

Numerische Untersuchungen zum Segregationsverhalten von trockenen und feuchten Schüttgütern im diskontinuierlichen Mischprozess

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

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

genehmigte
DISSERTATION

von
Dipl.-Ing. Steffen Schmelzle
aus Göppingen-Faurndau

Referent: Prof. Dr.-Ing. Hermann Nirschl

Korreferent: Prof. Dr.-Ing. Sergiy Antonyuk

Tag der mündlichen Prüfung: 14. Juni 2019

Für meine Eltern

Danksagung

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Mechanische Verfahrenstechnik und Mechanik (MVM) am Karlsruher Institut für Technologie (KIT), in den Jahren 2013-2018.

Mein besonderer Dank gilt an erster Stelle meinem Doktorvater, Herrn Prof. Dr.-Ing. Hermann Nirschl, für sein Interesse, das Vertrauen, die hilfreichen Anregungen und den Zuspruch in schwierigen Momenten. Auch für die angenehme Arbeitsatmosphäre und die Möglichkeit meine Ergebnisse auf zahlreichen nationalen und internationalen Konferenzen präsentieren zu dürfen möchte ich mich bedanken.

Herrn Prof. Dr.-Ing. Sergiy Antonyuk danke ich nicht nur für die freundliche Übernahme meines Koreferats, sondern auch für die fachlichen Diskussionen und Anregungen während den Tagungen und Konferenzen. Darüber hinaus möchte ich die Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) dankend erwähnen, die das Forschungsprojekt finanziell ermöglichte.

Weiterhin möchte ich mich bei meinen Kolleginnen und Kollegen für die schöne Arbeitsatmosphäre bedanken. Nicht nur die fachlichen Diskussionen sondern auch die gemeinsamen Veranstaltungen wie Grillabende und Wanderseminare sowie die „Sicherheitsbesprechungen“ im Keller haben die Zeit am MVM sehr schön gestaltet. Ferner richtet sich mein Dank auch an meine ehemaligen Studentinnen und Studenten die durch ihre Beiträge in Form von Abschlussarbeiten und Hilfstätigkeiten zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Namentlich sind dies: Kim Mohr, Jonas Hertel, Luana Eberharte, Niclas Jolibois, Sabrina Schirle, Sven Leppert, Luana Eberharte, Krum Banov und Ernek Asylbekov.

Ein ganz besonderer Dank gilt meinen Eltern für die Unterstützung während meines Studiums und, dass sie ausnahmslos immer für mich da sind, wenn ich sie brauche.

Zum Abschluss möchte ich meiner Freundin Kirsten Ullmann danken. Vor allem in der letzten Phase, die mehr Zeit in Anspruch genommen hat als ich erwartet hatte, warst du mit deinen ermutigenden Worten ein ganz besonderer Rückhalt. Nicht nur das Korrekturlesen, sondern auch das Unterstützen in allen anderen Belangen haben einen wichtigen Anteil zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen. Es ist schön, dass es dich gibt!

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der numerischen Simulation von Feststoffmischprozessen sowohl in trockener als auch in feuchter Umgebung. Der Fokus liegt dabei auf einem diskontinuierlichen Intensivmischer, welcher durch ein schnellrotierendes Mischwerkzeug relative Platzwechselforgänge der Partikeln erzeugt. Da sich partikuläre Mischungskomponenten grundsätzlich in mindestens einer Eigenschaft unterscheiden, entstehen während des Mischprozesses unterschiedliche Partikelbeweglichkeiten, die derart wirken können, dass eine komponentenspezifische selektive Anreicherung zu einer unerwünschten Verschlechterung der Mischqualität führt. Kritisch für derartige Entmischungen sind vor allem frei fließende Schüttgüter mit ausgeprägtem Partikelgrößenunterschied. Eine feinere Komponente kann in Folge der Schwerkraft durch die Hohlräume des gröberen Materials perkolieren und sich vermehrt am Boden des Behälters ansammeln. Als besonders herausfordernd gilt zudem das Einmischen einer niedrig konzentrierten Komponente in ein charakteristisches Füllmaterial. Aus diesem Grund kommen im Rahmen dieser Arbeit ausschließlich größenunterschiedliche Zweikomponentenmischungen zum Einsatz, deren Mischungsverhalten orts- und zeitaufgelöst mit der Diskreten Elemente Methode numerisch analysiert werden.

Die alternierende Lösung der Newton'schen Bewegungsgleichungen in Kombination mit einem Kontaktmodell bildet die Basis zur diskreten Simulation der Partikelbewegungen im Mischprozess. Zunächst dient das etablierte Hertz-Mindlin-Kontaktmodell zur Charakterisierung der Mischgüte in trockener Umgebung. Mit steigendem Partikelgrößenunterschied zeigt sich zunehmend der perkolierende Segregationsmechanismus, vor allem im Spalt zwischen Mischwerkzeug und Behälterwand. Eine Drehzahlsteigerung kann dem Effekt entgegenwirken, ihn jedoch nicht vollständig kompensieren. Die geometrische Änderung der Winkelstellung des Mischwerkzeugs reduziert zwar die Perkolation im Spalt, führt jedoch zu entmischten Regionen vor der rotierenden Mischwerkzeuggeometrie. Folglich tragen die apparativen Abmessungen und die Betriebsparameter maßgeblich zur erreichbaren Mischgüte bei. Frei fließende Schüttgüter ohne interpartikuläre Haftkräfte bleiben für die partikelbasierte Mischtechnik jedoch eine allgemeingültige Herausforderung.

In feuchten Schüttgütern sind zusätzliche Wechselwirkungen zwischen den Partikeln zu berücksichtigen. Unter Verwendung des entwickelten Kontaktmodells, das auch variable Benetzungseigenschaften der Partikelsysteme berücksichtigt, zeigt sich weitestgehend ein Wechsel im Segregationsmechanismus. Gleichzeitig zur Minderung der perkolierenden Segregation treten haftende inhomogene Materialansammlungen an charakteristischen Stellen auf, wie beispielsweise an der Unterseite des Mischwerkzeugs oder an der Behälterwand. Dieser Effekt wirkt sich negativ auf die erreichbare Mischgüte aus, sofern beide Mischungskomponenten eine hohe Benetzbarkeit aufweisen. Ein Vergleich mit experimentellen Daten betont, dass bei großem Kontaktwinkelunterschied höhere dispersive Partikelbeweglichkeiten vorliegen, die in minimal homogenen Mischgütern resultieren. Im Vergleich dazu fallen die Unterschiede zwischen trockener und feuchter Mischgüte jedoch deutlich prägnanter aus.

Im bis dato gängigen Filmmodell wird die Flüssigkeit durch Kontaktdispersion übertragen, bis die Flüssigkeit gleichmäßig im Schüttgut verteilt ist. Die darin angenommene vollständige Partikelbenetzung gilt streng genommen nur für ideal benetzende Materialien, sodass mit der eingeführten Diskretisierung der Partikeloberfläche und der verbundenen Tropfenmodellierung eine Reduktion des Modellfehlers erzielt werden kann. Sowohl der numerisch berechnete Mischgüteverlauf als auch die resultierende unimodale Flüssigkeitsverteilung verdeutlichen die methodische Verbesserung zur Simulation feuchter Feststoffmischprozesse.

Summary

The present work deals with the numerical simulation of solid mixing processes in both, dry and moist regimes. The focus is on a discontinuous intensive mixer, which generates relative particle exchange processes by a fast rotating mixing tool. As particulate mixing components fundamentally differ in at least one property, different particle mobilities occur during the mixing process. These mobilities can cause the effect of component-specific selective enrichment that leads to an undesired deterioration of the mixing quality. Free-flowing bulk materials with a distinct particle size difference are particularly critical for such segregations. As a result of gravity, a finer component can percolate through the cavities of the coarser material and accumulate increasingly at the bottom of the vessel. Additionally, the mixing of a low-concentrated component into a characteristic filling material is considered particularly challenging. For this reason, only two-component mixtures of different sizes are used in the context of this work, whose mixing behavior is numerically analyzed in spatial and temporal resolution using the Discrete Element Method.

The alternating solution of Newton's equations of motion in combination with a contact model forms the basis to simulate particle motions in the mixing process discretely. First, the established Hertz-Mindlin contact model is used to characterize the mixing quality in a dry regime. As the particle size difference increases, the percolating segregation mechanism becomes increasingly apparent, especially in the gap between the mixing tool and the vessel wall. However, an enhancement in speed cannot completely compensate this effect. The geometric change in the angular position of the mixing tool reduces the percolation in the gap but leads to segregated regions in front of the rotating geometry. Consequently, the dimensions of the mixing equipment and the operating parameters contribute significantly to the achievable mixing quality. However, free-flowing bulk materials without interparticulate adhesive forces remain challenging for particle-based mixing technology.

In moist bulk solids additional interactions between the particles must be taken into account. Using the contact model developed for this purpose, which also takes variable

wetting properties of the particle systems into account, a change in the segregation mechanism can be observed to the greatest possible extent. Parallel to the reduction of the percolating segregation, adhesive inhomogeneous material accumulations occur at characteristic points like the bottom side of the mixing tool or the vessel wall. This occurrence has a negative effect on the achievable mixing quality, provided that both mixing components exhibit a high degree of wettability. A comparison with experimental data emphasizes that a large contact angle difference results in higher dispersive particle mobilities and in minimally more homogeneous mixing qualities. In comparison to that, the differences between dry and wet mixing quality are much more pronounced.

In the film model commonly used to date, the liquid is transferred by contact dispersion until the liquid is evenly distributed in the bulk material. Strictly speaking, the assumed complete particle wetting only applies to ideally wetting materials. The introduction of the discretization of the particle surface and the associated drop modeling leads to a reduced error in modelling. Both, the numerically calculated mixing quality and the resulting unimodal liquid distribution, illustrate the methodological improvement for the simulation of wet solid mixing processes.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Zielsetzung	1
1.1	Einleitung	1
1.2	Zielsetzung	3
2	Diskrete Elemente Methode	5
2.1	Bewegungsgleichungen.....	6
2.2	Partikelwechselwirkungen.....	6
2.2.1	Mechanische Ersatzmodelle zur Kontaktkraftberechnung	8
2.2.2	Steifigkeits- und Dämpfungskonstanten.....	10
2.3	Kontaktdetektion	14
2.4	Zeitintegration	16
2.4.1	Zeitschrittweite.....	16
2.4.2	Euler- und Verlet-Algorithmus in Geschwindigkeitsform	17
2.5	Material- und Wechselwirkungsparameter.....	19
2.6	Zusammenfassung	21
3	Grundlagen zu diskontinuierlichen Feststoffmischprozessen	23
3.1	Statistische Kennzeichnung von Mischungen	23
3.1.1	Mischungszustände und Mischgüte.....	23
3.1.2	Probennahme.....	26
3.1.3	Mischgüterverlauf.....	27
3.1.4	Messungenauigkeit.....	28
3.2	Experimentelle Methoden und Materialien	29
3.2.1	Pharmamischer	29
3.2.2	Partikelsysteme.....	31

3.2.3	Kontaktwinkelmessung.....	32
3.2.4	Position der Nullmischung.....	34
3.2.5	Experimentelle Probenahme	34
4	Misch- und Segregationsmechanismen im Trockenen	37
4.1	Fokker-Planck Gleichung	38
4.2	Stand der Technik und Zielsetzung.....	39
4.3	Bestimmung der Koeffizienten aus der Mischgüte	41
4.3.1	Markow-Kette	41
4.3.2	Exemplarische Adaption der Markow-Kette in Simulation und Experiment.....	44
4.4	Ergebnisse und Diskussion	46
4.4.1	Numerische Studie zum Partikelgrößenverhältnis	47
4.4.2	Vergleich unterschiedlicher Mischwerkzeuggeometrien	50
4.4.3	Übertragung auf feine Partikelsysteme	56
4.5	Fazit	61
5	Flüssigkeitsbrückenmodell	63
5.1	Stand der Technik und Zielsetzung.....	63
5.2	Young-Laplace Gleichung	65
5.2.1	Beschreibung rotationssymmetrischer Flüssigkeitsbrücken	65
5.2.2	Numerische Lösung der Young-Laplace Gleichung.....	68
5.2.3	Regressionsanalyse	74
5.3	Vergleich existierender Kontaktmodelle und Validierung.....	78
6	Feuchte Feststoffmischprozesse	81
6.1	Implementierung.....	81
6.1.1	Kugelsegmentmodell und Definition des Kontaktradius	82
6.1.2	Gravitationskraft der Flüssigkeitsbrücke	84
6.1.3	Viskose Kräfte	85
6.2	DEM-Simulationsergebnisse für feuchte Feststoffmischprozesse	87
6.2.1	Vergleich unterschiedlicher Benetzungseigenschaften	87
6.2.2	Reduktion der Segregation durch Erhöhung des Energieeintrags.....	91
6.2.3	Einfluss der Flüssigkeitsbeladung.....	93

6.2.4	Evaluation der Flüssigkeitsverteilung	95
6.2.5	Einfluss der Stoßzahl als Simulations-Eingabe-Parameter.....	98
6.3	Beeinflussung der Mischmechanismen	100
6.4	Validierung anhand eines ausgewählten Experiments	102
7	Partielle Benetzung	107
7.1	Stand der Technik und Zielsetzung	107
7.2	Modellierung der partiellen Benetzung	109
7.2.1	Diskretisierung der Partikeloberfläche mit der Fibonacci-Lattice Methode.....	109
7.2.2	Minimale Anzahl der Speicherpunkte und Korrektur des Kugelsegmentmodells	111
7.2.3	Tropfen-Modellierung	116
7.3	Modellvergleich und Validierung	121
7.3.1	Parameterstudie zur Anzahl der Speicherpunkte.....	121
7.3.2	Mischgüteverlauf im DIOSNA Mischer	125
7.3.3	Flüssigkeitsverteilung.....	126
7.4	Fazit und Ausblick	130
8	Zusammenfassung und Ausblick	133

Kapitel 1

Einleitung und Zielsetzung

1.1 Einleitung

Als eine der ältesten Grundoperationen der Verfahrenstechnik stellt das Feststoffmischen einen wichtigen Prozess dar, unter welchem die Stoffvereinigung aus mehreren unterschiedlichen Ausgangskomponenten zu verstehen ist. Der Mischprozess kann als einzelner Prozessschritt zur Verbesserung der Produkteigenschaften auftreten oder auch als überlagerte Voraussetzung für die Durchführung einer folgenden Operation, wie der Agglomeration, dem Trocknen oder dem Zerkleinern. Das grundlegende Ziel des Mischprozesses ist dabei das Erreichen einer bestmöglichen Homogenität und gleichzeitig Entmischungseffekte als unerwünschte Begleiterscheinungen zu vermeiden. Je nach betrachteter Anwendung kann eine homogene Vermischung häufig auch nur eine Grundvoraussetzung für die verfolgte Zielsetzung des Gesamtprozesses darstellen.

Beispielsweise erwartet der Verbraucher von Arzneimitteln, dass die Zusammensetzung einer Tablette möglichst exakt mit der Wirkstoffangabe der Packungsbeilage übereinstimmt, gleichzeitig einfach zu handhaben ist und einen dem Krankheitsbild entsprechenden zeitlichen Verlauf der Wirkstoffmittelfreigabe im Körper besitzt. Exemplarisch können magensaftresistente Granulate den Wirkstoff erst zeitverzögerter im Darmsaft freisetzen [1]. Demzufolge ist das homogene Mischen bei der pharmazeutischen Granulierung eine Grundvoraussetzung, beeinflusst simultan aber die Zusammensetzung und Festigkeiten der Tabletten.

Darüber hinaus findet das Feststoffmischen auch in der Herstellung leistungsoptimierter Produkte Anwendung: im Fall der Lithium-Ionen Batterie Produktion stellt der erste Prozessschritt das Vereinigen eines Aktivmaterials mit einem niedrig konzentrierten Additiv dar [2]. Hierbei sind hohe Homogenitäten auf kleinsten Skalen zu erreichen, bei gleichzeitig überlagerter Strukturierung des Leitfähigkeitsadditivs. Unter der Strukturierung ist dabei hauptsächlich die Desagglomeration der hochaggregierten additiven Komponenten zu verstehen, die sich infolge des Prozessierens mit Lösungsmitteln in Intensiv-, Knet- oder Dispergiermischern ergeben [3]. Eine auftretende unvollständige Desagglomeration [4] stellt dabei eine unerwünschte Inhomogenität mit negativen Folgen für die anschließenden Beschichtungs- und Trocknungsprozesse [5, 6] dar.

In der Baustoffindustrie findet ebenfalls eine Vielzahl unterschiedlicher Mischprozesse Anwendung. Exemplarisch sei auf die Produktion von Beton im Chargenprozess hingewiesen, bei dem sich im Doppelwellenmischer unterschiedliche Mischgüten je nach Produktfeuchte ergeben [7]. Demzufolge ist wie in den anderen, oben genannten Beispielen nicht nur die Interaktion der partikulären Phase im Mischer, sondern auch die Wechselwirkung zur fluiden Phase ein ausschlaggebender Faktor für die finalen Produkteigenschaften.

Zur Weiterentwicklung und Optimierung der Mischprozesse werden zunehmend numerische Simulationen auf Basis der Diskreten Elemente Methode herangezogen [8]. Die Verbesserung bestehender Mischergeometrien, die systematische Untersuchung neuer Formulierungen hinsichtlich Flüssigkeits-Prozesszeit-Kombinationen bis hin zur kompletten Neuentwicklung eines Mischprozesses sind zukünftig simulationsgestützt denkbar. Die existierenden Modelle zur Beschreibung feuchter Feststoffmischprozesse befinden sich hierzu allerdings noch im Anfangsstadium und erlauben lediglich die numerische Berechnung stark vereinfachter Fälle, sodass grundlegende Weiterentwicklungen notwendig sind. Die Vertiefung des Verständnisses der maßgeblichen Mischmechanismen durch das Verbessern der numerischen Methoden stellen wesentliche Meilensteine dar, um zukünftig bessere Produkteigenschaften realisieren zu können.

1.2 Zielsetzung

Diese Arbeit verfolgt das Ziel, die grundlegenden Misch- und Segregationsmechanismen trockener und feuchter Mischgüter in diskontinuierlichen Prozessen mit verbesserten numerischen Methoden aufzuklären und neue Werkzeuge für zukünftige Auslegungen von Mischverfahren bereitzustellen. Folgende Teilaspekte ergeben sich zur Erreichung dieser Zielsetzung:

(1) *Verständnisvertiefung des Segregationsverhaltens von trockenen Mischungskomponenten durch Ableitung charakteristischer Koeffizienten*

Unterscheiden sich die Mischungskomponenten in ihren Eigenschaften, wie der Partikelgröße, treten materialabhängige Partikelbeweglichkeiten auf. Dabei können die interpartikulären Kräfte derart wirken, dass komponentenspezifische Anlagerungen im Mischer auftreten. Beispielsweise können sich feinere Partikel in die Hohlräume zwischen größeren Komponenten bewegen und sich unter dem Einfluss der Schwerkraft am Mischbehälterboden ansammeln. Diverse Forschungsarbeiten beschäftigen sich mit dem als Perkolation bezeichneten Segregationsmechanismus in unterschiedlichsten Transport- und Mischprozessen. Zur Quantifizierung dieses Segregationsmechanismus können die nach Fokker und Planck abgeleiteten Dispersions- und Transportkoeffizienten als charakteristische Kenngrößen für die Partikelbeweglichkeit und die selektive Segregation herangezogen werden, wobei diese hauptsächlich in kontinuierlich betriebenen Mischapparaten Anwendung finden. Bisher fehlen geeignete Ansätze, diese auf diskontinuierliche Systeme zu übertragen und dabei die Frage zu klären, inwiefern Materialeigenschaften und Betriebsparameter die dispersiven und segregierenden Partikelbeweglichkeiten hinsichtlich der Mischgüte beeinflussen.

Darüber hinaus stellen pulverförmige Mischungskomponenten mit kleinen Partikelgrößen eine Limitierung der aktuellen Simulationsmethoden dar. In einem weiteren Schritt ist daher zu klären ob die Dispersions- und Transportkoeffizienten geeignet sind, um Mischprozesse mit unterschiedlichen Partikelgrößenbereichen zu verknüpfen. Hierbei ist sowohl experimentell als auch numerisch zu überprüfen, ob sich die Segregationsmechanismen bei kleinen Partikelgrößen in gleicher Art und Weise reduzieren lassen wie im simulationstechnisch möglichen Größenbereich.

(2) Modellierung und Simulation des Mischprozesses von trockenen und feuchten Schüttgütern

Besonders empfindlich für Segregationseffekte sind freifließende Schüttgüter mit relativ schwachen interpartikulären Haftkräften. Durch die in Mischgranulierprozessen übliche Flüssigkeitszugabe und den damit verbundenen kapillaren Flüssigkeitsbrücken reduzieren sich die relativen Partikelbeweglichkeiten und der damit verbundene perkolierende Entmischungseffekt. Da die Flüssigkeitsbrückenkräfte von den Fluid- und Partikeleigenschaften abhängen, muss eine Flüssigkeitszugabe nicht zwangsläufig segregationsmindernd wirken. Sind beispielsweise hydrophile und hydrophobe Komponenten zu mischen, kann eine Zugabe von Wasser auch den gegenteiligen Effekt hervorrufen. Das Wasser lagert sich selektiv im Bereich der hydrophilen Komponente an, sodass sich inhomogene Agglomerate ausbilden, die hauptsächlich aus gut benetzendem Material bestehen. Dementsprechend kann nicht grundsätzlich davon ausgegangen werden, dass die Flüssigkeitszugabe segregationshemmend wirkt, sondern ist in Abhängigkeit der Produkteigenschaften individuell zu beurteilen.

Zur numerischen Simulation eines feuchten Feststoffmischprozesses sind umfangreiche Modellerweiterungen notwendig, um einerseits die Flüssigkeitsverteilung bestimmen und andererseits den Wechsel im Segregationsmechanismus feststellen zu können. Hierdurch lassen sich lokal auftretende inhomogene Agglomerate numerisch detektieren und optimale Betriebsbedingungen prognostizieren. Des Weiteren gilt es die Gültigkeit des Modells experimentell zu validieren.

(3) Methodenverbesserung durch Implementierung der partiellen Partikelbenetzung

Durch die mechanischen Stoßvorgänge zwischen den Partikeln entsteht eine Kontaktdispersion der Flüssigkeit. Das heißt, dass während der Stoßvorgänge Flüssigkeit zwischen den Kollisionspartnern transferiert wird und diese die Mischungskomponenten benetzt. Die gängigen Modelle gehen von einer vollständigen Partikelbenetzung aus und berücksichtigen dabei nicht, dass sich die Mischungskomponenten in ihrem Kontaktwinkel unterscheiden können. Um eine damit verbundene partielle Partikelbenetzung inklusive Tropfenbildung realisieren zu können, sind methodische Neuentwicklungen vorzunehmen. Hierdurch sind höhere Genauigkeiten in den numerischen Ergebnissen zu erwarten.

Kapitel 2

Diskrete Elemente Methode¹

Als Simulationsmethode kommt ein zeitschrittgesteuertes Verfahren mit konstanter Zeitschrittweite zum Einsatz, welches das Bewegungsverhalten von ruhenden oder fließenden Schüttgütern dynamisch beschreibt. Erstmals stellten Cundall und Strack [10] dieses Verfahren unter dem Namen „Diskrete Elemente Methode“ (kurz DEM) vor. Auf Basis von mechanischen Ersatzmodellen, wie dem Feder-Dämpfer-System, werden Kontaktkräfte modelliert, als Folge derer diskrete Elemente eine Positionsänderung nach Integration über einen kurzen Zeitschritt vollführen. Die DEM erlaubt es, die Positionen, die Geschwindigkeiten und die wirkenden Kräfte für jedes Element zeitlich aufgelöst zu berechnen, sodass die Methode nicht zuletzt auch aufgrund der stetig steigenden Prozessorleistung mittlerweile ein attraktives Instrument für die Auslegung verschiedener feststoffverfahrenstechnischer Prozesse ist. Exemplarisch findet die Methode in der Wirbelschichtgranulierung [11, 12], der Analyse des Granulatbruchverhaltens [13, 14] oder auch bei Mischprozessen [15, 16] Anwendung. Im Rahmen dieses Kapitels sind die physikalischen Zusammenhänge der DEM erklärt und deren Adaption für die Untersuchungen in den folgenden Mischprozesssimulationen erläutert.

¹ Inhalte dieses Abschnitts wurden in *Advanced Powder Technology* veröffentlicht und mit der Erlaubnis von Elsevier für die Dissertation übersetzt und angepasst. [9] S. Schmelzle, S. Leppert und H. Nirschl, "Influence of impeller geometry in a vertical mixer described by DEM simulation and the dispersion model", *Advanced Powder Technology*, (26), Seiten 1473-1482, 2015.

2.1 Bewegungsgleichungen

Die grundlegenden Ideen der DEM gehen auf Cundall und Strack [10] zurück, die ein granulares Material als Summe vieler Kontakt Ereignisse zwischen diskreten Elementen abbilden. Kern dabei ist die Newton'schen Bewegungsgleichungen alternierend für jedes diskrete Element, unter Berücksichtigung der Wechselwirkungen über ein Kontaktmodell zeitschrittgesteuert zu berechnen. Die Bewegung der diskreten Elemente ergibt sich nach Newton sowohl translatorisch als auch rotatorisch

$$m_i \frac{d\vec{u}_i}{dt} = m_i \vec{g} + \sum \vec{f}_i, \quad (2.1)$$

$$I_i \frac{d\vec{\omega}_i}{dt} = \sum \vec{T}_i \quad (2.2)$$

infolge der im Kontakt Ereignis wirkenden Kräfte \vec{f}_i und Momente \vec{T}_i . Diese setzen sich neben der omnipräsenten Schwerkraft $m_i \vec{g}$ hauptsächlich aus Stoß-, Dämpfungs- und Reibungskräften, aber auch aus elektrischen [17], magnetischen [18] und Strömungskräften [19] zusammen. Je nach Anwendung sind bestimmte Kraftmodelle zu berücksichtigen, zu vernachlässigen oder, wie im Rahmen dieser Arbeit, neu zu entwickeln. Infolge der Summe aller angreifenden Kräfte \vec{f}_i und Momente \vec{T}_i ändert das Element mit der Masse m_i und dem Trägheitsmoment I_i nach Integration über einen kurzen Zeitschritt dt die Partikelposition und somit auch die Winkel- $\vec{\omega}_i$ und die translatorische Geschwindigkeit \vec{u}_i . Die Bewegungsänderung ergibt sich aus dem Kontaktmodell, welchem demnach eine zentrale Rolle in der DEM zukommt.

2.2 Partikelwechselwirkungen

Die diskreten Elemente können entweder eine geometrische Wand oder ein beliebig geformtes Objekt darstellen. Gekrümmte Wände lassen sich über eine Vielzahl dreieckiger, ebener Oberflächenelemente abbilden, während diskrete Partikeln in der Schüttgutmechanik meist durch Kugeln abgebildet werden. Die vereinfachende Annahme hat den entscheidenden Vorteil, dass ein Kontakt über simple Vektoroperationen zu detektieren ist. Ein Kontakt ist immer dann festzustellen, wenn die Partikelradien r_i und r_j den Abstand ihrer Kugelmittelpunkte $|\vec{p}_i - \vec{p}_j|$ überschreiten

$$\delta_n = r_i + r_j - |\vec{p}_i - \vec{p}_j|. \quad (2.3)$$

Für den Fall eines Kontaktes zwischen zwei Kugelpartikeln zeigt Abbildung 2.1 auf der linken Seite, dass sich die beiden Partikeln virtuell in Normalenrichtung überlappen. Beim Partikel-Wand Kontakt ist dies ebenfalls gegeben, sofern der Abstand zur Wand kleiner ist als der Partikelradius (Abbildung 2.1 rechts). Im Rahmen der Simulationen dient die virtuelle Überlappung δ_n als Berechnungsgrundlage für die Kontaktkraft und repräsentiert gleichzeitig die real eintretende elastische Abflachung in der Kontaktzone bei Stoß- oder Druckbeanspruchung der Partikeln. Als Grundannahme sind die modellierten Partikeln in der DEM jedoch starr und nicht deformierbar.

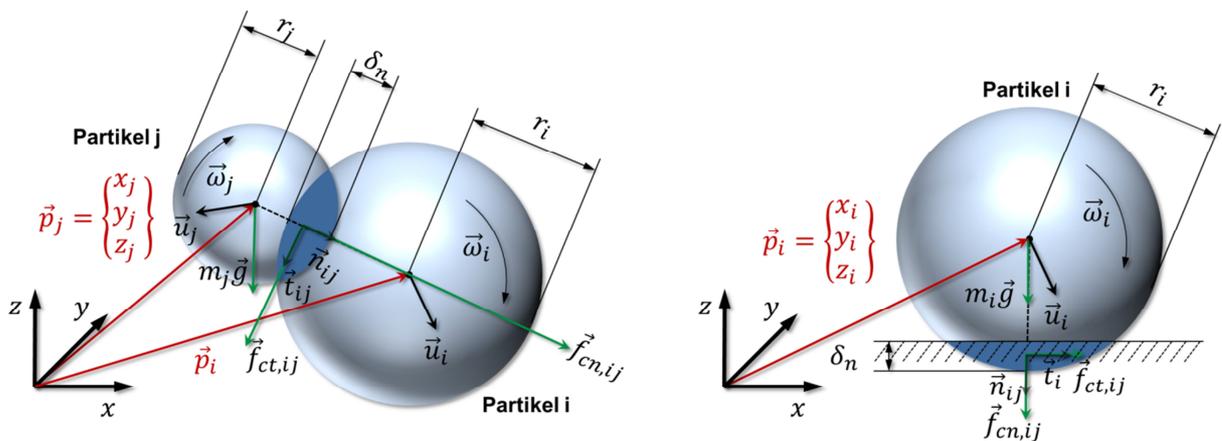


Abbildung 2.1: Darstellung der geometrischen Abmessungen und angreifenden Kräfte nach Zhou et al. [20] und Deen et al. [21]. Die linke Seite zeigt den Fall einer Kollision zweier Partikeln i und j . Die rechte Seite veranschaulicht die Partikel-Wand Interaktion.

Da reale Partikeln selten ideal rund sind, nehmen die Bemühungen zur Modellierung nicht-sphärischer Formen in den letzten Jahren stark zu. Einerseits besteht die Möglichkeit irreguläre Formen durch das Zusammensetzen mehrerer Kugeln nachzubilden, wodurch gleichzeitig die Berechnungsgrundlage der Kontaktdetektion und des sphärischen Kontaktmodells erhalten bleibt [22]. Andererseits lassen sich auch zur Realisierung komplexerer Partikelformen Polyeder als Ein-Partikel-Systeme anwenden [23], wobei aufwendige Algorithmen zur Erkennung unterschiedlicher Kontakttypen (Kante, Ecke, Fläche) notwendig sind [24] und die Kontaktkraftberechnung zwischen zwei kollidierenden polyedrischen Körpern nach wie vor nicht vollständig beantwortet ist. Einen ausführlichen Vergleich beider Approximationsmethoden zeigen Höhner et al. [25].

2.2.1 Mechanische Ersatzmodelle zur Kontaktkraftberechnung

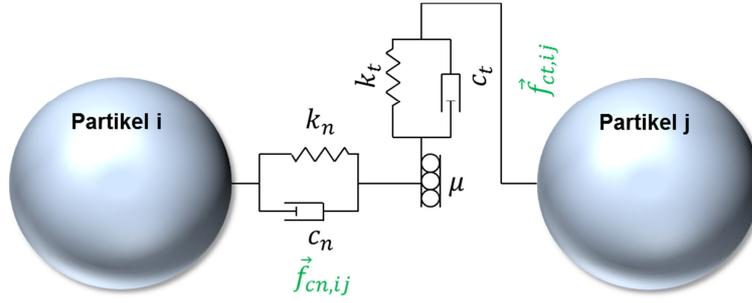


Abbildung 2.2: Mechanisches Ersatzmodell mit Feder, Dämpfer und Reibelementen für die Modellierung der Kontaktinteraktion in normaler und tangentialer Richtung.

Die Berechnung der Kontaktkräfte kann mit unterschiedlichen Modellen erfolgen, was Di Renzo und Di Maio [26] und Kruggel-Emden et al. [27] mit ausführlichen Vergleichen zeigen. Grundlage zur Berechnung der Kontaktkräfte bilden dabei immer mechanische Ersatzmodelle, welche die Partikelwechselwirkungen als Kombination von Feder-, Dämpfer- und Reibelementen beschreiben (Abbildung 2.2). Die Kontaktkraft in Normalenrichtung $\vec{f}_{cn,ij}$ setzt sich dabei grundsätzlich aus einem parallel geschalteten Feder-Dämpfer-System zusammen und wirkt in Richtung der Verbindungslinie der Kugelmittelpunkte, die durch den Normalenvektor \vec{n}_{ij} vom Zentrum der Partikel i in Richtung der Partikel j beschrieben wird (vergleiche hierzu auch Abbildung 2.1). Das Federelement dient zur Modellierung des Anteils an kinetischer Energie, der in der Partikel als Folge der reversiblen Verformung potentiell gespeichert wird. Demgegenüber beschreibt der dämpfende Term den Anteil an kinetischer Energie, der während der Kollision als Funktion von der Geschwindigkeit in andere Energieformen wie z.B. Wärme dissipiert. Mathematisch resultiert die Kontaktkraft in Normalenrichtung aus der Summe des Feder- und Dämpferterms

$$\vec{f}_{cn,ij} = \underbrace{(-k_n \delta_n)}_{\text{Feder}} - \underbrace{c_n u_{n,ij}}_{\text{Dämpfer}} \vec{n}_{ij}, \quad (2.4)$$

wobei k_n die Federsteifigkeit, c_n die Dämpfungskonstante und $u_{n,ij}$ die Geschwindigkeit von Partikel i relativ zu Partikel j in Normalenrichtung beschreibt. In Analogie zur Normierung des Relativgeschwindigkeitsvektor zwischen den beiden Partikeln

$$\vec{u}_{ij} = \frac{\vec{u}_j - \vec{u}_i}{|\vec{u}_j - \vec{u}_i|} \quad (2.5)$$

ist der Vektor in Kontaktnormalenrichtung über die Positionen der Kugelmittelpunkte definiert:

$$\vec{n}_{ij} = \frac{\vec{p}_j - \vec{p}_i}{|\vec{p}_j - \vec{p}_i|}. \quad (2.6)$$

Der Anteil der Geschwindigkeit in Normalenrichtung ergibt sich dann im Kontaktpunkt mit

$$\vec{u}_{n,ij} = \vec{n}_{ij}(\vec{n}_{ij}\vec{u}_{ij}) = \vec{n}_{ij}u_{ij}. \quad (2.7)$$

Die senkrecht zur Normalkraft wirkende tangentielle Komponente $\vec{f}_{ct,ij}$ ist ebenfalls über ein paralleles Feder-Dämpfer-System mit einem zusätzlich in Reihe geschalteten Reibelement modelliert. Dabei dienen das Feder-Dämpfer-System zur Beschreibung der interpartikulären Haftreibung im Kontaktpunkt und das Reibelement zur Beschreibung der Gleitreibung. Dies ist notwendig, um die Zustände zweier haftender Partikeln mit denen zweier gleitenden zu unterscheiden. In Analogie zur Normalkraft ergibt sich die tangentielle Kontaktkraft

$$\vec{f}_{ct,ij} = \underbrace{(-k_t\delta_t)}_{\text{Feder}} - \underbrace{c_t u_{t,ij}}_{\text{Dämpfer}} \vec{t}_{ij} \quad (2.8)$$

aus der tangentialen Kontaktsteifigkeit k_t , der tangentialen Dämpfungskonstanten c_t sowie der tangentialen Relativgeschwindigkeit $u_{t,ij}$ und dem Tangentialvektor \vec{t}_{ij} . Da sich die Partikeln im Kontaktpunkt nicht nur translatorisch in der Tangentialebene bewegen, sondern auch einer rotatorischen Bewegung folgen, ergibt sich die tangentielle Relativgeschwindigkeit

$$\vec{u}_{t,ij} = u_{t,ij}\vec{t}_{ij} = \vec{u}_{ij} - \vec{u}_{n,ij} + (r_i\vec{\omega}_i + r_j\vec{\omega}_j) \times \vec{n}_{ij} \quad (2.9)$$

unter Berücksichtigung der beiden Winkelgeschwindigkeiten $\vec{\omega}_i$ und $\vec{\omega}_j$. Mit bekannter Relativgeschwindigkeit lässt sich der tangentielle Einheitsvektor $\vec{t}_{ij} = \vec{u}_{t,ij}/|\vec{u}_{t,ij}|$ berechnen. Zusätzlich ist die tangentielle Verschiebung δ_t notwendig, die zwar eine geometrische Abmessung darstellt aber nicht explizit aus den Partikelpositionen bestimmt werden kann. Zur Berechnung wird daher die tangentielle Relativgeschwindig-

keit über die Zeitschrittweite dt integriert, sodass sich die tangentielle Verschiebung als Längenmaß ergibt [28, 29]:

$$\delta_t = \int^{dt} u_{t,ij} dt . \quad (2.10)$$

Überwiegt die Haftreibung im Kontaktpunkt findet keine relative tangentielle Beschleunigung statt. Erst wenn die tangentielle Haftkraft das Produkt aus Reibungskoeffizient μ und Normalkraft nach dem Coulomb'schen Gesetz überschreitet, tritt Gleitreibung auf

$$|\vec{f}_{ct,ij}| = k_t \delta_t > \mu |\vec{f}_{cn,ij}| . \quad (2.11)$$

In jedem Iterationsschritt wird in Abhängigkeit von der Haftreibung eine Einzelfallanalyse durchgeführt, um festzustellen, ob der Energieverlust durch Dämpfung während der Haftreibung entsteht oder infolge des Gleitens

$$\vec{f}_{ct,ij,new} = \begin{cases} -k_t \delta_t \vec{t}_{ij} - c_t \vec{u}_{t,ij} & \text{falls Haftreibung: } k_t \delta_t \leq \mu |\vec{f}_{cn,ij}| \\ -\mu |\vec{f}_{cn,ij}| \vec{t}_{ij} & \text{falls Gleitreibung: } k_t \delta_t > \mu |\vec{f}_{cn,ij}| \end{cases} . \quad (2.12)$$

Die nach Tsuji et al. [30] dargestellten mechanischen Ersatzmodelle beschreiben in Form von Feder- und Dämpferelementen die kinetische Energiespeicherung als auch die Dissipation sowohl in normaler als auch tangentialer Richtung über den verknüpfenden Wechselwirkungsparameter μ . Offen sind noch die Ansätze zur Berechnung der Federsteifigkeiten und Dämpfungskonstanten.

2.2.2 Steifigkeits- und Dämpfungskonstanten

Unter Druck- oder Stoßbeanspruchung einer realen, ideal kugelförmigen Partikel bildet sich eine runde Kontaktfläche unter Deformation der Partikeloberfläche aus. In der Kontaktzone entsteht eine Druckverteilung, die eine elastische, eine elastisch-plastische oder eine rein plastische Verformung in Abhängigkeit der mechanischen Eigenschaften der beiden Kontaktpartner verursacht. Im elastischen Fall tritt nach Hertz [31] eine lokale Deformation mit elliptischer Druckverteilung $p(r)$ innerhalb der Kontaktfläche auf

$$p(r) = p_0 \left[1 - \left(\frac{r}{a} \right)^2 \right]^{1/2} . \quad (2.13)$$

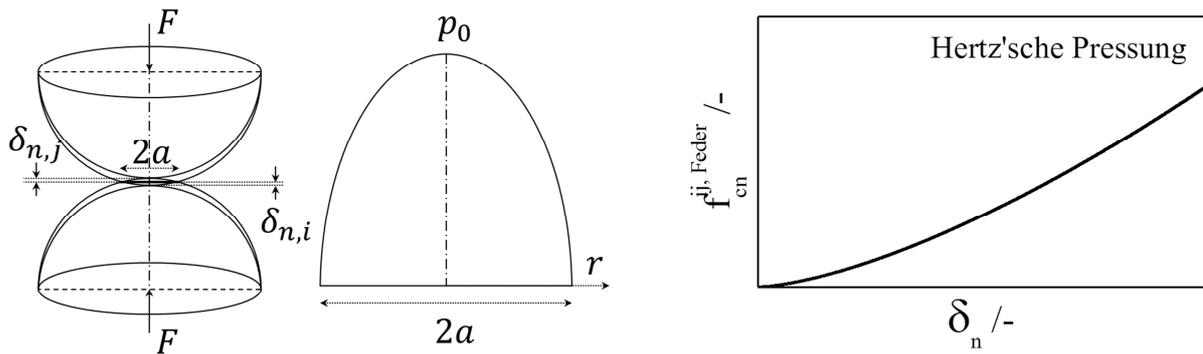


Abbildung 2.3 links: Kontaktzone zweier sphärischer Partikeln mit der zugehörigen elliptischen Druckverteilung nach Hertz² [31] in Anlehnung an die Darstellung von Mishra [32]. Rechts ist der zugehörige Kraft-Verschiebungs-Verlauf gezeigt.

Auf der linken Seite zeigt Abbildung 2.3 die Deformation im Kontaktbereich $2a$ und mittig die Druckverteilung mit maximalem Anteil p_0 im Zentrum bei der radialen Koordinate $r = 0$. Die Integration der Druckverteilung über den Segmentradius a liefert den Zusammenhang zwischen maximalem Druck und dem Betrag der Kontaktkraft

$$f_{cn,ij}^{Feder} = \int_0^a p(r) 2\pi r dr = \frac{2}{3} p_0 \pi a^2. \quad (2.14)$$

Über den Elastizitätsmodul $E_{i \text{ oder } j}$, der die Proportionalität zwischen Spannung und Dehnung bei Verformung eines Festkörpers beschreibt, und der Querkontraktionszahl $\nu_{i \text{ oder } j}$, die das Verhältnis zwischen Längs- und Querdehnung charakterisiert, kann die Deformation in Normalenrichtung als Funktion der radialen Koordinate berechnet werden [31]

$$\delta_{n,i \text{ oder } j}(r) = \frac{\pi p_0 (1 - \nu_{i \text{ oder } j}^2)}{4 E_{i \text{ oder } j} \cdot a} (2a^2 - r^2). \quad (2.15)$$

Gemäß der Tatsache, dass die maximale Deformation δ_n im Zentrum auftritt, folgen die Randbedingungen

$$\delta_{n,i}(r) + \delta_{n,j}(r) = \delta_n - \frac{r^2}{2r_{ij}} \quad (2.16)$$

² Heinrich Rudolf Hertz (*22. August 1857; †1. Januar 1894), deutscher Physiker dem der Nachweis elektromagnetischer Wellen als Erstem gelang.

mittels der Definition des reduzierten Radius r_{ij}

$$\frac{1}{r_{ij}} = \frac{1}{r_i} + \frac{1}{r_j}. \quad (2.17)$$

Für den biaxialen Spannungszustand zweier homogener, isotroper, nicht-auxetischer Materialien ($\nu > 0$) folgt ein stets reduzierter E-Modul, der sich additiv aus beiden Kontaktpartnern zusammensetzt

$$\frac{1}{E_{ij}} = \frac{1 - \nu_i^2}{E_i} + \frac{1 - \nu_j^2}{E_j}, \quad (2.18)$$

sodass sich aus den normalen Verschiebungen (Gleichung (2.15)) am Rand ($r = a$) und im Zentrum ($r = 0$) folgende Beziehungen ergeben

$$a = \frac{\pi p_0 r_{ij}}{2E_{ij}}, \quad \delta_n = \frac{\pi p_0 a}{2E_{ij}}, \quad (2.19)$$

aus denen die Kraft-Verschiebungs-Kurve in Abbildung 2.3 rechts entsprechend

$$f_{cn,ij}^{Feder} = k_n \delta_n = \frac{4}{3} E_{ij} r_{ij}^{0,5} \delta_n^{1,5} \quad (2.20)$$

folgt. Nach Hertz ändert sich die lineare Abhängigkeit hin zum Potenzgesetz, da die Kontaktsteifigkeit im Kugelkontakt selbst von der Überlappung abhängt. Einen vergleichsweise simpleren Zusammenhang liefert das in der Überlappung linear skalierende Gesetz nach Hook. Kruggel-Emden et al. [27] führen einen ausführlichen Vergleich zwischen linearen und nicht-linearen Kontaktmodellen durch, wobei sich eine höhere Genauigkeit mit nicht-linearen Modellen vor allem bei multiplen Partikelkontakten ergibt.

Zur Berechnung der normalen Dämpfungskonstanten schlagen Cundall und Strack [10] eine einfache Wurzelfunktion in Abhängigkeit der Kontaktsteifigkeit und der reduzierten Masse m_{ij} vor, die Ting und Corkum [33] um die experimentell zu bestimmende Stoßzahl e und Raji [34] um den empirischen Vorfaktor $(5/6)^{0,5}$ erweitern

$$c_n = 2 \left(\frac{5}{6} \right)^{0,5} \frac{-\ln e}{(\ln^2 e + \pi^2)^{0,5}} (m_{ij} k_n)^{0,5}, \quad (2.21)$$

$$\frac{1}{m_{ij}} = \frac{1}{m_i} + \frac{1}{m_j}. \quad (2.22)$$

Als Stoßzahl versteht sich das Verhältnis der Geschwindigkeiten unmittelbar nach und vor dem Stoß und gilt somit als globales Maß für die Elastizität eines Kontakts. Gegenüber vollkommen elastischer Kontakte mit einer charakteristischen Stoßzahl $e = 1$ nehmen inelastische Kontakte, bei denen die kinetische Energie vollständig dissipiert, Werte von $e = 0$ an. Zur Beschreibung der Stoßzahlen existiert eine Vielzahl an Untersuchungen, die meist darauf beruhen, die zurückgelegten Wege vor und nach dem Stoß mittels Hochgeschwindigkeitskameras zu berechnen. Die Arbeitsgruppen um Antonyuk und Heinrich messen derartig sowohl Stoßkoeffizienten in normaler und tangentialer Richtung [35] als auch auf benetzten Oberflächen [36-38] und zeigen, dass die Stoßzahl sowohl von der Kontaktgeschwindigkeit und der Materialpaarung abhängen kann.

In tangentialer Richtung empfehlen Tsuji et al. [30] und Raji [34] dieselbe Korrelation zur Berechnung der tangentialen Dämpfungskonstanten

$$c_t = 2 \left(\frac{5}{6} \right)^{0,5} \frac{-\ln e}{(\ln^2 e + \pi^2)^{0,5}} (m_{ij} k_t)^{0,5}, \quad (2.23)$$

wobei die darin enthaltene tangentielle Federsteifigkeit k_t nach der elastischen Kontakttheorie von Mindlin [39] wiederum eine Funktion der normalen Überlappung und des reduzierten Schubmoduls G_{ij} ist

$$k_t = 8G_{ij}(r_{ij}\delta_N)^{0,5}. \quad (2.24)$$

Bei linear-elastischen, isotropen Materialien steht der Schubmodul mit der Querkontraktion und dem Elastizitätsmodul in folgender Beziehung

$$G = \frac{1}{2(1+\nu)} E. \quad (2.25)$$

Ausgehend vom Kreuzprodukt aus dem Partikelradius und der im Kontaktpunkt wirkenden Tangentialkraft lässt sich das auf die Partikel i wirkende Drehmoment \vec{T}_{ij} berechnen und in die Bewegungsgleichung (2.2) implementieren. Durch die rotierende Bewegung der Partikeln kann ein zusätzliches Moment infolge des Rollwider-

standes resultieren, dass nach Zhou et al. [20] eine verbesserte Genauigkeit verspricht und mit Hilfe des Rollreibungskoeffizienten μ_r zu berechnen ist

$$\vec{T}_{ij} = \underbrace{r_i \cdot \vec{f}_{ct,ij}}_{\text{Gleit- oder Haftreibung}} - \underbrace{\mu_r \vec{f}_{cn,ij} \cdot r_i}_{\text{Rollreibung}}. \quad (2.26)$$

Die gezeigten Gleichungen (2.3)-(2.26) dienen im Rahmen dieser Arbeit zur Berechnung der elastischen Partikelwechselwirkungen basierend auf den Ideen von Hertz [31] und den Weiterentwicklungen von Tsuji et al. [30]. Neben dem erläuterten Modell entwickelten Mindlin und Deresiewicz [40], Walton und Braun [41] und Johnson [42] Kontaktmodelle, die zum Beispiel auch die linear elastisch-plastische oder nicht-linear elastisch-plastische Verformung abbilden, sodass unterschiedliche Kraft-Verschiebungs-Verläufe für den belastenden und entlastenden Zustand eintreten. Eine übersichtliche Zusammenstellung existierender Kraft-Deformationsmechanismen, die sich hauptsächlich im Grad der Komplexität unterscheiden, zeigt Tomas [43] auf der Mikroskala.

2.3 Kontaktdetektion

Bei Gleichkornpartikeln steigt der Rechenaufwand zur Kontaktermittlung quadratisch mit der Anzahl der Partikeln, sodass eine automatische, rechenzeitoptimierte Kontaktdetektion eine Kernkomponente für effiziente DEM-Simulationen darstellt. Ziel ist es durch eine Vorsortierung alle nicht möglichen Kontakte auszuschließen. Einerseits stehen hierzu Verlet-Listen und andererseits zellbasierte Methoden zur Verfügung. Wie schematisch in Abbildung 2.4 links dargestellt, ordnet die Verlet-Listen Methode, die ursprünglich für molekular-dynamische Simulation entwickelt wurde [44], jeder Partikel einen Beobachtungsradius zu, in dem sich mögliche Kontaktpartner befinden können. Bei dicht gepackten Schüttgütern mit Mehrpartikelkontakten eignet sich die zellbasierte Methode [45, 46], in Abbildung 2.4 rechts dargestellt. Hierbei wird das Rechengebiet in viele kubische Zellen unterteilt, die im kartesischen Koordinatensystem angeordnet sind. Dieser Kontakterkennungsalgorithmus ist standardmäßig in der Software EDEM 2.7-3.0 von DEM Solutions Ltd. aus Edinburgh implementiert und im Folgenden kurz erklärt.

Der Sortieralgorithmus ordnet vorübergehend jede Partikel nach ihrer Position einer oder mehreren Zellen entsprechend ihres Gitterindex zu. In Abbildung 2.4 auf der rechten

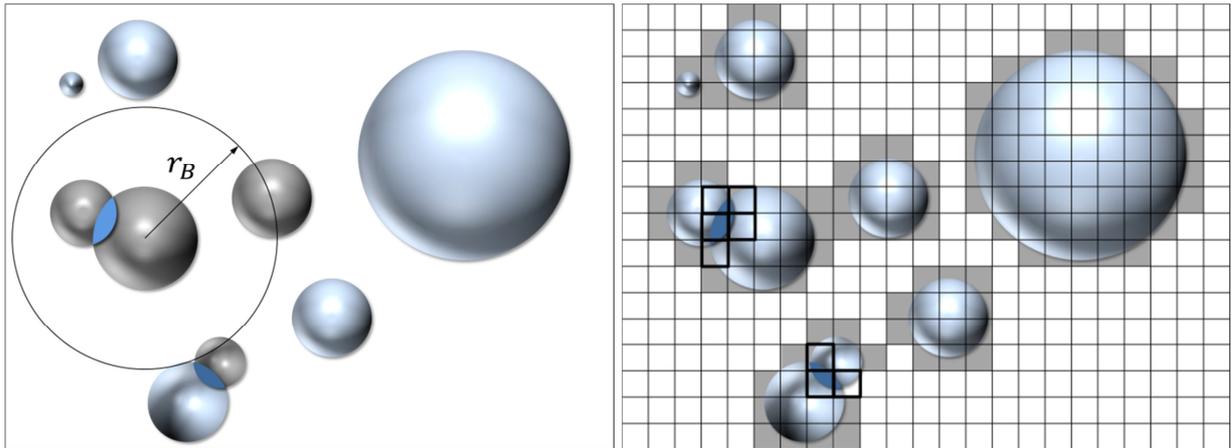


Abbildung 2.4: Schematische 2D-Darstellung der Verlet-Liste links und zellbasierten Kontaktdetektion rechts.

Seite entspricht dies den hellgrau eingefärbten Quadraten. Anschließend wird eine Nachbarschaftsliste für alle Partikeln generiert, in welcher die Kontaktpaarungen gespeichert werden. Hierzu ist die zu der Partikel zugehörige Zelle lediglich mit den benachbarten 27 Gitterzellen ($3 \times 3 \times 3$) auf mögliche Kontaktpartner durch Berechnung des Partikelabstandes zu überprüfen. Da ein Kontakt möglicherweise über mehrere Zellen hinweg existieren kann, gilt es ein mehrfaches Schreiben der Kontaktpaarungen zu vermeiden. Die Newton'schen Bewegungsgleichungen ließen sich in Kombination mit den Kontaktmodellen auch ohne Gitter zeitschrittgesteuert lösen, allerdings einhergehend mit deutlich größeren Simulationszeiten. Für weiterführende Information zu den Erzeugungsmethoden von Nachbarschaftslisten sei auf die Arbeiten von Gan et al. [47] verwiesen, die mittels hierarchischer Gitterstrukturen die parallelisierte Generierung von Nachbarschaftslisten zur Berechnung auf Grafikkarten weiterentwickeln. Bei großen Partikelgrößenunterschieden können auch multiple Gitter mit variabler Auflösung ein rechenzeit-optimiertes Ergebnis liefern [48]. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein äquidistantes Gitter mit einer Zellgröße gewählt, die dem 3,5-fachen des kleinsten Partikelradius entspricht.

2.4 Zeitintegration

2.4.1 Zeitschrittweite

Neben dem Algorithmus zur Kontaktdetektion hat vor allem die Zeitschrittweite einen erheblichen Einfluss auf die numerische Stabilität und die Genauigkeit des Simulationsergebnisses. Hoch gewählte Zeitschritte reduzieren zwar die Gesamtsimulationsdauer, können aber zur unvollständigen Auflösung eines Kontaktes führen. In diesem Fall stehen nur wenige Datenpunkte zur Beschreibung des Kraft-Weg-Verlaufes zur Verfügung, was zu großen virtuellen Überlappungen führen kann, die wiederum hohe Federkräfte und starke Partikelbeschleunigungen zur Folge haben. In dicht gepackten Schüttgütern potenzieren sich in anschließenden Zeitschritten dann unrealistisch hohe Federkräfte, die bis hin zum Masseverlust über den Rand des Berechnungsgebiets führen können.

Zur Gewährleistung stabiler Simulationsbedingungen ist eine kritische Zeitschrittweite festzulegen, die sich als Eigenfrequenz in Abhängigkeit der Eigenschaften einer schwingenden Masse ergibt [32]

$$dt_{krit} = 2\pi\sqrt{m_i/k_n}, \quad (2.27)$$

worin k_n die Steifigkeit der schwingenden Masse m_i beschreibt. Praktisch übertragen auf partikuläre Systeme ist die kleinste Partikelmasse und die höchste Kontaktsteifigkeit zu verwenden. Da in dicht gepackten Schüttgütern meist mehrere Kontaktstellen an einer Partikel vorkommen und somit hohe Koordinatenzahlen vorliegen, hat sich eine Reduktion der Zeitschrittweite auf 5 bis 20 % des kritischen Zeitschritts etabliert [29, 49]. Häufig zu beobachten ist auch der Versuch durch Reduktion der Materialsteifigkeiten eine Minimierung der Zeitschrittweite und der damit einhergehenden Simulationsdauer zu erzielen. Je nach Partikelgeschwindigkeiten kann dies vorteilhaft [50] aber auch nachteilig sein [51] und ist individuell in Abhängigkeit des Anwendungsfalles zu beurteilen. In der Simulationssoftware EDEM 2.7 bis 3.0 erfolgt die Integration mittels explizitem Euler-Verfahren bei konstanter Zeitschrittweite nach der empirischen Gleichung [52]

$$dt_{krit} = \frac{\pi r_i \sqrt{\rho_s / G}}{0,1613v + 0,8766}, \quad (2.28)$$

worin der Partikelradius r_i , der Schubmodul G , die Feststoffdichte ρ_s und die Querkontraktionszahl ν als Eingabeparameter eingehen. Auf diese Weise kann die Abhängigkeit der Federsteifigkeit von der virtuellen Überlappung (vergleiche Gleichung (2.20)) zur Abschätzung der Zeitschrittweite umgangen und direkt aus den Materialparametern berechnet werden. Neben den Parametern können auch hohe Wandgeschwindigkeiten, zum Beispiel durch schnelldrehende Bauteile, die Zeitschrittweite maßgeblich beeinflussen.

