zu 40 % ab einem *ALR* von 0,2 stark ausgeprägt.

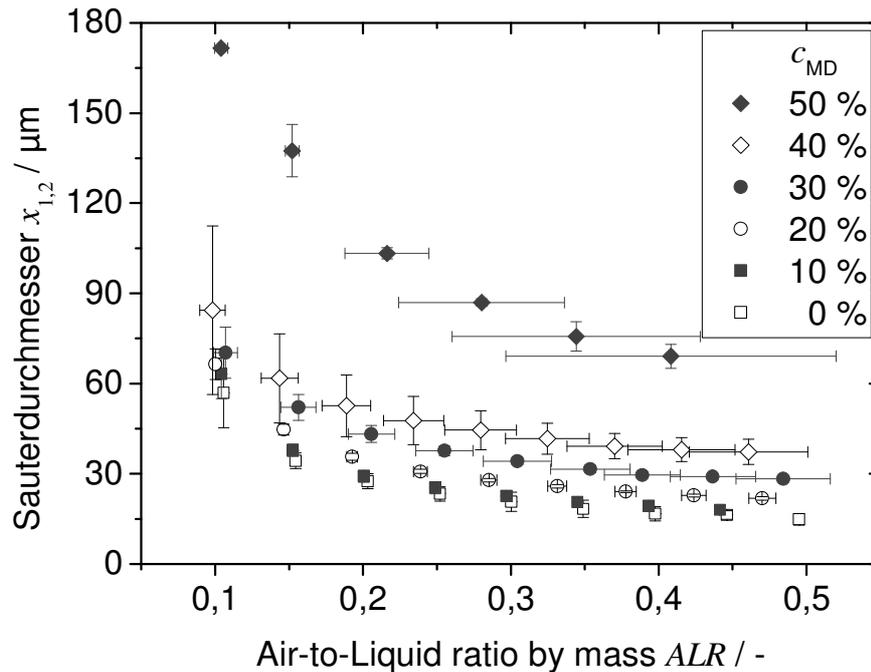


Abbildung 6.12: Sauterdurchmesser der zerstäubten Emulsion mit unterschiedlicher MD-Konzentration in Abhängigkeit vom ALR (D15).

Zur Einordnung der Tropfengrößenverteilungen anhand der scherrheologischen Charakterisierung sind in Abbildung 6.13 die Sauterdurchmesser von zerstäubten PVP-K30-Lösungen und der Modellemulsion für unterschiedliche Scherviskositäten in Abhängigkeit vom ALR aufgetragen. Es handelt sich hierbei um die in Abbildung 6.7 und Abbildung 6.12 gezeigten Sauterdurchmesser für reines Wasser (0 % PVP K30), 30, 40 und 45 % PVP K30 sowie Emulsionen mit 0, 40 und 50 % MD. Zur besseren Darstellung sind die Standardabweichungen nicht wiedergegeben. Es ist gut zu erkennen, dass mit steigender Scherviskosität die resultierenden Sauterdurchmesser bei vergleichbarem ALR steigen. Dabei ist die Größenordnung der Veränderung des Sauterdurchmessers unabhängig vom Stoffsystem. So zeigt sich bei einem ALR von 0,25 für Scherviskositäten von 1,0 mPa·s (PVP K30) und 2,4 mPa·s (Modellemulsion) fast der gleiche Sauterdurchmesser. Dies ist ebenfalls bei 102,7 mPa·s (PVP K30) und 181,5 mPa·s (Modellemulsion) der Fall. In beiden Fällen ist der Sauterdurchmesser für die PVP-K30-Lösung etwas kleiner als für die Modellemulsion. Für Scherviskositäten von 511,7, 728,9 und 1263,3 mPa·s folgt der Anstieg des Sauterdurchmessers unabhängig vom Stoffsystem dem Anstieg der Scherviskosität. Die Scherviskosität erlaubt hier also entgegen den Beobachtungen in Abbildung 6.11 eine klare Einordnung des Zerstäubungsergebnisses. Mangels dehn rheologischer

Daten der Modellemulsion konnte nicht überprüft werden, ob die beiden Stoffsysteme ein vergleichbares dehnrheologisches Verhalten aufweisen.

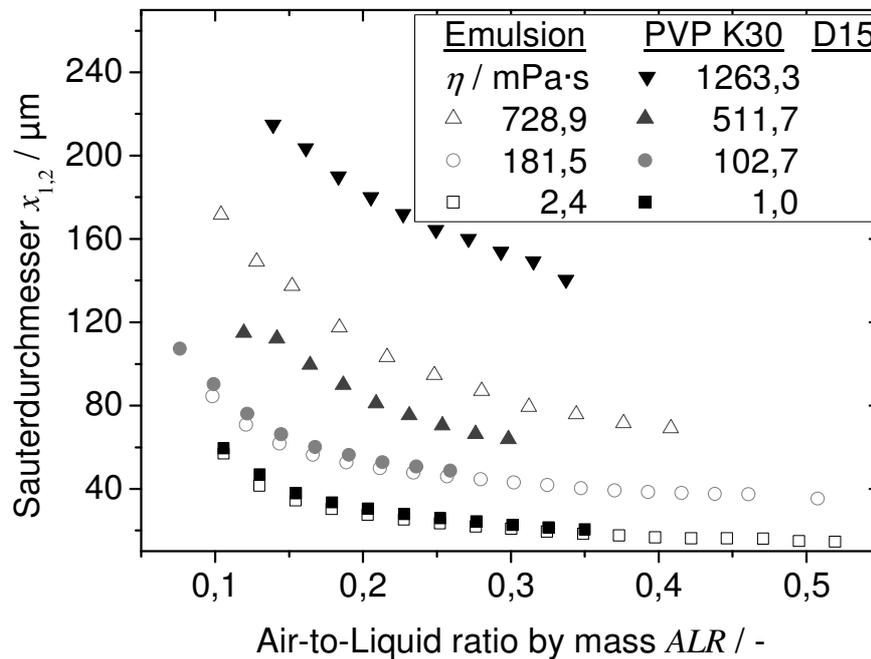


Abbildung 6.13: Vergleich der Sauterdurchmesser von zerstäubter Emulsion und PVP-K30-Lösung anhand der Scherviskositäten in Abhängigkeit vom ALR (D15).

6.3.2 Einfluss der Düsengeometrie

Anhand von PVP-K30-Lösungen mit einer Konzentration von 20 % soll im Weiteren der Einfluss der Düsengeometrie auf die Tropfengrößenverteilung gezeigt werden. Eine Übersicht der Düsengeometrien ist in Tabelle 4.1 aufgelistet. Nach Chin und Lefebvre [31] wird steigender Düsenkanallänge aufgrund von Reibungsverlusten ein Anstieg des mittleren Tropfendurchmessers erwartet. In Abbildung 6.14 ist der gemessene Einfluss der Düsenkanallänge bei konstantem Düsenkanaldurchmesser auf den Sauterdurchmesser dargestellt. In Abbildung 6.15 ist der korrespondierende Einfluss auf die Standardabweichung s_2 gezeigt. Die Düsenkanallänge steigt von 1,5 mm (D15) auf 15 mm (D150). Mit steigender Düsenkanallänge ist zunächst eine Verringerung beider Kenngrößen für die Düsengeometrien D30 und D45 zu beobachten. Mit weiter steigender Länge werden wieder größere charakteristische Kenngrößen gemessen, wobei diese bei Düsengeometrie D60 maximal sind und für D150 auf dem Niveau von D15 liegen. Die Veränderung der Kenngrößen ist mit Ausnahme von D60 allerdings relativ gering und liegt zumeist im Vertrauensbereich der Standardabweichung.

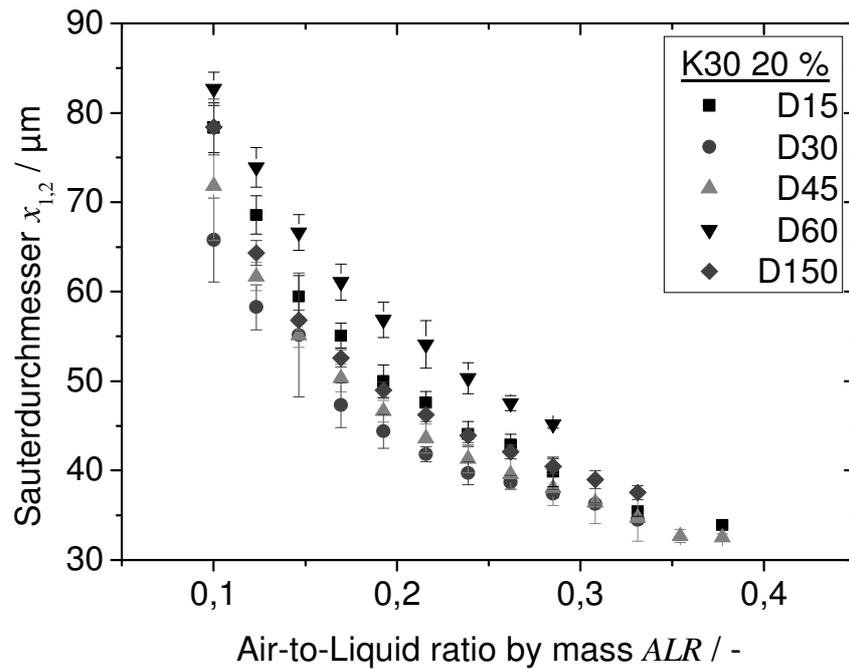


Abbildung 6.14: Sauterdurchmesser für Düsengeometrien mit unterschiedlicher Düsenlänge in Abhängigkeit vom ALR (PVP K30 20 %).

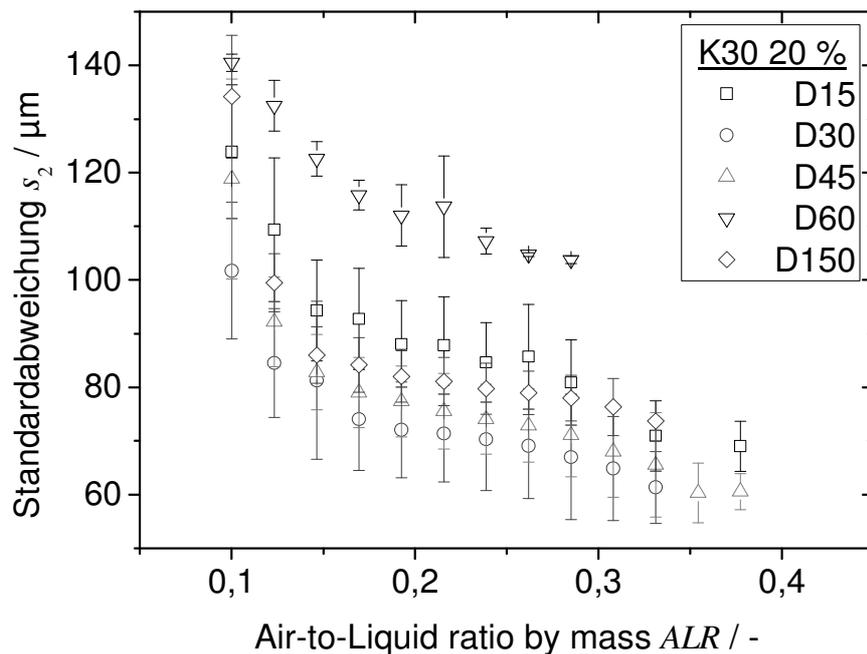


Abbildung 6.15: Standardabweichung s_2 für Düsengeometrien mit unterschiedlicher Düsenlänge in Abhängigkeit vom ALR (PVP K30 20 %).

Chin und Lefebvre [31] haben beschrieben, dass mit steigender Düsenkanallänge die mittlere Tropfengröße sinkt (siehe Kapitel 2.2). Das Verhalten entgegen dieser Erwartung kann an dieser Stelle nicht erklärt werden. Die Drücke in der Mischkammer

steigen wie erwartet mit steigender Düsenkanallänge kontinuierlich an (Flüssigkeitsdrücke: 1,0 - 1,3 - 1,5 - 1,5 - 2,3 bar für $ALR = 0,12$ und 3,1 - 3,5 - 3,9 - 3,9 - 5,1 bar für $ALR = 0,29$) und liefern keinen Anhaltspunkt für das Verhalten der mittleren Tropfengröße.

Die charakteristischen Kenngrößen Sauterdurchmesser und Standardabweichung s_2 für drei unterschiedliche Geometrien der Mischkammer bzw. Gasinjektionsgeometrie in Abhängigkeit vom ALR sind in Abbildung 6.16 dargestellt. Im Vergleich zu D15 hat D15 fein einen kleineren Gasinjektionsdurchmesser und D15 minimix einen kleineren Mischkammerdurchmesser, siehe auch Kapitel 4.3. Im Vergleich zu D15 ist für D15 fein eine leichte Verringerung beider Kenngrößen zu erkennen, für D15 minimix hingegen eine geringe Erhöhung. Die Veränderung der Kenngrößen liegt zumeist im Vertrauensbereich der Standardabweichung. Anhand der in der Literatur beschriebenen Ergebnisse (siehe Kapitel 2.2.2) war eine stärkere Verringerung der charakteristischen Kenngrößen für D15 fein im Vergleich zu D15 durch geringere Unstetigkeit und dadurch geringeren Grobanteil im Spray erwartet worden. Dies ist möglicherweise darauf zurückzuführen, dass der Gasinjektionsdurchmesser von D15 (0,5 mm) im Vergleich zu den in der Literatur untersuchten (bis 1,5 mm) klein ist.

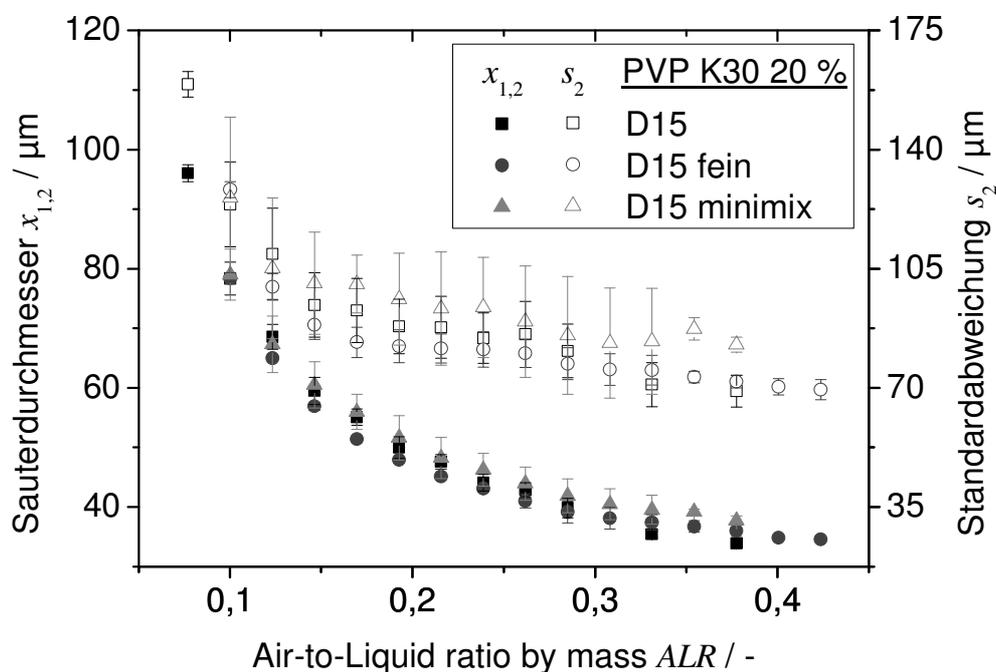


Abbildung 6.16: Sauterdurchmesser und Standardabweichung s_2 für Düsengeometrien mit unterschiedlicher Gasinjektionsgeometrie in Abhängigkeit vom ALR (PVP K30 20 %).

In Abbildung A4.5 und Abbildung A4.6 in Anhang 4 sind die mit Abbildung 6.14, Abbildung 6.15 und Abbildung 6.16 korrespondierenden Daten für eine PVP-K30-Konzentration von 40 % dargestellt. Hier sind die zuvor berichteten Trends nicht in dieser Form erkennbar, aber es ist auch eine deutlich schlechtere Reproduzierbarkeit zu erkennen, was ebenso wie die Aufnahmen in Abbildung 6.3 auf einen zeitweise unvollständigen Aufbruch hinweisen kann. Daher werden die Daten hier nicht weiter diskutiert.

Entsprechend Chin und Lefebvre [31] beeinflusst das l_D/d_D -Verhältnis aufgrund von veränderten Reibungsverlusten den mittleren Tropfendurchmesser. Um die Wirkung veränderter Länge und Durchmesser des Düsenkanals bei konstantem l_D/d_D -Verhältnis zu vergleichen, sind in Abbildung 6.17 und Abbildung 6.18 für drei unterschiedliche Düsengeometrien der Sauterdurchmesser bzw. die Standardabweichung s_2 in Abhängigkeit vom ALR dargestellt. Durchmesser und Länge des Düsenkanals steigt von 1,0 (D10) auf 2,0 mm (D20) an. Mit steigendem Durchmesser und Länge ist bei gleichem ALR eine Verschlechterung des Zerstäubungsergebnisses sowohl anhand des Sauterdurchmessers als auch der Standardabweichung s_2 erkennbar. Entsprechend Gleichung 2.7 ergibt sich nach Chin und Lefebvre [31] für die Gasinjektionsquerschnittsfläche und die Düsenkanalquerschnittsfläche für $d_D = 1,5$ mm (D15) ein Idealwert des ALR von ca. 0,16 und für $d_D = 1,0$ mm (D10) bzw. $d_D = 2,0$ mm (D20) dementsprechend von ca. 0,07 bzw. 0,28. Im Vergleich mit den in Abbildung 6.17 dargestellten Sauterdurchmessern in Abhängigkeit vom ALR zeigt sich, dass die Werte bei dem jeweiligen idealen ALR (D10 extrapoliert 65 - 70 μm , D15 ca. 57 μm , D20 ca. 50 μm) nicht übereinstimmen, aber in einem kleinen Intervall liegen. Die Vergrößerung des Sauterdurchmessers mit Verringerung des Düsenkanaldurchmessers ist auf die größer werdenden Einlaufverluste von der Mischkammer in den Düsenkanal zurückzuführen. Dementsprechend müssen bei Variation des Düsenkanaldurchmessers die Einlaufverluste bei der Bestimmung des Betriebsbereichs einer Düsengeometrie berücksichtigt werden. Für die in Abbildung 6.18 gezeigten, korrespondierenden Standardabweichung s_2 ist der beschriebene Zusammenhang nur abgeschwächt erkennbar.

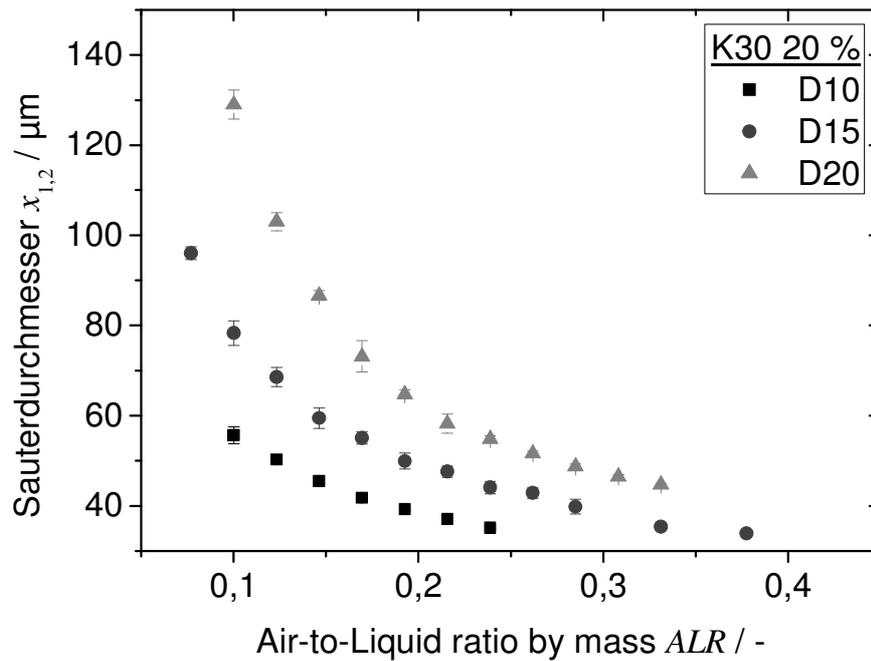


Abbildung 6.17: Sauterdurchmesser für Düsengeometrien mit unterschiedlichem Düsenkanal in Abhängigkeit vom ALR ($l_D/d_D = \text{konst.}$, PVP K30 20 %).

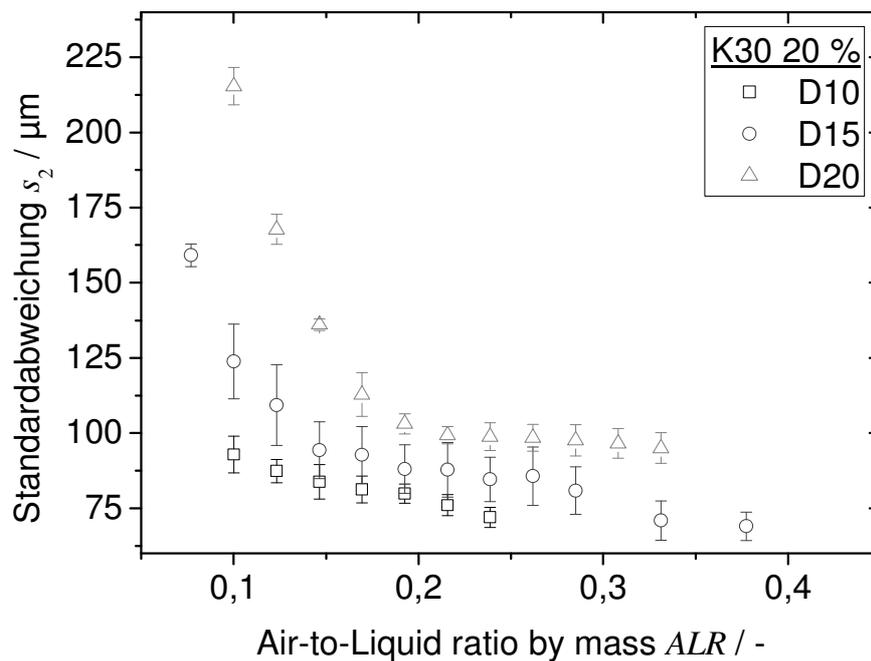


Abbildung 6.18: Standardabweichung s_2 für Düsengeometrien mit unterschiedlichem Düsenkanal in Abhängigkeit vom ALR ($l_D/d_D = \text{konst.}$, PVP K30 20 %).

Durch Verringerung des Düsenkanaldurchmessers von D20 zu D10 kommt es zu einem signifikanten Druckanstieg in der Zuführung von Gas und Flüssigkeit. Der Einfluss des relativen Gasdrucks (Zerstäubungsdrucks) auf den Sauterdurchmesser

ist in Abbildung 6.19 für drei Geometrien dargestellt. Es ist ebenfalls eine Verringerung des Sauterdurchmessers mit steigendem Gasdruck für alle Düsengeometrien erkennbar, aber bei vergleichbaren Drücken liegen die Werte wesentlich näher beieinander und es ist ein gemeinsamer Verlauf in Abhängigkeit vom Druck für alle drei Düsengeometrien erkennbar. Bei vergleichbaren Sauterdurchmessern ist aber ein Anstieg des relativen Gasdrucks von D20 zu D10 zu erkennen, der auf den ansteigenden Druckverlust von D20 zu D10 zurückzuführen ist. Für eine Veränderung des Düsenkanaldurchmessers erscheint die Betrachtung des Sauterdurchmessers in Abhängigkeit vom relativen Druck relevanter als in Abhängigkeit vom ALR .

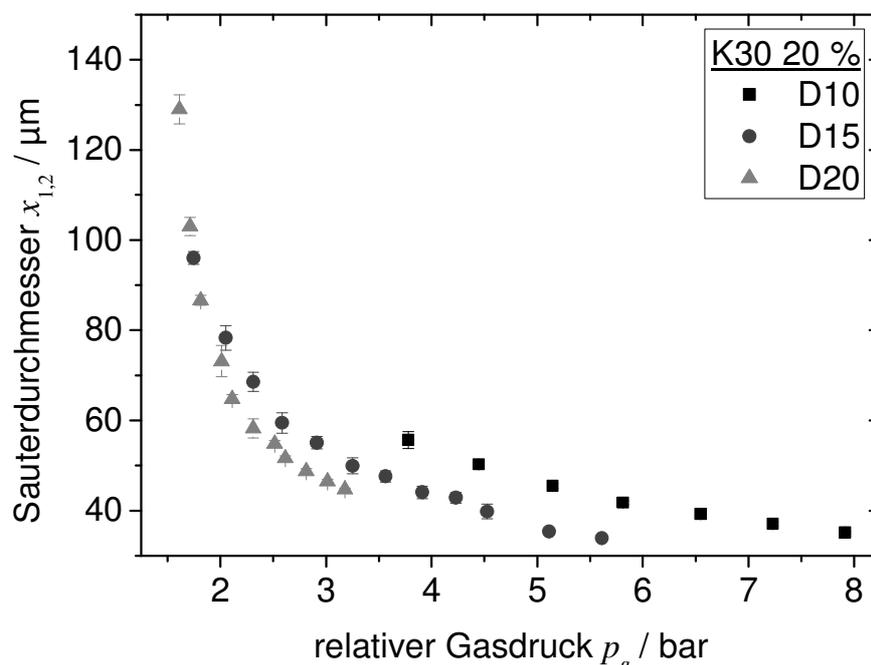


Abbildung 6.19: Sauterdurchmesser für Düsengeometrien mit unterschiedlichem Düsenkanal in Abhängigkeit vom relativen Gasdruck ($l_D/d_D = \text{konst.}$, PVP K30 20 %, $ALR = f(p_g)$).

6.3.3 Lokale Tropfengrößenverteilung im Spray

Eine Übersicht der radialen Verteilung der Tropfengrößen im Spray ist in Abbildung 6.20 gezeigt. In der linken Hälfte (negative Radien) sind Daten für 20 %ige PVP-K30-Lösungen dargestellt, in der rechten Hälfte (positive Radien) für 40 %ige PVP-K30-Lösungen. Die Ergebnisse sind gültig für den gesamten Spraykegel, da eine radiale Symmetrie anzunehmen ist. Grundsätzlich sind unabhängig vom Radius für höhere ALR niedrigere Sauterdurchmesser zu sehen. Mit Ausnahme 40 % K30 bei niedrigem ALR verringert sich der Sauterdurchmesser vom Rand zum Zentrum des Kegels. Für 40 % K30 verringert sich bei niedrigem ALR die Tropfengröße vom Rand zum Zentrum zunächst, bleibt von 60 und 30 mm konstant und erhöht sich dann wieder

zum Zentrum hin. Für die niedrigere Konzentration ist mit Düsengeometrie D60 eine geringere Abhängigkeit von der radialen Position zu sehen – d. h. die Verteilung ist geringfügig homogener. Bei der höheren Konzentration ist zwischen den Düsengeometrien nur für den Spraymittelpunkt und einen Radius von 10 mm ein relevanter Unterschied erkennbar. Hier liegen mit Düsengeometrie D15 leicht kleinere Sauterdurchmesser vor. Für die höhere Konzentration bildet sich aber ein Plateau (hoher ALR) bzw. ein Minimum (niedriger ALR) von 20 bis 60 mm Radius aus.

Die Beobachtungen für PVP K30 20 % entsprechen dem auf Basis der Literatur (siehe 2.2.4) erwarteten Verhalten kleiner Tropfengröße in der Mitte des Spraykegels und kontinuierlich größer werdende Tropfen zum Rand hin. Das Abweichen von diesem Verhalten bei PVP K30 40 % ist auf den nicht vollständigen Tropfenaufbruch zurückzuführen: Es werden viele Flüssigkeitsfragmente kaum zerteilt. Die großen Fragmente haben eine große Trägheit und werden durch die Gasexpansion weniger weit aus der Sprayachse heraus bewegt, siehe auch Kapitel 6.2. Dies führt bei niedrigem ALR zu einem Maximum der Spraytropfengröße in der Spraymitte.

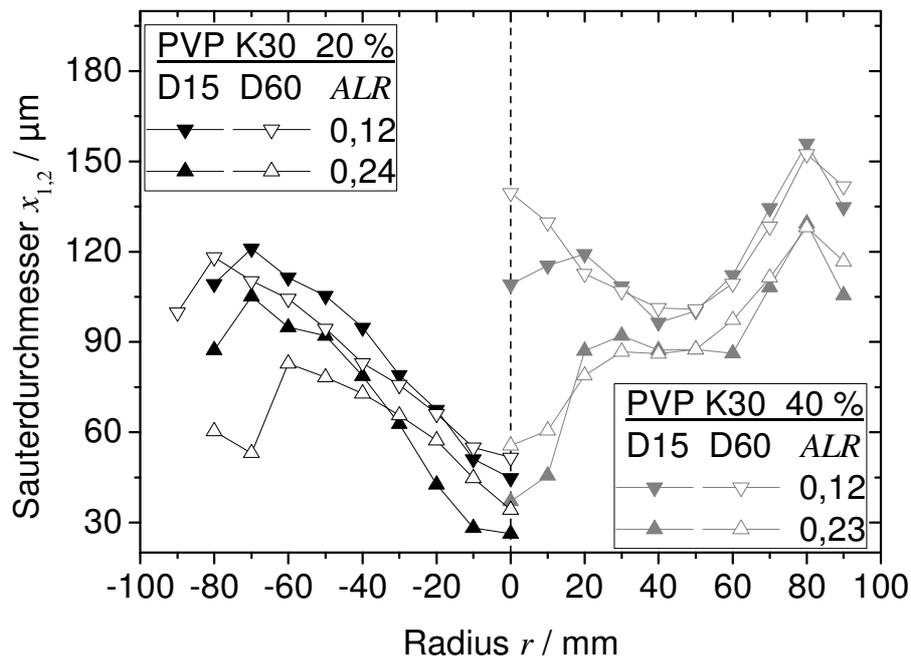


Abbildung 6.20: Radiale Verteilung des Sauterdurchmessers im Vergleich zwischen zerstäubtem 20 % (links) und 40 % (rechts) PVP K30 in Abhängigkeit von ALR und Düsengeometrie.

Weitere Darstellungen der Sauterdurchmesser in Abhängigkeit vom Radius, auch für eine PVP-K30-Konzentration von 30 %, finden sich Abbildung A4.7 in Anhang 4.

6.3.4 Vergleich der Zerstäuberformen

In Abbildung 6.21 sind der Sauterdurchmesser und die Standardabweichung s_2 von Sprays eines „effervescent atomizer“ mit Düsengeometrie D15 und eines herkömmlichen außenmischenden pneumatischen Zerstäubers (siehe Kapitel 4.3) in Abhängigkeit vom ALR verglichen. Für beide Zerstäuberformen verringern sich mit steigendem ALR beide Kenngrößen der Tropfengrößenverteilung. Bei Verwendung des „effervescent atomizer“ ist die Abhängigkeit vom ALR aber deutlich stärker ausgeprägt. Die schlechte Reproduzierbarkeit und der leichte Anstieg bei maximalem ALR kann beim pneumatischen Zerstäuber auf „beam steering“-Effekte bei der Messung (siehe Kapitel 4.5.2) zurückgeführt werden. Es werden für den „effervescent atomizer“ annähernd die gleichen Sauterdurchmesser erreicht, allerdings bei deutlich geringeren ALR -Werten. Im Fall der Standardabweichung s_2 werden etwas größere Werte beobachtet.

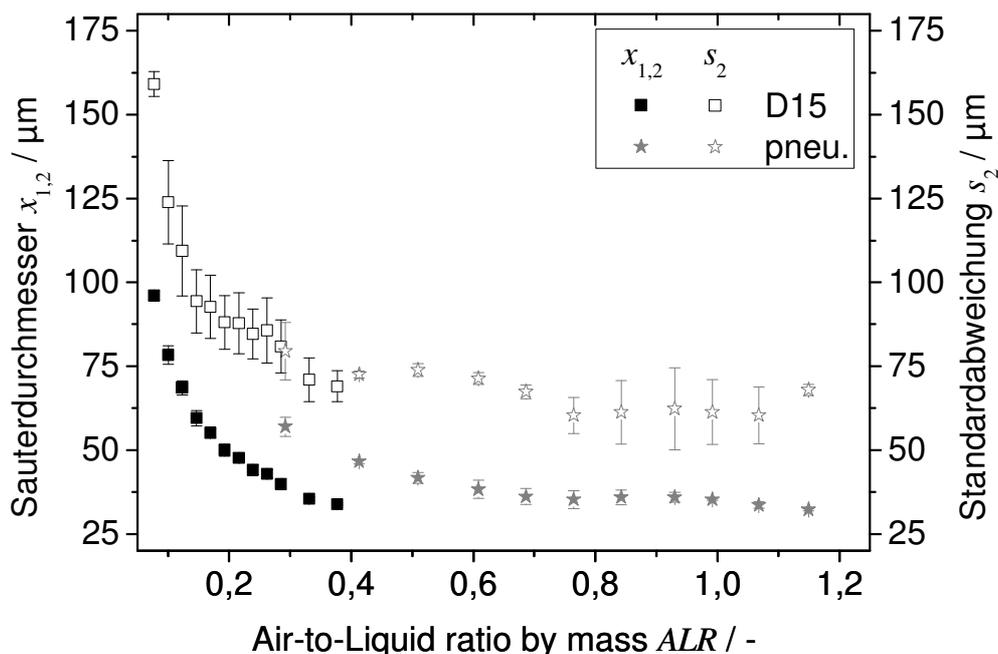


Abbildung 6.21: Vergleich des Sauterdurchmessers und der Standardabweichung s_2 bei Verwendung eines "effervescent atomizer" (D15) und eines herkömmlichen außenmischenden pneumatischen Zerstäubers (pneu.) (PVP K30 20 %).

Es kann dementsprechend festgestellt werden, dass mit etwa 50 % Einsparung des Gasmassenstroms bei der „effervescent atomization“ ein zur herkömmlichen pneumatischen Zerstäubung annähernd vergleichbares Zerstäubungsergebnis erzielt werden kann. Da die Gasdrücke sich für die betrachteten Zerstäuber allerdings um 0,2 bis 1,6 bar unterscheiden und die Flüssigkeit beim pneumatischen Zerstäuber bei

sehr niedrigen Drücke nahe dem Umgebungsdruck gefördert wird, kann an dieser Stelle noch keine grundlegende Aussage bzgl. der Effizienz getroffen werden. Hierzu erfolgt in Kapitel 6.7 eine weitere Betrachtung.

6.4 Sprayunstetigkeit

Zur Untersuchung der Unstetigkeit und möglicher Pulsation des Sprays kommen die in Kapitel 4.5.5 vorgestellten Messtechniken und Auswertemethoden zum Einsatz.

6.4.1 Vergleich der Mess- und Auswertemethoden

In Tabelle 6.2 sind bei unterschiedlichen Messfrequenzen des Laserbeugungsspektrometers gemessenen Pulsationsfrequenzen für zwei Düsengeometrien (D15 & D60) für PVP K30 20 % und einem ALR von 0,23 aufgelistet. Die Pulsationsfrequenz verändert sich nicht mit der Messfrequenz, was außer im Falle einer überlagerten hochfrequenten Frequenz auch nicht zu erwarten war, da bereits eine Frequenz von 50 Hz weit über dem doppelten der zu messenden Frequenz liegt. Dies ist nach Shannon [115] erforderlich um eine Pulsation vollständig zu erfassen. Alle weiteren Messungen wurden mit 250 Hz durchgeführt.

Tabelle 6.2: Pulsationsfrequenz des Sprays bei unterschiedlichen Messfrequenzen des Laserbeugungsspektrometers (PVP K30 20 %, ALR 0,23).

Messfrequenz / Hz	Pulsationsfrequenz / Hz	
	D15	D60
50	6,97	8,85
250	7,04	8,64
1000	6,78	8,73

Tabelle 6.3 zeigt einzelne Messwerte sowie die Mittelwerte mit Standardabweichung (\pm) der Pulsationsfrequenzen für die Düsengeometrie D15 bei unterschiedlichen Konzentrationen von PVP K30 bei einem ALR von 0,32. Für 20 % stimmen die aus den verschiedenen Kenngrößen bestimmten Pulsationsfrequenzen sehr gut überein sowie haben eine gute Reproduzierbarkeit zwischen den Wiederholungsmessungen. Mit steigender Konzentration kommt es vermehrt zu starken Unterschieden sowohl zwischen den Einzelwerten innerhalb einer Messung als auch zwischen den Wiederholungsmessungen. Dies ist unabhängig von Düsengeometrie und ALR zu beobachten wie auch die Daten in Tabelle A6.1 in Anhang 6 zeigen. Zur zuverlässigen Be-

stimmung der Pulsationsfrequenz wurden daher folgende Kriterien festgelegt: Bei einer Standardabweichung von größer oder gleich 2 wurde die gesamte Messung verworfen, bei Pulsationsfrequenzen von kleiner oder gleich 1,5 wurde der Messwert der einzelnen Kenngröße verworfen, da derart niedrige Werte aufgrund optischer und akustischer Versuchsbeobachtungen in dieser Arbeit ausgeschlossen werden können. Daher liegen nur für bis zu 20 % (K30) bzw. 6 % (K90) belastbare Pulsationsfrequenzen vor, die mit Hilfe der Laserbeugungsspektrometrie gemessen wurden.

Tabelle 6.3: Pulsationsfrequenzen des Sprays von je drei Wiederholungsmessungen für unterschiedliche Konzentrationen bestimmt anhand der Transmission T und unterschiedlicher Kenngrößen der Spraytropfenverteilung (D15, PVP K30, ALR 0,32).

Konzentration	Pulsationsfrequenz / Hz						
	T	bestimmt mittels				Mittelwert	\pm
		$x_{1,2}$	$x_{10,3}$	$x_{50,3}$	$x_{90,3}$		
20 %	8,59	8,59	8,59	8,59	8,59	8,59	0,00
20 %	8,93	8,93	8,93	8,93	8,94	8,94	0,00
20 %	8,93	8,93	8,93	8,93	8,94	8,94	0,00
30 %	7,01	0,21	10,34	83,19	0,12	20,18	35,50
30 %	0,03	10,09	10,09	36,42	0,13	11,35	14,88
30 %	2,92	64,43	0,00	64,43	0,32	26,42	34,72
40 %	0,01	55,07	55,07	74,52	108,70	58,67	39,43
40 %	0,14	13,97	13,97	13,97	13,97	11,21	6,19
40 %	0,32	12,03	12,03	12,02	12,48	9,77	5,29

Zur Verifizierung der mittels Anpassung der Sinusfunktion ermittelten Pulsationsfrequenzen wurde die Pulsationsfrequenz für einen repräsentativen Datensatz mit einer Fourier-Analyse bestimmt und verglichen. Die Daten hierzu sind in Tabelle A6.1 in Anhang 6 dargestellt. Der Datensatz beinhaltet zwei Düsengeometrien (D15 & D60) und drei Konzentrationen von PVP K30 (20 %, 30 %, 40 %). Es zeigt sich für 20 % durchweg eine gute Übereinstimmung innerhalb einer Messung und zwischen den Wiederholungsmessungen. In Abbildung 6.22 ist eine exemplarische Fourier-Analyse für den zeitlichen Verlauf des $x_{90,3}$ -Signals dargestellt und es ist gut erkennbar, dass die bestimmte Pulsationsfrequenz (7,05) stark ausgeprägt ist. Es sind aber Vielfache dieser Frequenz ebenfalls erkennbar. In Abbildung A6.1 und Abbildung A6.2 in An-

hang 6 sind weitere Beispiele der Fourier-Analyse dargestellt, die dies bestätigen. Die Übereinstimmung im Vergleich zu den mittels Anpassung der Sinusfunktion gewonnenen Daten ist für diese Konzentration sehr gut.

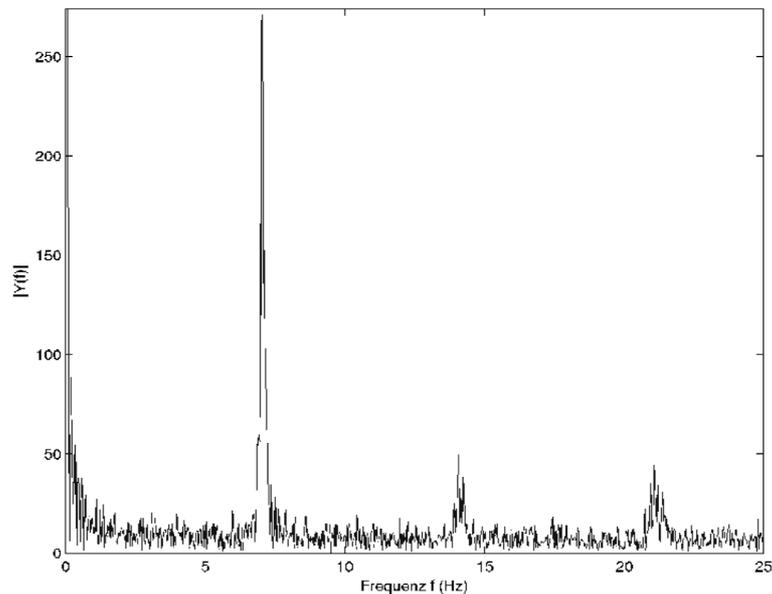


Abbildung 6.22: Exemplarische Fourier-Analyse (Ausschnitt) des zeitlichen Verlaufs des $x_{90,3}$ -Signals (D15, PVP K30 20 %, $ALR = 0, 23$).