2.4.2 Euler- und Verlet-Algorithmus in Geschwindigkeitsform

Die Definition der Zeitschrittweite dt stellt das Stabilitätskriterium für die numerische Zeitintegration dar, die sich mit Hilfe einer Vielzahl an expliziten numerischen Verfahren durchführen lässt. Standardmäßig stehen in der Simulationssoftware EDEM 2.7 bis 3.0 zwei Integrationsmethoden zur Verfügung, um die gewöhnlichen Differentialgleichungen zu lösen. Das Euler-Verfahren ist der einfachste Algorithmus mit gleichzeitig größtem Fehler. Höhere Genauigkeiten lassen sich mit dem Verlet-Algorithmus in Geschwindigkeitsform bei höherem Rechenaufwand erzielen. Unabhängig von der Zeitintegrationsmethode ist die Newton'sche Bewegungsgleichung zu lösen, die die Beschleunigung der Masse m_i als Folge der resultierenden angreifenden Kraft $\vec{f}_{r,i}$ zum Zeitpunkt t an der Stelle \vec{p}_i wiedergibt

$$m_i \ddot{\vec{p}}_i(t) = \vec{f}_{c,i}(\vec{p}_i(t)) . \quad (2.29)$$

Für die numerische Effizienz ist es zweckmäßig, die Differentialgleichung zweiter Ordnung in ein gekoppeltes System zweier Differentialgleichungen erster Ordnung zu überführen

$$m_i \dot{\vec{u}}_i(t) = \vec{f}_{c,i}(\vec{p}_i(t)) , \quad (2.30)$$

$$\dot{\vec{p}}_i(t) = \vec{u}_i(t) , \quad (2.31)$$

worin die Punktnotation die einfache Ableitung nach der Zeit t und \vec{u}_i den Geschwindigkeitsvektor darstellen. Zur Lösung des Differentialgleichungssystems ergeben sich die Orte und Geschwindigkeiten zum folgenden Zeitpunkt nach Euler aus der aktuell vorliegenden Position, Geschwindigkeit und Partikelbeschleunigung

$$\vec{u}_i(t + dt) = \vec{u}_i(t) + \frac{\vec{f}_{c,i}(\vec{p}_i(t))}{m_i} dt, \quad (2.32)$$

$$\vec{p}_i(t + dt) = \vec{p}_i(t) + \vec{u}_i(t) dt. \quad (2.33)$$

Da die Orte und ihre Ableitungen am Anfang des Zeitintervalls berechnet und lediglich Polynome erster Ordnung korrekt abgebildet werden, steigt der Fehler quadratisch mit zunehmender Zeitschrittweite dt . Bei gleicher Zeitschrittweite wird im Verlet Algorithmus in Geschwindigkeitsform die höhere Genauigkeit durch den zusätzlichen Beschleunigungsterm zweiter Ordnung in der Partikelposition erzielt

$$\vec{p}_i(t + dt) = \vec{p}_i(t) + \vec{u}_i(t) dt + \underbrace{\frac{1}{2} \dot{\vec{u}}_i(t) dt^2}_{\text{Beschleunigung}}. \quad (2.34)$$

Ausgehend von der aktuellen Beschleunigung $\dot{\vec{u}}_i(t)$ berechnet sich die Geschwindigkeit in einem Zwischenschritt jedoch zunächst nach einem halben Zeitschritt

$$\vec{u}_i\left(t + \frac{dt}{2}\right) = \vec{u}_i(t) + \frac{1}{2} \dot{\vec{u}}_i(t) dt. \quad (2.35)$$

Anschließend folgt die neue Beschleunigung basierend auf der Kraft $\vec{f}_{r,i}$ am bereits berechneten Ort $\vec{p}_i(t + dt)$

$$\dot{\vec{u}}_i(t + dt) = -\frac{1}{m_i} \vec{f}_{c,i}(\vec{p}_i(t + dt)). \quad (2.36)$$

Einen weiteren halben Zeitschritt später resultiert dann die Geschwindigkeit aus der aktuellen und folgenden Beschleunigung:

$$\vec{u}_i(t + dt) = \vec{u}_i(t) + \frac{1}{2} \left(\dot{\vec{u}}_i(t) + \dot{\vec{u}}_i(t + dt) \right) dt. \quad (2.37)$$

Ob ein schnelleres oder genaueres Ergebnis mittels des entsprechenden Integrationschemas erfolgen soll, gilt es in Abhängigkeit des Anwendungsfalls zu prüfen. Um Rechenzeit zu sparen, kam im Rahmen dieser Arbeit hauptsächlich die Euler-Methode zum Einsatz.

2.5 Material- und Wechselwirkungsparameter

Die vorherigen Unterabschnitte veranschaulichen, dass sowohl Material- als auch Wechselwirkungsparameter die numerische Simulation maßgeblich beeinflussen. Die modellunabhängigen Materialparameter stehen in der Regel durch Materialdatenbanken oder durch Stoffdatenblätter von Seiten der Hersteller zur Verfügung und lassen sich unter anderem mit Standardverfahren der Werkstoffprüfung messen. In Tabelle 2.1 sind die verwendeten Materialparameter für den aus Stahl gefertigten Mischapparat und für die Glasparkeln als Modellmischungskomponenten zusammengefasst.

Tabelle 2.1: Materialparameter für Stahl und Glas.

	Wert	Einheit
Feststoffdichte $\rho_{s,Glas}$	2500	kg/m ³
Feststoffdichte $\rho_{s,Stahl}$	7800	kg/m ³
Querkontraktionszahl ν_{Glas}	0,25	-
Querkontraktionszahl ν_{Stahl}	0,30	-
Elastizitätsmodul E_{Glas}	63	GPa
Elastizitätsmodul E_{Stahl}	208	GPa

Gegensätzlich zu den Materialparametern beschreiben die Wechselwirkungsparameter modellabhängige Größen in Abhängigkeit der Materialpaarung. Hierzu zählen einerseits die Stoßzahlen – auch Restitutionskoeffizienten genannt – als Grad der Kontaktelastizität und andererseits die Reibungskoeffizienten μ zur Beschreibung des Energieverlustes in Folge von Reibung. Der Restitutionskoeffizient, dessen Ermittlung meist mit Hilfe von Kugel-Wand-Fallversuchsapparaturen und Hochgeschwindigkeitskameras erfolgt, nimmt Werte zwischen null und eins an, je nachdem, ob ein vollkommen inelastischer oder rein elastischer Stoß auftritt. Bei den Reibungskoeffizienten ist einerseits zwischen translatorischer sowie rotatorischer Bewegung und andererseits entsprechend der Coulomb'schen Reibung zwischen ruhenden oder relativ bewegten Partikeln zu differenzieren. Obwohl sowohl Haft- als auch Gleitreibungskoeffizienten messtechnisch mittels Kugel-Scheibe-Tribometrie erfasst werden können, ist für die Simulationen lediglich ein Gleitreibungskoeffizient notwendig, da das mechanische Ersatzmodell über die Feder-Dämpfer-Modellierung zwischen Partikelhaftung und -gleitung unterscheidet.

Zur Beschreibung des Abrollvorgangs der beiden Kontaktpartner ist die Eingabe des Rollreibungskoeffizienten μ_r als zusätzlicher Wechselwirkungsparameter erforderlich, der für ideal runde Partikeln über Messungen des Schüttwinkels erfolgt. Basierend auf bereits durchgeführten numerischen Untersuchungen zum Mischverhalten von Glaspartikeln im trockenen [53] und feuchten Zustand [54] können die Wechselwirkungsparameter nach Tabelle 2.2 zusammengefasst und entsprechend in dieser Arbeit Verwendung finden.

Tabelle 2.2: Gezeigt sind Wechselwirkungsparameter für die Materialpaarungen Glas/Glas und Stahl/Glas. Sofern nicht anderweitig deklariert, stellt diese Tabelle die Standardparameter für die Simulationen in den folgenden Kapiteln dar.

	Wert	Einheit
Restitutionskoeffizient $e_{Glas,Glas}$	0,75	-
Restitutionskoeffizient $e_{Stahl,Glas}$	0,7	-
Gleitreibungskoeffizient $\mu_{Glas,Glas}$	0,5	-
Gleitreibungskoeffizient $\mu_{Stahl,Glas}$	0,32	-
Rollreibungskoeffizient $\mu_{r,Glas,Glas}$	0,005	-
Rollreibungskoeffizient $\mu_{r,Stahl,Glas}$	0,02	-

Neben der Materialpaarung können die Wechselwirkungsparameter auch von weiteren Einflussfaktoren abhängen. Der Restitutionskoeffizient kann zum Beispiel mit steigender Kontaktgeschwindigkeit stark abnehmen, da zunehmend größere Anteile an kinetischer Energie irreversibel durch plastische Verformung dissipieren. Unter anderem kann auch die Form der Kontaktpartner maßgeblichen Einfluss auf den Wert des Restitutionskoeffizienten ausüben [55], während die Reibungskoeffizienten als konstante Parameter gelten. Praktisch zeigt sich jedoch, dass Oberflächenveränderungen bei gleichbleibender Geschwindigkeits- und Druckbelastung eine gewisse Abhängigkeit des Reibungskoeffizienten suggerieren könnten, obwohl diese lediglich von der Materialpaarung abhängen. Eine ausführliche Sensitivitätsanalyse hinsichtlich des Einflusses des Geschwindigkeitsfeldes auf die Wechselwirkungsparameter zeigt Piechatzek [29] in Rührwerkskugelmöhlen mit dem Ergebnis, dass den Restitutionskoeffizienten und den Materialsteifigkeiten die größte Bedeutung zukommt. Bei geringen Kontaktgeschwindigkeiten reicht die größenordnungsmäßig richtige Bestimmung der Wechselwirkungsparameter aus.

2.6 Zusammenfassung

Die Diskrete Elemente Methode erfuhr im letzten Jahrzehnt eine rasante Entwicklung. Basierend auf der zeitschrittgesteuerten alternierenden Lösung der Newton'schen Bewegungsgleichungen und der Anwendung von Kontaktgesetzen lässt sich das dynamische Verhalten von Schüttgütern durch Abbilden diskreter Elemente numerisch untersuchen. Vorhandene DEM-Programme unterscheiden sich dabei im Wesentlichen in den Kontaktdetektionsalgorithmen und den Modellen zur Berechnung der Kontaktkräfte. Das erläuterte Hertz-Mindlin Modell, implementiert in EDEM 2.7 bis 3.0, kommt mit den gezeigten Material- und Wechselwirkungsparametern im Rahmen dieser Arbeit zur Untersuchung von diskontinuierlichen Feststoffmischprozessen zum Einsatz.

Kapitel 3

Grundlagen zu diskontinuierlichen Feststoffmischprozessen

Nur selten ist es möglich eine Mischung auf einen Blick als Ganzes zu bewerten. In der Regel sind Proben zu ziehen und außerhalb des Mischraumes hinsichtlich ihrer Zusammensetzung zu analysieren. Dabei schwanken die Zusammensetzungen statistisch um einen Mittelwert. Je kleiner die Schwankungsbreite der Probenzusammensetzungen ausfällt, desto homogener ist die Mischung. Das heißt, dass die Probenzusammensetzungen möglichst exakt mit der Grundgesamtheit der Mischung übereinstimmen. Die Kennzeichnung und Beurteilung einer Mischung basiert demzufolge auf statistischen Größen.

3.1 Statistische Kennzeichnung von Mischungen

3.1.1 Mischungszustände und Mischgüte

Exemplarisch sei eine Mischung bestehend aus zwei Komponenten (rot und grau) in Abbildung 3.1 betrachtet. Prinzipiell ist die vereinfachte Betrachtung zweier Komponenten auch in Mehrstoffgemischen möglich, da in den meisten Fällen lediglich die Verteilung eines Additivs interessant ist, selbst wenn im Füllmaterial mehrere unterschiedliche Bestandteile vorhanden sind. Alle uninteressanten Anteile werden dann innerhalb einer Komponente, dem Füllmaterial, zusammengefasst. Nach Abbildung 3.1

links, liegt nach dem schrittweisen Dosieren des Füllmaterials und des Additivs der vollständig entmischte Anfangszustand vor, in dem die gezogenen Proben lediglich eine der beiden Materialien enthalten. Das Ziel des Mischprozesses besteht darin, die beiden Komponenten so gegeneinander zu bewegen, dass die unmittelbaren Nachbarpartikeln andersartig sind und jede Probenzusammensetzung der Grundgesamtheit entspricht. Dieser als *ideale* Homogenität bezeichnete Zustand, dargestellt mittig in Abbildung 3.1, gilt als extrem unwahrscheinlich und ist in technischen Prozessen nur durch ordnende Kräfte wie entgegengesetzte Ladungen zu erreichen [56]. Infolge von zufälligen Platzwechselfvorgängen können auch direkte Nachbarpartikeln derselben Ausgangskomponente entsprechen, sodass die gleichmäßige Zufallsmischung – auch als *stochastische* Homogenität bezeichnet – die technisch bestmögliche Mischgüte darstellt (Abbildung 3.1 rechts).

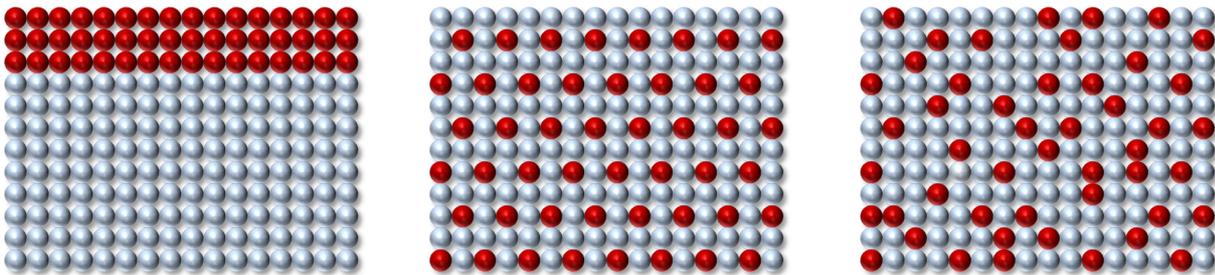


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung unterschiedlicher Mischungszustände. Links: Anfangszustand, der einer vollständigen Entmischung entspricht. Mitte: ideale Homogenität. Rechts: Stochastische Homogenität.

Zur Kennzeichnung der Mischungszustände ist die empirische Varianz $s_{N_p}^2$ oder auch mittlere quadratische Abweichung heranzuziehen, die sich aus dem Quadrat der Differenz zwischen Probenist- q_i und Probensollkonzentration q_{Soll} , gemittelt über die Anzahl der Proben N_p , ergibt:

$$s_{N_p}^2 = \frac{1}{N_p} \sum_{i=1}^{N_p} (q_i - q_{Soll})^2 . \quad (3.1)$$

Die empirische Varianz stellt als schwankende Zufallsvariable einen Schätzwert für die wahre Mischgüte - die theoretische Varianz σ^2 - dar, die sich als Erwartungswert $E(\sigma^2)$ bei unendlich häufiger Probenahme ergibt:

$$\sigma^2 = E(s^2) = \lim_{N_p \rightarrow \infty} \frac{1}{N_p} \sum_{i=1}^{N_p} (q_i - q_{Soll})^2 . \quad (3.2)$$

Bei großen Abweichungen zwischen der Probenist- und Probensollkonzentration ergeben sich hohe theoretische Varianzen und damit als inhomogen zu bewertende Mischungszustände. Folglich tritt im vollständig entmischten Zustand die größte und im stochastisch homogenen Zustand die kleinste Varianz auf. Die Varianzen der vollständigen Entmischung σ_0^2 und der stochastischen Homogenität σ_Z^2 lassen sich nach den folgenden Gleichungen berechnen:

$$\sigma_0^2 = q_{Soll}(1 - q_{Soll}) , \quad (3.3)$$

$$\sigma_Z^2 = q_{Soll}(1 - q_{Soll}) \frac{m_E}{m_p} = q_{Soll}(1 - q_{Soll}) \frac{\rho_s \cdot k_v \cdot M_{3,3}}{m_p} , \quad (3.4)$$

in welchen m_E die Einzelkorn- und m_p die Probenmasse beschreibt. Da Mischungen selten monodispers sind, sondern meist als größenverteilte Partikelfractionen vorliegen, modifizieren Sommer und Rumpf [57] die Berechnung der stochastischen Homogenität unter Einführung der Feststoffdichte ρ_s , des Volumenvorfaktors k_v und des dritten Moments der Volumendichteverteilung $M_{3,3}$, um die Einzelpartikelmasse über den Erwartungswert des mittleren Partikelvolumens berechnen zu können (vergleiche hierzu [56] und [58]). Abbildung 3.2 zeigt, dass neben der Einzelpartikelmasse die homogene Zufallsmischung von der Sollkonzentration und der Probenmasse abhängt. Mit steigender Probenmasse befinden sich zunehmend mehr Partikeln im Probenvolumen, was zur Reduktion der Varianz führt. Bei Verdopplung der Probenmasse in einer identischen Mischung halbiert sich die stochastische Homogenität. Wichtig ist also der Befund, dass die stochastische Homogenität kein absolutes Maß für die bestmögliche Mischgüte ist, sondern von der Probengröße, den gewünschten Konzentrationen und der Partikelgröße abhängt. Zur Beurteilung der Qualität einer Mischung kann sie als Grenzwert nur bei konstantem Probenvolumen herangezogen werden.

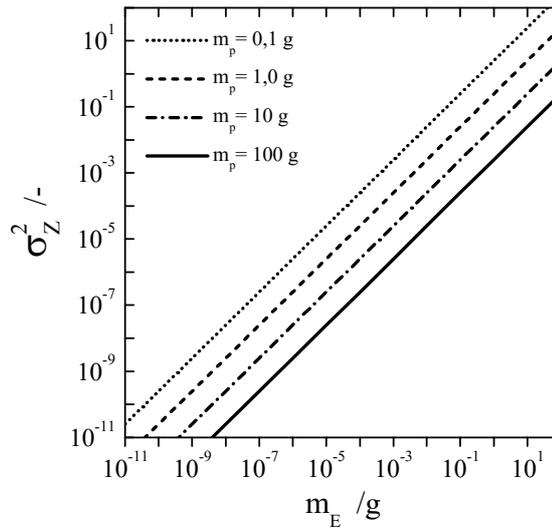


Abbildung 3.2: Varianz der stochastischen Homogenität als Funktion der Einzelkornmasse m_E und der Probemasse m_p bei konstanter Anzahlollkonzentration von $q_{\text{Soll}} = 0,5$.

3.1.2 Probennahme

Ist die Probe im Grenzfall so groß wie eine Partikel, kann lediglich eine Komponente vorliegen (rot oder grau). Im gegenteiligen Fall, wenn die Probe die Größe der gesamten Mischung besitzt, sind Proben- und Mischungszusammensetzung dieselbe. In beiden Fällen ist es nicht möglich eine Mischgüte zu bestimmen. Demzufolge muss die Probenmasse deutlich größer als die Einzelkornmasse, gleichzeitig aber viel kleiner als die Menge des gesamten Schüttguts \tilde{m}_{ij} sein

$$m_E \ll m_p \ll \tilde{m}_{ij} . \quad (3.5)$$

Zur Abschätzung der Probengröße ist Kenntnis von der Anwendung und Weiterverarbeitung der Mischung notwendig. Beim Herstellen von Tabletten ist beispielsweise die Probengröße anwendungsbezogen in Form der Tablettengröße festgelegt. Für die medikamentöse Wirkung ist maßgeblich, dass innerhalb jeder Tablette dieselbe Menge Wirkstoff vorhanden ist. Aus Sicht des Patienten ist es dabei irrelevant, ob der Wirkstoff auch homogen innerhalb der Tablette verteilt vorliegt. Im weiteren Prozessverlauf müssen hingegen Tablettier- und fließhilfsmittel gleichmäßig in der Probe verteilt sein, um eine anschließende, gleichbleibende Dosierung der Tablettiermaschine zu gewährleisten. Unter diesem Aspekt ist eine kleinere Probe zu wählen. Je nach Anwendungs- oder

Verarbeitungsfall ist demzufolge eine Ober- und Untergrenze der Probengröße festzulegen, sodass anwendungsbedingte Unterscheidungen möglich sind, aber nicht unnötig feine Probenzusammensetzungen gemessen werden. Neben der Probengröße sind auch der Ort und die Häufigkeit der Probennahme festzulegen. In absatzweise betriebenen Feststoffmischern sollte die Probenahme zufällig über den Ort verteilt sein, sodass die Charge ganzheitlich beurteilt wird und lokal auftretende Entmischungen detektiert werden können. Mehrere kleine sind dabei besser als eine größere Probe [59].

3.1.3 Mischgüterverlauf

Sind die Methoden zur Probennahme definiert, lässt sich die optimale Mischzeit anhand des zeitlichen Mischgüterverlaufs beurteilen. Hierzu sind die Probenzusammensetzungen $q_i(t)$, die an jedem Ort variieren und sich im Laufe der Zeit t ändern, außerhalb des Mischraumes zu analysieren und mit der vorgegebenen Sollzusammensetzung zu vergleichen. Die sich daraus ergebende Varianz bezogen auf die Sollkonzentration ergibt den Variationskoeffizienten RSD (engl. *relative standard deviation*) als Mischgütermaß – häufig auch relative Standardabweichung genannt. Im Vergleich zu anderen Mischgütermaßen (vergleiche Mischungsindex nach Lacey [60]) besteht hierbei der Vorteil in der direkten Vergleichbarkeit unterschiedlicher Sollkonzentrationen.

$$RSD = \frac{\sqrt{\sigma^2(t)}}{q_{Soll}} = \frac{\left(\frac{1}{N_p} \sum_{i=1}^{N_p} (q_i(t) - q_{Soll})^2 \right)^{0,5}}{q_{Soll}}. \quad (3.6)$$

Der prinzipielle Verlauf der Mischgüte ist in Abbildung 3.3 links gezeigt. Zu Beginn des Mischprozesses liegen die Ausgangskomponenten vollständig getrennt voneinander vor, gekennzeichnet durch die größtmögliche relative Standardabweichung $RSD_0 = \sqrt{\sigma_0^2(t)}/q_{Soll} = 1$. Mit fortschreitendem Mischprozess nimmt der Variationskoeffizient ab, bis ein stationärer Endwert erreicht wird, der idealerweise der gleichmäßigen Zufallsmischung $RSD_Z = \sqrt{\sigma_Z^2(t)}/q_{Soll}$ entspricht. Je nach Anwendung kann die Mindestmischgüte (Zielhomogenität) auch höher liegen und frühzeitig erreicht werden. In diesem Fall ist es ausreichend den Mischprozess früher zu beenden. Abbildung 3.3 zeigt rechts, dass sich die Komponenten aufgrund von unterschiedlichen Partikeleigenschaften derart gegeneinander bewegen können, dass die gleichmäßige Zufallsmischung nicht immer erreicht werden kann. Besonders empfindlich für solch ein Verhalten sind frei

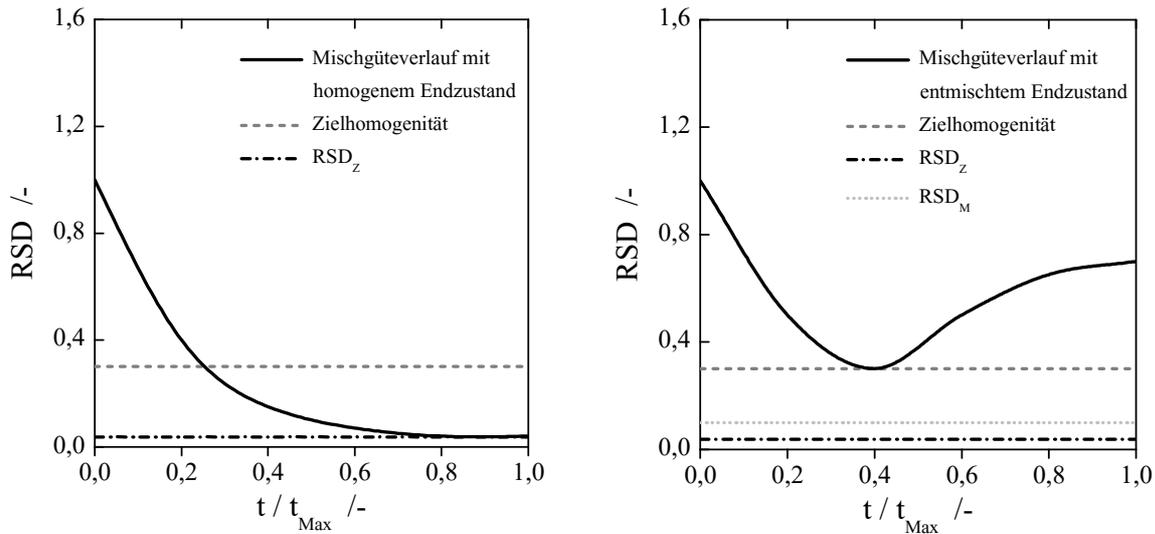


Abbildung 3.3: Prinzipieller Mischgüteverlauf in dimensionsloser Auftragung der Zeit mit homogenem (links) und inhomogenem Endzustand (rechts).

fließende, kohäsionslose Schüttgüter mit breiten Partikelgrößenverteilungen. Schwerkraftbedingt haben kleinere und leichtere Partikeln eine höhere Beweglichkeit als größere und schwerere Komponenten, wodurch ein ungleiches Transportverhalten im Mischraum entsteht. Dieses ungleiche Transportverhalten kann positiv wirken und die Qualität der Mischung kurzfristig erhöhen. In diesem Fall ist die vereinbarte Zielhomogenität zwar erreicht, zu langes Mischen kann jedoch wieder zur Entmischung führen. Praktisch wirkt man diesem Verhalten durch eine Angleichung der Partikelform und -größe durch vorgeschaltete Agglomeration oder durch haftkraftvergrößernde Maßnahmen, wie dem Anfeuchten des Schüttguts, entgegen.

3.1.4 Messungenaugigkeit

Zur statistischen Charakterisierung einer Mischung ist zudem auch die Genauigkeit des Messverfahrens bzw. der dabei gemachte Fehler zu kennen. Ein exakt richtiges Messen ist grundsätzlich nicht möglich, da der gemessene Wert immer eine Abweichung vom wahren Wert der Messgröße aufweist. Für eine statistisch gesicherte Aussage ist daher wichtig, dass der Variationskoeffizient der Messungenaugigkeit RSD_M deutlich kleiner ist, als die stochastische Homogenität

$$RSD_M \ll RSD_Z . \quad (3.7)$$

Ist dies nicht gewährleistet, lässt sich die stochastische Homogenität nicht als bestmögliche Mischgüte nachweisen. Die tatsächlichen Werte der Probenzusammensetzung könnten demnach besser sein als durch das Messverfahren festgestellt wird. In diesem Fall ergibt sich die bestmögliche Homogenität durch Addition beider Variationskoeffizienten:

$$RSD_{bestmöglich} = RSD_M + RSD_Z . \quad (3.8)$$

Zur Bestimmung der Varianz der Messungenauigkeit ist dieselbe Probe mehrfach mit demselben Messverfahren auszuwerten und zu analysieren oder bei Kenntnis des maximalen Messfehlers abzuschätzen [56].

3.2 Experimentelle Methoden und Materialien

3.2.1 Pharmamischer

Der DIOSNA P1/6 ist ein Laborschnellmischer der Firma DIOSNA Dierks & Söhne GmbH, der für die Produktion von trockenen Mischungen und zur Feuchtgranulation in der pharmazeutischen Industrie entwickelt wurde [61]. Die Grundmaschine erlaubt das Anbringen unterschiedlicher Mischbehälter, die konisch oder auch zylindrisch geformt sein können. Ein Foto der Grundmaschine und des verwendeten zylindrischen Mischbehälters ist in Abbildung 3.4 dargestellt. In den experimentellen Untersuchungen sind die radial angebrachten Probenahmestellen mit Stopfen oder Klebeband abgedeckt.

Am Boden des Mischbehälters rotiert ein dreiflügeliges Mischwerkzeug horizontal bei unterschiedlichen Drehzahlstufen von 20 bis 1200 min^{-1} . Je nach gewünschten Produkteigenschaften der Granulate sind höhere oder niedrigere Stufen zu wählen [62]. Das Steuern des Apparates erfolgt über eine Multifunktionseinheit während manuelles Starten und Stoppen die Mischzeit festlegt.

Das Computer Aided Design (kurz CAD) Modell für die numerischen Untersuchungen ist mit den zugehörigen geometrischen Abmessungen in Abbildung 3.5 dargestellt. Ohne Mischwerkzeug ergibt sich ein Volumen von ungefähr 0,7 l, wobei im Rahmen dieser Arbeit ein volumenspezifischer Füllgrad zwischen 45 bis 55 % je nach Anwendung



Abbildung 3.4: DIOSNA Pharmamischer Typ P1/6 der Firma DIOSNA Dierks & Söhne GmbH (links) und am Institut für Mechanische Verfahrenstechnik und Mechanik gefertigter Mischbehälter mit radialen Probenahmepositionen (rechts).

festgelegt wurde. Infolge der Flügelneigung um 45° rotiert das Mischgut nicht nur horizontal, sondern erfährt auch eine vertikale Durchmischung entlang der Mischwerkzeugachse, weshalb man diese Art von Mischer auch als Vertikalmischer bezeichnet. Abbildung 3.6 veranschaulicht schematisch die axiale und radiale Bewegung des Mischguts. Infolge der radialen Beschleunigung in Richtung der Behälterwand und der zusätzlichen Gewichtskraft des darüber liegenden Materials können die zirkulierenden Bewegungen bei hohen Drehzahlen zur Ausbildung einer Trombe führen [1].

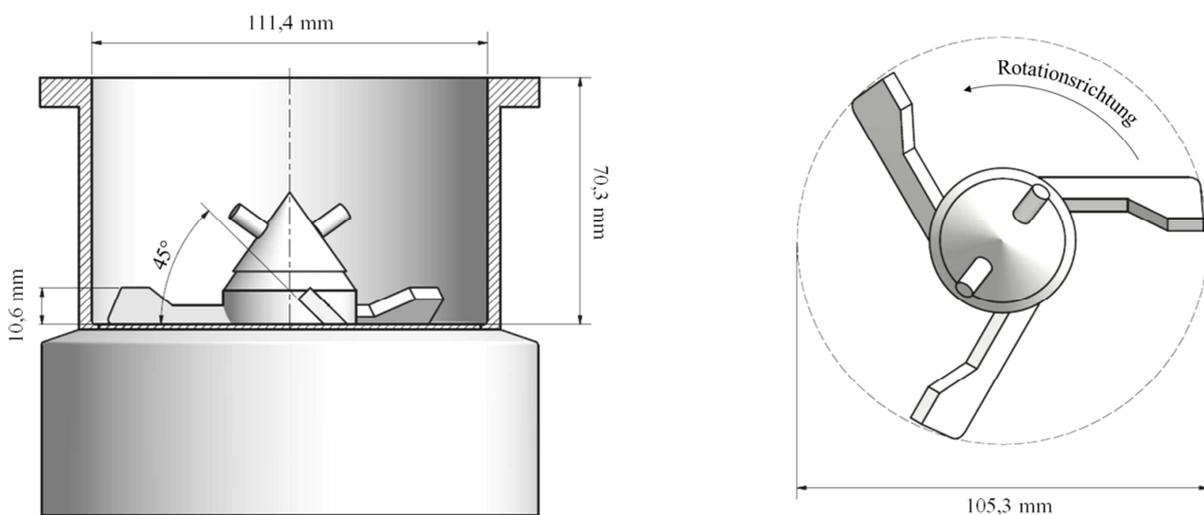


Abbildung 3.5: CAD Zeichnung des Mischbehälters und Mischwerkzeugs inklusive der zugehörigen geometrischen Abmessungen.

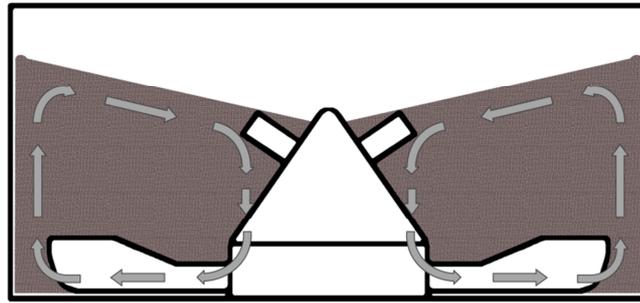


Abbildung 3.6: Schematische axiale und radiale Schüttgutbewegung im Vertikalmischer.

Auch wenn in dieser Arbeit nicht verwendet, sei angemerkt, dass sich ein zusätzlicher Zerkleinerer einbringen lässt. Dieser beeinflusst infolge der Asymmetrie nicht nur das Strömungsprofil des Schüttguts sondern auch das Zusammenspiel zwischen aufbauenden und abbauenden Agglomeratbildungsmechanismen. Bei Einsatz eines hochtourig drehenden Zerkleinerers zerteilen und zerbrechen größere Agglomerate schneller, sodass sich tendenziell kleinere und festere sowie weniger poröse Agglomerate ausbilden [63].

3.2.2 Partikelsysteme

Partikeln aus Kalknatronglas dienen als Modellkomponenten zur Betrachtung des Mischprozesses im DIOSNA Pharmamischer. Dabei kommen diverse Fraktionen der Firma Sigmund Linder GmbH mit hauptsächlich runden Partikeln zum Einsatz, die in der Chemikalien-, Papier- und Kunststoffindustrie häufig als Füllstoffe Verwendung finden. Die entsprechenden Partikelgrößen sind anhand der Summenverteilung Q_3 in Abbildung 3.7 links gezeigt. Von der kleinsten Fraktion mit einem nominellen Bereich von 90 bis 150 μm bis hin zur größten Fraktion mit 1700 bis 2100 μm im Partikeldurchmesser besitzen alle Siebungen sehr enge Verteilungen, deren mittlere Partikeldurchmesser $d_{p,50}$ in der Diagrammlegende angegeben sind. In dieser Arbeit sind ausschließlich partikuläre Zweikomponentenmischungen, bestehend aus jeweils zwei der oben gezeigten Fraktionen, untersucht. Der Größenunterschied resultiert in unterschiedlichen Bewegungseigenschaften, wodurch Segregationseffekte entstehen können. Die numerisch effizient zu simulierenden größeren Fraktionen kommen hauptsächlich im Rahmen der Validierungen zum Einsatz, während die feineren Fraktionen zur Klärung der Effekte auf der nicht direkt simulierbaren Skala herangezogen werden.

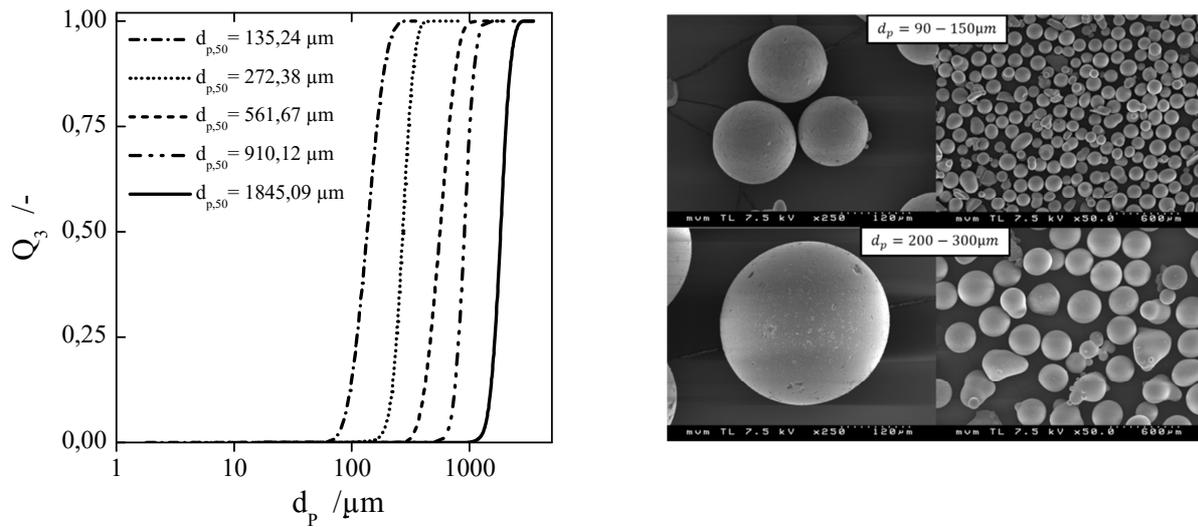


Abbildung 3.7 links: Mit dem Laserbeugungssensor HELOS der Firma Sympatec gemessene Summenverteilungen der eingesetzten Glaskugelfraktionen mit unterschiedlichen mittleren Partikeldurchmessern $d_{p,50}$. Rechts: REM-Aufnahmen der feinen Fraktionen bei unterschiedlichen Vergrößerungen.

Das Augenmerk liegt auf der Evaluation, inwiefern die gewonnen numerischen Erkenntnisse in den Bereich pulverförmiger Produkte übertragbar sind. Die Raster Elektronen Mikroskopaufnahmen (kurz REM) in Abbildung 3.7 rechts zeigen, dass bei feinen Fraktionen Abweichungen von der idealen Kugelgestalt zu beobachten sind. Dies ist hauptsächlich in den verwendeten hohen Produktmengen begründet, die eine kostenintensive Schleif- und Poliergenauigkeit nicht rechtfertigen würden. Im Vergleich zur Partikelgröße hat die Partikelform jedoch einen deutlich geringeren Einfluss auf das Bewegungsverhalten der Mischungskomponenten [64].

3.2.3 Kontaktwinkelmessung

Die eingesetzten Partikelkollektive stehen als transparente oder als rot eingefärbte Modellmischungskomponenten zur Verfügung. Die gefärbten polierten Glaskugeln sind dabei lediglich an der Partikeloberfläche beschichtet und nicht durchgefärbt, sodass die Feststoffdichte und das Stoßverhalten dem der transparenten Fraktion entsprechen. Abbildung 3.8 verdeutlicht anhand einer Makroskopaufnahme (Leica Wild M3C), dass infolge der Oberflächenbeschichtung eine kleinere Länge der Dreiphasengrenzlinie an

der roten Partikel und somit eine geringere Benetzbarkeit auftritt. Zur Bestimmung der jeweiligen Kontaktwinkel des Partikeln-Wasser-Luft Systems wurde eine geringe Menge Wassers zur Bildung einer Flüssigkeitsbrücke im Kontaktbereich der Partikeln induziert. Unter der Annahme einer rotationssymmetrischen Flüssigkeitsbrücke und des direkten Partikelkontakts können die Kontaktwinkel an der Dreiphasengrenzlinie über eine statische Bildanalyse bestimmt werden. Beide Partikeln sind hierfür als ideal rund und die Flüssigkeitsbrücke als inverses Toroid mit konstanter meridionaler Krümmung approximiert. Dies bedeutet, dass der Verlauf der Flüssigkeitsbrücke nach Abbildung 3.8 rechts in der aufgenommen Ebene durch einen Kreis mit konstanter Krümmung angenähert werden kann. Über die Differenz der tangentialen Steigungen in den Kontaktpunkten ergeben sich die unterschiedlichen Kontaktwinkel. Es ist darauf hinzuweisen, dass das pixelbasierte Festlegen der Kreismittelpunkte die Werte der Kontaktwinkel um mehrere Grad beeinflussen kann, sodass die Messungenaugigkeit auflösungsbedingt kritisch zu bewerten ist. Je nach Fokusebene können die Kontaktwinkel mit der gezeigten Methode um $\pm 5^\circ$ variieren.

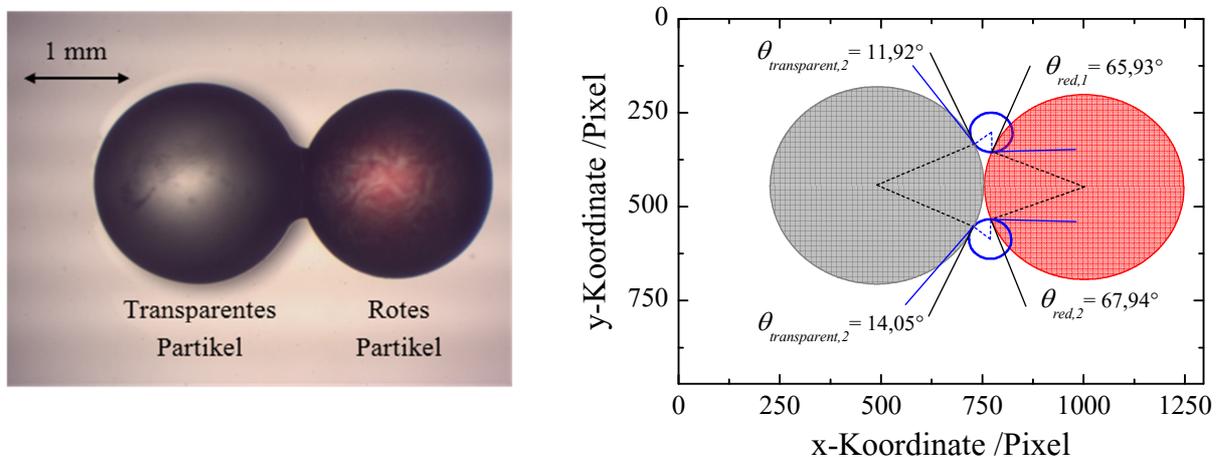


Abbildung 3.8 links: Makroskopieaufnahme einer unbeschichteten transparenten und einer rot beschichteten SiO_2 Partikel. Rechts: Statische Bildauswertung zur Kontaktwinkelbestimmung.

Neben der dargestellten Methode zur Kontaktwinkelmessung kamen im Rahmen dieser Arbeit unter anderem auch die Washburn-Methode und die Tablettenpressung bei feinen Pulvern zum Einsatz. Da diese Methoden die Dynamik der Benetzung erfassen, sich vom Pressdruck und vom Kalibrierstandard abhängige Werte ergeben und das in Abbildung 3.8 links gezeigte Partikelsystem für die Validierungsexperimente verwendet wurden,

sind lediglich die am Mikroskop durchgeführten Mehrfachmessung als vertrauenswürdig zu beurteilen.

3.2.4 Position der Nullmischung

Als Nullmischungsposition wird der Ausgangszustand unmittelbar vor Start des Mischprozesses bezeichnet. In Anlehnung an pharmazeutische Prozesse ist grundlegend eine Zweikomponentenmischung bestehend aus einem feineren Additiv und einem gröberen Füllmaterial herzustellen. Wie in Abbildung 3.9 dargestellt, wird der Mischbehälter immer zuerst mit dem Füllmaterial und anschließend mit der additiven Komponente beschickt. In der Abbildung 3.9 ist das Additiv zwar beiderseits rot eingefärbt, dennoch kann auch die besser benetzende transparente Komponente Anwendung als Additiv finden.

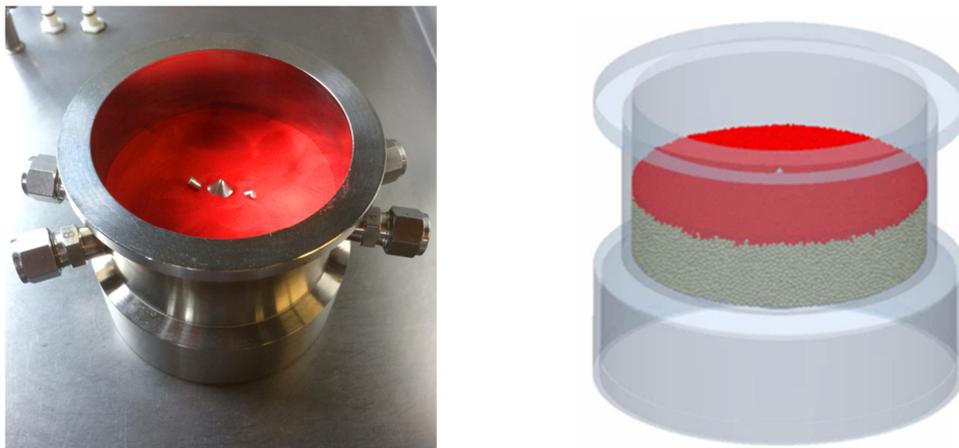


Abbildung 3.9: Axiale Nullmischung im Experiment (links) und in der Simulation (rechts). Das feinere Additiv befindet sich stets oberhalb des Füllmaterials.

3.2.5 Experimentelle Probenahme

Gegensätzlich zu den Simulationen, bei denen in der anschließenden Datenverarbeitung (engl. *preprocessing*) jede beliebige Probenahmeposition definiert werden kann, ist in der experimentellen Vorgehensweise zur statistischen Kennzeichnung von Mischungen eine adäquate Probenahme notwendig. Als Ziel ist daher eine Probenahmestrategie zu

entwickeln, die einerseits die in Abschnitt 3.1.2 bereits diskutierten Grundregeln der Probenahme erfüllt, andererseits im Experiment umsetzbar und für die Simulation übertragbar ist. Das heißt, dass die experimentell entwickelte Probenahmestrategie ebenfalls in der simulativen Auswertung Anwendung findet.

Hierzu ist eine Mindestpartikelanzahl in der Probe zu definieren, sodass das niedrig konzentrierte Additiv mit einer vorgegebenen Wahrscheinlichkeit repräsentativ im Probenvolumen vorkommt. Nach Sommer [58] kann die minimale Partikelanzahl pro Probe abgeschätzt werden. Im Rahmen der experimentellen Untersuchungen ergibt sich die durchschnittliche maximale Partikelanzahl von

$$z_{N,min} = \left(\frac{z_{N,min}(S)}{y_s} \right)^2 \cdot \frac{1 - q_{soll}}{q_{soll}} = \left(\frac{1,65}{0,075} \right)^2 \cdot \frac{1 - 0,5}{0,5} \approx 484 . \quad (3.9)$$

jedoch aus der maximalen Größe des gezeigten Probenehmers in Abbildung 3.10 links. Bei vorgegebener Anzahl-sollkonzentration von $q_{soll} = 0,5$ bedeutet das, dass die Probenzusammensetzung mit 95 % Aussagesicherheit S nicht mehr als $y_s = 75$ % relativ von der Sollzusammensetzung abweicht. Dabei stellt $z_{N,min}(S)$ einen von der Aussagesicherheit abhängigen tabellierten Grenzfaktor dar [56]. Bedingt durch die simulativ begrenzte Partikelanzahl lassen sich höhere Aussagesicherheiten im Rahmen der Untersuchungen zur Modellvalidität in den folgenden Kapiteln nicht erzielen, seien aber als hinreichend genau akzeptiert.

Zusätzlich ist zur statistischen Kennzeichnung auch die erforderliche Anzahl der Proben festzulegen. Soll die empirische Varianz s^2 mit 95 % Wahrscheinlichkeit definitionsgemäß maximal den 1,75-fachen Wert der wahren Varianz σ^2 annehmen, lässt sich die maximale Anzahl an Proben mit $N_p = 16$ über die Chi-Quadratverteilung χ^2 ermitteln

$$\frac{f}{\chi_S^2(S; f)} = \frac{16}{26,3} > \frac{\sigma^2}{s^2} = \frac{1}{1,75} . \quad (3.10)$$

Die Werte zur Chi-Quadratverteilung und den korrespondierenden Freiheitsgraden f sind dem Lehrbuch von Stieß und Ripperger [56] entnommen.

Neben der Probengröße und -anzahl sind weiterhin der Ort und die Häufigkeit der Probenahme zu definieren. Zur repräsentativen Bestimmung der Mischgüte sind die Proben „zufällig“ über den gesamten Mischbehälter örtlich zu verteilen, sodass die betrachtete Charge ganzheitlich beurteilt wird und etwaige systematische Entmischungs-

erscheinungen nicht fälschlicherweise minderwertige Homogenitäten suggerieren. Wie in Abbildung 3.10 mittig gezeigt, wurden zunächst 16 Probenahmestellen zufällig über das gesamte Mischgut verteilt. Anschließend wurden deren Positionen für die experimentellen Untersuchungen notiert und für jeden folgenden Probenahmezeitpunkt angewandt. Je nach Probenposition ist die Drehung des Deckels (Abbildung 3.10 rechts) und die Einstechtiefe des Probenehmers nach Abbildung 3.10 rechts anzupassen.

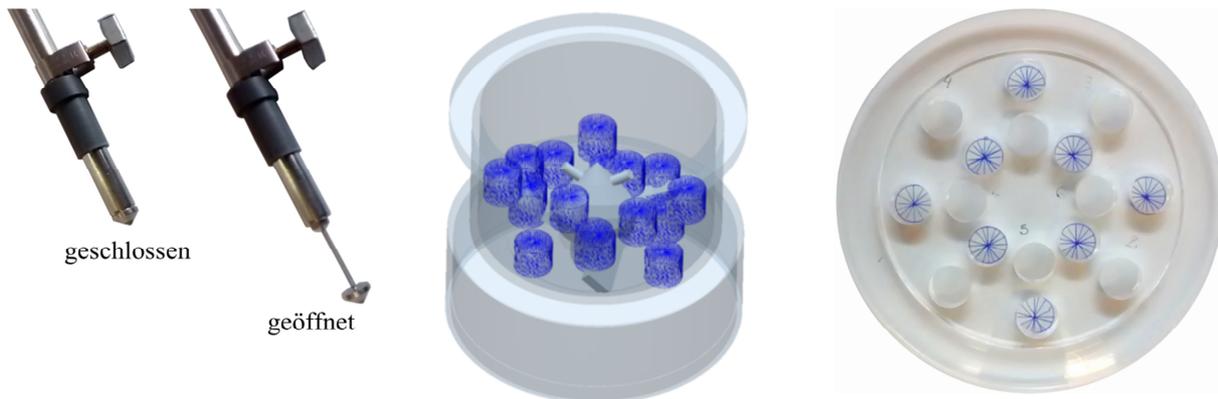


Abbildung 3.10 links: Probenehmer in geschlossener und geöffneter Variante. Mitte: 16 in der Simulation zufällig verteilte Probenahmepositionen. Rechts: Mischbehälterdeckel mit variablen Probenahmelöchern.

Mit dieser Kombination aus zufälliger- und regulärer Probenahme ist sowohl experimentell als auch numerisch die ganzheitliche Betrachtung der Charge gewährleistet und die Probengröße für alle Proben ausreichend statistisch gesichert. Aufgrund des hohen Aufwands ist die Häufigkeit der Probenahme im Experiment deutlich geringer als in den numerischen Untersuchungen, dennoch aber hoch genug, um systematische Probefehler auszuschließen und den zeitlichen Verlauf der Mischgüte detailliert darstellen zu können. Simulativ werden die Proben alle 0,2 Sekunden und experimentell im drei bzw. fünf Sekundentakt analysiert. Da durch die experimentelle Probenahme signifikante Mengen entnommen werden, ist für jede untersuchte Mischzeit ein erneuter Versuch durchzuführen.

Kapitel 4

Misch- und Segregationsmechanismen im Trockenen

Unterscheiden sich die partikulären Mischungskomponenten in ihren physikalischen Eigenschaften wie der Größe, ergeben sich unterschiedliche Beweglichkeiten. Je größer der Unterschied in den Materialeigenschaften ist, desto größer ist die Herausforderung an die Mischtechnik, verbunden mit der Unterdrückung von Segregationseffekten. Die hier aufgeführte Segregation ist auf die mögliche Konzentration einer Komponente durch den Unterschied in der Partikelgröße zurückzuführen. Liegen am Ende des Mischprozesses die größten Partikeln einer Mischung oben auf spricht man vom Paranus-Effekt oder perkolierender Segregation. Das Aufschwimmen der großen Partikeln ist in der reduzierten relativen Beweglichkeit begründet. Durch die konvektiven und dispersiven Mischmechanismen entstehen kurzzeitig Hohlräume, in die sich die kleineren Bestandteile einer Mischung bevorzugt hineinbewegen. Infolge der Schwerkraft sammeln sich Teile der feineren Komponente am Boden des Mischapparates an. Im Folgenden wird die DEM genutzt, um die partikelgrößenabhängige perkolierende Segregation näher zu verstehen und durch Adaption geeigneter Kenngrößen zu charakterisieren. Hierfür eignet sich das nach Fokker³ und Planck⁴ benannte Dispersion-Konvektionsmodell.⁵

³ Adriaan Daniël Fokker (*17. August 1887; †24. September 1972), niederländischer Physiker.

⁴ Max Karl Ernst Ludwig Planck (*23. April 1858; †4. Oktober 1947), deutscher Physiker auf dem Gebiet der theoretischen Physik.

⁵ Dieser einleitende Absatz ist weitestgehend in dieser Form im Buchbeitrag vom Autor bereits publiziert: [65] V. Wenzel, S. Schmelzle und H. Nirschl, "Homogenität und Strukturbildung beim diskontinuierlichen Feststoffmischen", in *Technische Keramische Werkstoffe, Losebl.-Ausg. Kap. 3.3.2.2. (146)*, Hrsg.: J. Kriegesmann, 2015.

4.1 Fokker-Planck Gleichung⁶

Die Fokker-Planck Gleichung ist eine partielle Differentialgleichung, die die zeitliche Änderung der Konzentrationsverteilung $q(\xi, t)$ um eine schwankende Größe hier der Ort ξ und die Zeit t unter dem Einfluss der Konvektion und Dispersion beschreibt

$$\frac{\partial q(\xi, t)}{\partial t} = \underbrace{-\frac{\partial}{\partial \xi}(q(\xi, t) \cdot U(\xi, t))}_{\text{konvektiver Transport}} + \underbrace{\frac{\partial^2}{\partial \xi^2}(q(\xi, t) \cdot D(\xi, t))}_{\text{dispersiver Transport}}. \quad (4.1)$$

Anschaulich stelle man sich eine große Anzahl sphärischer Partikeln in Bewegung vor. Zu einem bestimmten Zeitpunkt befindet sich Partikel i an der Position $\xi_i(t)$. Während des Zeitintervalls τ ändert Partikel i die Position $\xi_i(t + \tau)$ infolge von schnellen, stochastischen Stößen. Aus der Summe aller Verschiebungen innerhalb des Zeitintervalls resultiert die Ortsverschiebung $\Delta \xi_i$ der Partikel i . Da jede Partikel eine unterschiedliche Anzahl und Intensität an Stößen erfährt, ergibt sich eine Dichteverteilung der Verschiebungen $\phi(\Delta \xi)$. Im Zylinderkoordinatensystem des Mischers, wie in Abbildung 4.1 links dargestellt, teilen sich die Verschiebungen in die axiale Δz , radiale Δr und tangential $\Delta \varphi$ Raumrichtung auf. Abbildung 4.1 rechts zeigt die schematische Dichteverteilung der Verschiebungen in axialer Richtung. Ist eine mittlere Verschiebung $\overline{\Delta z}$ der Partikeln zu beobachten, verschiebt sich die Dichteverteilung infolge des konvektiven Transports. Neben dem konvektiven Transport wird die Dichteverteilung durch Dispersion verbreitert, gekennzeichnet durch die mittlere quadratische Verschiebung $\overline{(\Delta z)^2}$. Über die mittlere und die mittlere quadratische Verschiebung lässt sich die zeitliche Konzentrationsänderung in Abhängigkeit des Dispersions- $d(\xi, t)$ und Transportkoeffizienten $u(\xi, t)$ beschreiben, worin ξ entweder die axiale z , radiale r oder tangential φ Ortskoordinate darstellt

$$u(\xi, t) = \frac{\overline{\Delta \xi}}{\tau}, \quad (4.2)$$

$$d(\xi, t) = \frac{\overline{(\Delta \xi)^2}}{2\tau}.$$

⁶ Inhalte dieses Abschnitts wurden in *Advanced Powder Technology* veröffentlicht und mit der Erlaubnis von Elsevier für die Dissertation übersetzt und angepasst. [9] S. Schmelzle, S. Leppert und H. Nirschl, "Influence of impeller geometry in a vertical mixer described by DEM simulation and the dispersion model", *Advanced Powder Technology*, (26), Seiten 1473-1482, 2015.

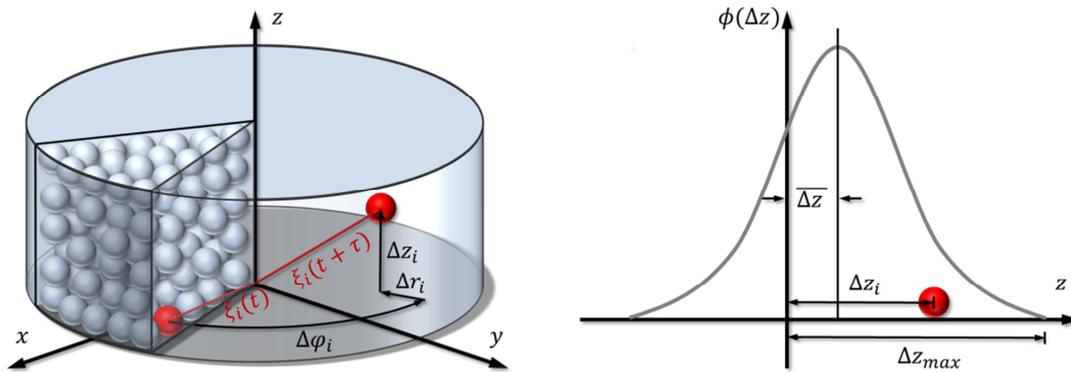


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung einzelner, diskreter Partikelverschiebungen in Zylinderkoordinaten (links) und schematische Dichteverteilung aller Partikelverschiebungen in axialer (z-Koordinate) Richtung (rechts).⁷

Dabei charakterisiert der Transportkoeffizient die großräumigen Partikelbewegungen als Geschwindigkeit, während der Dispersionskoeffizient die stochastischen Partikelbewegungen im feinen Bereich als Fläche pro Zeit beschreibt. Der Dispersionskoeffizient hat also dieselbe Dimension wie der molekulare Diffusionskoeffizient, dient jedoch zur Abgrenzung partikulärer Prozesse. Während die molekulare Diffusion als ein natürlich ablaufender Prozess zu einem Ausgleich von Konzentrationsunterschieden aufgrund der Brown'schen Molekularbewegung führt, sind in der Feststoffmischtechnik stets äußere Einwirkungen zur Induktion der Platzwechselfvorgänge notwendig, sodass der Dispersionskoeffizient eine stets statistisch abgeleitete Größe darstellt. Je höher die Transport- bzw. die Dispersionskoeffizienten sind, desto schneller verschiebt bzw. breitet sich die Verteilung aus. Eine detaillierte und anschauliche Erläuterung zur Fokker-Planck Gleichung findet sich in [67] und mit Bezug zur Feststoffmischtechnik in der Arbeit von Sommer [66].

4.2 Stand der Technik und Zielsetzung

Die Dispersion-Konvektionsgleichung wird häufig in eindimensionaler Betrachtung auf kontinuierliche Mischprozesse angewandt [68] und dient zur Quantifizierung der Mischmechanismen. Hierbei stellt die axiale Transportrichtung mit deutlich größeren Abmessungen als in radialer Richtung die limitierende Mischrichtung dar [69, 70]. Mit

⁷ Die dreidimensionale Darstellung erfolgt in Anlehnung an [66] K. Sommer, "Mechanistics of Powder Mixing", *Chemie Ingenieur Technik*, (49), Seiten 305-311, 1977.

Tracer Experimenten lassen sich Verweilzeitverteilungen in kontinuierlich durchströmten Mischapparaten messen und die dispersiven und konvektiven Mischmechanismen beurteilen. In diskontinuierlichen Apparaten ist diese Methode nicht anwendbar, da das zu mischende Gut für gewöhnlich durch die geometrischen Abmessungen des Mixers in seiner Bewegung beschränkt ist. Experimentell ist daher auf Methoden zur direkten Bestimmung der Partikelverschiebungen wie magnetfeldgesteuerte Partikelverfolgung [11] oder Positronen-Emissions-Tomographie (kurz PEPT) [71] zurückzugreifen. Ingram et al. [72] nutzen PEPT, um die axiale und radiale Dispersion für diverse Materialien und Betriebsparameter in einer horizontalen Mischtrommel zu bestimmen. In DEM-Simulationen sind die diskreten Verschiebungen der Partikel in jedem Zeitschritt direkt zugänglich, sodass sich der dispersive und konvektive Partikeltransport durch Ermittlung der Dichteverteilungen beurteilen lässt. Third et al. [73] ermitteln mit dieser Methodik den Einfluss der Partikelgröße monodisperser Materialien und der Drehzahl auf den Dispersionskoeffizienten in einem Trommelmischer.

Neben den Messungen der Einzelpartikeltrajektorien haben sich auch kostengünstigere und industriell einfache experimentelle Methoden der Probenahme etabliert [74], um die Koeffizienten direkt aus Mischgüteverläufen berechnen zu können. Hierbei wird jedoch die Vereinfachung eines wegfallenden konvektiven Transports getroffen und die Grenze der Mischbarkeit durch Addition der stochastischen Homogenität im Diffusionsterm definiert. Mit der Vernachlässigung des konvektiven Teils lässt sich die Gleichung in einer Dimension analytisch lösen [75], was streng genommen in der Feststoffmischtechnik nur für den Grenzfall von Partikelkollektiven mit exakt denselben Bewegungseigenschaften gültig ist.

Das Ziel ist es, die Fokker-Planck Gleichung für diskontinuierliche Systeme anzupassen, sodass sich globale axiale Dispersions- und auch Transportkoeffizienten als charakteristische Kenngrößen experimentell aus den Mischgüteverläufen bestimmen lassen. Inwiefern die besonders segregationsfördernde Eigenschaft der Partikelgröße die dispersive und konvektive Partikelbeweglichkeit im Pharmamischer beeinflusst, gilt es genauso zu klären, wie die Einflussnahme der Mischwerkzeuggeometrie und der Betriebsdrehzahl. Da DEM-Simulationen sehr rechenintensiv und in ihrer absoluten Partikelanzahl schnell durch die Rechenkapazitäten limitiert sind, wird abschließend die neue GPU-Technologie (engl. *graphics processing unit*) [76] genutzt, um aus den maximal simulierbaren

Partikelanzahlen Prognosen für technische relevanten Pulvern abzuleiten. Die verknüpfenden Kenngrößen sind dabei die Dispersions- und Transportkoeffizienten.

4.3 Bestimmung der Koeffizienten aus der Mischgüte

Zur Beschreibung der Segregation ist in erster Näherung auf den eindimensionalen Fall der Fokker-Planck Gleichung zurückzugreifen, da sich die diskreten Partikelverschiebungen nicht durch die experimentelle Bestimmung des Mischgüteverlaufs analysieren lassen. Diese Annahme ist gerechtfertigt, da die perkolierende Segregation infolge der Schwerkraft hauptsächlich in axialer Richtung auftritt. In Abbildung 4.2 ist in einer DEM-Simulation im DIOSNA Mischer zu beobachten, dass die feinere Partikelfraktion (rot) durch die grobe Schüttgutmatrix perkoliert und sich mit zunehmender Mischzeit t_M selektiv am Boden des Mischbehälters ablagert. In diesem Fall gleicht der ortabhängige, positive axiale Transportstrom des Mischwerkzeugs das unterschiedliche Bewegungsverhalten nicht mehr aus, was einen inhomogenen Endzustand zur Folge hat.

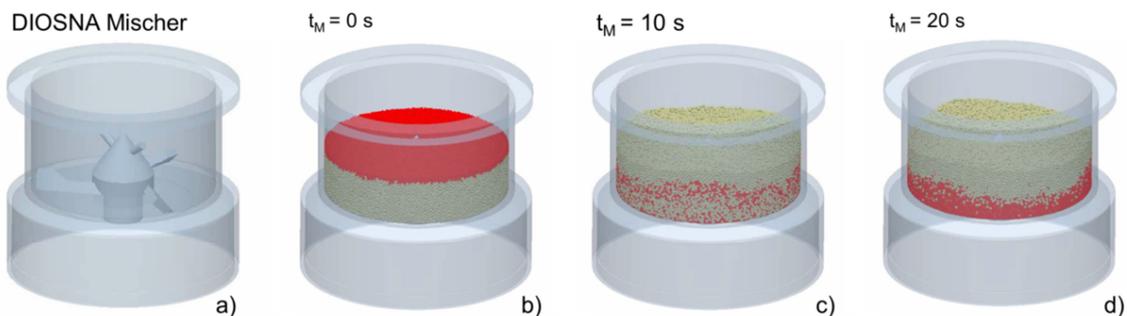


Abbildung 4.2: Darstellung der perkolierenden Segregation. Das rot eingefärbte feinere Additiv sammelt sich vermehrt am Behälterboden und an der -wand an.

4.3.1 Markow-Kette

Auch im eindimensionalen Fall ist die partielle Fokker-Planck Differentialgleichung nur in Spezialfällen, wie dem Vernachlässigen des konvektiven Terms, analytisch lösbar [75]. In der Feststoffmischtechnik treten jedoch Dispersion und Konvektion simultan auf, sodass numerische Lösungsmethoden notwendig sind, um die Konzentration q als Funktion von Ort ξ und Zeit t zu bestimmen. Eine mögliche numerische Methode ist die Konzentrationsverteilung über eine nichtlineare, eindimensionale Markow-Kette

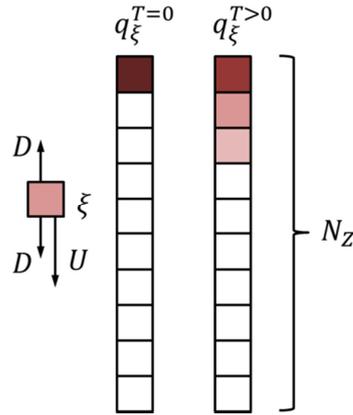


Abbildung 4.3: Schema des Spaltenmodells zur Veranschaulichung wie sich ein rot eingefärbtes Additiv infolge des dispersiven und konvektiven Transportes verteilt.

zu modellieren [77]. Die grundlegende Idee ist dabei, den Mischer in definierte, finite Zonen einzuteilen, um die Konzentrationsentwicklung zu diskreten Zeitpunkten T zu beobachten. Abbildung 4.3 zeigt schematisch, wie sich im eindimensionalen Fall die Verteilung der additiven Komponente als Zeilenvektor $\vec{q} = q_\xi$ mit der Größe $(N_Z \times 1)$ darstellen lässt. Dieser Fall unterteilt die Schüttguthöhe h_s des Mischbehälters in N_Z perfekt durchmischte Zellen. Die zeitliche Entwicklung der Konzentrationsverteilung ist durch Multiplikation mit der Matrix der Übergangswahrscheinlichkeiten \mathbf{P} zu berechnen, worin die Werte D und U die dimensionslosen Dispersions- und Transportkoeffizienten charakterisieren.⁸ Die Matrix der Übergangswahrscheinlichkeiten verteilt die Konzentration q in jeder Zelle ξ über die dimensionslose Zeit T

$$q^{T+1} = \mathbf{P}q^T, \quad \mathbf{P} = \begin{pmatrix} 1-D-U(q_{\xi=2}^{T+1}) & D & 0 & \dots \\ D+U(q_{\xi=2}^{T+1}) & 1-2D-U(q_{\xi=3}^{T+1}) & D & \dots \\ 0 & D+U(q_{\xi=3}^{T+1}) & 1-2D-U(q_{\xi=4}^{T+1}) & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots \end{pmatrix}. \quad (4.4)$$

Da ein über die Zeit konstanter Transportstrom zwangsläufig bedeutet, dass sich die Komponente bei unendlich langer Betrachtung vollständig in der letzten Zelle (in Abbildung 4.3 entspricht dies $\xi = 10$) anreichert, ist eine lineare Beziehung für den Koeffizienten $U(q_\xi^{T+1})$ einzuführen [78], wodurch die Ortsabhängigkeit des Transportkoeffizienten berücksichtigt wird

$$U(q_\xi^{T+1}) = U_0 \left(1 - \frac{q_{\xi+1}^T}{1} \right). \quad (4.5)$$

⁸ Es sei darauf hingewiesen, dass das Symbol D außerhalb von Kapitel 4 für den dimensionslosen Partikelabstand steht. Diese Ambivalenz ist bewusst in Kauf genommen, da es sich in beiden Fällen um die übliche Notation in der Fachliteratur handelt.

Als Anschauungsbeispiel ist eine für die zwei variablen Parameter D , U_0 durchgeführte Berechnung in Abbildung 4.4 dargestellt. Zum Zeitpunkt $t = 0$ befindet sich das Additiv an den Orten $\xi = 1 - 5$, sodass dort eine Konzentration von $q = 1$ herrscht, während an den anderen Orten ($\xi = 5 - 10$) kein Feingut ($q = 0$) zu finden ist. Übertragen auf den Mischapparat bedeutet dieser Anfangszustand, dass 50 % der Schüttguthöhe vom Additiv eingenommen sind. Die restlichen 50 % entsprechen dem Füllmaterial. Mit zunehmender Mischzeit t_M (bzw. diskreter Zeit T) verteilt sich das Additiv in der Schüttgutmatrix, bis sich ein Großteil zum Endzeitpunkt des Mischprozesses ($T = 100$) im unteren Bereich des Mixers befindet.

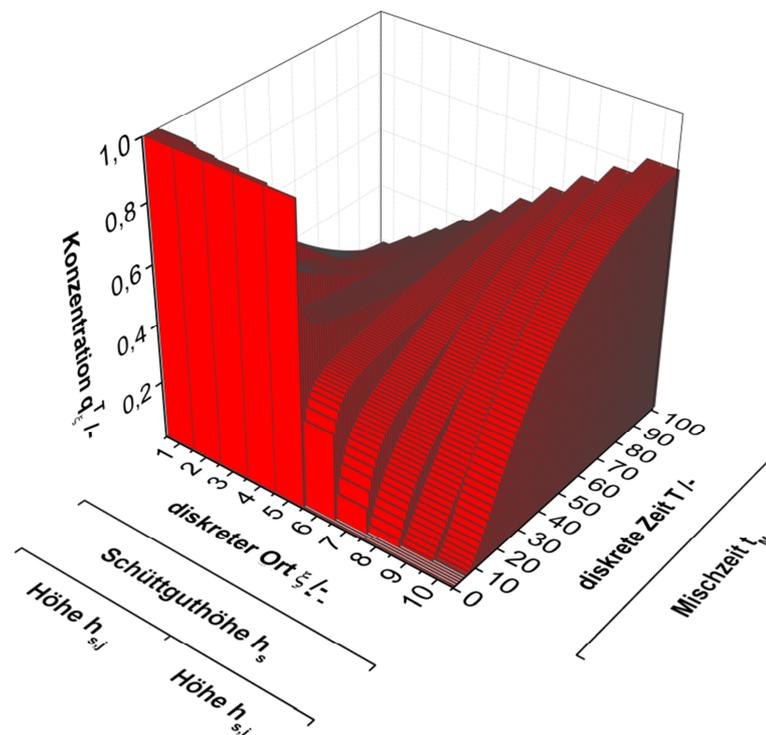


Abbildung 4.4: Konzentrationsprofil q_{ξ}^T in Abhängigkeit vom diskreten Ort ξ und der diskreten Zeit T . Verwendete Parameter: $T = 0 - 100$; $D = 0,2$; $U_0 = 0,1$. Das Modell und die Betriebsparameter Schüttguthöhe und Mischzeit werden exemplarisch über $N_Z = 10$ Zellen und 100 Zeitschritte verknüpft.

Dieses Verhalten entspricht dem perkolierenden Segregationsmechanismus. Über die Berechnung der relativen Standardabweichung RSD aus dem Konzentrationsprofil mit $q_{soll} = 0,5$ lassen sich charakteristische Mischgüteverläufe in Abhängigkeit der Koeffizienten nach Gleichung (3.6) bestimmen. Abbildung 4.5 zeigt, dass eine Erhöhung des Parameters D einer niedrigeren relativen Standardabweichung folgt und somit eine

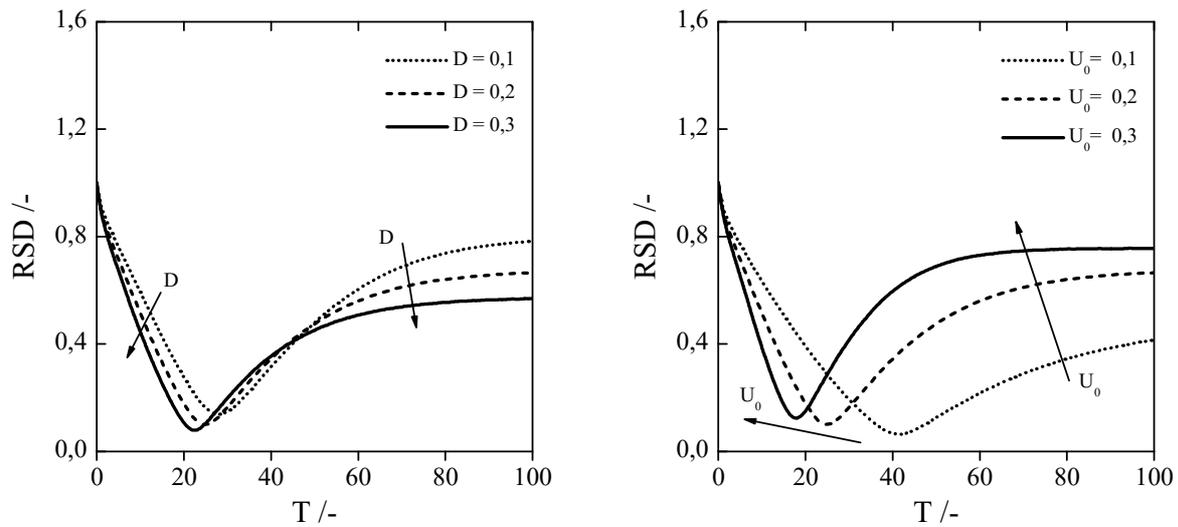


Abbildung 4.5: Mit der Fokker-Planck Gleichung berechnete Modellmischgüteverläufe unter Variation der Koeffizienten D (links) und U_0 (rechts).

bessere Zwischenhomogenität erzielt. Die höhere Partikelbeweglichkeit hat zudem eine schnellere Abnahme der Mischgüte und gleichzeitig eine bessere Endhomogenität zur Folge. Durch die Variation von U_0 in Abbildung 4.5 rechts lässt sich die Segregationsgeschwindigkeit und ebenfalls die Endhomogenität beeinflussen. Ein hoher Transportkoeffizient kann demnach in einer schlechten Endhomogenität resultieren. Je nach Wechselwirkung mit dem Dispersionskoeffizienten kann eine hohe Dispersion demgegenüber jedoch entgegenwirken.

4.3.2 Exemplarische Adaption der Markow-Kette in Simulation und Experiment

Wendet man die Modellgleichung auf einen experimentell bestimmten Mischgüteverlauf nach Abbildung 4.6 auf der linken Seite an, lassen sich die Parameter D und U_0 für das eingesetzte Partikelkollektiv ermitteln. Durch eine händische Parameterinitialisierung von D , U_0 , t_M und nichtlinearer Suche des minimalen Fehlerquadrats zwischen Modell und Simulationsergebnis resultieren unterschiedliche charakteristische Koeffizienten in Abhängigkeit der Betriebsparameter und Materialeigenschaften. Sowohl in der experimentellen Durchführung als auch in den DEM-Simulationen kamen $\tilde{m}_{ij} = 458,8$ g Glaskugeln mit einem mittleren Partikelradius von $r_{i,50} \approx 920 \mu\text{m}$ beim Grobput und

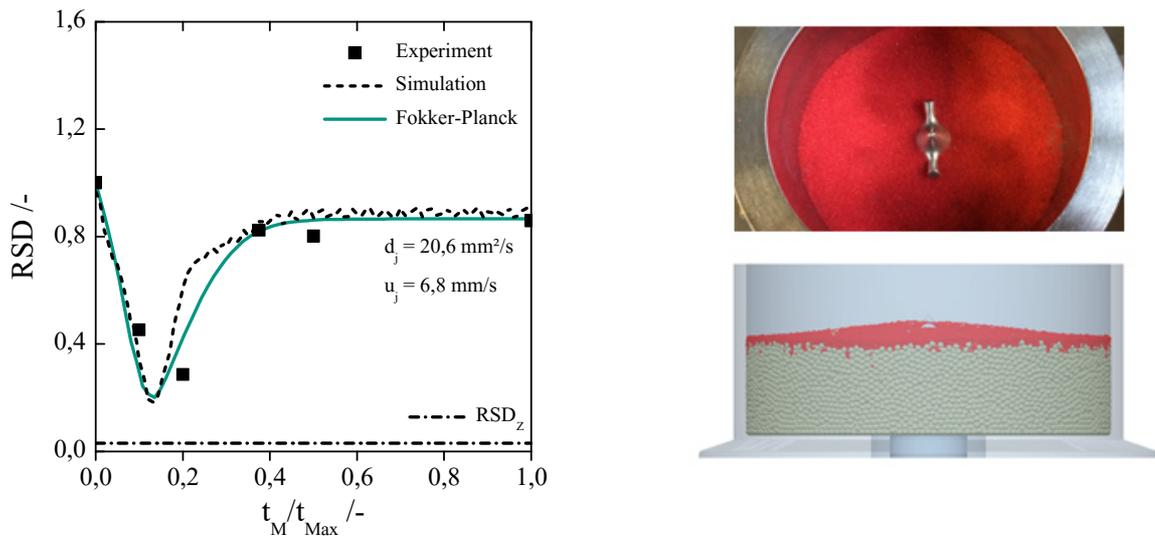


Abbildung 4.6 links: Modellanwendung für experimentelle und numerische Untersuchungen bei einer Drehzahl von 36 min^{-1} . Im Anfangszustand sind 10 % der Schüttguthöhe $h_s = 34 \text{ mm}$ mit Additivpartikeln bedeckt ($h_{s,j} = 3,4 \text{ mm}$ und $h_{s,i} = 30,6 \text{ mm}$). Feststoffdichte $\rho_s = 2500 \text{ kg/m}^3$, Modellparameter: $D = 0,15$, $U_0 = 0,59$. Rechts: Fotografie des Experiments und Standbild der Simulation im Anfangszustand. Im Rahmen der Simulation finden die Material- und Wechselwirkungsparameter aus Tabelle 2.1 und 2.2 Anwendung.

$r_{j,50} \approx 280 \text{ }\mu\text{m}$ beim additiven Feingut zum Einsatz. Hierdurch ergibt sich ein Partikelgrößenverhältnis von ungefähr $\psi = r_i/r_j \approx 3$. Die Drehzahl ist auf 36 min^{-1} festgelegt. Die Probenahme erfolgt über die Schüttguthöhe verteilt, sodass die Beurteilung des Konzentrationsausgleichs in axialer Richtung stattfindet.

Abbildung 4.6 verdeutlicht, dass sich sowohl der simulierte als auch der experimentell bestimmte Mischgüteverlauf mit ausreichender Genauigkeit anhand der Modellparameter D und U_0 beschreiben lassen. Die Umrechnung der Parameter in die komponentenspezifischen Dispersions- d_i oder d_j und Transportkoeffizienten u_i oder u_j

$$d_j = D \cdot \frac{\Delta h_{s,i}^2}{\Delta t}, \quad (4.6)$$

$$u_j(t_M) = U(q_{\langle \xi \rangle}^{T+1}) \cdot \frac{\Delta h_{s,i}}{\Delta t}. \quad (4.7)$$

erfolgt über die Zelhöhe $\Delta h_{s,i}$ oder $\Delta h_{s,j}$, die über die Anzahl der Zellen N_z und die Schüttguthöhe h_s definiert ist

$$\Delta h_{S,i} = \frac{h_{S,i}}{N_Z} = \frac{30,6 \text{ mm}}{5} = 6,12 \text{ mm} , \quad (4.8)$$

sowie über die Zeitschrittweite $\Delta t = t_{M,max}/T$, welche aus dem Quotient der maximalen Mischzeit $t_{M,max}$ und der diskreten Zeit T zu ermitteln ist. Somit gehen die apparativ bzw. betrieblich vorgegebene Schüttguthöhe sowie die Betriebszeit des Mixers unmittelbar in die Bestimmung der Dispersions- und Transportkoeffizienten ein. Die auf diese Weise bestimmten Dispersions- und Transportkoeffizient d_j und u_j zeigen, dass unmittelbar nach Start des Mischprozesses ein axialer Transport in Richtung Mischbehälterboden zu beobachten ist. Dies liegt darin begründet, dass der dispersive Mischmechanismus die Partikeln im Endzustand in Richtung Schüttgutoberfläche transportiert, welchem wiederum der positive, axiale Transportstrom entgegen wirkt.

Neben der erläuterten Methode ließen sich die Dispersions- und Transportkoeffizienten in der DEM auch aus den diskreten Verschiebungen der Partikeln zu jedem Speicherzeitschritt direkt berechnen. Bei der Wahl des Zeitintervalls tritt jedoch die Problematik auf, dass die maximale Verschiebung den apparativen Abmessungen des Mixers entsprechen könnte oder die Verschiebungen durch die Wände beschränkt werden. Nachteilig ist zudem, dass die einzelnen diskreten Verschiebungen experimentell nicht zugänglich sind. Im Rahmen dieser Arbeit wird daher die erklärte Adaption an den Mischgüteverlauf verwendet. Dies gewährleistet eine äquivalente Bestimmung der Dispersions- und Transportkoeffizienten sowohl im Experiment als auch in den Simulationen.

4.4 Ergebnisse und Diskussion

In Abhängigkeit der Material- und Betriebsparameter ergeben sich unterschiedlich ausgeprägte dispersive Misch- und konvektive Segregationsmechanismen, die im folgenden Unterabschnitt zunächst numerisch untersucht sind. Anschließend erfolgt die Bewertung unterschiedlicher Mischwerkzeuggeometrien und abschließend die Verknüpfung zu experimentell festgestellten dispersiven und konvektiven Mischmechanismen.

4.4.1 Numerische Studie zum Partikelgrößenverhältnis

Anhand von Mischgüteverläufen zeigt Abbildung 4.7 eine numerische Parameterstudie für unterschiedliche Partikelgrößenverhältnisse ψ und variable Drehzahlen. Im Falle von Gleichkornpartikeln ($\psi = 1,0$) ist festzustellen, dass sich die stochastische Homogenität als Endzustand bei niedrigen Drehzahlstufen innerhalb von 20 s Mischzeit nicht erreichen lässt. Erst ab 108 min^{-1} ist der Energieeintrag und somit die Intensität der Platzwechsellvorgänge hoch genug, um einen homogenen Endzustand in der vorgegebenen Mischzeit zu erzielen. Bereits eine minimale Verkleinerung der Partikelgröße der additiven Komponente ($\psi = 1,5$) hat eine Verringerung der Endhomogenität zur Folge, sodass nur im Falle von Gleichkornpartikeln vom rein dispersivem Bewegungsverhalten auszugehen ist.

Eine Erhöhung der Partikelgrößendifferenz (zum Beispiel bei $\psi = 2,5$) zeigt bei geringen Drehzahlen anfänglich eine kurze Zunahme der Homogenität. Dieser Zustand ist dann erreicht, wenn sich der Schwerpunkt des anfänglich oben positionierten Additivs in der Mitte der Schüttguthöhe befindet. Die Fortsetzung des Mischprozesses führt von diesem Zeitpunkt an zu einer Homogenitätsminderung, da sich das Additiv im Spalt zwischen Mischwerkzeug, Behälterwand und Behälterboden selektiv anreichert. Eine Drehzahlerhöhung hat dabei zur Folge, dass sich die bestmögliche Zwischenhomogenität schneller erreichen und sich auch die Endhomogenität erhöhen lässt.

Generell verdeutlichen die Diagramme in Abbildung 4.7, dass die Endhomogenität einerseits von der Größendifferenz zwischen Additiv und Füllmaterial und andererseits durch die betriebsbedingte Drehzahl beeinflusst wird. Die Anforderungen an die Mischtechnik nehmen mit steigendem Partikelgrößenverhältnis zu, gleichzeitig wirkt aber eine Drehzahlerhöhung der perkolierenden Segregation entgegen. Diese lässt sich allerdings nicht vollständig kompensieren. Je geringer dabei die Partikelgrößendifferenz desto niedriger ist der Einfluss der Drehzahl zu bewerten. Im Falle von Gleichkornpartikeln resultieren nach ausreichender Mischzeit dieselben Endzustände. Im betrachteten Fenster der Einflussgrößen sind mit zunehmender Partikelgrößendifferenz höhere Drehzahlen für möglichst homogene Endzustände zu wählen. Für verfahrenstechnische Feststoffmischprozesse lässt sich zudem empfehlen, die feinere Komponente erst nach erfolgter Dosierung des Grobguts hinzuzugeben und die Mischzeit kurz genug zu wählen, um eine unerwünschte Entmischung zu vermeiden.

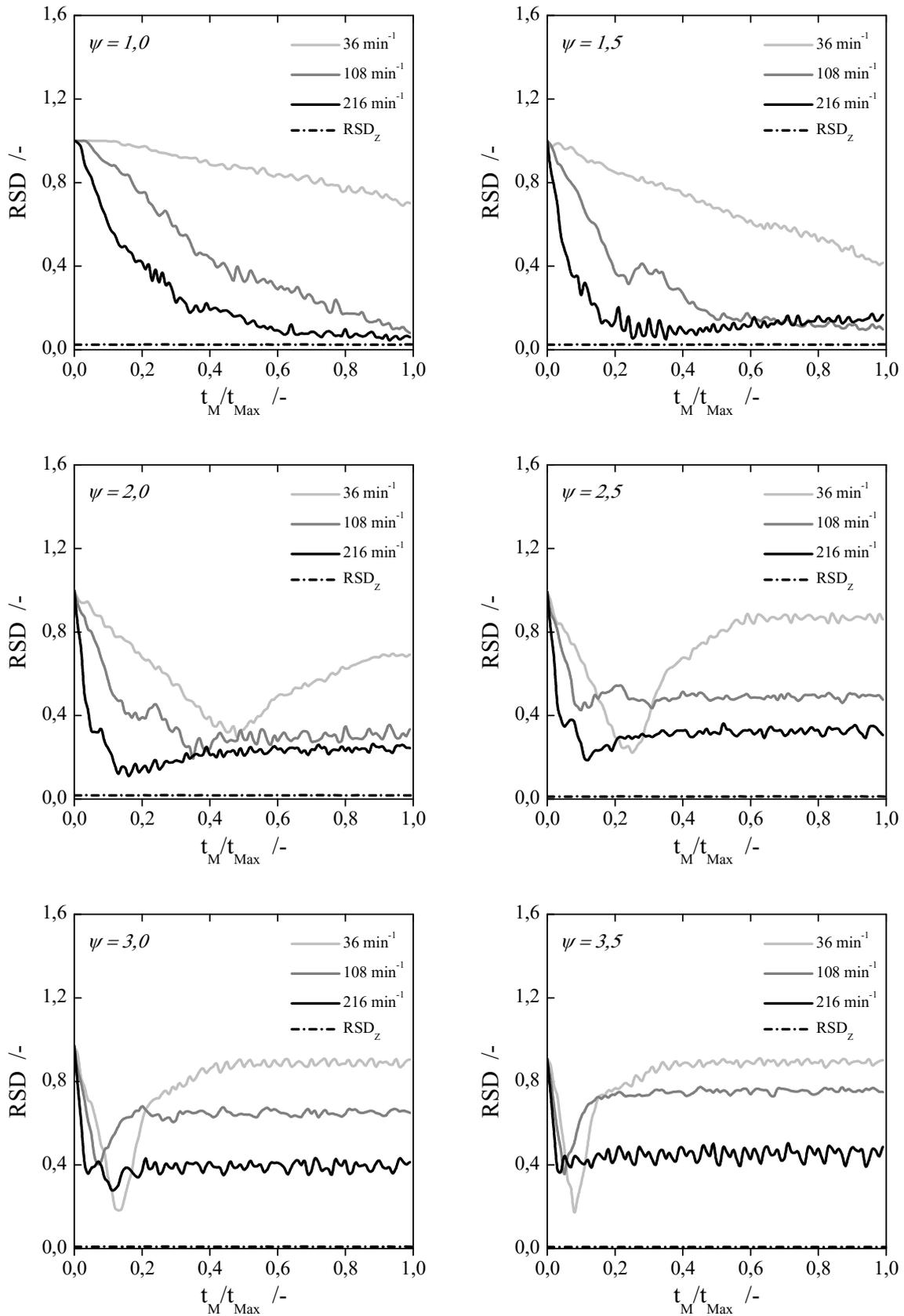


Abbildung 4.7: Dimensionslose Mischgütevverläufe für unterschiedliche Drehzahlen und variable Partikelgrößenverhältnisse ψ (maximale Mischzeit $t_{Max} = 20$ s).

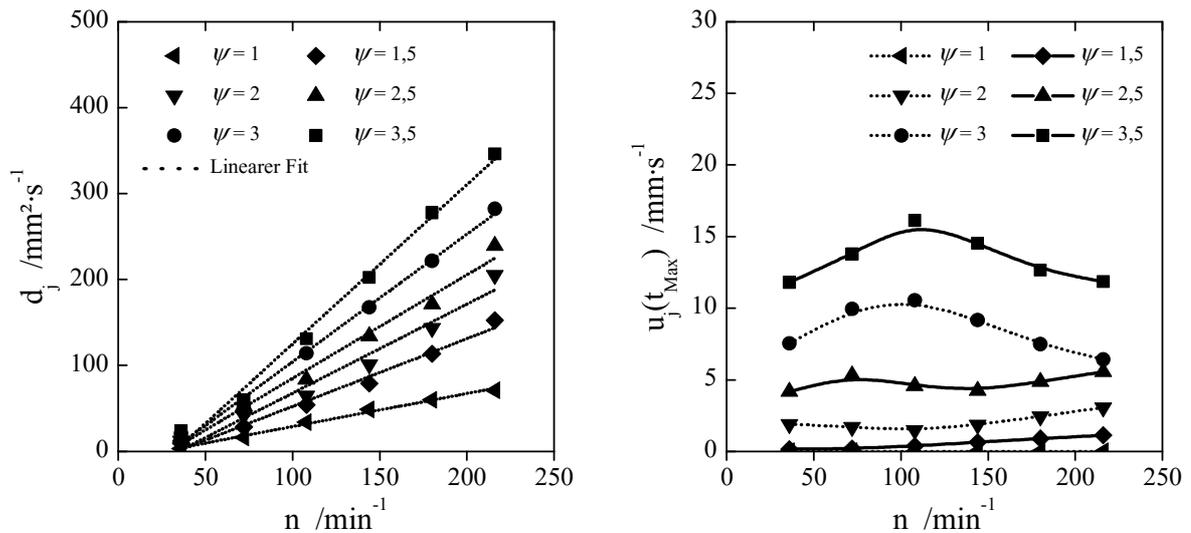


Abbildung 4.8: Aus den Mischgüteverläufen bestimmte axiale Dispersions- (links) und Transportkoeffizienten (rechts) als Funktion der Drehzahl.⁹

Die im vorangegangenen Abschnitt dargestellte Vorgehensweise erlaubt die simulativ untersuchten Mischprozesse hinsichtlich der dispersiven und konvektiven Partikelbeweglichkeiten zu bewerten. Dabei stellen die Dispersions- und Transportkoeffizienten die zum Experiment verknüpfenden Kenngrößen dar. Aufgrund ungeordneter, stochastischer Platzwechselforgänge nimmt die dispersive, relative Partikelbeweglichkeit mit steigender Drehzahl, wie in Abbildung 4.8 links gezeigt, in nahezu linearer Abhängigkeit zu. Darüber hinaus ist festzustellen, dass die Steigung des linearen Zusammenhangs mit kleiner werdendem Partikelgrößenverhältnis abnimmt. Feinere Partikeln bewegen sich demzufolge mit einer höheren Intensität relativ zum Füllmaterial. Im Vergleich dazu ist beim axialen Transportkoeffizienten in Abbildung 4.8 rechts keine eindeutig zu bewertende Drehzahlabhängigkeit festzustellen. Jedoch erhöht sich die Segregationsgeschwindigkeit mit kleiner werdender additiver Komponente.

Bei vorhandener Dispersion und wegfallendem Transport resultiert zwangsläufig ein homogener Endzustand, was streng genommen nur bei Gleichkornpartikeln $\psi = 1,0$ auftritt. In allen anderen Fällen steht der Dispersion auch im stationären Endzustand ein segregierender Transport entgegen. Demzufolge sind für das Erreichen homogener Endzustände innerhalb möglichst niedriger Mischzeit ein hoher Dispersionskoeffizient bei gleichzeitig geringem Transportkoeffizienten notwendig. Mit zunehmendem

⁹ Aus Gründen der Übersichtlichkeit sind die Simulationen bei den Drehzahlen 72, 144 und 180 min^{-1} in Abbildung 4.7 nicht dargestellt.

Partikelgrößenunterschied ist dies nur bedingt über eine Erhöhung der Mischwerkzeugdrehzahl zu erreichen.

4.4.2 Vergleich unterschiedlicher Mischwerkzeuggeometrien

Im vorangegangenen Abschnitt wurde der Einfluss der Betriebsdrehzahl und das Größenverhältnis der Partikeln diskutiert. Im Fokus dieses Abschnitts werden potentiell durchführbare konstruktive Änderungen am bestehenden Mischwerkzeug diskutiert. Hierdurch lässt sich die Frage klären, ob sich die unerwünschte segregierende Perkolation im Rahmen geometrischer Änderungen reduzieren lässt.

Als geometrische Änderung erfolgt eine Drehung der Mischwerkzeugflügel, wodurch sich die projizierte Mitnahme­fläche der Partikeln vergrößert. Chandratilleke et al. [79] weisen mit DEM-Simulationen an einem simplifizierten zweiblättrigen Blattrührer nach, dass eine Änderung der Winkelstellung von 45° auf 90° eine Erhöhung der Mischeffizienz mit sich bringt. Gleichzeitig zeigt sich eine Verschlechterung, sofern die beiden Rührblätter auf 135° Winkelstellung geneigt sind. Es bleibt die Frage bestehen, ob sich deren Erkenntnisse auch auf eine reale Geometrie mit drei Mischwerkzeugblättern übertragen lässt. Des Weiteren erscheint eine Drehung auf bis zu 135° aus praktischer Sicht wenig sinnvoll, da hierdurch die Zerkleinerung des Mischguts im Spalt zwischen Mischwerkzeugblatt und Behälterboden unterstützt wird. Daher erfolgte keine Untersuchung dieser Winkelstellung und wurde stattdessen mit $67,5^\circ$ ersetzt. Die drei verschiedenen Winkelstellungen sind in Abbildung 4.9 miteinander als 3D Zeichnung dargestellt.

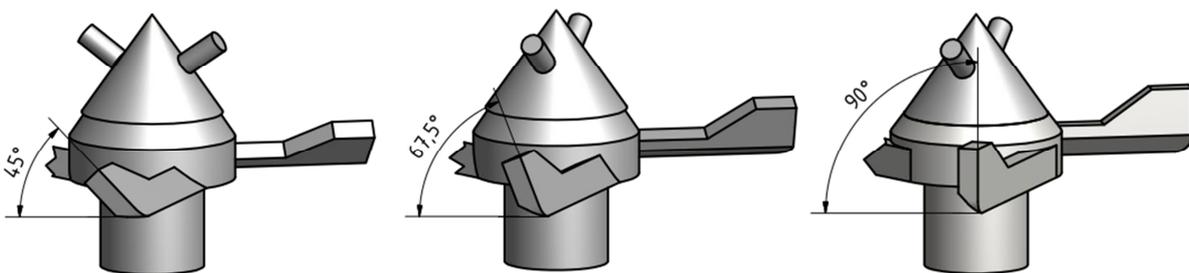


Abbildung 4.9: Dargestellt ist die geometrische Änderung der Winkelstellung am Mischwerkzeug im CAD Modell.

In Abbildung 4.10 ist der Endzustand des Mischprozesses aller drei Mischwerkzeugkonfigurationen als Schnitt in der axial-radialen Ebene visualisiert. Unabhängig vom Mischwerkzeug ist in der Visualisierung eine Verarmung des Additivs in radialer Richtung zu erkennen. Entsprechend des Strömungsprofils (siehe auch Abbildung 3.6) ist entlang der Mischwerkzeugachse ein negativ gerichteter konvektiver Transport zu beobachten, der hauptsächlich selektiv das Grobgut in Richtung Behälterboden bewegt. Zusätzlich lässt sich auch eine Verminderung des Feinguts an der Schüttgutoberfläche erkennen. Demzufolge zirkuliert das Feingut in kleineren axial-radialen Kreisbewegungen als das gröbere Material.

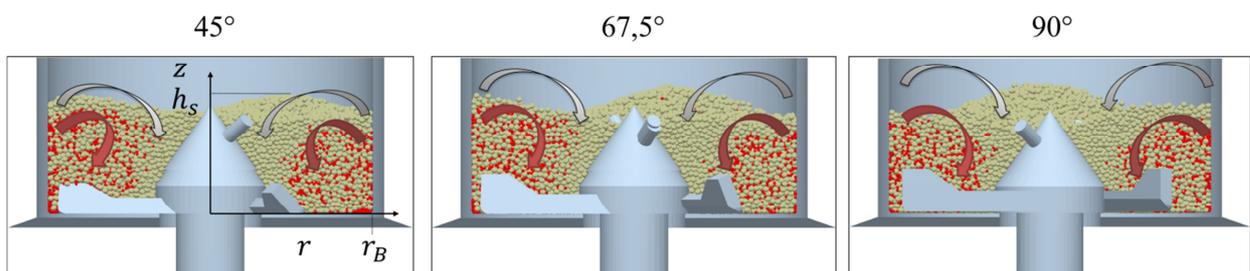


Abbildung 4.10: Visualisierung des Schüttguts im vertikalen Schnitt durch den Mischer. Die Drehzahl beträgt 108 min^{-1} . Das Additiv ist rot dargestellt.

Besonders interessant ist die in Abbildung 4.11 dargestellte Auswertung der mittleren radialen \bar{u}_r und axialen Geschwindigkeiten \bar{u}_z in Abhängigkeit der zugehörigen orthogonalen Koordinaten z und r , wobei die feine und die grobe Komponente jeweils gesondert betrachtet sind. Der allgemeine Verlauf der Kurven zeigt unabhängig von der Komponente positive radiale Geschwindigkeiten nahe des Behälterbodens ($z \rightarrow 0$) und negative Werte im Bereich der Schüttgutoberfläche ($z \rightarrow h_s$). In umgekehrter Weise ist dies auch bei den axialen Geschwindigkeiten zu beobachten. Nahe der Mischwerkzeugachse ($r \rightarrow 0$) deuten negative Werte die Sogwirkung und positive Werte den Transport entlang der Behälterwand ($r \rightarrow r_b$) an, wobei der Einfluss der Geometrie des Mischwerkzeugs in den axialen Geschwindigkeitsprofilen minimal stärker ausgeprägt ist.

Prinzipiell gilt, dass an den Stellen mit großen Differenzen der mittleren Geschwindigkeiten besonders intensive Platzwechselforgänge stattfinden. Exemplarisch zeigt das 90° -Mischwerkzeug große, relative axiale Geschwindigkeiten im Bereich zwischen 20 und 30 mm in Abbildung 4.11 unten. Mit Drehung der Mischwerkzeugblätter von 45° auf 90° nimmt die Differenz in radialer Richtung zu. Das heißt, dass die axiale Vermischung mit Drehung des Mischwerkzeugs in diesem Bereich an Effektivität gewinnt, wobei

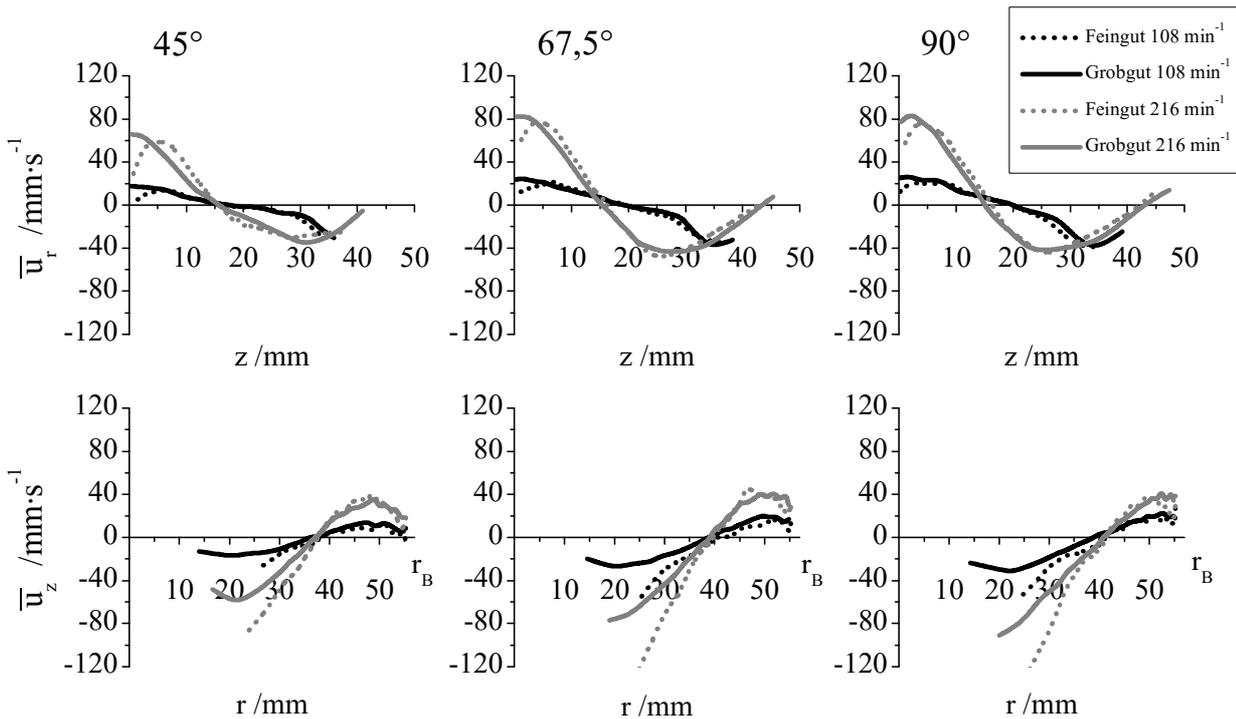


Abbildung 4.11: Die richtungsabhängigen Geschwindigkeiten \bar{u}_z und \bar{u}_r der einzelnen Komponenten sind als Funktionen der lokalen Positionen r und z dargestellt, mit r_b als Behälterradius.

sich gleichzeitig die radialen absoluten Geschwindigkeiten kaum verändern, siehe Abbildung 4.11 oben. Neben der Erhöhung der absoluten radialen und axialen Geschwindigkeiten mit der Variation der Winkelstellung zeigt die Erhöhung der Drehzahl eine merkliche Veränderung der ortsabhängigen Geschwindigkeiten (graue Kurven). Im axialen Geschwindigkeitsprofil vergrößern sich die Relativgeschwindigkeiten zwischen Fein- und Grobgut. In den radialen Geschwindigkeitsprofilen nehmen zwar die Partikelgeschwindigkeiten infolge der Drehzahlerhöhung zu, allerdings ist der Einfluss auf die Relativgeschwindigkeiten zwischen beiden Komponenten deutlich schwächer ausgeprägt. Das heißt, dass sich keine merklichen Änderungen am radialen Bewegungsbild der Komponenten ergeben, weder durch die Drehzahlerhöhung noch durch die konstruktive Umgestaltung des Mischwerkzeugs. Dies trifft auf die Axialgeschwindigkeiten nicht zu.

Die unterschiedlichen axialen Geschwindigkeiten zwischen Grob- und Feingut sind auch in Abbildung 4.12 zu erkennen. Die Feingutkomponente in Abbildung 4.12 oben hat intensivere Farbunterschiede als das Grobgut unten. Die unterschiedlichen Befunde

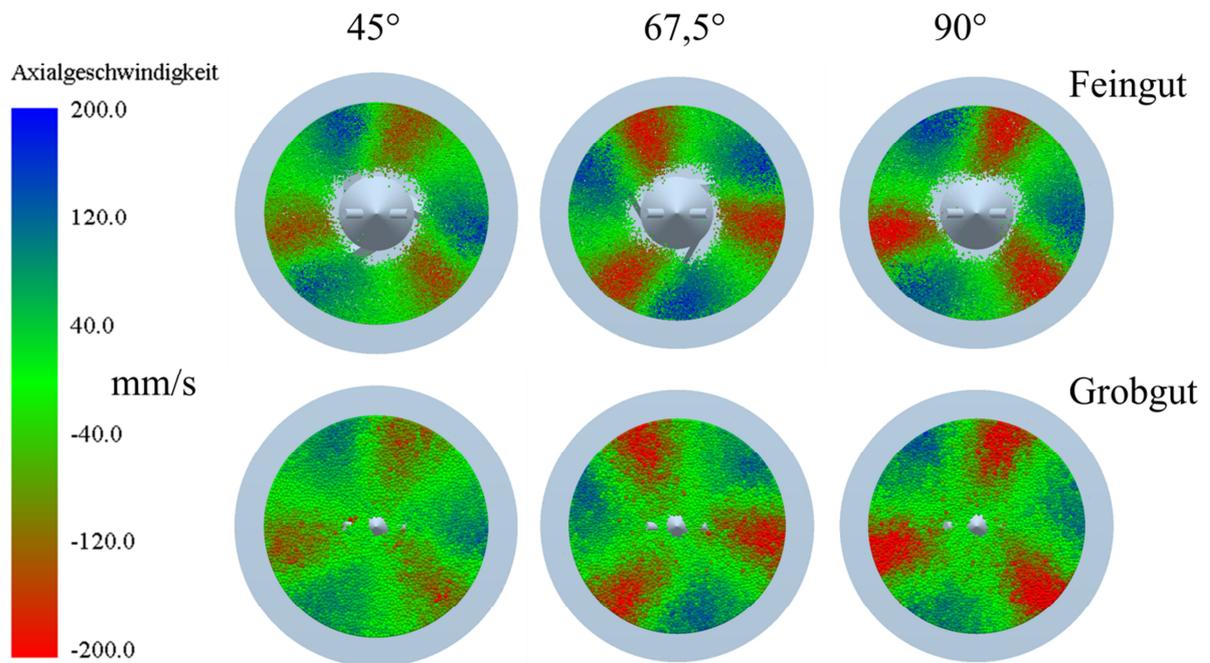


Abbildung 4.12: Mit Blick von oben sind die Axialgeschwindigkeiten einer Komponente farblich dargestellt. Oben ist das Fein- und unten das Grobgut dargestellt.

lassen sich darauf zurückführen, dass die feineren Partikeln infolge der Schwerkraft perkolieren, während beide Komponenten durch das Mischwerkzeug annähernd gleich radial beschleunigt werden. Aufgrund der Mischbehälterwand sind die radialen Partikelbeweglichkeiten beider Fraktionen stark beschränkt, während in axialer Richtung der zusätzliche Freiheitsgrad infolge variabler Schüttguthöhen existiert. Durch die zunehmende Fluidisierung infolge der Drehzahlsteigerung erhöht sich die axiale Bewegungsfreiheit. Hierdurch ist der relative Platzwechsel zwischen den beiden Komponenten in axialer Richtung intensiver.

Neben den diskutierten axialen und radialen Partikelbewegungen ist in Abbildung 4.13 anhand der mittleren Winkeländerung der einzelnen Komponenten zu erkennen, dass sich das Feingut tangential intensiver bewegt, als das Grobgut. Eine mittlere Winkeländerung von 180° gilt als ideal, da in diesem Fall das Schüttgut während einer Umdrehung tangential genau um die Hälfte einer Umdrehung rotiert und sich zusätzlich durch den dispersiven Mischmechanismus ein Konzentrationsausgleich ergibt. Der Grenzfall von 360° entspräche der Starrkörperrotation ohne entsprechende Mischwirkung. Somit ergeben sich in Abhängigkeit der Drehzahl und des Mischwerkzeugs unterschiedliche

optimale Betriebszustände hinsichtlich der tangentialen Partikelbewegungen. Beispielsweise ist der Mischvorgang bei 216 min^{-1} und 45° -Mischwerkzeug als besonders platzwechselintensiv zu bewerten. Das Grobgut und das Feingut liegen im Mittel nahe bei 180° und rotieren gleichzeitig mit einer hohen Differenz zueinander. Beim 90° -Mischwerkzeug lässt sich wiederum die Betriebsdrehzahl mit 108 min^{-1} als tangential besonders effizient detektieren. Zusätzlich zeigt sich im Vergleich beider Drehzahlen, dass der Geschwindigkeitsunterschied mit Drehzahlerhöhung abnimmt. Demzufolge hat die zunehmende Zentrifugalkraft einen ausgeprägteren Effekt auf die starr rotierenden Partikeln als auf komponentenspezifische relative Bewegungen.

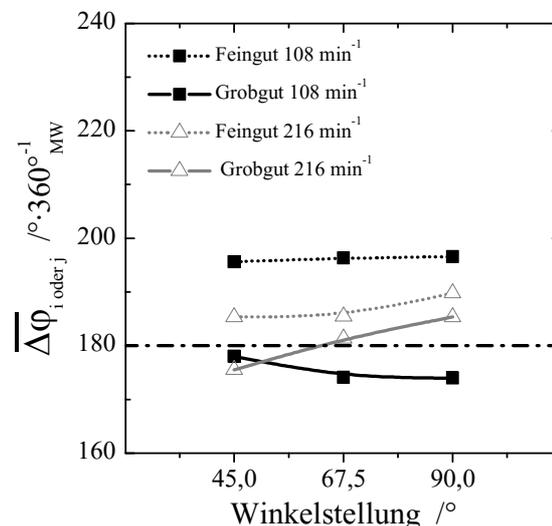


Abbildung 4.13: Mittlere Winkeländerung der beiden Mischungskomponenten pro Umdrehung des Mischwerkzeugs $\overline{\Delta\varphi_{i \text{ oder } j}}$ in Abhängigkeit der Winkelstellung.

Es gilt zu beachten, dass die axialen, radialen und tangentialen Partikelbewegungen immer in Wechselwirkung miteinander stehen, wobei den axialen Partikelgeschwindigkeiten, infolge der perkolierenden Segregation eine gesonderte Stellung zukommt. Übertragen auf einen Rotor-Granulator bei dem die Mischwirkung durch eine horizontal rotierende Platte und eine Gasströmung im Spalt realisiert wird, bewertet Neuwirth [80] mit bildanalytischen, experimentellen Untersuchungen und numerischen Simulationen den vertikalen Mischprozess ebenfalls als besonders kritisch. Dies untermauert die Annahme der eindimensionalen Markow-Ketten Modellierung zur Bestimmung der Dispersions- und Transportkoeffizienten, wengleich die Simulationen zeigen, dass

neben der axialen Perkolation auch eine Segregation in radialer Richtung auftritt. Die Koeffizienten sind somit für den dispersiven Misch- und den konvektiven Segregationsmechanismus ein globales Maß, das die Schnelligkeit und Homogenität des Mischprozesses ganzheitlich charakterisiert.

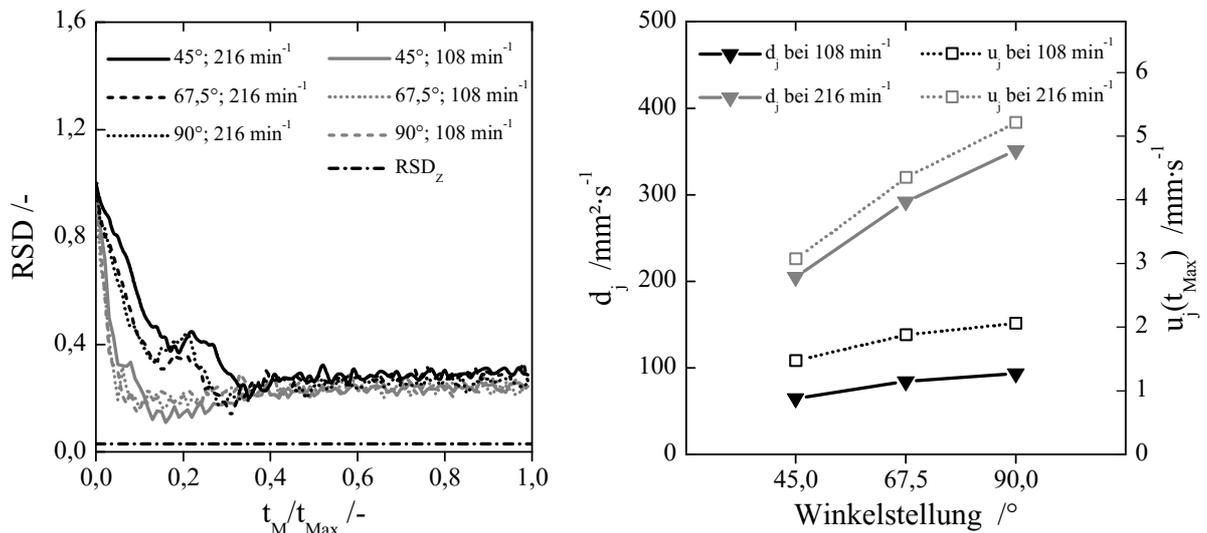


Abbildung 4.14: Mischgüteverläufe aller Drehzahlen und Winkelstellungen sowie die daraus abgeleiteten Dispersions- und Transportkoeffizienten als globale Modellparameter.

In diesem Zusammenhang sind der Mischgüteverlauf in Abbildung 4.14 links mit den zugehörigen Dispersions- und Transportkoeffizienten auf der rechten Seite für die drei Mischwerkzeugkonfigurationen dargestellt. Analog zu den vorherigen Untersuchungen in Abschnitt 4.4.1 erhöht sich die dispersive Partikelbeweglichkeit mit zunehmender Drehzahl. Gegensätzlich dazu zeigt die Winkelstellung eine minimale Erhöhung mit Zunahme der projizierten Mitnahmeffläche der Partikeln. Gleiches gilt auch für den Transportkoeffizienten. Als Folge daraus ändert sich die Endhomogenität nur unwesentlich. Da Dispersion und Konvektion im Feststoffmischer immer simultan auftreten, können hohe Dispersions- und Transportkoeffizient zu einem ähnlichen Endzustand wie zwei niedrige Koeffizienten im gleichen Verhältnis führen. Höhere Werte charakterisieren dabei eine niedrigere Mischzeit zum des finalen Endzustandes. Obwohl im Mischgüteverlauf kaum Unterschiede in der finalen Endhomogenität festzustellen sind, lassen sich nach Abbildung 4.15 interessanterweise am Behälterboden dennoch

unterschiedliche Partikelansammlungen beobachten. Beim 45° -Mischwerkzeug ist die axiale und radiale Segregation im Spalt zwischen Mischwerkzeug und Behälterwand besonders ausgeprägt. Demgegenüber lagern sich beim 90° -Mischwerkzeug höhere Mengen direkt vor den Mischwerkzeugblättern an. Beide Effekte stellen unerwünschte selektive Partikelansammlungen einer Komponente dar, die beim $67,5^\circ$ -Mischwerkzeug am geringsten ausgeprägt sind.

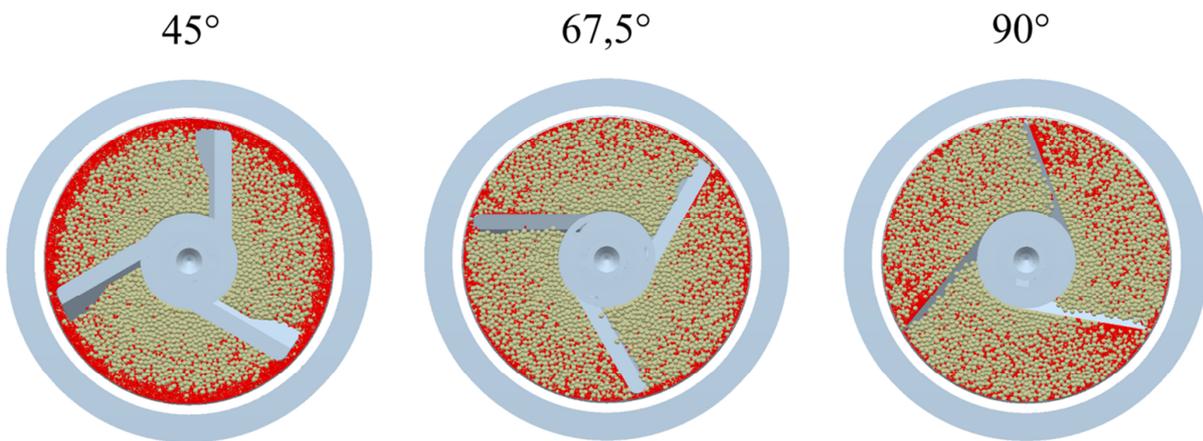


Abbildung 4.15: Darstellung des Endzustands am Behälterboden mit Sicht von unten bei unterschiedlichen Winkelstellungen des Mischwerkzeugs. Die Betriebsdrehzahl lag bei 108 min^{-1} .