Mit steigender Konzentration zeigen allerdings auch die Ergebnisse die Fourier-Analyse eine schlechte Übereinstimmung innerhalb einer Messung und zwischen den Wiederholungsmessungen. In Abbildung 6.23 ist eine exemplarische Fourier-Analyse für den zeitlichen Verlauf des $x_{90,3}$ -Signals bei einer Konzentration von 40 % dargestellt und hier ist im Gegensatz zu Abbildung 6.22 die bestimmte Pulsationsfrequenz (15,11) nicht klar ausgeprägt, weshalb die Aussagekraft angezweifelt werden muss. In Abbildung A6.3 und Abbildung A6.4 in Anhang 6 sind weitere Beispiele der Fourier-Analyse dargestellt, die dies ebenfalls zeigen.

Aufgrund der großen Abweichungen und unter Berücksichtigung der zuvor aufgestellten Kriterien zur zuverlässigen Bestimmung der Pulsationsfrequenz können auch mit diesen Daten für Konzentrationen größer 20 % keine belastbaren Daten bestimmt werden. Grundsätzlich war für die beiden Düsengeometrien für die Fourier-Analyse kein Unterschied in den zuvor beschriebenen Beobachtungen zu erkennen. Im Vergleich zwischen Fourier-Analyse und Anpassung der Sinusfunktion in den Bereichen in denen mit diesen beiden belastbare Daten bestimmt werden können, bestätigen die Ergebnisse der Fourier-Analyse die der Anpassung der Sinusfunktion.

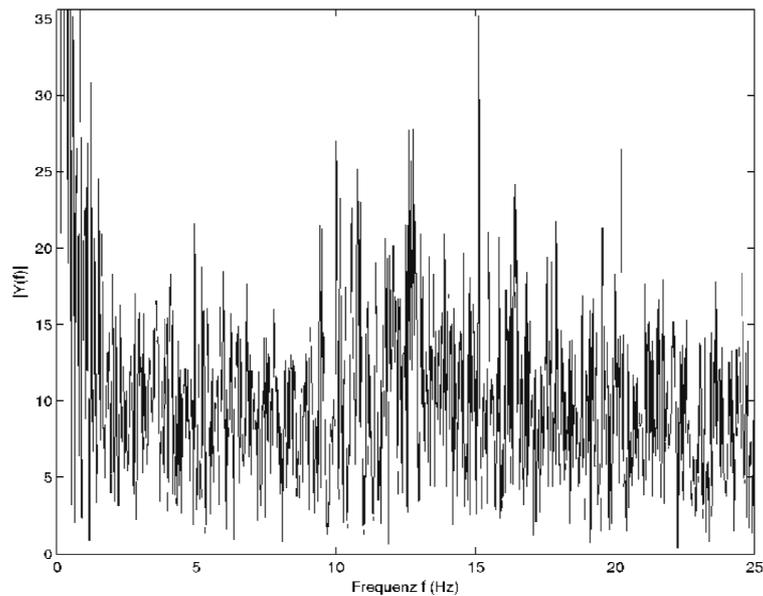


Abbildung 6.23: Exemplarische Fourier-Analyse (Ausschnitt) des zeitlichen Verlaufs des $x_{90,3}$ -Signals (D60, PVP K30 40 %, $ALR = 0, 23$).

Zusätzlich wurden die Ergebnisse auch mit Hilfe des Stroboskops überprüft. Die gemessenen Pulsationsfrequenzen liegen in der gleichen Größenordnung der mittels hochfrequenter Laserbeugungsspektrometrie und Anpassung der Sinusfunktion bestimmten Frequenzen. Aufgrund der geringeren Genauigkeit und des vergleichsweise höherem Zeitaufwand wurde die Messmethode aber nicht weiter genutzt. Alle im Weiteren angegebenen Pulsationsfrequenzen sind mit Laserbeugungsspektrometrie und Anpassung der Sinusfunktion bestimmt.

Da mit allen Messverfahren bei konstanter Einstellung der Pumpe eine ALR - und Stoffeigenschaftsabhängigkeit der Unstetigkeit beobachtet wurde, kann ausgeschlossen werden, dass eine durch die Pumpe verursachte Unstetigkeit bestimmt wurde.

6.4.2 Einfluss von Stoff- und Prozessparametern

Hinsichtlich des Einflusses der Stoffparameter wird basierend auf dem Stand des Wissens (siehe Kapitel 2.2.1) mit steigender Viskosität und steigendem ALR eine Verringerung der Sprayunstetigkeit erwartet. Zur Korrelation von Pulsationsfrequenz mit der Sprayunstetigkeit wird daher zunächst dieser Einfluss betrachtet.

In Abbildung 6.24 ist die Pulsationsfrequenz für PVP-K30- und PVP-K90-Lösungen unterschiedlicher Konzentration in Abhängigkeit vom ALR aufgetragen. Mit steigendem ALR ist meist ein Anstieg der Pulsationsfrequenz erkennbar. Für PVP-K90-

Lösungen ist ein Anstieg der Pulsationsfrequenz mit steigender Konzentration und Viskosität (von 25,3 auf 67,5 mPa·s) erkennbar. Für PVP-K30-Lösungen zeigt sich der entgegengesetzte Trend mit steigender Konzentration und Viskosität (von 13,3 auf 24,5 mPa·s). Insgesamt liegen die Pulsationsfrequenzen von K30 unterhalb der von K90.

Da für höhere PVP-Konzentrationen keine Pulsationsfrequenzen bestimmt werden konnten, wurde die Sprayunstetigkeit bei Zerstäubung einer 20 %igen PVP-K30- (24,5 mPa·s) und einer 8 %igen PVP-K90-Lösung (123,9 mPa·s) in Abhängigkeit vom ALR anhand von Schattenaufnahmen (siehe Kapitel 4.5.5) verglichen. In Tabelle 6.4 sind die Standardabweichungen der normalisierten Konzentrationen aus den Aufnahmen für die beiden PVP-Lösungen in Abhängigkeit vom ALR aufgelistet. Im Vergleich der beiden Lösungen sind für die PVP-K90-Lösungen deutlich geringere Standardabweichungen zu erkennen, was auf eine geringere Unstetigkeit mit steigender Viskosität und Kettenlänge hindeutet. Ein eindeutiger Einfluss des ALR ist hier nicht erkennbar.

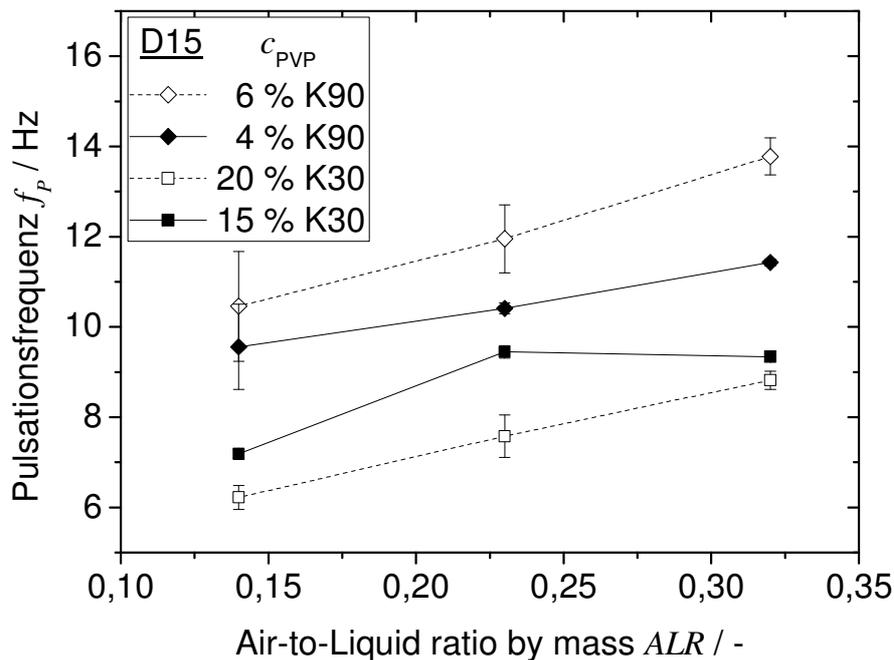


Abbildung 6.24: Pulsationsfrequenz in Abhängigkeit vom ALR für unterschiedliche PVP-Konzentrationen und K-Werte (D15).

Tabelle 6.4: Standardabweichung der normalisierten Konzentrationen der Schattenaufnahmen (D15).

<i>ALR</i> / -	Standardabw. der norm. Konz. Ξ / -	
	PVP K30 20 %	PVP K90 8 %
0,14	0,050	0,012
0,23	0,048	0,016
0,32	0,045	0,014

Es kann daher geschlossen werden, dass ein Anstieg der Pulsationsfrequenz mit einer Verringerung der Unstetigkeit einhergeht, da die Frequenz mit steigendem *ALR* steigt oder annähernd konstant bleibt. Der Einfluss der Scherviskosität auf die Pulsationsfrequenz ist nicht eindeutig, da widersprüchliche Daten vorliegen. Ein steigender Polymerisationsgrad führt aber zu einer Erhöhung der Pulsationsfrequenz und Verringerung der Unstetigkeit. Mangels aussagekräftiger dehnreologischer Messdaten kann hier der Effekt des Polymerisationsgrads anhand rheologischer Eigenschaften nicht erschöpfend diskutiert werden.

Jedelsky et al. [52] haben für „light heating oil“ mit steigender Länge des Düsenkanals eine Verringerung der Turbulenz im Spray beobachtet, weshalb durch eine Verlängerung des Düsenkanals eine geringere Sprayunstetigkeit und somit höhere Pulsationsfrequenz erwartet wird. In Abbildung 6.25 ist bei konstanter PVP-K30-Konzentration von 20 % der Einfluss der Düsenkanallänge anhand unterschiedlicher Düsengeometrien dargestellt. Für die meisten Geometrien wird ebenfalls ein Anstieg der Pulsationsfrequenz mit steigendem *ALR* beobachtet. Für D150 ist hingegen eine annähernd konstante Frequenz für alle *ALR* erkennbar. Mit Verlängerung des Düsenkanals von D15 bis D45 steigt die Pulsationsfrequenz an, sinkt mit weiterer Verlängerung für D60 und steigt für D150 wieder auf das maximale Niveau von D45. Die geringe Pulsationsfrequenz für D60 entspricht nicht der Erwartung steigender Pulsationsfrequenzen mit steigender Düsenkanallänge. Dies kann möglicherweise durch Unterschiede in der Strömungsform durch Verlängerung des Düsenkanals und damit ansteigende Drücke in der Mischkammer verursacht sein (siehe Kapitel 6.3.2).

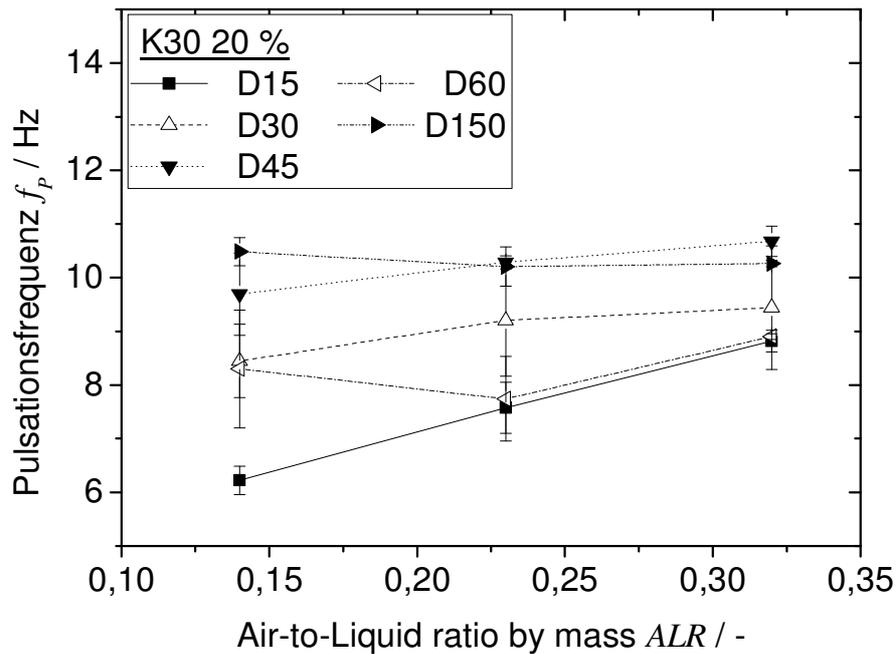


Abbildung 6.25: Pulsationsfrequenz in Abhängigkeit vom ALR für eine konstante PVP-K30-Konzentrationen von 20 % und Düsengeometrien unterschiedlicher Düsenkanallänge (PVP K30 20 %).

Die Mischkammergeometrie hat in einigen Arbeiten einen Einfluss auf die Spraystetigkeit gezeigt (siehe Kapitel 2.2.1). In Abbildung 6.26 ist der Einfluss des Mischkammerdurchmessers und der Gasinjektionsgeometrie auf die Pulsationsfrequenz bei konstanter PVP-K30-Konzentration von 20 % in Abhängigkeit vom ALR aufgetragen. Für alle Geometrien ist ein Anstieg der Pulsationsfrequenz mit steigendem ALR erkennbar. Durch eine feinere Gasinjektionsgeometrie in D15 fein wird im Vergleich zur bisherigen Standardgeometrie D15 eine Erhöhung der Pulsationsfrequenz beobachtet. Die Erhöhung der Pulsationsfrequenz und damit Verringerung der Unstetigkeit durch die feine Gasinjektionsgeometrie entspricht der Erwartung. Durch Verringerung des Mischkammerdurchmessers in D15 minimix zeigt sich eine starke Verringerung der ALR -Abhängigkeit, die bei geringen ALR in einer starken Erhöhung der Pulsationsfrequenz im Vergleich zu D15 führt und bei hohem ALR zu vergleichbaren Werten beider Geometrien. Das Verhalten kann hier nicht erklärt werden.

Die vorgestellten Ergebnisse haben gezeigt, dass es möglich ist durch Veränderung der Düsengeometrie die Pulsationsfrequenz bei gleichbleibenden Stoffeigenschaften zu beeinflussen.

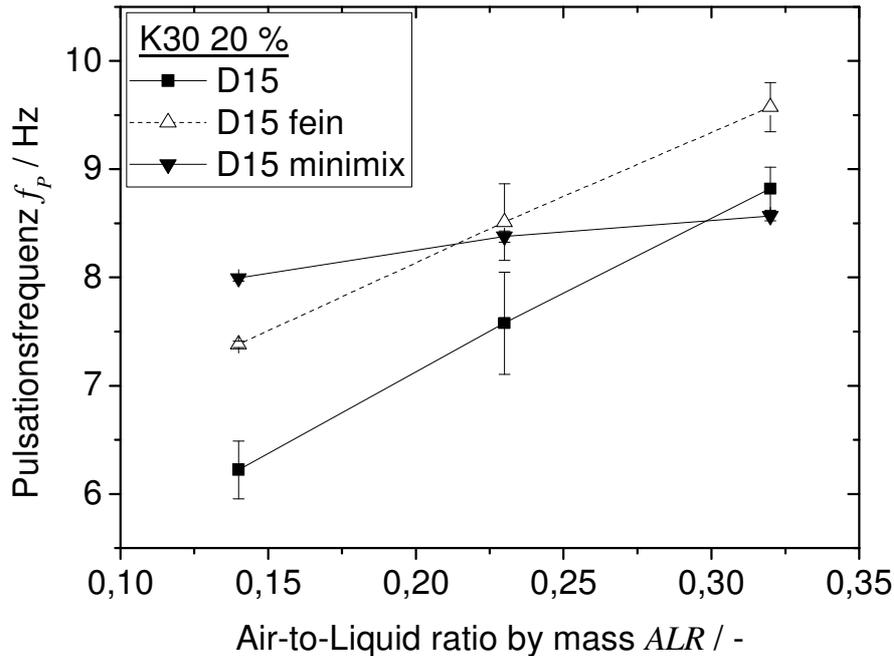


Abbildung 6.26: Pulsationsfrequenz in Abhängigkeit vom ALR für eine konstante PVP-K30-Konzentrationen von 20 % und Düsen mit unterschiedlicher Mischkammer- bzw. Gasinjektionsgeometrie (PVP K30 20 %).

6.5 Auswirkung der Sprayunstetigkeit auf die Tropfengrößenverteilung

Zur Überprüfung der Hypothese, dass eine geringe Unstetigkeit mit kleinerem mittleren Durchmesser und schmalerer Breite der Tropfengrößenverteilung einhergeht, werden die Ergebnisse aus Kapitel 6.3 zur Tropfengrößenverteilung und Kapitel 6.4 zur Sprayunstetigkeit verglichen.

Der Effekt der Verlängerung des Düsenkanals auf die charakteristischen Kenngrößen der Tropfengrößenverteilung bei Zerstäubung einer 20 %igen PVP-K30-Lösung ist in Abbildung 6.14 und Abbildung 6.15 dargestellt, in Abbildung 6.25 die korrespondierenden Pulsationsfrequenzen. Für einen ALR von 0,23 bzw. 0,24 sind diese Daten in Abbildung 6.27 in Abhängigkeit von der Düsenkanallänge zusammengefasst. Die beiden charakteristischen Kenngrößen der Tropfengrößenverteilung (Sauterdurchmesser und Standardabweichung s_2) zeigen die gleiche Abhängigkeit von der Düsenkanallänge, die Pulsationsfrequenz verhält sich entgegengesetzt. Dies zeigt, dass eine höhere Pulsationsfrequenz und damit geringere Unstetigkeit die mittlere Tropfengröße und die Breite der Verteilung verringert.

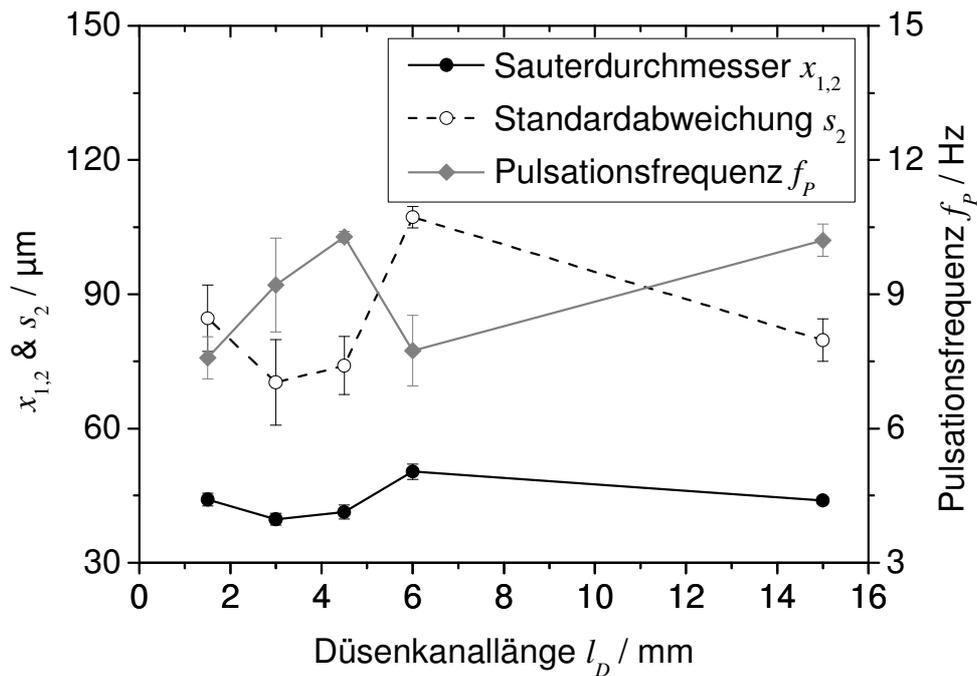


Abbildung 6.27: Vergleich der Pulsationsfrequenz mit den korrespondierenden charakteristischen Kenngrößen der Spraytropfengrößenverteilung in Abhängigkeit von der Düsenkanallänge ($d_D = 1,5$ mm, $ALR = 0,24$ für $x_{1,2}$ & s_2 , $ALR = 0,23$ für f_p , PVP K30 20 %).

Die charakteristischen Kenngrößen und die Pulsationsfrequenz in Abhängigkeit der Düsenkanallänge sind für einen niedrigeren und einen höheren ALR in Abbildung A7.1 und Abbildung A7.2 in Anhang 7 dargestellt. Hier zeigt sich der beschriebene Zusammenhang dieser Größen ebenfalls. Eine mögliche Abhängigkeit der charakteristischen Kenngrößen und der Pulsationsfrequenz von der Länge der Mischstrecke zwischen Gasinjektion und Düsenkanal ist in Anhang 7 diskutiert.

Der Effekt der Verkleinerung des Gasinjektionsdurchmessers auf die charakteristischen Kenngrößen der Tropfengrößenverteilung bei Zerstäubung einer 20 %igen PVP-K30-Lösung ist in Abbildung 6.16 dargestellt sowie in Abbildung 6.26 die korrespondierenden Pulsationsfrequenzen. Die Daten sind in Abbildung 6.28 zusammengefasst. Der hier beobachtete Trend ist weniger stark ausgeprägt als im Absatz zuvor, es ist aber für ALR von 0,14 - 0,15 und 0,23 - 0,24 für die feiner Gasinjektionsgeometrie (D15 fein) im Vergleich zur normalen (D15) eine leichte Verringerung der Standardabweichung s_2 und des Sauterdurchmessers erkennbar. Gleichzeitig wird ein eindeutiger Anstieg der Pulsationsfrequenz beobachtet. Dies korrespondiert mit der zuvor postulierten Annahme, dass ein Anstieg in der Pulsationsfrequenz die beiden charakteristischen Kenngrößen der Tropfengrößenverteilung reduziert.

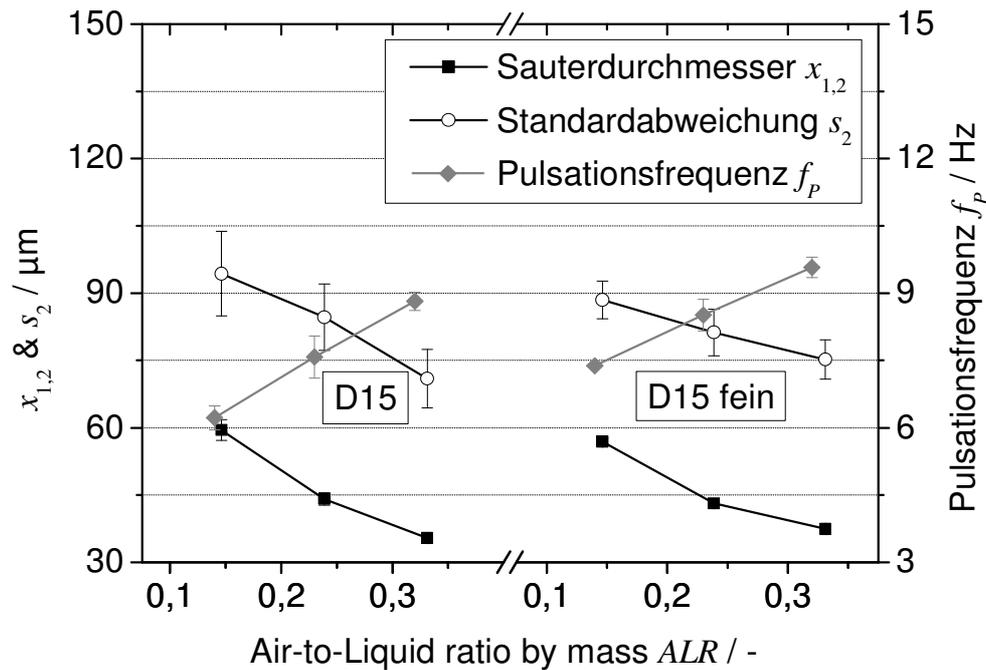


Abbildung 6.28: Vergleich der Pulsationsfrequenz mit den korrespondierenden charakteristischen Kenngrößen der Spraytropfengrößenverteilung in Abhängigkeit vom Gasinjektionsdurchmesser ($d_{I,D15} = 0,5 \text{ mm}$, $d_{I,D15 \text{ fein}} = 0,3 \text{ mm}$, PVP K30 20 %).

Für die Veränderung des Mischkammerdurchmessers (D15 minimix) kann kein Zusammenhang der charakteristischen Kenngrößen der Tropfengrößenverteilung und der Pulsationsfrequenz beobachtet werden, allerdings haben die Messdaten der Tropfengrößenverteilung insgesamt eine hohe Standardabweichung, was ggf. auf eine schlechte Reproduzierbarkeit schließen lässt.

Insgesamt kann festgehalten werden, dass die Pulsationsfrequenz einen direkten Einfluss auf den Sauterdurchmesser und die Standardabweichung s_2 hat, wobei eine steigende Pulsationsfrequenz die beiden genannten Kenngrößen zumeist verringert. Durch gezielte Veränderung der Düsengeometrie kann die Pulsationsfrequenz beeinflusst werden und erlaubt dementsprechend eine teilweise Kontrolle der resultierenden Tropfengrößenverteilung. Es ist aber festzuhalten, dass dieser Einfluss nicht größer als der beispielsweise des ALR ist.

6.6 Modellierung resultierender Tropfengrößen

6.6.1 Modell von Lund

Zur Bewertung der Anwendbarkeit des Modells von Lund zur Modellierung von resultierenden Tropfengrößen im Spray (siehe Kapitel 2.2.5) werden die experimentellen Daten mit den berechneten Werten verglichen. In Abbildung 6.29 sind die experimen-

tell gemessenen Sauterdurchmesser (Punkte) und die nach dem Modell von Lund berechneten Werte (Linien) für Düsengeometrie D15 und unterschiedliche PVP-K30-Konzentrationen in Abhängigkeit vom ALR dargestellt. Grundsätzlich ist der Trend einer sinkenden Tropfengröße mit steigendem ALR für alle Konzentrationen korrekt wiedergegeben, aber außer für die höchste Konzentration von 45 % ist eine starke Überschätzung der Tropfengrößen zu erkennen.

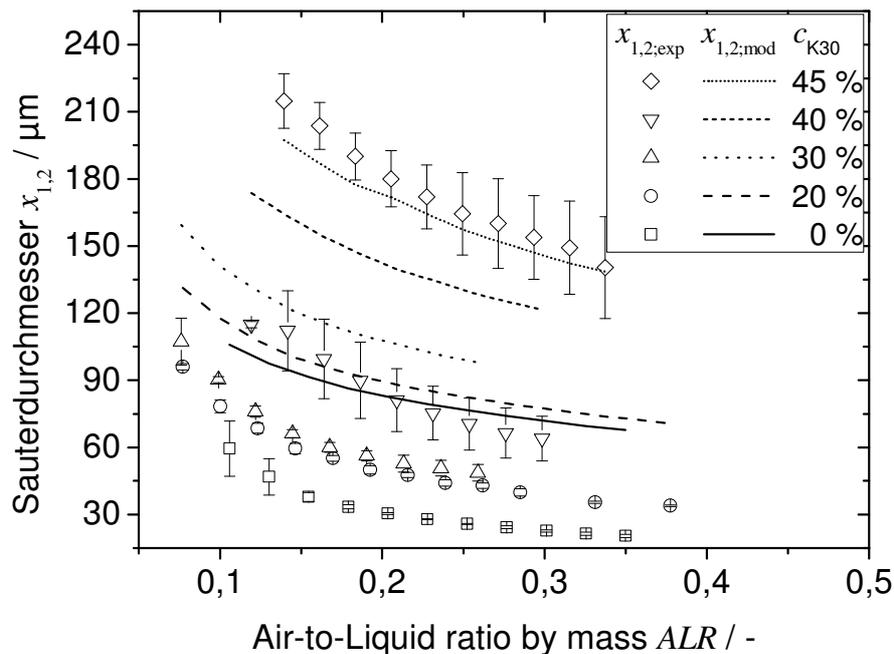


Abbildung 6.29: Vergleich der experimentellen Sauterdurchmesser und die nach der Modell von Lund berechneten Werte für unterschiedliche Konzentrationen von PVP K30 in Abhängigkeit vom ALR (D15).

In Abbildung 6.30 ist der gleiche Vergleich für unterschiedliche PVP-K90-Konzentrationen gezeigt und auch hier ist der grundsätzliche Trend sinkender Tropfengröße mit steigendem ALR korrekt, zeigt aber für 6 und 8 % abweichende Steigungen. Hier ist aber eine starke Unterschätzung für die höchsten Konzentrationen von 6 und 8 % zu erkennen.

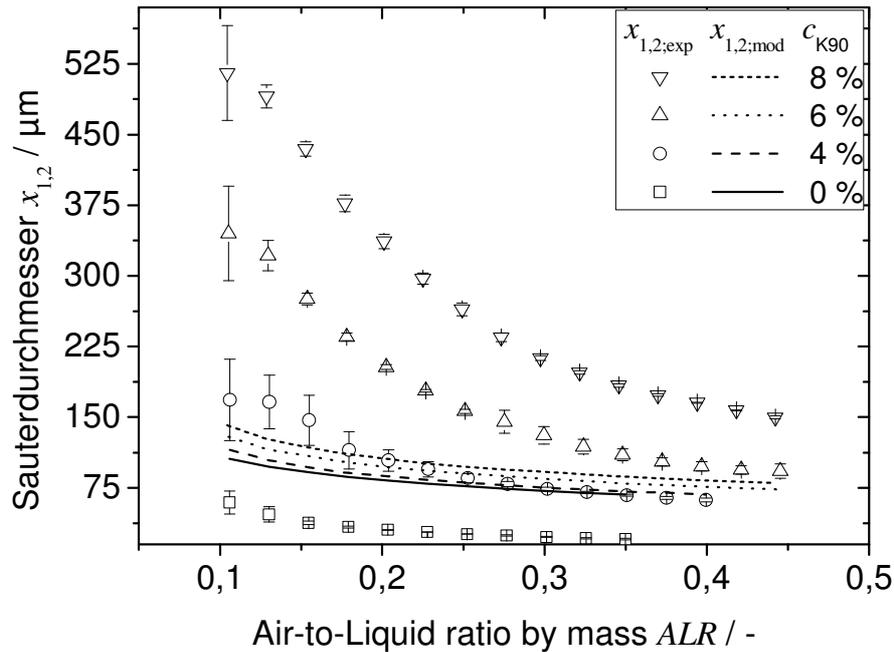


Abbildung 6.30: Vergleich der experimentellen Sauterdurchmesser und die nach der Modell von Lund berechneten Werte für unterschiedliche Konzentrationen von PVP K90 in Abhängigkeit vom ALR (D15).

6.6.2 Erweiterung des Modells von Lund

Das Modell von Lund wurde anhand einfacher Stoffsysteme unter $100 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ [45] entwickelt und unter anderem für niedrig konzentrierte Polymerlösungen unter $20 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ [43] eingesetzt. Bei letzteren zeigte sich bei den höchsten, dort untersuchten Konzentrationen ein signifikantes Abweichen zu kleineren berechneten Werten verglichen mit den experimentell gemessenen Werten. Um die anhand der in Kapitel 6.6.1 dargestellten Ergebnisse erkennbaren Unzulänglichkeiten des Modells von Lund zu korrigieren, wurden Möglichkeiten gesucht, durch die der für die Anwendung in der Praxis wichtige Vorteil einer schnellen Rechnung ohne hohen Rechenaufwand nicht eingebüßt wird. Das Modell zeigt einige Schwachpunkte:

- Die Grenzflächenspannung sowie die Viskositäten der Stoffe werden bei der Berechnung des Gasphasenanteils nicht berücksichtigt.
- Der Ligamentfadendurchmesser wird auf rein geometrischer Basis unter Vernachlässigung aller Stoffeigenschaften berechnet.
- Der primäre Aufbruch des Ligaments wird unter Berücksichtigung der Stoffeigenschaften nur vereinfacht beschrieben.
- Der sekundäre Aufbruch wird nicht berücksichtigt, was bei Polymerlösungen aufgrund von Fließgrenzen aber eine berechnete Annahme sein kann.

Zur genaueren Beschreibung des primären Aufbruchs und zur Berücksichtigung des sekundären Aufbruchs mit Hilfe von numerischer Strömungssimulationen gibt es unter anderem von Qian et al. [57] Arbeiten. Zur Berücksichtigung der Grenzflächen- spannung und Viskosität der Stoffe zur Berechnung des Gasphasenanteils in einer Zweiphasenströmung gibt es hingegen in der Literatur zahlreiche Ansätze (Zusammenfassung einiger Korrelationen von Butterworth [62], theoretisches Modell von Moody [116]). Anstelle der iterativen Methode von Ishii (Gleichung 2.9) wurden in dieser Arbeit die Korrelationen nach Baroczy (Gleichung 2.17), Thom (Gleichung 2.18) und Turner & Wallis (Gleichung 2.19) eingesetzt. Keine der drei Korrelationen wurde mit, den in dieser Arbeit verwendeten, vergleichbaren Stoffsystemen erarbeitet. Die weiteren Korrelationen aus der Zusammenfassung von Butterworth [62] sowie das Modell von Moody [116] wurden aufgrund hoher Abweichungen in Voruntersuchungen nicht verwendet. Bis auf diese Änderung (Austausch von Gleichung 2.9) wurden die Werte entsprechend dem Vorgehen des Modells von Lund berechnet.

In Abbildung 6.31 sind für Düsengeometrie D15 und eine 20 %ige PVP-K30-Lösung die experimentell ermittelten Sauterdurchmesser (Punkte) mit den Werten des Originalmodells von Lund (Ishii) und den drei weiteren Korrelationen (Linien) verglichen. Der Trend der sinkenden Werte mit steigendem ALR ist für alle Methoden korrekt wiedergegeben. Die Korrelationen von Baroczy und Turner & Wallis zeigen im Vergleich zu Thom und Ishii eine deutlich bessere Übereinstimmung mit den experimentellen Werten. Diese Beobachtungen bestätigen sich auch für andere K30-Konzentrationen. In Anhang 8 sind experimentelle Daten mit berechneten Werten für 0 % (reines Wasser) in Abbildung A8.1 und für 40 % PVP K30 in Abbildung A8.2 dargestellt. Die in Abbildung 6.32 dargestellten korrespondierenden Daten für Düsengeometrie D15 und die höchste PVP-K30-Konzentration von 45 % zeigen dahingegen die beste Übereinstimmung mit den nach Ishii berechneten Daten. Für alle Methoden ist die ALR -Abhängigkeit korrekt wiedergegeben.

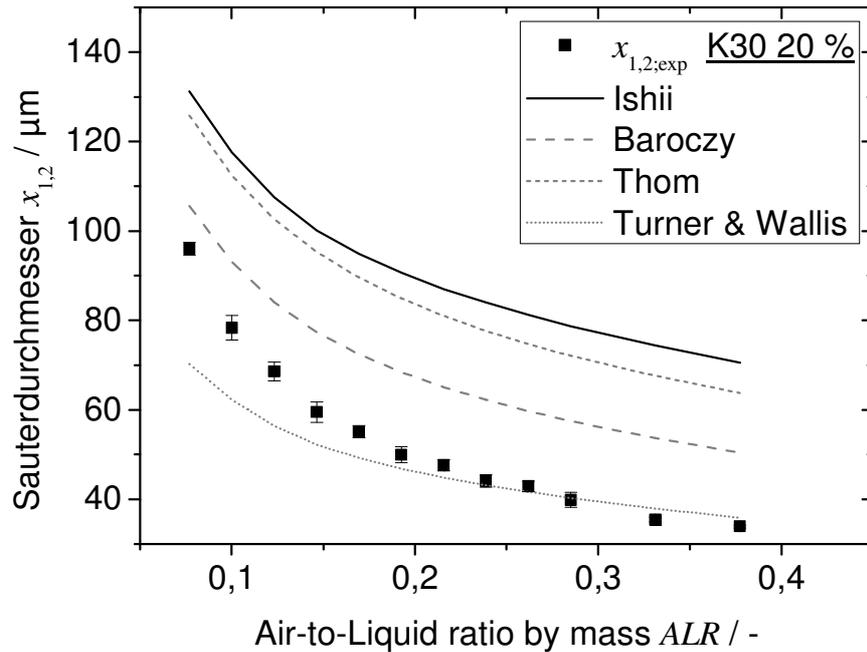


Abbildung 6.31: Vergleich der experimentellen Sauterdurchmesser und der mit unterschiedlichen Methoden (Modell von Lund: Ishii; Erweiterungen: Baroczy, Thom, Turner & Wallis) berechneten Werte in Abhängigkeit vom ALR (D15, PVP K30 20 %).

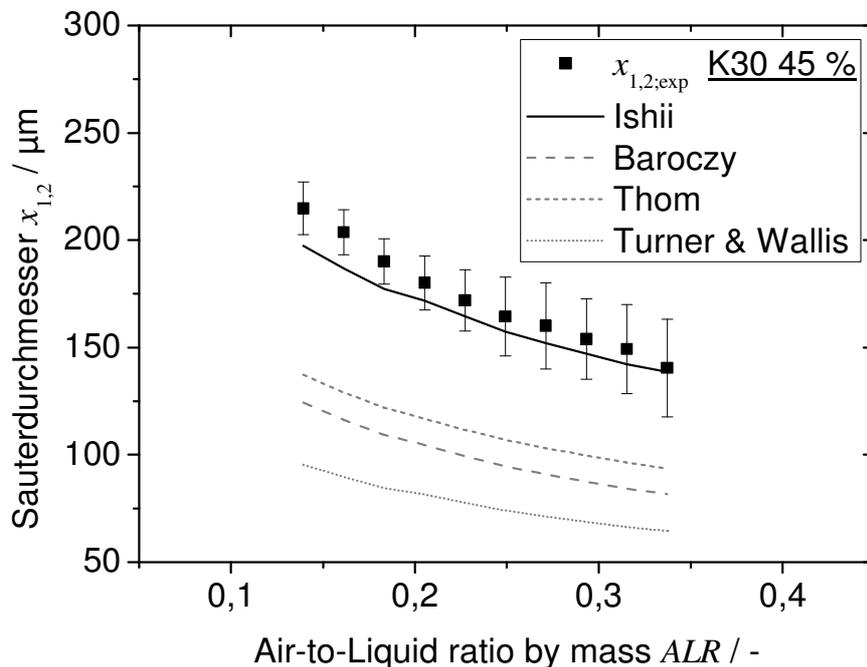


Abbildung 6.32: Vergleich der experimentellen Sauterdurchmesser und der mit unterschiedlichen Methoden (Modell von Lund: Ishii; Erweiterungen: Baroczy, Thom, Turner & Wallis) berechneten Werte in Abhängigkeit vom ALR (D15, PVP K30 45 %).

In Abbildung 6.33 sind für Düsengeometrie D15 und eine 4 %ige PVP-K90-Lösung die experimentell ermittelten Sauterdurchmesser (Punkte) mit den Werten der vier

Modellvarianten (Linien) verglichen. Der Trend sinkender Werte mit steigendem ALR ist bei einem ALR bis 0,25 nur bedingt wiedergegeben. Die berechneten Daten nach Ishii und Thom zeigen für ALR -Werte größer 0,25 die beste Übereinstimmung.

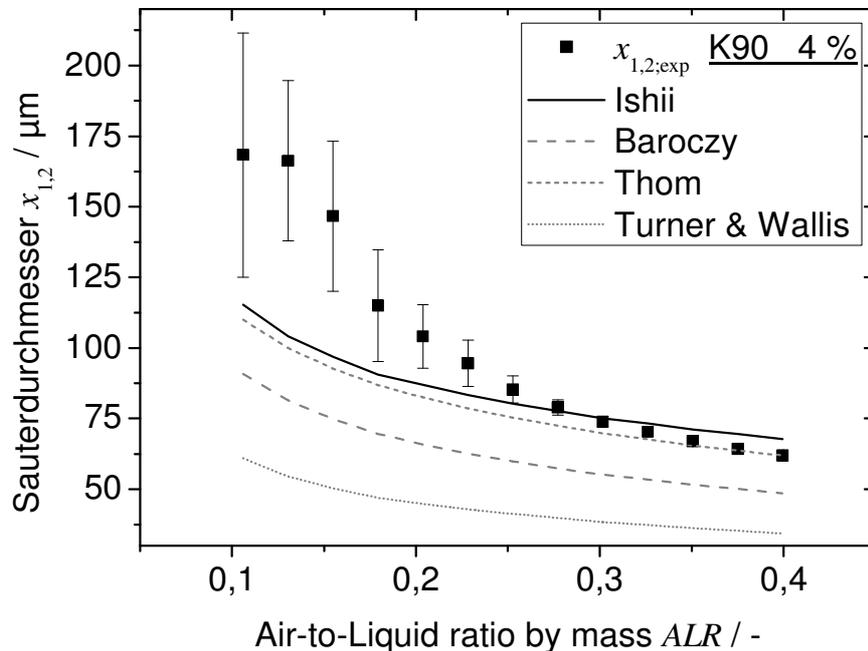


Abbildung 6.33: Vergleich der experimentellen Sauterdurchmesser und der mit unterschiedlichen Methoden (Modell von Lund: Ishii; Erweiterungen: Baroczy, Thom, Turner & Wallis) berechneten Werte in Abhängigkeit vom ALR (D15, PVP K90 4 %).

In Abbildung 6.34 sind die korrespondierenden Daten für Düsengeometrie D15 und eine PVP-K90-Konzentration von 6 % dargestellt. Der Trend sinkender Werte mit steigendem ALR ist bei einem ALR bis 0,35 nur bedingt wiedergegeben. Alle berechneten Werte liegen mindestens 50 μm und maximal über 250 μm unter den experimentellen Werten. Für eine PVP-K90-Konzentration von 8 % ist keine Übereinstimmung der experimentellen und berechneten Daten erkennbar. Die Daten sind in Abbildung A8.3 in Anhang 8 aufgetragen.

Die insgesamt schlechte Übereinstimmung für K90 sowohl hinsichtlich der ALR -Abhängigkeit als auch hinsichtlich der Sauterdurchmesser ist möglicherweise begründbar durch den unvollständigen Flüssigkeitsaufbruch (siehe Kapitel 6.2) beim Zerstäuben. Dies wird im weiteren Verlauf des Kapitels noch diskutiert.

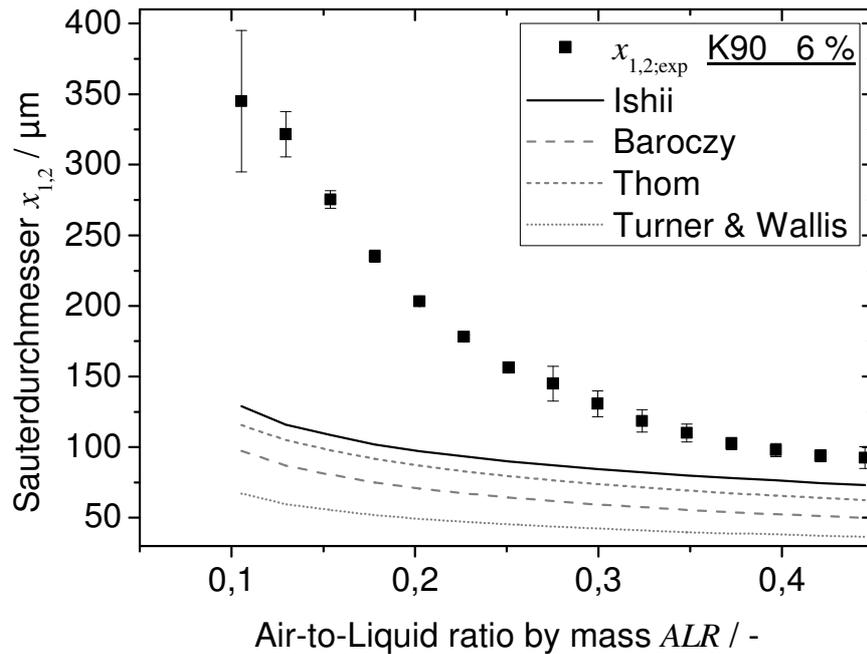


Abbildung 6.34: Vergleich der experimentellen Sauterdurchmesser und der mit unterschiedlichen Methoden (Modell von Lund: Ishii; Erweiterungen: Baroczy, Thom, Turner & Wallis) berechneten Werte in Abhängigkeit vom ALR (D15, PVP K90 6 %).

Zur besseren Darstellung der Modellierungsergebnisse wird im Weiteren die Abweichung der entsprechend der Modellierung berechneten Sauterdurchmesser $x_{1,2;mod.}$ von den experimentell ermittelten $x_{1,2;exp.}$ entsprechend Gleichung 6.1 verwendet.

$$Abweichung = \frac{x_{1,2;mod.} - x_{1,2;exp.}}{x_{1,2;exp.}} \quad (6.1)$$

Zur Darstellung der Abweichung bei unterschiedlichen ALR innerhalb einer Konzentrationsstufe bei konstanter Düsengeometrie oder bei Nutzung einer Düsengeometrie bei konstanter Konzentration werden hier die berechneten Abweichungen aller Einzelwerte gemittelt (mittlere Abweichung) sowie die korrespondierende Standardabweichung als Maß für die ALR -Abhängigkeit der Abweichung bestimmt. Die Standardabweichung wird als Fehlerbalken der mittleren Abweichung dargestellt.

In Abbildung 6.35 ist die mittlere Abweichung für PVP-K30-Lösungen in Abhängigkeit von der Konzentration aufgetragen. Eine Konzentration von 0 % entspricht reinem Wasser. Für alle Konzentrationen werden absteigend von Ishii über Thom und Baroczy nach Turner & Wallis sinkende Abweichungen beobachtet. Im Mittel zeigt die Verwendung der Korrelation von Turner & Wallis hier die beste Übereinstimmung. Für 0 % haben allerdings alle Methoden eine hohe Abweichung (Überschätzung der

Tropfengröße) und für 45 % sinkt die Abweichung für alle Methoden in den negativen Bereich (Unterschätzung der Tropfengröße). Dazwischen ist ein stabiler Bereich mit sehr geringerer mittlerer Abweichung für die Korrelationen von Baroczy und Turner & Wallis. Die gleichen Trends sind für Düsengeometrie D60 ermittelt worden, was in Abbildung A8.4 in Anhang 8 dargestellt ist.

Für PVP-K90-Lösungen ist in Abbildung 6.36 die mittlere Abweichung in Abhängigkeit von der Konzentration dargestellt. Die Daten der 0 %igen PVP-K90-Lösung (reines Wasser) sind identisch zu den Daten in Abbildung 6.35 für 0 % K30. Es werden für alle Konzentrationen der gleiche abfallende Trend von Ishii über Thom und Baroczy nach Turner & Wallis hinsichtlich der berechneten Werte beobachtet. Es ist hier aber kein stabiler Bereich geringer mittlerer Abweichung erkennbar, sondern bei allen Konzentrationen größer 0 % der gleiche Trend zu negativen Abweichungen wie bei der 45 %igen PVP-K30-Lösung.

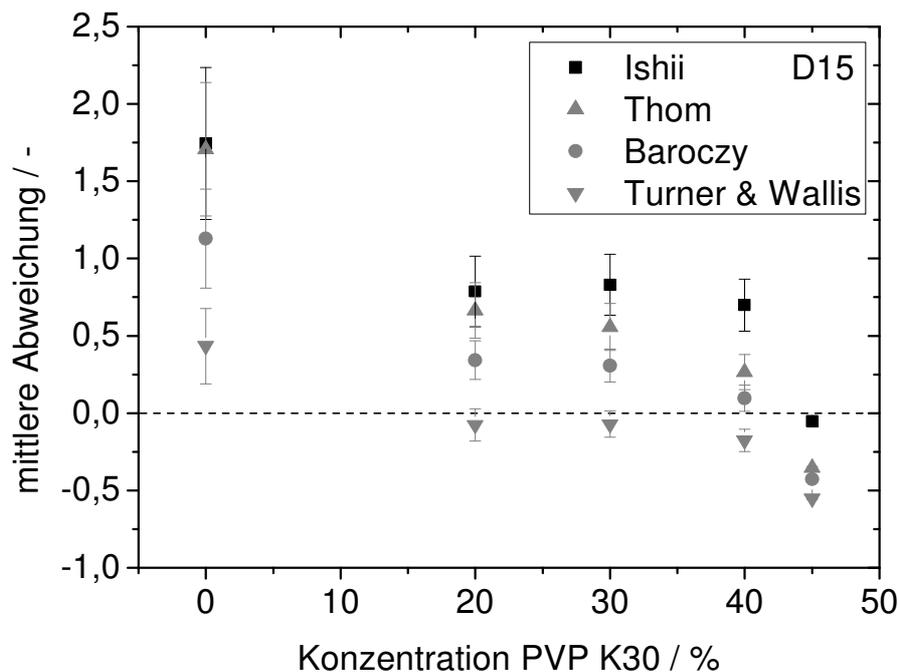


Abbildung 6.35: Vergleich der mittleren Abweichung der mit unterschiedlichen Methoden (Modell von Lund: Ishii; Erweiterungen: Baroczy, Thom, Turner & Wallis) berechneten Werte in Abhängigkeit von der PVP-K30-Konzentration (D15).

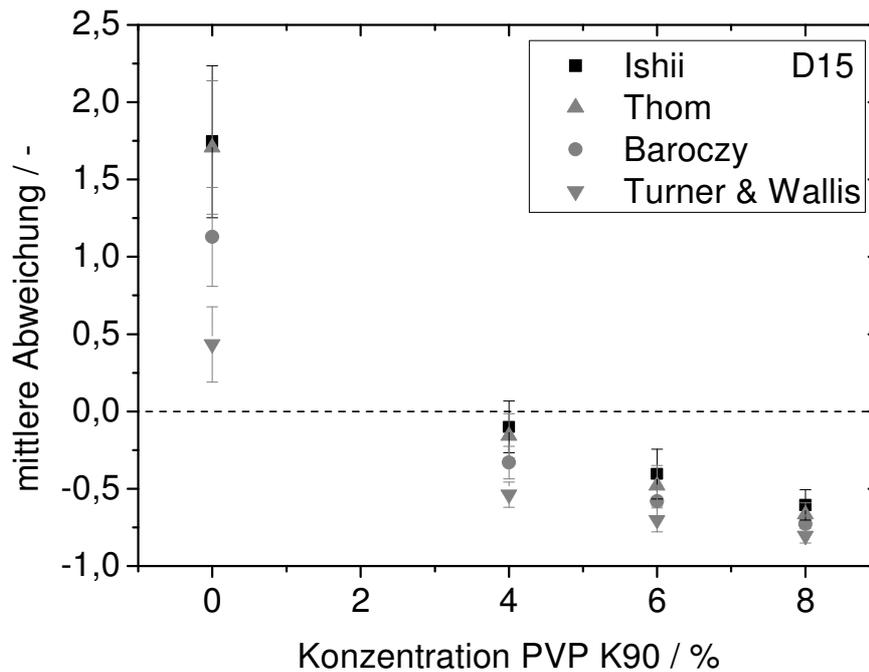


Abbildung 6.36: Vergleich der mittleren Abweichung der mit unterschiedlichen Methoden (Modell von Lund: Ishii; Erweiterungen: Baroczy, Thom, Turner & Wallis) berechneten Werte in Abhängigkeit von der PVP-K90-Konzentration (D15).

Der in Kapitel 6.2 beschriebene unvollständige Aufbruch der PVP-Lösungen, der auch im erweiterten Modell zur Modellierung der resultierender Tropfengrößen nicht berücksichtigt ist, ist möglicherweise bei 45 %igen PVP-K30-Lösungen die Erklärung für die abrupte Veränderung der mittleren Abweichung und im Falle von PVP-K90-Lösungen die grundsätzliche Unterschätzung der Tropfengrößen durch das erweiterte Modell. Durch die vermutlich gleichzeitige Überschätzung der Tropfengrößen bei der Messung nichtsphärischer Flüssigkeitsfragmente mit Laserbeugungsspektrometrie wird dieser Effekt noch weiter verstärkt.

In Abbildung 6.37 ist die mittlere Abweichung für die Modellemulsion in Abhängigkeit von der MD-Konzentration dargestellt. Eine Konzentration von 0 % entspricht nicht den 0 % in Abbildung 6.36 und Abbildung 6.37, da sich diese Angabe nur auf die MD-Konzentration der kontinuierlichen Phase der Emulsion bezieht. Außer bei 50 % zeigen alle Methoden eine Überschätzung, wobei im Mittel Turner & Wallis die geringste Abweichung aufweist. Der Trend sinkender Abweichungen von Ishii über Thom und Baroczy nach Turner & Wallis ist hier ebenfalls erkennbar. Unterhalb von 15 % zeigt sich ein Anstieg der Abweichungen mit sinkender Konzentration, von 15 bis 40 % sind die Abweichungen nahezu konstant und bei 50 % ist ein Absinken der Abweichung zu erkennen. Das Absinken bei 50 % ist möglicherweise ebenfalls auf

einen unvollständigen Aufbruch zurückzuführen, wie im Absatz zuvor für PVP-Lösungen diskutiert. Der unvollständige Aufbruch kann ohne Schattenaufnahmen allerdings nicht belegt werden.

Für Düsengeometrie D150 wird der konstante Bereich von 10 bis 35 % beobachtet und für 40 % zeigt sich bereits ein geringes Absinken der Abweichung für alle Methoden. Dies ist in Abbildung A8.5 in Anhang 8 gezeigt ist.

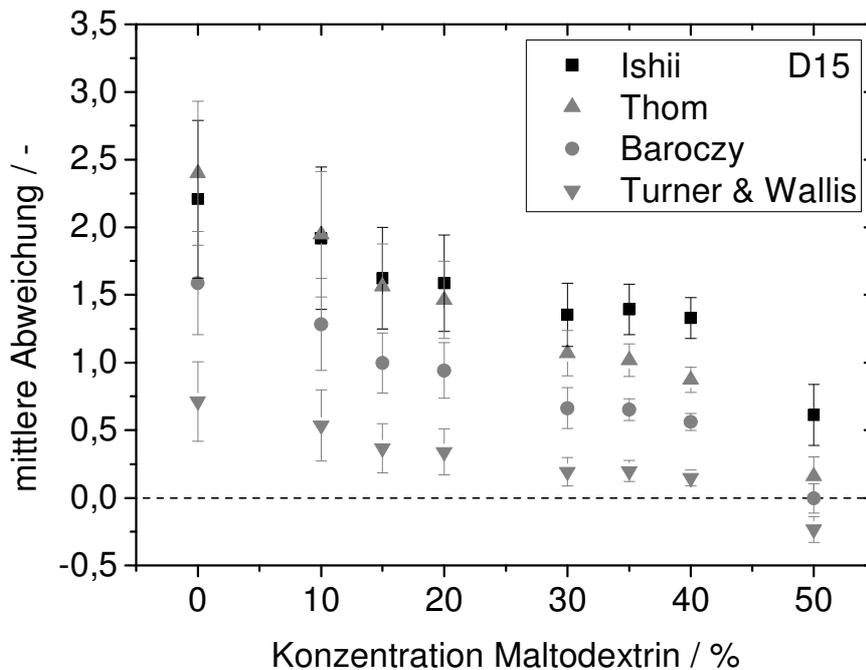


Abbildung 6.37: Vergleich der mittleren Abweichung der mit unterschiedlichen Methoden (Modell von Lund: Ishii; Erweiterungen: Baroczy, Thom, Turner & Wallis) berechneten Werte in Abhängigkeit von der MD-Konzentration (D15).

Die starke Überschätzung der resultierenden Tropfengrößen bei reinem Wasser (0 %ige PVP-K30-Lösung) und die zunehmende Überschätzung für MD-Konzentrationen kleiner 15 % kann möglicherweise durch Auftreten von sekundärem Aufbruch begründet werden. Wie in Kapitel 2.1 beschrieben wurde, ist die Ohnesorge-Zahl bei gleichbleibender äußerer Beanspruchung relevant für den sekundären Aufbruch. In Tabelle 6.5 ist die Ohnesorge-Zahl für unterschiedliche Stoffsysteme unter Berücksichtigung der Stoffeigenschaften und relevante Tropfengrößen aufgelistet. Im Bereich der Ohnesorge-Zahl von 0,05 bis 0,5 setzt eine Abhängigkeit des sekundären Aufbruchs von den Stoffeigenschaften ein, siehe Abbildung 2.3. Unter der Annahme einer mittleren Tropfengröße von 50 μm (je größer die Tropfengröße, desto kleiner die Ohnesorge-Zahl) liegt nur reines Wasser unter 0,05 und die Ohnesorge-Zahl steigt mit Erhöhung der Konzentration und damit auch der Viskosität um

bis zu drei Größenordnungen an. Auch unter Annahme einer Tropfengröße von $500\ \mu\text{m}$ für die höchsten Konzentrationen liegt die Ohnesorge-Zahl noch zwei Größenordnungen über dem Übergangsbereich von 0,05 bis 0,5. Demnach kann die starke Überschätzung der Tropfengröße durch Auftreten von sekundärem Aufbruch zustande kommen. Weder im Originalmodell nach Lund noch in den erweiterten Modellen wird der sekundäre Aufbruch berücksichtigt. Wenn der sekundäre Aufbruch aber durch Anstieg der Ohnesorge-Zahl die Tropfengrößenverteilung nicht mehr maßgeblich beeinflusst, stimmt die anhand des erweiterten Modells berechnete Tropfengröße gut mit den experimentellen Daten überein.

Tabelle 6.5: Ohnesorge-Zahl Oh für unterschiedliche Stoffsysteme und zwei Tropfengrößen x unter Berücksichtigung der in Kapitel 5 beschriebenen Stoffeigenschaften.

Stoffsystem	$x / \mu\text{m}$	$Oh / -$
Reines Wasser	50	0,017
PVP K30 20 %	50	0,421
PVP K30 30 %	50	1,757
PVP K30 40 %	50	8,670
PVP K30 45 %	50	21,210
PVP K30 40 %	500	2,742
PVP K30 45 %	500	6,707
Emulsion 0 % MD	50	0,050
Emulsion 10 % MD	50	0,110
Emulsion 20 % MD	50	0,278
Emulsion 30 % MD	50	0,941
Emulsion 40 % MD	50	3,666
Emulsion 50 % MD	50	14,914
Emulsion 40 % MD	500	1,159
Emulsion 50 % MD	500	4,716

In Abbildung 6.38 ist für eine 20 %ige PVP-K30-Lösung der Einfluss der Düsengeometrie (Düsenkanallänge und Gasinjektionsgeometrie) auf die Abweichung dargestellt. Für alle Geometrien ist der bereits zuvor beobachtete Trend sinkender Abweichungen von Ishii über Thom und Baroczy nach Turner & Wallis erkennbar. Für alle Düsengeometrien zeigt die Korrelation von Turner & Wallis die geringste mittlere Abweichung. Dies trifft auch für die weiteren Düsengeometrien D10 und D20, siehe

Abbildung A8.6 in Anhang 8, sowie D15 minimix zu. Für eine 40 %ige PVP-K30-Lösung erzielen sowohl die Korrelation von Baroczy als auch die von Turner & Wallis eine geringe mittlere Abweichung auf, siehe Abbildung A8.7 in Anhang 8.

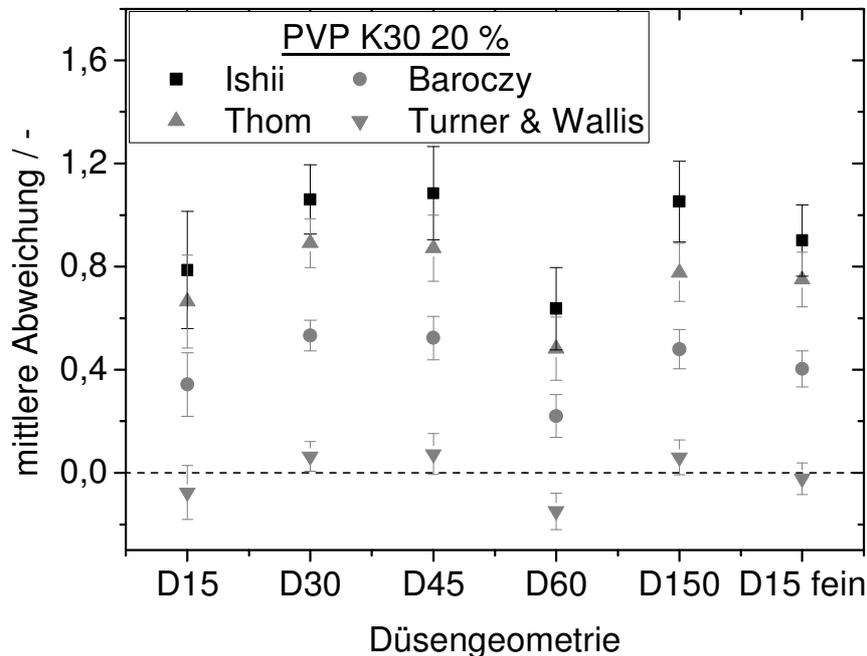


Abbildung 6.38: Vergleich der mittleren Abweichung der mit unterschiedlichen Methoden (Modell von Lund: Ishii; Erweiterungen: Baroczy, Thom, Turner & Wallis) berechneten Werte in Abhängigkeit von der Düsengeometrie (PVP K30 20 %).

Die Düsengeometrie wird in der Modellierung durch den Düsenkanaldurchmesser und die druckabhängige Gasdichte in der Mischkammer berücksichtigt. Der in Kapitel 6.5 diskutierte Einfluss der Pulsation auf die Tropfengrößenverteilung in Abhängigkeit von der Düsengeometrie wird vom Modell von Lund und den Erweiterungen nicht berücksichtigt. Wie erwartet zeigt sich daher im Vergleich des Zusammenhangs von Pulsationsfrequenz und den charakteristischen Kenngrößen (siehe Abbildung 6.27) und der mittleren Abweichung (siehe Abbildung 6.38) in Abhängigkeit der Düsenkanallänge (aufsteigend von D15 bis D150) eine Überschätzung der Tropfengröße durch das Modell für D30, D45 und D150. Sprays dieser Düsengeometrien haben höhere Pulsationsfrequenz als die der Geometrien D15 und D60 und im Vergleich kleinere Tropfengrößen. Für D15 und D60 zeigt sich für die Korrelation von Turner & Wallis eine Unterschätzung. Es bestätigt sich, dass das Modell von Lund und die Erweiterungen nicht in der Lage sind, den Effekt der Pulsation wiederzugeben.

Es wird festgehalten, dass die Erweiterung des Modells von Lund mit einer Korrelation zur Berücksichtigung der Stoffeigenschaft bei der Berechnung des Gasphasenan-

teils in der Zweiphasenströmung die Abweichung der berechneten Tropfengrößen von den experimentell gemessenen Sauterdurchmessern verringert bei gleichbleibend geringem Rechenaufwand. Die Erweiterung mittels der Korrelation von Turner & Wallis und Baroczy beschreibt den Spraysauterdurchmesser mit den geringsten Abweichungen unter der Voraussetzung, dass keine relevante sekundäre Zerstäubung und eine vollständige primäre Zerstäubung der Flüssigkeit vorliegen. Die Voraussetzungen wurden in den vorliegenden Untersuchungen für Scherviskositäten im Bereichen von 5 und 500 mPa·s für ein- und zweiphasige Stoffsysteme auf Basis von Polymeren mit einer molekularen Masse kleiner 10^5 Da (PVP K30, MD) erfüllt. Bei höherem molekularer Masse (PVP K90) wurde bei vergleichbaren Scherviskositäten eine unvollständige primäre Zerstäubung beobachtet, weshalb auch das erweiterte Modell nicht geeignet ist.

6.7 Effizienz der Zerstäubung

In Kapitel 6.3.4 wurde bereits ein Vergleich des Zerstäubungsergebnisses von „effervescent atomizer“ und pneumatischem Zerstäuber in Abhängigkeit vom *ALR* dargestellt, wobei erkennbar ist, dass mit dem „effervescent atomizer“ bei deutlich geringem *ALR* vergleichbare Sauterdurchmesser erzielt werden können. Wie in Kapitel 2.3 ausgeführt, muss zur Beurteilung der Effizienz aber die eingebrachte Energie durch Gas und Flüssigkeit in Beziehung zur benötigten Energie zur Oberflächenerzeugung und Verteilung bzw. Bewegung der Tropfen gesetzt werden. Entsprechend Walzel [67] werden hier vereinfacht die Verluste beim Einbringen der Energie nicht berücksichtigt und nur die effektiv in das System eingebrachte Energie bewertet. Es wird ebenfalls nur die benötigte Energie zur Oberflächenerzeugung mit einbezogen. Die Daten für den pneumatischen Zerstäuber wurden hierbei unabhängig vom tatsächlichen μ (3,45 bis 0,87) für den nach Walzel optimalen Wert von 1 und dementsprechend einer Übertragung von nur 25 % der Gasenergie berechnet. Bei der Berechnung der Daten für die „effervescent atomizer“ wurde hingegen mit einer vollständigen Übertragung der Gasenergie gerechnet, da hier das Gas aus dem Inneren der Flüssigkeit heraus expandiert. Zur Berechnung des normierten Sauterdurchmessers wurde für den pneumatischen Zerstäuber der Durchmesser des reinen Flüssigkeitsstrahls eingesetzt, für die „effervescent atomizer“ hingegen der Düsenkanaldurchmesser. Die Berechnung ist in Kapitel 2.3 erläutert.

In Abbildung 6.39 ist der so berechnete Effizienzkoeffizient für einen pneumatischen Zerstäuber sowie alle untersuchten Düsengeometrien des „effervescent atomizer“ für PVP-K30-Lösungen mit einer Konzentration von 20 % in Abhängigkeit vom normierten Sauterdurchmesser aufgetragen. In grau hinterlegt sind die Daten für pneumatische Zerstäuber nach Walzel [67] als Referenz dargestellt. Für alle Zerstäuber steigt der Effizienzkoeffizient mit steigendem normiertem Sauterdurchmesser. Der pneumatische Zerstäuber hat gegenüber dem „effervescent atomizer“ einen geringfügig höheren Effizienzkoeffizient bei ebenfalls geringfügig kleinerem normiertem Sauterdurchmesser. Die unterschiedlichen Düsengeometrien des „effervescent atomizer“ unterscheiden sich hingegen nicht relevant voneinander hinsichtlich Effizienzkoeffizient und normiertem Sauterdurchmesser. Im Vergleich zu den theoretischen Daten nach Walzel (vergleiche auch Abbildung 2.14) liegen die Werte im erwarteten Größenordnungsbereich für pneumatische Zerstäuber. Durch die Annahme der vollständigen Übertragung der Gasenergie ist für die tatsächlichen Werte der „effervescent atomizer“ bei geringerer Übertragung mit einem leicht höherem Effizienzkoeffizienten zu rechnen. Die Normierung des Sauterdurchmessers mit unterschiedlichen Referenzgrößen resultiert in einem starken Unterschied zwischen pneumatischen Zerstäuber und „effervescent atomizer“. Aufgrund der unterschiedlichen Zerstäubungsmechanismen können diese nicht direkt verglichen werden. Bei Vergleich des Effizienzkoeffizienten bezogen auf den nicht normierten Sauterdurchmessers ist der Unterschied zwischen pneumatischen Zerstäuber und „effervescent atomizer“ deutlich geringer, siehe Abbildung A9.1 in Anhang 9.

In Abbildung 6.40 ist für die Düsengeometrie D15 der Einfluss des Stoffsystems auf den Effizienzkoeffizienten in Abhängigkeit vom normierten Sauterdurchmesser dargestellt. Mit steigender Konzentration ist sowohl für PVP K30 als auch PVP K90 eine Verringerung des Effizienzkoeffizienten zu beobachten wobei die Werte für PVP K90 insgesamt kleiner sind als für PVP K30. Die höchsten Werte hat reines Wasser. Die Verringerung mit steigender Konzentration und damit Viskosität ist alleine auf den Anstieg des Flüssigkeits- und Gasdrucks zurückzuführen, da die Veränderung der Oberflächenspannung vernachlässigbar ist, wie in Kapitel 5.1 diskutiert wurde, und daher hier nicht berücksichtigt wurde. Im Vergleich zu Abbildung 6.39 hat eine Veränderung des Stoffsystems einen größeren Einfluss auf den Effizienzkoeffizienten als die Wahl des Zerstäubers.

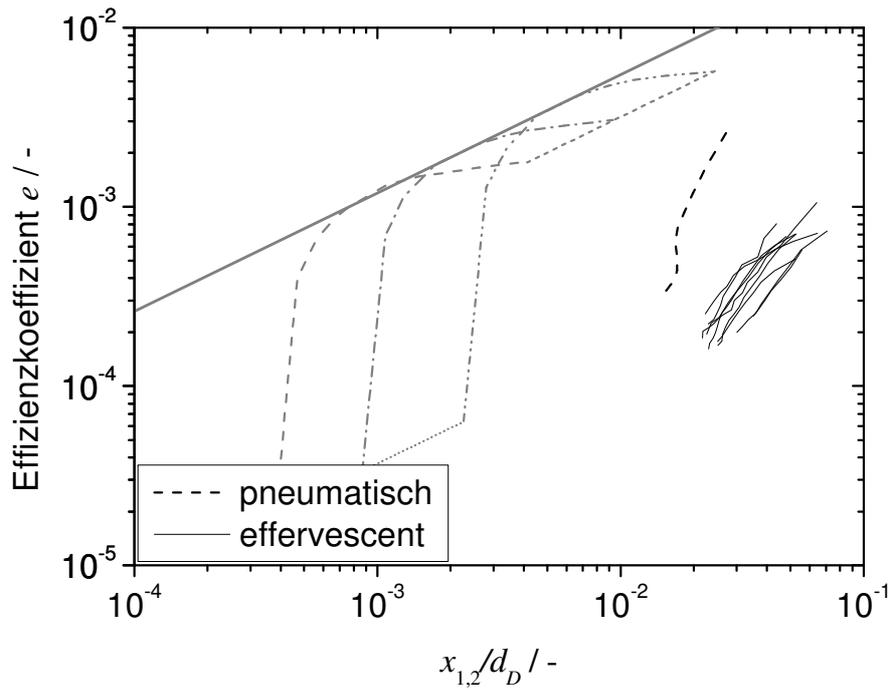


Abbildung 6.39: Effizienzkoeffizient für unterschiedliche Zerstäuberformen (PVP K30 20 %). Theoretische Daten aus Abbildung 2.14 für pneumatischen Zerstäuber als Referenz (grau).

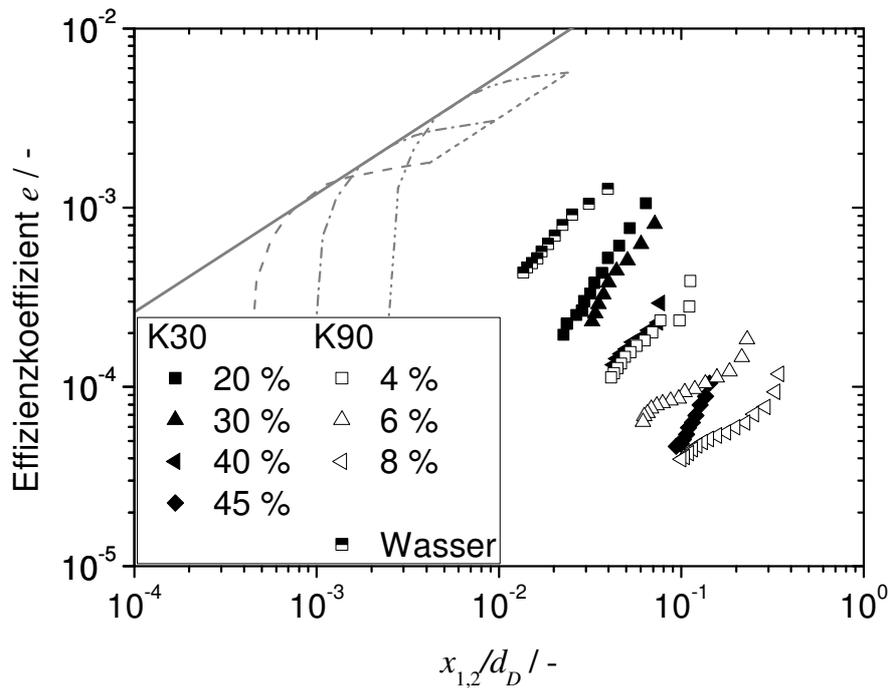


Abbildung 6.40: Effizienzkoeffizient für unterschiedliche Stoffsysteme (D15). Theoretische Daten aus Abbildung 2.14 für pneumatischen Zerstäuber als Referenz (grau).

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass die Größenordnung des Effizienzkoeffizienten nach Walzel für „effervescent atomizer“ im Bereich der von pneumatischen Zerstäubern liegt. Bei gleichem Zerstäubungsergebnis, wie beispielsweise die

in Abbildung 6.21 gezeigten Ergebnisse, muss daher im Einzelfall abgewogen werden, welche Form der Energiezuführung effizienter und/oder kostengünstiger möglich ist. Steht beispielsweise eine Druckluftversorgung mit hohem Massenstrom aber nur niedrigen Drücken von bis zu 3 bar zur Verfügung, kann der Einsatz eines herkömmlichen pneumatischen Zerstäubers kostengünstiger als eines „effervescent atomizer“ sein. Muss ohnehin eine Druckluftversorgung installiert werden, so kann es kostengünstiger sein, mit einem einstufigen Verdichter Drücke bis 5 oder 6 bar bei einem niedrigen Massenstrom für den Einsatz eines „effervescent atomizer“ zu realisieren.

7 Flüssigkeitsbeanspruchung

Zur Untersuchung der Beanspruchung im „effervescent atomizer“ zerstäubten Flüssigkeit wurden Versuche mit der in Kapitel 4.1.2 beschriebenen Modellemulsion durchgeführt. Dabei sollen mögliche Veränderungen der inneren Öltropfengröße eine Information über die Beanspruchung geben, die die Flüssigkeit erfahren hat. Die Beanspruchung lässt sich in zwei Bereiche teilen:

- Zunächst findet nur eine Interaktion des Zerstäubungsgases und der Emulsion innerhalb des Zerstäubers statt, wobei davon ausgegangen wird, dass die Beanspruchung im Düsenkanal am höchsten ist. Für den idealisierten Fall einer Ringströmung wird dabei nach dem in Kapitel 6.6.2 vorgestellten, erweiterten Modell von Scherbelastungen mit Scherraten von bis zu 10^7 1/s ausgegangen. Beim Einlauf in den Düsenkanal tritt auch Dehnung auf.
- Nach dem Austritt der Emulsion aus dem Zerstäuber wird die beschleunigte Emulsion sowohl durch die Expansion des Zerstäubungsgases als auch durch die Interaktion mit der ruhenden Umgebung beansprucht. Die Scherraten hier sind niedriger als im Düsenkanal. Neben Scherung tritt hier beim Filament-, Ligament- und Spraytropfenaufbruch auch Dehnung auf.

Grundsätzlich wird mit steigendem ALR von einer steigenden Beanspruchung ausgegangen, da ein steigender ALR die Filamentdicke reduziert und die Gasgeschwindigkeit und -expansion sowie die Beschleunigung der Emulsion begünstigt.

Die Emulsion wurde hinsichtlich der Öltropfengrößenverteilung vor (Rohemulsion) und nach dem Zerstäuben untersucht. Die Rohemulsion hat eine konstante volumenspezifische Medianöltropfengröße $x_{50,3}$ von $9,65 \pm 0,61 \mu\text{m}$. Es wurden nur sehr geringe Veränderungen der Öltropfengröße nach Durchlaufen der Pumpe und Förderleitungen festgestellt (siehe exemplarisch Abbildung A10.1 in Anhang 10). Daher wird hierauf im Weiteren nicht eingegangen.

In Abbildung 7.1 sind beispielhaft die gemittelten volumenspezifischen Verteilungssummen der Öltropfengröße vor (Rohemulsion) und nach der Zerstäubung für Düsengeometrie D15 und eine Konzentration des Maltodextrins (MD) von 20 % bzw. ein Viskositätsverhältnis entsprechend Gleichung 2.29 von 4,33 in Abhängigkeit vom ALR dargestellt. Die Tropfengrößenverteilung der Rohemulsion zeigt eine gute Reproduzierbarkeit (geringe Standardabweichung), was einen direkten Vergleich der Ergebnisse der Wiederholungsversuche ermöglicht. Mit steigendem ALR ist eine

Verringerung der Öltropfengröße erkennbar, was auf die erwartete Beanspruchungssteigerung mit steigendem ALR zurückzuführen ist.

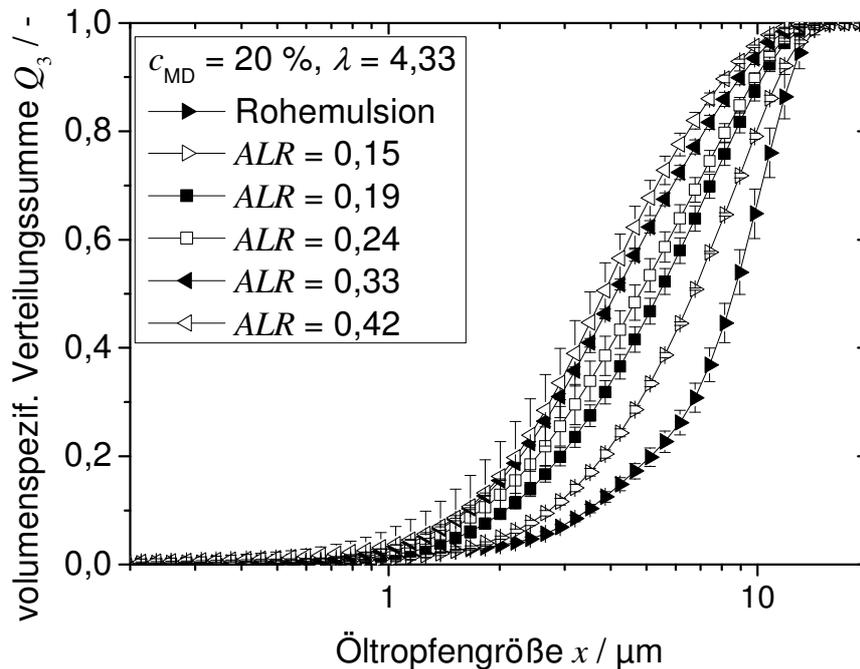


Abbildung 7.1: Gemittelte volumenspezifische Verteilungssummen der Öltropfengröße vor (Rohemulsion) und nach der Zerstäubung der Modellemulsion in Abhängigkeit des ALR (D15, MD 20 %).

7.1 Einfluss des Viskositätsverhältnisses auf den Öltropfenaufbruch

Auf Basis der in Kapitel 2.4 erläuterten Emulgiertheorie wird erwartet, dass das Viskositätsverhältnis eine wichtige Rolle beim Tropfenaufbruch in Scherströmungen bei der Zerstäubung spielt. Daher wurden mit Emulsionen mit unterschiedlichen Viskositätsverhältnissen zwischen 0,08 und 25 Versuche durchgeführt.

In Abbildung 7.2 sind normierte volumenspezifische Medianöltropfendurchmesser (siehe Gleichung 4.8) für unterschiedliche ALR -Bereiche in Abhängigkeit vom Viskositätsverhältnis bei konstanter Düsengeometrie D15 dargestellt. Die Werte wurden zur besseren Veranschaulichung in ALR -Bereiche zusammengefasst. Ein Minimum im normierten volumenspezifischen Medianöltropfendurchmesser entspricht einem maximalen Öltropfenaufbruch. Unabhängig vom ALR wird bei einem Viskositätsverhältnis von 1,3 der maximale Öltropfenaufbruch beobachtet. Bei Aufschlüsselung in einzelne ALR -Bereiche wird für einen ALR bis 0,3 der maximale Öltropfenaufbruch bei einem Viskositätsverhältnis von 0,67 gemessen und für ALR größer 0,3 bei 1,3 – vergleiche hierzu auch die Darstellung der Mittelwerte der ALR -Bereiche in Abbildung A10.2 in Anhang 10. Das absolute Maximum im Öltropfenaufbruch bei kleineren

Viskositätsverhältnisschritten wird daher im Bereich zwischen 0,67 und 1,3 erwartet. Dies stimmt mit dem in Abbildung 2.15 dargestellten Minimum der kritischen Kapillarzahl für reine Scherströmungen im Bereich des Viskositätsverhältnisses zwischen 0,5 und 1 und dem damit korrespondierenden maximalen Tropfenaufbruch überein. Beim Vergleich der in Abbildung 7.2 und Abbildung 2.15 vorgestellten Daten muss aber berücksichtigt werden, dass im Gegensatz zur Kapillarzahl der normierte volumenspezifische Medianöltropfendurchmesser die jeweils vorliegende Spannung nicht berücksichtigt, was einen Einfluss auf das Minimum haben kann. Die Spannung ist dabei unter anderem abhängig von den Viskositäten der Fluide. Grace [71] hat ein Viskositätsverhältnis von 4 als Obergrenze für Tropfenaufbruch in laminarer Scherströmung newtonscher Fluide beschrieben. In Abbildung 7.2 ist hingegen klar ein Öltropfenaufbruch bei Viskositätsverhältnissen größer 4 zu erkennen. Nach Bentley und Leal [72] tritt Öltropfenaufbruch in diesem Bereich nur auf, wenn ein Teil der Beanspruchung durch Dehnströmungen verursacht wird. Daher kann geschlossen werden, dass bei der Zerstäubung durch die auftretende Dehnung eine relevante Beanspruchung der inneren Phase vorliegt.