4.4.3 Übertragung auf feine Partikelsysteme

Durch die Intensivierung der *Shader* Entwicklung stehen zunehmend plattformübergreifende Umgebungen für Grafikprozessor-Berechnungen, kurz GPGPU (engl. *General Purpose Computing on Graphical Processing Units*) zur Verfügung, welche insbesondere für parallelisierbare Rechenoperationen eine enorme Reduktion der Simulationsdauer im Vergleich zur zentralen Recheneinheit, kurz CPU (engl. *Central Processing Unit*), zur Folge haben kann [81]. Speziell die in der DEM angewandten hoch parallelisierbaren Matrizen- und Vektoroperationen eignen sich für die Berechnung auf grafischen Coprozessoren [76]. Die Firma DEM Solutions Ltd. implementierte 2017 einen auf *OpenCL* basierenden GPU-Löser im Software-Paket EDEM 3.0, um eine plattformübergreifende Unterstützung zu gewährleisten. Zum aktuellen Stand der Forschung steht im Löser keine Möglichkeit zur programmierbaren, selektiven Speicherung von Partikelei-

genschaften zur Verfügung, sodass die GPU-Technologie mit dem Hertz-Mindlin-Kontaktmodell auf trockene Schüttgüter beschränkt ist.

Obwohl feinere Partikelsysteme, die bis in den feinen Mikrometermaßstab reichen, einen kleineren Rechenzeitschritt mit sich bringen, lässt sich durch die Nutzung der grafischen Coprozessoren eine signifikant größere Partikelanzahl numerisch untersuchen. Unter 95 %-iger Auslastung der eingesetzten Grafikkarte AMD Radeon R9 Fury X stellen 6,4 Millionen Partikeln im betrachteten Mischer das hardwaretechnisch beschränkte Maximum (4096 Steamprozessoren) dar. In technischen pulverförmigen Mischvorgängen wie beispielsweise dem ersten Prozessschritt der Fertigung von Lithium Ionen Batterie-Elektroden [3] sind jedoch häufig Partikelanzahlen im Bereich von Milliarden oder gar Billionen umzusetzen. Daher ist im Rahmen dieses Abschnitts numerisch und experimentell untersucht, inwiefern sich die Partikelbeweglichkeiten bei gleichbleibenden geometrischen Abmessungen des Mixers verändern, um aus weniger zeitintensiven Simulationen mit geringeren Partikelanzahlen Prognosen für technisch relevante Prozesse anhand der charakteristischen Kenngrößen ableiten zu können.

Siegmann et al. [82] führen GPU Simulationen zur Untersuchung eines diskontinuierlichen Mischprozesses mit ca. 2,4 Mio. Partikeln durch, um die Simulationszeit bei konstanter Froude-Zahl über eine lineare Skalierung der Federsteifigkeit zu reduzieren. Die Übereinstimmung im Mischungsindex zeigt ein Einsparpotential von bis zu ca. 60 % in der Simulationsdauer. Hier sollen die GPU Simulationen dazu genutzt werden, um zu evaluieren, inwiefern sich die gewonnen Erkenntnisse auch auf technische Pulver übertragen lassen, die aufgrund der hohen Partikelanzahl nicht direkt simulieren werden können.

In Abbildung 4.16 sind Visualisierungen der Schüttgutoberfläche gezeigt, wobei sich die Partikelradien bei gleichzeitiger Verachtfachung der Partikelanzahl von rechts nach links halbieren. Feinere Partikelkollektive die sich numerisch nicht untersuchen lassen, sind in Abbildung 4.16 ganz rechts als Fotografien zu unterschiedlichen Zeitpunkten dargestellt. Als Übertragungskriterien werden gleiche Partikelgrößenverhältnisse und der gleiche prozentuale Anteil der additiven Komponente verwendet. Abgesehen von den Wandeffekten ergeben sich ungefähr dieselben Schüttguthöhen und -mengen. Bei gleichbleibendem Partikelgrößenverhältnis zeigt sich eine langsamere Durchmischung an der Schüttgutoberfläche mit immer feiner werdenden Partikelkollektiven.

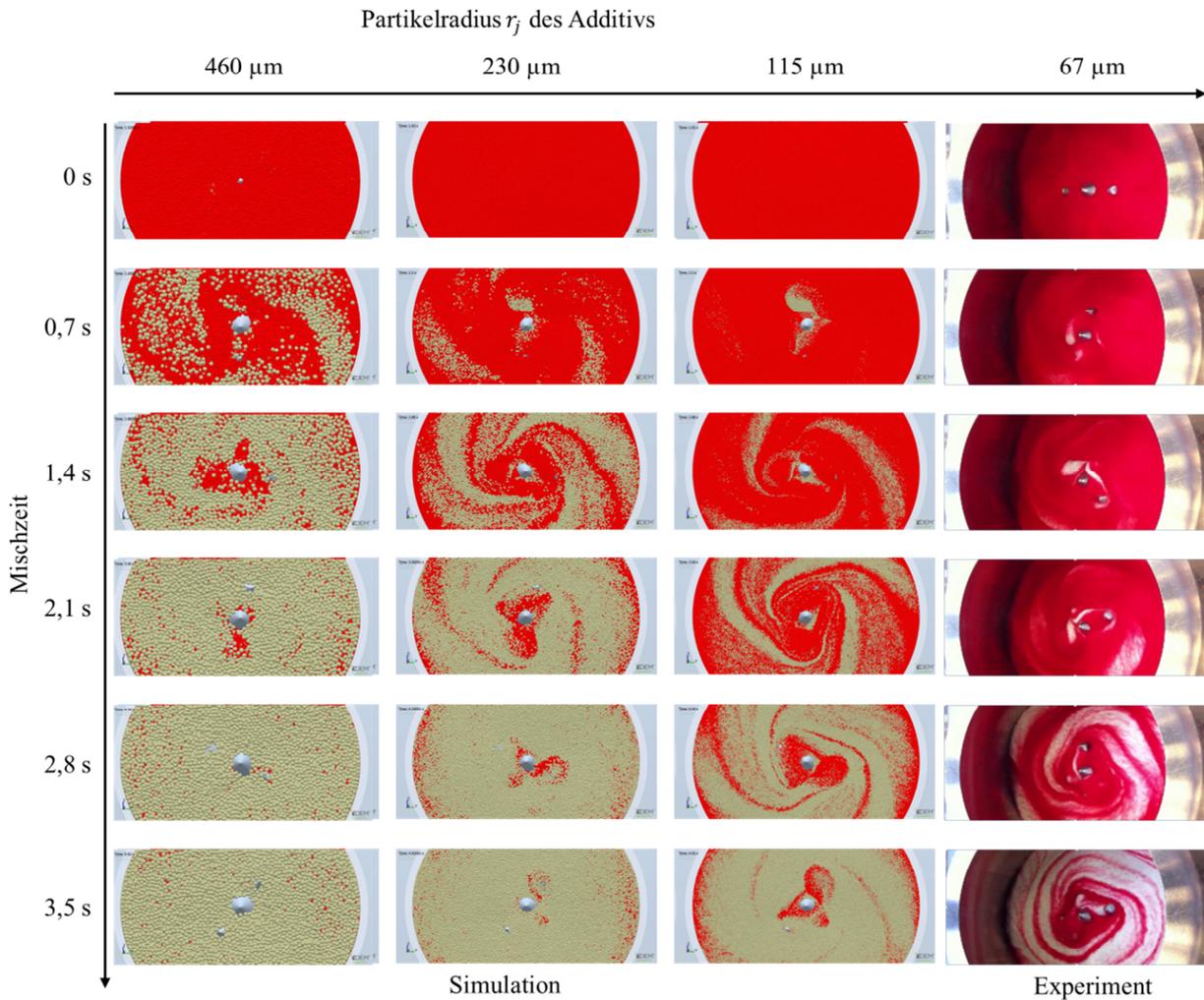


Abbildung 4.16: Momentaufnahme des Mischprozesses im Pharmamischer bei Sicht auf die Schüttgutoberfläche. Die Mischzeit nimmt von oben nach unten linear zu. Von links nach rechts sind die Partikelradien halbiert, bei gleichzeitiger Verachtffachung der Partikelanzahl (Links: 0,1 Mio.; Mitte: 0,8 Mio.; Rechts: 6,4 Mio.). Ganz rechts außen sind Fotografien der experimentellen Untersuchungen dargestellt.¹⁰

Dies veranschaulichen auch die Mischgüteverläufe inklusive numerischer Lösung der Fokker-Planck Gleichung in Abbildung 4.17 bei zwei verschiedenen Drehzahlen. Die aus den Verläufen abgeleiteten Dispersions- und Transportkoeffizienten in Abbildung 4.18 zeigen eine Abnahme in Richtung feiner werdender Fraktionen. Das heißt, dass die additive Komponente bei gleicher Drehzahl im größeren Partikelsystem eine deutlich

¹⁰ Auf einer AMD Radeon R9 Fury X dauert die Simulation von 6,4 Mio. Partikeln bei einer Realzeit von 20s ungefähr 34 Tage. Die Visualisierung den Mischgüteverläufen in Abbildung 4.17 rechts zuzuordnen.

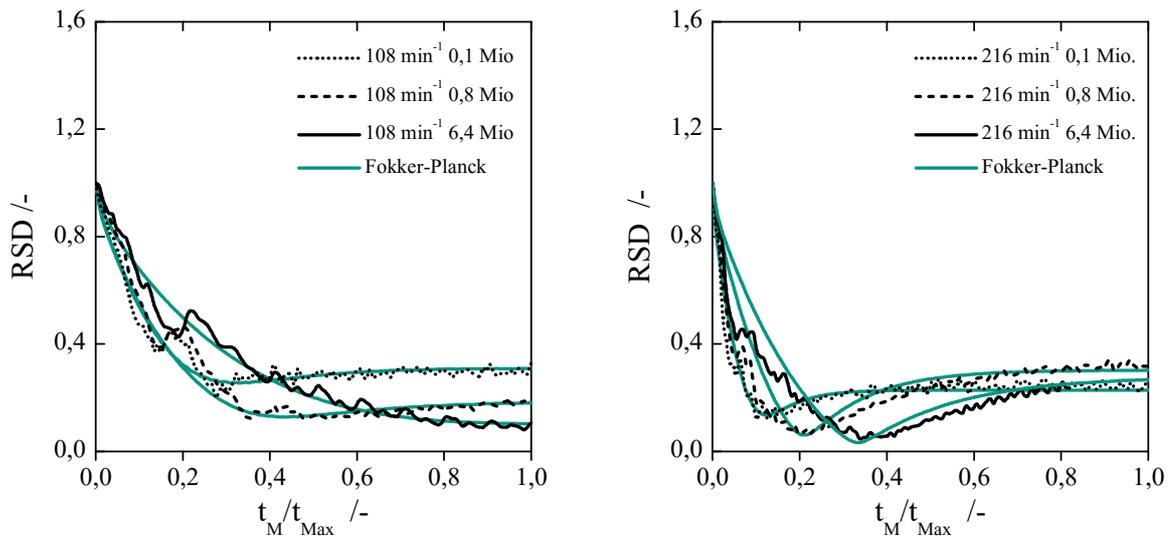


Abbildung 4.17: Aus den Simulationen bestimmte Mischgüteverläufe und die adaptierte Fokker-Planck Lösung für unterschiedliche Drehzahlen und Partikelanzahlen. Die stochastische Homogenität ist nicht dargestellt, da sich bei gleichem Probenvolumen unterschiedliche Werte ergeben.

höhere Partikelbeweglichkeit aufweist. Gleiches gilt für den zeitabhängigen Transportkoeffizienten. Demzufolge verläuft die segregierende Perkolation im größeren Partikelsystem schneller als im feineren System. Auffällig ist hierbei vor allem der annähernd lineare Zusammenhang der Dispersions- und Transportkoeffizienten mit abnehmender Partikelgröße, wobei die Steigung der linearen Abnahme von der Betriebsdrehzahl abhängt. Die höhere Drehzahl hat eine schnellere Abnahme des dispersiven Mischmechanismus zur Folge.

Auch für noch feinere Glaskugeln, die im gewählten Größenbereich kohäsionslos sind, setzt sich die Tendenz der abnehmenden Partikelbeweglichkeiten fort. Sowohl bei 100 als auch bei 200 min^{-1} reduziert sich der Dispersionskoeffizient, was praktisch höhere Mischzeiten zur Folge hat. Die experimentell bestimmten Transportkoeffizienten liegen leicht oberhalb der linear approximierten Abnahme. Dies spricht dafür, dass der Mischprozess bei pulvrigen Komponenten etwas langsamer vonstattengeht und eine minimal höhere konvektive Segregation als prognostiziert auftritt. Einerseits liegt dies darin begründet, dass die pulvrigen Glaspartikeln leicht von der idealen Kugelgestalt

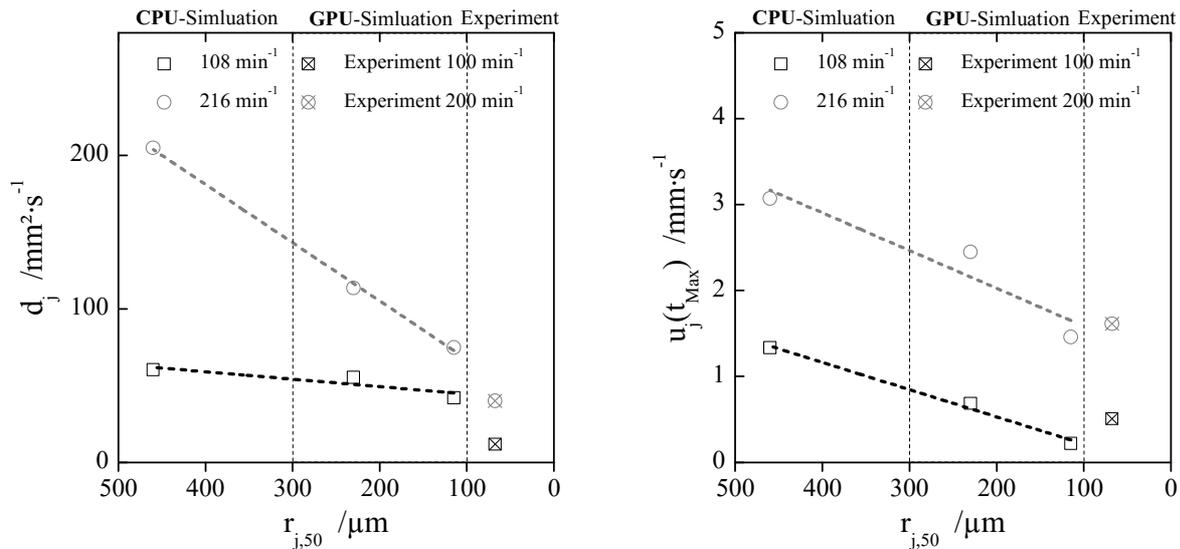


Abbildung 4.18: Axiale Dispersions- (links) und zeitabhängige Transportkoeffizienten (rechts) als Funktion der mittleren Partikelgröße $r_{j,50}$ des Additivs.¹¹

abweichen¹², wodurch das Bewegungsverhalten beeinflusst wird. Andererseits gilt es zu beachten, dass bei den gewählten Partikelgrößen zwar van-der-Waals-Kräfte als sehr gering zu bewerten sind, dennoch aber elektrostatische Wechselwirkungen Einfluss auf das Bewegungsverhalten nehmen können [83].

Die Untersuchungen verdeutlichen, dass im untersuchten Apparat der axiale dispersive Misch- und der konvektive Segregationsmechanismus weitestgehend linear mit abnehmender Partikelgröße skalieren. Der qualitative Vergleich anhand der Momentaufnahme in der untersten Schnittebene des Mischers in Abbildung 4.19 unterstützt die Tatsache, dass sich der Segregationsmechanismus auch bei kleineren Partikeln in derselben Art und Weise ausbildet. Die bereits angesprochene Ansammlung im Spalt zwischen Werkzeug und Wand bildet sich gleichermaßen aus, wobei sich in den Simulationen eine schärfere Trenngrenze zwischen rotem Additiv und homogenerem Mischgut entlang der zylindrischen Wandung zeigt. Höchstwahrscheinlich ist dies auf das zunehmende Verhältnis zwischen Partikelgröße und Spaltgröße am Behälterboden zurückzuführen. Je feiner die Komponenten sind, desto mehr Partikeln bleiben anzahlmäßig am Behälterboden liegen, da sie aufgrund des Spalts zwischen Werkzeug und Boden nicht mehr in Bewegung versetzt werden können.

¹¹ Die Mischgütevverläufe der experimentellen Untersuchungen sind im Anhang A1 zu finden.

¹² Man betrachte hierzu nochmal die REM Aufnahmen in Abbildung 3.7 rechts.

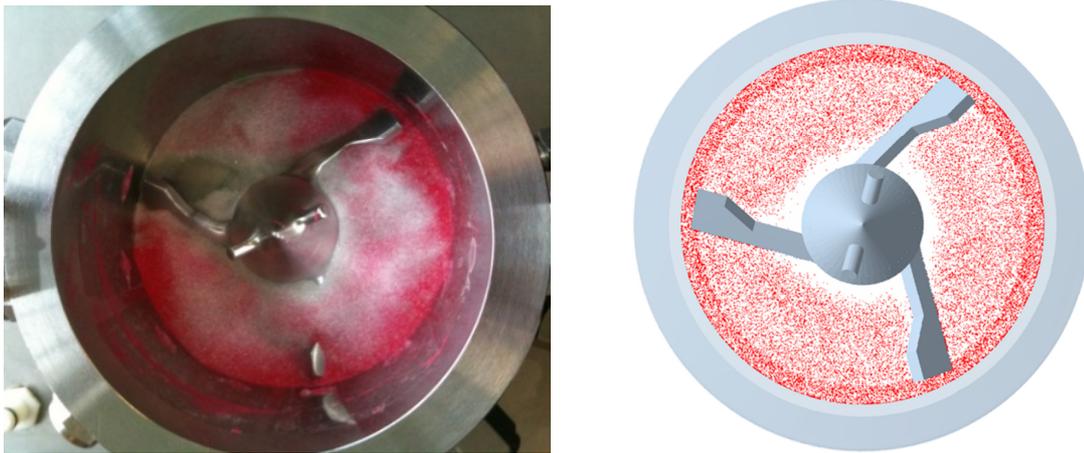


Abbildung 4.19 links: Fotografie des Experiments mit $r_{j,50} = 67 \mu\text{m}$ wobei das Mischgut zum größten Teil händisch abgetragen wurde. Rechts: Visualisierung des Endzustands in der Simulation ($r_{j,50} = 135 \mu\text{m}$) mit horizontalem Schnitt in Anlehnung an das Experiment.

4.5 Fazit

Als grundsätzliches Fazit ist festzustellen, dass die Partikelgrößenverhältnisse maßgeblichen Einfluss auf die Mischgüteverläufe und das Dispersions- und Transportverhalten im Mischbehälter nehmen. In Analogie zu den Untersuchungen in einem Schrägkegelmischer [53] steigt mit zunehmendem Partikelgrößenverhältnis die Herausforderung an den Mischprozess, auch im hier untersuchten Pharmamischer.

Infolge der geometrischen Änderung am Mischwerkzeug ist nicht nur eine Steigerung der globalen Dispersions- und Transportkoeffizienten zu beobachten, wodurch sich schnellere Mischzeiten ergeben, sondern auch eine minimal verbesserte Mischgüte bei Verwendung des $67,5^\circ$ -Mischwerkzeugs. Zurückzuführen ist dies auf eine veränderte richtungsabhängige Segregation.

Im Rahmen der Untersuchungen zur Übertragbarkeit auf feinere Partikelsysteme zeigen die Simulationen eine annähernd lineare Abnahme der globalen Dispersions- und Transportkoeffizienten mit Verringerung der Partikelgröße bei sonst gleich bleibenden Simulationsbedingungen. Der Vergleich zu den Experimenten mit noch feineren Komponenten, die zum aktuellen Stand der Forschung auch mit Hilfe der GPU-Technologie nicht simulierbar sind, zeigt eine minimale Abweichung vom erwarteten

Verlauf. Numerische Untersuchungen zum Bewegungsverhalten nicht sphärischer Partikeln [84] lassen vermuten, dass dies in der abweichenden realen Form der Glaspartikeln begründet ist.

Im Rahmen dieses Kapitels wurden die Mischmechanismen frei fließender Partikelsysteme und die dabei auftretende perkolierende Segregation diskutiert. Durch interpartikuläre Haftkräfte ändert sich das Bewegungsverhalten wodurch eine Reduktion der perkolierenden Segregation zu erwarten ist. Folgend werden die Untersuchungen auf feuchte Mischgüter erweitert.

Kapitel 5

Flüssigkeitsbrückenmodell¹³

Induziert man Flüssigkeit in ein partikuläres Feststoffsystem, ist eine Veränderung des Gesamtmaterialverhaltens infolge der Wechselwirkung zwischen fluider und disperser Phase festzustellen. In Abhängigkeit der absoluten Flüssigkeitsmenge liegen feuchte Schüttgüter dabei entweder im Brücken-, Übergangs- oder Kapillarbereich vor [86]. Die nachfolgenden Betrachtungen beziehen sich auf den Brückenbereich, mit dem sich feuchte kohäsive Schüttgüter in Mischgranulierprozessen beschreiben lassen.

5.1 Stand der Technik und Zielsetzung

Zur DEM-Simulation von feuchten Schüttgütern ist ein zusätzlicher Term für die anziehende Flüssigkeitsbrückenkraft $|\vec{f}_B|$ im translatorischen Newton'schen Bewegungsgesetz zu berücksichtigen

$$m_i \frac{d\vec{u}_i}{dt} = m_i \vec{g} + \sum_{\kappa=1}^{N_L} \vec{f}_{c,ij} + \sum_{\kappa=1}^{N_L} \vec{f}_{B,ij} . \quad (5.1)$$

In der aktuellen Literatur finden sich verschiedene Ansätze, um die Flüssigkeitsbrückenkraft bei konstanten Brückenvolumina zu beschreiben. All diese Ansätze haben gemeinsam, dass die Flüssigkeitsbrücke bis zu einem kritischen Partikelabstand

¹³ Inhalte dieses Abschnitts wurden in *Granular Matter* veröffentlicht und mit der Erlaubnis vom *Springer Verlag* für die Dissertation übersetzt und angepasst. [85] S. Schmelzle und H. Nirschl, "DEM simulations: mixing of dry and wet granular material with different contact angles", *Granular Matter*, (20), 2018.

volumenstabil ist. Mikami et al. [87] gehören zu den ersten Autoren, die Regressionsausdrücke für den Kraftterm und die Bruchdistanz durch numerisches Lösen der Young-Laplace-Gleichung entwickeln und diese in einer CFD-DEM gekoppelten Simulation zur Analyse des Partikelbewegungsverhaltens im Wirbelschichtreaktor anwenden. Remy et al. [54] übertragen dieses Modell auf diskontinuierliche Feststoffmischprozesse und validieren ihre numerischen Befunde experimentell mittels bildgebender Verfahren zur Geschwindigkeitsmessungen. In einem Behälter mit kurzblättriger Rührgeometrie zeigen sich Einflüsse der absoluten Flüssigkeitsmengen auf die Mischkinetik sowie auf lokal auftretende Agglomerate. Das Modell von Mikami et al. [87] beschränkt sich jedoch vereinfachend auf das Kontaktereignis zwischen monodispersen Partikeln und Partikel-Wand-Interaktionen. Soulie et al. [88] erweitern das dimensionslose Flüssigkeitsbrückenkraftmodell auf polydisperse Materialien, welches Anand et al. [89] zur Simulation der Entleerung eines Dosiertrichters anwenden. Auf Basis eines numerisch generierten Datensatzes stellen Lian und Seville [90] eine Optimierung der bis dato vorhandenen Regressionsgleichungen vor, mit deren Hilfe die Flüssigkeitsbrückenkraft über den Brückenfüllungswinkel und den Partikelabstand direkt analytisch berechenbar ist. Diese Gleichungen decken ein breiteres Feld unterschiedlicher Partikelgrößen ab und stellen analog zu Soulie et al. [88] ein verbessertes Modell zur Beschreibung eines feuchten partikulären Materials mit breiter Größenverteilung dar. Variable Benetzungseigenschaften sind in deren nicht-linearem Gleichungssystem nicht berücksichtigt und auf nur einen Kontaktwinkel beschränkt. Übertragen auf Mischprozesse eignen sich die Modellgleichungen demzufolge, um den Kontakt polydisperser Partikeln aus demselben Material zu beschreiben. Bei Feststoffmischprozessen sind grundsätzlich mehrere Ausgangsmaterialien homogen zu verteilen, die sich häufig in diversen Materialeigenschaften unterscheiden. Zusätzlich zum Größenunterschied variieren die Materialien üblicherweise auch in der Feststoffdichte und den Benetzungseigenschaften. Mit der Annahme der arithmetischen Mittelung des Kosinus der beiden Kontaktwinkel erweitern Butt und Kappl [91] die toroidale Approximation, um sowohl unterschiedliche Partikelradien als auch Kontaktwinkel im Term der Flüssigkeitsbrückenkraft zu berücksichtigen. Deren analytische Herleitung beruht auf der Annahme eines sehr kleinen Brückenfüllungswinkels ($\beta \rightarrow 0^\circ$) und ist daher auf sehr kleine Flüssigkeitsbrückenvolumina beschränkt.

Mit Blick auf die vorhandene Literatur ist festzustellen, dass die Implementierung von Flüssigkeitsbrücken in DEM-Simulationen mit vereinfachenden Annahmen möglich ist, und sich damit das Bewegungsverhalten von feuchten Schüttgütern numerisch beschreiben lässt. Da sich die vorhandenen Modelle häufig auf ein Partikelkollektiv mit gleichen physikalischen Eigenschaften oder den monodispersen Fall konzentrieren, sind Simulationen von feuchten Mischprozessen mit unterschiedlichen Materialeigenschaften nicht möglich. Darüber hinaus existieren auch für die Berechnung des Bruchverhaltens der Flüssigkeitsbrücken sowie für die Modellierung der Flüssigkeitsverteilung keine geeigneten Ansätze zur Anwendung in der Mischtechnik. Eine grundlegende Modellerweiterung zur interpartikulären Wechselwirkung zweier verschiedener Partikelkollektive ist somit unabdingbar. Dieser Fall ist in den folgenden Abschnitten untersucht.

5.2 Young-Laplace Gleichung

5.2.1 Beschreibung rotationssymmetrischer Flüssigkeitsbrücken

Induziert man eine geringe Flüssigkeitsmenge zwischen zwei im Kontakt stehende Partikeln, bildet sich ein rotationssymmetrischer Meniskus aus, sofern ein gravitationsfreier Raum und gleichmäßige Benetzung angenommen werden können. Eine rotationssymmetrische Flüssigkeitsbrücke zwischen zwei ebenfalls symmetrischen Kugeln ist schematisch in Abbildung 5.1 gezeigt. Die Berechnung der Spannungsfläche, die in ebener Betrachtung als rotationssymmetrische Flüssigkeitsbrückenkurve beschrieben ist, erfolgt in einem Oberflächenpunkt der Brücke über zwei Krümmungsradien r_1 und r_2 , deren Bogenlängen sich senkrecht schneiden. Unter Krümmung ist dabei die Abweichung einer Kurve von der Geraden zu verstehen. Jeder Punkt einer gekrümmten Fläche weist im dreidimensionalen Raum einen Normalenvektor mit senkrecht zueinander stehenden Tangentialvektoren auf. Jedem Tangentialvektor wird dabei eine Normalenkrümmung $k = 1/r$ zugeordnet. Die minimalen und maximalen auftretenden Krümmungen werden als Hauptkrümmungen k_1 und k_2 mit den Hauptkrümmungsradien R_1 und R_2 bezeichnet. Die zugehörigen Tangentialrichtungen stehen senkrecht zueinander und heißen „Hauptkrümmungsrichtungen“. Aus dem Kräftegleichgewicht an jedem Punkt der

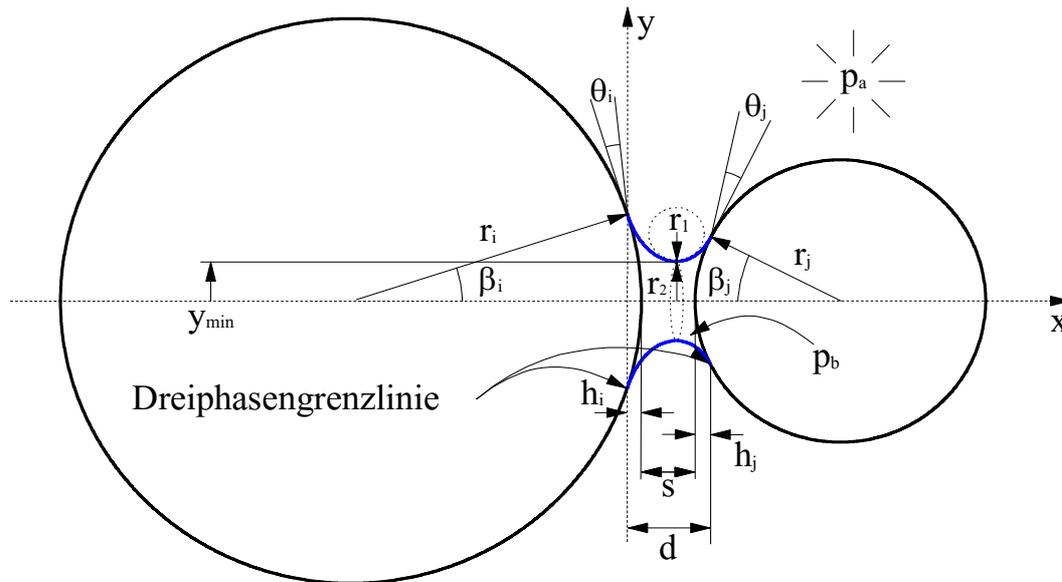


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung einer Flüssigkeitsbrücke zwischen zwei idealen Kugelpartikeln inklusive der geometrischen Abmessungen, die sich als Folge der ausgebildeten Grenzfläche ergeben.¹⁴

Grenzfläche erhält man den Zusammenhang zwischen der Druckdifferenz Δp – auch Kapillardruck genannt – und der Brückenform nach Young¹⁵ und Laplace¹⁶:

$$\Delta p = p_a - p_b = \gamma \left(\frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2} \right) = \gamma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right). \quad (5.2)$$

Die Druckdifferenz $p_a - p_b$ ergibt sich aus den Drücken innerhalb der durch die Grenzfläche getrennten, homogenen Phasen a und b . Existiert kein Differenzdruck Δp , reduziert sich das Problem von der gekrümmten zur ebenen Grenzfläche. Ist die Grenzfläche wie in Abbildung 5.1 im Mittel gekrümmt, wirkt die Grenzflächen­spannung γ der Druckdifferenz entgegen. Weist die flüssige Phase b in der Brücke eine höhere Dichte und einen niedrigeren Druck als die umgebende Phase a auf, sei der Kapillardruck positiv definiert. Infolge der beiderseits negativ gerichteten Krümmungsradien herrscht in der Flüssigkeitsbrücke, unter der Voraussetzung eines mechanischen Gleichgewichts unabhängig vom Ort überall derselbe Unterdruck. In einem in der

¹⁴ Es sei darauf hingewiesen, dass die verwendeten lateinischen Kleinbuchstaben in Abbildung 5.1 dimensionsbehaftete Größen und die komplementären Großbuchstaben dimensionslose Größen darstellen. Lediglich zur Unterscheidung zwischen den Krümmungsradien r_1, r_2 und den Hauptkrümmungsradien R_1, R_2 wurde hierauf verzichtet.

¹⁵ Thomas Young, (*30 September 1773; †20 Oktober 1829), englischer Augenarzt und Physiker.

¹⁶ Pierre-Simon (Marquis de) Laplace, (*23. März 1749; †5 März 1827), französischer Mathematiker und Physiker.

Erdatmosphäre stationär fallenden, kugelförmigen Tropfen stellt sich im Gegensatz zur Flüssigkeitsbrücke ein kapillarer Überdruck ein. Entsprechend der Krümmung in Abbildung 5.1 entsteht infolge des kapillaren Unterdrucks und dem zusätzlich wirkenden axialen Teil der Grenzflächenspannung eine anziehende Flüssigkeitsbrückenkraft. Zur Berechnung des Kapillardrucks und der daraus resultierenden Flüssigkeitsbrückenkraft ist die geometrische Form der Flüssigkeitsoberfläche zu bestimmen. Unter der Voraussetzung eines konstanten Drucks innerhalb der Brücke kann die Young-Laplace Gleichung mit dem in Abbildung 5.1 gezeigten Koordinatensystem als gewöhnliche Differentialgleichung zweiter Ordnung dargestellt werden

$$\frac{\Delta p}{\gamma} = \frac{d^2 y / dx^2}{\underbrace{\left(1 + \left(\frac{dy}{dx}\right)^2\right)^{1,5}}_{1/R_1}} - \frac{1}{\underbrace{y \left(1 + \left(\frac{dy}{dx}\right)^2\right)^{0,5}}_{1/R_2}}, \quad (5.3)$$

die den exakten Brückenverlauf $y(x)$ als ebenes rotationssymmetrisches Problem beschreibt. Während der Krümmungsradius R_2 senkrecht zur Projektionsfläche steht und damit negativ ist, kann der Krümmungsradius R_1 sowohl positive als auch negative Werte annehmen. Aus beiden Hauptkrümmungsradien ist zur Lösung der Young-Laplace Gleichung (5.3) einerseits die mittlere Krümmung

$$H = \frac{1}{2}(k_1 + k_2) = \frac{1}{2}\left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}\right) \quad (5.4)$$

als arithmetisches Mittel zu definieren und andererseits die dimensionslose Beschreibung zur partikelgrößenunabhängigen Berechnung empfehlenswert

$$2H^* = \frac{\Delta p \cdot r_{ij}}{\gamma} = \frac{Y''(X)}{\left(1 + Y'(X)^2\right)^{1,5}} - \frac{1}{Y(X)\left(1 + Y'(X)^2\right)^{0,5}}. \quad (5.5)$$

Die Entdimensionierung erfolgt mithilfe des reduzierten Partikelradius r_{ij} , der sich aus den beiden Partikelradien r_i und r_j ergibt:

$$r_{ij} = \frac{2r_i r_j}{r_i + r_j}, \quad Y = \frac{y}{r_{ij}}, \quad X = \frac{x}{r_{ij}}, \quad H^* = \frac{H}{r_{ij}}. \quad (5.6)$$

5.2.2 Numerische Lösung der Young-Laplace Gleichung

Um das genaue Flüssigkeitsbrückenprofil für jede mögliche Brückengeometrie zu bestimmen und damit die exakte Flüssigkeitsbrückenkraft abzuleiten, sind numerische Methoden zu verwenden. Hotta et al. [92] gehören zu den Ersten, die die Young-Laplace Gleichung numerisch für eine Kugel-Platte Anwendung lösen. Schubert [93] veröffentlicht Lösungen für die Kugel-Kugel Anwendung, ohne explizit den numerischen Ansatz zu erklären, sodass die viel zitierte Arbeit von Lian et al. [94] als Grundlage für die Berechnung volumenstabiler Flüssigkeitsbrücken gilt. In der numerischen Vorgehensweise ist die Lösung der Young-Laplace Gleichung durch eine nach der zweiten Ableitung abgekürzten Taylorreihe zu approximieren, die den Meridian des Flüssigkeitsbrückenprofils $Y(x)$ beschreibt:

$$Y_{\kappa+1} = Y_{\kappa} + (X_{\kappa+1} - X_{\kappa})Y'_{\kappa}(X) + \frac{1}{2}(X_{\kappa+1} - X_{\kappa})^2 Y''_{\kappa}(X) , \quad \kappa = 0; 1; 2; \dots \quad (5.7)$$

Die anschließende Substitution $Q = Y''^2 + 1$ transformiert Gleichung (5.7) in eine Bernoulli'sche Differentialgleichung mit konstanter dimensionsloser mittlerer Krümmung H^* , deren Integrationskonstante

$$C = \frac{Y}{(1+Y'^2)^{1/2}} + H^*Y^2 \quad (5.8)$$

über die Randbedingungen an den Dreiphasengrenzlinien bei $X = 0$ und $X = D = d/r_{ij}$ zu berechnen ist. Hierbei beschreiben $R_i = r_i/r_{ij}$ und $R_j = r_j/r_{ij}$ die dimensionslosen Partikelradien

$$Y(0) = R_i \sin(\beta_i), \quad (5.9a) \quad Y'(0) = -\cot(\beta_i + \theta_i), \quad (5.9b)$$

$$Y(D) = R_j \sin(\beta_j), \quad (5.10a) \quad Y'(D) = \cot(\beta_j + \theta_j). \quad (5.10)$$

Als Randbedingung berührt die Projektionskurve $Y(X)$ die Partikeln i und j an den Stellen $X = 0$ und $X = D$, wodurch die Brückenfüllungswinkel β_i und β_j definiert sind. An diesen Berührungspunkten unterscheiden sich die Steigungen der Partikeln von den Steigungen der Projektionskurve um den Betrag des jeweiligen Kontaktwinkels. Bei einem vorgegebenen Kontaktwinkel von $\theta_i = 0^\circ$ sind beispielsweise beide Gradienten im Berührungspunkt identisch. Die Integrationskonstante verknüpft die beiden Randbedingungen

$$\frac{Y(0)}{(1+Y'(0)^2)^{0,5}} + H^*Y(0)^2 = \frac{Y(D)}{(1+Y'(D)^2)^{0,5}} + H^*Y(D)^2 = C . \quad (5.11)$$

Das Flüssigkeitsbrückenprofil nach Gleichung (5.7) ist mithilfe der expliziten Euler Methode zu bestimmen. Hierzu sind die Kontaktwinkel, Partikelradien sowie das Flüssigkeitsbrückenvolumen festzulegen und der dimensionslose Partikelabstand mit $S = s/r_{ij} = 0$ zu initialisieren. Ausgehend von einem durch die Randbedingung festgelegten Berührungspunkt erfolgt die Variation der mittleren konstanten Krümmung so lange bis ein absoluter Fehler kleiner als 10^{-6} im Bogenmaß des Kontaktwinkels θ_j erreicht ist. Der definierte Fehler berechnet sich mit Gleichung (5.10) und wird als hinreichend genaues Maß akzeptiert [90]. Auf diese Weise lässt sich ein Flüssigkeitsbrückenprofil für eine konstante mittlere Krümmung mit vorgegebenem dimensionslosem Flüssigkeitsbrückenvolumen $V = v/r_{ij}^3$ berechnen. Dieses ist durch Integration des Brückenprofils über das Intervall zwischen den Dreiphasengrenzlinien bei $x = 0$ und $x = d$ zu ermitteln

$$V = \frac{\pi}{r_{ij}^3} \int_0^d y^2(x) dx - \frac{\pi}{6} [3y^2(0)h_i + h_i^3 + 3y^2(d)h_j + h_j^3] . \quad (5.12)$$

Hierbei beschreiben h_i und h_j die Kugelsegmenthöhen der jeweiligen Partikeln, welche durch einfache geometrische Beziehungen zu berechnen sind (vergleiche hierzu Abbildung 5.1). Das berechnete Flüssigkeitsbrückenvolumen stimmt dann nicht notwendigerweise mit dem vordefinierten Wert überein, was eine Korrektur von $Y(0)$ und eine wiederholte Berechnung der mittleren Krümmung erfordert. Diese Vorgehensweise ist so lange durchzuführen, bis ein Fehler kleiner als 10^{-6} sowohl im dimensionslosen Flüssigkeitsbrückenvolumen als auch im Kontaktwinkel an der Partikel j erreicht wird. Die Diskretisierung von ΔX ist adaptiv klein genug, um diesen Fehlerwert zu garantieren. Ist eine Lösung für den Anfangszustand bei $S = 0$ gefunden, ist der Partikelabstand um ΔS zu erhöhen, sodass sich das Flüssigkeitsbrückenprofil $Y(X)$ für einen schrittweise zunehmenden Partikelabstand bei konstanten Flüssigkeitsbrückenvolumen ergibt. Der erläuterte Algorithmus ist schematisch in Abbildung 5.2 dargestellt.

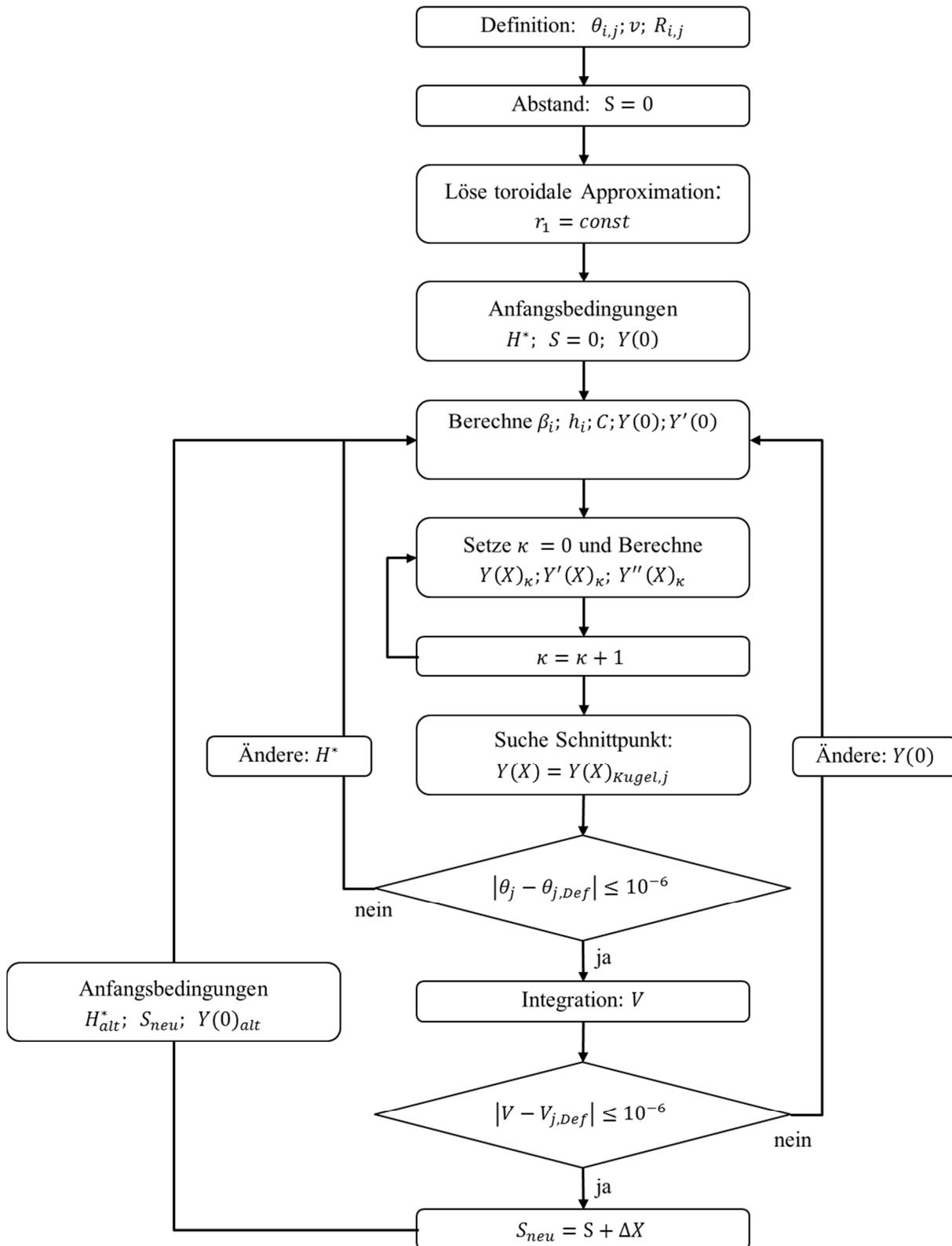


Abbildung 5.2: Schematische Darstellung des Numerischen Algorithmus zur Lösung der Young-Laplace Gleichung ((5.2)-(5.12)) für ein konstant bleibendes Volumen.

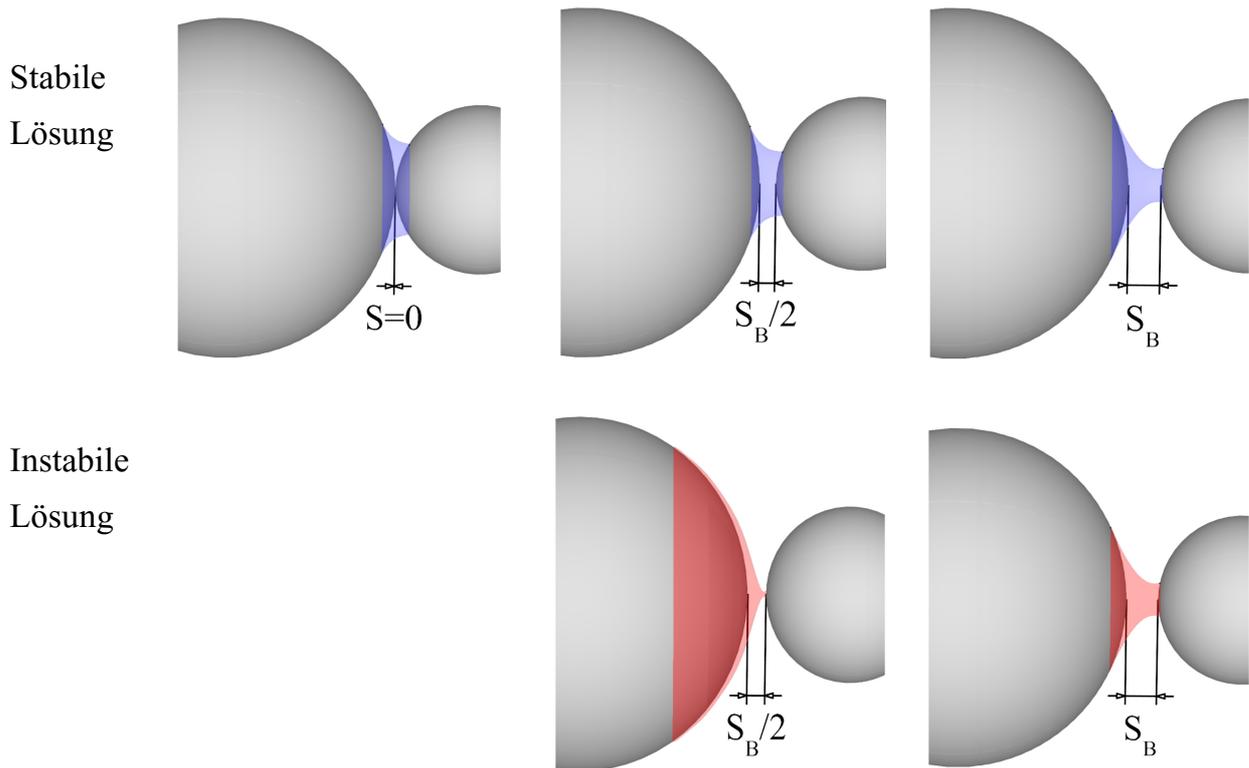


Abbildung 5.3: Darstellung des berechneten Flüssigkeitsbrückenprofils bis zum Erreichen der dimensionslosen Bruchdistanz S_B . Die blau eingefärbte Flüssigkeitsbrücke stellt den stabilen, die rot eingefärbte den instabilen Zustand dar. Beim Erreichen der Bruchdistanz ist die Konvergenz beider Lösungen erreicht. Für einen Partikelabstand von $S = 0$ existiert beim vorgegebenen Volumen von $v = 0,15 \text{ mm}^3$ keine instabile Lösung.

Da rotationssymmetrische Flüssigkeitsbrücken minimale Grenzflächen zur Umgebungsatmosphäre ausbilden, kann die Vergrößerung des Partikelabstands S nicht unendlich durchgeführt werden. Abbildung 5.3 verdeutlicht, dass nach dem Überschreiten einer kritischen Bruchdistanz $S_B = s_B/r_{ij}$ keine stabile Brückenbildung mehr möglich ist. In diesem Fall ist keine Lösung der Young-Laplace Gleichung zu finden. Mathematisch ist der Punkt der kritischen Brückenstabilität durch die Konvergenz einer zweiten Lösung, die ebenfalls die Randbedingung erfüllt, gegeben. Dementsprechend führt die Existenz mehrerer Lösungen zur Beschreibung der Brückenstabilität. Die in Abbildung 5.3 zusätzlich gezeigte mathematisch mögliche Lösung ist aufgrund der Grenzflächenspannung des Flüssigkeitsbrückensystems als thermodynamisch instabil zu werten. Die Flüssigkeitsbrücke nimmt den Zustand mit geringerer Oberflächenenergie und kleinerer Grenzfläche ein, sodass zur physikalischen Beschreibung feuchter Schüttgüter lediglich die stabile Lösung anzuwenden ist.

Unter Vernachlässigung von Gravitationseffekten setzt sich die zwischen den Partikeln wirkende dimensionslose Flüssigkeitsbrückenkraft F_B aus dem axial wirkenden Anteil der Oberflächenspannung und dem axial projizierten Kapillardruck zusammen. Da der Kapillardruck über die lokale Ortskoordinate X konstant ist, kann mit vorliegendem Flüssigkeitsbrückenprofil die absolute Haftkraft an einem beliebigen Schnitt durch die Brücke berechnet werden. Für einen senkrechten Schnitt ergibt sich die Kraft nach Gleichung (5.13) an der minimalen Brückenhöhe Y_{min} oder nach Gleichung (5.14) an den Dreiphasengrenzlinien bei $X = 0$ und $X = D$. Beide Gleichungen führen zum selben Ergebnis

$$F_B = \frac{f_B}{\gamma r_{ij}} = 2\pi Y_{min} [1 + H^* Y_{min}] = 2\pi Y_{min}^2 H^* + 2\pi Y_{min} , \quad (5.13)$$

$$F_B = \frac{f_B}{\gamma r_{ij}} = 2\pi Y(X) \left[\frac{1}{(1+Y'(X)^2)^{0.5}} + H^* Y(X) \right] . \quad (5.14)$$

Abbildung 5.4 zeigt die numerische Lösung für verschiedene Volumina als Funktion des Partikelabstands in dimensionsloser Form. Wie in Gleichung (5.13) zu erkennen ist, nimmt die Kraft mit abnehmender Brückenhöhe und mittlerer Krümmung ab, während ein Minimum in der Höhe der Dreiphasengrenzlinie an Partikel i zu beobachten ist, was wiederum mit dem Brückenfüllungswinkel β_i korreliert. Für alle Volumina ist eine monotone Abnahme der Kraft mit zunehmendem Partikelabstand zu beobachten, während größere Flüssigkeitsvolumina über einen weiteren Bereich stabil bleiben. Alle Kurven in Abbildung 5.4 zeigen sowohl die stabile als auch instabile Lösung in Analogie zur Arbeit von Lian et al. [94], sodass jede der vier bestimmten Größen $Y(0)$, Y_{min} , H^* und F_B zur Bestimmung der kritischen Bruchdistanz herangezogen werden kann.

Die numerische Methode dient zur Erzeugung eines numerischen Datensatzes, der zur Regressionsanalyse verwendet wird, um die feuchte Kontaktinteraktion zwischen zwei Partikeln unterschiedlicher Materialien in der DEM beschreiben zu können. Hierbei variiert der Kontaktwinkel von Partikel j bei gleichzeitig existierendem Größenunterschied zwischen den Partikeln i und j , was wiederum zu variablen Benetzungseigenschaften des Additivmaterials (rote Partikeln) in den DEM-Simulationen führt.

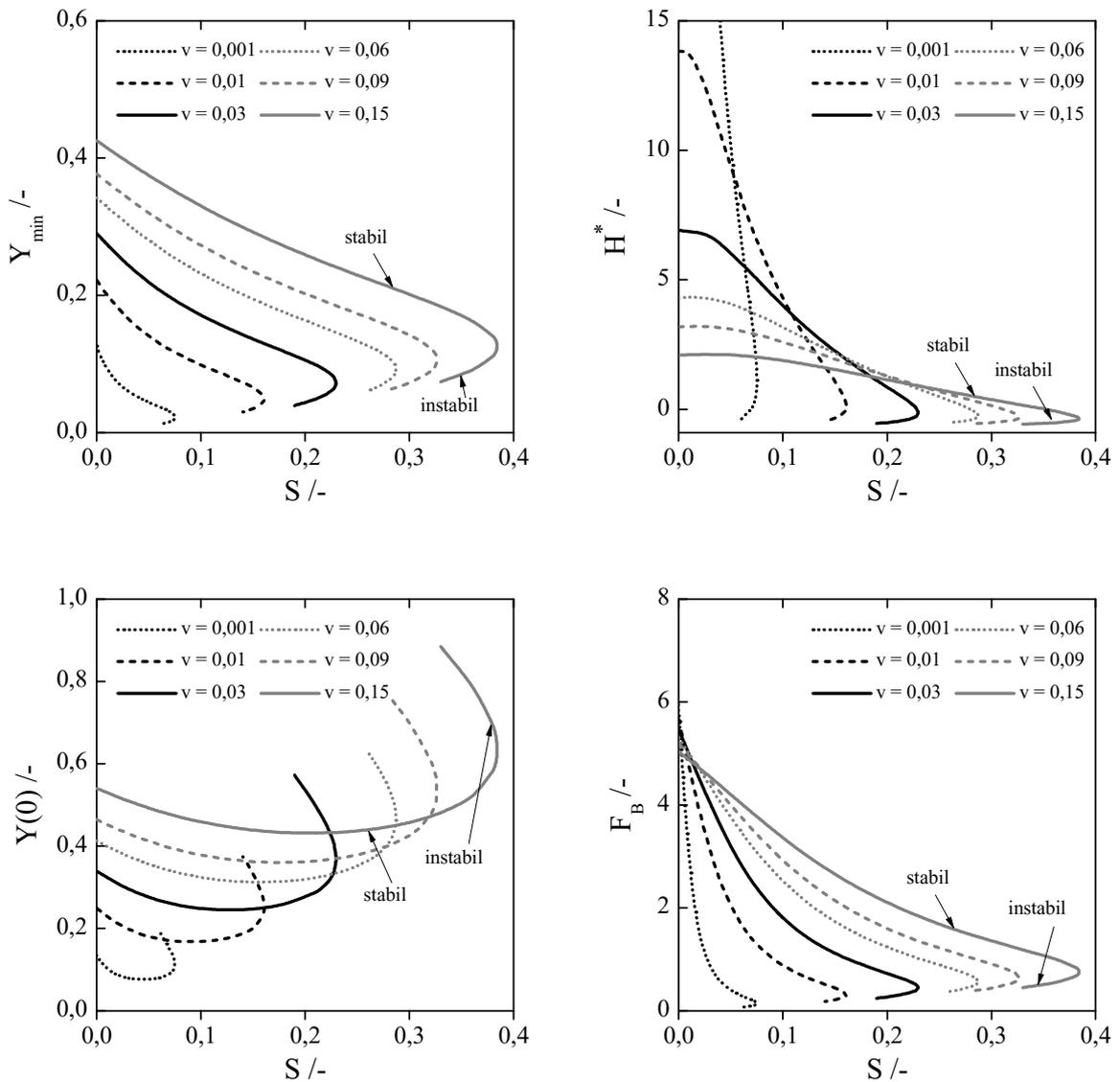


Abbildung 5.4: Numerische Lösung der Young-Laplace Differentialgleichung für unterschiedliche Volumina v in mm^3 ; Partikelgrößen $r_i = 2 \text{ mm}$ und $r_j = 1 \text{ mm}$; Kontaktwinkel ($\theta_i = \theta_j = 0^\circ$). Aufgetragen sind die minimale dimensionslose Brückenhöhe Y_{min} , die Höhe der Dreiphasengrenzlinie $Y(0)$ an Partikel i , die mittlere Krümmung H^* und die dimensionslose Flüssigkeitsbrückenkraft F_B über dem dimensionslosen Partikelabstand S .

5.2.3 Regressionsanalyse

Aufgrund des hohen numerischen Aufwands von DEM-Simulationen kann die Young-Laplace Gleichung nicht für jedes Kontaktereignis separat gelöst werden. Daher ist die Flüssigkeitsbrückenkraft als eine durch Regressionsanalyse bestimmte empirische Gleichung zusätzlich in die translatorische Newton'schen Bewegungsgleichung zu implementieren. In Abbildung 5.5 wird ein Ausschnitt des numerisch generierten Datensatzes inklusive der Regressionsfunktion

$$F_B = \exp(A + BS)$$

$$A = (-0,2 \cdot \theta_j^2 - 0,09 \cdot \theta_j + 1,68) \cdot V^{(-0,0005 \cdot \theta_j^2 + 0,0005 \cdot \theta_j - 0,013)}$$

$$B = -0,1 - 1,1/V^{(0,52 - 0,005 \cdot \theta_j)} \quad (5.15)$$

gezeigt. Der Vergleich zwischen den Kontaktwinkeln mit $\theta_j = 0^\circ$ in der Abbildung links und $\theta_j = 60^\circ$ rechts zeigt minimal kleinere Steigungen bei schlechteren Benetzungseigenschaften. Demzufolge resultieren große Kontaktwinkel in geringeren Reichweiten der Flüssigkeitsbrückenkraft. Die höchsten Flüssigkeitsbrückenkräfte sind bei kleinen Partikelabständen festzustellen, wobei die absoluten Werte vom Kontaktwinkel abhängig sind. Darüber hinaus zeigt Gleichung (5.15) eine sehr gute Übereinstimmung mit den numerischen Daten. Nähere Informationen zur Vorgehensweise bei der Regressionsanalyse sind im Anhang A2 zu finden.