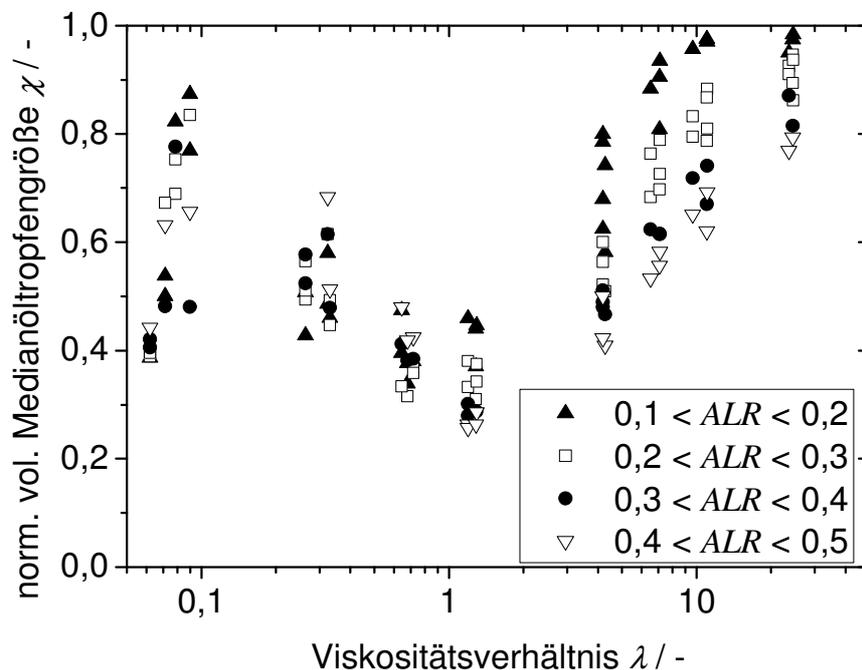


Abbildung 7.2: Normierter volumenspezifischer Medianöltropfendurchmesser für unterschiedliche ALR in Abhängigkeit vom Viskositätsverhältnis (D15).

Für Viskositätsverhältnisse größer oder gleich 1,3 ist in Abbildung 7.2 die erwartete Abhängigkeit vom ALR erkennbar: Mit steigendem ALR sinkt der normierte volumenspezifische Medianöltropfendurchmesser durch einen stärkeren Aufbruch der Öltropfen.

fen. Für Viskositätsverhältnisse kleiner 1,3 kann dies aber nicht beobachtet werden. Für die nicht vorhandene ALR -Abhängigkeit bei Viskositätsverhältnissen kleiner 1,3 ist möglicherweise ein Wechsel der Strömungsform im Düsenkanal verantwortlich. Die Strömungsform kann, wie Kapitel 2.2 erläutert, anhand von Stoff- und Prozessparametern bestimmt werden. Zur Berechnung des dafür benötigten Drucks innerhalb des Düsenkanals wurden die Druckveränderungen aufgrund der Verengungen zwischen Mischkammer und Düsenkanal und der Düsenauslauf abgeschätzt. Die Vorgehensweise ist in Anhang 11 erläutert. Die bestimmten Strömungsformen sind in der Übersicht von Baker in Abbildung 7.3 dargestellt. Mit steigender MD-Konzentration sind steigende Werte auf der X-Achse zu erkennen und mit steigendem ALR steigende Y-Achsenwerte. Entgegen der Erwartung, dass im Bereich zwischen den Viskositätsverhältnissen von 1,30 und 0,67 (30 und 35 % MD) ein Übergang vorliegt, ist der Übergang von Spritzer- zu Blasenströmung im Bereich zwischen den Viskositätsverhältnissen von 0,33 und 0,08 (40 und 50 % MD) zu erkennen. Es ist aber davon auszugehen, dass aufgrund der vereinfachten Annahmen bei der Berechnung des Druckverlusts und der Strömungsform die bestimmten Werte vom tatsächlichen Zustand abweichen können.

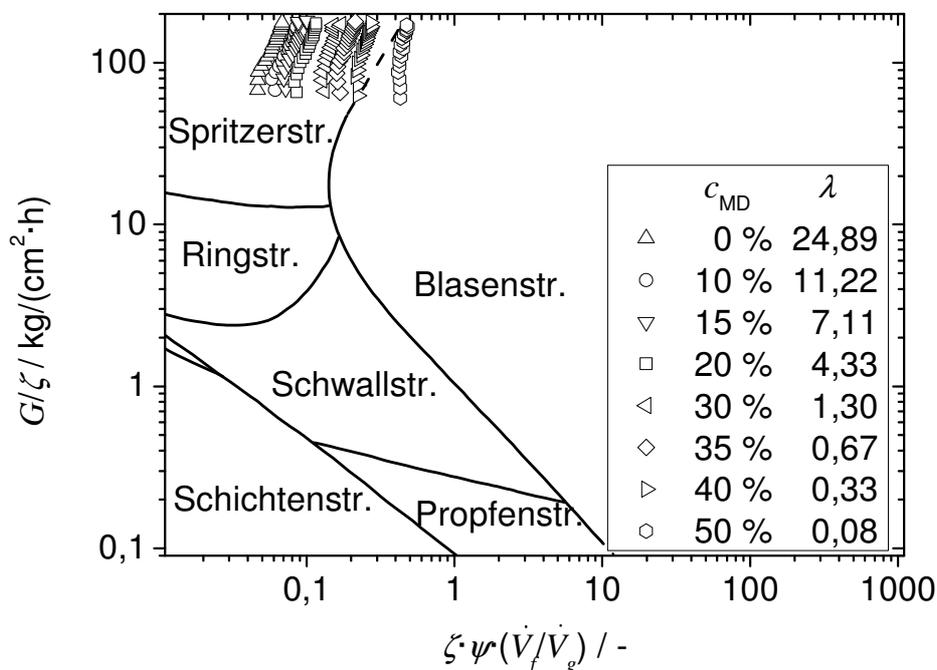


Abbildung 7.3: Berechnete Daten für die Strömungsform im Düsenkanal für Düsengeometrie D15 in Abhängigkeit von der MD-Konzentration bzw. vom Viskositätsverhältnis in Bakers Übersicht der Strömungsformen (siehe Kapitel 2.2).

Die Auswirkung der vereinfachten Annahmen kann hier aber nicht genau quantifiziert werden, weshalb anhand der Strömungsformen hier keine eindeutige Begründung für den Wechsel zwischen *ALR*- Abhängigkeit und -Unabhängigkeit gegeben werden kann.

7.2 Einfluss der Düsenform auf den Öltropfenaufbruch

Wie zuvor beschrieben wird die größte Beanspruchung der Flüssigkeit im Düsenkanal erwartet. Um den Einfluss der Verweilzeit zu untersuchen, wurden für ausgewählte Viskositätsverhältnisse Versuche mit Düsengeometrie D150 (zehnfachen Düsenkanallänge im Vergleich zu Düsengeometrie D15) durchgeführt. Hierdurch liegt der Druck von Gas und Emulsion in der Zuführung im Vergleich ungefähr 1 bar höher. Die resultierenden normierten volumenspezifischen Medianöltropfendurchmesser für Düsengeometrie D150 (schwarz) sind in Abbildung 7.4 im Vergleich zu den Daten für Düsengeometrie D15 (grau) dargestellt. Es ist für Geometrie D150 bei Viskositätsverhältnis kleiner oder gleich 1,3 keine *ALR*-Abhängigkeit erkennbar. Auch hier ermöglicht die Bestimmung der Strömungsform keine Erklärung, wie anhand der Werte in Abbildung A10.3 in Anhang 10 zu sehen ist. Grundsätzlich wird aber die gleiche Abhängigkeit des Öltropfenaufbruchs vom Viskositätsverhältnis mit maximal gemessenem Öltropfenaufbruch bei 1,3 und die gleiche Größenordnung des Öltropfenaufbruchs beobachtet. Eine Erhöhung der Verweilzeit im Düsenkanal durch dessen Verlängerung zeigt demnach keinen Einfluss auf die Flüssigkeitsbeanspruchung.

Anhand des Modells von Lund et al. [45] (Ishii) und Erweiterung (Turner & Wallis) entsprechend Kapitel 6.6 können die Verweilzeit im Düsenkanal und die kritische Deformationszeit, siehe Kapitel 2.4, auf Basis der vorliegenden Geometrie- und Stoffdaten, siehe Kapitel 5.2, abgeschätzt werden. In Tabelle 7.1 sind diese Größen für Düsengeometrie D15 und D150 exemplarisch jeweils für den minimalen und maximalen *ALR*-Wert bei einer MD-Konzentration von 30 % dargestellt. Die Verweilzeit bezieht sich hierbei ausschließlich auf die Verweilzeit im Düsenkanal ohne Berücksichtigung von Ein- und Auslaufeffekten. Die Verweilzeit unterscheidet sich durch das Verzehnfachen der Düsenkanallänge wie erwartet um etwa eine Größenordnung, die kritische Deformationszeit liegt hingegen für beide Düsengeometrien in der gleichen Größenordnung. Die Abschätzung auf Basis der Methode von Ishii unterscheidet sich dabei insgesamt nur geringfügig von den Werten auf Basis der Korrelation von Turner & Wallis. Aus letzterer resultieren allerdings immer geringfügig kleinere Werte,

was auf die geringere Filamentdicke durch Berücksichtigung der Stoffeigenschaften zurückzuführen ist. Ein Vergleich der Verweilzeit mit der jeweils korrespondierenden kritischen Deformationszeit ergibt immer eine um zwei (D15) oder bis zu drei (D150) Größenordnungen kleinere kritische Deformationszeit als die Verweilzeit. Daher ist davon auszugehen, dass physikalisch begründet durch die Verlängerung der Düsenkanals keine Veränderung des beobachteten Öltropfenaufbruchs bewirkt werden kann.

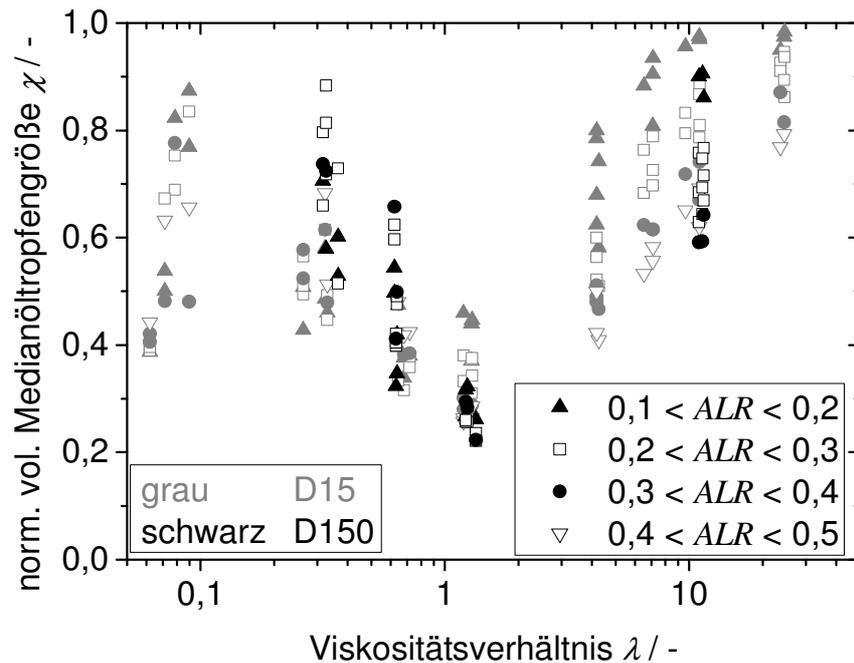


Abbildung 7.4: Normierter volumenspezifischer Medianöltropfendurchmesser für unterschiedliche ALR und Düsenformen in Abhängigkeit vom Viskositätsverhältnis. D15 (grau) und D150 (schwarz).

Tabelle 7.1: Verweilzeit und kritische Deformationszeit für Düsengeometrien D15 und D150 für minimalen und maximalen ALR bei einer MD-Konzentration von 30 %. Abschätzung mit Hilfe des Modells von Lund et al. [45] (Ishii) und Erweiterung (Turner & Wallis) entsprechend Kapitel 6.6.

Düse	$ALR / -$	Verweilzeit / s		kritische Deformationszeit / s	
		nach Ishii	nach Turner & Wallis	nach Ishii	nach Turner & Wallis
D15	0,11	$1,09 \cdot 10^{-4}$	$5,57 \cdot 10^{-5}$	$3,09 \cdot 10^{-6}$	$6,75 \cdot 10^{-7}$
D15	0,48	$6,07 \cdot 10^{-5}$	$2,92 \cdot 10^{-5}$	$8,12 \cdot 10^{-7}$	$1,78 \cdot 10^{-7}$
D150	0,10	$1,23 \cdot 10^{-3}$	$6,33 \cdot 10^{-4}$	$4,19 \cdot 10^{-6}$	$8,89 \cdot 10^{-7}$
D150	0,34	$7,31 \cdot 10^{-4}$	$3,54 \cdot 10^{-4}$	$1,21 \cdot 10^{-6}$	$2,63 \cdot 10^{-7}$

7.3 Vergleich mit pneumatischer Zerstäubung

Bisher kommen zur Zerstäubung von Emulsionen zumeist Druck-, Zentrifugal- oder herkömmliche pneumatische Zerstäuber zum Einsatz. Um die Beanspruchung der „effervescent atomization“ in Relation mit dieser zu setzen, wurden für eine MD-Konzentration von 35 % der Öltropfenaufbruch bei der Zerstäubung mit dem herkömmlichen außenmischenden pneumatischen Zerstäuber untersucht. Die normierte volumenspezifische Medianöltropfengröße aus diesen Versuchen ist in Abbildung 7.5 in Abhängigkeit vom ALR im Vergleich zu zwei Düsengeometrien (D15 & D150) des „effervescent atomizer“ dargestellt. Die Ergebnisse zeigen, dass alle drei Zerstäuber unabhängig vom ALR normierte volumenspezifische Medianöltropfengrößen zwischen 0,3 und 0,6 zeigen und somit einen vergleichbaren Öltropfenaufbruch bewirken.

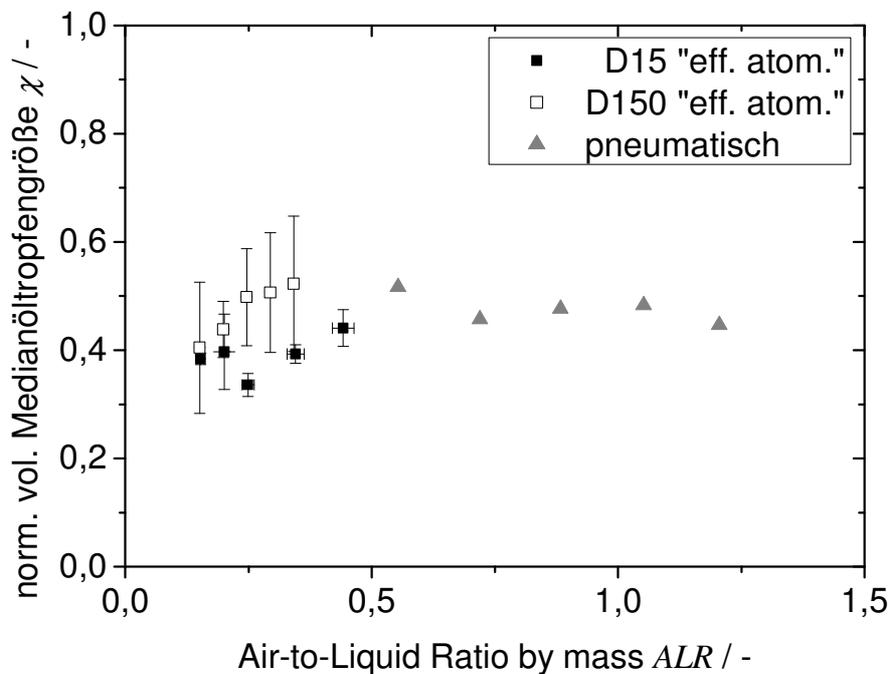


Abbildung 7.5: Vergleich des normierten volumenspezifischen Medianöltropfendurchmessers für zwei Düsengeometrien des „effervescent atomizer“ (D15 & D150) und den herkömmlichen außenmischenden pneumatischen Zerstäuber in Abhängigkeit vom ALR (MD 35 %).

7.4 Diskussion

Es ist anhand der Öltropfengrößenveränderung als Maß der Beanspruchung erkennbar, dass der Prozessparameter ALR für Viskositätsverhältnisse größer 1 tatsächlich maßgeblich den Aufbruch der Öltropfen beeinflusst und zur Steuerung eingesetzt werden kann. Für die Unabhängigkeit vom ALR bei kleinen Viskositätsverhältnissen

wird eine Veränderung der Strömungsform verantwortlich gemacht, was aber anhand der abgeschätzten Strömungsformen nicht endgültig bewiesen werden kann.

Weiterhin kann gezeigt werden, dass der Einfluss des Viskositätsverhältnisses als Stoffparameter aus dem Emulgieren auf die „effervescent atomization“ übertragen werden kann. Der von Grace [71] als Optimum für den Öltropfenaufbruch angegebene Bereich des Viskositätsverhältnisses findet sich wieder. Es wird aber auch bei einem Viskositätsverhältnis von deutlich über 4 ein Öltropfenaufbruch beobachtet (siehe Abbildung 7.2). Im Vergleich mit den Daten von Grace [71] und Bentley und Leal [72] (siehe Abbildung 2.15) kann damit gezeigt werden, dass nicht nur Scherbeanspruchung sondern auch eine signifikante Dehnbeanspruchung bei der „effervescent atomization“ auf die innere Phase der Emulsion wirkt.

Somit ist es in Abhängigkeit von den Stoffeigenschaften möglich je nach Zielsetzung die Beanspruchung bei der „effervescent atomization“ zur gezielten Einstellung der inneren Struktur der Flüssigkeit zu nutzen oder eine Veränderung zu vermeiden. Dies erlaubt beim Einsatz in Prozessen wie beispielsweise der Sprühtrocknung die Kombination mehrerer Grundoperationen (Zerkleinerung der inneren und äußeren Phase sowie gleichzeitige Trocknung) zur effizienteren Gestaltung des Gesamtprozesses.

8 Applikation in der Sprühtrocknung

Die zentrale Motivation dieser Arbeit ist die Frage nach dem möglichen Einsatz der „effervescent atomization“ in der Sprühtrocknung, mit dem Ziel hochviskose Flüssigkeiten aufgrund des geringeren benötigten Zerstäubungsgasstroms wirtschaftlich verarbeiten zu können. Anhand der Sprühtrocknungsversuche sollte untersucht werden, welche Prozessparameter und Rahmenbedingungen hinsichtlich der Sprühtrockner für einen erfolgreichen Einsatz der „effervescent atomization“ gegeben sein müssen. Daher lag der Fokus hier nicht auf den Partikeleigenschaften. Für die Versuche wurden zwei Pilotsprühtrockner und eine kompakte Variante des „effervescent atomizer“ mit Düsengeometrie D15 eingesetzt, die in Kapitel 4.4 erläutert sind.

Mit dem Karlsruher Sprühtrockner wurde eine Vielzahl von Versuchen mit unterschiedlichen Prozessparametern (Flüssigkeitsvolumenstrom 12 bis 6 l/h, Zulufttemperatur 180 °C, Trocknungsgasströme 300 bis 150 m³/h, *ALR* 0,2 bis 0,4, PVP K30 20 %) durchgeführt. Allerdings zeigte sich bei allen Versuchen, dass es zu starken Ablagerungen im Konus und in der Abluftverrohrung kam, wie auf dem Foto in Abbildung 8.1 zu erkennen ist. Teilweise führte dies zu einer annähernden Verstopfung der Abluftverrohrung. Es war möglich, die Ablagerungen durch einen geringeren Trocknungsluft- und Flüssigkeitsvolumenstrom und hohen *ALR* zu reduzieren, aber nicht ausreichend um aufgrund der Ablagerungen einen dauerhaft stabilen Betrieb des Sprühtrockners zu gewährleisten.

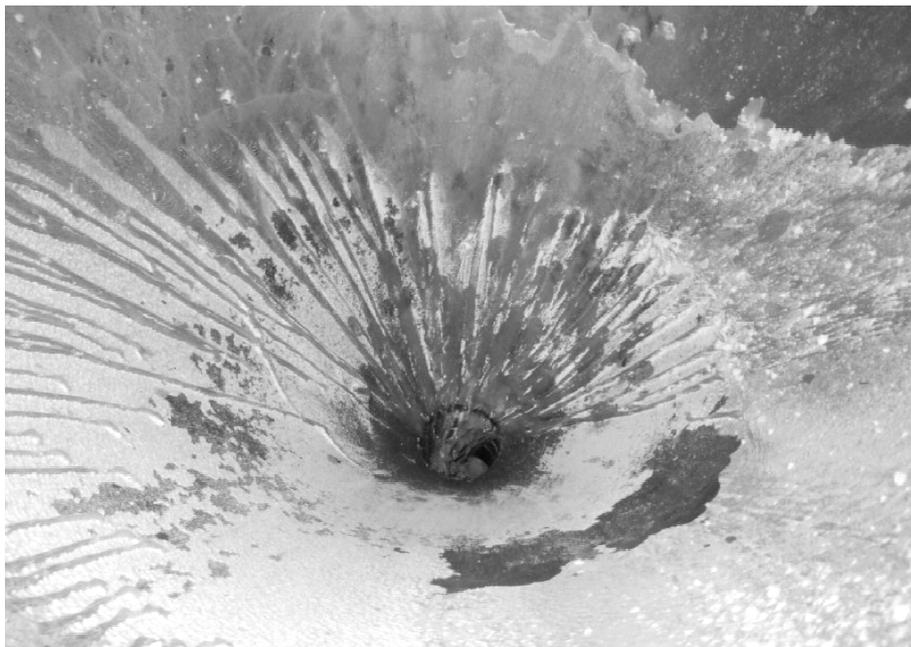


Abbildung 8.1: Pilotsprühtrockner Karlsruhe, starke Anlagerungen im Konus und Auslass.

Rund um den Zerstäuber waren hingegen kaum Anlagerungen zu beobachten, wie auf dem Foto in Abbildung 8.2 zu sehen ist.



Abbildung 8.2: Pilotprühtrockner Karlsruhe, geringe Anlagerungen um Zerstäuber nach Herunterfahren.

Da der „effervescent atomizer“ auch in den Zerstäubungsversuchen eine stärkere Fokussierung des Sprays (kleinerer Spraywinkel, weniger Verwirbelung am Sprayrand) als der sonst eingesetzte pneumatische Zerstäuber zeigte, ist davon auszugehen, dass durch einen größeren Impuls die Spraytropfen früher in Kontakt mit der Trocknerwand im Konus kommen und daher dort die unvollständig getrockneten Tropfen anhaften. Dieser Effekt wird mit steigendem ALR noch verstärkt [3], was den vorteilhaften Effekt kleinerer Tropfen bei höherem ALR aufhebt. Eine mögliche Lösung kann daher die Verlängerung der freien Trocknungsstrecke sein. Im Karlsruher Sprühtrockner beträgt diese inkl. des Konus nur circa 1,5 m.

Um die Limitierung in der Trocknungsstrecke zu umgehen wurden weitere Trocknungsversuche an dem Dortmunder Sprühtrockner durchgeführt, dessen Trocknungsraum inkl. des Konus eine Höhe von circa 3,7 m hat. Bei diesem Trockner werden die Grobfraktion am Unterende des Konus und die Feinfraktion über den Zyklon vom Luftstrom abgetrennt. Die Trennkorngröße liegt bei circa 75 μm . Für eine Produktentnahme am Konus ist bei Wechsel der Betriebsparameter eine vollständige Reinigung des Trockners erforderlich. Auf Basis der bekannten Spraytropfengrößenverteilungen wurde entschieden, nur die Produktentnahmestelle am Zyklon zu nutzen.

Für die Trocknungsversuche ohne Wiederholungen wurden ein konstanter Flüssigkeitsvolumenstrom von 12 l/h (PVP K30, 20 & 30 %) und eine konstante Zulufttemperatur von 180 °C eingestellt. Es ergab sich trotz Veränderung des ALR (ca. 0,2 bis

0,4, hoch zu niedrig) eine konstante Ablufttemperatur von circa 93 °C. Es traten keine ungewöhnlich starken Ablagerungen im Trocknungsraum bei den Versuchen auf. In Abbildung A12.5 in Anhang 12 ist eine Innenansicht von oben nach unten in den Konus nach Abschluss eines Trocknungsversuchs zu sehen. Dahingegen traten an der Außenseite des Zerstäubers und an der Halterungsplatte starke Ablagerungen auf. In Abbildung 8.3 sind Fotos während dem Trocknungsversuch zu einem früheren (links) und späteren (rechts) Zeitpunkt abgebildet. Ein Anwachsen der Anlagerungen ist erkennbar.



Abbildung 8.3: Anlagerungen um Zerstäuber kurz nach Beginn (links) und zu einem späteren Zeitpunkt (rechts) beim Einsatz im Pilotsprühtrockner Dortmund.

In Abbildung 8.4 ist ein Foto der Halterungsplatte mit Zerstäuber nach dem Versuch zu sehen. Eine Verstopfung des eigentlichen Zerstäubers ist zu keinem Zeitpunkt zu erkennen. Da die Anlagerungen im Karlsruher Sprühtrockner (Trocknungsluftführung Kombination axial und zentrifugal) im Gegensatz zum Dortmunder Sprühtrockner (Trocknungsluftführung rein axial) nicht auftreten, ist davon auszugehen, dass die Ablagerungen durch eine Trocknungsluftführung mit mehr Zentrifugalanteil vermieden werden können.

Die Probennahme wurde am Zyklon durchgeführt, wodurch nur die Feinfraktion aufgefangen wurde. Mit sinkendem Zerstäubungsgasstrom und damit sinkendem *ALR* kam es aber vermehrt auch zum Austrag am Konus, der wie zuvor beschrieben nicht berücksichtigt wurde. Außerdem ist davon auszugehen, dass im Zyklonauffangbehälter durch Rotation eine Zerkleinerungswirkung vorliegt. Daher sind die Ergebnisse hinsichtlich der Partikeleigenschaften nur als Trend zu sehen.



Abbildung 8.4: Anlagerungen um Zerstäuber mit Halterungsplatte nach Herunterfahren beim Einsatz im Pilotsprühtrockner Dortmund.

Der Sauterdurchmesser der Partikel beträgt zwischen 12 und 7 μm und nimmt mit steigendem ALR ab, was bei konstanten Trocknungsbedingungen aufgrund des bei steigendem ALR sinkenden Spraysauterdurchmessers (siehe Kapitel 6.3) zu erwarten ist. Die Sauterdurchmesser in Abhängigkeit von Konzentration und ALR sind in Abbildung A12.6 in Anhang 12 gezeigt. In Abbildung 8.5 sind Mikroskopaufnahmen von PVP-Partikeln dargestellt, die bei unterschiedlichem ALR sprühgetrocknet wurden. Da es sich um die Feinfraktion handelt, sind in beiden Proben keine Fäden zu finden, die sonst schon beobachtet wurden [117]. Der Wassergehalt der meisten Proben lag zwischen 2 und 4 %, 2 von 10 Proben lagen zwischen 5 und 6 % – dabei ist keine Abhängigkeit vom ALR erkennbar.

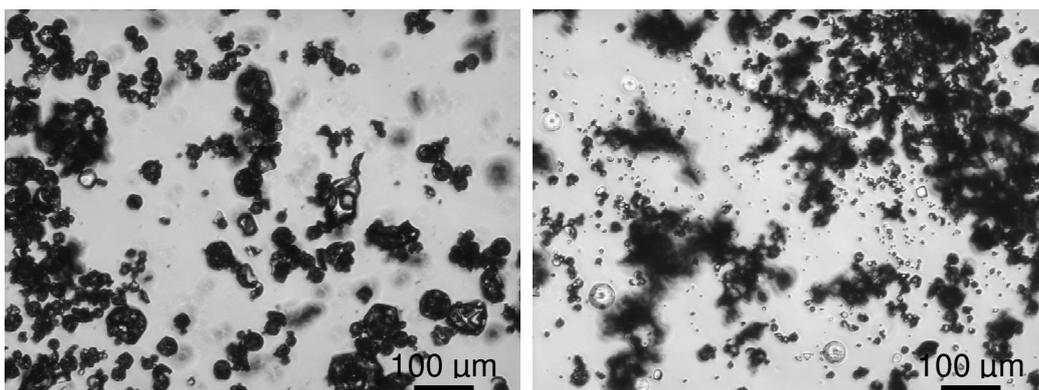


Abbildung 8.5: Mikroskopaufnahmen von sprühgetrockneten PVP-Partikeln bei unterschiedlichem ALR (links 0,19; rechts 0,38) (D15 kompakt, PVP K30 20 %).

Die ersten Versuche zum Einsatz des „effervescent atomizer“ in der Sprühtrocknung haben gezeigt, dass ein geeigneter Trocknungsraum oder eine geeignete Trocknungsluftführung vorhanden sein muss, um einen frühzeitigen Kontakt des unvoll-

ständig getrockneten Tropfens mit der Trocknerwand zu vermeiden. Eine Anpassung des Trocknungsraums ist zwar üblich und wird beispielsweise bei Zentrifugalzerstäubern berücksichtigt (größerer Durchmesser), aber bei Umstellung des Zerstäubungsverfahrens in einer vorhandenen Anlage ist der Umbau wirtschaftlich häufig nicht erwünscht oder möglich. Die Notwendigkeit einer Modifikation müsste im Einzelfall überprüft werden. Auf Basis von Arbeiten wie beispielsweise Rahman et al. [118] zum Skalieren bei der „effervescent atomization“ können darüber hinaus die im Pilotmaßstab gewonnenen Erkenntnisse auf Sprühtrockner im industriellen Produktionsmaßstab übertragen werden.

9 Zusammenfassung und Ausblick

Mit dem Ziel der Zerstäubung von rheologisch komplexen Flüssigkeiten für die Anwendung in der Sprühtrocknung ergibt sich die Frage einer geeigneten Zerstäuberform. Weit verbreitet sind Druck- und Zentrifugalzerstäuber, allerdings sind diese begrenzt in der Zerstäubung von hochviskosen Flüssigkeiten. Pneumatische Zerstäuber sind besser für hochviskose und rheologisch komplexe Flüssigkeiten geeignet, benötigen aber einen hohen Zerstäubungsgasmassenstrom. Die „effervescent atomization“ ist eine spezielle Form der innenmischenden pneumatischen Zerstäubung, bei der bereits im Zerstäuber eine Zweiphasenströmung vorliegt, die die Zerstäubung durch dünne Flüssigkeitsfilamente und Gasexpansion beim Austritt positiv beeinflusst. Sie hat im Bereich der Verbrennungstechnik bereits vielversprechende Ergebnisse bei geringerem Zerstäubungsgasmassenstrom im Vergleich zur herkömmlichen pneumatischen Zerstäubung erzielt.

Für die Sprühtrocknung sind bei der Zerstäubung die mittlere Spraytropfengröße, die Breite der Spraytropfengrößenverteilung und der Spraywinkel relevante Charakteristika. Zum Verständnis des Zerstäubungsvorgangs und den Einflüssen auf die zuvor genannten Charakteristika sind auch der Aufbruch und die Stetigkeit des Sprays von Bedeutung. Die bisher genannten Eigenschaften können unter dem Begriff der Spraymorphologie zusammengefasst werden. Darüber hinaus erfährt die Flüssigkeit bei der Zerstäubung eine Beanspruchung, die im Falle mehrphasiger Flüssigkeiten die innere Struktur beeinflussen kann, was je nach Aufgabenstellung gewünscht oder unerwünscht ist. Für großtechnische Anwendungen sind neben der Spraymorphologie und der Flüssigkeitsbeanspruchung die Energieeffizienz und die dadurch verursachten Kosten bei der Realisierung und vor allem auch im laufenden Betrieb ein wichtiges Merkmal der Zerstäubung.

Als rheologisch komplexes Stoffsystem wurden wässrige Lösungen des Polymers Polyvinylpyrrolidon (PVP) mit unterschiedlichem Polymerisationsgrad und unterschiedlicher Konzentration genutzt, die eine gute Reproduzierbarkeit im Vergleich zu natürlichen Polymeren wie beispielsweise Stärke aufweisen. Das mehrphasige Stoffsystem wurde auf Basis einer Öl-in-Wasser-Emulsion mit unterschiedlichen Konzentrationen des Maltodextrins (MD) in der äußeren Phase und mit konstanter Öltröpfengröße vor der Zerstäubung hergestellt. Bei der Charakterisierung der Stoffsysteme

zeigten nur die rheologischen Eigenschaften eine deutliche Abhängigkeit von der Konzentration und im Falle der Polymerlösungen vom Polymerisationsgrad.

Der Einfluss der Trockensubstanzkonzentration zeigte für Polymerlösungen niedrigen Polymerisationsgrads (PVP K30) und die Emulsion sehr gute Übereinstimmungen. Beide Stoffsysteme wiesen bei niedrigen Konzentrationen und Scherraten ein quasinewtonsches Verhalten auf, was mit steigender Konzentration und Scherrate in ein strukturviskoses Verhalten überging. Dies spiegelte sich auch in einer guten Übereinstimmung der resultierenden Spraytropfengrößenverteilungen (mittlere Tropfengröße und Breite der Verteilung) bei vergleichbaren Scherviskositäten wieder. Es wurde für einen Bereich bis etwa $0,5 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ (bei 1000 1/s) nur eine geringe Abhängigkeit der mittleren Tropfengröße und der Breite der Verteilung von der Viskosität beobachtet, für höhere Viskositäten aber ein starker Anstieg. Dieser starke Anstieg war anhand des optisch erfassten Aufbruchverhaltens auf unvollständigen primären Aufbruch der Flüssigkeit am Austritt aus dem Zerstäuber zurückzuführen. Ähnliches Verhalten (große mittlere Tropfengröße und Breite der Verteilung; unvollständiger primärer Aufbruch) wurde für Polymerlösungen hohen Polymerisationsgrads (PVP K90) bei geringen Scherviskositäten festgestellt. Ein Vergleich der Dehnrheologie der Polymerlösungen zeigte für PVP K30 ein quasinewtonsches Verhalten wohingegen die Messung für PVP K90 auf ein klar nichtnewtonsches Verhalten hinwies, aber nicht quantifiziert werden konnte. Es wurde daher davon ausgegangen, dass der Unterschied im Zerstäubungsverhalten zwischen PVP K30 und PVP K90 in den unterschiedlichen dehnrheologischen Eigenschaften begründet ist.

Abhängig von der vorliegenden Strömungsformen kommt es bei der „effervescent atomization“ zur Unstetigkeit des Sprays. Es konnte gezeigt werden, dass die Sprayunstetigkeit mit der Pulsationsfrequenz korreliert und eine steigende Pulsationsfrequenz die mittlere Tropfengröße und Breite der Verteilung verringert. Die Pulsationsfrequenz wurde durch die Düsengeometrie (Düsenkanallänge, Gasinjektionsdurchmesser, Mischkammerdurchmesser) und den „Air-to-Liquid Ratio by mass“ (*ALR*) beeinflusst. Für die Düsenkanallänge wurden abhängig von der Länge Minima und Maxima in der Pulsationsfrequenz beobachtet. Durch Wahl einer geeigneten Düsenkanallänge (Pulsationsfrequenzmaximum) und kleiner Gasinjektionsdurchmesser konnten trotz Reibungsverlusten durch einen längeren Düsenkanal die charakteristischen Kenngrößen der Spraytropfengrößenverteilung insgesamt positiv beeinflusst werden.

Im Vergleich zu herkömmlichen außenmischenden pneumatischen Zerstäubern zeigte sich ein vergleichbares Ergebnis hinsichtlich mittlerer Tropfengröße und Breite der Verteilung bei über 50 % geringerem ALR , aber höherem Flüssigkeitsgasdruck. Unter Berücksichtigung dieser Parameter wurde anhand eines bestehenden Modells die Effizienz der Zerstäubung mit „effervescent atomizer“ und herkömmlichem außenmischendem pneumatischem Zerstäuber bestimmt. Für den herkömmlichen außenmischenden pneumatischen Zerstäuber wurden geringfügig bessere Werte erzielt. Insgesamt liegen aber beide Zerstäuberformen in der gleichen Größenordnung. Daher muss im Einzelfall abgewogen werden, welche der beiden Formen günstiger für den Einsatzzweck ist: Für die „effervescent atomization“ wird ein geringer Gasmassenstrom benötigt, allerdings zumeist ein höherer Flüssigkeits- und Gasdruck von bis zu 6 bar. Dieser Gasdruck ist mit einem einstufigen Kompressor realisierbar. Für die herkömmliche pneumatische Zerstäubung wird hingegen wenigstens der doppelte Gasmassenstrom aber bei niedrigeren Drücken (ca. 3 bar) benötigt.

Eine Erweiterung des in der Literatur bekannten, mit geringem Rechenaufwand verbundenen Modells nach Lund erlaubte es, für die eingesetzten Stoffsysteme die mittlere Tropfengröße deutlich besser als mit dem Originalmodell zu beschreiben. Zur Erweiterung wurden die Flüssigkeitseigenschaften durch Korrelationen für Zweiphasenströmungen nach Baroczy, Thom und Turner & Wallis berücksichtigt. Weiter konnten im Vergleich mit den experimentell ermittelten Tropfengrößen und dem optisch erfassten Aufbruchverhalten die Grenzen des Modells definiert werden: So ist für Ohnesorge-Zahlen kleiner 0,05 die Wahrscheinlichkeit von sekundärem Aufbruch höher und es kam zur Überschätzung der Tropfengröße, da sekundärer Aufbruch in dem Modell nicht berücksichtigt wird. Für Scherviskositäten größer 0,5 Pa·s oder hohe Polymerisationsgrade wurde eine Unterschätzung der Tropfengröße festgestellt, was im Vergleich mit dem optisch erfasstem Aufbruchverhalten auf den nicht berücksichtigten unvollständigen primären Aufbruch zurückzuführen war. Innerhalb dieser definierten Grenzen erlaubt das mit der Korrelation von Turner & Wallis erweiterte Modell nach Lund eine präzise Beschreibung der mittleren Tropfengröße.

Als Maß für die Flüssigkeitsbeanspruchung wurde die Veränderung der inneren Öltropfengrößen der Öl-in-Wasser-Emulsion genutzt und in Abhängigkeit von Stoff- und Prozessparametern untersucht. Für den Tropfenaufbruch in Emulsionen ist aus der Theorie bekannt, dass das Viskositätsverhältnis von disperser Phase zu Emulsion entscheidend ist. Diese Abhängigkeit konnte auch für die „effervescent atomization“

bestätigt werden. Entgegen der Erwartung wirkte aber bei der Zerstäubung eine signifikante Dehnbeanspruchung auch auf die innere Phase, da auch bei Viskositätsverhältnissen, bei denen der Theorie nach kein Aufbruch durch Scherung möglich ist, Aufbruch beobachtet wurde. Es wurde erwartet, dass der *ALR* einen zentralen Einfluss auf die Öltropfengrößenveränderung hat und dabei mit steigendem *ALR* die Beanspruchung steigt und somit die Öltropfengröße sinkt. Dieser Trend konnte auch für Viskositätsverhältnisse größer 1 beobachtet werden, allerdings nicht für solche kleiner 1. Es wurde davon ausgegangen, dass ein Wechsel in der Strömungsform im Düsenkanal dafür verantwortlich ist, was aber anhand der theoretisch bestimmten Strömungsformen nicht bestätigt werden konnte. Die Düsenkanallänge zeigte aufgrund der sehr kleinen kritischen Deformationszeiten keinen Einfluss auf den Öltropfenaufbruch. Somit ist es in Abhängigkeit von den Stoffeigenschaften möglich die Beanspruchung bei der „effervescent atomization“ zur gezielten Einstellung der inneren Struktur der Flüssigkeit zu nutzen oder eine Veränderung zu vermeiden. Dies erlaubt die Kombination von Grundoperationen (Zerkleinerung der inneren und äußeren Phase sowie Trocknung) zur effizienteren Gestaltung von Prozessen.

In Versuchen an zwei bestehenden Pilotsprühtrocknern wurde der Einsatz der „effervescent atomization“ in der Sprühtrocknung untersucht. Da im Vergleich zur herkömmlichen außenmischenden pneumatischen Zerstäubung aufgrund des geringeren Zerstäubungsgasmassenstroms weniger Aufweitung des Spraykegels und Turbulenz auftritt, ist das Spray bei der „effervescent atomization“ gerichteter, was bei einer zu kurzen Trocknungsstrecke zum Kontakt unvollständig getrockneter Tropfen mit der Trocknerwand und Ablagerungen bzw. Verstopfungen führen kann. Ablagerungen am Zerstäuber konnten durch eine geeignete Trocknungsluftzuführung vermieden werden. Eine Neigung zur Verstopfung des eigentlichen Zerstäubers war nicht erkennbar. Grundsätzlich konnte gezeigt werden, dass die „effervescent atomization“ sich zum Einsatz in der Sprühtrocknung eignet und in bestehenden Trocknern keine Modifikationen erforderlich sind, soweit eine ausreichende Trocknungsstrecke vorhanden ist.

Die Untersuchung der Spraymorphologie und die ersten Sprühtrocknungsversuche zeigten vielversprechende Ergebnisse für den Einsatz der „effervescent atomization“. Relevant ist dabei, dass gewünschte Partikeleigenschaften wie mit bisher eingesetzten Methoden erreicht werden. Außerdem verspricht die Verknüpfung der Einstellung

der inneren Struktur der Flüssigkeit durch den Zerstäubungsvorgang und der Trocknung bisherige Prozesse zu vereinfachen oder neue Verfahren zu ermöglichen.

Summary

The spray drying of a rheological complex liquid demands for a suitable atomizer. Pressure and centrifugal atomizers are widely spread but are limited in the viscosity of the liquid which they are able to atomize. Pneumatic atomizers are suited for high viscous and rheological complex liquids but have high atomization gas consumption. The effervescent atomization is a special type of the internal mixing pneumatic atomizer being distinct in the formation of a two phase flow prior to the nozzle orifice outlet. The two phase flow promotes the atomization due to the thin liquid filaments and gas expansion at the nozzle orifice outlet. Investigations of the effervescent atomization in combustion applications presented comparable atomization results to common pneumatic atomization and reduced atomization gas consumption.

The mean spray drop size, the width of the spray drop size distribution and the spray cone angle are relevant characteristics of the atomization in spray drying. The liquid breakup and the spray steadiness are also relevant for the comprehension of the atomization process and the influence on the previously mentioned characteristics. These spray properties are summarized as spray morphology. The liquid is stressed during the atomization process. In case of a multiphase liquid, this stress can influence the inner structure of the liquid which may be desirable or not depending on the application. Furthermore energy efficiency and resulting financial costs caused during installation and operation are relevant in industrial scale processes.

Aqueous solutions of polyvinylpyrrolidone (PVP) with varied polymerization degrees and concentrations are utilized as rheological complex model system with a better reproducibility than a natural polymer like starch. An oil-in-water emulsion was specified as a multiphase model system: The drop size of the disperse phase was kept constant prior to the atomization and the maltodextrin (MD) concentration in the continuous phase was varied. The characterization of the model systems as a function of PVP and MD concentration and PVP polymerization degree presented a strong influence on the rheological properties but no relevant influence on density, surface and interfacial tension, respectively.

The impact of the dry matter concentration was in good agreement for the low molecular weight PVP solutions (PVP K30) and the emulsions. Both systems depicted at low concentration and shear rate a quasi Newtonian behavior which changed with increasing shear rate and concentration to a shear thinning behavior. This agreement

was also seen in the resulting spray drop size distribution (mean drop size and width of the distribution) at comparable shear viscosities. The mean drop size and the width of the distribution were largely independent of the shear viscosity up to 0.5 Pa·s (at 1000 1/s). Both increased strongly with a further increase in shear viscosity. This significant change was due to incomplete primary breakup as observed by shadowgraphy. Similar behavior (large mean drop size and width of distribution; incomplete primary breakup) was seen for high molecular weight PVP solutions (PVP K90) at low concentrations and shear viscosities. A comparison of the extensional rheological characterization presented a quasi Newtonian behavior of PVP K30 whereas PVP K90 presented clearly a non-Newtonian behavior. It is assumed therefore that the differences in atomization between PVP K30 and PVP K90 were caused by the different extensional rheological behavior.

An unsteadiness of the spray is observed for “effervescent atomization” depending on the present flow regime. It was shown that the spray unsteadiness correlates with the pulsation frequency and that an increase in pulsation frequency reduces the mean drop size and the width of the distribution. The pulsation frequency was influenced by the atomizer geometry (nozzle orifice length, gas injection diameter, mixing chamber diameter) and the Air-to-Liquid Ratio by mass (*ALR*). Variation of the nozzle orifice length depicted multiple minima and maxima of the pulsation frequency. Mean drop size and width of the distribution can be reduced with a suitable nozzle orifice length (pulsation frequency maxima) and fine gas injection regardless to the friction losses due to the increased nozzle orifice length.

It was possible to achieve an atomization result (mean drop size and width of distribution) with the effervescent atomizer similar to the one of a common external mixing pneumatic atomizer at less than 50 % of the atomization gas mass flow consumption but at a higher liquid feed pressure. Utilizing an efficiency model from literature, the efficiency of both atomizer types was determined for atomization of PVP solutions. The pneumatic atomizer depicted a slightly higher efficiency. Depending on the application and given conditions, the more suitable atomization method has to be selected in the particular case: The effervescent atomization requires less atomization gas but at a slightly higher gas and liquid pressure of up to 6 bar. This gas pressure can be achieved with a single-stage compressor. In contrast, the common external mixing pneumatic atomizer requires at least the double mass flow of atomization gas but at lower pressures of about 3 bar.

The model of Lund for calculation of the mean spray drop size in effervescent atomization is distinguished by the minimal computational requirements. It was possible to improve strongly the accuracy of the model. This was accomplished by consideration of the material properties in the initial calculation step with the correlations of Baroczy, Thom and Turner & Wallis for two-phase flows. Furthermore, the limits of the applicability of the improved model were defined based on the experimental data: The possibility of secondary atomization is high at an Ohnesorge number below 0.05. This resulted in an overestimation of the mean drop size as secondary atomization is not considered in the model. The mean drop size at a shear viscosity above 0.5 Pa·s or high polymerization degree was mostly underestimated. It was possible to connect this to incomplete primary breakup by comparison to the visual observation (shadowgraphy) of the breakup behavior. Within these limits, the model of Lund improved by the correlation of Turner & Wallis allows a precise specification of the mean drop size.

The change in oil drop size of an oil-in-water emulsion was utilized as a measure of the stress affecting the liquid during atomization. It was investigated under consideration of material and process parameters. It is known from literature that the viscosity ratio of disperse phase and emulsion is essential for the drop breakup in emulsions. This dependency was observed in effervescent atomization, too. Contrary to the expectations, a significant extensional stress on the inner phase of the emulsion was determined: Oil drop breakup occurred at viscosity ratios that preclude a breakup in shear flow according to theory. The *ALR* was expected to be a decisive parameter for the intensity of the oil drop breakup with increased breakup at higher *ALR*. This relationship was observed at viscosity ratios of 1 and above but not below 1. It is assumed that a transition of the flow regime present within the nozzle orifice is responsible but it was not possible to support this assumption by a theoretical determination of the flow regime. The nozzle orifice geometry has no impact due to the very low critical deformation time. Therefore it is possible to utilize the stresses present during effervescent atomization under consideration of the material properties for a desired change of the inner structure of an emulsion. It is also possible to avoid a change of the inner structure by selection of suitable material parameters if desired. This allows for the combination of unit operations (breakup of inner and outer phase and drying) for design of efficient processes.

Trials at two pilot scale spray dryers were conducted for investigation of the applicability of effervescent atomization in spray drying. The spray cone was less widened and presents less turbulence in the spray surrounding due to the reduced atomization gas flow. Therefore, the spray was more directed. This resulted in combination with a too short distance from atomizer to spray dryer bottom in incomplete drying of the drops and severe depositions at the bottom and in the outlet. Depositions at the atomizer were avoided by a suitable drying air flow. No trend towards a blockage of the atomizer itself was observed. Given an adequate distance between atomizer and bottom, the effervescent atomization proved to be a suitable atomization method for application in spray drying and requires no modification in existing spray dryers.

The investigation of the spray morphology and the initial spray drying trials presented promising results for utilization of the effervescent atomization in spray drying. An important task will be to achieve the desired particle properties as possible with other methods used. Adjusting the structure of the inner phase during atomization and drying in one process step allows for simplification of established processes and creation of new processes.

Literaturverzeichnis

Bei Büchern und Dissertationen ist soweit möglich im Text zusätzlich zur Referenznummer eine Seitenangabe in runden Klammern beigefügt.

- [1] Masters, K.: *Spray Drying in Practice*, SprayDryConsult International ApS, Charlottenlund/DK, 2002.
- [2] Schuchmann, H. P., Schuchmann, H.: *Lebensmittelverfahrenstechnik: Rohstoffe - Prozesse - Produkte*, Wiley-VCH Verlag, Weinheim, 2005.
- [3] Sovani, S. D., Sojka, P. E., Lefebvre, A. H.: *Effervescent atomization*, Progress in Energy and Combustion Science, 27 (4) 483-521, 2001.
- [4] Guildenbecher, D. R., Rankin, B. A., Gore, J. P.: *Spray and Radiation Properties of Unsteady, Turbulent Multiphase Flames with High Liquid Loading*, Proceedings ILASS - Europe 2011, 24th Annual Conference on Liquid Atomization and Spray Systems, Estoril/PT, 2011.
- [5] Jedelsky, J., Jicha, M., Slama, J., Otahal, J.: *Development of an Effervescent Atomizer for Industrial Burners*, Energy & Fuels, 23 6121-6130, 2009.
- [6] Petersen, F. J., Worts, O., Schaefer, T., Sojka, P. E.: *Effervescent atomization of aqueous polymer solutions and dispersions*, Pharmaceutical development and technology, 6 (2) 201-210, 2001.
- [7] Nielsen, A. F., Bertelsen, P., Kristensen, H. G., Kristensen, J., Hovgaard, L.: *Investigation and comparison of performance of effervescent and standard pneumatic atomizer intended for soluble aqueous coating*, Pharmaceutical development and technology, 11 (2) 243-253, 2006.
- [8] Tegge, G.: *Stärke und Stärkederivate*, Behr's Verlag, Hamburg, 1984.
- [9] Lefebvre, A. H.: *Atomization and Sprays*, Hemisphere Publ., New York, 1989.
- [10] Wozniak, G.: *Zerstäubungstechnik - Prinzipien, Verfahren, Geräte*, Springer, Berlin, Heidelberg, New York, Barcelona, Hongkong, London, Mailand, Paris, Tokio, 2003.
- [11] Rayleigh, L.: *On The Instability Of Jets*, Proceedings London Mathematical Society, s1-10 (1) 4-13, 1878.
- [12] Weber, C.: *Zum Zerfall eines Flüssigkeitsstrahles*, Zeitschrift für Angewandte Mathematik und Mechanik, 11 (2) 136-154, 1931.
- [13] Ohnesorge, W.: *Die Bildung von Tropfen aus Duesen beim Zerfall flüssiger Strahlen*, Zeitschrift für Angewandte Mathematik und Mechanik, 16 355-358, 1936.
- [14] Guildenbecher, D. R., Lopez-Rivera, C., Sojka, P. E.: *Secondary atomization*, Experiments In Fluids, 46 (3) 371-402, 2009.
- [15] Hsiang, L. P., Faeth, G. M.: *Near-Limit Drop Deformation and Secondary Breakup*, International Journal of Multiphase Flow, 18 (5) 635-652, 1992.
- [16] Chin, J. S.: *Effervescent Atomization and Internal Mixing Air Assist Atomization*, International Journal of Turbo and Jet Engines, 12 (2) 119-127, 1995.
- [17] Richter, T.: *Zerstäuben von Flüssigkeiten*, expert verlag, Renningen, 2004.

- [18] Chawla, J. M.: *Verfahren für die Zerstäubung von Flüssigkeiten oder für die Zerteilung von Gasen in kleine Blasen*, DE19762627880 19760622 (DE2627880 A1), 29.12.1977.
- [19] Chawla, J. M.: *Verfahren für die Zerstäubung von Flüssigkeiten oder für die Zerteilung von Gasen in kleine Blasen*, DE19762627880 19760622 (DE2627880 C2), 11.11.1982.
- [20] Chawla, J. M.: *Auflösung von Blasen in Flüssigkeiten*, Chemie Ingenieur Technik, 53 (10) 799-801, 1981.
- [21] Lefebvre, A. H., Wang, X. F., Martin, C. A.: *Spray Characteristics of Aerated-Liquid Pressure Atomizers*, Journal of Propulsion and Power, 4 (4) 293-298, 1988.
- [22] Chawla, J. M.: *Apparatus for atomizing liquids*, CA19902015080 19900420 (CA2015080 A1), 22.10.1990.
- [23] Chawla, J. M.: *Vorrichtung für die Zerstäubung von Flüssigkeit oder für die Zerteilung von Gas in kleine Blasen*, DE19893913334 19890422 (DE3913334 A1), 25.10.1990.
- [24] Chawla, J. M.: *Vorrichtung für die Zerstäubung von Flüssigkeit oder für die Zerteilung von Gas in kleine Blasen*, EP19900103005 19900216 (EP0394629 A2), 31.10.1990.
- [25] Chawla, J. M.: *Vorrichtung für die Zerstäubung von Flüssigkeit oder für die Zerteilung von Gas in kleine Blasen*, EP19900103005 19900216 (EP0394629 A3), 14.8.1991.
- [26] Chawla, J. M.: *Device for atomizing liquid or for comminuting gas into small bubbles*, US19900500616 19900328 (US5045245 (A)), 3.9.1991.
- [27] Rizk, N. K., Lefebvre, A. H.: *The Influence of Liquid-Film Thickness on Airblast Atomization*, Journal of Engineering for Power-Transactions of the Asme, 102 (3) 706-710, 1980.
- [28] Sher, E., Bar-Kohany, T., Rashkovan, A.: *Flash-boiling atomization*, Progress in Energy and Combustion Science, 34 (4) 417-439, 2008.
- [29] Weidner, E., Petermann, M., Grüner, S., Daiminger, R.: *Wenn der Whisky ins Glas rieselt Na dann, prost!*, Rubin, 2/00, 2000.
- [30] Konstantinov, D., Marsh, R., Bowen, P., Crayford, A.: *Effervescent Atomization for Industrial Energy-Technology Review*, Atomization and Sprays, 20 (6) 525-552, 2010.
- [31] Chin, J. S., Lefebvre, A. H.: *A Design Procedure for Effervescent Atomizers*, Journal of Engineering for Gas Turbines and Power-Transactions of the Asme, 117 (2) 266-271, 1995.
- [32] Wallis, G. B.: *One-dimensional Two-phase Flow*, McGraw-Hill, New York, 1969.
- [33] VDI GVC: *VDI-Wärmeatlas*, Springer-Verlag, Heidelberg, 2006.
- [34] Buckner, H. J., Sojka, P. E.: *Effervescent Atomization of High-Viscosity Fluids: Part I. Newtonian Liquids*, Atomization and Sprays, 1 (3) 239-252, 1991.
- [35] Buckner, H. J., Sojka, P. E.: *Effervescent Atomization of High-Viscosity Fluids: Part II. Non-Newtonian Liquids*, Atomization and Sprays, 3 (2) 157-170, 1993.
- [36] Xiong, H. B., Lin, J. Z., Zhu, Z. F.: *Three-dimensional simulation of effervescent atomization spray*, Atomization and Sprays, 19 (1) 75-90, 2009.
- [37] Luong, J. T. K., Sojka, P. E.: *Unsteadiness in effervescent sprays*, Atomization and Sprays, 9 (1) 87-109, 1999.
- [38] Kim, J. Y., Lee, S. Y.: *Dependence of spraying performance on the internal flow pattern in effervescent atomizers*, Atomization and Sprays, 11 (6) 735-756, 2001.

- [39] Gadgil, H. P., Raghunandan, B. N.: *Some features of spray breakup in effervescent atomizers*, Experiments In Fluids, 50 (2) 329-338, 2011.
- [40] Schröder, J., Schlender, M., Sojka, P. E., Gaukel, V., Schuchmann, H. P.: *Modeling of drop sizes from effervescent atomization of gelatinized starch suspensions*, Proceedings ILASS - Europe 2010, 23rd Annual Conference on Liquid Atomization and Spray Systems, Brno/CZ, 2010.
- [41] Jedelsky, J., Beinstein, Z., Jicha, M.: *Unsteadiness in Effervescent Sprays: Influence of Operational Conditions and Atomizer Design*, Proceedings ICLASS 2009, Vail, Colorado, USA, 2009.
- [42] Liu, M., Duan, Y., Zhang, T.: *Evaluation of effervescent atomizer internal design on the spray unsteadiness using a phase/Doppler particle analyzer*, Experimental Thermal and Fluid Science, 34 (6) 657-665, 2010.
- [43] Geckler, S. C., Sojka, P. E.: *Effervescent Atomization of Viscoelastic Liquids: Experiment and Modeling*, Journal of Fluid Engineering, 130 (6) 61303-61400, 2008.
- [44] Chen, S. A., Lefebvre, A. H.: *Spray cone angles of effervescent atomizers*, Atomization and Sprays, 4 (3) 291-301, 1994.
- [45] Lund, M. T., Sojka, P. E., Lefebvre, A. H., Gosselin, P. G.: *Effervescent atomization at low mass flow rates, Part 1: Influence of surface tension*, Atomization and Sprays, 3 (1) 77-89, 1993.
- [46] Sutherland, J. J., Sojka, P. E., Plesniak, M. W.: *Ligament controlled effervescent atomization*, Atomization and Sprays, 7 (4) 383-406, 1997.
- [47] Schröder, J., Kraus, S., Rocha, B. B., Gaukel, V., Schuchmann, H. P.: *Characterization of gelatinized corn starch suspensions and resulting drop size distributions after effervescent atomization*, Journal Of Food Engineering, 105 (4) 656-662, 2011.
- [48] Santangelo, P. J., Sojka, P. E.: *A Holographic Investigation of the Near-Nozzle Structure of An Effervescent Atomizer-Produced Spray*, Atomization and Sprays, 5 (2) 137-155, 1995.
- [49] Rahman, M. A., Balzan, M., Heidrick, T., Fleck, B. A.: *Effects of the gas phase molecular weight and bubble size on effervescent atomization*, International Journal of Multiphase Flow, 38 (1) 35-52, 2012.
- [50] Ghaemi, S., Rahimi, P., Nobes, D. S.: *Effect of Bubble Generation Characteristics on Effervescent Atomization at Low Gas-Liquid Ratio Operation*, Atomization and Sprays, 20 (3) 211-225, 2010.
- [51] Liu, M., Duan, Y. F., Zhang, T. N., Xu, Y. Q.: *Evaluation of unsteadiness in effervescent sprays by analysis of droplet arrival statistics - The influence of fluids properties and atomizer internal design*, Experimental Thermal and Fluid Science, 35 (1) 190-198, 2011.
- [52] Jedelsky, J., Landsmann, M., Jicha, M., Kuritka, I.: *Effervescent Atomizer: Influence of the Operation Conditions and Internal Geometry on Spray Structure*, Proceedings ILASS - Europe 2008, 22nd Annual Conference on Liquid Atomization and Spray Systems, 8-9-2008.
- [53] Lund, M. T.: *Effervescent atomization at low flow rates*, Dissertation, Purdue University, West Lafayette/US, 1992.
- [54] Panchagnula, M. V., Sojka, P. E.: *Spatial droplet velocity and size profiles in effervescent atomizer-produced sprays*, Fuel, 78 (6) 729-741, 1999.

- [55] Schmidt, F., Mewes, D.: *Zerstäuben von Suspensionen - Tropfengröße und -geschwindigkeit im Spray eines innenmischenden Zweistoffzerstäubers*, Chemie Ingenieur Technik, 79 (12) 2075-2082, 2007.
- [56] Lefebvre, A. H.: *Twin-fluid atomization: Factors influencing mean drop size*, Atomization and Sprays, 2 (2) 101-119, 1992.
- [57] Qian, L. J., Lin, J. Z., Xiong, H. B.: *A Fitting Formula for Predicting Droplet Mean Diameter for Various Liquid in Effervescent Atomization Spray*, Journal of Thermal Spray Technology, 19 (3) 586-601, 2010.
- [58] Qian, L. J., Lin, J. Z., Xiong, H. B., Chan, T. L.: *Theoretical Investigation of the Influence of Liquid Physical Properties on Effervescent Atomization Performance*, Journal of Fluids Engineering-Transactions of the Asme, 133 (10), 2011.
- [59] Broukal, J., Hajek, J.: *Validation of an effervescent spray model with secondary atomization and its application to modeling of a large-scale furnace*, Applied Thermal Engineering, 31 (13) 2153-2164, 2011.
- [60] Qian, L. J., Lin, J. Z.: *Modeling on effervescent atomization: A review*, Science China-Physics Mechanics & Astronomy, 54 (12) 2109-2129, 2011.
- [61] Senecal, P. K., Schmidt, D. P., Nouar, I., Rutland, C. J., Reitz, R. D., Corradini, M. L.: *Modeling high-speed viscous liquid sheet atomization*, International Journal of Multiphase Flow, 25 (6-7) 1073-1097, 1999.
- [62] Butterworth, D.: *A Comparison Of Some Void-Fraction Relationships For Co-Current Gas-Liquid Flow*, International Journal of Multiphase Flow, 1 (6) 845-850, 1975.
- [63] Esfarjani, S. A., Dolatabadi, A.: *A 3D simulation of two-phase flow in an effervescent atomizer for suspension plasma spray*, Surface & Coatings Technology, 203 (15) 2074-2080, 2009.
- [64] Ramamurthi, K., Sarkar, U. K., Raghunandan, B. N.: *Performance characteristics of effervescent atomizer in different flow regimes*, Atomization and Sprays, 19 (1) 41-56, 2009.
- [65] Gadgil, H. P., Raghunandan, B. N.: *Model for Predicting the Mean Drop Size in Effervescent Sprays*, Journal of Propulsion and Power, 27 (5) 937-943, 2011.
- [66] Broniarz-Press, L., Ochowiak, M., Woziwodzki, S.: *Atomization of PEO aqueous solutions in effervescent atomizers*, International Journal of Heat and Fluid Flow, 31 (4) 651-658, 2010.
- [67] Walzel, P.: *Efficiency of the energy transformation at spray systems*, Proceedings ILASS - Europe 1997, 11th Annual Conference on Liquid Atomization and Spray Systems, 1997.
- [68] EN ISO 862: *Grenzflächenaktive Verbindungen*, 1995.
- [69] Schuchmann, H. P., Köhler, K.: *Emulgiertechnik*, Behr's Verlag, Hamburg, 2012.
- [70] Walstra, P.: *Principles of Emulsion Formation*, Chemical Engineering Science, 48 (2) 333-349, 1993.
- [71] Grace, H. P.: *Dispersion Phenomena in High-Viscosity Immiscible Fluid Systems and Application of Static Mixers As Dispersion Devices in Such Systems*, Chemical Engineering Communications, 14 (3-6) 225-277, 1982.
- [72] Bentley, B. J., Leal, L. G.: *An experimental investigation of drop deformation and breakup in steady two-dimensional linear flows*, Journal of Fluid Mechanics, 167 241-283, 1986.

- [73] Armbruster, H.: *Untersuchungen zum kontinuierlichen Emulgierprozeß in Kolloidmühlen unter Berücksichtigung spezifischer Emulgatoreigenschaften und der Strömungsverhältnisse im Dispersionspalt*, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH), 1990.
- [74] Jansen, K. M. B., Agterof, W. G. M., Mellema, J.: *Droplet breakup in concentrated emulsions*, Journal of Rheology, 45 (1) 227-236, 2001.
- [75] Guido, S.: *Shear-induced droplet deformation: Effects of confined geometry and viscoelasticity*, Current Opinion in Colloid and Interface Science, 16 (1) 61-70, 2011.
- [76] Westergaard, V.: *Milk Powder Technology: Evaporation and Spray Drying*, Niro A/S, Kopenhagen, 2004.
- [77] Jafari, S. M., Assadpoor, E., He, Y. H., Bhandari, B.: *Encapsulation efficiency of food flavours and oils during spray drying*, Drying Technology, 26 (7) 816-835, 2008.
- [78] Salomon, S., Somavarapu, S., Brocchini, S., Alpar, O.: *Particle engineering from emulsions by controlled spray drying*, Journal of Pharmacy and Pharmacology, 57 S56-S56, 2005.
- [79] Serfert, Y., Schröder, J., Mescher, A., Laackmann, F., Drusch, S., Schwarz, K.: *Characterization of spray-dried layer-by-layer emulsions*, Proceedings ICEF 11 - International Congress on Engineering and Food, Athen/GR, 2011.
- [80] Lif, A., Holmberg, K.: *Water-in-diesel emulsions and related systems*, Advances in Colloid and Interface Science, 123 231-239, 2006.
- [81] Qin, K. D., Tank, H., Wilson, S., Downer, B., Liu, L.: *Controlling Droplet-Size Distribution Using Oil Emulsions in Agricultural Sprays*, Atomization and Sprays, 20 (3) 227-239, 2010.
- [82] Legako, J., Dunford, N. T.: *Effect of Spray Nozzle Design on Fish Oil-Whey Protein Microcapsule Properties*, Journal of Food Science, 75 (6) E394-E400, 2010.
- [83] Bolszo, C. D., Narvaez, A. A., McDonell, V. G., Dunn-Rankin, D., Sirignano, W. A.: *Pressure-Swirl Atomization of Water-In-Oil Emulsions*, Atomization and Sprays, 20 (12) 1077-1099, 2010.
- [84] Vignolles, M. L., Lopez, C., Madec, M. N., Ehrhardt, J. J., Mejean, S., Schuck, P., Jeantet, R.: *Fat properties during homogenization, spray-drying, and storage affect the physical properties of dairy powders*, Journal of Dairy Science, 92 (1) 58-70, 2009.
- [85] Schröder, J., Werner, F., Gaukel, V., Schuchmann, H. P.: *Impact of effervescent atomization on oil drop size distribution of atomized oil-in-water emulsions*, Proceedings ICEF 11 - International Congress on Engineering and Food, Athen/GR, 2011.
- [86] Soottitawat, A., Yoshii, H., Furuta, T., Ohkawara, M., Linko, P.: *Microencapsulation by spray drying: Influence of emulsion size on the retention of volatile compounds*, Journal of Food Science, 68 (7) 2256-2262, 2003.
- [87] Suzuki, Y., Harada, T., Watanabe, H., Shoji, M., Matsushita, Y., Aoki, H., Miura, T.: *Visualization of aggregation process of dispersed water droplets and the effect of aggregation on secondary atomization of emulsified fuel droplets*, Proceedings of the Combustion Institute, 33 (2) 2063-2070, 2011.
- [88] Bühler, V.: *Polyvinylpyrrolidone Excipients for Pharmaceuticals - Povidone, Crospovidone and Copovidone*, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 30-4-2005.
- [89] Avaltroni, F., Bouquerand, P. E., Normand, V.: *Maltodextrin molecular weight distribution influence on the glass transition temperature and viscosity in aqueous solutions*, Carbohydrate Polymers, 58 (3) 323-334, 2004.

- [90] Malkin, A. Y., Isayev, A. I.: *Rheology - Concepts, Methods, & Applications*, ChemTec Publishing, Toronto, 2006.
- [91] Hochstein, B.: *Rheologie von Kugel- und Fasersuspensionen mit viskoelastischen Matrixflüssigkeiten*, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH), 1997.
- [92] Trouton, F.: *On the Coefficient of Viscous Traction and Its Relation to that of Viscosity*, Proc.R.Soc.London, 77 (519) 426-440, 1906.
- [93] Arnolds, O.: *Dehnrheologie verdünnter, halbkonzentrierter und konzentrierter Polymerlösungen untersucht mit Capillary Breakup Extensional Rheometry (CaBER)*, Dissertation, Karlsruher Institut für Technologie (KIT), 2011.
- [94] Oliveira, M. S. N., Yeh, R., McKinley, G. H.: *Iterated stretching, extensional rheology and formation of beads-on-a-string structures in polymer solutions*, Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 137 (1–3) 137-148, 2006.
- [95] McClements, D. J.: *Food emulsions: Principles, practice and techniques*, CRC Press, Boca Raton London New York Washington D.C., 2005.
- [96] Drusch, S., Hamann, S., Berger, A., Serfert, Y., Schwarz, K.: *Surface accumulation of milk proteins and milk protein hydrolysates at the air-water interface on a time-scale relevant for spray-drying*, Food Research International, 47 (2) 140-145, 2012.
- [97] Drusch, S.: *Dynamische Tropfenkonturanalyse zur Charakterisierung von Phasengrenzen*, Vortrag DFG-Schwerpunktprogramm (SPP) 1423 „Prozess-Spray“ - Summerschool „Rheologie und Phasengrenzen bei der Zerstäubung“, Bremen/DE, 2011.
- [98] Sojka, P. E.: *asymmetrical geometry of gas injection favorable for effervescent atomization*, Persönliche Mitteilung, 2008.
- [99] Merkes, H. G.: *Particle Size Measurements: Fundamentals, Practice, Quality*, Springer, 2009.
- [100] ISO 13320: *Particle size analysis - Laser diffraction methods*, 2009.
- [101] Mie, G.: *Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen*, Annalen der Physik, 4 (25) 377-445, 1908.
- [102] Williams, P. A.: *Laser Diffraction Particle Sizing and Spark-Flash Photography Techniques for Successful Measurement of Spark-Ignition Engine Fuel Sprays*, Proceedings Experimental and Predictive Methods in Engine Research and Development International Conference, Birmingham/UK, 1993.
- [103] Mescher, A., Walzel, P.: *Störeinfluss durch Schlieren bei der Tropfengrößenmessung an Zweistoffdüsen durch Laserbeugungsspektrometrie*, Chemie Ingenieur Technik, 82 (5) 717-722, 2010.
- [104] Triballier, K., Dumouchel, C., Cousin, J.: *A technical study on the Spraytec performances: influence of multiple light scattering and multi-modal drop-size distribution measurements*, Experiments In Fluids, 35 (4) 347-356, 2003.
- [105] Berrocal, E., Wellander, R., Kristensson, E.: *Accounting for multiple scattering, signal attenuation and laser extinction using Structured Laser Illumination Planar Imaging*, Proceedings ILASS - Europe 2010, 23rd Annual Conference on Liquid Atomization and Spray Systems, Brno/CZ, 2010.
- [106] DIN ISO 9276-2: *Darstellung der Ergebnisse von Partikelgrößenanalysen - Teil 2: Berechnung von mittleren Partikelgrößen/-durchmessern und Momenten aus Partikelgrößenverteilungen (ISO 9276-2:2001)*, 2009.

- [107] Pretzler, G., Jager, H., Neger, T., Philipp, H., Woisetschlager, J.: *Comparison of Different Methods of Abel Inversion Using Computer-Simulated and Experimental Side-on Data*, Zeitschrift für Naturforschung Section A-A Journal of Physical Sciences, 47 (9) 955-970, 1992.
- [108] Vetter, T.: *BH-Mie-Rechner*, 2004.
- [109] Schmidt, F.: *Zweistoffzerstäubung von Suspensionen*, Dissertation, Universität Hannover, 2007.
- [110] Hipp, M., Woisetschlager, J., Reiterer, P., Neger, T.: *Digital evaluation of interferograms*, Measurement, 36 (1) 53-66, 2004.
- [111] Hipp, M., Reiterer, P.: *IDEA - Interferometric Data Evaluation Algorithm (1.731)*, 2003.
- [112] Backus, G., Gilbert, F.: *Resolving Power of Gross Earth Data*, Geophysical Journal of the Royal Astronomical Society, 16 (2) 169-205, 1968.
- [113] Schlinge, B., Schröder, J., Schuchmann, H. P., Gaukel, V., Walzel, P.: *Vergleich von Methoden zur Pulsationsmessung an innenmischenden Zweistoffdüsen*, Chemie Ingenieur Technik, submitted, 2012.
- [114] Czichos, H.: *Hütte - Das Ingenieurwesen*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 2008.
- [115] Shannon, C. E.: *Communication in the presence of noise (Reprinted from the Proceedings of the IRE, vol 37, pg 10-21, 1949)*, Proceedings of the IEEE, 86 (2) 447-457, 1998.
- [116] Moody, F. J.: *Maximum Flow Rate of A Single Component 2-Phase Mixture*, Journal of Heat Transfer, 87 (1) 134-142, 1965.
- [117] Tewes, M., Peuker, U.: *Zerstäuben von Polymerlösungen unterschiedlicher Viskosität und Molekülmasse bei konditioniertem Zerstäubungsgas*, Proceedings Spray 2010, Heidelberg/D, 2010.
- [118] Rahman, M. A., Islam, M. R., Fleck, B. A., Matovic, D., Sanders, S.: *Scaling Of Effervescent Atomization And Two-Phase Flow*, Proceedings ILASS - Europe 2011, 24th Annual Conference on Liquid Atomization and Spray Systems, Estoril/PT, 2011.
- [119] Merkus, H. G.: *Particle Size Measurements- Fundamentals, Practice, Quality*, Springer, Dordrecht/NL, 2009.
- [120] Bohl, W., Elmendorf, W.: *Technische Strömungslehre : Stoffeigenschaften von Flüssigkeiten und Gasen, Hydrostatik, Aerostatik, inkompressible Strömungen, kompressible Strömungen, Strömungsmesstechnik*, Vogel, Würzburg/D, 2008.

Anhang 1: Zerstäuber

Für die Zerstäubung wurden zwei unterschiedliche „effervescent atomizer“ sowie ein herkömmlicher außenmischender pneumatischer Zerstäuber eingesetzt.



Abbildung A1.1: Fotos vom modularen (links) und kompakten (rechts) „effervescent atomizer“. Modularer Zerstäuber mit aufgesetzter Verschraubung der Düsenplatte – später zur besseren Beobachtung des Sprays versenkt.

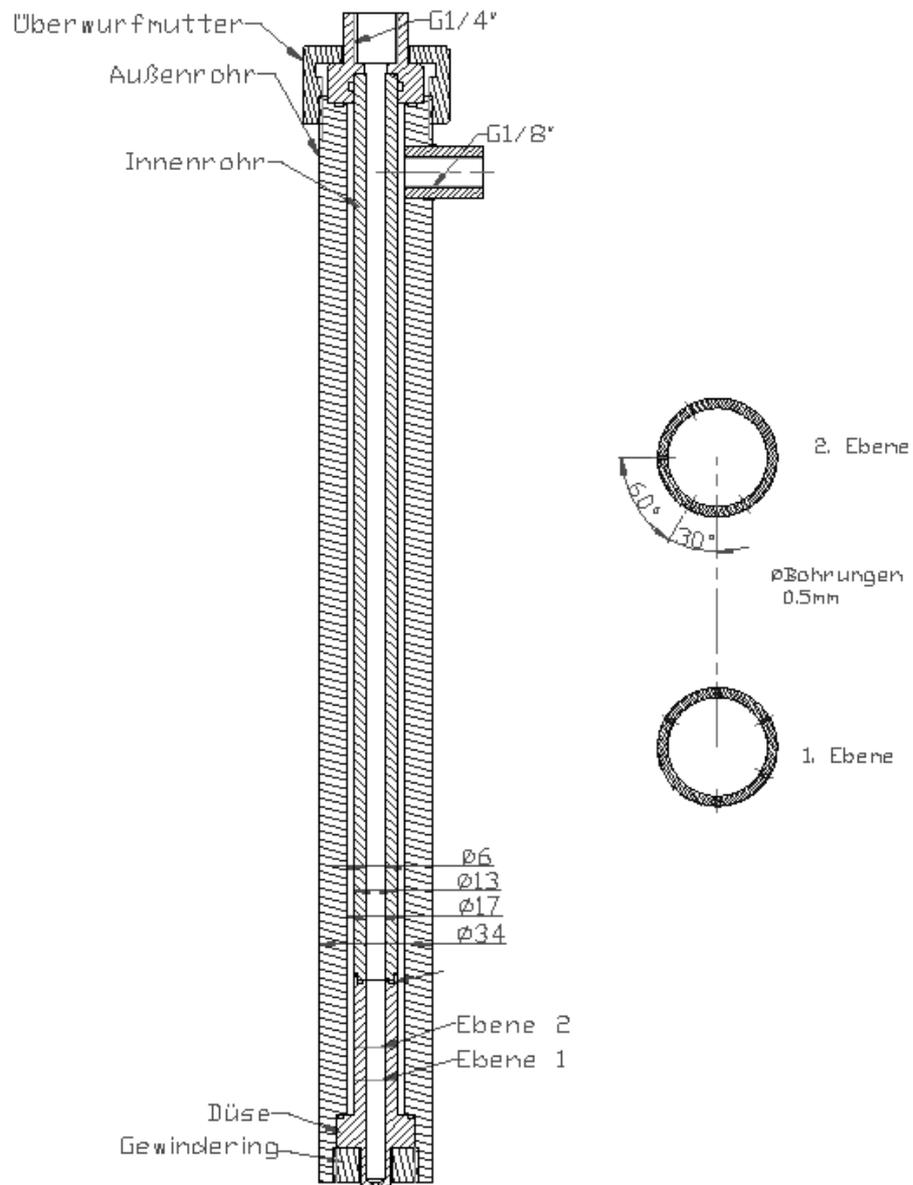


Abbildung A1.2: Konstruktionszeichnung kompakter „effervescent atomizer“ mit Düsengeometrie D15.

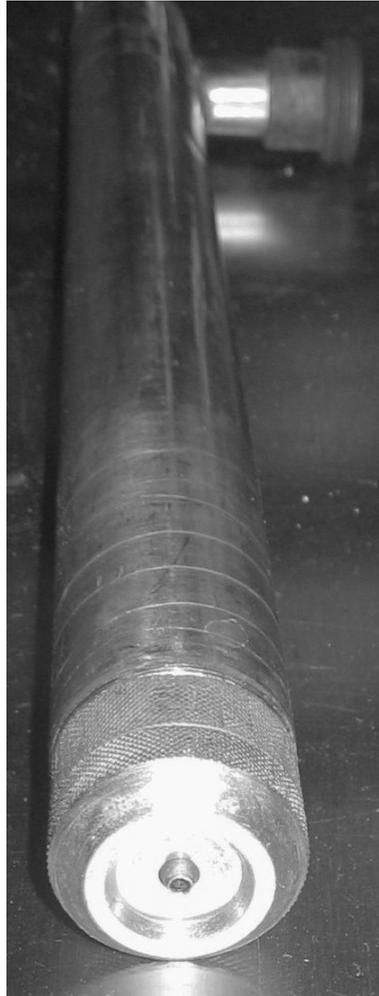


Abbildung A1.3: Foto von außenmischendem pneumatischem Zerstäuber.

Anhang 2: Laserbeugungsspektrometrie

Aufgrund von „beam steering“ kommt es bei der Messung mittels Laserbeugungsspektrometrie zu Verfälschungen des Signals aus dem die Spraytropfengrößenverteilung abgeleitet wird. Zur Korrektur wurden unterschiedliche Ansätze untersucht.

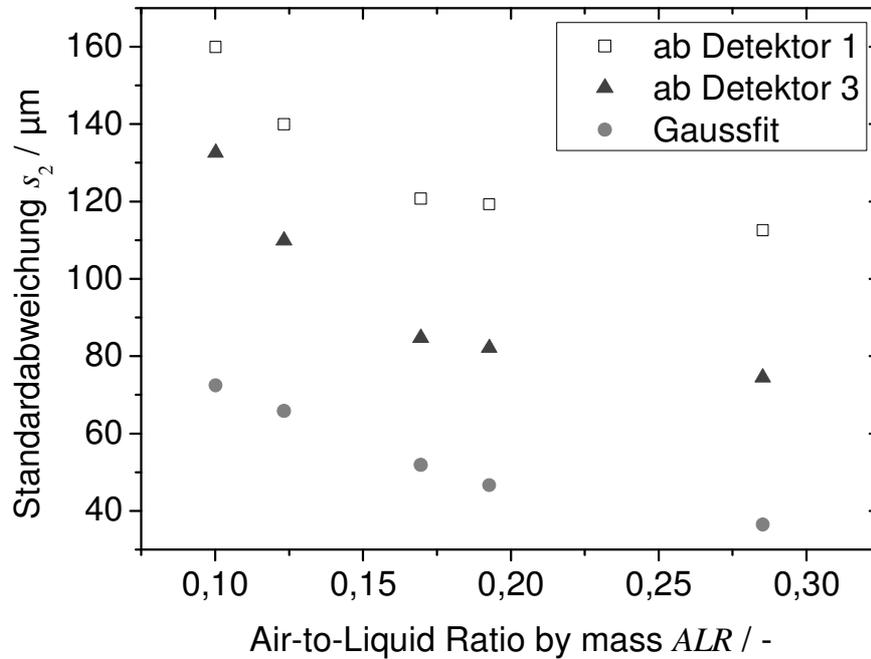


Abbildung A2.1: Vergleich der Standardabweichung s_2 bei Auswertung des Messsignals ab Detektor 1 (innerster Detektor), ab Detektor 3 und bei Korrekturberechnung mit angepasster Gaussfunktion für PVP K30 20 % (D15, nach Fraunhofer).

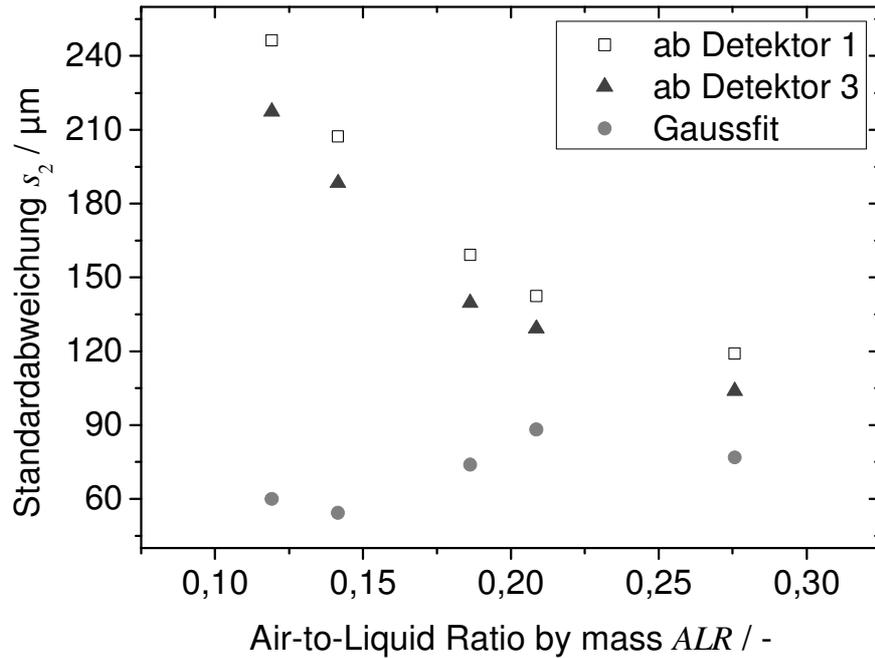


Abbildung A2.2: Vergleich der Standardabweichung s_2 bei Auswertung des Messsignals ab Detektor 1 (innerster Detektor), ab Detektor 3 und bei Korrekturberechnung mit angepasster Gaussfunktion für PVP K30 40 % (D15, nach Fraunhofer).