Aus der numerischen Lösung lassen sich nicht nur Informationen über Kapillarkräfte, sondern auch Bruchdistanzen und Transferverhältnisse bestimmen. Die aus dem Konvergenzkriterium bestimmte Bruchdistanz ist für variable Kontaktwinkel als Funktion des dimensionslosen Flüssigkeitsvolumens in Abbildung 5.6 links dargestellt. Verglichen mit dem für das Gleichkorn gültigen Modell in Abbildung 5.6 rechts ergibt sich einerseits die Analogie, dass die kritische Bruchdistanz mit geringerem Flüssigkeitsvolumen abnimmt. Andererseits ist ein gegenläufiges Verhalten bei Vergrößerung des Kontaktwinkels festzustellen. Dies liegt darin begründet, dass sich die Kontaktwinkelvariation im Gleichkornmodell simultan auf beide Partikeln bezieht, während die Bruchdistanz auf der linken Seite in Abbildung 5.6 eine Variation des Kontaktwinkels an der kleineren Partikel berücksichtigt. Dies führt wiederum zu variablen Benetzungseigenschaften des Additivs.

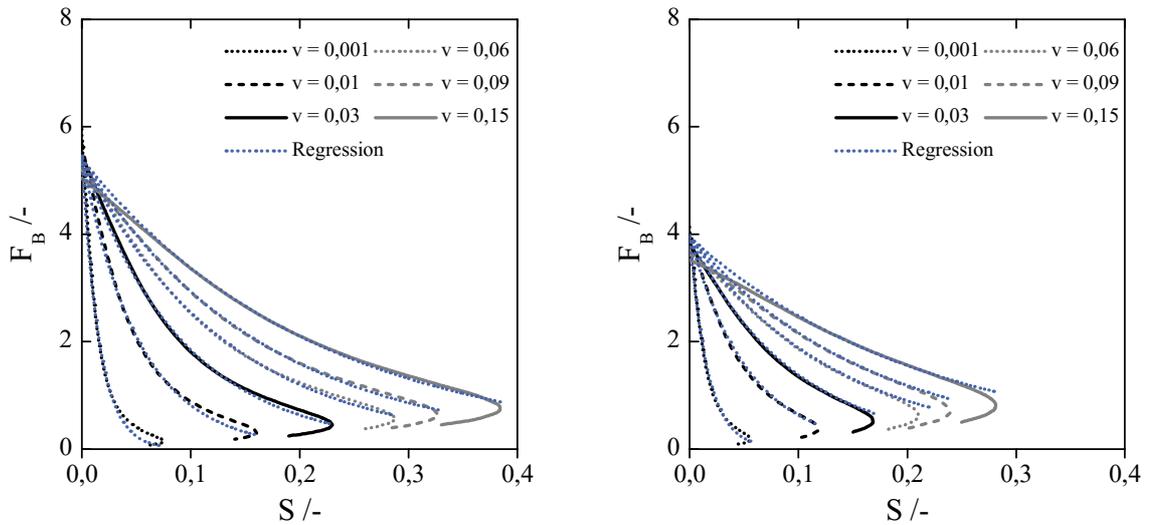


Abbildung 5.5: Dimensionslose Flüssigkeitsbrückenkraft als Funktion des Partikelabstands für einen Kontaktwinkel von $\theta_j = 0^\circ$ (links) und $\theta_j = 60^\circ$ (rechts) bei variablen Volumina. Die blaue Kurvenschar stellt die empirische Regressionsgleichung (5.15) dar.

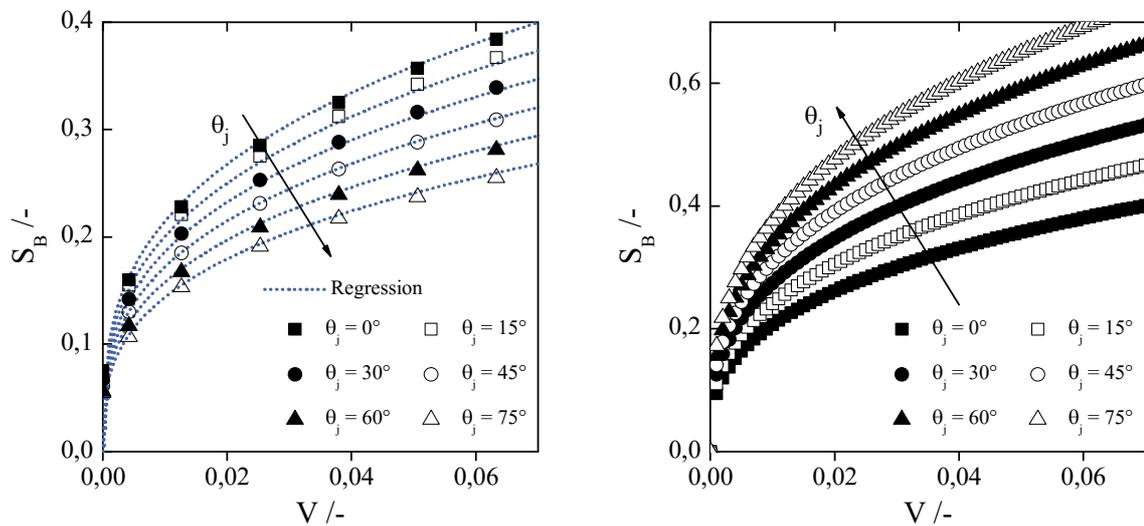


Abbildung 5.6: Bruchdistanz S_B als Funktion des dimensionslosen Brückenvolumens. Links: Modellgleichung (5.16) und Bruchdistanz mit unterschiedlichen Partikelgrößen bei gleichzeitig variablem Kontaktwinkel der kleineren Partikel j . Rechts: Modellgleichung von Mikami et al. [87] für Gleichkornpartikeln.

Analog zu Gleichkornpartikeln [87, 95] skaliert auch die Bruchdistanz im Falle unterschiedlicher Materialien mit der Kubikwurzel des Volumens

$$S_B = (0,936 - 0,235\theta_j) \cdot V^{0,32} . \quad (5.16)$$

Im Falle des Brückenbruchs zeigen Darhuber et al. [96] anhand von Finite-Elemente Simulationen und Pepin et al. [97] mittels experimenteller Untersuchungen, dass die Teilung der Flüssigkeit am geringsten Querschnitt der Flüssigkeitsbrücke bei Y_{min} stattfindet. Mit vereinfachendem senkrechtem Schnitt durch die Flüssigkeitsbrücke teilt sich das Volumen V in zwei verschiedene Teilvolumina V_i und V_j auf, die an den jeweiligen Partikeloberflächen verbleiben

$$V = V_i + V_j , \quad (5.17)$$

$$TF_i = \frac{V_i}{V_i + V_j} . \quad (5.18)$$

Im idealisierten Fall von Gleichkornpartikeln teilt sich die Flüssigkeit hälftig auf beide Oberflächen auf ($TF_i = 0,5$). Bei unterschiedlichen Partikelgrößen und variablen Kontaktwinkeln ist das Transferverhältnis TF_i durch Integration des Flüssigkeitsbrückenprofils und Subtraktion der entsprechenden Kugelsegmentvolumina zu bestimmen. Im hier abgeleiteten Modell mit einem Partikelgrößenverhältnis von $\psi = 2$ ergeben sich nach Abbildung 5.7 Transferverhältnisse von mehr als 0,5. Dies verdeutlicht, dass die größere Flüssigkeitsmenge an der größeren Partikel i verbleibt. Ferner lässt sich beobachten, dass fast keine Flüssigkeit auf kleine Partikeln mit hohem Kontaktwinkel übertragen wird, was physikalisch durch die schlechten Benetzungseigenschaften begründet ist. Wiederum dient der Datensatz zum Ermitteln einer Regressionsformel

$$TF_i = E + (1 - E) \cdot \left(1 - \frac{1}{(1 + V)}\right)^F$$

$$E = -0,073\theta_j^2 + 0,44\theta_j + 0,53$$

$$F = 0,076\theta_j^2 - 0,186\theta_j + 0,3 \quad (5.19)$$

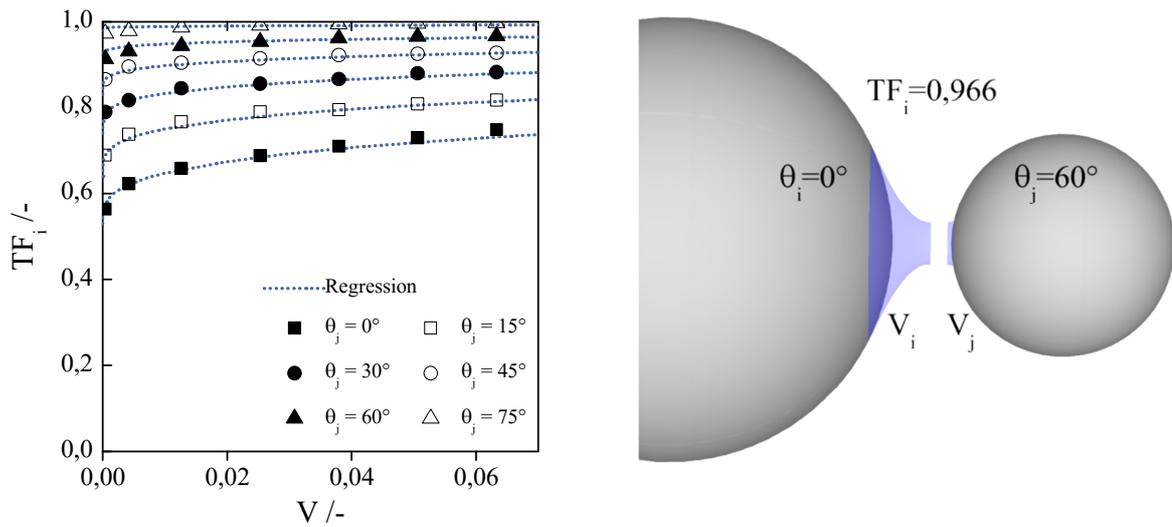


Abbildung 5.7 links: Transfervverhältnis TF_i als Funktion des dimensionslosen Brückenvolumens inklusive empirischer Regressionsformel (5.19). Rechts: Schematische Darstellung der an den Partikeln haftenden Flüssigkeitsmenge unmittelbar nach Flüssigkeitsbrückenbruch.

wobei die gewählte Basisfunktion Übertragungsverhältnisse zwischen null und eins annimmt. Niedrigere oder höhere Werte hätten eine ungewollte Massensenke bzw. -quelle zur Folge. Gleichung (5.19) nimmt für den Grenzfall $V \rightarrow 0$ einen stationären Endwert an, welcher durch das festgelegte minimale dimensionslose Volumen von $4,2 \cdot 10^{-4}$ abgeschätzt ist. Kleinere Volumina sind im Rahmen aller durchgeführten Simulationen als unwahrscheinlich zu bewerten (siehe Anhang A2). Zur Implementierung in die DEM ist in allen empirischen Gleichungen ((5.15), (5.16) und (5.19)) das Volumen dimensionslos und der Kontaktwinkel im Bogenmaß einzusetzen.

Alternativ zur Regressionsanalyse bestünde auch die Möglichkeit über eine Nachschlagetabelle und Interpolationsmethoden den generierten Datensatz zur Berechnung der Wechselwirkungen unterschiedlich benetzender Partikeln heranzuziehen. Aufgrund der einfacheren Programmierung und der Publikationsfähigkeit wurden die empirischen Regressionsformeln abgeleitet, deren Modellvalidität es im Folgenden zu klären gilt.

5.3 Vergleich existierender Kontaktmodelle und Validierung

Tabelle 5.1 zeigt einen Vergleich existierender Flüssigkeitsbrückenmodelle, die in DEM-Simulationen Anwendung finden. Alle Modelle haben gemeinsam, dass sich die unbekannte Flüssigkeitsbrücke in Abhängigkeit des Volumens und des Partikelabstandes berechnen lässt. Das Volumen und der Partikelabstand stellen die ständig variierenden Parameter in der Simulation feuchter Schüttgüter dar. Der Unterschied dieser Modelle liegt in deren Anwendbarkeit. Lian et al. [94] und Mikami et al. [87] legen den Fokus auf Gleichkornpartikeln. Willett et al. [95], Soulie et al. [88] und Lian und Seville [90] leiten Modelle für polydisperse Schüttgüter her.

Das in dieser Arbeit bestimmte Modell hat Gültigkeit für die Kontaktinteraktion zwischen unterschiedlichen Materialien mit der Beschränkung eines festen Partikelgrößenverhältnisses von zwei. Bei den vorhandenen Modellen sind die Kontaktwinkel beider Partikeln grundsätzlich gleich. In den hier vorgestellten Modellgleichungen lässt sich der Kontaktwinkel der kleineren Partikeln variieren, während den größeren Partikeln ein Kontaktwinkel von Null zugeordnet ist. Im Vergleich zu bisher veröffentlichten Beziehungen [87, 95] führt dies zu der bereits diskutierten umgekehrten Tendenz der Brückenstabilität mit zunehmender Partikelgrößendifferenz. Da gängige Modelle dieses Phänomen nicht berücksichtigen und die zusätzliche Berechnung des Flüssigkeitstransfers nur auf den simplifizierten Gleichkornfall beschränkt ist, führen die hier entwickelten empirischen Regressionsgleichungen zu einer erweiterten Anwendbarkeit in der DEM.

Tabelle 5.1: Anwendbarkeit vorhandener Flüssigkeitsbrückenmodelle und deren Einflussparameter.

Quelle	Anwendbarkeit	F_B	S_B	TF_i
[94]	Monodispers		$\theta; V$	-
[87]	Monodispers	$\theta; V; S$	$\theta; V$	50/50
[95]	Polydispers	$\theta; V; S$	$R_i; R_j; \theta; V$	-
[88]	Polydispers	$R_i; R_j; \theta; V; S$	-	-
[98] & [99]	Approximation	$R_i; R_j; \theta_i; \theta_j; V; S^*$	-	-
[90]	Polydispers	$R_i; R_j; \theta; V; S$	$R_i; R_j; \theta; V$	
[85]	Unterschiedliche Materialien	$\theta_j; V; S$	$\theta_j; V$	$\theta_j; V$

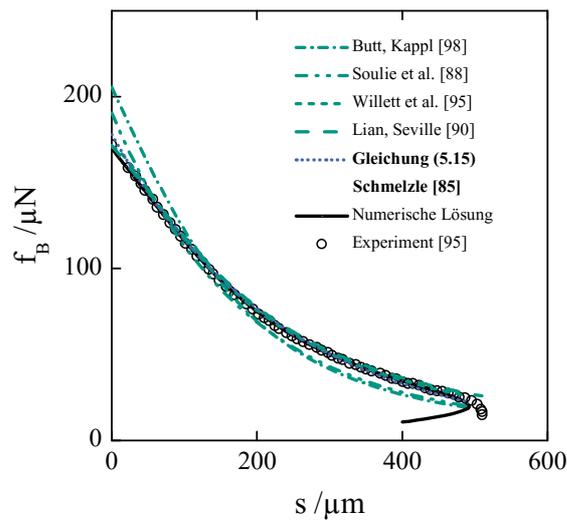


Abbildung 5.8: Vergleich der unterschiedlichen Flüssigkeitsbrückenmodelle auf Basis der experimentellen Daten von Willett et al. [95]. Dimensionsbehaftete Flüssigkeitsbrückenkraft f_B als Funktion des dimensionsbehafteten Partikelabstandes s .

Einen guten Vergleich der gezeigten Modelle in Tabelle 5.1 ermöglichen die experimentell gemessenen Kapillarkräfte für perfekt benetzende Sphirkugeln (Radien von 2,381 mm und 1,191 mm) von Willett et al. [95]. Als Flüssigkeitsbrückenvolumen kommen 127,8 nl Dimethylsiloxan mit einer Grenzflächenspannung von $\gamma = 20,6 \text{ mN/m}$ zum Einsatz. Abbildung 5.8 verdeutlicht, dass der Fall mit idealen Benetzungseigenschaft sowohl vom hier vorgestellten Modell als auch von anderen Modellgleichungen [88, 90, 95, 98] sehr gut beschrieben ist. Die leichte Überschätzung der Derjaguin-Approximation [98, 99] bei einem Partikelabstand von null und großen Flüssigkeitsbrückenvolumina ist bereits von Pitois et al. [100] diskutiert und von Lian und Seville [90] kürzlich verbessert worden. Gleichung (5.15) ist dementsprechend nicht als Verbesserung sondern als Modellerweiterung zu verstehen. Ohne diese Erweiterung lässt sich die Kontaktinteraktion zwischen den Füllstoffpartikeln und der additiven Komponente in DEM-Simulationen nicht zufriedenstellend beschreiben.

Kapitel 6

Feuchte Feststoffmischprozesse¹⁷

Die im Kapitel 5 bestimmten Modellgleichungen sind zur Untersuchung diverser Einflussgrößen auf den Mischprozess geeignet. Die nachfolgenden Abschnitte befassen sich daher mit den wichtigsten Parametern und Kenngrößen zur Evaluation feuchter Mischprozesse. Die Validierung der Simulation erfolgt mit Glaskugelschüttungen im DIOSNA Pharmamischer.

6.1 Implementierung

Die empirische Gleichung (5.15) für die Flüssigkeitsbrückenkraft wird als zusätzlicher Term im translatorischen Newton'schen Bewegungsgesetz berücksichtigt. Aufgrund der eingeschränkten Anwendbarkeit sind die in Kapitel 5 bestimmten Gleichungen nicht für jedes Kontaktereignis zu verwenden. Je nach Kontaktereignis sind drei Fälle zu unterscheiden. Das von Mikami et al. [87] bestimmte Flüssigkeitsbrückenmodell findet im Fall des Gleichkorn- und Partikel-Wand-Kontaktes Anwendung. Diese Fallunterscheidung ist auch bei der Berechnung der kritischen Bruchdistanz und des Flüssigkeitstransfers berücksichtigt. Für den dritten Fall des Kontaktereignisses zwischen den unterschiedlichen Mischungskomponenten werden die in Kapitel 5.2.3 hergeleiteten Modellgleichungen angewandt.

¹⁷ Für Inhalte dieses Abschnitts siehe auch Fußnote von Kapitel 5.

6.1.1 Kugelsegmentmodell und Definition des Kontaktradius

Zur Berücksichtigung von feuchten Partikelkontakten in der DEM ist die Annahme getroffen, dass die Flüssigkeit auf einer Partikel als ebener gleichmäßiger Film vorliegt. Die charakteristische Flüssigkeitsbeladung $X_i = m_{w,i}/m_i$ der Partikel i verteilt sich homogen über die Partikeloberfläche und ist in jedem Simulationszeitschritt als Partikeleigenschaft über Zeiger (engl. *pointer*) der jeweiligen Partikel mit der Masse m_i zugeordnet. Jede feuchte Partikel besitzt einen idealisierten Flüssigkeitsfilm, dessen Dicke in Abhängigkeit der Flüssigkeitsmenge $m_{w,i}$ variiert. Treten zwei Partikeln in physikalischen Kontakt, dient die virtuelle Überlappung der beiden Partikelradien als Brückenbildungskriterium. Im Falle einer Flüssigkeitsbrückenbildung setzt sich das Volumen der Flüssigkeitsbrücke V nach dem Kugelsegmentmodell von Shi und McCarthy [101] aus Teilen beider Kontaktpartner $V_{k,i}$ und $V_{k,j}$ zusammen

$$V = V_{k,i} + V_{k,j} . \quad (6.1)$$

Über eine Tangentenkonstruktion sind die zur Brücke beitragenden Flüssigkeitsmengen zu bestimmen. Durch das Anlegen einer Geraden durch den Mittelpunkt und den projizierten tangentialen Berührungspunkt der gegenüberliegenden Partikel ergeben sich die in Abbildung 6.1 auf der linken Seite dunkelgrau eingefärbten Kugelsegmente. Deren Oberfläche im Verhältnis zur Gesamtpartikeloberfläche definiert die anteiligen Flüssigkeitsvolumina $V_{k,i}$ und $V_{k,j}$

$$\begin{aligned} V_{k,i \text{ oder } j} &= R_{ij}^3 \frac{m_{w,i \text{ oder } j}}{2 \cdot m_i} \left(1 - \sqrt{1 - \frac{R_{i \text{ oder } j}}{(R_i + R_j)^2}} \right) \\ &= R_{ij}^3 \frac{X_{i \text{ oder } j}}{2} \left(1 - \sqrt{1 - \frac{R_{i \text{ oder } j}}{(R_i + R_j)^2}} \right) . \end{aligned} \quad (6.2)$$

Somit trägt die gesamte verfügbare Flüssigkeitsmenge $m_{w,i}$ der Partikel i in Abbildung 6.1 links in Teilen zu drei Flüssigkeitsbrücken bei, wobei der Großteil von X_i für weitere Brücken an der freien Oberfläche zur Verfügung steht. Das für das jeweilige Kontakt Ereignis berechnete Flüssigkeitsbrückenvolumen ist zur Berechnung der Flüssigkeitsbrückenkraft so lange zu verwenden, bis die kritische Bruchdistanz erreicht ist. Kommt es

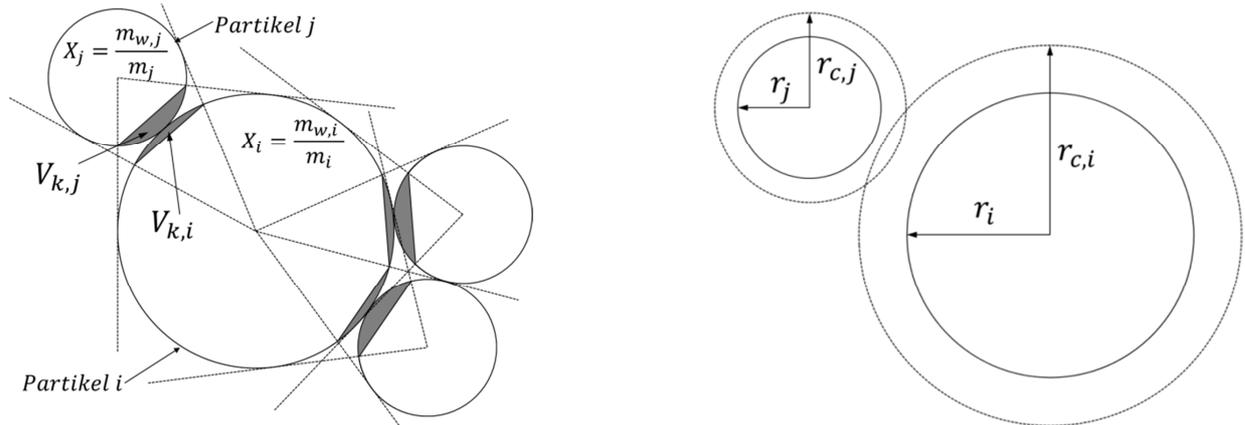


Abbildung 6.1 links: Schematisch dargestelltes Kugelsegmentmodell nach Shi und McCarthy [101]. Mittels Tangentenkonstruktion zwischen Berührungs- und Partikelmittelpunkt ergibt sich die zu berücksichtigende Kugelsegmentoberfläche. Rechts: Schematische Darstellung des Kontaktradius, der die Detektion auch über den physikalischen Kontakt hinaus gewährleistet.

bei größeren Partikelabständen zum Brückenbruch, verschwindet die Brückenkraft. Da die Flüssigkeitsbrückenkraft gleichzeitig mit dem physikalischen Kontakt auftritt und negative Partikelabstände in den Flüssigkeitsbrückenmodellen nicht berücksichtigt sind, ist der Partikelabstand S zur Berechnung der Kapillar- und Oberflächenkräfte während eines physikalischen Kontakts auf null zu setzen. Nach dem Bruch erfolgt die Berechnung der Flüssigkeitsumverteilung nach den entsprechenden Transferverhältnissen. Bei gleich großen Partikeln mit denselben Kontaktwinkeln teilt sich die Flüssigkeit 50 zu 50 ($TF_i = 0,5$) auf. Im Falle einer Partikel-Wand-Kollision findet keine Flüssigkeitsübertragung statt, gekennzeichnet durch $TF_i = 1$. Die Wand bleibt somit trocken und die Flüssigkeit kehrt zur ursprünglich kontaktierenden Partikel zurück. Die Einbindung des Transferverhältnisses ermöglicht die Simulation des Flüssigkeitstransports in diskret modellierten Schüttgütern.

Wie in Abbildung 6.1 rechts gezeigt, ist für die Realisierung in DEM-Simulationen ein Kontaktradius zu definieren, welcher die Kontakterkennung auch ohne physikalische Überlappung gewährleistet. Ist der Kontaktradius zu klein gewählt, kann eine unerwünschte, fehlende Kontakterkennung das ausschlaggebende Kriterium für den Brückenbruch darstellen. Im gegenteiligen Fall sollte keine „dritte“ Partikel in eine bestehende Brücke eindringen können, was wiederum den Betrag des Kontaktradius limitiert. Für die folgenden Untersuchungen ergibt sich ein anwendungsspezifischer

Kontaktradius von $r_c = 1,3 \cdot r_i$ entsprechend der gewählten Partikelgrößenverhältnisse, der Flüssigkeitsmengen und der Benetzungseigenschaften. Es sei darauf hingewiesen, dass die Abschätzung und Definition des Kontaktradius methodisch zur Detektion etwaiger Partikelkontakte notwendig ist, materialspezifisch aber unterschiedliche Kontaktradien als Optimum auftreten können [102].

6.1.2 Gravitationskraft der Flüssigkeitsbrücke

Die dimensionslose Bond-Kennzahl¹⁸ setzt eine Volumenkraft ins Verhältnis zur Oberflächenkraft. Hier dient sie zur Abschätzung des Einflusses der zusätzlich wirkenden Gravitationskraft der fluiden Phase. Die „flüssige“ Bond-Zahl Bo_f ist als Verhältnis zwischen der Gewichtskraft und der anziehenden Flüssigkeitsbrückenkraft

$$Bo_f = \frac{\text{Volumenkraft}}{\text{Oberflächenkraft}} = \frac{g v \rho_l}{2\pi y_{\min} \gamma - \pi y_{\min}^2 \Delta p} \quad (6.3)$$

mit der Erdbeschleunigung g und der Flüssigkeitsdichte ρ_l definiert. Da sowohl die Grenzflächenspannung γ als auch die Flüssigkeitsdichte stoffspezifisch sind, ist exemplarisch in Abbildung 6.2 für unterschiedliche Flüssigkeiten die Bond-Zahl in Abhängigkeit des auf die Bruchdistanz bezogenen Partikelabstands (links) und des reduzierten Radius (rechts) dargestellt. In beiden Diagrammen ist zu erkennen, dass der Einfluss der Gewichtskraft mit sinkender Grenzflächenspannung zunimmt, angezeigt durch die höchsten Bond-Zahlen beim Silikonöl. Da die Flüssigkeitsbrückenkraft mit steigendem Partikelabstand abnimmt, ist eine Erhöhung der Bond-Zahl bis zum maximalen Partikelabstand auf der linken Seite in Abbildung 6.2 festzustellen. Ferner ist eine Reduktion der Bond-Zahl mit kleiner werdendem, reduzierten Partikelradius unabhängig vom flüssigen Medium zu beobachten. Das heißt, dass der Einfluss der Gravitationskraft infolge der Brücke bei pulverförmigen Materialien abnimmt. Da der Wertebereich der Bond-Zahl unterhalb von 0,06 liegt, ist der Einfluss der Gewichtskraft der Flüssigkeitsbrücke in Analogie zur Abschätzung von Remy et al. [54] als gering zu bewerten und daher im Rahmen der durchgeführten numerischen Untersuchungen zu vernachlässigen. Für das im folgenden Kapitel 6.2 untersuchte Modellpartikelsystem ergibt sich eine maximale Bond-Zahl von 0,003.

¹⁸ Benannt nach Wilfrid Noel Bond (*27. Dezember 1897; †25. August 1937), englischer Physiker.

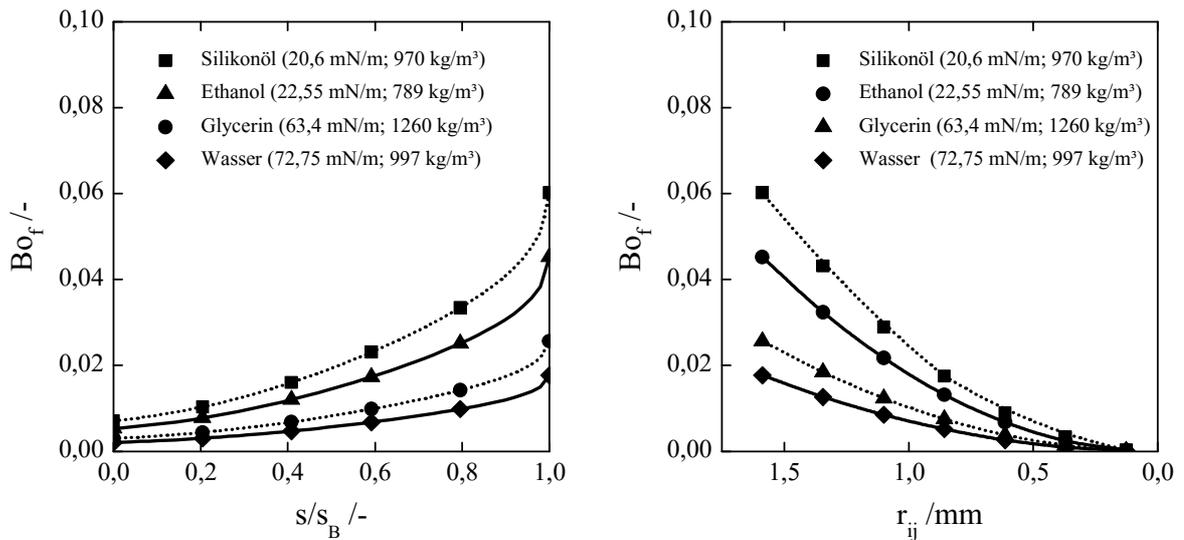


Abbildung 6.2 links: Flüssige Bond-Zahl Bo_f für verschiedene Stoffe in Abhängigkeit des auf die Bruchdistanz normalisierten Abstands und rechts in Abhängigkeit des reduzierten Radius (Berechnet für: $\psi = 2$; $V = 0,0319$; $\theta_i = \theta_j = 0^\circ$ und γ bei 20°C).

6.1.3 Viskose Kräfte

Neben der Kapillar- und der Oberflächenkraft in Normalenrichtung entsteht infolge der Feuchtigkeit eine zusätzliche viskose Kraft, die in Reynolds¹⁹ „*lubrication*“ Theorie begründet ist [103]. Der relativen Bewegung zweier Partikeln, die durch eine Flüssigkeitsbrücke verbunden sind, können dynamische Kräfte entgegenwirken, die durch lokale Strömungen und Druckunterschiede innerhalb der Brücke verursacht werden. Zur Beurteilung der Relevanz viskoser Kräfte dient die dimensionslose Kapillar-Zahl Ca , die als Quotient zwischen viskosen und Oberflächenkräften definiert ist

$$Ca = \frac{\text{Viskositätskraft}}{\text{Oberflächenkraft}} = \frac{\eta \cdot u}{\gamma} = \frac{\eta \cdot u_{ij}}{\gamma}. \quad (6.4)$$

η stellt dabei die dynamische Viskosität und u eine charakteristische Geschwindigkeit dar. Als charakteristische Geschwindigkeit sei die Partikelrelativgeschwindigkeit in Normalenrichtung u_{ij} aus den Simulationen eines Trockenmischprozesses zu verwenden. Deren Anzahlsummenverteilung $Q_0(u_{ij})$ für unterschiedliche Drehzahlen gemittelt über das gesamte Partikelkollektiv ist in Abbildung 6.3 links gezeigt.

¹⁹ Osborne Reynolds (*23. August 1842; †25. August 1912) britischer Physiker.

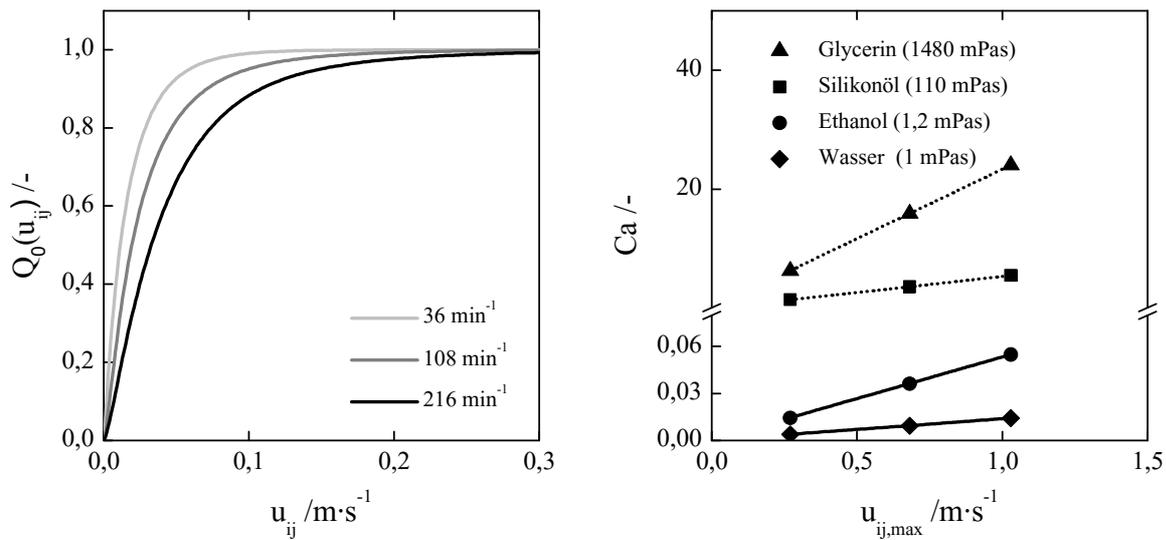


Abbildung 6.3 links: Anzahlsummenverteilung Q_0 der relativen Partikelgeschwindigkeiten $u_{ij,rel}^n$ bei drei variablen Drehzahlen. Rechts: Kapillar-Zahl Ca für verschiedene Stoffe berechnet für die maximal auftretenden Relativgeschwindigkeiten $u_{ij,max}$ (Partikelgrößenverhältnis $\psi = 2$; dimensionsloses Volumen $V = 0,0319$; Kontaktwinkel $\theta_i = \theta_j = 0^\circ$; Viskosität η und Grenzflächenspannung γ jeweils bei 20°C).

Mit zunehmender Drehzahl ist eine Verschiebung der Anzahlsummenverteilungen hin zu höheren Relativgeschwindigkeiten zu beobachten, wobei $1,1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ als Maximalwert auftritt. Die maximal auftretenden Relativgeschwindigkeiten $u_{ij,max}$ dienen wiederum zur Bestimmung der Kapillarzahl und damit zur Bewertung der Signifikanz viskoser Kräfte. Abbildung 6.3 verdeutlicht im rechten Diagramm, dass bei einer niedrigen dynamischen Viskosität wie bei Wasser und Ethanol sehr kleine Kapillarzahlen ($Ca \leq 0,06$) auftreten. Entsprechend ist der Vernachlässigung viskoser Kräfte ein marginaler Fehler zuzuordnen, wenn eine Flüssigkeit mit niedriger Viskosität eingesetzt wird. Im Falle einer Variation der Flüssigkeit, zum Beispiel mit Glycerin oder Silikonöl, trifft diese Vereinfachung nicht mehr zu, wodurch zusätzliche Terme in Normalenrichtung [104] und tangentialer Richtung [105] zu berücksichtigen wären. Das Modell von Adams und Perchard [104] beschränkt sich auf Gleichkornpartikeln, wie auch die kürzlich von Washino et al. [106] publizierte Verbesserung des Modells von Pitois et al. [100]. Viele Autoren verwenden in DEM-Simulationen mit viskosen Fluiden [107-109] zudem das volumen- und kontaktwinkelabhängige Modell in tangentialer Richtung von Goldman et al. [105], welches über ein Kugelfallviskosimeter abgeleitet ist und streng genommen lediglich als

Näherung der Flüssigkeitsbrücke verstanden werden darf. Die beschränkte Anwendbarkeit der diskutierten Modelle für Mischprozesse und auch die Beurteilung durch die Kapillarzahl begründen die Vernachlässigung viskoser Kräfte in kapillarkraftdominierten, wasserbasierten Systemen.

6.2 DEM-Simulationsergebnisse für feuchte Feststoffmischprozesse

Die Nullmischungsposition ist analog zu den trockenen Mischprozessen aus Kapitel 4 definiert. Im Initialzustand befindet sich das Füllmaterial im Mischbehälter unterhalb der additiven Komponente (vergleiche auch Abbildung 4.2b). Als Initialisierung erhält jede Füllmaterialpartikel eine Flüssigkeitsbeladung $X_{w,i}$, sodass eine ideale Flüssigkeitsverteilung im Füllmaterial zum Beginn des Mischprozesses vorliegt. Additivpartikeln, die sich direkt auf der Schüttgutoberfläche des Füllmaterials befinden, werden bereits während des Füllens minimal benetzt. Der Großteil des Additivs bleibt trocken und nimmt erst mit fortschreitendem Mischprozess Wasser auf.

6.2.1 Vergleich unterschiedlicher Benetzungseigenschaften

Zum Vergleich unterschiedlicher Benetzungseigenschaften ist der Mischgüteverlauf in Abbildung 6.4 gezeigt. Im trockenen Mischprozess lässt sich die ideale Zufallsmischung als technisch bestmöglicher Zustand nicht erreichen. Durch das anfänglich im Füllmaterial verteilte Wasser treten interpartikuläre Haftkräfte im feuchten Mischprozess auf, die wiederum die relative Partikelmobilität reduzieren. Die Verschiebung des Mischgüteverlaufs signalisiert einen vergleichsweise höheren Zeitaufwand zum Verteilen der additiven Komponente im kohäsiven Füllmaterial. Im Vergleich zum Trockenmischprozess verbessert sich die Endhomogenität in beiden feuchten Feststoffmischprozessen. Jedoch lässt sich der ideale Endzustand auch unter Zugabe von Wasser nicht erreichen. Dies liegt in der Änderung des Segregationsmechanismus. Während im trockenen Mischprozess vorwiegend die perkolierende Segregation zu beobachten ist, treten beim kohäsiven Mischen größenabhängige inhomogene Agglomerate hinter dem Mischwerkzeug auf, was zu einer reduzierten Endhomogenität führt. Abbildung 6.5 verdeutlicht, dass die vorwiegend heteroagglomerierte Ansammlung je nach Benetzungseigenschaften stärker

oder schwächer ausgeprägt sein kann. Hinter den Mischwerkzeugblättern findet ein geringerer Energieeintrag statt [110], wodurch eine ortsabhängige suboptimale Desagglomeration der feineren Mischungskomponente eintritt. Abbildung 6.4 verdeutlicht auf der rechten Seite zusätzlich, dass am Ende des Mischprozesses eine Ansammlung des Additivmaterials im oberen Teil des Mischbehälters festzustellen ist.

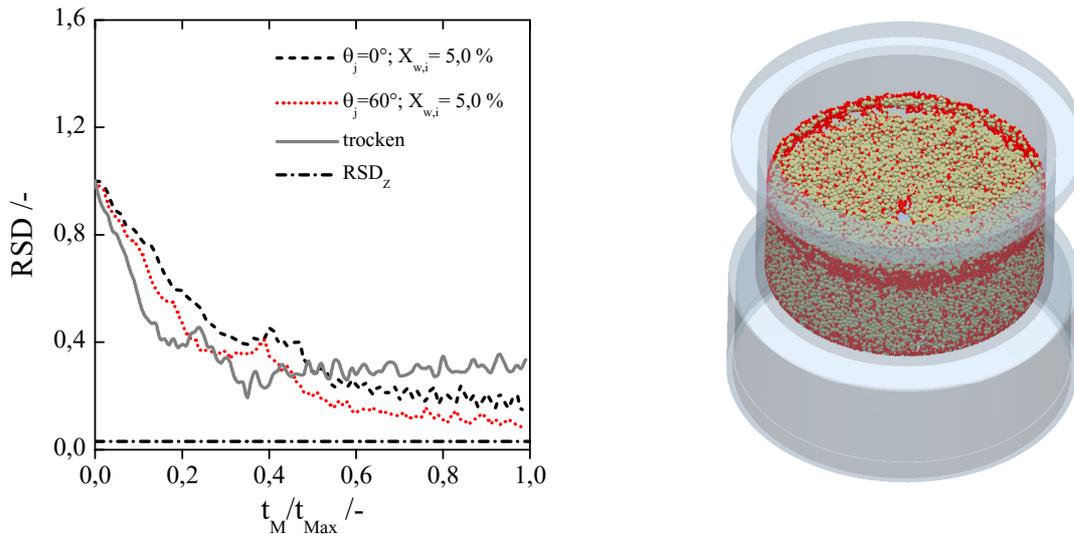


Abbildung 6.4: Simulation zweier feuchter Mischprozesse bei 108 min^{-1} mit unterschiedlichen Benetzungseigenschaften der additiven Komponente. Die absolut zugegebene Menge an Flüssigkeit beträgt $\tilde{m}_{w,ij} = 20,37 \text{ g}$ und die Grenzflächenspannung $\gamma = 0,073 \text{ N/m}$. Links: Relative Standardabweichung als Funktion der dimensionslosen Zeit (maximale Simulationszeit $t_{Max} = 20 \text{ s}$). Rechts: Darstellung des simulierten Endzustands, der mit dem gestrichelten Mischgüteverlauf bei $\theta_j = 0^\circ$ korreliert.

Der Vergleich verschiedener Benetzungseigenschaften der additiven Komponente zeigt signifikante Unterschiede. Aufgrund der niedrigeren Flüssigkeitsbrückenkräfte bei einem Kontaktwinkel von $\theta_j = 60^\circ$ und den damit verbundenen kürzeren Bruchdistanzen nimmt die relative Standardabweichung im Vergleich zum anderen feuchten Feststoffmischprozess mit $\theta_j = 0^\circ$ etwas schneller ab. Als Folge der höheren dispersiven Partikelbeweglichkeit wird der finale Endzustand schneller erreicht. Dabei ist die Endhomogenität im Falle guter Benetzungseigenschaften etwas geringer ausgeprägt. Interessanterweise lässt sich die perkolierende Segregation durch die Flüssigkeitszugabe nicht vollständig reduzieren. Wie in Abbildung 6.5 und Abbildung 6.6 dargestellt, findet im Spalt

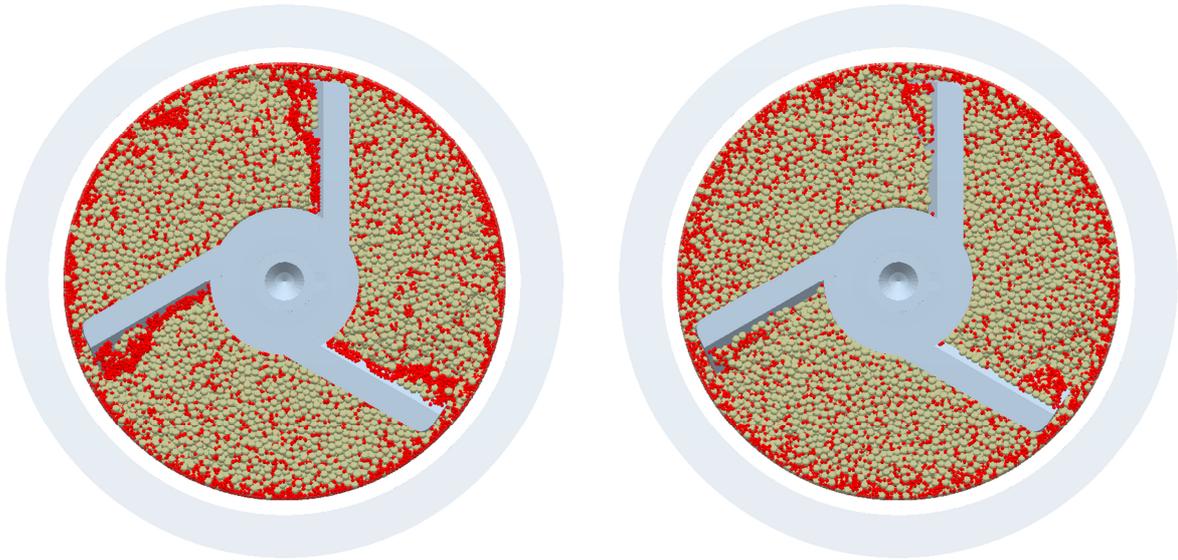


Abbildung 6.5: Die Visualisierung des Endzustands am Mischbehälterboden zeigt die Bildung inhomogener Materialansammlung hinter den Mischwerkzeugflügeln. Links ist die Simulation bei einem Kontaktwinkel des roten Additivs von $\theta_j = 0^\circ$ gezeigt (vergleiche hierzu auch die gestrichelte Line in Abbildung 6.4). Rechts liegt der Kontaktwinkel des Additivs bei $\theta_j = 60^\circ$ (gepunktete Line in Abbildung 6.4).

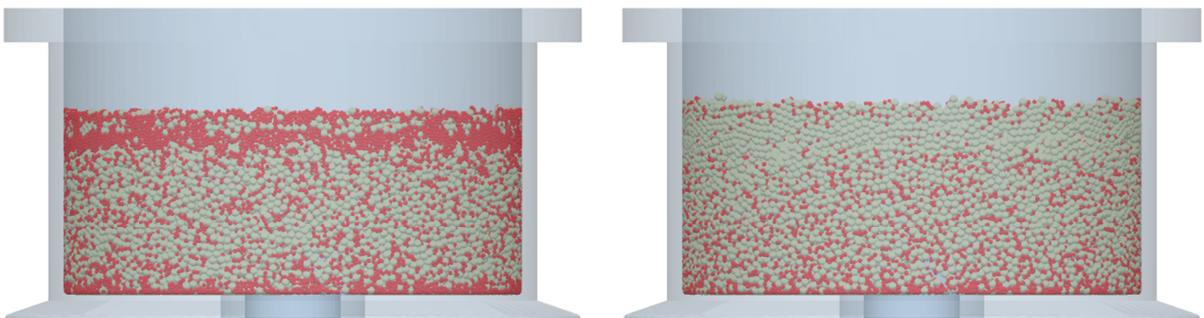


Abbildung 6.6: Die Visualisierung des Endzustands in Seitenansicht zeigt die inhomogene Materialansammlung an der Behälterwand. Analog zur vorherigen Abbildung ist links ein Benetzungswinkel des Additivs von $\theta_j = 0^\circ$ und rechts ein Benetzungswinkel von $\theta_j = 60^\circ$ dargestellt.

zwischen dem Mischwerkzeug und der Behälterwand eine Ansammlung der additiven Komponente statt, was beim niedrigeren Kontaktwinkel weniger ausgeprägt ist. Die inhomogen agglomerierten Partikelverbände hinter den Mischwerkzeugflügeln sind im Weiteren auch als *Heteroagglomerate* bezeichnet. Trotz der teilweise noch vorhandenen perkolierenden Segregation, ist eine bessere Endhomogenität zu beobachten, sofern sich Additiv und Füllmaterial in ihren Benetzungseigenschaften unterscheiden. Dies liegt an den stärker ausgeprägten Heteroagglomeraten am Mischwerkzeug und der Materialadhäsion bei kleinerem Kontaktwinkel, in Abbildung 6.5 und Abbildung 6.6 jeweils auf der linken Seite dargestellt. Durch eine konische Behälterwand [111] ließen sich die Materialansammlungen vermutlich minimieren.

Bemerkung zum Einfluss des Kontaktwinkels auf Basis zusätzlicher experimenteller Untersuchungen

Auch bei abweichendem Partikelgrößenverhältnis und kleineren Partikelsystemen ($r_i \approx 840 \mu\text{m}$ und $r_j \approx 240 \mu\text{m}$) zeigen sich ähnliche Tendenzen in feuchten Feststoffmischprozessen. Die experimentell bestimmten Mischgüteverläufe in Abbildung 6.7 unterscheiden sich in den Benetzungswinkeln der additiven Komponente, analog zu den numerischen Untersuchungen in Abbildung 6.4. Beiderseits ergeben sich höhere Endhomogenitäten bei größeren Kontaktwinkeln des Additivs und simultan sehr gut benetzendem Füllmaterial. Obwohl mit feineren Partikeln längere Prozesszeiten einhergehen ist der Mischungszustand hinsichtlich der Segregationsmechanismen in gleicher Art und Weise wie bei den gröberen, simulierten Mischungskomponenten zu interpretieren. Durch die höheren Kapillarkräfte zwischen den gut benetzenden Mischungskomponenten finden weniger Bruch- und Agglomerationsvorgänge statt. Dies resultiert in einer höheren Inhomogenität innerhalb einzelner Partikelverbände. Diese Erkenntnisse werden von den Untersuchungen einer Zweikomponentenmischung, bestehend aus Kalksteinmehl und nicht expandiertem Polystyrol, untermauert [112]. Ins trockene Schüttgut zugegebenes Wasser reichert sich selektiv vermehrt in Agglomeraten an, die überwiegend aus gut benetzbarem Kalksteinmehl bestehen. Dementsprechend gibt die Simulation die beobachtete Segregation in den experimentellen Untersuchungen mit guter Übereinstimmung wieder.

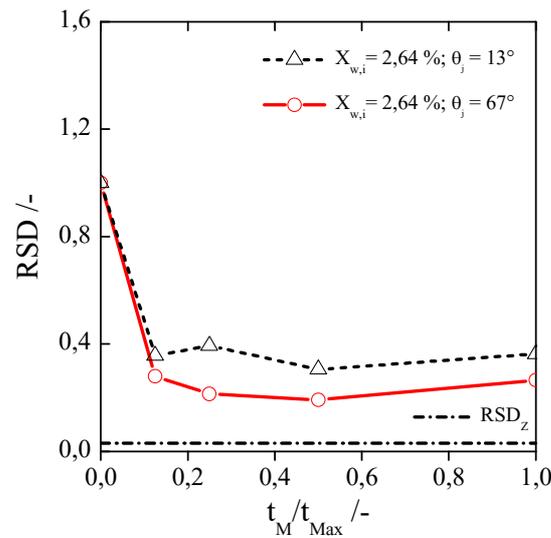


Abbildung 6.7: Experimentell bestimmte Mischgüteverläufe zum Vergleich zweier unterschiedlich benetzender Additive bei sonst konstanten Partikeleigenschaften. Als Betriebsparameter ist eine Drehzahl von $n = 100 \text{ min}^{-1}$ im DIOSNA Mischer gewählt. Die Mischungskomponenten unterscheiden sich mit einem Partikelgrößenverhältnis von ungefähr $\psi = 3,5$. Die Kontaktwinkel der additiven Komponente sind entsprechend der Makroskopaufnahmen in Abbildung 3.8 bestimmt. Die maximale Prozesszeit beträgt $t_{max} = 60 \text{ s}$.

6.2.2 Reduktion der Segregation durch Erhöhung des Energieeintrags

Neben dem diskutierten Einflusses der Benetzungseigenschaften gilt es weiterhin zu klären, inwiefern die Variation der Betriebsparameter der Bildung von Heteroagglomeraten entgegenwirkt. In Abbildung 6.8 ist daher das Augenmerk auf den Einfluss der Mischwerkzeugdrehzahl gelegt und simulativ bei drei verschiedenen Drehzahlen 36, 108 bzw. 216 min^{-1} untersucht. Anhand der schnelleren Abnahme der relativen Standardabweichung in den Mischgüteverläufen ist zu erkennen, dass die dispersive Partikelmobilität in Analogie zu den trockenen Mischprozessen mit steigender Rotationsgeschwindigkeit zunimmt. Höhere Scherkräfte resultieren in höheren Kollisionsraten wodurch kleinere Agglomerate entstehen. Bei 36 min^{-1} hat der in Richtung der Schüttgutoberfläche gerichtete konvektive Transport entlang der Mischbehälterwand die additive Komponente noch nicht vollständig erfasst, sodass nach 20 s eine erhöhte Konzentration des Additivs am Behälterboden zu beobachten ist. Abbildung 6.8

zeigt auf der rechten Seite, dass bei 36 min^{-1} die mit dem Energieeintrag verbundenen Platzwechselforgänge nicht ausreichend sind, um einen stationären Endzustand nach einer Simulationsdauer von $t_{max} = 20 \text{ s}$ zu erreichen. Die Geschwindigkeitssteigerung auf 216 min^{-1} erhöht die Anzahl der stattfindenden Platzwechselforgänge und führt zu einer minimal besseren Endhomogenität. Auch in simulierten Mischtrommeln ließ sich eine Verbesserung der Mischgüte kohäsiver Materialien durch höhere Trommelgeschwindigkeiten beobachten [113].

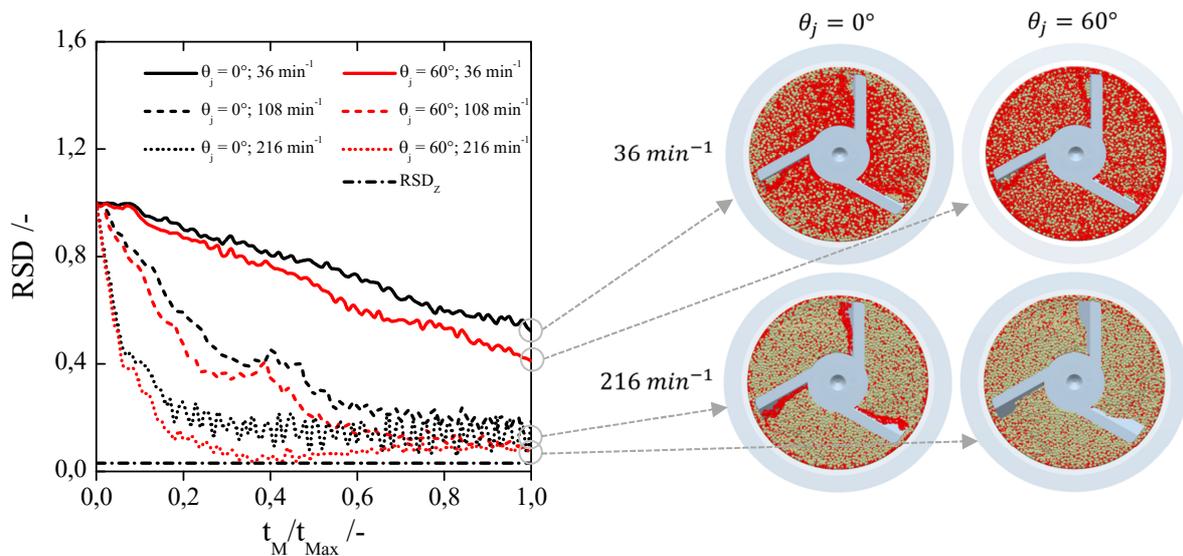


Abbildung 6.8 links: Mischgüteverläufe für verschiedene Benetzungseigenschaften unter Variation der Drehzahl bei konstanter absoluter Flüssigkeitsmenge (Beladung $X_{w,i} = 5 \%$). Rechts: Visualisierung des jeweiligen Endzustands am Mischbehälterboden bei minimal und maximal betrachteter Drehzahl.

Ferner ermöglicht das in Kapitel 5 entwickelte Modell den systematischen Vergleich verschiedener Kontaktwinkel der additiven Komponente über die Variation der Drehzahl. Bei großem Kontaktwinkelunterschied treten grundsätzlich höhere dispersive Partikelmobilitäten und eine bessere Mischkinetik auf. Rechts in Abbildung 6.8 ist zu erkennen, dass die Drehzahlsteigerung lediglich bei einem Benetzungswinkel von $\theta_j = 60^\circ$ die inhomogenen Partikelverbände am Mischwerkzeug vollständig desagglomeriert. Unabhängig von der Drehzahl führt demzufolge ein großer Kontaktwinkelunterschied zu weniger Materialanhaftung an den Maschinenbauteilen und damit zu besseren Endzuständen.

6.2.3 Einfluss der Flüssigkeitsbeladung

Neben den Materialeigenschaften und den Betriebsparametern hat auch die Menge der Flüssigkeit einen entscheidenden Einfluss auf die Homogenität der Granulate als Qualitätsattribut in der Mischgranulation [114]. Mit zunehmendem Anteil der Granulierflüssigkeit in den Schüttgutkomponenten können sich nachteilige Einflüsse wie unzureichende Härte, zu feuchte Granulatkonsistenzen oder inhomogene Tabletten ergeben [115]. Im Rahmen der numerischen Simulationen wird daher der Einfluss des Flüssigkeitsgehalts auf die ganzheitliche Homogenität im Mischer untersucht. Mit der Erhöhung des Volumenanteils der flüssigen Komponente zeigt sich in Abbildung 6.9 ein minimal erhöhter Zeitbedarf zum Erreichen derselben Endhomogenitäten. Damit hat der volumenabhängige Bruchabstand einen geringeren Einfluss auf die dispersive Partikelmobilität als die kontaktwinkelabhängige Flüssigkeitsbrückenkraft.

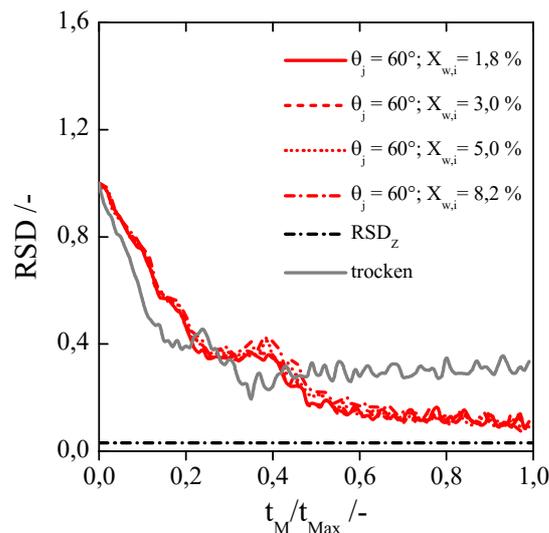


Abbildung 6.9: Mischgüteverlauf bei 108 min^{-1} und Variation der Flüssigkeitsmenge²⁰, die über die Anfangsbeladung des Füllmaterials $X_{w,i}$ dargestellt ist.