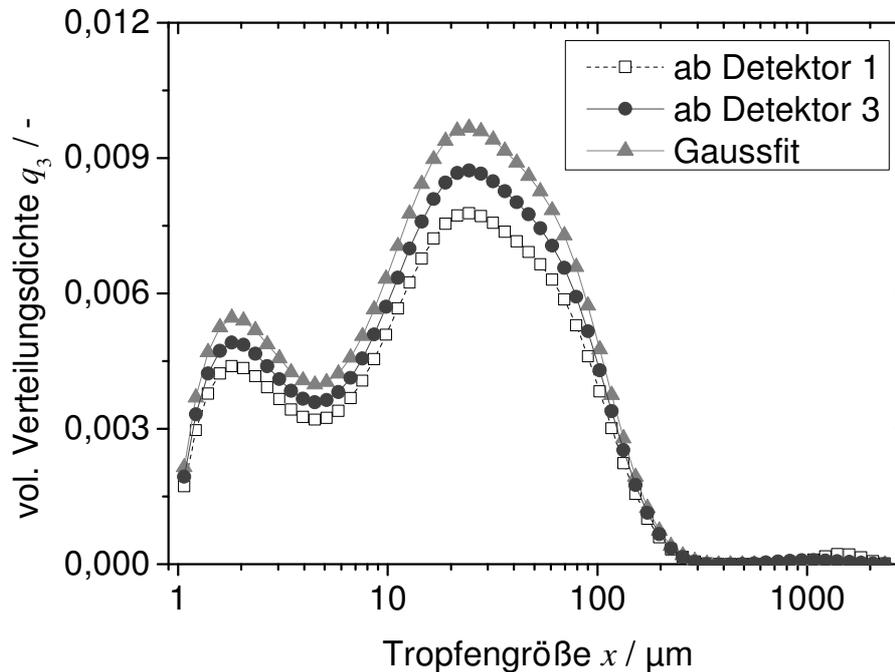


Abbildung A2.3: Volumenspezifische Verteilungssumme Q_3 und Verteilungsdichte q_3 bei Auswertung des Messsignals ab Detektor 1 (innerster Detektor), ab Detektor 3 und bei Korrekturberechnung mit angepasster Gaussfunktion für PVP K30 20 % (D15, $ALR = 0,29$, nach Fraunhofer).

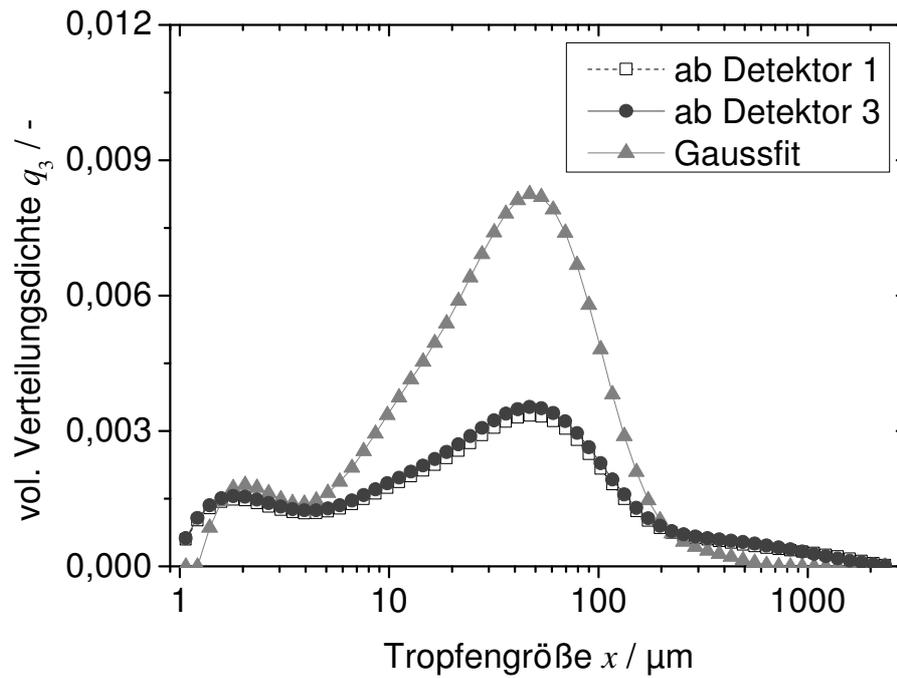


Abbildung A2.4: Volumenspezifische Verteilungssumme Q_3 und Verteilungsdichte q_3 bei Auswertung des Messsignals ab Detektor 1 (innerster Detektor), ab Detektor 3 und bei Korrekturberechnung mit angepasster Gaussfunktion für PVP K30 40 % (D15, $ALR = 0,14$, nach Fraunhofer).

Tabelle A2.1: Zuordnung der volumenspezifischen Mediandurchmesser $x_{50,3}$ (unter Annahme von Fraunhoferbeugung und Punktstrahler) zu den Detektoren des Malvern Spraytec bei Verwendung einer 750 mm Fourierlinse und resultierende maximale Arbeitsabstände nach Angaben des Herstellers.

Detektor	$x_{50,3}$ (ca.) / μm	Arbeitsabstand / mm
1	949	180556
2	798	151751
3	670	127451
4	563	107143
5	474	90069
6	398	75728
7	335	63725
8	282	53571
9	237	45035
10	199	37901
11	168	31863
12	141	26786
13	118	22530
14	100	18932
15	83,7	15925
16	70,4	13393
17	59,2	11259
18	49,8	9466
19	41,8	7958
20	35,2	6690
21	29,6	5623
22	24,8	4725
23	20,9	3969
24	17,6	3342
25	14,7	2798
26	12,3	2347
27	10,3	1966
28	8,65	1644
29	7,21	1372
30	6,00	1141
31	4,95	942
32	4,08	776
33	3,32	630

Anhang 3: Materialcharakterisierung

Materialcharakterisierungen der Modellsysteme über den Bereich der bei den Zerstäubungsversuchen eingesetzten Feststoffkonzentrationen hinaus.

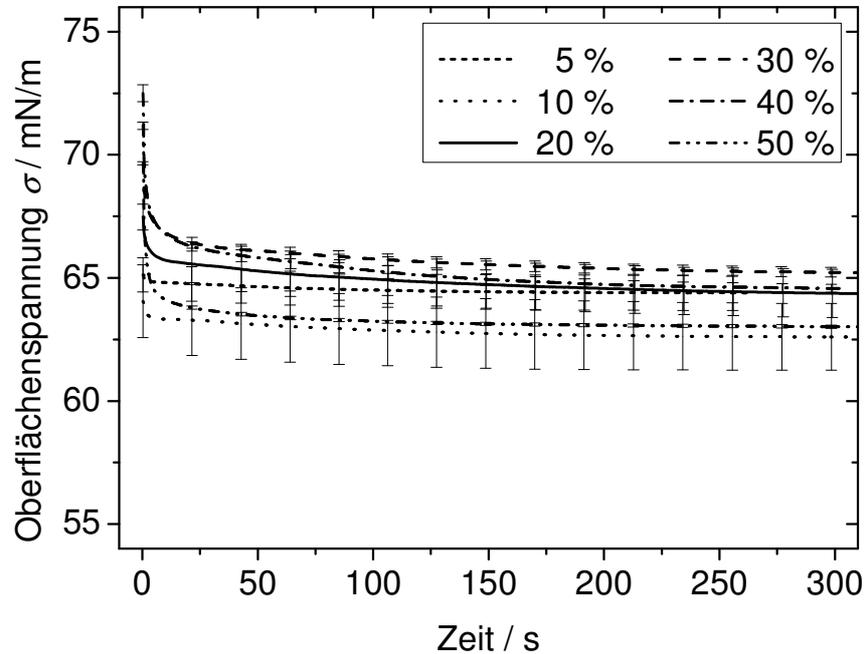


Abbildung A3.1: Verlauf der Oberflächenspannung in Abhängigkeit von der PVP-K30-Konzentration über den für die Sprayuntersuchungen eingesetzten Bereich hinaus.

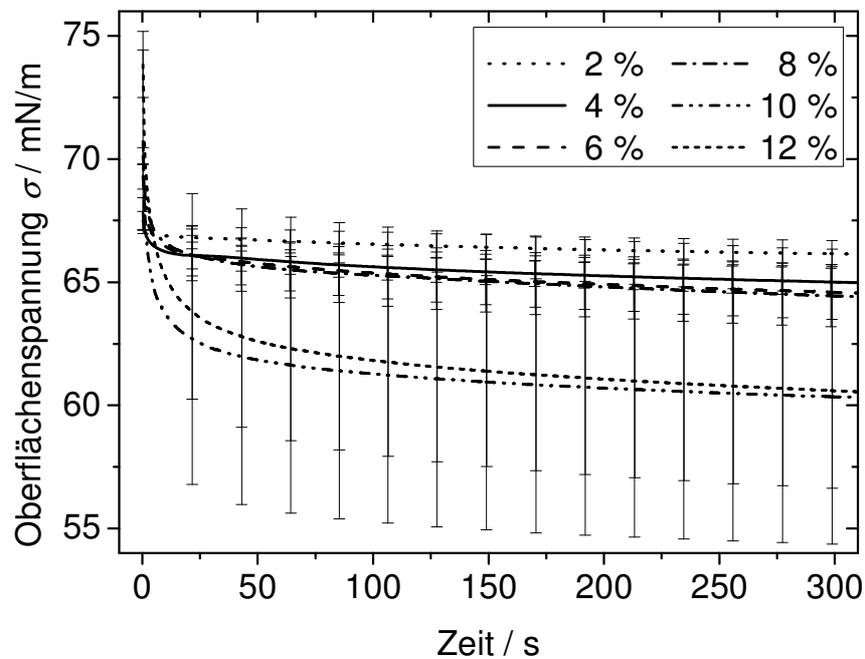


Abbildung A3.2: Verlauf der Oberflächenspannung in Abhängigkeit von der PVP-K90-Konzentration über den für die Sprayuntersuchungen eingesetzten Bereich hinaus.

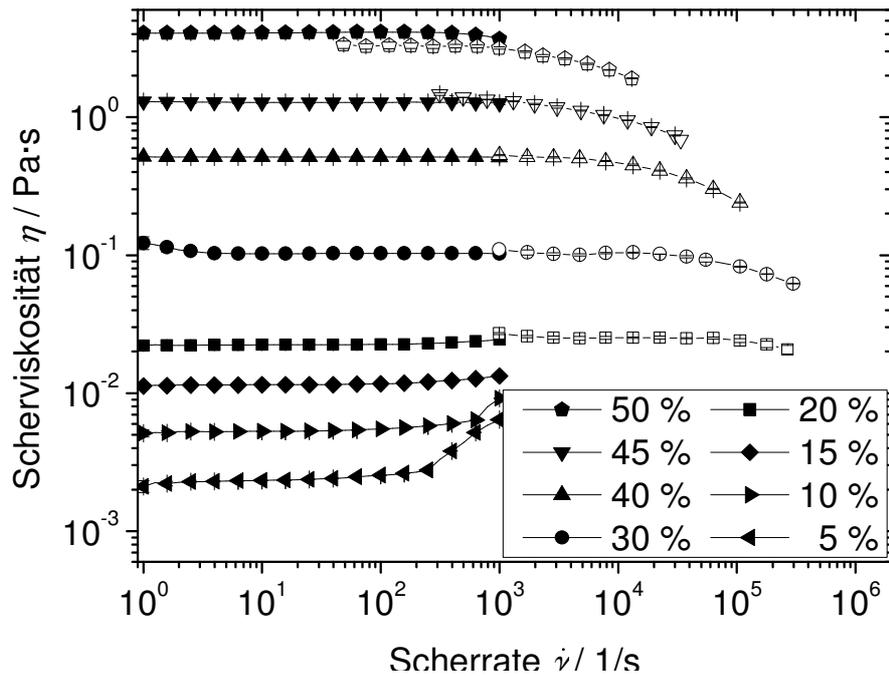


Abbildung A3.3: Scherviskosität in Abhängigkeit von der Scherrate und PVP-K30-Konzentration über den für die Sprayuntersuchungen eingesetzten Bereich hinaus. Geschlossene Punkte mittels Rotationsrheometer gemessen, offene Punkte mittels Kapillarrheometer. Anstieg in Viskosität für 5 bis 15 % zwischen 100 und 1000 1/s ist auf Taylorwirbel zurückzuführen.

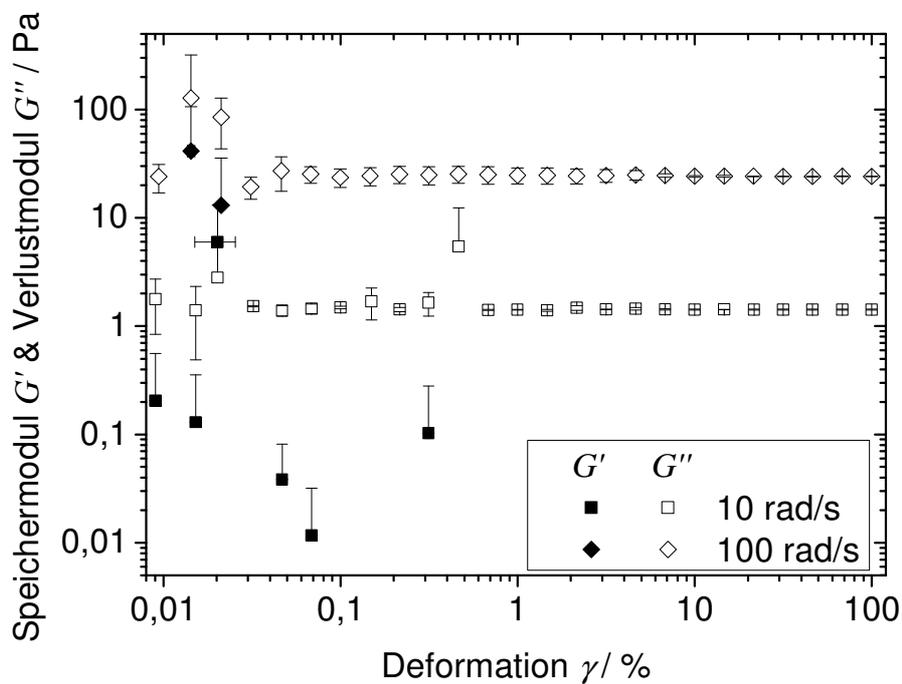


Abbildung A3.4: Oszillatorische Messung von PVP K90 8 %, Amplitudensweep bei 10 und 100 rad/s.

Anhang 4: Spraymorphologie

Ergänzende Abbildungen zur Diskussion der Ergebnisse in den Kapiteln 6.1 bis 6.4.

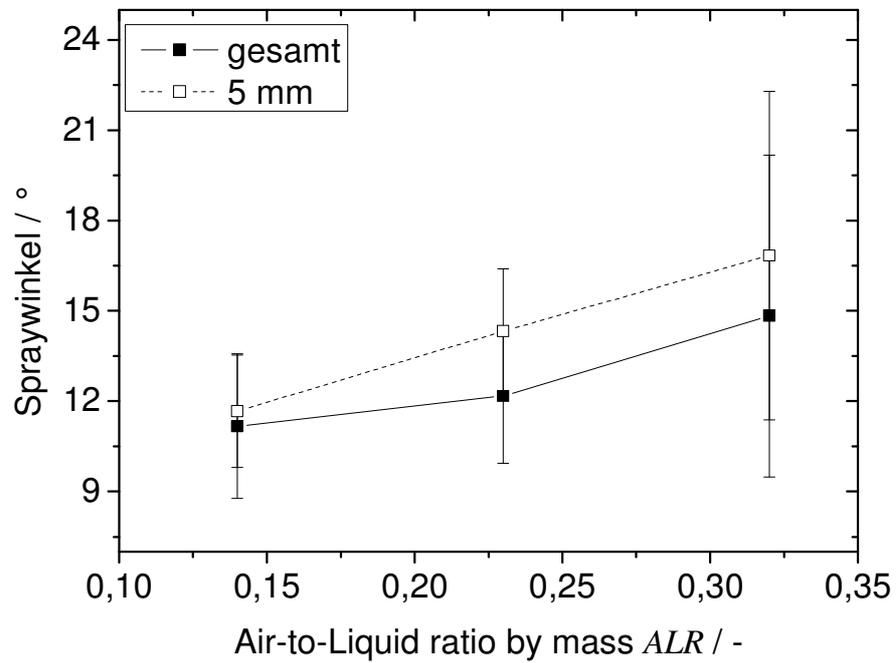


Abbildung A4.1: Vergleich der gemittelten Spraywinkel der Düsengeometrien D15, D30, D45, D60, D150 und D15 fein für Auswertung des gesamten Sprayprofils und bei 5 mm Abstand zum Zerstäuber (PVP K30 20 %).

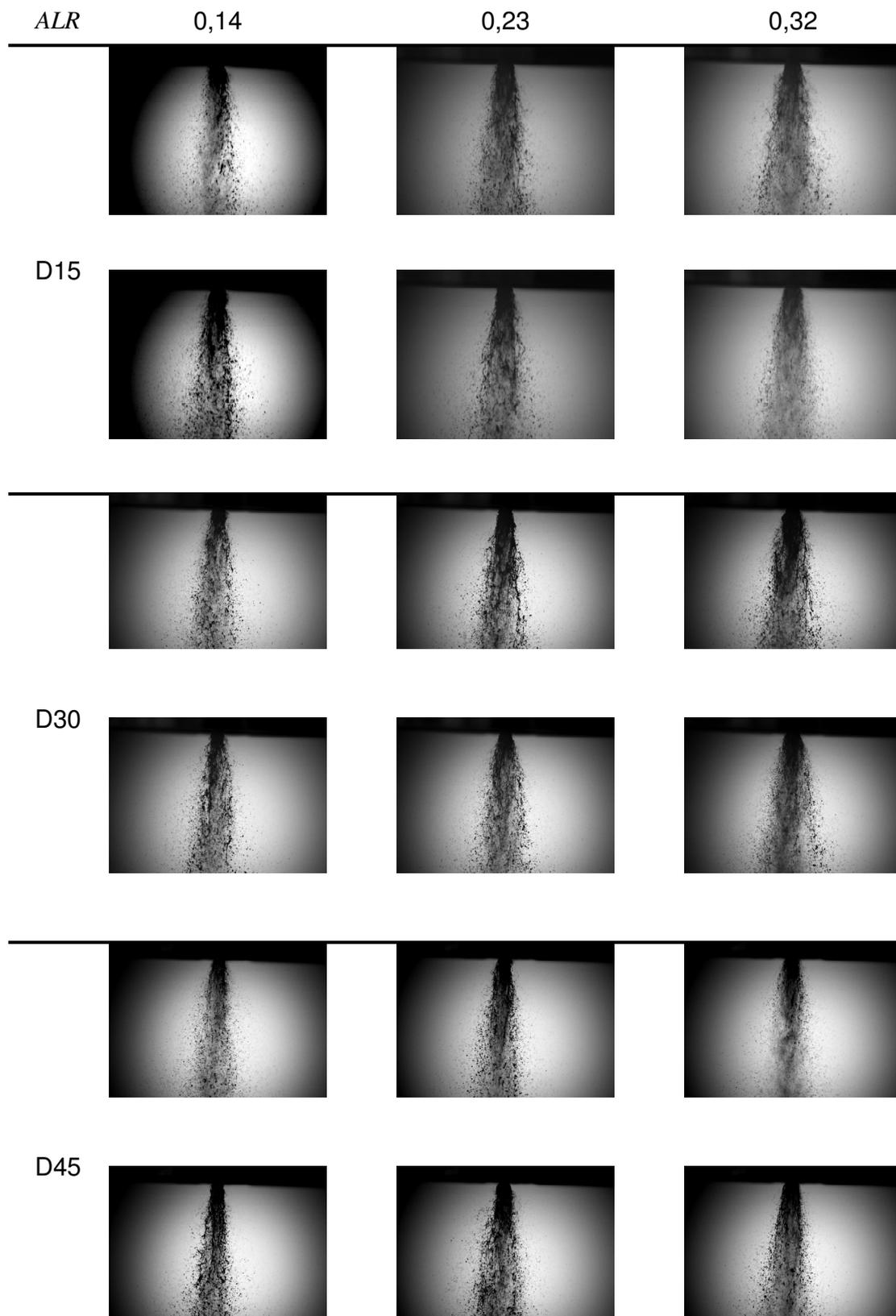


Abbildung A4.2: Schattenaufnahmen der „effervescent atomization“ von PVP-K30-Lösungen mit einer Konzentration von 20 % für unterschiedliche *ALR* und mit unterschiedlichen Düsengeometrien (D15, D30, D45). Je zwei Aufnahmen für jeden *ALR*.

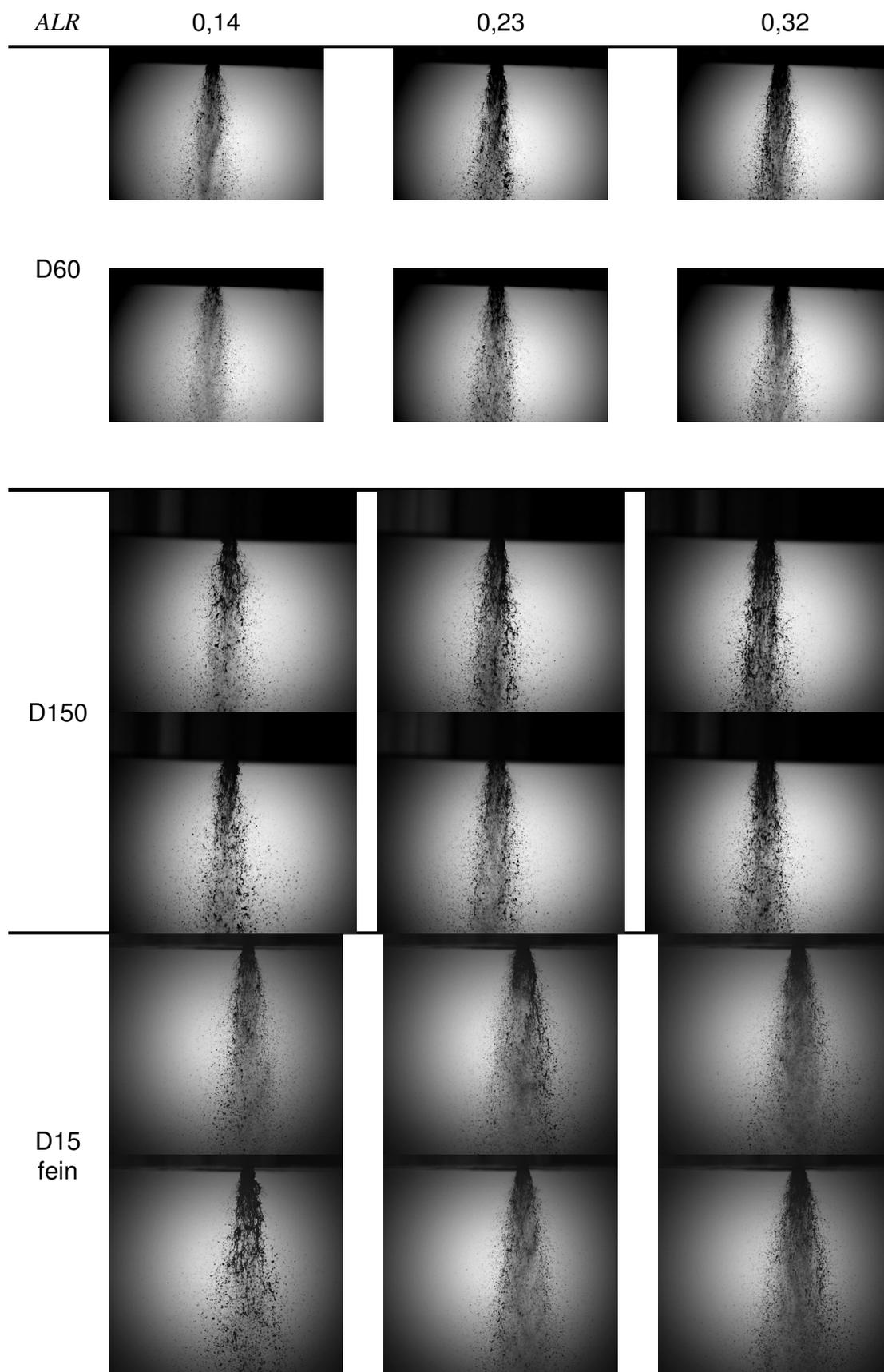


Abbildung A4.3: Schattenaufnahmen der „effervescent atomization“ von PVP-K30-Lösungen mit einer Konzentration von 20 % für unterschiedliche ALR und mit unterschiedlichen Düsengeometrien (D60, D150, D15 fein). Je zwei Aufnahmen für jeden ALR .

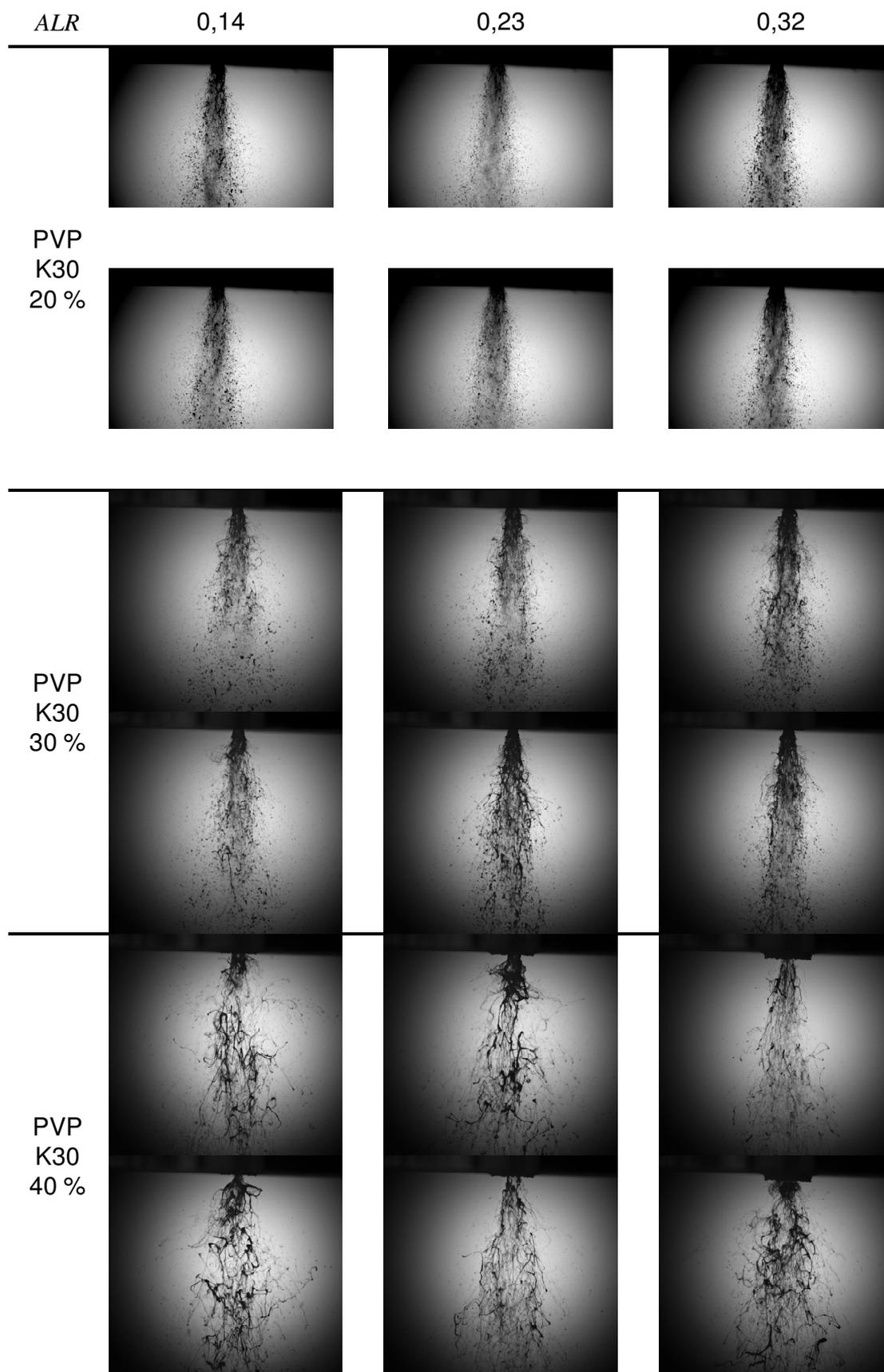


Abbildung A4.4: Schattenaufnahmen der „effervescent atomization“ von PVP-K30-Lösungen unterschiedlicher Konzentration für unterschiedliche *ALR* (D60). Je zwei Aufnahmen für jeden *ALR*.

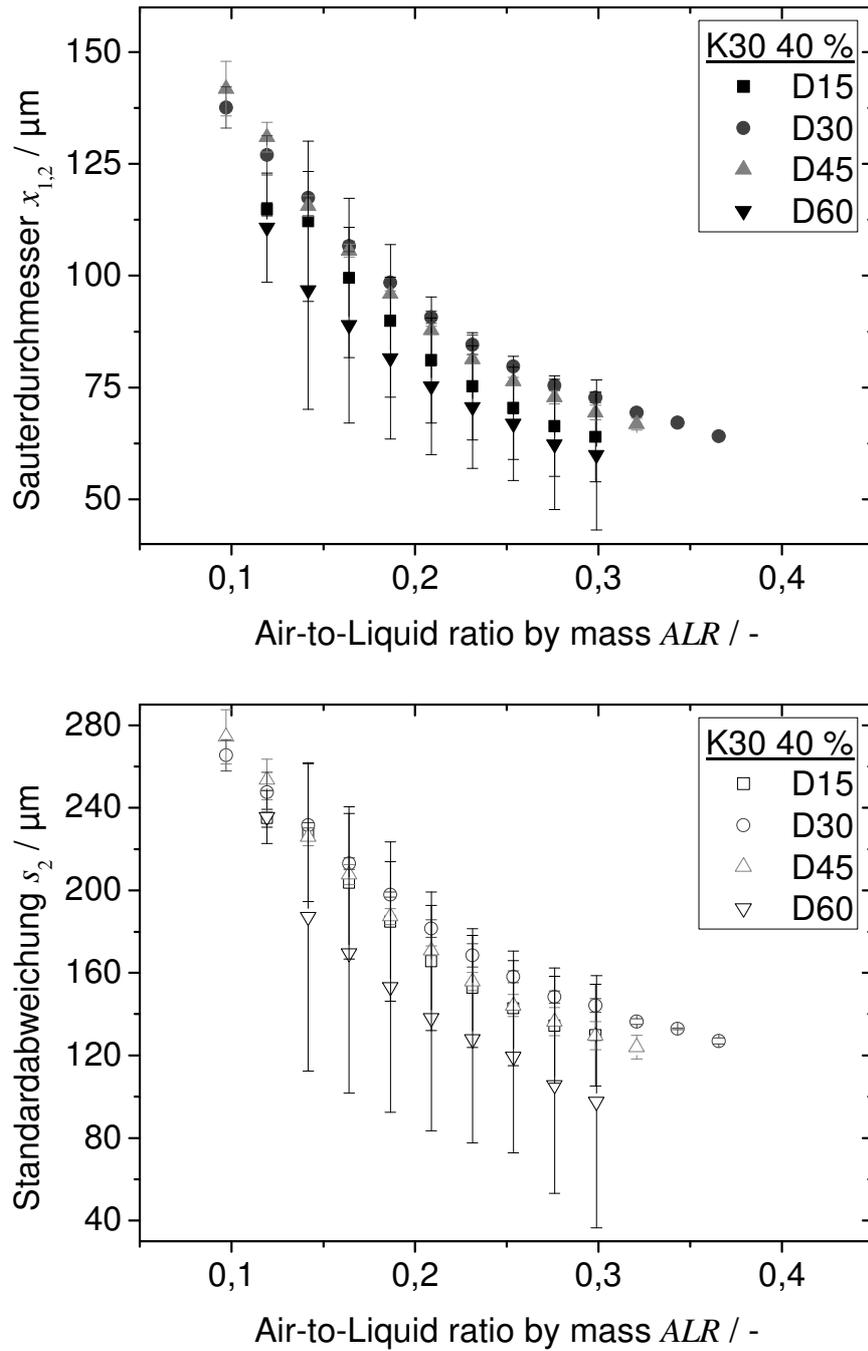


Abbildung A4.5: Sauterdurchmesser (oben) und Standardabweichung s_2 (unten) für Düsen-geometrien mit unterschiedlicher Düsenlänge in Abhängigkeit vom ALR (PVP K30 40 %).

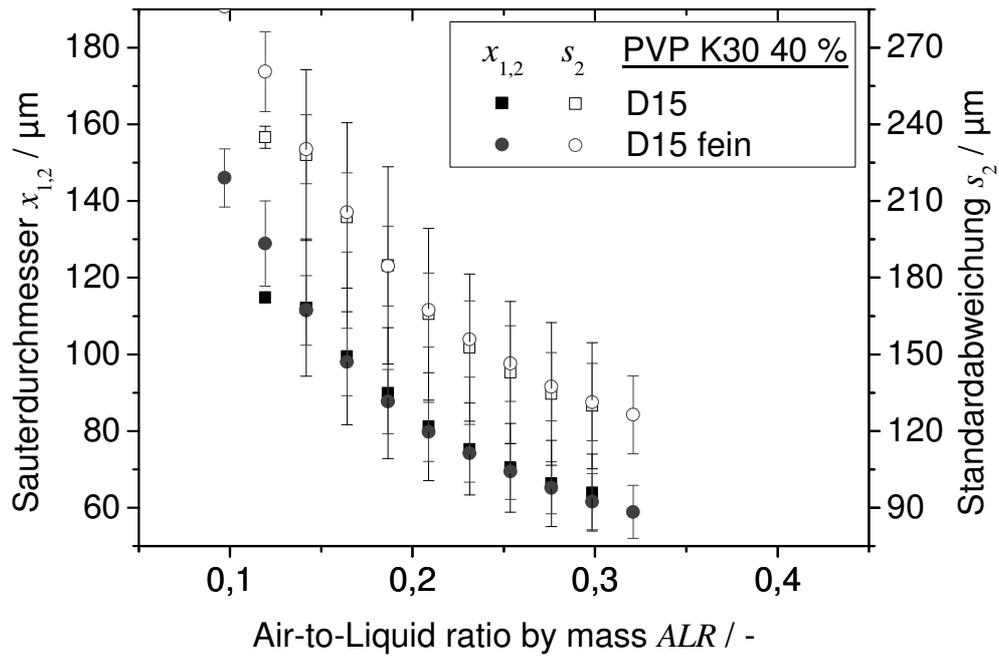


Abbildung A4.6: Sauterdurchmesser und Standardabweichung s_2 für Düsengeometrien mit unterschiedlicher Gasinjektionsgeometrie in Abhängigkeit vom ALR (PVP K30 40 %).

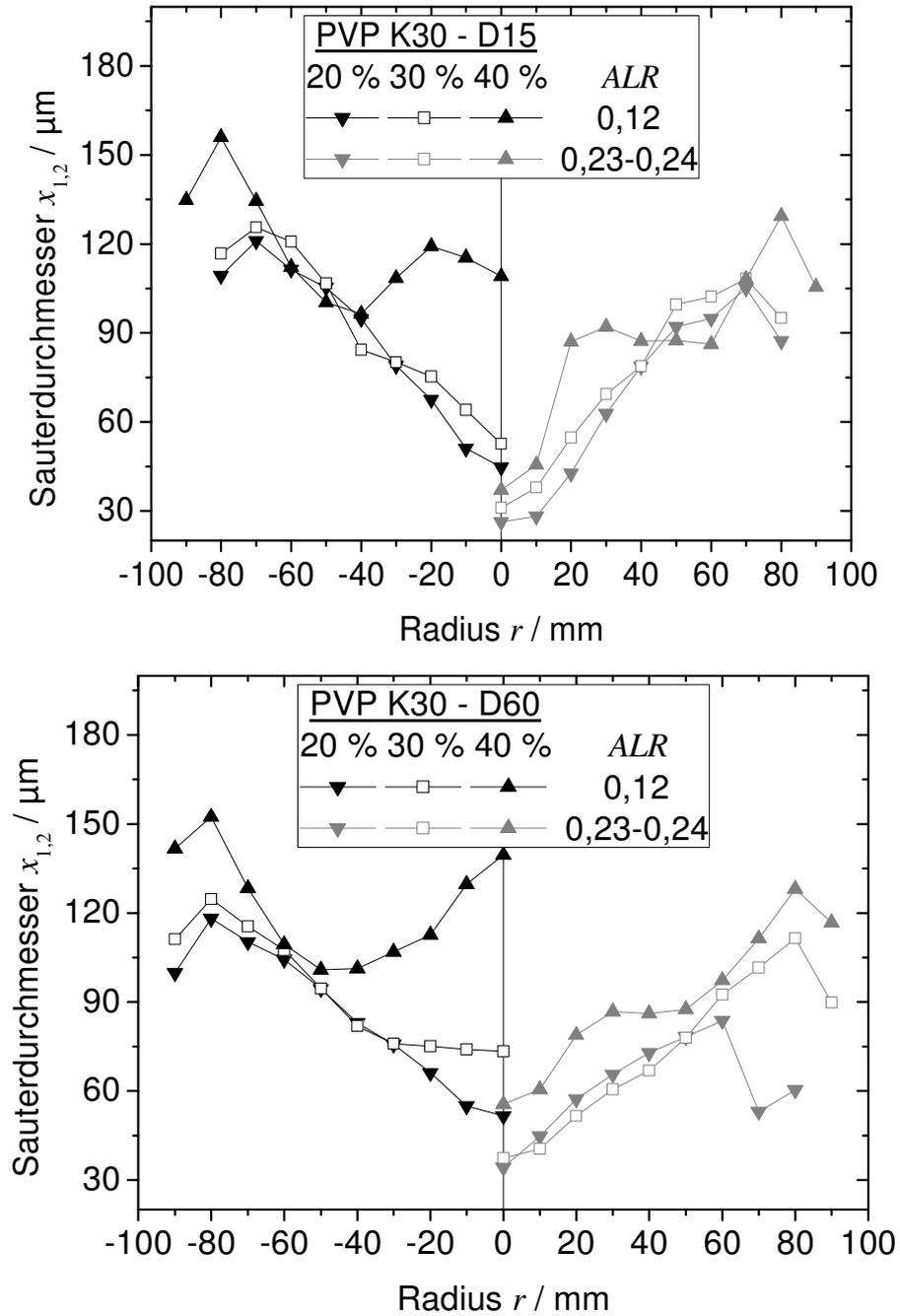


Abbildung A4.7: Radiale Verteilung des Sauterdurchmessers in Abhängigkeit von Konzentration und ALR für Düsengeometrie D15 (oben) und D60 (unten) (PVP K30).

Anhang 5: Tropfengrößenmessung

Tabelle A5.1: Vergleich der mit Hilfe von Schattenaufnahmen und Laserbeugungsspektrometrie (LBS) gemessenen Tropfengröße bei 90 % der volumenspezifischen Verteilungssumme $x_{90,3}$ und die maximale Tropfengröße x_{max} für PVP K30 20 % und PVP K30 8 % bei konstanter Düsengeometrie in Abhängigkeit vom ALR . Anzahl der beobachteten Tropfen für jeweils 500 ausgewertete Schattenaufnahmen (D15).

		Schattenaufnahmen						LBS	
Abstand		12,5 cm			25,0 cm			25,0 cm	
PVP	ALR / -	$x_{90,3}$ / μm	x_{max} / μm	Anzahl / -	$x_{90,3}$ / μm	x_{max} / μm	Anzahl / -	ALR / -	$x_{90,3}$ / μm
K30 20 %	0,14	547,8	1184,2	15870	466,9	676,6	1647	0,15	395,3
	0,23	411,5	843,3	7360	387,1	556,2	225	0,25	286,0
	0,32	380,7	689,8	4519	350,0	401,4	59	0,33	203,1
K90 8 %	0,14	880,5	1628,4	9244	1055,9	1936,3	8173	0,15	1775,3
	0,23	731,6	1644,6	6539	750,5	1674,3	7029	0,25	1592,3
	0,32	649,5	1457,9	5397	655,3	1181,4	6603	0,35	1425,0

In Tabelle A5.1 sind die Kenngrößen $x_{90,3}$ (Tropfengröße bei 90 % der volumenspezifischen Verteilungssumme) und x_{max} (maximale gemessene Tropfengröße) der anhand von Schattenaufnahmen (Umrechnung der Projektionsfläche auf Kreisfläche) und mittels Laserbeugungsspektrometrie (Annahme vollständiger Sphärizität) bestimmten Tropfengrößenverteilungen für eine 20 %ige PVP-K30- und eine 8 %ige PVP-K90-Lösungen zu sehen. Aufgrund der unterschiedlichen Untergrenzen des Messbereichs ist ein Vergleich von anderen Kenngrößen wie dem Sauterdurchmesser oder dem volumenspezifischen Mediandurchmesser nicht sinnvoll. Die Kenngröße x_{max} wird durch einzelne, sehr große Tropfen beeinflusst. Sie soll nur zur allgemeinen Orientierung dienen und wird nicht weiter diskutiert. Für beide Stoffsysteme und alle Messpositionen und -systeme sinkt mit steigendem ALR die Kenngröße $x_{90,3}$. Es zeigt sich aber auch eine Veränderung der Werte zwischen den Messpositionen und -systemen:

- Bei gleichem Abstand ergeben sich für die PVP-K30-Lösung anhand der Schattenaufnahmen größere Werte als mit dem Laserbeugungsspektrometer. Für PVP-K90-Lösung ist hingegen ein gegenteiliger Trend erkennbar.
- Mit steigendem Abstand zum Zerstäuber wird ein konstantes oder kleiner werdendes $x_{90,3}$ erwartet, da gegebenenfalls auftretender Aufbruch (primär –

siehe Abbildung 6.5 und Abbildung 6.6 in Kapitel 6.2 – oder sekundär) gegenüber Koaleszenz überwiegen sollte. Dies trifft für die PVP-K30-Lösung zu, aber für die PVP-K90-Lösung wird für einen ALR von 0,14 ein Anstieg um $175\ \mu\text{m}$ beobachtet. Bei höherem ALR sind die Werte annähernd konstant.

Diese Beobachtungen lassen sich wie folgt erklären:

- Feine Tropfen, die vom Laserbeugungsspektrometer noch detektiert werden (minimal $2\ \mu\text{m}$), können anhand der Schattenaufnahmen aufgrund optischer Limitierungen nicht mehr erfasst werden (minimal $200\ \mu\text{m}$). Die starke Verringerung der Anzahl erfasster Tropfen mit steigendem Abstand deutet hierauf hin. Dadurch ergibt sich für die gleiche Tropfengrößenverteilung eine Verschiebung der Kenngrößen, was bei gleichem Abstand den Unterschied zwischen den beiden Messsystemen für die PVP-K30-Lösung erklärt.
- Volumenspezifische Tropfengrößenverteilungen werden stark durch große Tropfen beeinflusst. Daher ist es möglich, dass der Anstieg von $x_{90,3}$ für die PVP-K90-Lösung bei einem ALR von 0,14 auf einzelne große Flüssigkeitsfragmente zurückzuführen ist, worauf auch der Anstieg der Kenngröße x_{max} hindeutet, da die Kenngrößen für höhere ALR -Werte nur minimal ansteigen.
- Bei der Auswertung der Schattenaufnahmen wird die Projektionsfläche in Kugelform umgerechnet und der korrespondierende Durchmesser angegeben, wohingegen bei der Laserbeugungsspektrometrie abhängig von der Ausrichtung eines nichtsphärischen Flüssigkeitsfragments durch Annahme von Sphärizität der Durchmesser unter- oder überschätzt wird, was zur Aufweitung der Verteilung führt [119(279)]. Dies führt zu einer Überschätzung des $x_{90,3}$; mittlere Tropfengrößen wie beispielsweise der Sauterdurchmesser werden davon weniger stark beeinflusst.

Aus den genannten Punkten lässt sich folgern, dass für einen unvollständigen Tropfenaufbruch bei einem Abstand von $25,0\ \text{cm}$ – bei dem mittels Laserbeugungsspektrometrie gemessen wird – von einer Überschätzung der Breite der Tropfengrößenverteilung und der davon abgeleiteten Standardabweichung s_2 auszugehen ist. Der Sauterdurchmesser wird in diesem Fall ebenfalls beeinflusst, aber es wird nur eine geringer Fehler erwartet. Es ist davon auszugehen, dass dies für hohe Konzentrationen bei PVP-K90-Lösungen und 45 %ige PVP-K30-Lösungen der Fall ist. Es ist aber davon auszugehen, dass die grundsätzlichen Aussagen in dieser Arbeit nicht beeinträchtigt werden.

Anhang 6: Pulsationsbestimmung

Zum Vergleich der Auswertung mittels Anpassung einer Sinusfunktion an Kenngrößen der Spraytropfengrößenmessung mittels Laserbeugungsspektrometrie wurden die Daten mittels schneller Fourier-Transformation ausgewertet.

Tabelle A6.1: Exemplarischer Vergleich der mittels Anpassung einer Sinusfunktion und schneller Fourier-Transformation ermittelten Pulsationsfrequenzen des Sprays für Kenngrößen der Tropfengrößenverteilungsmessung und deren Mittelwerte.

PVP	c _{PVP}	Düse	ALR	Anpassung Sinusfunktion (Sinus)					schnelle Fourier-Transformation (FFT)					STABW (Sinus,FFT)					MW				
				T	x _{1,2}	x _{10,3}	x _{50,3}	x _{90,3}	T	x _{1,2}	x _{10,3}	x _{50,3}	x _{90,3}	MW	STABW	T	x _{1,2}	x _{10,3}		x _{50,3}	x _{90,3}		
K30	20	D15	0,14	5,94	5,94	5,94	5,94	5,93	5,94	0,00	5,92	5,95	5,95	5,92	5,92	5,93	0,02	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,00
K30	20	D15	0,14	6,27	6,26	6,26	6,27	6,27	6,27	0,00	6,26	6,26	6,26	6,26	6,26	6,26	0,00	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,00
K30	20	D15	0,14	6,46	6,46	6,46	6,46	6,46	6,46	0,00	6,47	6,47	6,47	6,47	6,47	6,47	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
K30	20	D15	0,23	7,04	7,04	7,04	7,03	7,04	7,04	0,00	7,05	7,02	7,02	7,02	7,05	7,03	0,02	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,00
K30	20	D15	0,23	7,79	7,79	7,79	7,79	7,79	7,79	0,00	7,78	7,78	7,78	7,78	7,78	7,78	0,00	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,00
K30	20	D15	0,23	7,90	7,90	7,90	7,95	7,90	7,91	0,02	7,90	7,90	7,90	7,90	7,90	7,90	0,00	0,00	0,00	0,00	0,03	0,00	0,00
K30	20	D15	0,32	8,59	8,59	8,59	8,59	8,59	8,59	0,00	8,58	8,58	8,58	8,58	8,58	8,58	0,00	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01
K30	20	D15	0,32	8,93	8,93	8,93	8,93	8,94	8,94	0,00	8,94	8,94	8,94	8,94	8,94	8,94	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
K30	20	D15	0,32	8,93	8,93	8,93	8,93	8,94	8,94	0,00	9,09	9,09	9,09	9,09	9,09	9,09	0,00	0,11	0,11	0,11	0,11	0,11	0,11
K30	20	D60	0,14	7,03	7,03	7,03	7,03	7,03	7,03	0,00	7,02	7,02	7,02	7,02	7,02	7,02	0,00	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01
K30	20	D60	0,14	7,19	7,19	7,19	7,19	7,19	7,19	0,00	7,20	7,20	7,20	7,20	7,20	7,20	0,00	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01
K30	20	D60	0,14	7,38	7,39	7,39	7,39	7,38	7,38	0,00	7,39	7,39	7,39	7,39	7,39	7,39	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
K30	20	D60	0,23	8,64	8,64	8,64	8,64	8,64	8,64	0,00	8,64	8,64	8,64	8,64	8,64	8,64	0,00	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01
K30	20	D60	0,23	8,89	8,89	8,98	8,89	8,89	8,91	0,04	8,88	8,88	8,88	8,88	8,88	8,88	0,00	0,01	0,01	0,07	0,01	0,01	0,02
K30	20	D60	0,23	8,96	8,96	8,96	8,96	8,96	8,96	0,00	8,94	8,97	8,97	8,97	8,97	8,97	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01
K30	20	D60	0,32	9,69	9,70	9,69	9,76	9,69	9,71	0,03	9,70	9,70	9,70	9,70	9,70	9,70	0,00	0,01	0,01	0,01	0,04	0,01	0,00
K30	20	D60	0,32	9,92	9,92	9,92	9,92	9,91	9,92	0,00	9,92	9,92	9,92	9,92	9,92	9,92	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
K30	20	D60	0,32	10,00	10,01	10,01	10,01	10,08	10,02	0,03	10,01	10,01	10,01	10,01	10,01	10,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,05	0,01
K30	30	D15	0,14	0,00	66,23	66,23	66,23	0,03	39,74	36,26	1,50	66,25	31,07	66,25	2,14	33,44	32,25	45,77	0,02	24,86	0,02	1,49	4,46
K30	30	D15	0,14	0,00	7,37	7,37	7,37	7,44	5,91	3,30	1,62	7,39	7,39	7,39	7,39	6,23	2,58	4,07	0,01	0,01	0,01	0,04	0,23
K30	30	D15	0,14	4,16	66,58	66,58	66,58	51,23	51,02	27,03	1,50	66,56	59,66	66,56	51,21	49,10	27,35	46,02	0,01	4,89	0,01	0,01	1,36
K30	30	D15	0,23	5,28	7,56	7,56	7,56	0,11	5,62	3,23	1,50	2,62	2,62	1,59	2,26	2,12	0,55	4,29	3,49	3,49	4,23	1,52	2,47
K30	30	D15	0,23	0,00	9,39	9,39	9,24	9,51	7,51	4,20	1,50	9,19	9,19	9,19	9,52	7,71	3,48	5,58	0,15	0,15	0,04	0,00	0,15
K30	30	D15	0,23	9,16	9,16	9,16	9,16	9,16	9,16	0,00	1,50	9,16	9,16	9,16	9,16	7,62	3,43	5,42	0,01	0,01	0,00	0,00	1,09
K30	30	D15	0,32	7,01	0,21	10,34	83,19	0,12	20,18	35,50	1,50	1,62	10,35	1,62	3,51	3,72	3,80	0,91	1,00	0,00	57,68	2,39	11,64
K30	30	D15	0,32	0,03	10,09	10,09	36,42	0,13	11,35	14,88	1,62	1,89	1,89	1,86	5,46	2,55	1,63	5,99	5,79	5,79	24,43	3,77	6,23
K30	30	D15	0,32	2,92	64,43	0,00	64,43	0,32	26,42	34,72	1,62	1,62	1,62	1,62	1,80	1,65	0,08	44,42	44,42	1,14	44,42	1,05	17,51
K30	30	D60	0,14	0,05	43,07	43,07	41,08	60,61	37,57	22,42	1,50	64,79	56,88	64,79	64,48	50,49	27,60	29,40	15,36	9,77	16,76	2,74	9,13
K30	30	D60	0,14	5,39	9,17	56,05	68,40	0,16	27,83	31,86	1,62	65,19	65,19	52,34	71,23	51,11	28,51	5,34	39,61	6,46	11,36	50,25	16,46
K30	30	D60	0,14	14,23	11,60	11,60	63,13	11,00	22,31	22,85	1,50	10,74	10,74	11,60	64,67	19,85	25,39	7,14	0,61	0,61	36,44	37,95	1,74
K30	30	D60	0,23	0,91	39,68	39,90	20,73	0,02	20,25	19,67	1,62	1,62	1,62	1,62	11,66	3,63	4,49	26,92	26,92	27,07	13,51	8,23	11,75
K30	30	D60	0,23	3,15	68,59	68,68	25,43	0,06	33,18	33,81	1,50	1,50	1,50	1,50	2,47	1,69	0,44	47,44	47,44	47,51	16,93	1,70	22,27
K30	30	D60	0,23	0,04	12,36	12,37	12,36	0,05	7,44	6,75	1,62	12,36	12,36	12,36	13,21	10,38	4,91	7,60	0,00	0,01	0,00	9,31	2,08
K30	30	D60	0,32	0,47	49,55	49,55	37,68	0,14	27,48	25,28	1,50	1,62	1,62	1,62	1,50	1,57	0,07	33,98	33,90	33,90	25,50	0,96	18,32
K30	30	D60	0,32	0,27	0,09	6,80	41,60	0,14	9,78	18,02	1,50	1,50	1,50	1,59	1,89	1,59	0,17	1,00	1,00	3,75	28,29	1,24	5,79
K30	30	D60	0,32	0,03	22,81	22,94	54,70	0,05	20,11	22,46	1,50	1,50	1,98	1,59	6,44	2,60	2,16	15,07	15,07	14,82	37,56	4,52	12,38
K30	40	D15	0,14	1,25	37,26	77,76	37,26	55,01	41,71	28,08	1,50	58,90	58,90	54,35	38,42	42,41	24,37	25,29	15,30	13,34	12,09	11,73	0,50
K30	40	D15	0,14	2,97	65,45	50,51	70,13	70,03	51,81	28,46	1,50	65,40	47,82	65,40	50,96	46,22	26,27	45,22	0,03	1,90	3,34	13,48	3,96
K30	40	D15	0,14	0,00	57,94	57,94	54,35	57,87	45,62	25,55	1,50	37,26	77,76	71,38	54,99	48,58	30,65	39,91	14,62	14,02	12,04	2,03	2,09
K30	40	D15	0,23	0,00	0,02	0,02	84,60	45,50	26,03	38,21	1,50	84,66	48,86	84,66	93,75	62,68	38,29	1,05	59,85	34,53	0,04	34,12	25,92
K30	40	D15	0,23	14,22	14,22	14,32	14,23	14,22	14,25	0,04	1,62	14,22	14,22	14,22	14,22	11,70	5,64	8,91	0,00	0,07	0,01	0,00	1,80
K30	40	D15	0,23	4,03	12,76	12,76	12,76	89,93	26,45	35,69	1,50	12,76	12,76	12,42	90,00	25,89	36,16	7,97	0,00	0,00	0,24	0,05	0,40
K30	40	D15	0,32	0,01	55,07	55,07	74,52	108,70	58,67	39,43	1,50	55,08	55,08	55,08	77,33	48,82	28,15	37,88	0,01	0,01	13,74	22,18	6,97
K30	40	D15	0,32	0,14	13,97	13,97	13,97	13,97	11,21	6,19	1,62	13,98	13,98	13,98	13,98	11,51	5,53	8,74	0,00	0,00	0,00	0,00	0,21
K30	40	D15	0,32	0,32	12,03	12,03	12,02	12,48	9,77	5,29	1,50	12,02	12,02	12,02	12,02	9,92	4,71	7,45	0,00	0,00	0,00	0,32	0,10
K30	40	D60	0,14	0,07	53,76	53,76	53,36	53,36	42,87	23,92	1,50	61,49	61,49	61,49	61,49	49,49	26,83	36,96	5,47	5,47	5,75	5,75	4,69
K30	40	D60	0,14	0,00	53,88	46,64	53,88	53,88	41,66	23,50	1,50	54,20	53,10	56,30	54,20	43,86	23,71	37,04	0,23	4,57	1,72	0,23	1,56
K30	40	D60	0,14	0,08	48,31	64,94	72,25	72,25	51,57	30,40	1,62	60,52	60,52	67,75	72,24	52,53	28,89	33,02	8,63	3,12	3,19	0,01	0,68
K30	40	D60	0,14	51,28	13,00	13,00	13,00	32,18	24,49	17,13	1,50	13,00	13,00	13,00	32,17	14,53	11,04	8,13	0,00	0,00	0,00	0,01	7,04
K30	40	D60	0,23	57,08	13,48	13,48	13,48	13,48	22,20	19,50	1,62	13,21	13,21	13,21	13,21	10,89	5,19	8,39	0,19	0,19	0,19	0,19	7,99
K30	40	D60	0,23	0,04	65,53	14,38	65,53	65,53	42,20	32,34	1,50	14,37	14,37	14,37	65,55	22,03	24,96	45,28	36,17	0,01	36,17	0,01	14,26
K30	40	D60	0,23	0,28	16,44	44,33	15,11	80,65	31,36	31,82	1,62	15,11	12,82	15,11	15,11	11,95	5,86	10,48	0,94	22,28	0,00	46,34	13,72
K30	40	D60	0,23	66,58	12,97	12,97	13,24	13,24	23,80	23,91	1,50	12,97	12,97	12,97	13,24	10							

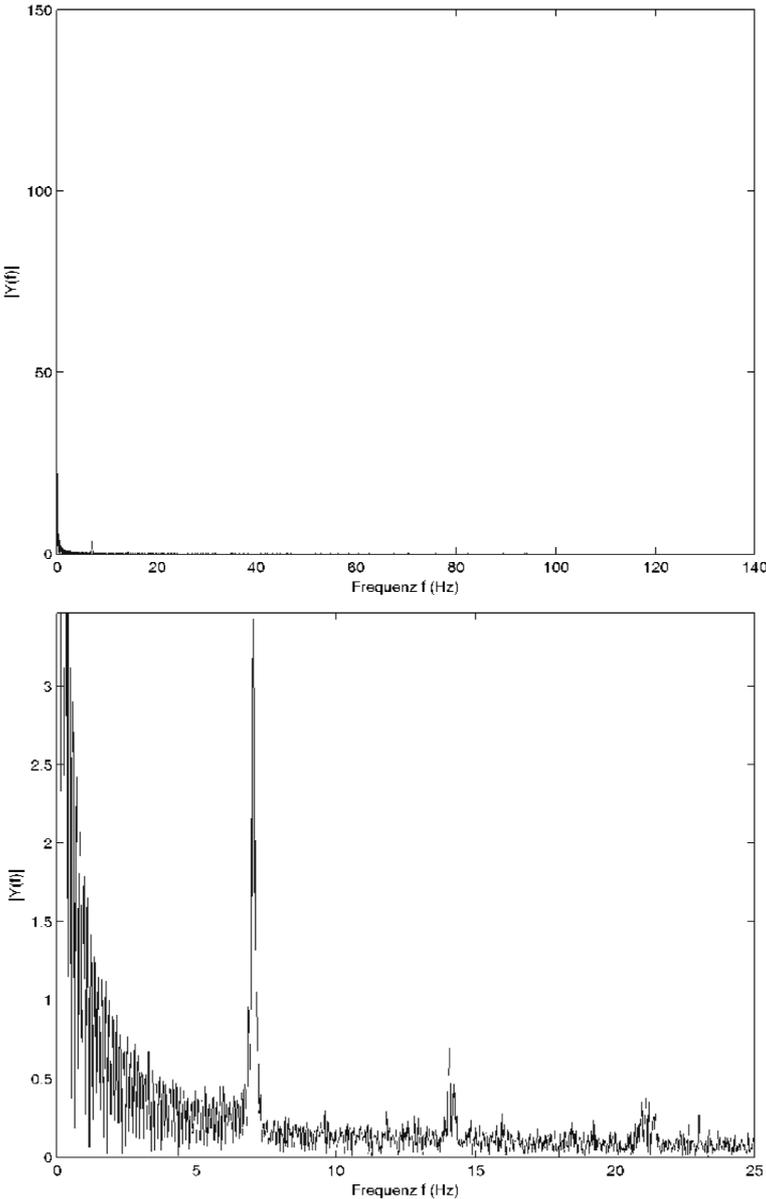


Abbildung A6.1: Exemplarische FFT-Frequenzanalyse des zeitlichen Verlaufs des Transmissionssignals (D15, PVP K30 20 %, ALR = 0, 23). Oben Gesamtverlauf, unten Teilausschnitt.

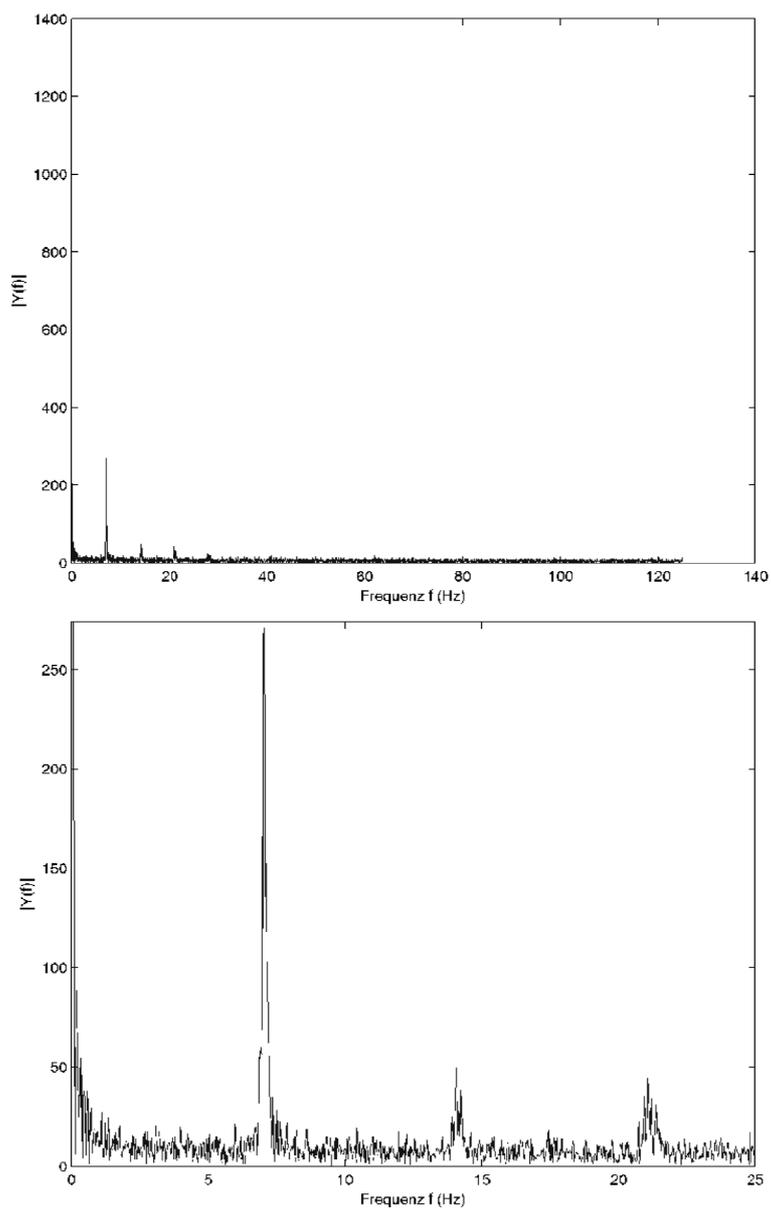


Abbildung A6.2: Exemplarische FFT-Frequenzanalyse des zeitlichen Verlaufs des $x_{50,3}$ -Signals (D15, PVP K30 20 %, $ALR = 0,23$). Oben Gesamtverlauf, unten Teilausschnitt.

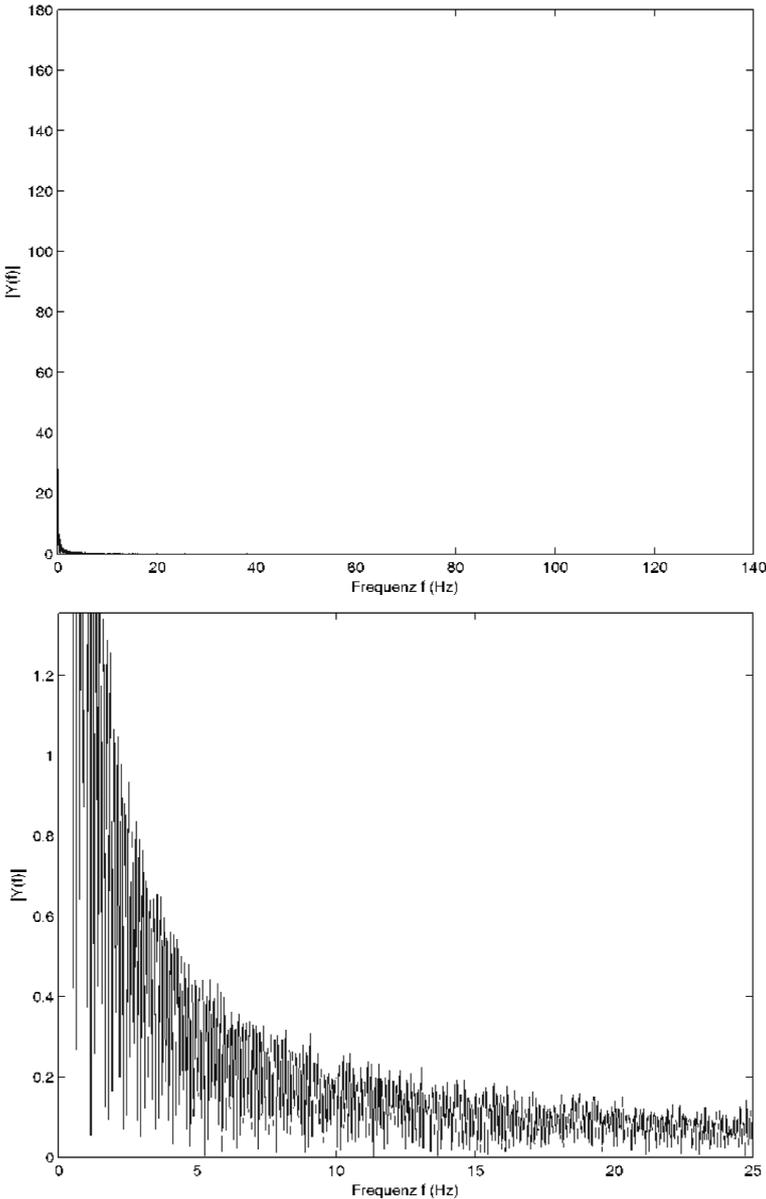


Abbildung A6.3: Exemplarische FFT-Frequenzanalyse des zeitlichen Verlaufs des Transmissionssignals (D60, PVP K30 40 %, $ALR = 0, 23$). Oben Gesamtverlauf, unten Teilausschnitt.

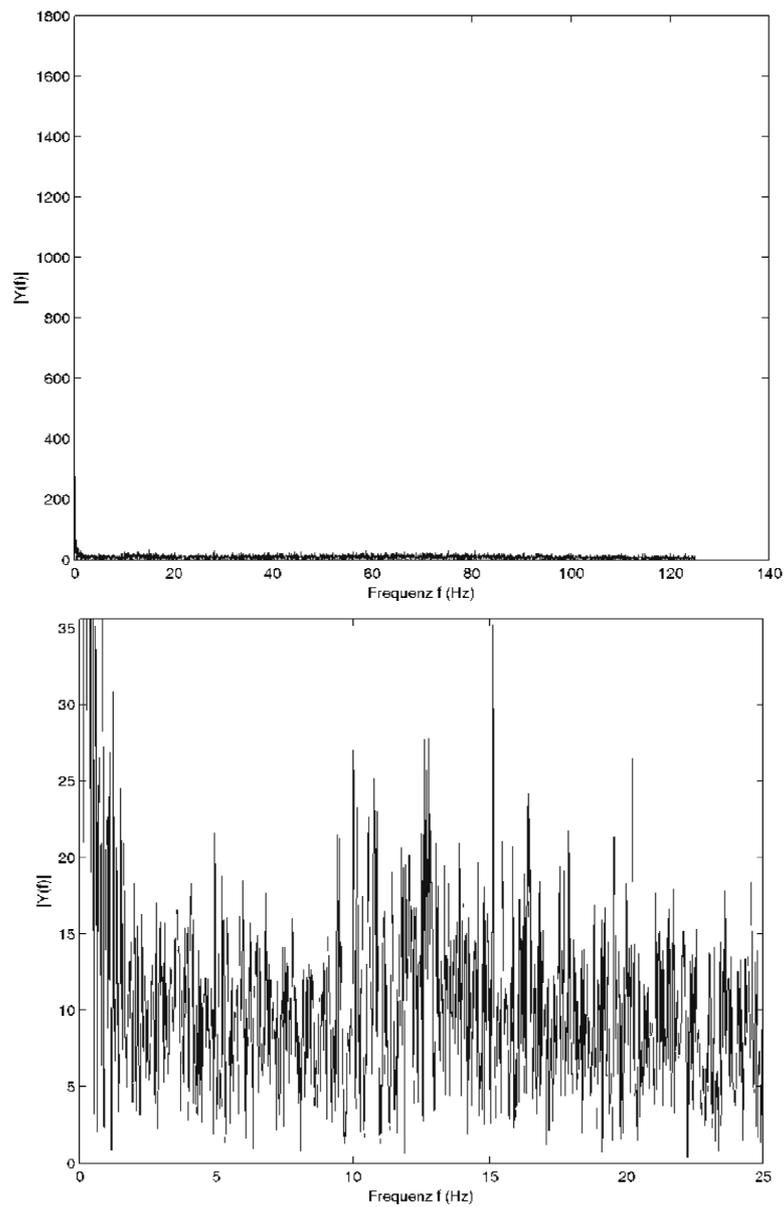


Abbildung A6.4: Exemplarische FFT-Frequenzanalyse des zeitlichen Verlaufs des $x_{50,3}$ -Signals (D60, PVP K30 40 %, $ALR = 0, 23$). Oben Gesamtverlauf, unten Teilausschnitt.

Anhang 7: Auswirkung der Unstetigkeit

Die Pulsationsfrequenz wurde mit den charakteristischen Kenngrößen der Spraytropfengrößenverteilung verglichen um die Auswirkungen der Unstetigkeit zu bewerten.

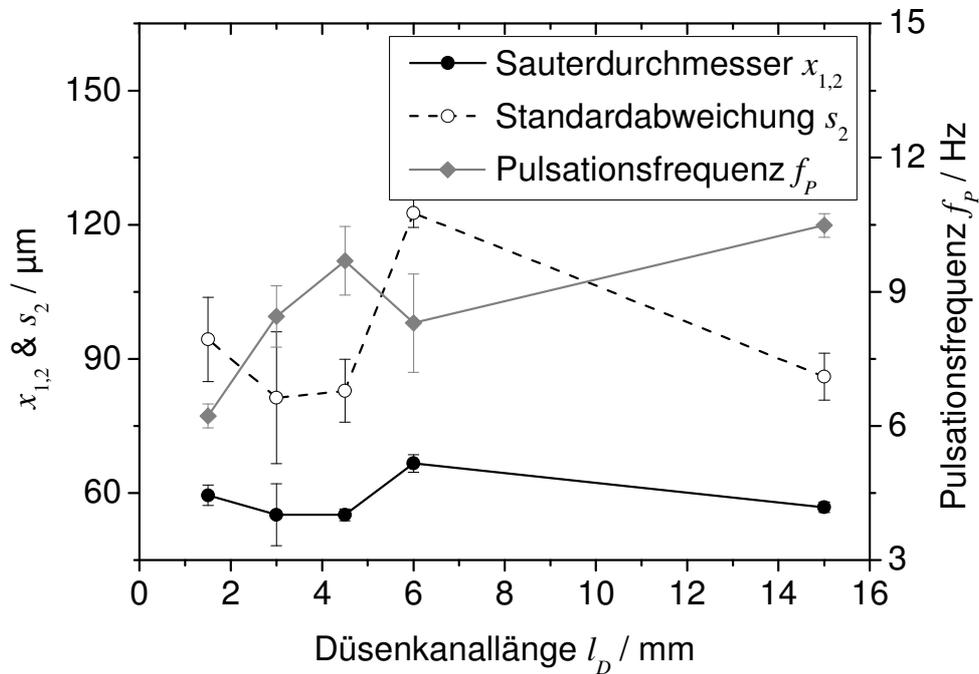


Abbildung A7.1: Vergleich der Pulsationsfrequenz mit den korrespondierenden charakteristischen Kenngrößen der Spraytropfengrößenverteilung in Abhängigkeit von der Düsenkanallänge ($d_D = 1,5$ mm, $ALR = 0,15$ für $x_{1,2}$ & s_2 , $ALR = 0,14$ für f_p).

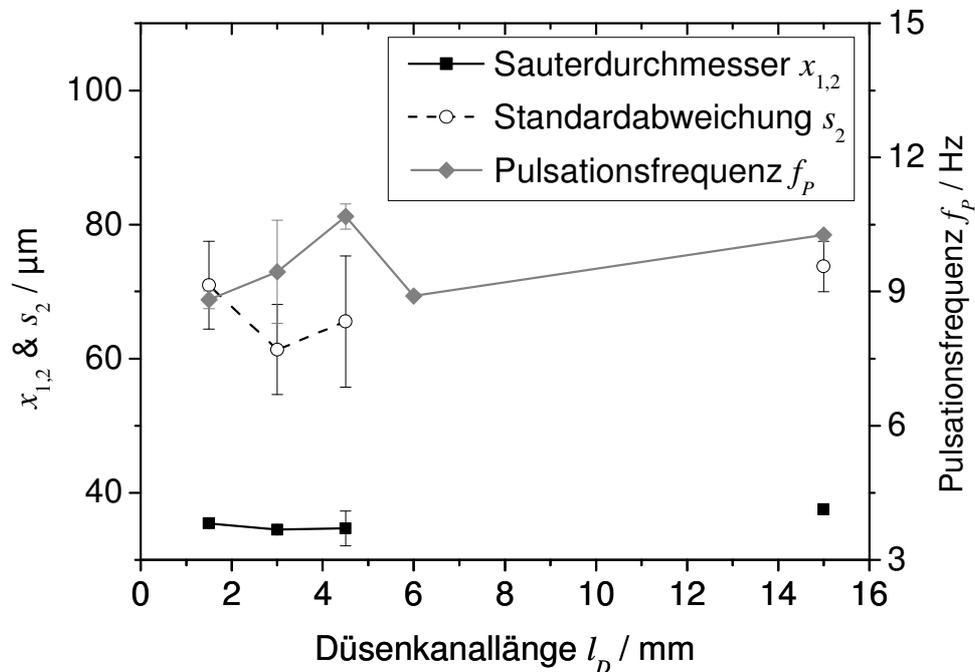


Abbildung A7.2: Vergleich der Pulsationsfrequenz mit den korrespondierenden charakteristischen Kenngrößen der Spraytropfengrößenverteilung in Abhängigkeit von der Düsenkanallänge ($d_D = 1,5$ mm, $ALR = 0,33$ für $x_{1,2}$ & s_2 , $ALR = 0,32$ für f_p).

Die Mischstrecke von Gas und Flüssigkeit von erster Gasinjektion bis Düsenkanal verlängert sich für die unterschiedlichen Düsengeometrien in der Reihenfolge D60 (42,0 cm), D150 (43,0 cm), D45 (43,5 cm), D30 (45,0 cm) und D15 (46,5 cm) von 42,0 auf 46,5 cm. Die Länge der Mischstrecke kann durch unterschiedlich stark auftretende Koaleszenz der Gasblasen aufgrund der unterschiedlichen Verweilzeit die Strömungsform und die Zerstäubung möglicherweise beeinflussen. Die charakteristischen Kenngrößen der Spraytropfengrößenverteilung und die Pulsationsfrequenz, welche in Abbildung 6.27, Abbildung A7.1 und Abbildung A7.2 in Abhängigkeit von der Düsenkanallänge dargestellt sind, sind in Abhängigkeit der Länge der Mischstrecke in Abbildung A7.3, Abbildung A7.4 und Abbildung A7.5 dargestellt. Die maximalen Pulsationsfrequenzen sind für die drei *ALR*-Bereiche bei einer Länge von 43,0 und 43,5 cm erkennbar. Minimale Werte der charakteristischen Kenngrößen liegen für die drei *ALR*-Bereiche bei einer Länge von 43,5 und 45,0 cm vor. Insgesamt korreliert der Einfluss der Länge der Mischstrecke auf das Maximum der Pulsationsfrequenz und das gegenläufige Minimum der charakteristischen Kenngrößen. Ein eindeutiger Einfluss der Länge der Mischstrecke und damit der Verweilzeit in der Mischkammer kann hier nicht gezeigt werden. Dabei muss berücksichtigt werden, dass der Einfluss der veränderten Düsenkanallänge bei den gezeigten Daten überlagert ist.

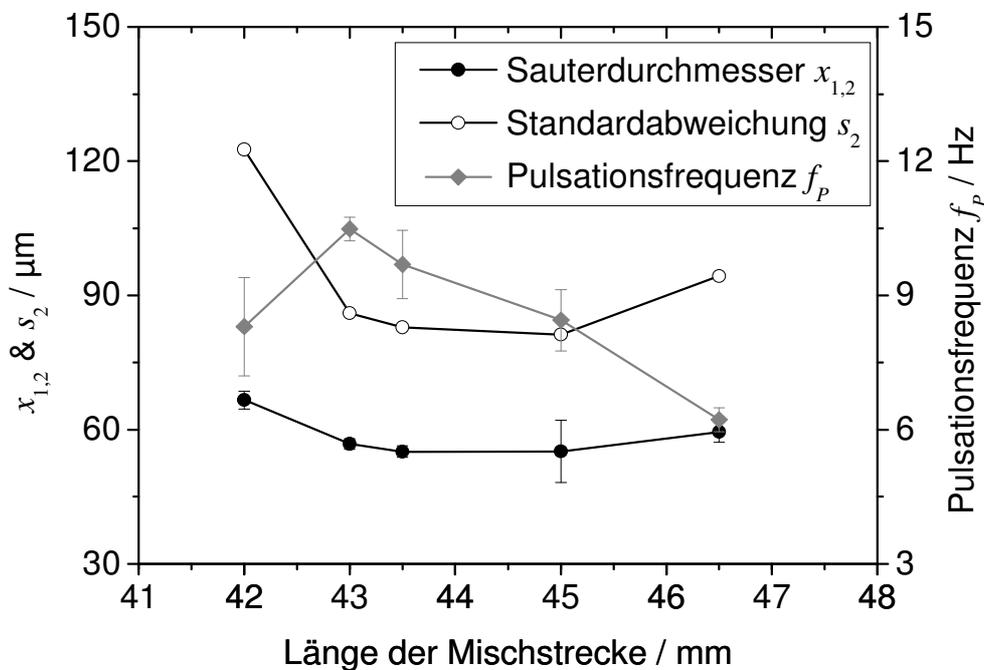


Abbildung A7.3: Vergleich der Pulsationsfrequenz mit den korrespondierenden charakteristischen Kenngrößen der Spraytropfengrößenverteilung in Abhängigkeit von der Länge der Mischstrecke ($d_D = 1,5$ mm, $ALR = 0,15$ für $x_{1,2}$ & s_2 , $ALR = 0,14$ für f_p).

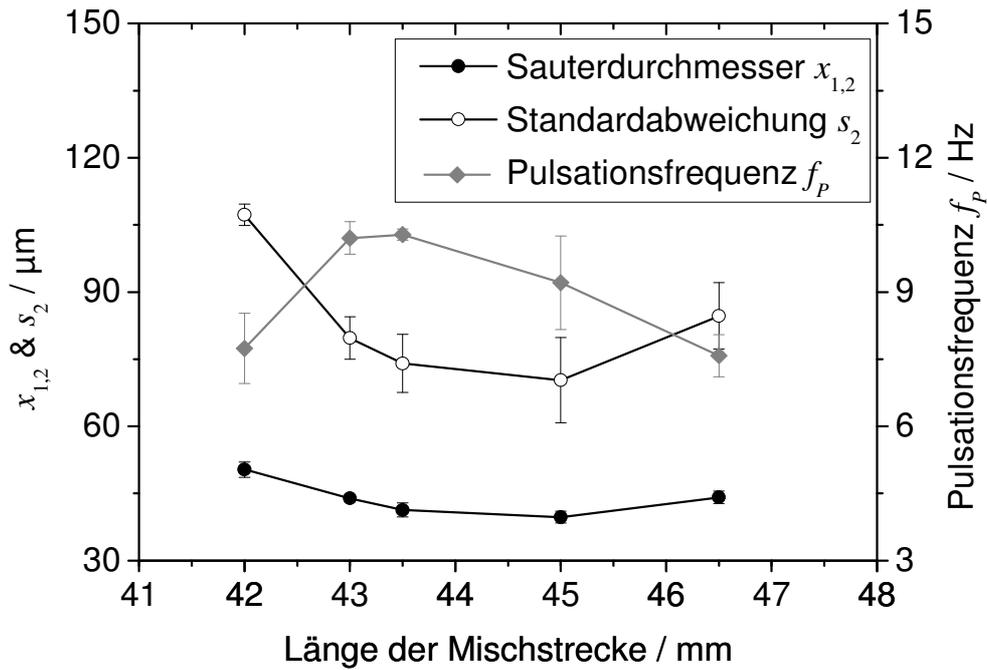


Abbildung A7.4: Vergleich der Pulsationsfrequenz mit den korrespondierenden charakteristischen Kenngrößen der Spraytropfengrößenverteilung in Abhängigkeit von der Länge der Mischstrecke ($d_D = 1,5$ mm, $ALR = 0,24$ für $x_{1,2}$ & s_2 , $ALR = 0,23$ für f_p).