Infolgedessen wird die Größe der Heteroagglomerate hinter den Mischwerkzeugflügeln durch die Flüssigkeitsmengen kaum beeinflusst. Der geringe Effekt infolge der absoluten Flüssigkeitsmenge stimmt mit numerischen Untersuchungen zu Gleichkornpartikeln in

²⁰ Es sei darauf hingewiesen, dass sich auch höhere Massenanteile als 8,2 Ma-% numerisch untersuchen ließen, physikalisch aber nicht sinnvoll wären, da dann der Gültigkeitsbereich des Flüssigkeitsbrückenmodell nicht mehr gegeben wäre und teilgesättigte Bereiche zwischen den Partikeln entstehen würden.

einem Schaufelmischer überein [54]. Modellbedingt ist der unwesentliche Einfluss auf die niedrige Volumenabhängigkeit der Flüssigkeitsbrückenkraft bei kleinen Partikelabständen zurückzuführen.

Bemerkung zum Einfluss der Flüssigkeitsmenge auf Basis experimenteller Untersuchungen

Interessanterweise ergibt sich im Rahmen der experimentellen Parameterstudie zum Flüssigkeitsgehalt ein leicht abweichendes Verhalten zu den simulierten Beobachtungen. Während in den numerischen Simulationen nahezu kein Einfluss der Flüssigkeitsmenge festzustellen ist, zeigt sich im Experiment eine Verbesserung der Homogenität mit Verdoppelung der Flüssigkeit von $X_{w,i} = 1,23 \%$ auf $X_{w,i} = 2,64 \%$ in Abbildung 6.10. Eine weitere Verdoppelung zeigt keinen weiteren merklichen Einfluss.

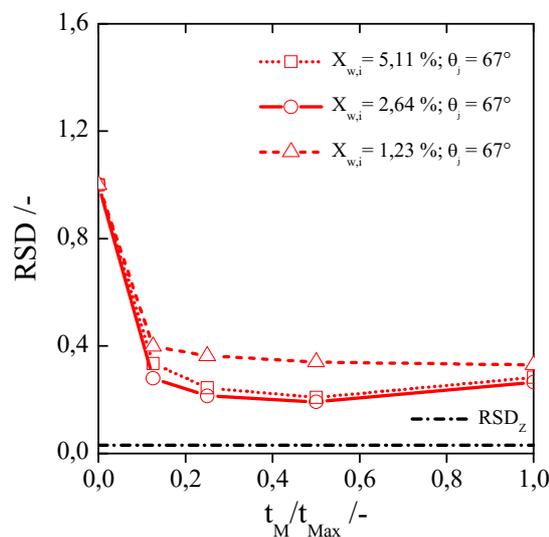


Abbildung 6.10: Einfluss der absoluten Flüssigkeitsmenge auf den Mischprozess, basierend auf experimentellen Untersuchungen bei 100 min^{-1} im DIOSNA Pharmamischer mit einem Partikelgrößenverhältnis von $\psi = 3$. Bei den experimentellen Untersuchungen beträgt die maximale Mischzeit $t_{max} = 60 \text{ s}$.

Auch Daumann und Nirschl [7] zeigten im Ein- und Zweiwellenmischer eine ähnliche Beobachtung, wobei die Dreikomponentenmischung hierbei hauptsächlich durch Wurf-

und Schubbewegungen homogenisiert wurde. Die Autoren berichten, dass sich die besten Homogenitäten unabhängig von der Nullmischung zwischen vier und sechs Massenprozent Wasser bei vergleichsweise geringem Energieeintrag ergeben. Übertragen auf die hier untersuchte Zweikomponentenmischung zeigt sich ebenfalls eine verbesserte Homogenität im Bereich zwischen 2,64 und 5,11 Ma-%. Demzufolge existiert eine kritische Flüssigkeitsmenge, ab deren Unterschreiten kein Einfluss auf die Homogenität festzustellen ist. Im Rahmen der durchgeführten Simulationen (vergleiche Abbildung 6.9) ist kein kritischer Flüssigkeitsgehalt zu beobachten. Einerseits könnte dies in den unterschiedlichen Partikelgrößenverhältnissen begründet sein. Andererseits konzentriert sich diese Arbeit auf den Flüssigkeitsbrückenbereich. Zwar sind die gewählten, auf das Schüttgut bezogenen Flüssigkeitsmengen stets klein genug, um eine Sättigung von 13 % nicht zu überschreiten und damit den Bereich der Brückenbildung abzubilden, dennoch lassen sich etwaige, während des experimentellen Mischens entstehende Flüssigkeitsnes-ter durch das Flüssigkeitsbrückenmodell nicht erfassen. Zukünftig sind hierfür neue Methoden und Modellerweiterungen zu entwickeln, die auch den Übergangsbereich zwischen dem Brücken- und dem Suspensionsbereich erfassen. Ebenso ist zu vermuten, dass vorhandene Partikelrauigkeiten oder das dynamische Benetzungsverhalten Einfluss auf die berechnete Flüssigkeitsverteilung ausüben.

6.2.4 Evaluation der Flüssigkeitsverteilung

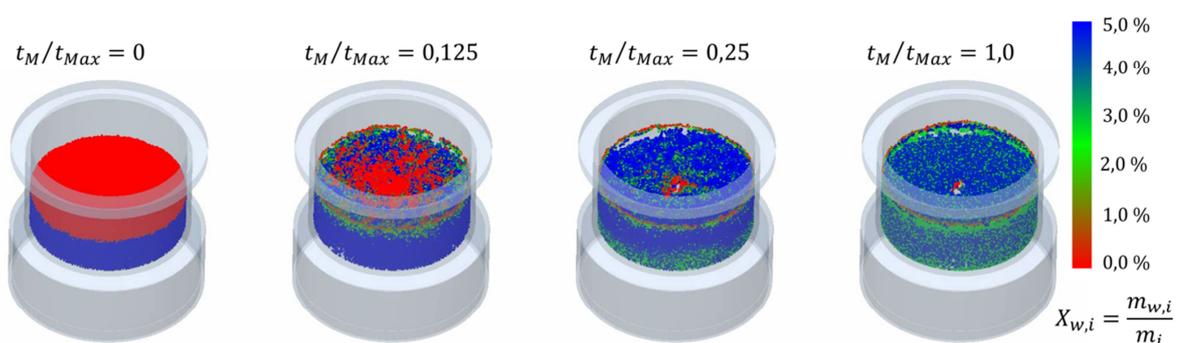


Abbildung 6.11: Visualisierung der Flüssigkeitsverteilung über die Mischzeit, die von links nach rechts zunimmt. Im Anfangszustand ist das rote Additiv trocken, während das größere Füllmaterial eine Massenbeladung von 5 % aufweist. Die Farbskala charakterisiert die Änderung der Beladungen sowohl im Additiv als auch im Füllmaterial.

Von besonderem Interesse ist neben den diskutierten Mischgütereuläufen auch die zeitaufgelöste Verteilung der Flüssigkeit. In Abbildung 6.11 ist die 3D-Visualisierung der Flüssigkeitsverteilung als Beladung $X_{w,i}$ dargestellt. Blau charakterisiert dabei das mit fünf Ma-% beladene Füllmaterial, während das anfänglich trockene Additiv in rot eingefärbt ist. Mit zunehmender Mischzeit nimmt das Additiv das Wasser auf, angezeigt durch die Farbeänderung von Rot nach Grün, während sich die Beladung des Füllmaterials minimal in das türkise Farbegime reduziert. Lediglich eine kleine Teilmenge der Flüssigkeit wird auf das Additiv übertragen. Der Großteil der Flüssigkeit verbleibt im Füllmaterial, begründet dadurch, dass kleinere Partikeln entsprechend kleinere absolute Flüssigkeitsmengen aufnehmen können.

Die Klärung des zeitaufgelösten Flüssigkeitstransports erfolgt auf Basis des gemittelten massenbezogenen Flüssigkeitsanteils im Additiv

$$\tilde{y}_{w,j} = \frac{\tilde{m}_{w,j}}{\tilde{m}_{w,i} + \tilde{m}_{w,j}} = \frac{1}{\tilde{m}_{w,i,j}} \tilde{m}_{w,j} = \frac{1}{\tilde{m}_{w,i,j}} \sum_{k=1}^{N_{p,j}} m_{w,j} . \quad (6.5)$$

Im Vergleich zur Beladung eignet sich das Verhältnis zwischen der gesamten Flüssigkeitsmenge des Wassers $\tilde{m}_{w,i,j}$ und der Masse des Wassers im Additiv $\tilde{m}_{w,j}$ besser, um die Dynamik des kontaktdispersionsgesteuerten Flüssigkeitstransports zu evaluieren, da anhand der Beladung der Eindruck einer inhomogenen Flüssigkeitsverteilung entstehen könnte. Abbildung 6.11 ließe sich bei $t_M/t_{Max} = 1$ auch dahingehend interpretieren, dass im oberen grünen Bereich „weniger“ Wasser als im restlichen vorwiegend blauen Bereich vorhanden ist und somit kein ausgeglichener Endzustand vorliegt. Aufgrund der größenabhängigen Transferverhältnisse können auch bei gleichen Kontaktwinkeln und unendlich vielen Partikelstößen niemals dieselben Beladungen im Additiv und Füllmaterial resultieren. Der Massenanteil zeigt hingegen, wieviel des ursprünglich im Füllmaterial befindlichen Wassers auf das Additiv übertragen wird. Analog zum visuellen Eindruck verdeutlicht Abbildung 6.12, dass eine Mischzeit von ca. 5 bis 10 s vergehen muss, bis eine gleichmäßige Flüssigkeitsverteilung in Form des stationären Endwerts erzielt ist. Dieser signalisiert, dass der Flüssigkeitstransport abgeschlossen ist. Bis zu neun Ma-% der gesamten Flüssigkeit kann das Additiv unter der Annahme einer idealen Benetzung ($\theta_j = 0^\circ$) aufnehmen, während sich bei hohem Kontaktwinkel ($\theta_j = 60^\circ$) etwa ein Ma-% übertragen lässt. Die geringere Flüssigkeitsaufnahme im Falle eines hohen Kontaktwinkels ist ein logisches, erwartetes Ergebnis. Je höher der

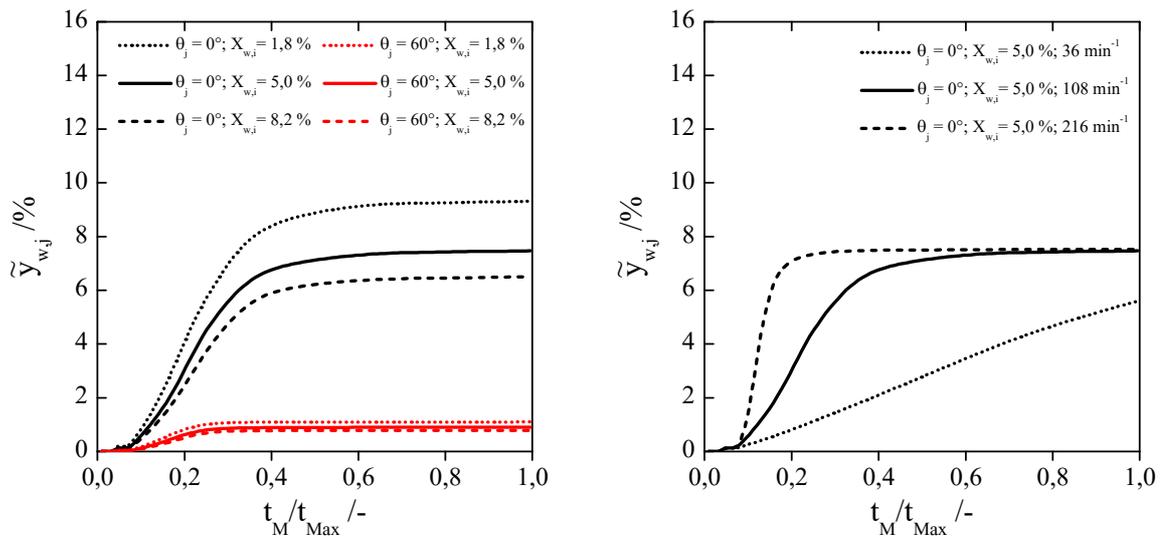


Abbildung 6.12²¹: Zeit aufgelöster prozentualer massenbezogener Flüssigkeitsanteil $\zeta_{w,j}$ in Abhängigkeit von der dimensionslosen Mischzeit ($t_{Max} = 20$ s). Links: Variation der absoluten Anfangsflüssigkeitsbeladung $X_{w,i}$ und der Benetzungseigenschaften der additiven Komponente θ_j . Rechts: Variation der Drehzahl bei sonst konstanten Parametern.

Kontaktwinkel, desto eher dominieren die Kohäsionskräfte in der Brücke und die Adhäsionskräfte an der Partikeloberfläche. Dies resultiert in geringeren Flüssigkeitsvolumina auf schlechter benetzenden Partikeln.

In Korrelation mit der etwas schnelleren Abnahme des Mischgüteverlaufs ist auch der Flüssigkeitsausgleich bei einem Kontaktwinkel von $\theta_j = 60^\circ$ früher abgeschlossen. Mischzeiten von mehr als zehn Sekunden haben keinen weiteren Einfluss auf die Homogenität der Flüssigkeitsverteilung. Zudem zeigt Abbildung 6.12 links, dass eine niedrige Anfangsbeladung zu einer höheren relativen Aufnahmekapazität des Additivs führt. Dies ist ein überraschender Befund, der sich vermutlich infolge der überproportionalen Abhängigkeit des Transferverhältnisses bei kleineren Volumina ergibt. Inwiefern dieser Sachverhalt zutrifft lässt sich nicht abschließend klären, da die Flüssigkeit modellbedingt einzelnen Partikeln zugeordnet, in experimentellen Untersuchungen aber in den tatsächlichen Brücken gebunden ist.

²¹ In Abbildung 6.12 ist die prozentuale Angabe als Kleinbuchstabe dargestellt, um den Massenanteil von der Beladung abzugrenzen, welche mittels dimensionslosem Großbuchstaben gekennzeichnet ist. Detaillierte Informationen zur Unterscheidung zwischen Massenanteil und Beladung sind im Anhang A3 zu finden.

Entsprechend der schneller erreichten Mischgüte sorgt eine Drehzahlerhöhung in Abbildung 6.12 rechts auch für eine beschleunigte Flüssigkeitsübertragung. Größere Mengen können infolge der Variation des Betriebsparameters nicht aufgenommen werden. Wie bereits diskutiert, ist die finale Schüttguthomogenität genauso wie der vollständige Flüssigkeitsaustausch bei 36 min^{-1} nach 20 s noch nicht erreicht. Der Grund für den stationären Endwert der Flüssigkeitsbeladung ist auf den Betrag des zur Brückenbildung herangezogenen Flüssigkeitsanteils zurückzuführen. Im Endzustand entspricht dieser genau dem Wert, der im Anschluss an das Bruchereignis übertragen wird. Dies bedeutet, dass am Ende des Mischprozesses eine durchweg homogene Flüssigkeitsverteilung in beiden Mischungskomponenten vorliegt. Aufgrund der immer wiederkehrenden Benetzung, Agglomeration und des Brückenbruchs erscheint diese gleichmäßige Flüssigkeitsverteilung im Endzustand zunächst sinnvoll, wobei darauf hinzuweisen ist, dass die Anwendung des Filmmodells keine Verteilung der Flüssigkeit im Sinne der selektiven Anreicherung zulässt. Mani et al. [116] beobachteten eine orts aufgelöste Verarmung der Flüssigkeit mit gleichförmigem Geschwindigkeitsgradienten und schlugen ein diffusionsgesteuertes dynamisches Benetzungsmodell in Abhängigkeit der lokalen Scherrate vor [117]. Unter Berücksichtigung dynamischer Effekte zur Brückenbildung wäre eine Schwankung um den mittleren stationären Endwert zu erwarten. Dynamische Effekte sind jedoch im Rahmen dieser Arbeit nicht näher untersucht, da der fehlerbehafteten Annahme einer vollständigen Benetzung im Filmmodell eine höhere Relevanz zugeordnet wird. Im Falle schlechter Benetzungseigenschaften bildet sich kein idealer, dünner Flüssigkeitsfilm, sondern ein an der Partikel haftender Tropfen, welcher durch Modellierung der partiellen Benetzung in Kapitel 7 behandelt wird.

6.2.5 Einfluss der Stoßzahl als Simulations-Eingabe-Parameter

Heinrich und Antonyuk haben in Kooperation mit Kuipers umfangreiche experimentelle [36-38] und numerische [118, 119] Studien zur Energiedissipation beim Stoßvorgang sphärischer Partikeln auf mit Flüssigkeit benetzten Oberflächen durchgeführt und hierbei beobachtet, dass die globale Stoßzahl mit größerem Flüssigkeitsfilm abnimmt. Das heißt, dass während des Stoßvorgangs eine höhere Dämpfung auf benetzten Oberflächen auftritt. Ist der Flüssigkeitsfilm gleichmäßig auf der Partikeloberfläche verteilt, hängt die

Minderung der globalen Stoßzahl wiederum von der zugegebenen Fluidmenge, der Fluidviskosität und den Stoßgeschwindigkeiten ab. Die globale Stoßzahl in Normalenrichtung erfasst nach Antonyuk et al. [36] die Energiedissipation des kompletten Stoßvorgangs während der Penetration und des Wiederaustritts aus dem Flüssigkeitsfilm. Infolge von viskosen, Widerstands- und Auftriebskräften kann sich die Stoßzahl bei hohem Fluidvolumen und einer Viskosität von über 50 mPa·s um mehr als 30 % reduzieren. Im Rahmen der hier vorgestellten Untersuchungen ist die Stoßzahl e im Hertz-Modell zur Beschreibung des Energieverlusts im elastisch-viskosen Stoß als konstant angenommen. Dies liegt in folgenden Punkten begründet:

- Einerseits werden sehr kleine Flüssigkeitsschichten mit maximal 36 μm Schichtdicke betrachtet, deren Einfluss auf die Reduktion der Stoßzahl marginal klein und somit experimentell kaum nachweisbar sind [36].
- Die Viskosität von Wasser ist mit 1 mPa·s sehr niedrig. Mit steigender Viskosität ist die Abnahme der Stoßzahl stärker ausgeprägt.
- Wie in Abbildung 6.3 auf der linken Seite gezeigt, liegen die mittleren Partikelgeschwindigkeiten in Normalenrichtung zwischen 0,01 und 0,03 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. Diese sind deutlich geringer als die Partikelgeschwindigkeiten in einer Wirbelschicht [37]. Je geringer die Geschwindigkeiten, desto weniger nimmt die Stoßzahl ab [36].
- Der physikalischen Repulsion wirkt durch die Implementierung der Flüssigkeitsbrückenkraft eine zusätzliche Dämpfung entgegen. Da die Flüssigkeitsbrückenkraft volumenabhängig ist, ist die Energiedissipation im Stoßvorgang demzufolge nicht nur von den Partikelgeschwindigkeiten, sondern auch von der Flüssigkeitsverteilung abhängig. Hierdurch ist die erhöhte Dämpfung bereits berücksichtigt.

Die aufgezählten Punkte erläutern, weshalb keine dynamische Änderung der Stoßzahl infolge von Schichtdicke, Partikelgeschwindigkeiten oder der Viskosität im untersuchten Mischprozess berücksichtigt ist. Zur Klärung des Einflusses soll dennoch eine exemplarische Variation der Stoßzahl gezeigt werden. Hierbei sei ein Material mit höherem elastischen ($e = 0,9$) und eines mit höherem viskosen ($e = 0,6$) Anteil diskutiert.

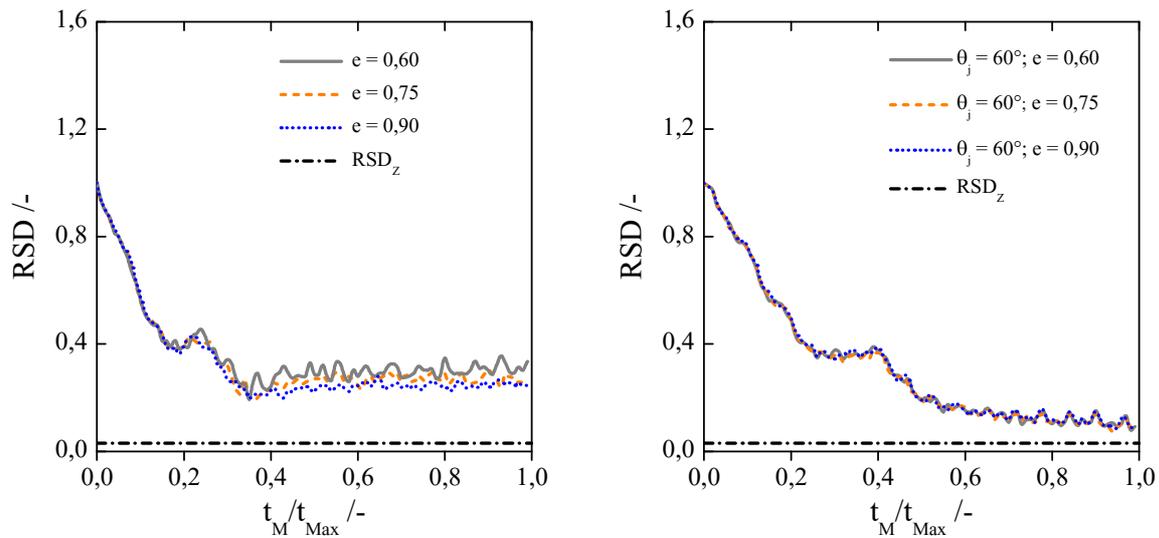


Abbildung 6.13: Mischgüeverlauf unter Variation der Stoßzahlen e im trockenen (links) und feuchten Zustand (rechts). Vergleiche hierzu auch die Implementierung der Stoßzahl in der Dämpfungskonstante in Gleichung (2.21). Im feuchten Fall ist die Anfangsbeladung des Füllmaterials $X_{w,i} = 5 \%$. Die maximale Simulationszeit beträgt $t_{Max} = 20$ s.

Abbildung 6.13 zeigt den Mischgüeverlauf im trockenen auf der linken und den feuchten Mischprozess auf der rechten Seite. Im feuchten Zustand zeigt sich nahezu keine Änderung des Mischgüeverlaufs. Dies bedeutet, dass die Platzwechsellvorgänge im dicht gepackten Schüttgut kaum von der Stoßzahl beeinflusst werden. Die bereits festgestellte, geringere dispersive Partikelbeweglichkeit, ausgelöst durch die kohäsiven Kräfte, ist dementsprechend kaum vom elastisch-plastischen Verhalten der Schüttgutmaterialien abhängig. Im frei fließenden Schüttgut treten wiederum viel mehr Platzwechsellvorgänge in derselben Mischzeit auf. Die Dämpfung infolge der Flüssigkeitsbrücken fehlt, sodass die Deformationseigenschaften der partikulären Komponente einen größeren Effekt im Trockenen ausüben. Für die simulationsbasierte Auslegung feuchter Mischprozesse ist der Einfluss der Stoßzahl als gering zu bewerten.

6.3 Beeinflussung der Mischmechanismen

Analog zum Vorgehen in Kapitel 4 ist anhand der Dispersions- und Transportkoeffizienten zu beurteilen, inwiefern die untersuchten Parametervariationen die dispersive und konvektive Partikelbeweglichkeit beeinflussen. Die Ergebnisse sind in Abbildung 6.14

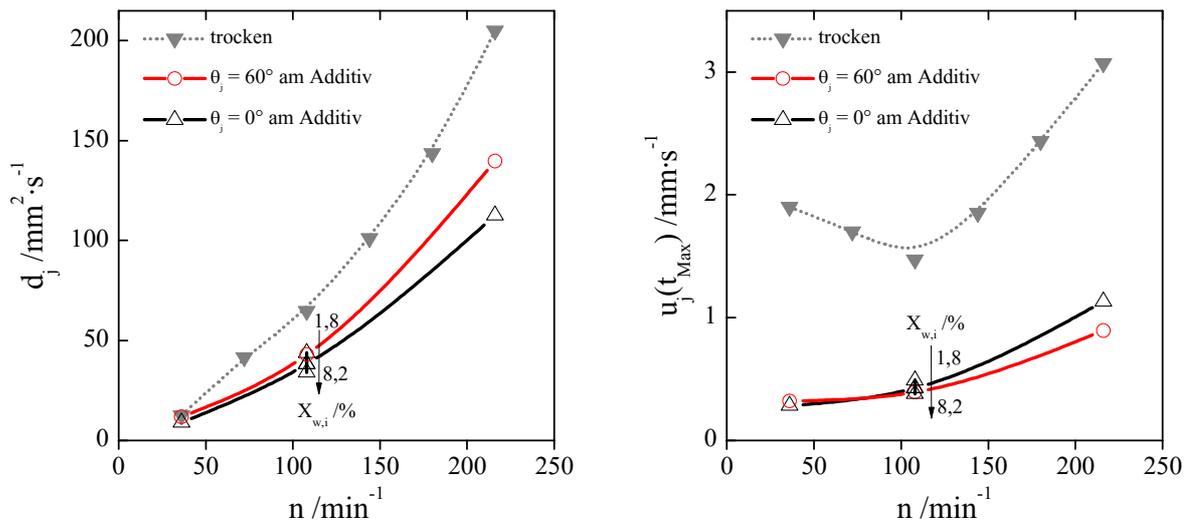


Abbildung 6.14: Mittels Markow-Ketten bestimmte Dispersions- d_j und Transportkoeffizienten u_j für feuchte Mischprozesse in Abhängigkeit der Drehzahl n , des Kontaktwinkels am Additiv θ_j und der anfänglichen Flüssigkeitsbeladung $X_{w,i}$.

dargestellt. Im betrachteten Mischer zeigt sich ein grundlegend niedrigerer Dispersionskoeffizient, sofern das Additiv im kohäsiven feuchten Füllmaterial zu verteilen ist. Gleiches gilt auch für den selektiven Transportkoeffizienten, sodass zwar längere Mischzeiten zum Erreichen der finalen Endhomogenität notwendig sind, gleichzeitig aber in weniger segregierten Produkten resultieren.

Eine Drehzahlerhöhung führt im feuchten Schüttgut zur Erhöhung der Dispersions- und Transportkoeffizienten, was eine wesentliche Reduktion der Mischzeit bewirkt. Lediglich beim trockenen Mischprozess ist ein vermutlich geometriebedingtes Optimum hinsichtlich niedrigerem selektiven Transport bei 108 min^{-1} festzustellen. Demzufolge weist dieser Zustand ein besonders günstiges Verhältnis zwischen dispersivem und konvektivem Mischmechanismus auf. Infolgedessen wurden unterschiedliche Flüssigkeitsbeladungen in diesem Betriebspunkt untersucht, wobei lediglich ein sehr kleiner Einfluss festgestellt werden kann.

Schlechtere Benetzungseigenschaften der Partikeln beeinflussen die dispersive Partikelbeweglichkeit ausgeprägter als die Variation der absoluten Flüssigkeitsmenge. Erwünschte niedrigere Transport- und höhere Dispersionskoeffizienten sind bei einem Kontaktwinkelunterschied von $\Delta\theta = 60^\circ$ zwischen beiden Mischungskomponenten festzustellen. Durch die erhöhte relative Partikelbeweglichkeit und der geringeren

Tendenz zur Segregation sind solche Komponenten dementsprechend einfacher zu Mischen.

6.4 Validierung anhand eines ausgewählten Experiments

Die vorangegangenen Untersuchungen konzentrieren sich auf die Modellierung und Simulation kohäsiver Mischgüter. Naheliegende messtechnische Varianten zum direkten Vergleich der Simulationsergebnisse stellen der Mischgüterverlauf [53] oder auch die bildgebende Erfassung der Einzelpartikelgeschwindigkeiten (kurz PIV) dar [54]. Da die Zugänglichkeit der Partikelgeschwindigkeit im Gegensatz zur magnetfeldbasierten Partikelverfolgung [11] mittels bildgebender Verfahren auf die zweidimensionale Schüttgutoberfläche beschränkt ist, wird im Rahmen dieses Unterkapitels zur experimentellen Untersuchung auf den Mischgüterverlauf zurückgegriffen. Dies hat zudem den Vorteil, dass durch die Stichprobenahme auch eine Aussage zur statistischen Verteilung der fluiden Phase möglich ist. Die daraus erhaltenen Mischgüterverläufe und Flüssigkeitsverteilungen lassen sich mit den numerischen Untersuchungen vergleichen. Die Validierungsergebnisse sind in Abbildung 6.15 zu sehen.

Das linke Diagramm zeigt einen trockenen sowie die zwei feuchten Mischgüterverläufe, bei denen sich der Benetzungswinkel des Additivs unterscheidet. Im Experiment sind jeweils transparente oder eingefärbte Glaspartikeln als Feingut verwendet. Hierdurch ergeben sich im Experiment die nahezu gleichen Benetzungsunterschiede wie in der Simulation. Um Unterschiede messtechnisch möglichst hoch aufzulösen, ist die Drehzahl auf 36 min^{-1} festgelegt.

Nicht nur in Bezug zur Methodik der Probenahme, sondern auch hinsichtlich etwaiger Modellannahmen sollte der Vergleich zwischen den numerisch und experimentell bestimmten Mischgüterverläufen kritisch und differenziert erfolgen. Zunächst fällt auf, dass sich trotz der minimalen Abweichungen in den Kontaktwinkeln sowohl experimentell als auch numerisch dieselben Tendenzen ergeben. Zum Teil sorgen die zufälligen Schwankungen der experimentellen Probenahme oder auch die verwendeten, minimal größenverteilten Glaspartikeln für leicht unterschiedliche Partikelbeweglichkeiten. Zudem sind eventuell vorhandene Rauigkeit an der Partikeloberfläche ebenso vernachlässigt, wie dynamische Effekte der Brückenbildung. Mohan et al. [120] bilden die Brücken-

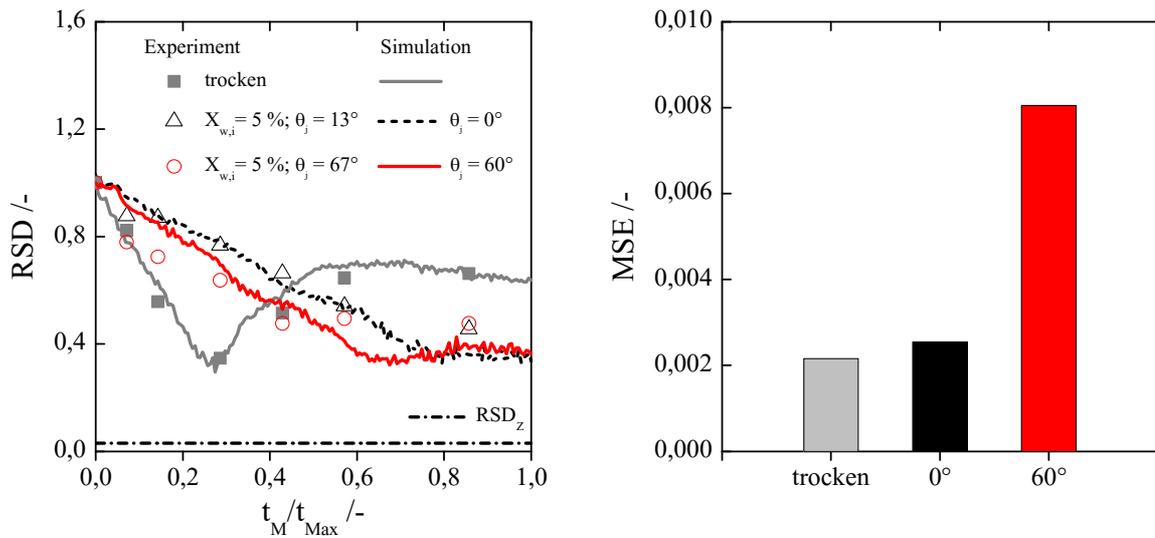


Abbildung 6.15 links: Vergleich der Simulation eines trockenen und zweier feuchter Mischprozesse mit experimentellen Untersuchungen. Die absolut zugegebene Menge an Wasser beträgt $m_{l,total} = 20,37$ g (Grenzflächenspannung $\gamma = 0,073$ N/m, maximale Zeit $t_{Max} = 35$ s). Rechts: Mittlere quadratische Abweichung MSE zwischen Simulation und Experiment für die drei betrachteten Fälle.

füllung über mehrere numerische Zeitschritte ab. Ein an der Partikeloberfläche stattfindender Flüssigkeitsfluss ist dabei in einem auf Scherung beanspruchten periodischen Würfelvolumen untersucht. Übertragen auf den Mischprozess stellt dieser Ansatz vermutlich eine physikalische Verbesserung dar, wenngleich Abbildung 6.15 auf der linken Seite keine signifikante Reduktion der Abweichungen vermuten lässt. Trotz der aufgezählten, im Modell getroffenen Vereinfachungen, sind die Abweichungen zwischen Simulation und Experiment, speziell im Trockenen aber auch bei ideal benetzenden Partikeln, entgegen der Erwartung gering. Zur Evaluation der Abweichung zwischen Simulation und Experiment ist der mittlere quadratische Fehler MSE (*Mean Square Error*) in Abbildung 6.15 auf der rechten Seite aufgetragen

$$MSE = \frac{1}{N} \sum_{k=i}^N (RSD_{Simulation} - RSD_{Experiment})^2. \quad (6.6)$$

Bei großem Kontaktwinkelunterschied zwischen Füllmaterial und Additiv treten größere Abweichungen auf, was vermutlich in der angenommenen vollständigen Benetzung im

Filmmodell der Simulation begründet liegt. Ein an der Partikel partiell haftender Tropfen kann mit dem in Abschnitt 6.1.1 erläuterten Filmmodell nicht berücksichtigt werden.

Die Auswirkungen der Kontaktwinkel an der additiven Komponente lassen sich nicht nur am Mischgüteverlauf, sondern auch in der Flüssigkeitsverteilung erkennen. Mit zunehmender Prozesszeit wird die Flüssigkeit vom anfänglich feuchten Füllmaterial auf das ursprünglich trockene Additiv übertragen. Abbildung 6.16 demonstriert dies anhand der über alle Proben gemittelten, massenbezogenen Beladung

$$\bar{X}(\text{Proben})_{w,ij} = \frac{\tilde{m}_{w,ij}}{\tilde{m}_i + \tilde{m}_j} \quad \text{mit} \quad \tilde{m}_i = \sum_{k=1}^{N_{P,i}} m_i \quad \text{und} \quad \tilde{m}_j = \sum_{k=1}^{N_{P,i}} m_j \quad (6.7)$$

im Experiment links und in der Simulation rechts. Gegensätzlich zu Abbildung 6.12, in der die Flüssigkeitsverteilung integral über das gesamte Schüttgut betrachtet wird, ist hier aus Gründen der Vergleichbarkeit auf die Flüssigkeitsbeladung in den einzelnen Proben zurückgegriffen. Die Anfangsbedingungen von $\bar{X}(\text{Proben})_{w,ij} = 5 \text{ Ma-}\%$ Wasser bezogen auf die Füllmaterialmasse innerhalb einer Probe ergeben unter Einbeziehung der Additivmasse \tilde{m}_j einen Beladungssollwert von 4,44 Ma-%, der eine ideal homogene Verteilung der Flüssigkeit signalisiert.

Sowohl in den experimentellen als auch in den numerischen Untersuchungen sind Schwankungen der Flüssigkeitsmengen zu beobachten, was einerseits in der Verteilung der Probenahmepositionen und andererseits in der anfänglich inhomogen verteilten Flüssigkeit begründet ist. Von anfänglich 5 Ma-% nimmt die Flüssigkeitsmenge in den Simulationen kontinuierlich in Richtung Sollwert mit simultaner Verringerung der Schwankungsbreite ab, da sich mit zunehmender Prozesszeit auch das Additiv in die Probenräume bewegt und dabei Flüssigkeit aufnimmt. Gegensätzlich dazu sind im Experiment deutlich größere Schwankungen zu beobachten. Dies signalisiert einerseits, dass die erfasste Flüssigkeitsmenge zwischen den Proben schwankt, was wiederum den Schluss einer ungleichmäßig über den Mischbehälter verteilten Flüssigkeit erlaubt. Da die Flüssigkeitsmengen im Vergleich zu den Schüttgutmengen deutlich niedriger sind und das Wasser auch den Probennehmer benetzt, sind andererseits die Sensitivität und damit die Messgenauigkeit des Experiments bezüglich der Flüssigkeitsverteilung deutlich geringer als die des Mischgüteverlaufs. Dementsprechend setzen sich die Abweichungen

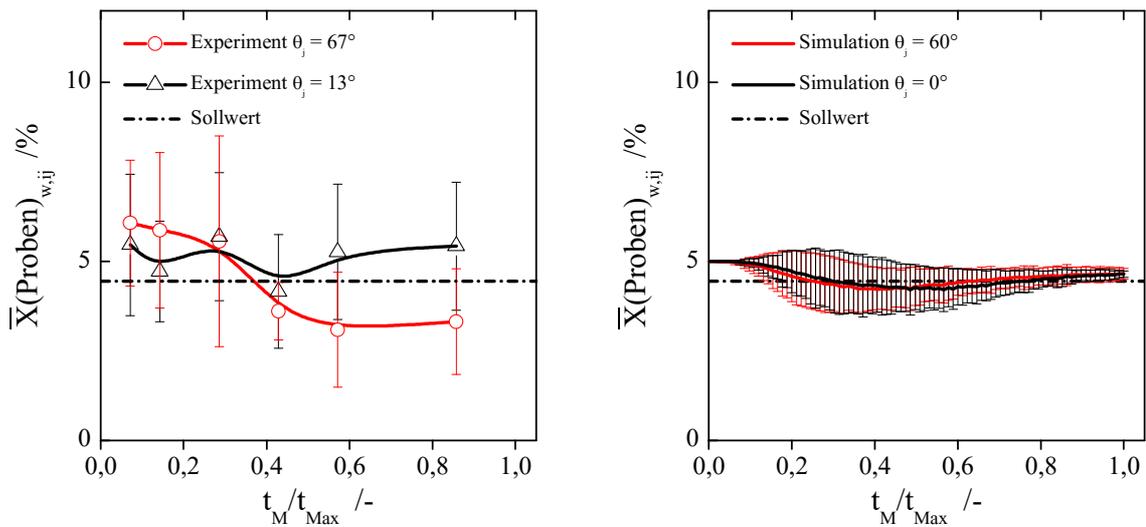


Abbildung 6.16 links: Experimentell bestimmte Wasserbeladung des Schüttguts innerhalb der Proben im Verlauf des Mischprozesses. Rechts: Analoge Auswertung in den Simulationen. Die Fehlerbalken stellen die Standardabweichung der Flüssigkeitsbeladungen in den einzelnen Proben dar. Die maximale Zeit ist auf 35 s und die Drehzahl auf 36 min^{-1} festgelegt.

aus der tatsächlich schwankenden Flüssigkeitsverteilung und der nicht quantifizierbaren Messungenauigkeit zusammen.

Da die Schwankungsbreite in jedem Messpunkt stets den Bereich des Sollwerts erfasst, ist die Frage der Interpretierbarkeit beider Messreihen kritisch zu bewerten. Unter Berücksichtigung der geringen Aussagekraft lässt sich lediglich eine durch den Kontaktwinkel beeinflusste Flüssigkeitsverteilung vermuten. Der mit der Mischzeit abnehmende Flüssigkeitsanteil bei hohem Kontaktwinkel (rote Kurve) kann eine leichte Perkolation des Wassers andeuten. Durch die geringeren Haftkräfte ist es denkbar, dass das Wasser in Richtung Behälterboden „fließt“. Diese erhöhte Wasseransammlung lässt sich jedoch durch die kegelförmige Spitze des Probennehmers nicht erfassen. Gegenätzlich dazu ist beim niedrigen Kontaktwinkel (schwarze Kurve) das hinzudosierte Wasser vermehrt in den kapillaren Flüssigkeitsbrücken im Schüttgut nahe des Behälterbodens gebunden. Der Mechanismus des perkolierenden Wassers ist modellbedingt in der Simulation nicht nachweisbar, sodass in Abbildung 6.16 rechts kein signifikanter Unterschied zwischen den beiden Messreihen zu beobachten ist.

Zusätzlich ist davon auszugehen, dass infolge des mechanischen Energieeintrags und der dadurch auftretenden Partikel-Partikel und Partikel-Wand Reibung lokale Temperaturerhöhungen auftreten, die zur Verdampfung des Wassers führen. Experimentell scheinen die thermischen Effekte bei der geringen Drehzahl und der kurzen Mischzeit jedoch keinen signifikanten Einfluss zu haben.

Einerseits verdeutlicht Abbildung 6.16, dass die experimentell bestimmten Flüssigkeitsmengen innerhalb der Proben kritisch zu bewerten sind. Andererseits ist zu erkennen, dass die Modellannahmen hinsichtlich des Flüssigkeitstransports nicht ideal mit dem Experiment übereinstimmen, obwohl die Mischgüteverläufe sehr gut wiedergegeben werden. Demzufolge stellt das in Kapitel 5 entwickelte Modell eine signifikante Erweiterung für die Berechnung feuchter Mischprozesse dar, wenngleich die Flüssigkeitsverteilung weiterer Optimierung bedarf.

Kapitel 7

Partielle Benetzung²²

Die Modellierung und Simulationen im vorherigen Kapitel dienten zur Untersuchung des Einflusses von Material- und Betriebsparametern im kohäsiven Mischprozess. Im Rahmen der Validierung zeigten sich bei nicht ideal benetzenden Materialien größere Diskrepanzen, die hauptsächlich im stark vereinfachten Filmmodell begründet liegen. Mithilfe einer Oberflächendiskretisierung ist im folgenden Kapitel ein mathematisches Modell zur Berücksichtigung der partiellen Partikelbenetzung vorgestellt, welches eine höhere Genauigkeit verspricht. Mithilfe der Modellanwendung in der DEM soll eine verbesserte Flüssigkeitsverteilung erzielt werden.

7.1 Stand der Technik und Zielsetzung

In Analogie zu den Feststoffmischmechanismen erfolgt die Flüssigkeitsverteilung durch den vom Mischwerkzeug induzierten konvektiven Transport sowie durch mechanische Kontaktdispersion [120]. Unter Kontaktdispersion ist die interpartikuläre Flüssigkeitsübertragung infolge von mechanischen Stoßvorgängen zu verstehen. Während sich partikuläre Kontaktvorgänge auf Basis des Hertz-Mindlin Modells [30, 31] translatorische und rotatorisch beschreiben lassen, befinden sich die Modelle zur Simulation von feuchten Schüttergütern noch in den Anfängen. Als eine der ersten präsentieren Shi und

²² Inhalte dieses Abschnitts wurden in *Powder Technology* veröffentlicht und mit der Erlaubnis von Elsevier für die Dissertation übersetzt und angepasst. [121] S. Schmelzle, E. Asylbekov, B. Radel und H. Nirschl, "Modelling of partially wet particles in DEM simulations of a solid mixing process", *Powder Technology*, (338), Seiten 354-364, 2018.

McCarthy [101] das Filmmodell (siehe auch Kapitel 6.1.1), bei dem Flüssigkeit gleichmäßig auf der Partikeloberfläche als dünne Schicht vorliegt und nach dem Brückenbruch auf die Kontaktpartner entsprechend eines parabolischen Brückenprofils rückverteilt wird. Mani et al. [117] berechnen den scherinduzierten Flüssigkeitstransport in untersättigten, monodispersen Partikelkollektiven ebenfalls auf Basis des Filmmodells und erklären diesen kontinuumsmechanisch. Mohan et al. [120] vergleichen vier Modelle zur Beschreibung des Flüssigkeitstransports mit variablen Flüssigkeitsschichtdicken und Flussraten zur dynamischen Brückenfüllung innerhalb eines Scherfeldes. In den angesprochenen Arbeiten ist die Annahme getroffen, dass sich die Flüssigkeit sofort über die gesamte Partikeloberfläche ausbreitet. Diese Annahme ist für sehr gut benetzende Materialien mit niedrigen Kontaktwinkeln gerechtfertigt. Ist beispielsweise ein weniger hydrophiles Material wie die in Abbildung 7.1 gezeigte rot beschichtete Glaspartikel mit Wasser zu benetzen, bildet sich kein idealer Flüssigkeitsfilm. Je nach Kontaktwinkel bilden sich an der Partikel haftende Tropfen aus.

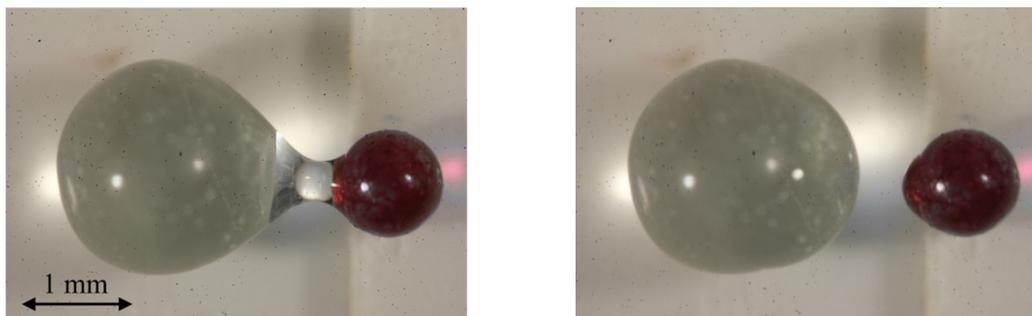


Abbildung 7.1: Makroskopische Aufnahmen zur Illustration der partiellen Benetzung einer transparenten und beschichteten Glaspartikel vor und nach dem Brückenbruch. Die rote Partikel weist dabei eine größere Hydrophobizität als die transparente Partikel auf.

Zur Berücksichtigung der Teilbenetzung sind weitreichende Modellerweiterungen wie die lokale Speicherung von Oberflächenflüssigkeit notwendig. Washino et al. [122] greifen eine Diskretisierungsmethode von González [61] auf, um die Intra- und Intergleichmäßigkeit der Beschichtung von monodispersen Partikeln in einer Mischtrommel untersuchen zu können. Die Diskretisierungsmethode ist im folgenden Kapitel 7.2 weiterentwickelt, um die partielle Partikelbenetzung mit der damit einhergehenden Ausbildung von Tropfen in der DEM zu modellieren. Hierdurch sind verbesserte Flüssigkeitsverteilungen und höhere Genauigkeiten in der Validierung zu erwarten.

7.2 Modellierung der partiellen Benetzung

7.2.1 Diskretisierung der Partikeloberfläche mit der Fibonacci-Lattice Methode

Um eine partielle Partikelbenetzung in der DEM realisieren zu können, wird eine Diskretisierung der Partikeloberfläche eingeführt, die zur lokalen Speicherung der Flüssigkeit an der Partikeloberfläche dient. Die Fibonacci-Lattice Methode (kurz *Fib.-Lat.*) nach González [123] ermöglicht hierbei eine nahezu gleichmäßige Unterteilung einzelner *Fib.-Lat.* Punkte über die Kugeloberfläche. Primär sind in den einzelnen Punkten vor allem massenbezogene Flüssigkeitsanteile orts aufgelöst zu speichern.

Swinbank und James Purser [124] zeigen auf Basis des goldenen Schnitts, wie eine ungerade natürliche Anzahl N' von *Fib.-Lat.* Punkten mathematisch gleichmäßig auf einer Kugeloberfläche zu verteilen ist. Durch Kreuzung gegenläufiger Fermat-Spiralen im Goldenen Winkel $360^\circ \cdot \Phi^{-2} \cong 137,5^\circ$, deren Windungszahlen wiederum abhängig von der Anzahl der Punkte N' sind, ergeben sich der longitudinale lon_Γ und latitudinale lat_Γ Winkel

$$N' = 2N + 1, \quad (7.1)$$

$$lat_\Gamma = \arcsin\left(\frac{2\Gamma}{2N+1}\right) \quad \text{und} \quad lon_\Gamma = 2\pi\Gamma\Phi^{-1}, \quad (7.2)$$

wobei Γ eine ebenfalls ganzrationale Zahl von $-N$ bis N ist. Exemplarisch ist in Abbildung 7.2 auf der linken Seite die Diskretisierungsmethode für $N' = 1001$ *Fib.-Lat.* Punkte gezeigt. Im Vergleich zum gleichwinkligen Gitter [125] sind hierbei keine inhomogenen Punktansammlungen an den Polen festzustellen. Da die Verteilung der Punkte um den Ausgangspunkt $\vec{P}_0 = (r_i \ 0 \ 0)^T$ entwickelt wird, resultiert eine ungerade Gesamtanzahl an Punkten \vec{P}_Γ im kartesischen Koordinatensystem

$$\vec{P}_\Gamma = \begin{pmatrix} r_i \cdot \sin(lon_\Gamma) \cdot \cos(lat_\Gamma) \\ r_i \cdot \sin(lon_\Gamma) \cdot \sin(lat_\Gamma) \\ r_i \cdot \cos(lon_\Gamma) \end{pmatrix}. \quad (7.3)$$

Abgesehen vom Ausgangspunkt hat jeder *Fib.-Lat.* Punkt einen mit dem Ursprung punktsymmetrischen, gegenüberliegenden Punkt mit negativem Vorzeichen in longi-

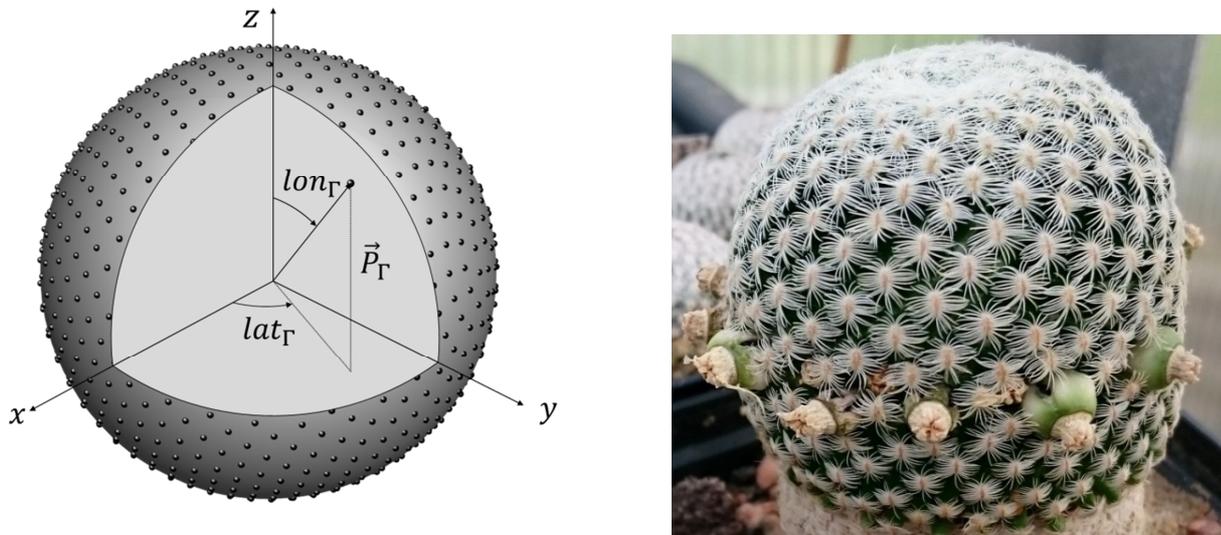


Abbildung 7.2 links: Mittels $N' = 1001$ Punkten diskretisierte Kugeloberfläche. Rechts: „*Mammillaria solisoides*“²³ ist ein Kakteengewächs, dessen Blüten in Fibonacci-Lattice Anordnung wachsen [126].

tudinalem und latitudinalem Winkel. Dies ergibt eine nicht zentralsymmetrische Verteilung, die nach González [123] vermutlich die bestmögliche Homogenität in den Abständen zwischen den einzelnen Punkten wiedergibt. Wie anhand eines Voronoi Diagramms²⁴ in der aktuellen Arbeit von Keinert et al. [127] gezeigt, ist die Punkteverteilung um den Entwicklungspunkt ($\Gamma = 0$) dennoch besonders inkongruent. Übertragen auf die Modellierung der partiellen Benetzung bedeutet dies, dass der Bereich um den Entwicklungspol eine besonders inhomogene Dichteverteilung der Punkte aufweist und dementsprechend kritisch in der Modellierung zu behandeln ist. Mit zunehmender Anzahl an *Fib.-Lat.* Punkten nimmt die Homogenität der Verteilung jedoch wiederum zu, bis im Grenzfall unendlich vieler Punkte eine ideal perfekte Verteilung erreicht wird.

Abbildung 7.2 rechts zeigt das mathematisch idealisierte *Fib.-Lat.* Muster im Bereich der Botanik auch als regelhafte Anordnung von Blüten bei Kakteengewächsen, mit welcher die Pflanze einen optimalen Lichteinfall und ideale Bestäubung durch Insekten realisiert. Mathematisch wurde dieses Phänomen höchstwahrscheinlich erstmals von Bravais und Bravais [128] beschrieben.

²³ Die Abbildung wurde am 08.05.2017 von wikipedia.de abgerufen. Zum Zeitpunkt des Abrufs war die Fotografie von Michael Wolf zur freien Publikation in jedwedem Medium lizenziert (<https://creativecommons.org/licenses/by-sa/3.0/deed.en>).

²⁴ Ein nach dem Mathematiker Georgi Feodosjewitsch Woronoi (*28.04.1868, †20.11.1908) benanntes Diagramm, welches die dreidimensionale Kugeloberfläche auf zweidimensionale Regionen überträgt, deren Zentren genau einen Punkt umfassen.

7.2.2 Minimale Anzahl der Speicherpunkte und Korrektur des Kugelsegmentmodells

Da auch im Rahmen der Simulationen zur partiellen Benetzung auf das Kugelsegmentmodell zur Brückenbildung zurückgegriffen wird, ergibt sich eine minimal notwendige Anzahl an *Fib.-Lat.* Punkten N'_{min} . Tritt der Fall mit einer zu niedrig gewählten Punktzahl auf, wie beispielsweise in Abbildung 7.3 links dargestellt, ist ohne Speicherpunkt innerhalb der blauen Kugelkalotte zwangsläufig ein trockener Partikelkontakt zu beobachten. Das heißt, dass die Partikelorientierung und nicht die gespeicherte Information als Brückenbildungskriterium herangezogen würde. Diese unerwünschte Situation gilt es zu vermeiden, auch weil eine zu niedrige gewählte Anzahl an Punkten zu numerischen Instabilitäten nach erfolgtem Brückenbruch und damit verbundenen Massenverlusten führen würde.

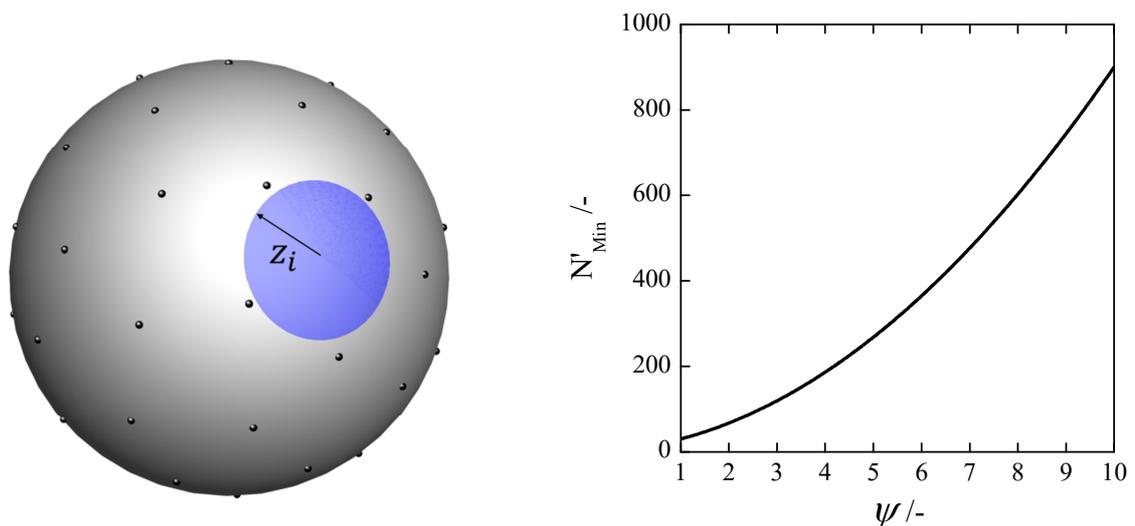


Abbildung 7.3 links: Dreidimensionale Darstellung einer Kugel auf deren Oberfläche 51 *Fib.-Lat.* Punkte verteilt vorliegen. Die blau dargestellte Kugelkalotte ergibt sich bei einem Partikelkontakt mit dem Größenverhältnis $\psi = 2$. Rechts: Minimal notwendige Anzahl an *Fib.-Lat.* Punkten N'_{min} in Abhängigkeit des Größenverhältnisses.