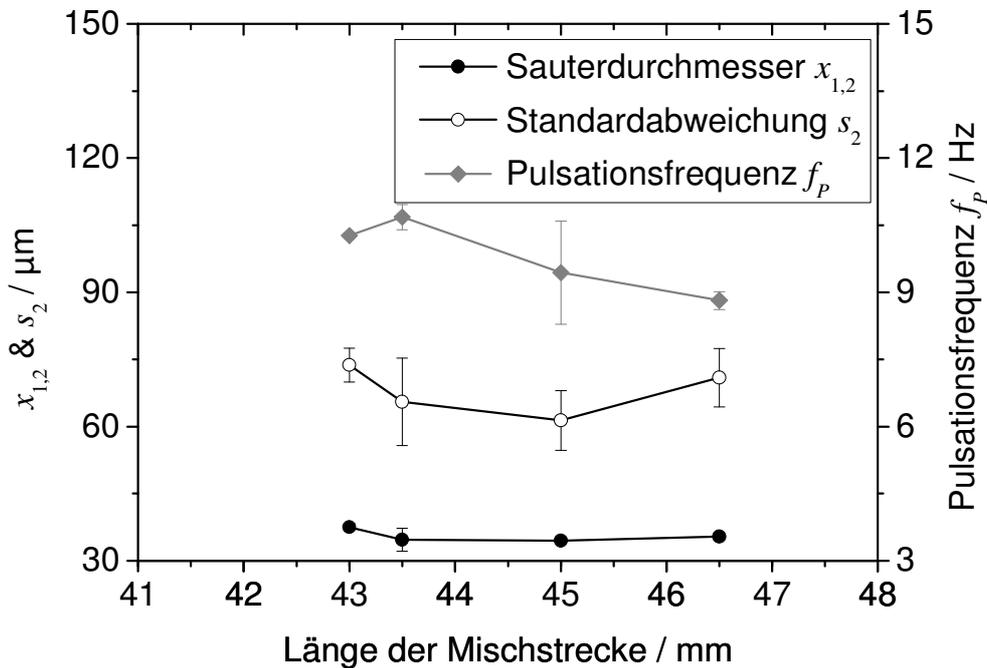


Abbildung A7.5: Vergleich der Pulsationsfrequenz mit den korrespondierenden charakteristischen Kenngrößen der Spraytropfengrößenverteilung in Abhängigkeit von der Länge der Mischstrecke ($d_D = 1,5$ mm, $ALR = 0,33$ für $x_{1,2}$ & s_2 , $ALR = 0,32$ für f_p).

Anhang 8: Modellierung

Ergänzende Abbildungen zur Diskussion der Modellierung in Kapitel 6.6.2.

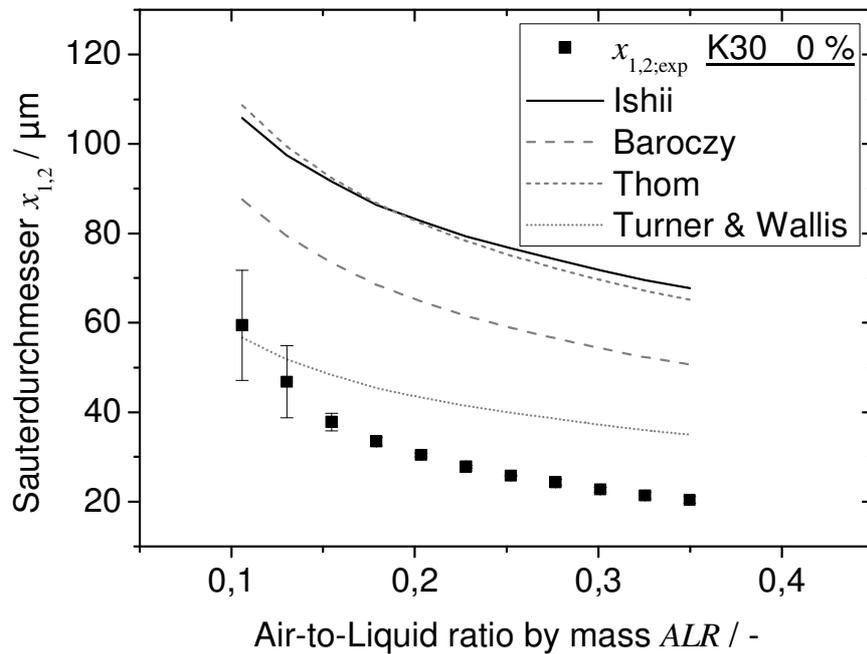


Abbildung A8.1: Vergleich der experimentellen Sauterdurchmesser und der mit unterschiedlichen Methoden (Modell von Lund: Ishii; Erweiterungen: Baroczy, Thom, Turner & Wallis) berechneten Werte für PVP K30 0 % in Abhängigkeit vom ALR (D15).

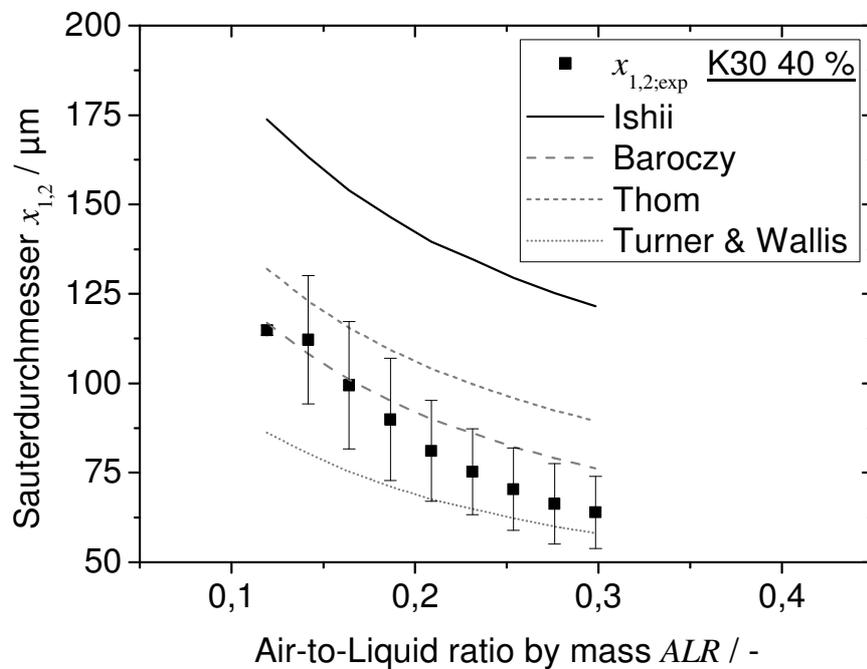


Abbildung A8.2: Vergleich der experimentellen Sauterdurchmesser und der mit unterschiedlichen Methoden (Modell von Lund: Ishii; Erweiterungen: Baroczy, Thom, Turner & Wallis) berechneten Werte für PVP K30 40 % in Abhängigkeit vom ALR (D15).

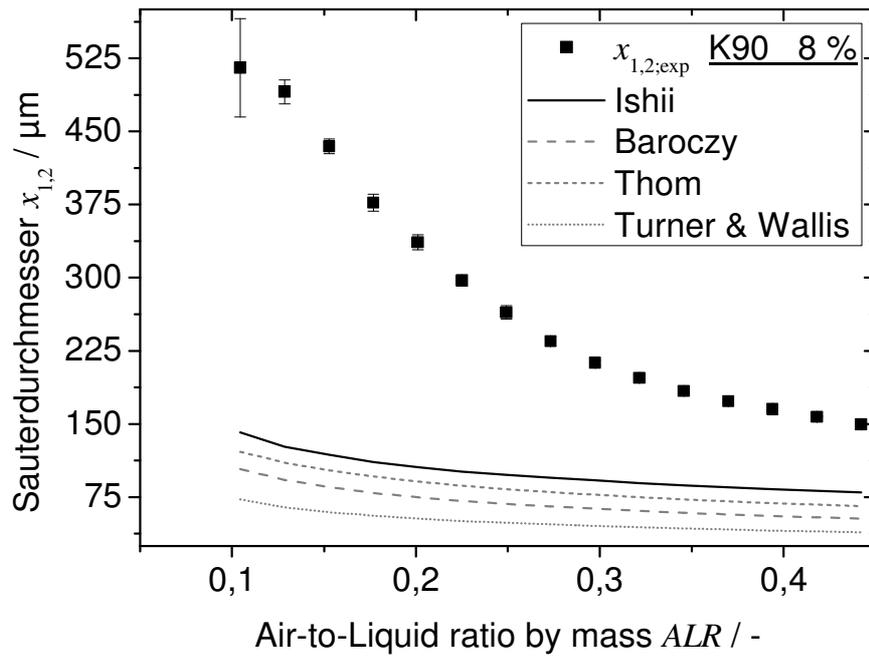


Abbildung A8.3: Vergleich der experimentellen Sauterdurchmesser und der mit unterschiedlichen Methoden (Modell von Lund: Ishii; Erweiterungen: Baroczy, Thom, Turner & Wallis) berechneten Werte für PVP K90 8 % in Abhängigkeit vom ALR (D15).

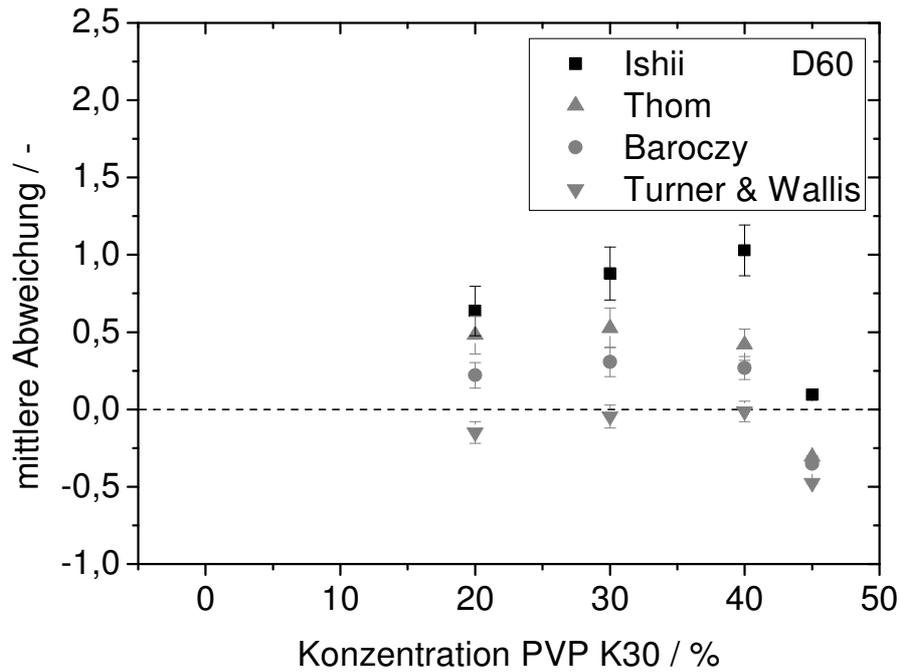


Abbildung A8.4: Vergleich der mittleren Abweichung der mit unterschiedlichen Methoden (Modell von Lund: Ishii; Erweiterungen: Baroczy, Thom, Turner & Wallis) berechneten Werte in Abhängigkeit von der PVP-K30-Konzentration (D60).

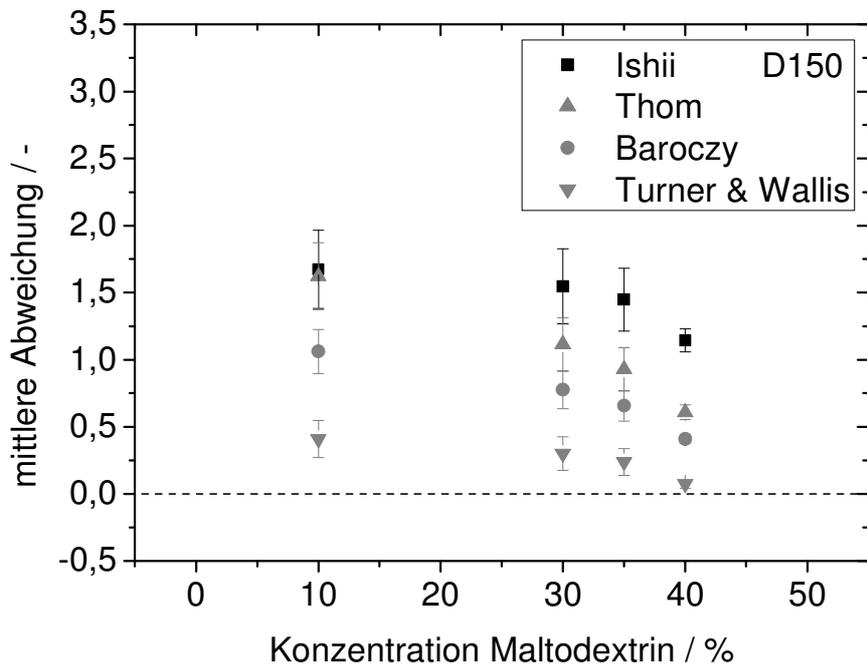


Abbildung A8.5: Vergleich der mittleren Abweichung der mit unterschiedlichen Methoden (Modell von Lund: Ishii; Erweiterungen: Baroczy, Thom, Turner & Wallis) berechneten Werte in Abhängigkeit von der MD-Konzentration der Emulsion (D150).

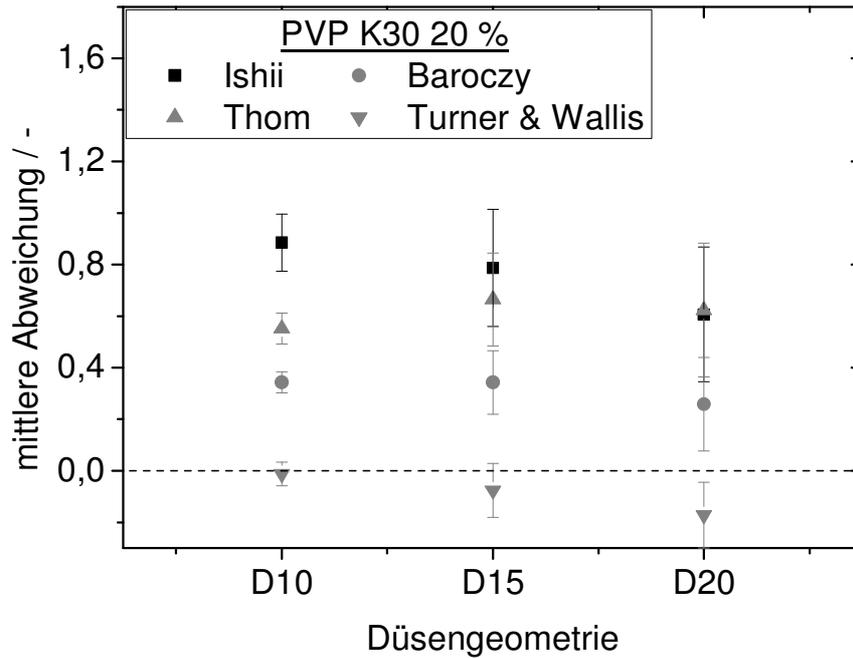


Abbildung A8.6: Vergleich der mittleren Abweichung der mit unterschiedlichen Methoden (Modell von Lund: Ishii; Erweiterungen: Baroczy, Thom, Turner & Wallis) berechneten Werte in Abhängigkeit von der Düsengeometrie ($l_D/d_D = \text{konst.}$, PVP K30 20 %).

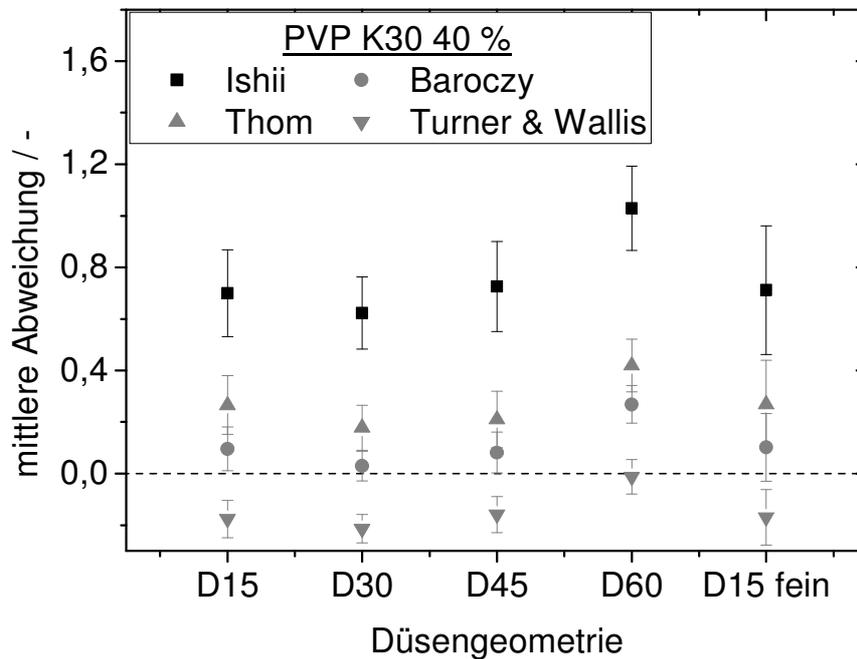


Abbildung A8.7: Vergleich der mittleren Abweichung der mit unterschiedlichen Methoden (Modell von Lund: Ishii; Erweiterungen: Baroczy, Thom, Turner & Wallis) berechneten Werte in Abhängigkeit von der Düsengeometrie (PVP K30 40 %).

Anhang 9: Effizienz der Zerstäubung

Ergänzende Abbildung zur Diskussion der Effizienz in Kapitel 6.7.

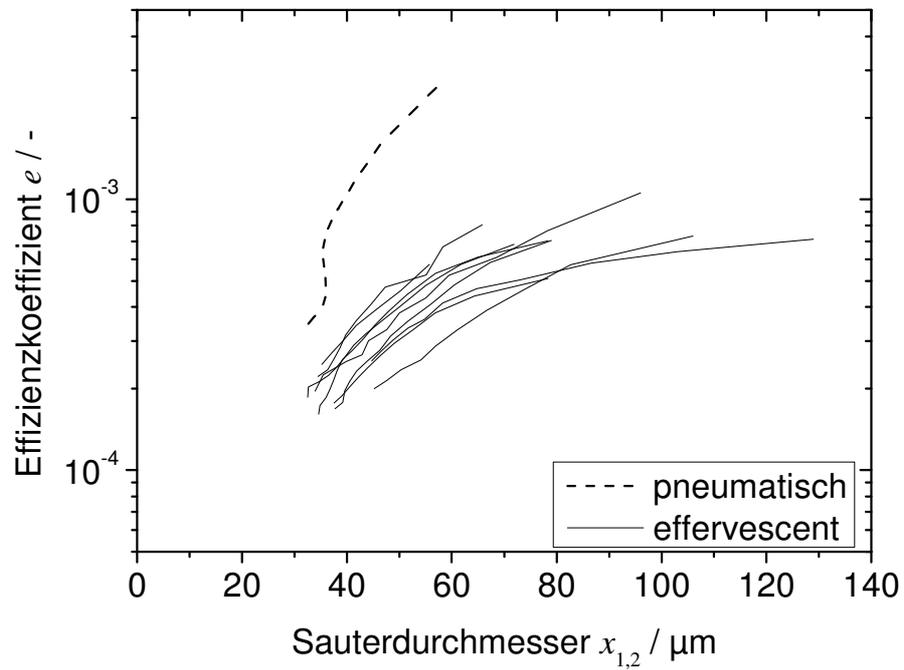


Abbildung A9.1: Effizienzkoefizient für unterschiedliche Zerstäuberformen (PVP K30 20 %) in Abhängigkeit vom Sauterdurchmesser.

Anhang 10: Flüssigbeanspruchung

Ergänzende Abbildung zur Diskussion der Ergebnisse in Kapitel 7.

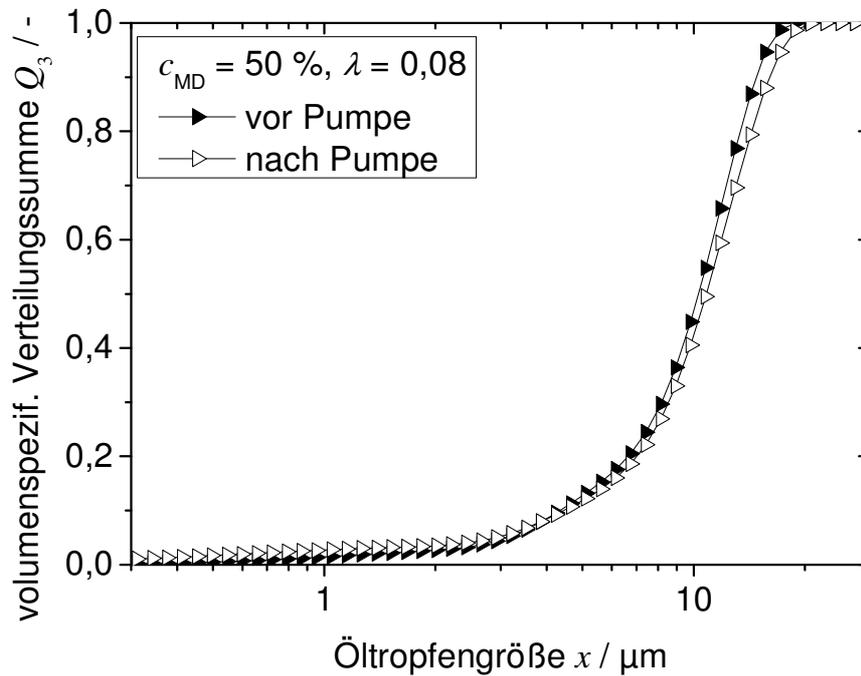


Abbildung A10.1: Vergleich der volumenspezifischen Verteilungssumme der Öltropfengröße vor und nach Passage der Pumpe ohne Zerstäubung.

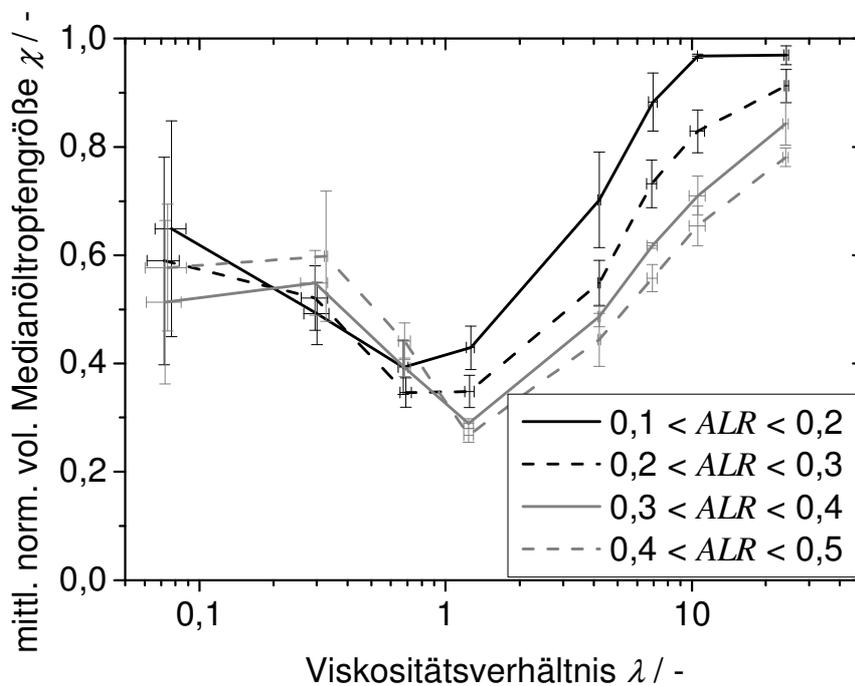


Abbildung A10.2: Mittlerer normierter volumenspezifischer Medianöltropfendurchmesser für unterschiedliche ALR in Abhängigkeit vom Viskositätsverhältnis (D15).

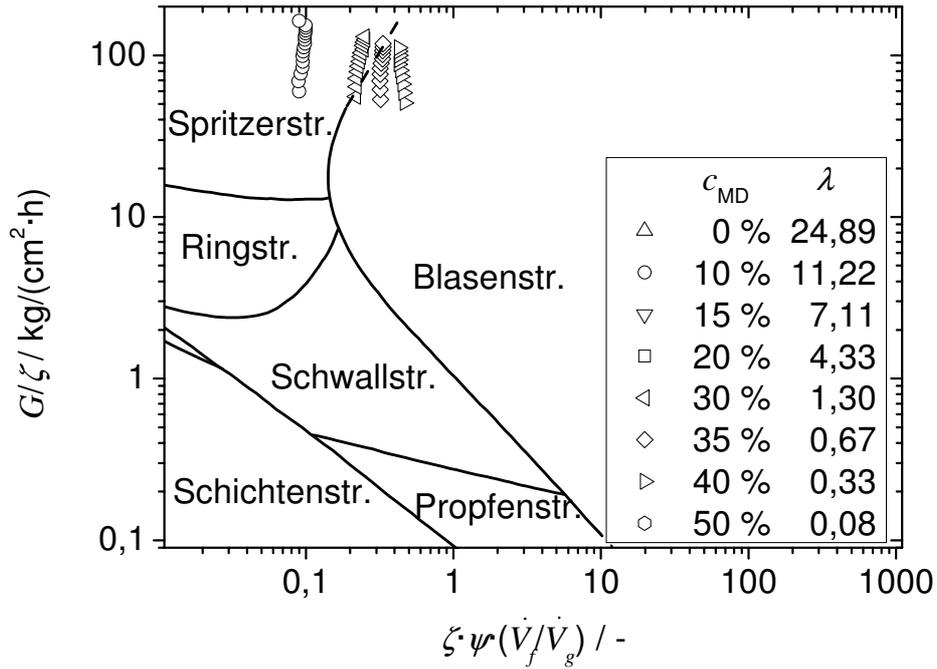


Abbildung A10.3: Berechnete Daten für die Strömungsform im Düsenkanal für Düsengeometrie D150 in Abhängigkeit von der MD-Konzentration bzw. vom Viskositätsverhältnis in Bakers Übersicht der Strömungsformen (siehe Kapitel 2.2).

Anhang 11: Druckberechnung

Zur Berechnung des Drucks im Düsenkanal wurde nach Bohl und Elmendorf [120] wie folgt vorgegangen. In Abbildung A11.1 ist der Ein- und Auslaufbereich des Zerstäubers dargestellt mit den drei Bereichen vor Einlauf (1), Düsenkanal (2) und nach Auslauf (3).

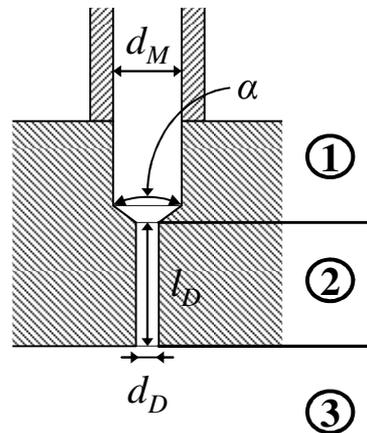


Abbildung A11.1: Schematische Darstellung des Ein- und Auslaufbereichs mit Markierung der Bereiche vor dem Einlauf (1), Düsenkanal (2) und nach dem Auslauf (3).

Der Druckverlust von Mischkammer (1) zu Düsenkanal (2) kann nach Gleichung A11.1 mit den Drücken in der Mischkammer p_1 und im Düsenkanal p_2 , der Widerstandszahl im Düsenkanal ζ_2 , der Dichte und der mittleren Geschwindigkeit im Düsenkanal berechnet werden. Die Widerstandszahl beträgt unter Berücksichtigung des Zulaufwinkels für die Düsengeometrien D15 und D150 0,238.

$$\Delta p_{12} = p_1 - p_2 = \zeta_2 \cdot \frac{\rho_2}{2} \cdot \bar{v}_2^2 \quad (\text{A11.1})$$

Der Druckverlust vom Düsenkanal (2) zur Umgebung (3) kann nach Gleichung A11.2 mit dem Druck im Düsenkanal und dem Druck nach dem Auslauf p_3 , der Widerstandszahl für den Auslauf ζ_3 , der Dichte und der mittleren Geschwindigkeit im Düsenkanal berechnet werden. Zur Berechnung der Widerstandszahl für den Auslauf wird für turbulente Strömungen die Rohrreibungszahl λ_r benötigt, siehe Gleichungen A11.3 und A11.4. Die Rohrreibungszahl kann für hydraulische raue Rohre nach Nikuradse mit dem Düsenkanaldurchmesser d_D und der Rauigkeit k berechnet werden, siehe Gleichung A11.5.

$$\Delta p_{23} = p_2 - p_3 = \zeta_3 \cdot \frac{\rho_2}{2} \cdot \bar{v}_2^2 \quad (\text{A11.2})$$

$$\zeta_3 = \frac{(2 \cdot n + 1)^3 \cdot (n + 1)^3}{4 \cdot n^4 \cdot (2 \cdot n + 3) \cdot (n + 3)} \quad (\text{A11.3})$$

$$n \approx \frac{1}{\sqrt{\lambda_r}} \quad (\text{A11.4})$$

$$\lambda_r = \frac{1}{\left(2 \cdot \lg\left(\frac{d_D}{k} + 1,14\right)\right)^2} \quad (\text{A11.5})$$

Die Bedingungen im Düsenkanal (Druck, Dichte und Geschwindigkeit) sind nicht bekannt, allerdings kann durch Auflösen der Gleichungen A11.1 und A11.2 nach \bar{v}_2^2 und Gleichsetzen ohne Kenntnis von Geschwindigkeit und Dichte der Druck im Düsenkanal bestimmt werden. Als Druck nach dem Auslauf wird Umgebungsdruck angenommen.

Als Rauigkeit wurde ein Wert von 0,1 mm angenommen sowie ein Umgebungsdruck von 1,013 bar und eine Temperatur von 25 °C. Der Gasdruck vor dem Zerstäuber wurde als Druck in der Mischkammer vor dem Einlauf angenommen. Der Druckverlust über die Länge des Düsenkanals wird bei dieser Berechnung vernachlässigt.

Formelverzeichniszusatz für Druckberechnung

k	Rauigkeit / m
n	Hilfswert zur Berechnung der Widerstandszahl / -
ζ	Widerstandszahl / -
λ_r	Rohrreibungszahl / -

Anhang 12: Applikation

Für die Sprühtrocknung wurden zwei unterschiedliche Pilotsprühtrockner eingesetzt. Hierzu finden sich im Weiteren Fotos. Außerdem ist eine Grafik zum Vergleich der Spraytropfengrößenverteilung des verwendeten kompakten „effervescent atomizer“ und der modularen Bauform abgebildet sowie eine Grafik zur Partikelgrößenverteilung der sprühgetrockneten Partikel.



Abbildung A12.1: Pilotsprühtrockner Karlsruhe.

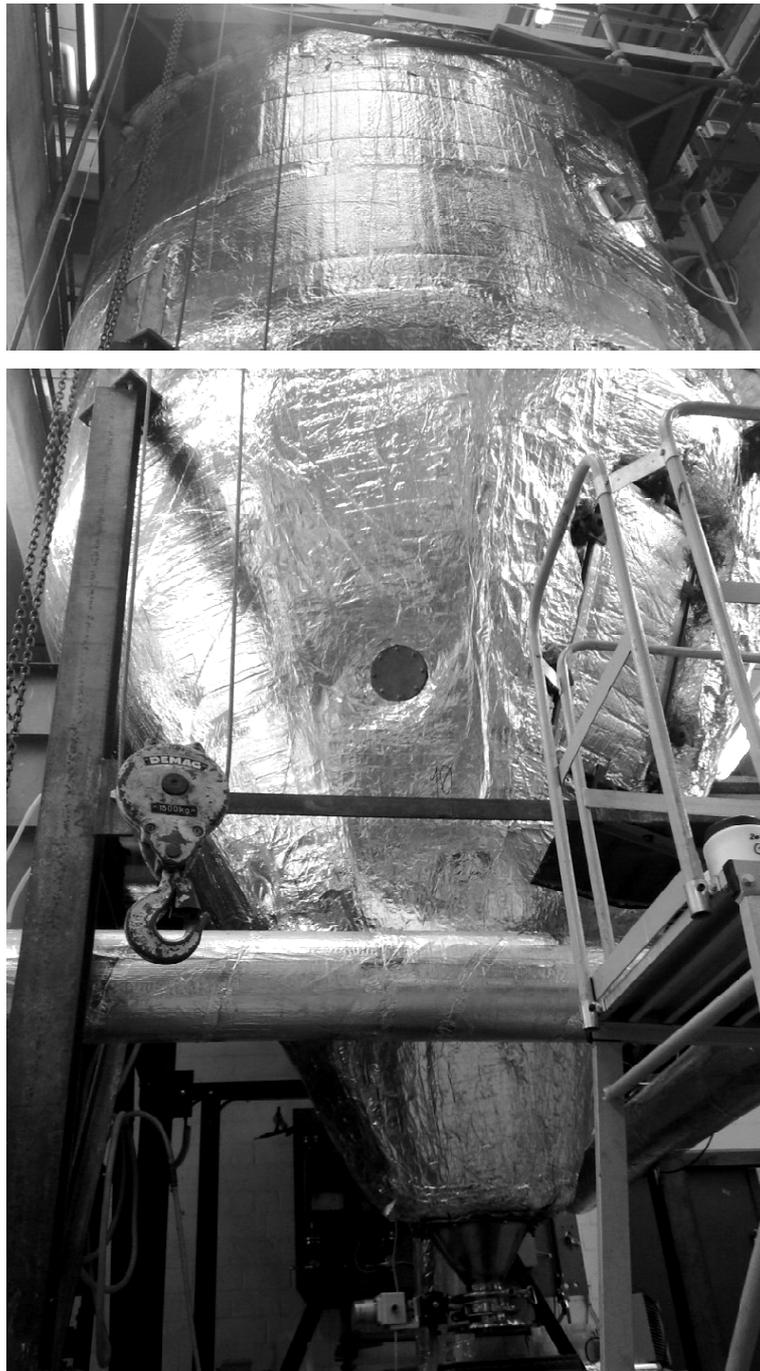


Abbildung A12.2: Pilotsprühtrockner Dortmund, oberer Teil (oben) und unterer Teil (unten).



Abbildung A12.3: Pilotsprührockner Dortmund, Zuführung Trocknungsluft und Flüssigkeit (oben) und Einbau kompakter „effervescent atomizer“ (unten).

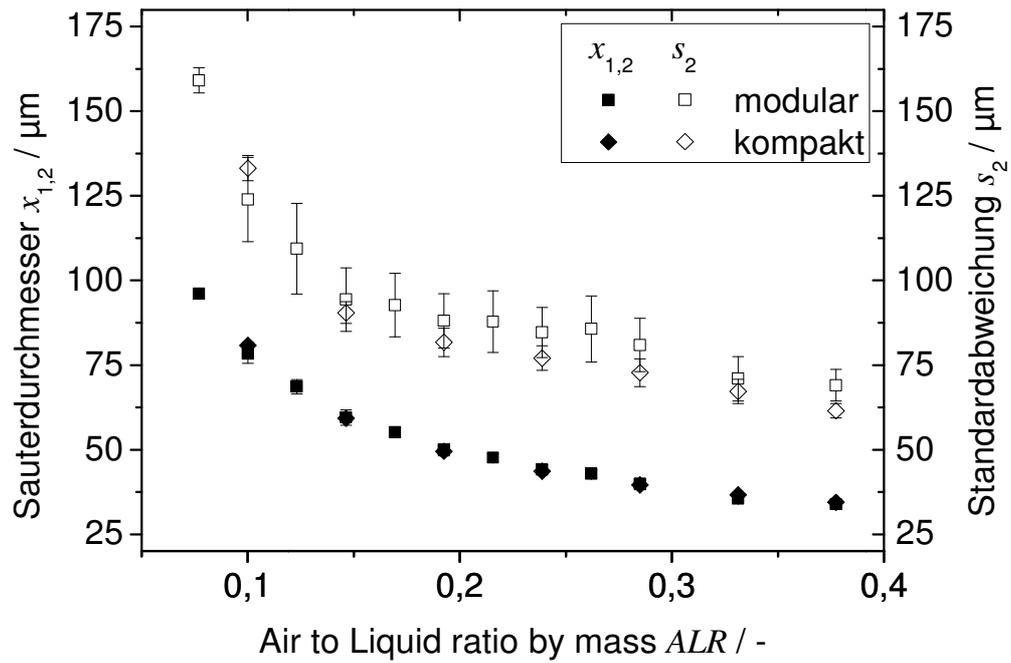


Abbildung A12.4: Vergleich der Sauterdurchmesser und der Standardabweichung s_2 bei Einsatz des modularen und des kompakten Zerstäubers mit gleicher Düsengeometrie in Abhängigkeit vom ALR (D15, PVP K30 20 %).

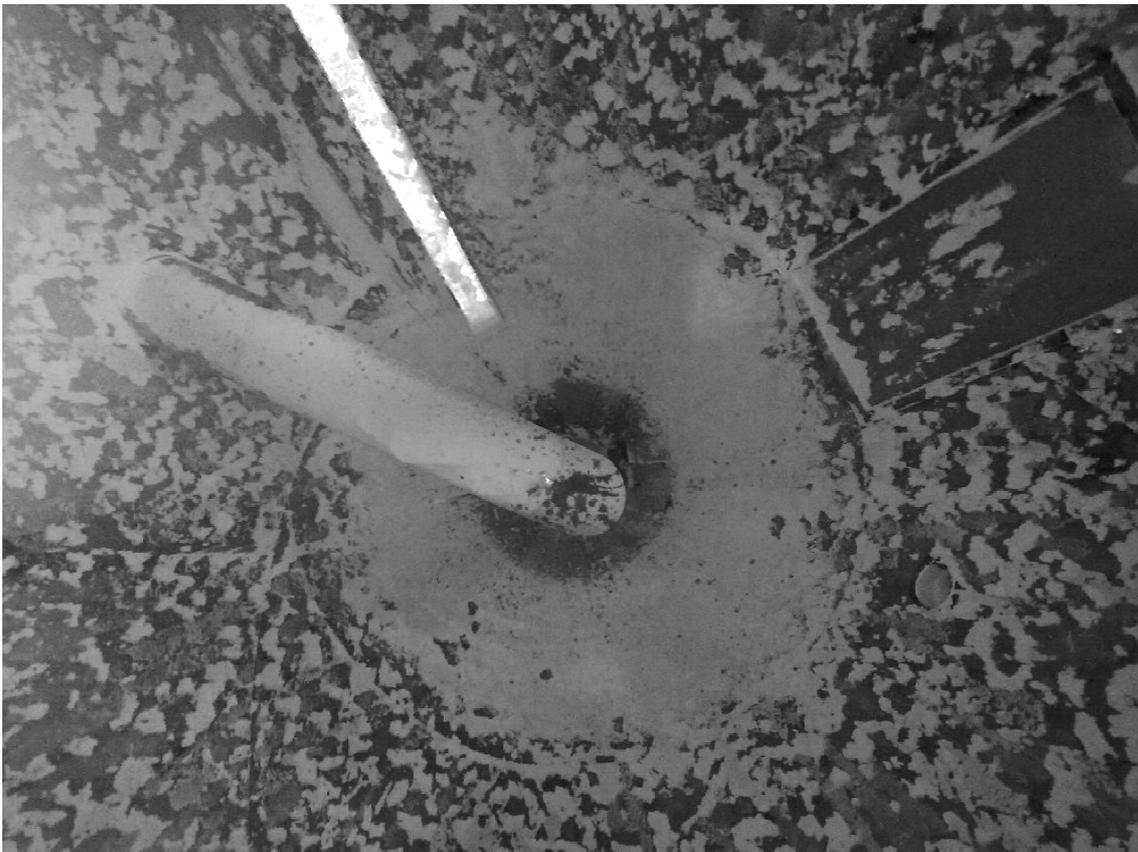


Abbildung A12.5: Pilotsprühtrockner Dortmund, Anlagerungen im Konus.

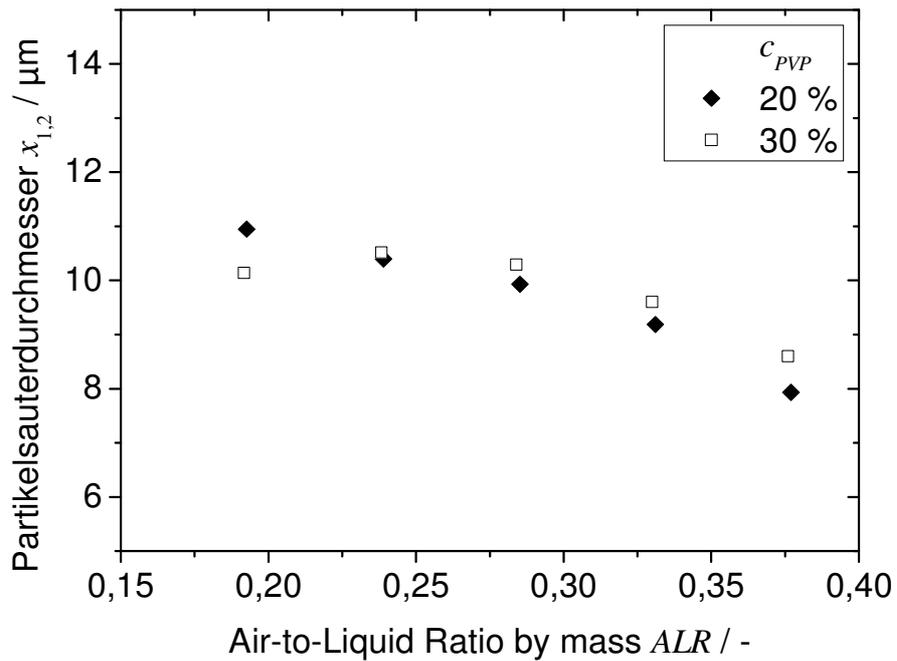


Abbildung A12.6: Pilotsprühtrockner: Übersicht der Sauterdurchmesser der sprühgetrockneten PVP-Partikel (Abscheidung am Zyklon, einmalige Versuchsdurchführung) in Abhängigkeit vom ALR (D15 kompakt, K30).