Zur Gewährleistung, dass mindestens ein Speicherpunkt für die Brückenbildung zur Verfügung steht, ist die minimale Anzahl der *Fib.-Lat.* Punkte zu bestimmen. Wie bereits angemerkt, ist die größte Ungleichmäßigkeit der Punkteverteilung am Pol zu beobachten. Nach Keinert et al. [127] ergibt sich der größte Umkreisradius Δ_{max} am Pol zwischen den Punkten 2, 3 und 5 entlang der durchnummerierten Fermat-Spirale von 1 bis N' aus dem Skalarprodukt zwischen dem normierten Vektor $\vec{\zeta}$ und \vec{P}_2

$$\Delta_{max} = \arccos \left\langle \frac{\vec{\zeta}}{\|\zeta\|_2}, \vec{P}_2 \right\rangle, \quad (7.4)$$

$$\vec{\zeta} = (\vec{P}_3 - \vec{P}_2) \times (\vec{P}_5 - \vec{P}_2). \quad (7.5)$$

Ist der größte Umkreisradius kleiner oder gleich dem Radius der Kalotte z_i , ist sichergestellt, dass unabhängig von der Kugelorientierung mindestens ein Speicherpunkt innerhalb der Kugelsegmentfläche zu finden ist. Da die blaue Fläche des Kugelsegments mit steigendem Partikelgrößenverhältnis ψ abnimmt, zeigt sich eine quadratische Zunahme der minimalen Anzahl an *Fib.-Lat.* Punkten N'_{min} in Abbildung 7.3 auf der rechten Seite. Für stabile Simulationen sind bei einem Partikelgrößenverhältnis von $\psi = 2$ mindestens 69 Punkte notwendig. Da das Verhältnis zwischen Kugelsegmentradius und Partikelradius prinzipiell an der größeren Partikel kleiner ist, beschränkt sich die minimale Anzahl auf die größere Partikel. Abbildung 7.4 zeigt, dass die Punkte an der kleineren Partikel bei gleicher Anzahl dichter gepackt sind. Washino et al. [122] vermuten anhand von Gleichkornmischungen, dass eine größere Anzahl der *Fib.-Lat.* Punkte als $N' = 36$ das Ergebnis nicht mehr beeinflussen kann. Nach Abbildung 7.3 rechts ist für Gleichkornpartikeln jedoch mindestens eine minimale Anzahl $N'_{min} = 31$ zu wählen, um im Partikelkontakt zu gewährleisten, dass die Information hinsichtlich eines trockenen oder feuchten Stoßes gegeben ist. Da die Diskretisierungsmethode bei kleineren Anzahlen mehr freie Oberfläche für trockene Kontakt Ereignisse suggeriert, ist zu vermuten, dass die genannte Abhängigkeit von Washino et al. [122] hauptsächlich auf einen reduzierten Flüssigkeitstransfer infolge einer unterschätzten Punktdichteverteilung zurückzuführen ist.

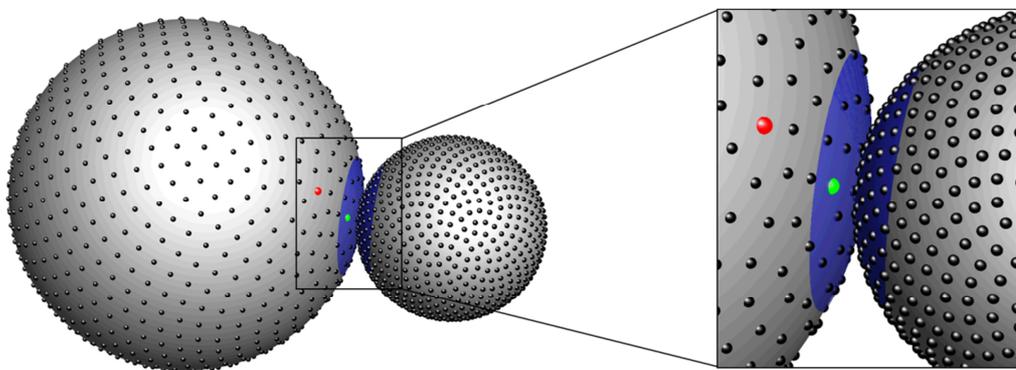


Abbildung 7.4: Kontakt zweier unterschiedlich großer Partikeln mit blau dargestellten Kugelsegmenten, die die Kontaktflächen zur Brückenbildung beschreiben. Der grüne Punkt liegt innerhalb und der rote Punkt außerhalb der Brückenbildungszone.

Orientierung

Ist die Anzahl mit mindestens N'_{min} definiert, lassen sich die Koordinaten der *Fib.-Lat.* Speicherpunkte nach Gleichung (7.1) bis (7.3) berechnen und in einer Nachschlagetabelle hinterlegen. Da die Partikeln neben der translatorischen auch der rotatorischen Bewegungsgleichung folgen, ändern sich die initialisierten *Fib.-Lat.* Punktkoordinaten in jedem Zeitschritt. Die Punkte rotieren relativ um das ursprüngliche Koordinatensystem des Gesamtsystems, was sich mithilfe der Euler'schen Rotationsmatrix

$$\mathbf{Q} = \mathbf{BCD} \quad (7.6)$$

dargestellt in Abbildung 7.5 mit

$$\mathbf{B} = \begin{pmatrix} \cos(\gamma) & \sin(\gamma) & 0 \\ -\sin(\gamma) & \cos(\gamma) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad \mathbf{C} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos(\alpha) & \sin(\alpha) \\ 0 & -\sin(\alpha) & \cos(\alpha) \end{pmatrix} \quad (7.7)$$

und

$$\mathbf{D} = \begin{pmatrix} \cos(\delta) & \sin(\delta) & 0 \\ -\sin(\delta) & \cos(\delta) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (7.8)$$

beschreiben lässt. Die Rotation um die Achsen x, y und z wird durch die Raumwinkel δ , α und γ dargestellt. Durch Multiplikation mit der Rotationsmatrix ergeben sich die neuen Punktkoordinaten

$$\vec{P}_{\Gamma,neu} = \mathbf{Q} \cdot \vec{P}_{\Gamma} \quad (7.9)$$

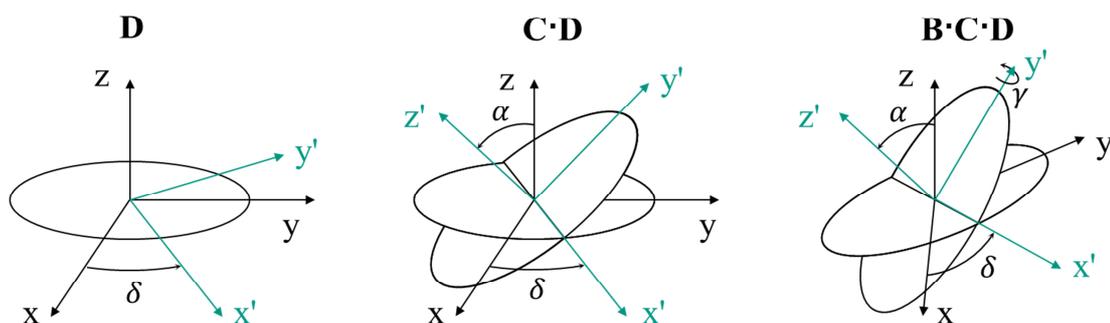


Abbildung 7.5: Euler-Winkel zur Beschreibung eines körperfesten Koordinatensystems.

In Abhängigkeit der Orientierung der Partikel sind vor jedem Stoßvorgang die entsprechenden Koordinaten mit Bezug zum Koordinatensystem des Mischers zu berechnen, sodass jeder *Fib.-Lat.* Punkt individuell einer Flüssigkeitsbrücke oder der frei verfügbaren Oberfläche im jeweiligen Zeitschritt zugeordnet werden kann.

Korrektur des Kugelsegmentmodells bei multiplen Kontakten

Stehen mehrere Partikeln in Kontakt, wie in Schüttgütern üblich, ergibt sich im Rahmen der Kugelsegmentkonstruktion nach Abbildung 7.6 auf der linken Seite die Problematik der Segmentüberlappung. Dies hat in den vorangegangenen Simulationen (siehe Kapitel 6) keinen signifikanten Einfluss, da die Fläche der Kugelsegmentüberlappung im Verhältnis zur frei verfügbaren Partikeloberfläche unabhängig vom Größenverhältnis deutlich kleiner ist. Im Rahmen der Filmmodellsimulationen findet daher keine Überschätzung der Flüssigkeitsmenge statt. Das heißt, dass niemals mehr Flüssigkeit in den vorhandenen Flüssigkeitsbrücken gebunden werden kann, als tatsächlich im Flüssigkeitsfilm an der Partikeloberfläche vorhanden ist.

Beim Modell der diskreten Flüssigkeitsverteilung ist die Segmentüberlappung hingegen kritisch. Im möglichen Fall, dass ein *Fib.-Lat.* Punkt im Bereich der Kugelsegmentüberlappung zu finden ist und beide Brücken simultan im selben Zeitschritt brechen, kann eine unerwünschte Massenzunahme oder auch Abnahme durch doppeltes Überschreiben des Speicherpunktes auftreten. Um dies zu verhindern, ist eine Korrektur k_f durch Reduktion der Kugelsegmentradien z_{ij} und z_{jk} zwischen den Partikeln i , j und k notwendig

$$z_{ij}^* = k_f \cdot z_{ij}, \quad z_{jk}^* = k_f \cdot z_{jk}. \quad (7.10)$$

Abbildung 7.6 zeigt auf der linken Seite, dass geometriebedingt der größte Überlappungswinkel $\delta'_{U,j}$ an der Partikel mit dem mittleren Partikelradius r_j festzustellen ist. Aus der geometrischen Bedingung eines verschwindenden Überlappungswinkels $\delta'_{U,j}$ ergibt sich die Korrekturfunktion

$$k_f = \cos \left[\arctan \left(\frac{2\psi_{ik} \sqrt{\psi_{ik}\psi_{jk}(\psi_{ik} + \psi_{jk} + 1)}}{\psi_{jk}(\psi_{ik}^2 + \psi_{ik}\psi_{jk} + 3\psi_{ik} + \psi_{jk})} \right) + \arctan \left(\frac{\psi_{ik}\psi_{jk} + \psi_{jk}^2 - \psi_{ik} + \psi_{jk}}{2\sqrt{\psi_{ik}\psi_{jk}(\psi_{ik} + \psi_{jk} + 1)}} \right) \right], \quad (7.11)$$

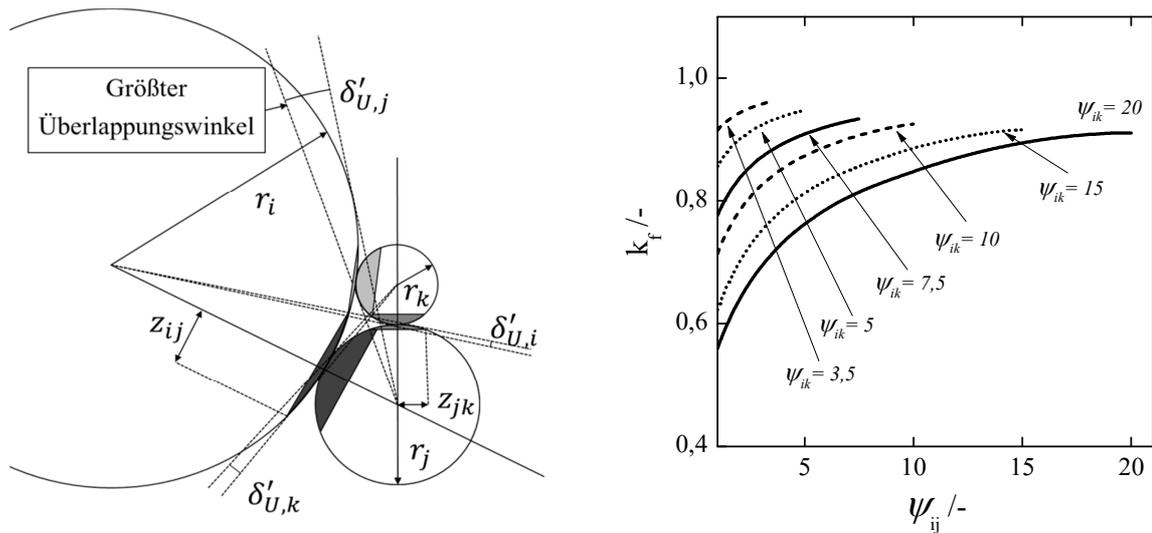


Abbildung 7.6 links: Schematische 2D-Darstellung der Kugelsegmentüberlappung inklusive der drei Überlappungswinkel $\delta'_{U,j}$, die sich im bei multiplen Partikelkontakt ergeben. Rechts: Korrekturfaktor zur Reduktion der Kugelsegmentradien in Abhängigkeit der Partikelgrößenverhältnisse.

die sich analytisch aus den Partikelgrößenverhältnissen $\psi_{ik} = r_i/r_k$ und $\psi_{jk} = r_j/r_k$ berechnen lässt. Deren Herleitung ist in Anhang A4 detailliert erklärt. Da die Problematik auf multiplen Partikelkontakten basiert, sind immer zwei Partikelgrößenverhältnisse zur Berechnung der Korrektur erforderlich, wie in Abbildung 7.6 auf der rechten Seite dargestellt ist. Betrachtet man das Verhältnis zwischen größter und kleinster Partikel mit $\psi_{ik} = 20$, nimmt der Korrekturfaktor mit Reduktion von ψ_{ij} ab. Je niedriger der Korrekturfaktor desto größer ist die Reduktion der Segmentgröße. Mit zunehmenden Partikelgrößenverhältnissen steigt somit die Relevanz der Korrekturfaktoren. Die Segmentradien sind dementsprechend bei polydispersen Systemen mit sehr breiter Größenverteilung signifikant zu reduzieren und in der DEM initial nach Gleichung (7.11) zu berechnen.

Für die folgenden Untersuchungen ergibt ein Korrekturfaktor von $k_f = 0,97$ stabile Simulationsbedingungen. Ohne Korrekturfaktor entstehen Zustände, in denen sich mehrere Partikeln einen Speicherpunkt teilen können, was dazu führt, dass mehrfach durchgeführte Subtraktion einer zur Verfügung stehenden Flüssigkeitsmenge zu unerwünschten negativen Flüssigkeitsmengen führt.

7.2.3 Tropfen-Modellierung

Die vorgestellte *Fib.-Lat.* Methode bietet neben der lokalen Speicherung diskreter Flüssigkeitsmengen zudem die Möglichkeit einen an der Partikel haftenden Tropfen zu modellieren. Nach Brückenbruch ergeben sich die zu verteilenden Flüssigkeitsmengen entsprechend der größen- und kontaktwinkelabhängigen Transferverhältnisse. In Abhängigkeit der Benetzungseigenschaften und der Flüssigkeitsmenge entstehen wiederum unterschiedliche Tropfenformen. Ziel dieses Unterkapitels ist es eine effiziente Methode zu entwickeln, anhand derer sich die Flüssigkeit entsprechend der Tropfenform auf die *Fib.-Lat.* Punkte verteilen lässt. Hierzu ist der Tropfen toroidal mittels eines konstanten Krümmungsradius r_t approximiert. Das heißt, dass die Gewichtskraft der Flüssigkeit, analog zu den vorhergehenden Untersuchungen, keinen Einfluss auf die Form der Flüssigkeitsoberfläche ausübt.

Haftet ein Tropfen in Kugelform, dessen Kreismittelpunkt über h_0 beschrieben wird, an einer Partikel, ergibt sich das Tropfenvolumen v_t durch Subtraktion des Kugelsegments der Partikel v_{kp} vom Kugelsegment des Tropfens v_{kp}

$$v_t = v_{kt} - v_{ki} = \frac{h_t^2 \pi}{3} (3r_t - h_t) - \frac{h_i^2 \pi}{3} (3r_i - h_i) . \quad (7.12)$$

Abbildung 7.7 verdeutlicht links, dass die beiden Segmenthöhen h_i und h_t über denselben Segmentradius a verknüpft sind

$$\begin{aligned} h_i &= r_i - \sqrt{r_i^2 - a^2} \\ h_t &= r_t - \sqrt{r_t^2 - a^2} \end{aligned} \quad \rightarrow \quad \sqrt{r_i^2 - (r_i - h_i)^2} = a = \sqrt{r_t^2 - (r_t - h_t)^2} . \quad (7.13)$$

Die Segmenthöhe und der Tropfenradius variieren in Abhängigkeit vom Benetzungswinkel θ_i und dem Tropfenvolumen v_t . Da diese beiden Größen vordefiniert und parenthetisch in jedem Kontakt ereignis vorliegen, ist es zielführend, den Segmentradius a und damit die Position der Dreiphasengrenzlinie als Funktion der genannten Größen analytisch zu berechnen. An der Dreiphasengrenzlinie ergibt sich der Benetzungswinkel über die Gradienten der Partikel und des Tropfens als Randbedingung

$$\tan(\theta_i) = \left| \frac{dy_i(x)/dx - dy_t(x)/dx}{1 + dy_i(x)/dx \cdot dy_t(x)/dx} \right| \quad \text{mit} \quad \begin{cases} y_i(x) = \sqrt{r_i^2 - (r_i + x - h_i)^2} \\ y_t(x) = \sqrt{r_t^2 - (r_t + x - h_t)^2} \end{cases} . \quad (7.14)$$

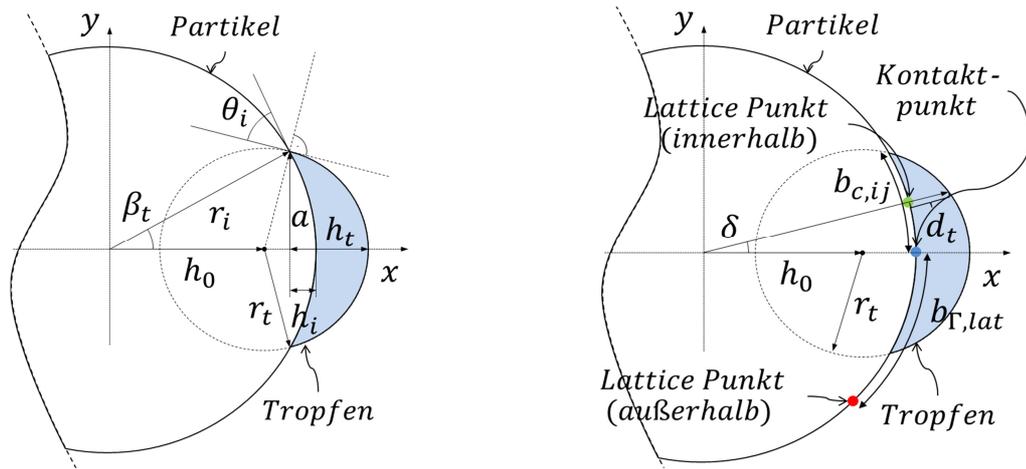


Abbildung 7.7: Schematische Darstellung eines haftenden Tropfens mit den entsprechenden geometrischen Abmessungen zur Berechnung des Tropfenvolumens (links) und zur Beurteilung der teilnehmenden Punkte (rechts). Aufgrund der Rotationssymmetrie ist die zweidimensionale Betrachtung gerechtfertigt.

Die Kombination aus algebraischen und trigonometrischen Funktionen in den Gleichungen (7.12) bis (7.14) ermöglicht keine analytische Lösung, mit der die relative Kugelsegmenthöhe a/r_i in Abhängigkeit des dimensionslosen Tropfenvolumens v_t/v_i beschrieben werden kann. Der mittels Newtonverfahren numerisch bestimmte Zusammenhang ist in Abbildung 7.8 links doppellogarithmisch dargestellt. Für sehr kleine Tropfenvolumina ist die Segmenthöhe h_i marginal, sodass der an der Partikel haftende Tropfen dem Fall der ebenen Wandhaftung entspricht. Dies resultiert in der linearen Zunahme über einen breiten Volumenbereich. Je größer dabei der Kontaktwinkel ist, desto kleiner ist die Segmenthöhe bei volumenkonstanter Betrachtung. Mit größeren Tropfenvolumina nimmt die Steigung zunehmend bis zum Grenzwert $(a/r_i)_{max} = 1$ ab. Prozessbedingt können bei einer maximalen Sättigung von 13 % keine größeren Tropfen im Schüttgut auftreten. Das Abknicken der Kurven liegt darin begründet, dass die Krümmung der Partikeln mit zunehmendem Tropfenvolumen mit der Kubikwurzel skaliert.

Da mit der numerischen Berechnung Einbußen in der Simulationsdauer einhergehen würden, wurde analog zur Entwicklung des Kontaktmodells in Kapitel 5 eine Approximation $(a/r_i)_{Approx.}$ abgeleitet

$$\left(\frac{a}{r_i}\right)_{Approx.} = \left(1 - 1/\left(1 + \frac{v_t}{v_i} \left(\frac{4\sin^3\theta_i}{(2 - 3\cos\theta_i + \cos^3\theta_i)}\right)\right)\right)^{0,33}, \quad (7.15)$$

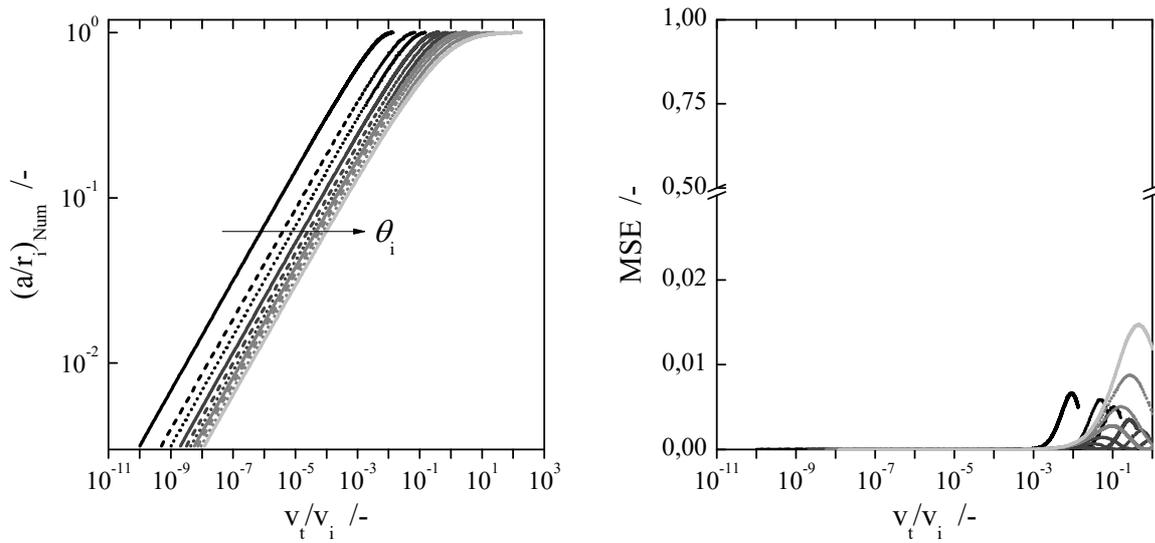


Abbildung 7.8 links: Segmenthöhe a bezogen auf den Partikelradius r_i als Funktion des Verhältnisses zwischen Tropfen- v_t und Partikelvolumen v_i in Abhängigkeit des Benetzungswinkels θ_i . Rechts: Darstellung des mittleren quadratischen Fehlers MSE in Abhängigkeit des Tropfen- zu Partikelvolumen Verhältnisses.

deren mittleres Fehlerquadrat MSE zu den numerischen Daten in Abbildung 7.8 rechts dargestellt ist

$$MSE = \frac{1}{N} \sum_{\kappa=1}^N \left(\left(\frac{a}{r_i} \right)_{Num} - \left(\frac{a}{r_i} \right)_{Approx} \right)_{\kappa}^2. \quad (7.16)$$

Während der Bereich kleiner dimensionsloser Volumina sehr gut approximiert ist, lassen sich bei größeren Volumina Abweichungen beobachten. Da umgerechnet maximal eine absolute Abweichung von 12 % auftritt, gilt die Approximation als hinreichend genau. Es sei darauf hingewiesen, dass dieser Fehler lediglich die Form des Tropfens in der folgenden Gewichtungsfunktion zur Rückverteilung der Flüssigkeit beeinflusst. Die tatsächlich vorhandenen Mengen bleiben davon unberührt. Ist der Kugelsegmentradius a bekannt, lassen sich alle weiteren geometrischen Größen auf der linken Seite in Abbildung 7.7 in Relation zum Partikelradius r_i dimensionslos bestimmen²⁵.

Für die Rückverteilung der Flüssigkeit nach dem Brückenbruch ist die Bestimmung der am Tropfen beteiligten Punkte notwendig. In Abbildung 7.7 rechts befindet sich exemplarisch der grün dargestellte Punkt innerhalb der vom Tropfen benetzten Fläche,

²⁵ Vergleiche hierzu Anhang A5.

der rote Punkt liegt außerhalb. Durch den Vergleich der Orthodrome zwischen dem *Fib.-Lat.* Punkt und dem Kontaktpunkt $b_{\Gamma,lat}$ - in Abbildung 7.7 rechts blau dargestellt - mit der Bogenlänge der benetzten Teilfläche $b_{c,ij}$ ergibt sich die Information, ob ein Punkt am Tropfen teilnimmt oder nicht. Diese lassen sich durch trigonometrische Abhängigkeiten und über die Normalenvektoren der *Fib.-Lat.* Punkte $\vec{n}_{f_{\Gamma,orient}}$ und dem Kontaktpunkt $\vec{n}_{cp_{ij}}$ berechnen

$$b_{\Gamma,lat} = r_i \cdot \arctan \frac{|\vec{n}_{cp_{ij}} \times \vec{n}_{f_{\Gamma,orient}}|}{\vec{n}_{cp_{ij}} \cdot \vec{n}_{f_{\Gamma,orient}}}, \quad (7.17)$$

$$b_{c,ij} = 2 \cdot r_i \cdot \arcsin\left(\frac{a}{r_i}\right), \quad b_{\Gamma,lat} \leq b_{c,ij}. \quad (7.18)$$

Bei bekanntem Kugelsegmentradius a ergibt sich mittels trigonometrischer Beziehungen die Position des Tropfenmittelpunktes h_0 , welcher zur Rückverteilung der Flüssigkeit heranzuziehen ist. Je größer der Abstand zwischen dem teilnehmenden *Fib.-Lat.* Punkt und der Tropfenoberfläche $d_t(\delta)$ ist, desto mehr Flüssigkeit ist entsprechend einer linearen Gewichtung im Punkt zu speichern. Der Öffnungswinkel δ zwischen dem Kontakt- und dem *Fib.-Lat.* Punkt variiert dabei entsprechend der Punktposition

$$\frac{d_t(\delta)}{r_i} = \frac{\cos(\delta)h_0}{r_i} - 1 \pm \frac{1}{r_i} \sqrt{\cos(\delta)^2 h_0^2 - h_0^2 + r_t^2}. \quad (7.19)$$

Folglich ist das nach dem Brückenbruch bekannte dimensionslose Tropfenvolumen V_t anteilig nach den Abständen zur Tropfenoberfläche $d_{t,k}$ zu verteilen

$$V_{Lat.,k} = V_t \frac{d_t}{\sum_{k=0}^{N'} d_{t,k}} \quad (7.20)$$

Exemplarischer Wassertropfen

Die Tropfenmodellierung ist anhand eines Volumenverhältnisses zwischen Tropfen und Partikel von $v_t/v_i = 0,43$ % an der Einzelpartikel exemplarisch in Abbildung 7.9 gezeigt. Im Rahmen der folgenden Simulationen stellt dieses Verhältnis ein leicht über dem Durchschnitt liegendes transferiertes Volumen dar. In Abbildung 7.9 links ist der sich ausbildende Tropfen in Abhängigkeit der pro Partikel betrachteten Speicherpunkte N' visualisiert. Mit zunehmender Anzahl an Speicherpunkten nimmt die Anzahl der am

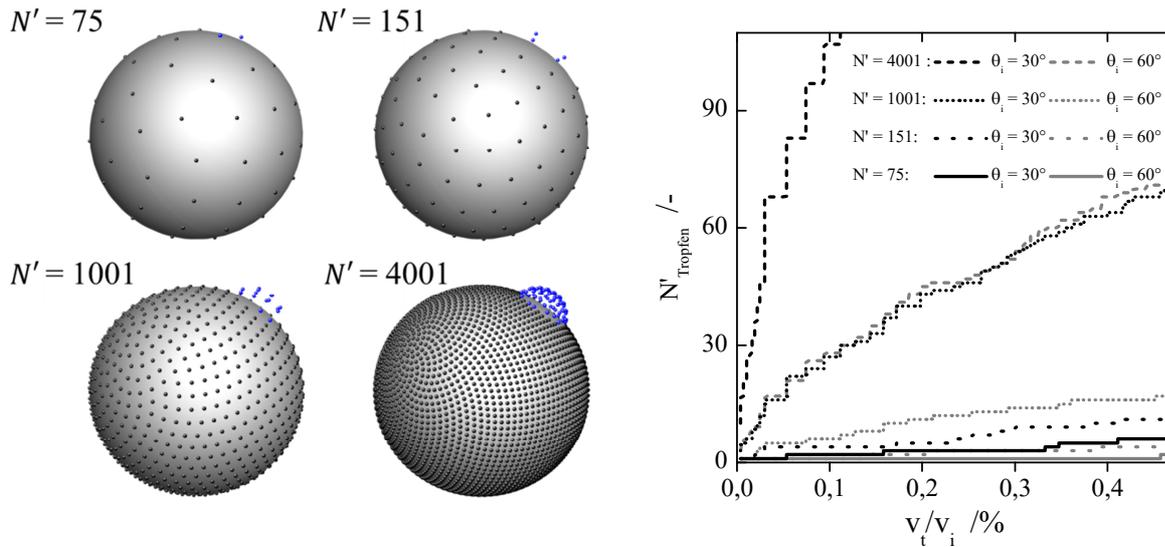


Abbildung 7.9 links: Illustration der Tropfenmodellierung nach den Gleichungen (7.12) bis (7.20) am Beispiel eines Kontaktwinkels von $\theta_i = 60^\circ$. Rechts: Die Anzahl der am Tropfen teilnehmenden Speicherpunkte $N'_{Tropfen}$ als Funktion der Gesamtzahl der Speicherpunkte N' , der Flüssigkeitsmenge v_t/v_i und des Kontaktwinkels θ_i .

Tropfen teilnehmenden *Fib.-Lat.* Punkte $N'_{Tropfen}$ und somit die Auflösung des Tropfens zu. Wie in Abbildung 7.9 rechts zu erkennen ist, hängt dies wiederum vom Kontaktwinkel ab. Bei niedrigerem Kontaktwinkel benetzt die Flüssigkeit die Partikel besser, wodurch mehr Speicherpunkte in der feuchten Teiloberfläche liegen. Gleiches gilt bei Vergrößerung des Volumenverhältnisses zwischen dem Tropfen und der Partikel. Methodenbedingt ist zu erwarten, dass die physikalische Genauigkeit mit zunehmender Anzahl an Speicherpunkten zunimmt. Da der Berechnungsaufwand mit der neuen Methode und vor allem der Zahl der diskret betrachteten Punkte pro Zeitschritt zunimmt, sind Genauigkeit und Simulationsdauer konträr zueinander. Je nach absoluter Partikelanzahl und Flüssigkeitsmenge sowie der tolerierbaren Simulationsdauer ist die Anzahl der Speicherpunkte individuell mit Berücksichtigung der minimalen Anzahl N'_{min} zu wählen. Infolge der partiellen Partikelbenetzung ist die Massenverteilung nicht mehr punktsymmetrisch zum Partikelkoordinatensystem. Dies hat wiederum ein zusätzliches Drehmoment zur Folge, ausgelöst von der Gewichtskraft des an der Partikeloberfläche haftenden Tropfens. Problematisch hierbei ist allerdings, dass ein zusätzliches Drehmoment vor oder nach der DEM-Kontaktbehandlung als alleinige Partikelvolumenkraft zu handhaben und dabei lediglich die Punkte mit freier Oberflächenflüssigkeit zu berücksichtigen

wären. Dies erfordert eine numerisch aufwendige zusätzliche Informationsspeicherung in den *Fib.-Lat.* Punkten, die aufgrund des sehr geringen Drehmoments einen nicht signifikanten Mehrwert hat. Im Vergleich zur Rollreibung ist das Drehmoment der partiellen Benetzung um ungefähr eine Größenordnung reduziert.

7.3 Modellvergleich und Validierung

Ausgehend vom aktuellen Stand der Forschung in Abschnitt 7.1 und der vorgestellten Modellierung in Abschnitt 7.2 ist der Vergleich zwischen Filmtheorie und partieller Benetzung diskutiert. Insbesondere im Hinblick auf die zunehmende Rechenzeit gilt es im Modell zur partiellen Benetzung zu evaluieren, inwiefern die Anzahl der Speicherpunkte die wesentlichen Aspekte des ursprünglichen Problems bei gleichzeitig adäquater Simulationsdauer erfasst. Daher ist zunächst die Wahl der Speicherpunkte in einer Mischtrommel bei reduzierter Partikelanzahl zu untersuchen und anschließend anhand des Mischgütevorganges und der Flüssigkeitsverteilung im DIOSNA Pharmamischer zu validieren.

7.3.1 Parameterstudie zur Anzahl der Speicherpunkte

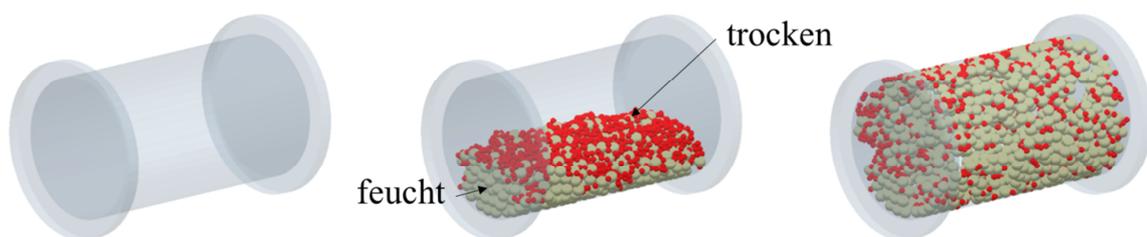


Abbildung 7.10: Untersuchungen zur Speicherpunktdichte in einer Modellmischtrommel mit reduzierter Partikelzahl. Links: Darstellung der leeren Geometrie. Mitte: Anfangszustand nach der Befüllung. Rechts: Endzustand.

In diesem Unterabschnitt wird eine im Schubregime horizontal rotierende Trommel als repräsentativer Mischprozess mit insgesamt $N_{P,i} = N_{P,j} = 1000$ Partikeln pro Fraktion betrachtet (Abbildung 7.10). Hierbei wurde auf dasselbe Partikelsystem wie in Kapitel 6 zurückgegriffen, sodass die partikulären Gewichtskräfte sowie die absoluten Kontakt- und Flüssigkeitsbrückenkräfte dieselbe Größenordnung besitzen und sich die im Rahmen

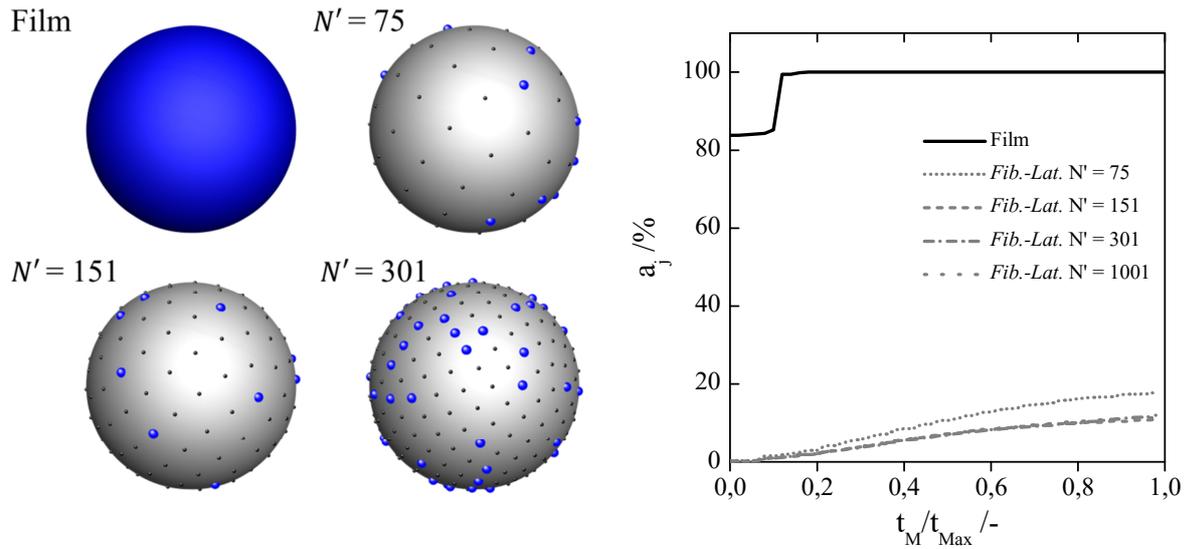


Abbildung 7.11 links: Exemplarische Illustration der teils benetzten Partikel am Ende des Mischprozesses. Rechts: Modellvergleich anhand der gemittelten anzahlmäßigen Belegung a_j als Funktion der dimensionslosen Mischzeit.

der Parameterstudie gewonnenen Erkenntnisse auf die anschließende Simulation und Validierung im DIOSNA Mischer übertragen lassen. Aufgrund der numerisch effizienten, verhältnismäßig niedrigen Partikelanzahl und der Partikeladhäsion an der Wand findet eine schnellere dispersive Vermischung statt, wodurch 10 Sekunden Simulationsdauer ausreichend sind. In Analogie zu den vorherigen Untersuchungen ist das Additiv trocken und das Füllmaterial feucht.

Vergleicht man zunächst die anzahlmäßige Belegung der Speicherpunkte a_j im Feingut als Quotient zwischen den belegten $N'_{j,belegt}$ und aller vorhandener Speicherpunkte N' im Mittel über alle Partikeln

$$a_j = \frac{\sum_{\kappa=1}^{N_{P,j}} (N'_{j,belegt})_{\kappa}}{\sum_{\kappa=1}^{N_{P,j}} (N')_{\kappa}} = \frac{1}{N_{P,j}} \sum_{\kappa=1}^{N_{P,j}} \left(\frac{N'_{j,belegt}}{N'} \right)_{\kappa} \quad (7.21)$$

zeigen sich deutliche Unterschiede zwischen beiden Modellen in Abbildung 7.11. Infolge der Befüllung sind beim Filmmodell anfänglich sehr wenige Additivpartikeln trocken. Da sich die Anzahl der Speicherpunkte auf $N' = 1$ pro Partikel beschränkt, existieren lediglich trockene oder ideal benetzte Partikeln. Mit dem Starten der Rotation und dem ersten Rutschen des Schüttguts nimmt das Additiv sprunghaft Flüssigkeit auf. Ab diesem Zeitpunkt weisen alle Partikeln eine gemittelte Belegung von $a_j = 100\%$ auf und sind

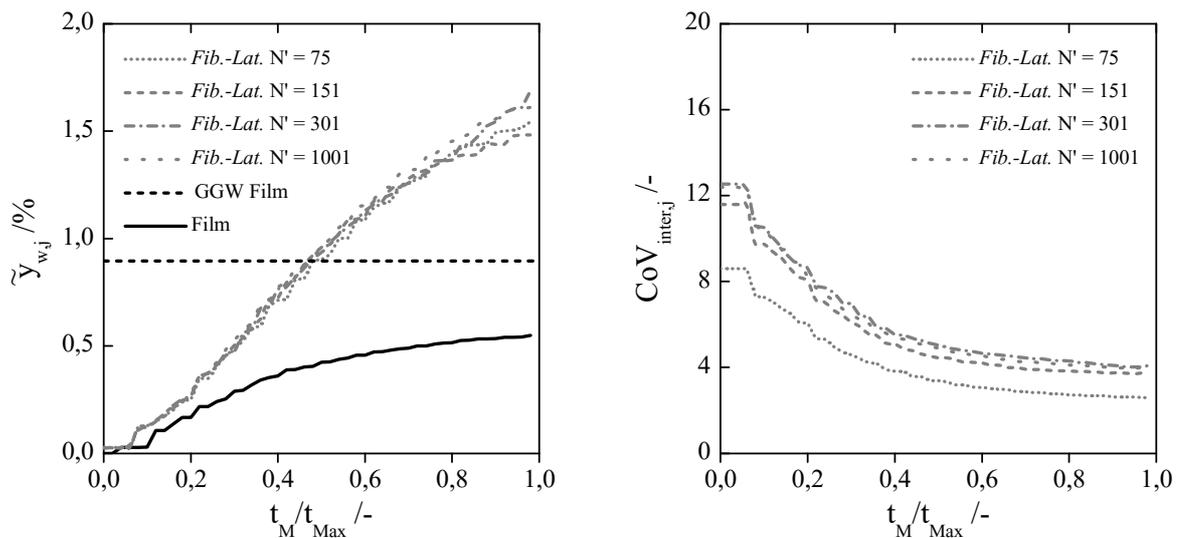


Abbildung 7.12: Vom Füllmaterial auf das Additiv übertragener massenspezifischer Anteil $\tilde{y}_{w,j}$ (links) und über alle Feingutpartikeln gemittelte Flüssigkeitsvariabilität $CoV_{inter,j}$ (rechts) als Funktion der dimensionslosen Mischzeit und variabler Speicherpunktzahl.

damit feucht. Alle Partikeln haben dann an mindestens einem Flüssigkeitsbrückenbruch teilgenommen, der Flüssigkeitstransfer ist jedoch noch nicht abgeschlossen. Die Information zur partiellen Benetzung ist im neuen Modell gegeben. Nach Beendigung des Mischprozesses verbleibt im neuen Modell der Hauptanteil der Partikeloberfläche trocken. Auffällig ist hierbei vor allem die Tatsache, dass die Speicherpunktzahl ab $N' = 151$ keine Änderung der anzahlbezogenen Belegung bewirkt.

Eine ähnliche Unabhängigkeit von der Speicherpunktzahl kann auch beim übertragenen massenspezifischen Anteil in Abbildung 7.12 links beobachtet werden. Unabhängig von der Anzahl der Speicherpunkte wird zunehmend mehr Wasser auf die ursprünglich trockene additive Komponente übertragen. Die vergleichsweise höheren Massenanteile beim *Fib.-Lat.* Modell sind dabei besonders auffällig, während das Filmmodell gegen einen stationären Endwert strebt. Aufgrund geringer Mischintensität innerhalb der Trommel und hoher Partikeladhäsion nähert sich das Filmmodell in der gewählten Mischzeit nicht ganz dem Gleichgewichtswert an. Da die Flüssigkeitsanteile zwar diskret an der Partikeloberfläche gespeichert, dennoch aber größtenteils in Flüssigkeitsbrücken gebunden sind, lässt sich kein konkretes Gleichgewicht wie im Filmmodell definieren. Unter Gleichgewicht ist dabei zu verstehen, dass kein weiterer Flüssigkeitsaustausch

zwischen den unterschiedlichen Komponenten stattfindet. An sich ist dies ein unrealistischer Zustand, da durch Partikelbewegung und Kontaktdispersion die Flüssigkeit immer wieder rückverteilt wird und sich somit ein schwankender prozessbedingter Endzustand ergibt, der nicht abgeschätzt sondern simuliert werden muss. Dies ist als methodische Verbesserung des *Fib.-Lat.* Modells zu sehen.

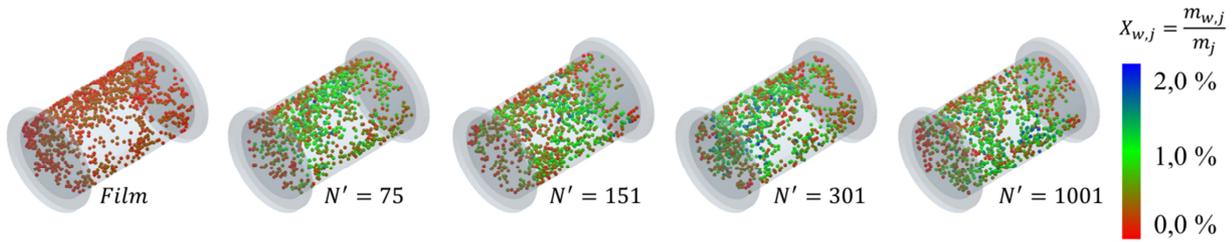


Abbildung 7.13: Visualisierung der Beladung des Additivs mit Flüssigkeit nach einer Mischzeit von 10s. Die Beladung nimmt von Rot nach Blau zu.

Beim Polymerbeschichten von Tabletten in Mischtrommeln ist es wichtig die Flüssigkeit als dünnen Film gleichmäßig zu verteilen [129]. Insbesondere bei funktionellen Beschichtungen ist die Variabilität in der Beschichtungsmasse ein wichtiges Produktkriterium [130]. Das heißt, dass nicht nur die Verteilung der Beschichtungslösung zwischen den Tabletten, sondern auch die Variabilität der Flüssigkeit CoV_{inter} auf der Oberfläche einer einzelnen Tablette von ausschlaggebender Bedeutung ist. Übertragen auf die Mischtrommel lässt sich anhand der Flüssigkeitsvariabilität $CoV_{inter,j}$ die Gleichmäßigkeit der Flüssigkeitsverteilung innerhalb der Feingutkomponente aus der quadratischen Differenz zwischen einzelner $X_{w,j}$ und mittlerer Beladung $\bar{X}_{w,j}$ beurteilen

$$\begin{aligned}
 CoV_{inter,j} &= \frac{1}{N_{P,j}} \sum_{k=1}^{N_{P,j}} (CoV_{intra,j})_k \\
 &= \frac{1}{N_{P,j}} \sum_{k=1}^{N_{P,j}} \left(\frac{\sqrt{\sigma^2}}{\bar{X}_{w,j}} \right)_k = \frac{1}{N_P} \sum_{k=1}^{N_P} \left(\frac{\sqrt{\frac{1}{N'} \sum_{l=1}^{N'} ((X_{w,j} - \bar{X}_{w,j})^2)_l}}{\bar{X}_{w,j}} \right)_k \\
 \bar{X}_{w,j} &= \frac{1}{N'} \sum_{l=1}^{N'} (X_{w,j})_l \quad (7.22)
 \end{aligned}$$

Mit fortschreitender Mischdauer nimmt die Homogenität der Flüssigkeitsverteilung unabhängig von der Anzahl der Speicherpunkte zu, was in Analogie zum Mischgütever-

lauf an der abnehmenden Flüssigkeitsvariabilität in Abbildung 7.12 rechts zu erkennen ist. Die Analyse des Einflusses der Speicherpunktzahl zeigt eine lineare Verschiebung nach oben. Die Verdoppelung der Speicherpunktdichte weist im unteren Bereich einen größeren Einfluss als im oberen Bereich auf. Eine weitere Erhöhung scheint die Beschreibung der globalen Flüssigkeitsverteilung nicht mehr signifikant zu beeinflussen. In einem größeren Gleichkornsystem zeigte Washino et al. [122] im Mischgüteverlauf eine ähnliche Sensitivität, wobei die Speicherpunkte bei bereits niedrigeren Anzahlen keinen signifikanten Einfluss mehr zeigen. Vermutlich liegt der Grund dafür in den unterschiedlichen Größenverteilungen. Auch die Visualisierung in Abbildung 7.13 verdeutlicht einen nahezu von der Speicherpunktzahl unabhängigen Verlauf der Flüssigkeitsverteilung, wenngleich die gemittelten Flüssigkeitsmengen an der Partikeloberfläche etwas stärker streuen.

Zusammenfassend lässt sich an der Parameterstudie erkennen, dass der Belegungsgrad, die Flüssigkeitsvariabilität und die übertragenen Massen ab einer kritischen Speicherpunktzahl kaum beeinflusst werden. Deutlich größer sind hingegen die modellbedingten Unterschiede zwischen vollständiger und partieller Benetzung. Auf Basis dieser Erkenntnisse lässt sich schließen, dass sich die Modellgenauigkeit mit zunehmender Speicherpunktdichte zwar verbessert, der damit verbundene deutlich erhöhte Rechenaufwand aber nicht gerechtfertigt ist. Für die folgende Simulation zum direkten Vergleich mit den experimentellen Daten wird daher auf eine Speicherpunktzahl von $N' = 75$ zurückgegriffen. Da die rotationsinduzierten Partikelbewegungen innerhalb der Mischtrommel im Vergleich zum Pharmamischer weniger intensiv sind, bleibt die Frage nach der Übertragbarkeit zwischen unterschiedlichen Mischertypen offen. Es lässt sich aber vermuten, dass die Trends im Pharmamischer ähnlich ausgeprägt sind, was aufgrund der hohen Rechenkapazitäten jedoch noch nicht nachweisbar ist.

7.3.2 Mischgüteverlauf im DIOSNA Mischer

Die Validierung des Modells erfolgt mit den in Abschnitt 6.4 verwendeten Parametern für Wasser und Glaspartikeln. Analog zu den Simulationen auf Basis des Filmmodells sei der DIOSNA Mischer mit einer Anfangsbeladung des Füllmaterials von $X_{w,i} = 5\%$ betrachtet. Experimentell verteilt sich das Wasser während eines Vormischprozesses zunächst ideal im Füllmaterial. Anschließend wird die trockene additive Komponente auf

die Schüttgutoberfläche hinzudosiert. Zur Beurteilung des Mischprozesses erfolgt auch hier die Bestimmung der relativen Standardabweichung RSD mit der in Unterabschnitt 3.1.2 vorgestellten Probenahme.

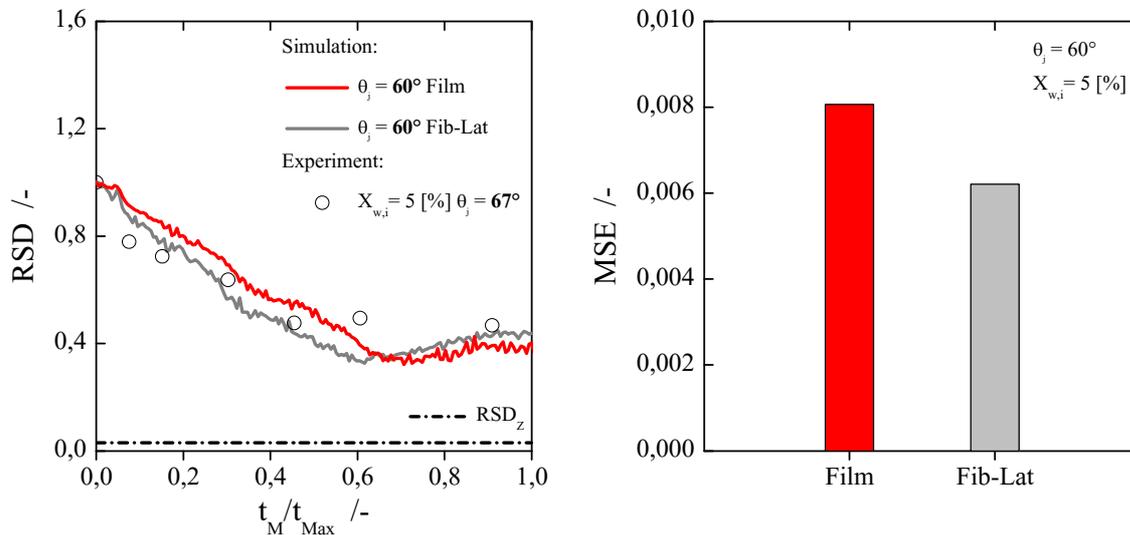


Abbildung 7.14 links: Vergleich zwischen dem Filmmodell und der diskretisierten Partikeloberfläche anhand des Mischgüteverlaufs bei 36 U/min. Rechts: Mittlerer quadratischer Fehler der Modelle.

Infolge der höheren Anzahl an trockenen Kontaktstellen, nimmt die dispersive Partikelbeweglichkeit im Rahmen der Modellierung inklusive Tropfenbildung und partieller Benetzung in Richtung der experimentellen Daten zu. Durch die Implementierung der *Fib.-Lat.* Punkte reduziert sich die mittlere quadratische Abweichung MSE in Abbildung 7.14 rechts von ca. 0,8 % auf ca. 0,6 %. Folglich verbessert das *Fib.-Lat.* Modell minimal die Simulationsgenauigkeit. In Analogie zum Filmmodell lässt sich die stochastische Homogenität bei 36 min^{-1} in der Simulationszeit von $t_{max} = 20 \text{ s}$ nicht erreichen.

7.3.3 Flüssigkeitsverteilung

Zur Beurteilung des Modellvergleichs sind neben dem Mischgüteverlauf auch die Dichteverteilung der Flüssigkeit in Abbildung 7.15 diskutiert. Da in beiden Modellen die Flüssigkeit nicht aufgelöst ist, sondern methodenbedingt als Partikeleigenschaft behandelt wird, sind die beiden unterschiedlichen Verteilungen fundiert zu hinterfragen.

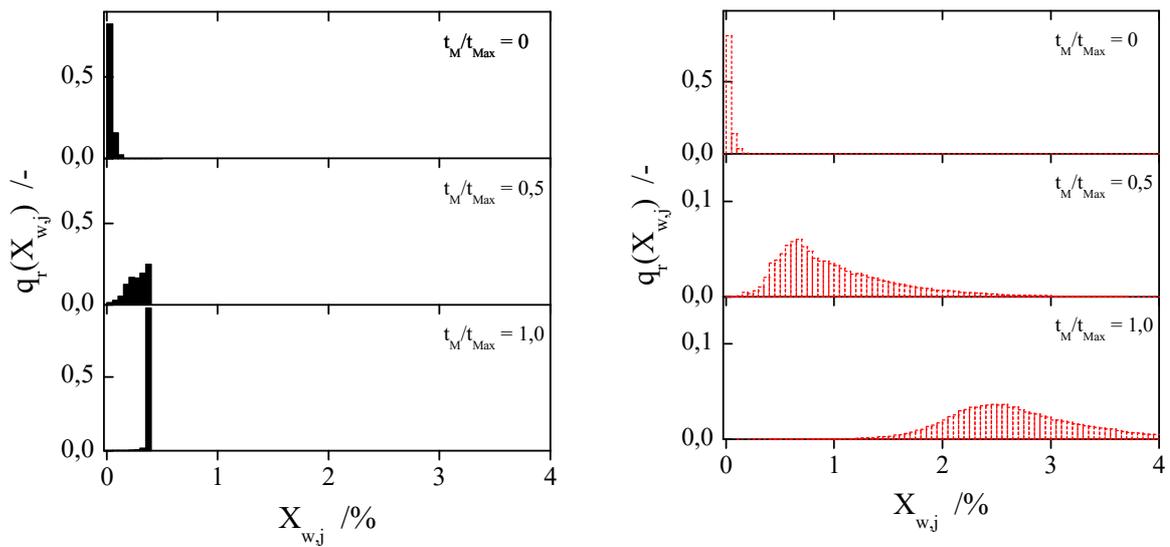


Abbildung 7.15: Relative Dichteverteilung der Partikelbeladungen des Additivs $q_r(X_{w,j})$ im Filmmodell (links) und partiell benetzt (rechts), ausgewertet zu drei verschiedenen Mischzeiten.

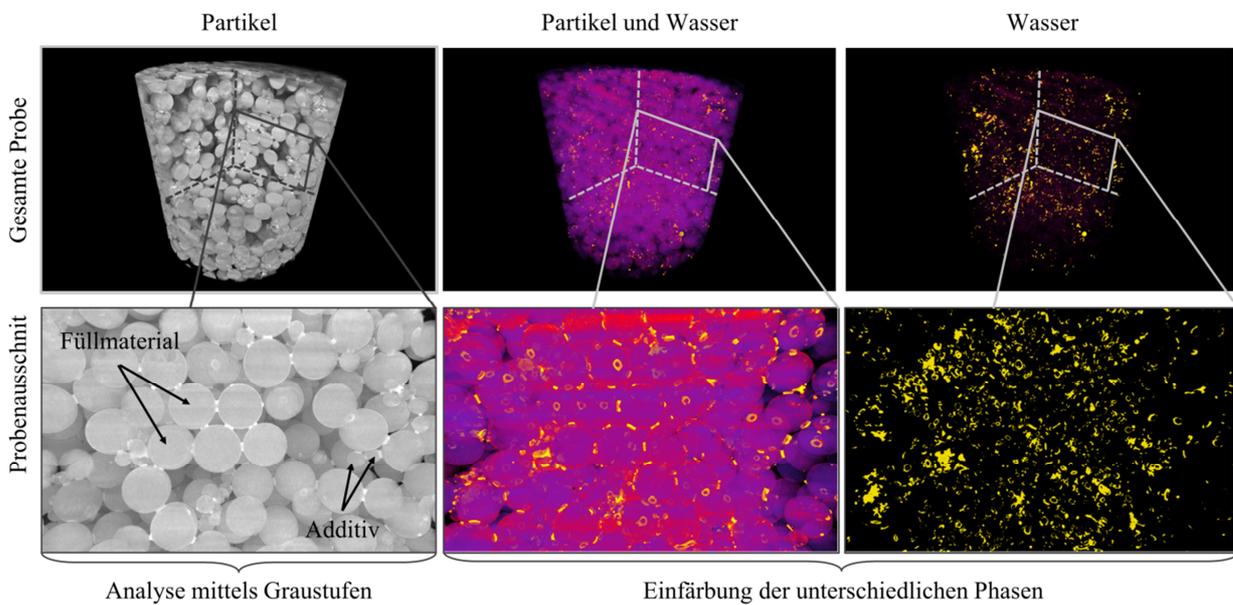


Abbildung 7.16: μ CT Aufnahme einer repräsentativen Probe²⁶. Die untersuchte Probe weist 3,2 Massenprozent Wasser und damit eine Sättigung von ungefähr 10,2 % auf.

²⁶ Die Durchführung der μ CT Experimente übernahm dankenswerterweise Herr Dipl.-Ing. Benjamin Radel.

Bei unendlich langem Mischen oder unendlich vielen Kollisionen nehmen im Filmmodell alle Partikeln des Grobguts und alle Partikeln des Feinguts denselben Endwert an. Dieser stationäre Endwert, in Abbildung 7.15 auf der linken Seite, weist auf exakt gleich große Flüssigkeitsbrückenvolumina innerhalb des gesamten Mischguts hin. Neben der Tatsache, dass die mittlere Beladung der additiven Komponente im *Fib.-Lat.* Modell stärker zunimmt, stellt sich auch eine unimodale Flüssigkeitsverteilung im Schüttgut ein. Die breitere Verteilung signalisiert, dass neben der Teilbenetzung auch die Brückenvolumina minimal streuen.

Der qualitative Vergleich durch μ CT (Mikro Computer Tomographie) Aufnahmen einer repräsentativen und „ideal“ gemischten Probe in Abbildung 7.16 untermauert diesen Befund als methodische Verbesserung. In Analogie zu den Simulationsergebnissen ist in nahezu jedem Kontaktpunkt eine Flüssigkeitsbrücke ausgebildet. Gegensätzlich zu den Filmmodellsimulationen scheinen die Partikeln allerdings keinen homogenen Flüssigkeitsfilm an der Oberfläche aufzuweisen. Dies bedeutet, dass der Großteil der Flüssigkeit direkt in den Brücken gebunden und kaum Oberflächenflüssigkeit festzustellen ist. Die dreidimensionale Darstellung des gesamten Wassers in Abbildung 7.16 auf der rechten Seite lässt einerseits vermuten, dass analog zum *Fib.-Lat.* Modell keine durchweg gleichmäßigen Brückenvolumina vorliegen. Andererseits sind aber auch teilgesättigte Bereiche zu beobachten, die sich weder vom Film- noch vom *Fib.-Lat.* Modell erfassen lassen. Unter der Annahme, dass die über den Raum verteilt vorliegende Flüssigkeit vollumfänglich in Flüssigkeitsbrücken gebunden ist, ließe sich die Verteilung des gelb dargestellten Wassers auch dahingehend interpretieren, dass sich entsprechend der Porositätsverteilung im Mischgut unterschiedlich dicht gepackte Regionen ergeben, in denen entsprechend mehr Flüssigkeitsbrücken vorliegen. Die Beschreibung dieses Zustandes kann lediglich das *Fib.-Lat.* Modell in Form der unimodalen Dichteverteilung gewährleisten.

Die 3D-Darstellung der Probe erfolgte aus den Röntgenbildern, die in verschiedenen Winkeln aufgenommen wurden. Da die Wahrscheinlichkeit, dass ein Material Röntgenquanten absorbiert, von seiner Elektronendichte abhängt, ist das Rekonstruktionsergebnis ein Graustufenbild, wobei verschiedene Graustufen unterschiedliche Elektronendichten und somit Materialunterschiede repräsentieren. Es sollte beachtet werden, dass andere Effekte, wie z. B. die Elektronenstrahlaufhärtung, ebenfalls die Graustufen beeinflussen

können. Daher sollte der Kontrast zwischen den zu trennenden Materialien groß genug sein. In der analysierten Probe gelang dies durch Zugabe von Amidotrizoesäure als Kontrastmittel. Dennoch schlugen die Bemühungen einer verlässlichen Phasentrennung zur Quantifizierung der Brückenvolumenverteilung fehl, sodass die Bilder lediglich zur qualitativen Diskussion herangezogen werden konnten. Optimierte Probenpräparation und entsprechende Bildbearbeitungsalgorithmen erscheinen aus wissenschaftlicher Sicht für zukünftige Untersuchungen wünschenswert.

Analyse der Flüssigkeit innerhalb der Proben

Als zusätzliche Möglichkeit zur Validierung steht auch die Analyse der gezogenen Proben zu Verfügung. Vorab sei angemerkt, dass nicht quantifizierbar ist, inwiefern der Probennehmer und die hohe Sensitivität der Waage im Experiment die Schwankungsbreite in Abbildung 7.17 beeinflussen. Da sich das Wasser zwischen den Schüttgutkomponenten befindet, ist die auftretende Benetzung des Probennehmers mit Wasser als experimentelle Messungenauigkeit zu werten. Unter Berücksichtigung der Messungenauigkeit ist die beobachtete experimentelle Schwankungsbreite aber auch ein Indiz für eine über die Proben breitere Flüssigkeitsverteilung als numerisch festgestellt.

Der Vergleich beider Simulationen zeigt, dass sich die Flüssigkeitsverteilung innerhalb der Proben auch durch die Modellerweiterung der partiellen Benetzung nicht signifikant geändert hat. Die mittlere Wasserbeladung innerhalb der Proben $\bar{X}(Proben)_{w,ij}$ nähert sich in beiden Simulationen mit zunehmender Mischzeit dem rechnerischen idealen Sollwert von 4,44 Ma-% an. Die experimentell beobachtete tendenzielle Abnahme der Flüssigkeit in den Probenvolumina, lässt, wie bereits in Kapitel 6.4 diskutiert, einen auftretenden perkolierenden Effekt des Wassers und die damit verbundene lokale Flüssigkeitsanreicherung am Behälterboden vermuten. Dieser Effekt ist modellbedingt numerisch nicht zu erfassen. Zusätzlich ist nicht vollständig auszuschließen, inwiefern die interpartikuläre Reibung das flüssige Wasser teilweise verdampft. Auch dieser Effekt kann die Diskrepanz zwischen Experiment und Simulation verstärken.

Da die Flüssigkeitsbrücken in der Modellierung als diskrete, lokale Flüssigkeitsverteilung gespeichert sind, tatsächlich das Wasser aber zwischen den Partikeln aufgespannt ist, kann die Methodik lediglich als numerisch effiziente Vereinfachung zur Bewertung der Flüssigkeitsverteilung herangezogen werden. Der realen Abbildung von Flüssigkeitsver-

teilung sind daher zukünftig weiterführende Arbeiten mittels gekoppelten *Diskreten Elemente* und *Volume of Fluid Methode* [131] angedacht, um auch die Flüssigphase vollständig aufzulösen. Nachteilig hierbei ist wiederum die niedrige Gesamtpartikelanzahl, sodass nicht der gesamte Mischprozess, sondern repräsentative periodische Segmente betrachtet werden müssen.

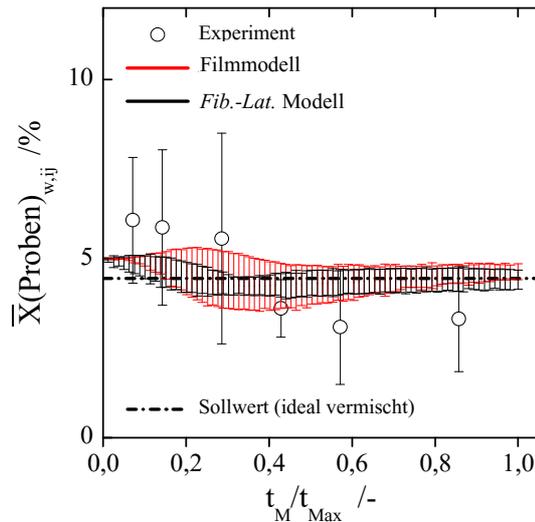


Abbildung 7.17: Gemittelte Wasserbeladung des Schüttguts innerhalb der Proben. Die Fehlerbalken stellen die Standardabweichung der 16 Proben dar.

7.4 Fazit und Ausblick

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass die neue Methode inklusive partieller Benetzung eine Modellverbesserung infolge höherer Genauigkeit darstellt. Nachteilig stehen dieser die rechenintensiven Kosten gegenüber, sodass sich Parameterstudien hinsichtlich der Speicherpunktdichte nur innerhalb einer Modellmischtrommel durchführen lassen und ausführliche Variationen der Betriebsparameter im Pharmamischer offen bleiben. Durch die teilweise trockenen Kontaktstellen des Additivs im neuen Modell zeigt sich ein stärker ausgeprägter perkolierender Segregationsmechanismus als im Filmmodell. Diese Beobachtung deckt sich weitestgehend mit den experimentellen Resultaten. Die zur qualitativen Beurteilung der Flüssigkeitsverteilung herangezogenen μ CT Aufnahmen untermauern die verbesserte Genauigkeit, wenngleich die dynamische Benetzung [132] oder gar Flüssigkeitsströme [119] nicht berücksichtigt sind. Zur

Verbesserung des weiteren Verständnisses der Flüssigkeitsverteilung sind fortführend Flüssigkeitsbrückenvolumenverteilungen zu vergleichen, wenngleich die experimentelle Quantifizierung anhand der μ CT Aufnahmen weiterer Bildbearbeitungsalgorithmen und optimierter Probenpräparation bedarf.

Kapitel 8

Zusammenfassung und Ausblick

(1) Verständnisvertiefung des Segregationsverhaltens von trockenen Mischungskomponenten durch Ableitung charakteristischer Koeffizienten

Die Partikelgröße diene als wesentliches Unterscheidungsmerkmal zwischen der additiven Komponente und dem Füllmaterial. Infolge der größenabhängigen Partikelbeweglichkeiten perkoliert das ursprünglich oben positionierte feinere Additiv durch die Schüttgutmatrix des größeren Füllmaterials und sammelt sich vermehrt am Mischbehälterboden an. Die Ergebnisse zeigen generell, dass der perkolierende Segregationsmechanismus stark vom Partikelgrößenverhältnis abhängt, aber auch durch die Betriebsdrehzahl beeinflusst wird. Ein größerer Unterschied in der Partikelgröße führt zu einer stärker ausgeprägten Perkolation, der auch eine Drehzahlsteigerung nicht vollständig entgegenwirken kann.

Zur Charakterisierung des Misch- und Segregationsverhaltens standen hauptsächlich der Mischgüteverlauf im Fokus, da dieser als verknüpfende Größe sowohl experimentell als auch im Rahmen der DEM-Simulationen Rückschlüsse zum zeitabhängigen Homogenitätszustand liefert. Es wurde ersichtlich, dass neben der Drehzahl und des Partikelgrößenverhältnisses auch eine Abhängigkeit von der Geometrie des Mischwerkzeugs auf die Mischgüte besteht. Je nach Winkelstellung der Mischwerkzeugflügel ändert sich der Homogenitätszustand, bedingt durch die unterschiedlich ausgeprägte Materialansammlung am Behälterboden. Während beim konventionellen Mischwerkzeug mit 45°-Flügelstellung hauptsächlich eine Akkumulation des Feinguts im Bereich zwischen Mischwerkzeug und Behälterwand stattfindet, verschiebt die Geometrievaryation das

Additiv im Wesentlichen in den Bereich vor den Mischwerkzeugflügeln. Dies ist insofern verfahrenstechnisch relevant, da sich neben der vornehmlich axial stattfindenden Segregation auch eine radiale Verarmung des Additivs nahe der Mischwerkzeugachse ausprägt. Eine Drehzahlerhöhung kann der radialen Verarmung nur minimal entgegenwirken, während eine leicht verbesserte Mischgüte beim Einsatz des $67,5^\circ$ Mischwerkzeug zu beobachten ist. Zurückzuführen ist dies einerseits auf die radialen und tangentialen Partikelgeschwindigkeiten, aber hauptsächlich auf die axialen Geschwindigkeitsprofile, die infolge der zunehmenden Fluidisierung stärker variieren.

Durch Adaption einer Markow-Kette gelang die Lösung der eindimensionalen, partiellen Fokker-Planck Differentialgleichung und damit die Modellierung des Mischgüteverlaufs in Abhängigkeit charakteristischer Dispersions- und Transportkoeffizienten auch im diskontinuierlichen Mischapparat. Der Dispersionskoeffizient beschreibt als Flächengeschwindigkeit, wie schnell sich die Konzentration komponentenspezifisch verteilt, während der Transportkoeffizient großräumige Partikelbewegungen als Geschwindigkeit für die selektive Anreicherung am Behälterboden kennzeichnet. Somit beschreiben die Koeffizienten nicht nur den Homogenitätszustand am Ende, sondern auch den Verlauf des Mischprozesses. Die annähernd lineare Zunahme der Dispersionskoeffizienten bei kaum verändertem Transportkoeffizienten macht deutlich, dass eine Drehzahlsteigerung bessere Endhomogenitäten bei gleichzeitig kürzeren Mischzeiten ergibt.

Aufgrund der Tatsache, dass die perkolierende Segregation hauptsächlich axial stattfindet, bieten die eindimensionalen Koeffizienten die Möglichkeit experimentell und numerisch bestimmte Mischgüteverläufe zu verknüpfen. Mit Verringerung der Partikelgröße bei sonst gleich bleibenden Simulationsbedingungen ist zu erkennen, dass sowohl die Dispersionskoeffizienten als auch die Transportkoeffizienten linear mit der Partikelgröße bei gleichbleibendem Partikelgrößenverhältnis abnehmen. Die Abnahme der Koeffizienten ist dabei maßgeblich von der Betriebsdrehzahl und vermutlich auch von weiteren, nicht untersuchten Parametern, wie dem Füllgrad, abhängig. Demzufolge sind bei feineren Pulvern deutlich niedrigere dispersive und konvektive Partikelbeweglichkeiten zu beobachten, wodurch höhere Prozesszeiten einhergehen. Die Dispersions- und Transportkoeffizienten bieten somit geeignete Kenngrößen, um anhand weniger Simulationen Prognosen für technisch relevante Pulver abzuleiten, wenngleich diese Aussage auf kugelförmige und freifließende Mischungskomponenten mit geringem Partikelgrößenunterschied beschränkt ist.

(2) *Modellierung und Simulation des Mischprozesses von trockenen und feuchten Schüttgütern*

Erweiterte Untersuchungen von Feststoffmischprozessen zwischen trockenen und feuchten Mischungskomponenten, zeigen eine Reduktion der relativen Partikelbeweglichkeit infolge der Wechselwirkung zwischen fluider und partikulärer Phase. Je nach Materialeigenschaften und Betriebsparameter sind teilweise bessere Homogenitäten aber auch ein Wechsel im Segregationsmechanismus festzustellen.

Durch numerisches Lösen der Young-Laplace Gleichung gelang es ein neues Modell zur Beschreibung der Flüssigkeitsbrückenkraft, der Bruchdistanz und des Flüssigkeitstransferverhältnisses abzuleiten, welches zur numerischen Untersuchung mittels DEM-Simulationen herangezogen wurde. Hierbei stand nicht die Verbesserung bestehender Modelle im Fokus, sondern eine zwingend erforderliche Erweiterung, um auch unterschiedlich benetzende Materialien numerisch untersuchen zu können. Die lokale Ausbildung inhomogener Materialansammlung zeigen, dass der Mischprozess auch als Funktion der Benetzungseigenschaften zu verstehen ist. Nicht nur die DEM-Simulationen, sondern auch die experimentellen Untersuchungen mit feineren Partikelkollektiven verdeutlichen, dass zwei Komponenten mit identischen, sehr niedrigen Kontaktwinkeln schwieriger homogen zu vereinigen sind, als bei vorliegendem Kontaktwinkelunterschied. Die Simulationen veranschaulichen, dass dies teilweise an der inhomogenen Materialansammlung hinter den Mischwerkzeugflügeln aber auch an der Partikelhaftung an der Mischbehälterwand liegt. Eine Erhöhung der Drehzahl kann den inhomogenen Materialansammlungen entgegenwirken und somit zu einer Verbesserung des Mischprozesses beitragen.

Bei den Untersuchungen zum Einfluss der Flüssigkeitsmenge ergaben sich leichte Diskrepanzen zwischen Simulation und Experiment. Während simulativ nahezu kein Einfluss der absoluten Menge zu beobachten ist, stellt sich experimentell eine für den Mischprozess optimale Flüssigkeitsmenge heraus. Demgegenüber konnte im Rahmen der experimentellen Validierung gezeigt werden, dass die simulierten Mischgüteverläufe im trockenen und teilweise auch im feuchten sehr gut mit den experimentellen Ergebnissen überstimmen. Schwächen sind lediglich bei der Simulation mit großem Kontaktwinkelunterschied festzustellen. Die Abweichung unter Variation der Flüssigkeitsmenge und die Abweichung bei nicht ideal benetzenden Materialien liegt darin begründet, dass das simulativ angenommene Filmmodell eine vereinfachte Flüssigkeitsverteilung wiedergibt.

(3) Methodenverbesserung durch Implementierung der partiellen Partikelbenetzung

Im Rahmen der Filmmodellmodellierung ist die vollständige Partikelbenetzung eine grundlegende Annahme, auch wenn nicht ideal benetzende Partikelkollektive zum Einsatz kommen. Die gängigen Flüssigkeitsbrückenmodelle gehen von einer vollständigen Partikelbenetzung aus oder vernachlässigen, dass sich die Mischungskomponenten in ihrem Kontaktwinkel unterscheiden können. Nach einem Flüssigkeitsbrückenbruch verbleiben an der Partikel haftende Tropfen, deren Größe und Form von den Eigenschaften der Partikeloberfläche und der Grenzflächenspannung abhängen.

Durch Einführen der Fibonacci-Lattice Diskretisierungsmethode gelang es eine partielle Partikelbenetzung inklusive Tropfenbildung auf der Partikeloberfläche zu realisieren. Der Vergleich mit dem gängigen Filmmodell zeigt auf Basis des Mischgüteverlaufs eine grundsätzliche Modellverbesserung. Zusätzlich gelang es mit der eingeführten Diskretisierungsmethode eine unimodale Flüssigkeitsverteilung abzubilden, sodass neben der Teilbenetzung auch die Brückenvolumina variieren. Die zur qualitativen Beurteilung der Flüssigkeitsverteilung herangezogenen μ CT Aufnahmen untermauern die verbesserte Genauigkeit, wenngleich eine quantitative Bildauswertung hinsichtlich der Brückenvolumenverteilung zukünftig ein noch besseres Prozessverständnis liefern könnte.

Aufgrund der hohen Rechenkapazitäten, die die Fibonacci-Lattice Diskretisierungsmethode erfordert, ließen sich umfangreiche Parameterstudien im betrachteten DIOSNA Mischer nicht durchführen, sodass die Frage offen bleibt, ob sich die experimentell beobachtete Abhängigkeit der absoluten Flüssigkeitsmenge mit dem neuen Modell erfassen ließe. Untersuchungen zur Sensitivität der Speicherpunktdichte sind daher auf eine Mischtrommel mit reduzierter Partikelanzahl übertragen, wobei kein signifikanter Einfluss auf die gemittelte anzahlmäßige Belegung und den übertragenen Massenanteil ausgemacht werden kann, sofern die vom Partikelgrößenverhältnis abhängige minimale Punkteanzahl nicht unterschritten wird. In Abhängigkeit der Speicherpunktzahl sind nach zehn Sekunden Prozesszeit in der Mischtrommel zwischen 12 und 17 % der Oberfläche mit Flüssigkeit belegt.

Ausblick für zukünftige Arbeiten

Die hier diskutierten Ergebnisse sind auf den Flüssigkeitsbrückenbereich beschränkt. Speziell beim Dosieren von Flüssigkeiten in bewegten Schüttgütern wie beispielsweise in Rückstandstrocknern oder in Knetmischprozessen treten auch häufig teilgesättigte

Bereiche auf, die mit Hilfe der DEM noch nicht simuliert werden können. Dies liegt daran, dass die DEM jeden Partikelkontakt separat behandelt, teilgesättigte Bereiche aber grundsätzlich mehrere Partikeln umfassen. Zur Beschreibung dynamischer kapillarer Mehrpartikelkontakte ist daher ein mehrskaliges Modell zu entwickeln. Mit gekoppelter CFD-DEM wäre es denkbar die Benetzung einer Vielzahl an teilgesättigten Partikelkonfigurationen auf der Mikroskala zu simulieren, um daraus Kraftmodelle für die Implementierung in der DEM abzuleiten. Problematisch ist hierbei allerdings, dass sich die auf die Partikeln wirkende Kraft als Funktion der umliegenden Partikeln ergibt. Hierfür wäre eine zusätzliche Partikelclusterdetektion in Anlehnung an die Kontaktdetektion vorgeschaltet zur eigentlichen Kontaktkraftberechnung zu entwickeln. Die Anteile der partiell benetzten Partikeln ließen sich wiederum mit der diskutierten *Fib.-Lat.* Diskretisierungsmethode abbilden.

Fortführend wäre die *Fib.-Lat.* Diskretisierungsmethode in Kombination mit der DEM auch dahingehend nutzbar, um Rauigkeitsverteilung vorzugeben, die das Verhalten beliebig geformter Partikeln genauer abbilden könnten. Denkbar wäre auch das Bewegungsverhalten von anisotropen elastisch-plastischen Kontakteigenschaften zu analysieren, indem Feder- und Dämpfungskonstanten lokal über der Partikeloberfläche verteilt werden.

Anhang

A1: Experimentell bestimmte Mischgüteverläufe im Trocknen.

Aus Gründen der Übersichtlichkeit sind die in Kapitel 4 experimentell bestimmten Mischgüteverläufe hier im Anhang A1 dargestellt. Die Mischgüteverläufe lassen sich mit der Fokker-Planck Gleichung beschreiben, indem durch Variation der Dispersions- und Transportkoeffizienten das kleinste Fehlerquadrat zwischen Experiment und Modell gesucht wird. Hierdurch zeigt sich die gute Approximation der Fokker-Planck Gleichung in beiden experimentellen Untersuchungen. Die sich hieraus ergebenden Dispersions- und Transportkoeffizienten sind in Abbildung 4.18 auf Seite 60 dargestellt sind.

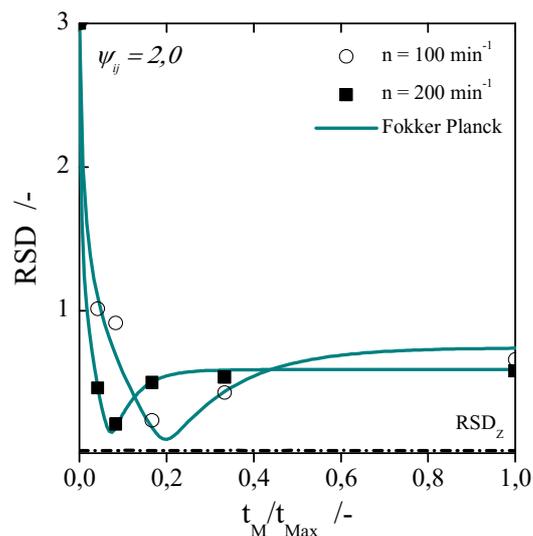


Abbildung A1: Experimentell bestimmter Mischgüteverlauf bei zwei unterschiedlichen Drehzahlen und Modellanwendung nach Fokker-Planck zur Bestimmung der Dispersions- und Transportkoeffizienten. Im Anfangszustand sind 10 % der Schüttguthöhe mit Additivpartikeln bedeckt. Die additive Komponente hat eine mittlere Partikelgröße von $d_{p,50} \approx 135 \mu\text{m}$ und das Füllmaterial von $d_{p,50} \approx 272 \mu\text{m}$. Die maximale Mischzeit beträgt 20 s und RSD_z den Grenzfall der stochastischen Homogenität nach Gleichung (3.4).

Analog zu den Simulationsergebnissen verdeutlicht Abbildung A1 den perkolierenden Segregationsmechanismus. Zu langes Mischen führt zu einem inhomogeneren Endzustand als kurzzeitiges Prozessieren. Im Falle der höheren Drehzahl von 200 min^{-1} Mischzeit zeigt sich eine vergleichsweise minimal bessere Endhomogenität.

Gegensätzlich zu den Simulationen kann experimentell die parallel auftretende radiale Segregation, die durch Verarmung des Feinguts entlang der Mischwerkzeugachse auftritt, nicht festgestellt werden.

A2: Zusatzsatzinformationen zur Regressionsanalyse nach Gleichung (5.15)

Aufgrund der gewählten exponentiellen Basisfunktion in der Regressionsanalyse ist Gleichung (5.15) unbeschränkt. Im Falle eines Partikelabstandes von $S = 0$ strebt $F_B \rightarrow \infty$ für $V \rightarrow 0$. Da unendlich große Kräfte nicht auftreten können, ist abzuschätzen, inwiefern die gefundene empirische Gleichung Instabilitäten oder gar unrealistische Ergebnisse verursachen könnte. In Abbildung A2 ist daher die monotone Zunahme der dimensionslosen Flüssigkeitsbrückenkraft für kleiner werdende Volumina bei einem Partikelabstand von $S = 0$ dargestellt.

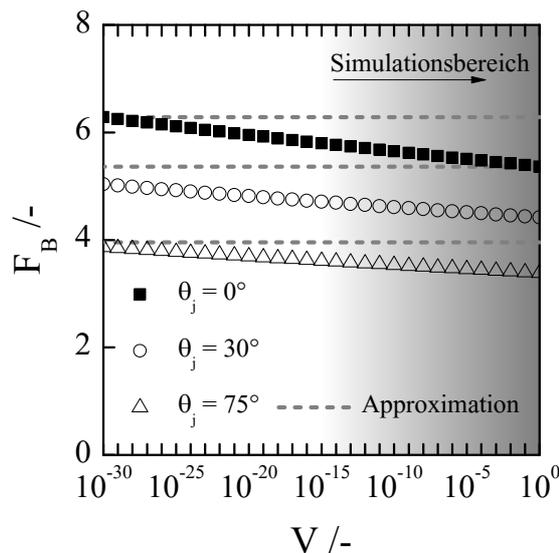


Abbildung A2: Die dimensionslose Flüssigkeitsbrückenkraft F_B ist eine Funktion des dimensionslosen Volumens V . Die Betrachtung erfolgt für den Grenzfall sehr kleiner Volumina in der Regressionsgleichung (5.15) für variable Kontaktwinkel am Additiv θ_j .

Bei dem am häufigsten im Rahmen dieser Arbeit betrachteten Partikelsystem mit reduziertem Radius von $r_{ij} = 0,613\text{mm}$ stellt ein dimensionsloses Volumen von $V = 1,296 \cdot 10^{-25}$ den absoluten physikalischen Grenzfall dar. Bei diesem Volumen bestünde die Flüssigkeitsbrücke im Falle von Wasser aus einem einzigen Molekül. Im Rahmen der Regressionsanalyse ist daher eine gezielte Annäherung der empirischen Funktion an die toroidale Approximation mit abnehmendem Volumen umgesetzt. Bedingt durch das Kugelsegmentmodell (siehe Kapitel 6) sind dimensionslose Flüssigkeitsbrücken mit kleineren Volumen als $V = 10^{-5}$ bis $V = 10^{-6}$ statistisch gesehen äußerst unwahrscheinlich. Im Falle besonders niedriger absoluter Flüssigkeitsmengen und einer Aneinanderreihung vieler Kontakt Ereignisse zwischen der ursprünglich trockenen additiven Komponente wäre auch ein minimales Volumen im Bereich von $V = 10^{-10}$ möglich. Im Rahmen der durchgeführten Simulationen konnten solch niedrigere Volumina in keinem Fall beobachtet werden. Demzufolge hat die nicht vorhandene Beschränktheit der Regressionsformel keinen Einfluss auf das numerische Simulationsergebnis.

A3: Erläuterungen zur Beladung der Partikeln und zu den Massenanteilen

Da in den experimentellen und numerischen Untersuchungen unterschiedliche Möglichkeiten zur Darstellung der wissenschaftlichen Sachverhalte existieren, sind unterschiedliche Auswertemethoden der Flüssigkeitsverteilung gezeigt (vergleiche Abbildung 6.11 und Abbildung 6.16). In Bezug zur gewählten Symbolik ist darauf hingewiesen, dass ein Großbuchstabe immer dimensionslose Größen beschreibt, während Kleinbuchstaben dimensionsbehaftet sind. Zur Unterscheidung von Massenanteil (Kleinbuchstabe) und Beladung (Großbuchstabe) sei hierauf aber verzichtet. Der mit Kleinbuchstabe dargestellt Massenanteil ist demzufolge auch dimensionslos. Die auf den gesamten Feststoff \tilde{m}_{ij} bezogene Beladung $\bar{X}_{w,ij}$ ergibt sich aus den Gesamtmassen des Füllstoffs \tilde{m}_i und des Additivs \tilde{m}_j

$$X_{w,i} = \frac{m_{w,i}}{m_i} , \quad X_{w,j} = \frac{m_{w,j}}{m_j} , \quad (\text{A.3.1})$$

$$\tilde{X}_{w,i} = N_{P,i} \bar{X}_{w,i} = \sum_{\kappa=1}^{N_{P,i}} X_{w,i}, \quad (\text{A.3.2})$$

$$\bar{X}_{w,ij} = \frac{\tilde{m}_{w,ij}}{\tilde{m}_{ij}} = \frac{\tilde{m}_{w,ij}}{\tilde{m}_i + \tilde{m}_j}, \quad (\text{A.3.3})$$

worin $\tilde{m}_{w,ij}$ die gesamte Flüssigkeitsmenge beschreibt. Die Gesamtmassen \tilde{m}_i und \tilde{m}_j ergeben sich aus der Summe der Einzelpartikelmassen m_i und m_j ,

$$\tilde{m}_i = \sum_{\kappa=1}^{N_{P,i}} m_i, \quad \tilde{m}_j = \sum_{\kappa=1}^{N_{P,j}} m_j, \quad (\text{A.3.4})$$

wobei die Anzahl der Partikel N_p je nach betrachtetem Raum (Mischbehälter oder Probenvolumen) variieren kann. In den Simulationen lässt sich wiederum die flüssige Gesamtmasse $\tilde{m}_{w,ij}$ auf die beiden Mischungskomponenten $\tilde{m}_{w,i}$ und $\tilde{m}_{w,j}$ verteilen

$$\tilde{m}_{w,ij} = \tilde{m}_{w,i} + \tilde{m}_{w,j}. \quad (\text{A.3.5})$$

Die Gesamtmasse \tilde{m}_{ij} der Feststoffe resultiert durch Summation

$$\tilde{m}_{ij} = \tilde{m}_i + \tilde{m}_j. \quad (\text{A.3.6})$$

Mit den Gleichungen (A.3.3) und (A.3.6) lässt sich die Beladung in den entsprechenden Massenanteil umrechnen

$$\bar{x}_{w,ij} = \frac{\tilde{m}_{w,ij}}{\tilde{m}_i + \tilde{m}_j + \tilde{m}_{w,ij}}. \quad (\text{A.3.7})$$

In den Diagrammen in Kapitel 6 und 7 sind die teils unterschiedlichen Anfangsbeladungen durch

$$X_{w,i} = \frac{m_{w,i}}{m_i} \quad (\text{A.3.8})$$

gekennzeichnet. In diesem Fall ist die Beladung lediglich auf das anfänglich feuchte Füllmaterial bezogen. Je nachdem, ob ein Teil der Flüssigkeit auf den Feststoff oder auf die gesamte Flüssigkeitsmenge bezogen wird, ist zwischen den Buchstaben x und y zu

unterscheiden. Entsprechend ist in Abbildung 6.11 der massenbezogene Flüssigkeitsanteil dargestellt

$$\tilde{y}_{w,j} = \frac{\tilde{m}_{w,j}}{\tilde{m}_{w,i} + \tilde{m}_{w,j}} = \frac{1}{\tilde{m}_{w,ij}} \tilde{m}_{w,j} = \frac{1}{\tilde{m}_{w,ij}} \sum_{\kappa=1}^{N_{P,j}} m_{w,j}, \quad (\text{A.3.9})$$

$$y_{w,j} = \frac{1}{\tilde{m}_{w,ij}} m_{w,j}. \quad (\text{A.3.10})$$

A4: Herleitung der Korrekturfunktion des Kugelsegmentmodells

Nach Abbildung A3 auf der linken Seite ergibt sich der Überlappungswinkel $\delta'_{U,j}$ aus den definierten Segmentwinkeln α'_j , β'_j und dem Achsenwinkel ζ'_j

$$\delta'_{U,j} = \alpha'_j + \beta'_j - \zeta'_j. \quad (\text{A.4.1})$$

Da der Überlappungswinkel $\delta'_{U,j}$ von den einzelnen Partikelradien abhängt sind die Partikelgrößenverhältnisse ψ folgendermaßen definiert:

$$\psi_{ij} = \frac{r_i}{r_j}, \quad \psi_{jk} = \frac{r_j}{r_k}, \quad \psi_{ik} = \frac{r_i}{r_k} = \psi_{ij} \cdot \psi_{jk}, \quad (\text{A.4.2})$$

wobei ψ_{ik} das größte Verhältnis beschreibt. Mit der Normierung $r_j = 1$ folgt:

$$\alpha' = \arcsin\left(\frac{r_i}{1 + r_i}\right) = \arcsin\left(\frac{\psi_{ik}}{\psi_{jk} + \psi_{ik}}\right), \quad (\text{A.4.3})$$

$$\beta' = \arcsin\left(\frac{r_k}{1 + r_k}\right) = \arcsin\left(\frac{1}{\psi_{jk} + 1}\right), \quad (\text{A.4.4})$$

und

$$\zeta' = \arccos\left(\frac{\psi_{ik}\psi_{jk} + \psi_{jk}^2 - \psi_{ik} + \psi_{jk}}{(1 + \psi_{jk})(\psi_{jk} + \psi_{ik})}\right). \quad (\text{A.4.5})$$

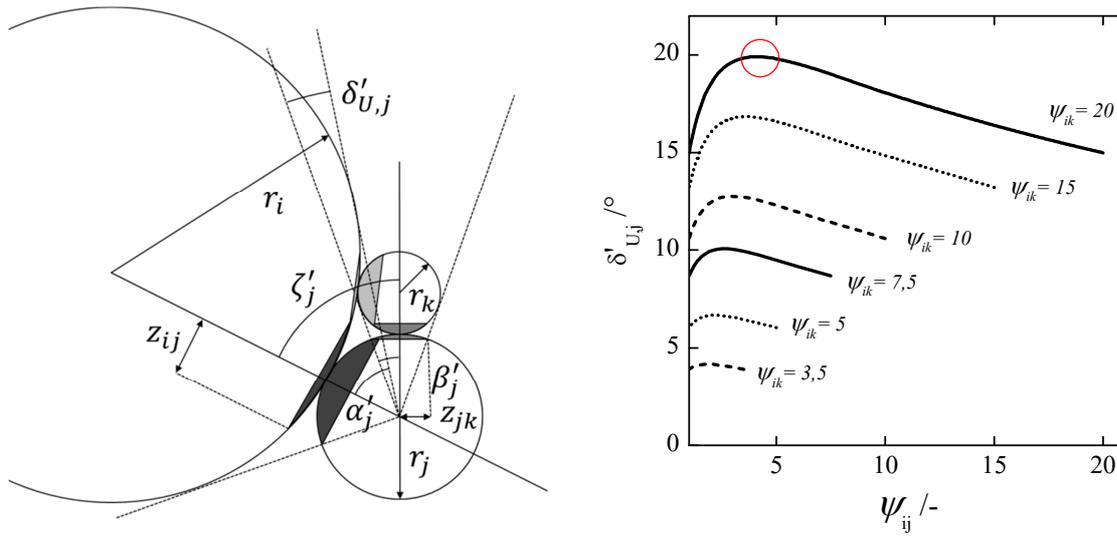


Abbildung A3 links: Zweidimensionale Darstellung der geometrischen Abmessungen und Winkel α' , β' und ζ' , die sich am größten Überlappungswinkel $\delta'_{U,j}$ ergeben. Rechts: Überlappungswinkel $\delta'_{U,j}$ als Funktion der Partikelgrößenverhältnisse.

Eingesetzt folgt der Überlappungswinkel in Abhängigkeit der Partikelgrößenverhältnisse ψ_{ik} und ψ_{jk}

$$\delta'_{U,j} = \arcsin\left(\frac{\psi_{ik}}{\psi_{jk} + \psi_{ik}}\right) + \arcsin\left(\frac{1}{\psi_{jk} + 1}\right) - \arccos\left(\frac{\psi_{ik}\psi_{jk} + \psi_{jk}^2 - \psi_{ik} + \psi_{jk}}{(1 + \psi_{jk})(\psi_{jk} + \psi_{ik})}\right). \quad (\text{A.4.6})$$

Da die Problematik im Gegensatz zum DEM typischen Partikel-Partikel auf einem multiplen Partikelkontakt basiert, ist die Beschreibung durch mehrere Größenverhältnisse notwendig. In polydispersen Systemen charakterisiert ψ_{ik} den maximal auftretenden Größenunterschied. Betrachtet man exemplarisch $\psi_{ik} = 20$, zeigt sich in Abbildung A3 auf der rechten Seite ein maximaler Überlappungswinkel bei $\psi_{ji} = \sqrt{20} \approx 4,47$, illustriert durch eine kreisrunde Umrandung. Das bedeutet, dass der größte Fehler immer dann auftritt, wenn drei Partikeln in gleicher Größenrelation zueinander stehen. Zur Vermeidung dieses Fehlers sind die Kugelsegmentradien z_{ij} und z_{jk} durch einen Korrekturfaktor k_f zu verkleinern (siehe Gleichung (7.10)). Dieser ergibt sich durch die Bedingung eines verschwindenden Überlappungswinkels $\delta'_{U,j} = 0$

$$0 = \alpha' + \beta' - \zeta'. \quad (\text{A.4.7})$$

Einsetzen und Umformen führt auf den Zusammenhang zwischen Korrekturfaktor und Größenverhältnissen in Gleichung (7.11). Es gilt zu beachten, dass das Größenverhältnis zwischen Partikeln i und k grundsätzlich größer ist als das zwischen i und j . Die Partikel j hat demnach immer einen Partikelradius der im Betrag zwischen dem der anderen beiden Partikeln liegt. Für die Anwendung der Korrekturfunktion ist daher das in der Partikelgrößenverteilung maximal auftretende Größenverhältnis zwischen größter und kleinster Partikel an der Stelle ψ_{ik} einzusetzen ist. Je nach Größenunterschied des in der DEM behandelten Partikelkontakts ergibt sich der korrespondierende Korrekturfaktor.

A5: Geometrische Abhängigkeiten bei der Tropfenmodellierung

Da es nicht möglich ist, die geometrischen Abhängigkeiten im Rahmen der Tropfenmodellierung analytisch exakt anzugeben, ist es notwendig die Gleichungen (7.12) bis (7.14) miteinander zu verknüpfen und mittels Newton Verfahren zur Nullstellsuche zu lösen (siehe Abbildung A4). Umformung ergibt die Kugelsegmenthöhe des Tropfens h_t als Cardanische Formel die eine reelle Lösung wiedergibt. Anschließend lässt sich der Tropfenradius bestimmen. Die Kugelsegmenthöhe h_i ist solange zu variieren, bis der definierte Kontaktwinkel mit dem berechneten übereinstimmt. Der hierdurch für unterschiedliche Volumina und Kontaktwinkel generierte Datensatz ist in Abbildung 7.7 auf der linken Seite gezeigt und stellt die Basis für die Näherungsfunktion in Gleichung (7.15). Mithilfe dieser Approximation ist auf die aufwendige numerische Berechnung im Partikelkontakt zu verzichten und die Tropfenform über die in Tabelle A1 gezeigten geometrischen Abhängigkeiten dimensionslos mit Bezug auf den jeweiligen Partikelradius zu implementieren.

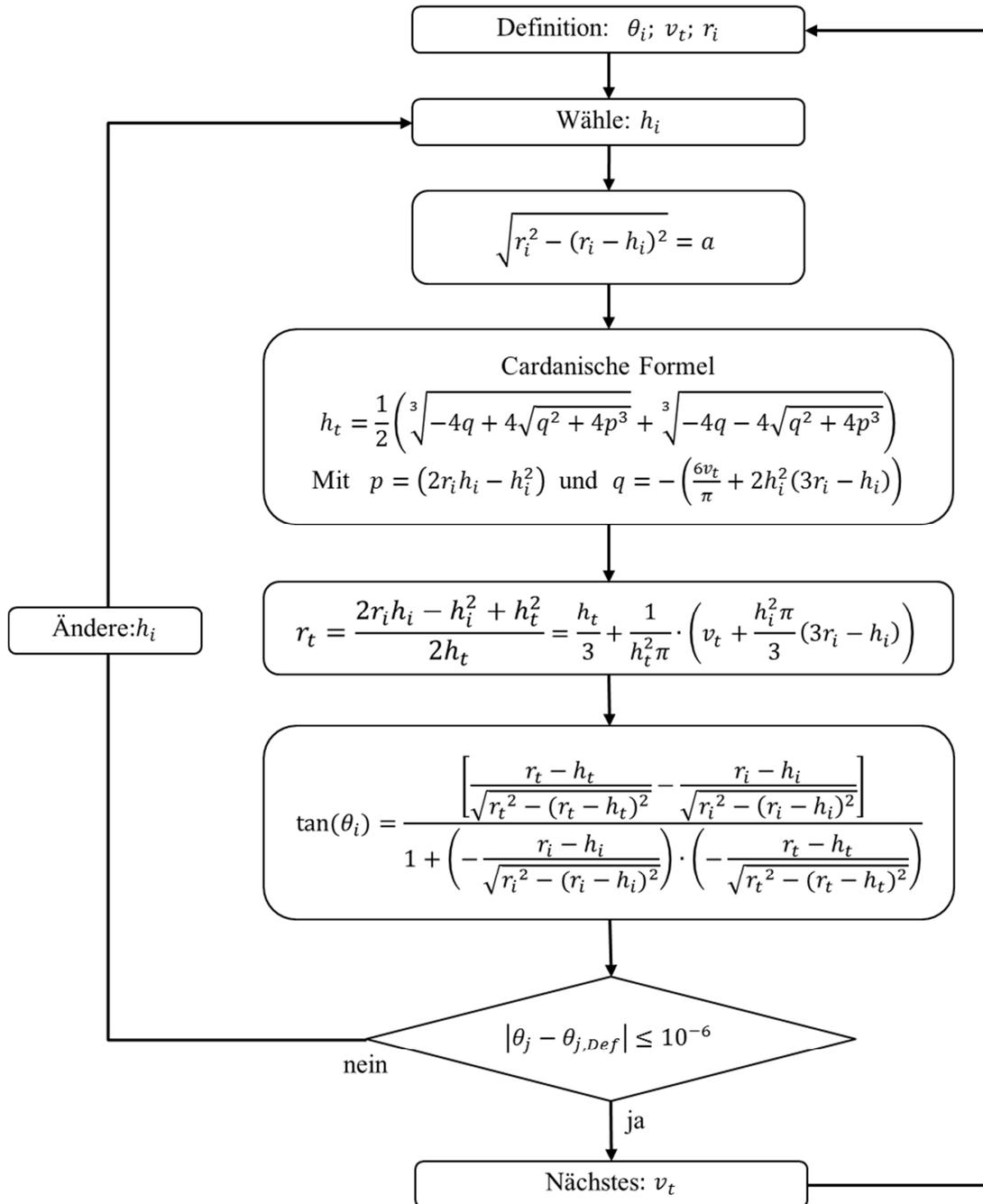


Abbildung A4: Mathematische Zusammenhänge und Lösungsschema zur Bestimmung von Gleichung (7.15) und des Diagramms in Abbildung 7.8 auf der linken Seite.

Tabelle A1: Entdimensionierung der geometrische Größen in Abbildung 7.7 (links) für die Modellimplementierung.

Dimensionsbehaftet	Dimensionslos
$h_i = r_i - \sqrt{r_i^2 - a^2}$	$H_i = 1 - \sqrt{1 - A^2}$
$\beta_t = \arcsin\left(\frac{a}{r_i}\right)$	$\beta_t = \arcsin(A)$
$r_t = \frac{a}{\sin(\beta_t + \theta_i)}$	$R_t = \frac{A}{\sin(\beta_t + \theta_i)}$
$h_t = r_t - \sqrt{r_t^2 - a^2}$	$H_t = R_t - \sqrt{R_t^2 - A^2}$
$h_0 = r_i - h_i - r_t + h_t$	$H_0 = 1_i - H_i - R_t + H_t$

Symbolverzeichnis²⁷

Lateinische Buchstaben

Lateinische Buchstaben

Symbol	Einheit	Beschreibung
a	mm	Segmentradius im Kontaktbereich (in Kapitel 2)
a	mm	Segmentradius des haftenden Tropfens (in Kapitel 7)
a oder b	-	Index zur Phasenunterscheidung
A	-	dimensionsloser Segmentradius
a_j	%	anzahlmäßiger Belegungsgrad der Fraktion j
A, B, E und F	-	Parameter der Regressionsanalyse
$b_{\Gamma, lat}$	mm	Orthodrome zwischen dem <i>Fib.-Lat.</i> Punkt Γ und dem Kontaktpunkt
$b_{c, ij}$	mm	Orthodrome zwischen der Dreiphasengrenzlinie und dem Kontaktpunkt
B, C, D	-	Rotationsmatrizen
c_n	kg s ⁻¹	Dämpfungskonstante in normaler Richtung
c_t	kg s ⁻¹	Dämpfungskonstante in tangentialer Richtung
C	-	Integrationskonstante
$CoV_{inter, j}$	-	Variation der Beschichtungsmasse, Flüssigkeitsvariabilität
d	mm oder μm	Abstand der rotationssymmetrischen Dreiphasengrenzlinien
d_i oder j	mm ² /s	Dispersionskoeffizient

²⁷ In der gewählten Symbolik charakterisiert die Tilde (\sim) immer die Summation einzelner Größen. Der Balken ($\bar{\quad}$) beschreibt Mittelwerte.

d_p	mm oder μm	Partikeldurchmesser
$d_{p,50}$	mm oder μm	mittlere Partikelgröße
d_t	mm	Abstand zwischen der Partikel und der Tropfenoberfläche
dt	s	inkrementelles Zeitintervall oder Zeitschrittweite
D	-	dimensionsloser Dispersionskoeffizient (in Kapitel 4)
D	-	dimensionsloser Partikelabstand (in Kapitel 5 und 6)
e	-	Stoßzahl / Restitutionskoeffizient
E	GPa	Elastizitätsmodul
E_{ij}	GPa	reduzierter Elastizitätsmodul
f	-	Freiheitsgrad
$\vec{f}_{c,ij}$	N	Vektor der Kontaktkraft zwischen Partikel i und Partikel j
$ \vec{f}_{c,i} = f_{c,i}$	N	Betrag der Kontaktkraft aller an der Partikel i angreifenden Kontaktkräfte
$\vec{f}_{cn,ij}$	N	Vektor der Normalkontaktkraft
$\vec{f}_{ct,ij}$	N	Vektor der Tangentialkontaktkraft
$\vec{f}_{B,ij}$	N	Vektor der Flüssigkeitsbrückenkraft zwischen Partikel i und j
$ \vec{f}_B = f_B$	N oder μN	Betrag der Flüssigkeitsbrückenkraft
F_B	-	dimensionslose Flüssigkeitsbrückenkraft
G_{ij}	Pa	reduzierter Schubmodul
\vec{g}	m/s^2	Vektor der Erdbeschleunigung
g	m/s^2	Erdbeschleunigung
h_0	mm	Mittelpunkt des modellierten Tropfens
$\Delta h_{i \text{ oder } j}$	mm	Zellhöhe
$h_{i \text{ oder } j}$	mm	Kugelsegmenthöhe der Partikel i oder j
h_s	mm	Schüttguthöhe
$h_{s,i}$	mm	Schüttguthöhe des Füllmaterials
$h_{s,j}$	mm	Schüttguthöhe des Additivs

h_t	mm	Kugelsegmenthöhe des Tropfens
H	mm^{-1}	mittlere Krümmung
H^*	-	dimensionslose mittlere Krümmung
H_0	-	dimensionslose Koordinate des Mittelpunkts des modellierten Tropfens
H_i	-	dimensionslose Kugelsegmenthöhe der Partikel i
H_t	-	dimensionslose Kugelsegmenthöhe des Tropfens
i	-	Index zur Bezeichnung des gröberen Füllmaterials
I	kg/m^2	Massenträgheitsmoment
j	-	Index zur Bezeichnung des feineren Additivs
l	-	Laufvariable (Integer)
lon_Γ und lat_Γ	$^\circ$	longitudinale und latitudinaler Winkel
k	mm^{-1}	Krümmung
$k_{1 \text{ oder } 2}$	mm^{-1}	Hauptkrümmungen
k_f	-	Korrekturfaktor
k_n	kg s^{-2}	Federkonstante in normaler Richtung
k_t	kg s^{-2}	Federkonstante in tangentialer Richtung
k_v	mm^3	Volumenvorfaktor
m_E	g	Einzelkornmasse
$m_i \text{ oder } j$	g	Masse der Partikel i oder j
m_{ij}	g	reduzierte Masse der Partikel i und j
\tilde{m}_i	g	Masse des Füllstoffs
\tilde{m}_j	g	Masse des Additivs
\tilde{m}_{ij}	g	Masse des gesamten Schüttguts
m_p	g	Probenmasse
$m_{wi} \text{ oder } w_j$	g	Masse der Flüssigkeit an der Partikel i oder j
$\tilde{m}_{w,i} \text{ oder } w_{,j}$	g	Masse der Flüssigkeit an der gesamten Fraktion i oder j
$\tilde{m}_{w,ij}$	g	Gesamtmasse der Flüssigkeit

$M_{3,3}$	-	dritten Moments der Volumendichte- verteilung
n	min^{-1}	Drehzahl
$\vec{n}_{f_{\Gamma,orient}}$	-	Normalenvektor des orientierten <i>Fib.-Lat.</i> Punktes
\vec{n}_{ij}	-	Normalenvektor im Kontaktpunkt
N'	-	Anzahl der <i>Fib.-Lat.</i> Punkte (auch Speicher- punkte genannt)
$N'_{j,belegt}$	-	Anzahl der belegten Punkte in der Fraktion j
N_L	-	Anzahl der Kontakte an der Partikel i
N'_{min}	-	minimal notwendige Anzahl an <i>Fib.-Lat.</i> Punkten
N_p	-	Anzahl der Proben
N_P	-	Anzahl der Partikeln
$N_{P,i} \text{ oder } P,j$	-	Anzahl der Partikeln in der Fraktion i oder j
$N'_{Tropfen}$	-	Anzahl der Punkte pro Tropfen
N_Z	-	Anzahl der Zellen
Δp	Pa	kapillare Druckdifferenz
$\vec{p}_i \text{ oder } j$	mm	Positionsvektor der Partikel i oder j
$p_a \text{ oder } b$	Pa	Druck in Phase a oder b
$p(r)$	Pa	Druckverteilung entlang der radialen Koordinate
p_0	Pa	Maximaldruck im Kontaktbereich
\vec{P}_{Γ}	Pa	Punktkoordinaten im kartesischen Koordina- tensystem
\mathbf{P}	-	Matrix der Übergangswahrscheinlichkeiten
q	-	dimensionslose Konzentration
q_i	-	Ist-konzentration in der Probe
$q_r(X_w,j)$	-	relative Dichteverteilung der Partikelbela- dungen
q_{soll}	-	Sollkonzentration in der Probe
\mathbf{Q}	-	Euler'schen Rotationsmatrix
Q_0	-	Anzahlsummenverteilung

Q_3	-	Massensummenverteilung
r	mm	radiale Koordinate
$r_{1 \text{ oder } 2}$	mm	Krümmungsradien (meridional & azimuthal)
r_{50}	μm oder mm	mittlerer Partikelradius
r_b	mm	Behälterradius
r_c	mm	Kontaktradius
$r_{i \text{ oder } j}$	mm	Radius der Partikel i oder j
r_{ij}	mm	reduzierter Radius
r_t	mm	Tropfenradius
$R_{1 \text{ oder } 2}$	mm	Hauptkrümmungsradien
$R_{i \text{ oder } j}$	-	dimensionsloser Partikelradius i oder Partikelradius j
R_t	-	Dimensionsloser Tropfenradius
s	mm	Partikelabstand
s_B	mm	Bruchdistanz der Flüssigkeitsbrücke
$s_{N_p}^2$	-	empirische Varianz
S	-	dimensionsloser Partikelabstand
S_B	-	dimensionslose Bruchdistanz der Flüssigkeitsbrücke
t	s	Zeit
T	-	diskrete Zeit
\vec{T}	Nm	Drehmomentenvektor
\vec{T}_{ij}	Nm	resultierender Drehmomentenvektor im Kontaktbereich zwischen Partikel i und j
$ \vec{T} $	Nm	Betrag des Drehmoments
TF_i	-	Transferverhältnis
\vec{t}_{ij}	-	Tangentialvektor im Kontaktpunkt
t_M	s	Mischzeit
t_{Max}	s	maximale Simulations- oder Mischzeit
$u_{i \text{ oder } j}$	mm/s	Transportkoeffizient
\vec{u}_i	m/s	Geschwindigkeitsvektor der Partikel i
$ \vec{u}_{ij} $	m/s	Partikelrelativgeschwindigkeit

$ \vec{u}_{n,ij} $	m/s	Partikelrelativgeschwindigkeit in Normalenrichtung
$ \vec{u}_{t,ij} $	m/s	Partikelrelativgeschwindigkeit in Tangentialrichtung
\bar{u}_r	mm/s	mittlere radiale Geschwindigkeit
u_p	m/s	absolute Partikelgeschwindigkeit
u_w	m/s	Umfangsgeschwindigkeit des Mischwerkzeugs
\bar{u}_z	mm/s	mittlere axiale Geschwindigkeit
U	-	dimensionsloser Transportkoeffizient
v	mm ³ oder nl	Volumen der Flüssigkeitsbrücke
v_i	mm ³	Volumen der Partikel i
v_{kt}	mm ³	Volumen des Kugelsegments des Tropfens
v_{ki}	mm ³	Volumen des Kugelsegments der Partikel i
v_t	mm ³	Volumen des Tropfens
V	-	dimensionsloses Flüssigkeitsbrückenvolumen
$V_{i \text{ oder } j}$	-	dimensionslose Teilvolumina nach dem Brückenbruch an den Partikeln i und j
$V_{k,i \text{ oder } k,j}$	-	dimensionslose Teilvolumina an der Partikel i und j zur Berechnung des Brückenvolumens
$V_{Lat.,i}$	-	dimensionsloses Volumen gespeichert im <i>Fib.-Lat.</i> Punkt
ΔX	-	Schrittweite des diskreten Flüssigkeitsbrückenprofils
$X_{w,i \text{ oder } w,j}$	-	Flüssigkeitsbeladung an der Partikel i oder j
$\bar{X}_{w,j}$	-	mittlere Flüssigkeitsbeladung in der Fraktion j
$\bar{X}_{w,ij}$	-	auf den gesamten Feststoff bezogene Flüssigkeitsbeladung
$\bar{X}(\text{Proben})_{w,ij}$	-	über alle Proben gemittelten, massenbezogene Flüssigkeitsbeladung
y_s	-	relative Abweichung

y_{min}	mm	minimale Brückenhöhe
$\tilde{Y}_{w,j}$	-	gemittelter massenbezogener Flüssigkeitsanteil
$Y(0)$	-	dimensionslose Höhe der Brückenhöhe an der Partikel j
y und x	mm	Brückenkoordinaten
Y und X	-	dimensionslose Brückenkoordinaten
Y_{min}	-	Dimensionslose minimale Brückenhöhe
$Y' = dY/dX$	-	erstes Differential
$Y'' = d^2Y/dX^2$	-	zweites Differential
z_1	mm	Kugelsegmentradius
z_{ij}^* oder z_{jk}	mm	korrigierter Kugelsegmentradius zwischen Der Partikel i und j oder der Partikel j und k
$Z_{N,min}$	-	minimale Partikelanzahl pro Probe

Griechische Buchstaben

Symbol	Einheit	Beschreibung
α'_j	°	Segmentwinkel j
β_i oder β_j	°	Brückenfüllungswinkel an der Partikel i oder an der Partikel j
β_t	°	Brückenfüllungswinkel des Tropfens
γ	N/m	Grenzflächenspannung
Γ	-	Laufvariable (<i>Integer</i>)
δ_n	mm	Überlappung in normaler Richtung
δ_t	mm	Überlappung in tangentialer Richtung
δ	°	Öffnungswinkel in der Tropfenmodellierung
δ'_U	°	Überlappungswinkels
Δ_{max}	-	Größter Umkreisradius
ζ'_j	°	Achsenwinkel an der Partikel j
η	mPas	dynamische Viskosität

$\theta_{i \text{ oder } j}$	°	Kontaktwinkel (auch Benetzungswinkel genannt) an der Partikel i oder j
κ	-	Laufvariable (<i>Integer</i>)
μ	-	Gleitreibungskoeffizient
μ_r	-	Rollreibungskoeffizient
$\Delta\xi$	mm	Verschiebung (Δx , Δr oder $\Delta\varphi$)
ξ	mm	Koordinate (x , r oder φ)
ρ_l	kg/m ³	Flüssigkeitsdichte
ρ_s	kg/m ³	Feststoffdichte
Φ^{-1}	-	Inverse des goldenen Verhältnisses
σ	-	Standardabweichung
σ^2	-	theoretische Varianz
σ_0^2	-	theoretische Varianz der Nullmischung
σ_Z^2	-	theoretische Varianz der stochastischen Homogenität
$\vec{\zeta}$	-	Hilfsvektor
τ	s	Zeitintervall
v	-	Querkontraktionszahl
$\overline{\Delta\varphi}_{i \text{ oder } j}$	° · 360 ^{°-1} _{MW}	mittlere Winkeländerung der einzelnen Komponenten pro Umdrehung des Mischwerkzeugs
$\phi(\Delta\xi)$	mm ⁻¹	Dichteverteilung der Verschiebungen
χ^2	-	Chi-Quadratverteilung
ψ	-	Partikelgrößenverhältnis zwischen Additiv und Füllmaterial (entspricht ψ_{ij})
$\psi_{ij}, \psi_{ik}, \psi_{jk}$	-	Partikelgrößenverhältnis r_i/r_j bzw. r_i/r_k bzw. r_j/r_k
$\vec{\omega}_i$	s ⁻¹	Vektor der Winkelgeschwindigkeit
$ \vec{\omega}_i $	s ⁻¹	Betrag der Winkelgeschwindigkeit

Dimensionslose Kennzahlen

Symbol	Einheit	Beschreibung
Bo_f	-	flüssige Bond-Kennzahl
Ca	-	Kapillar-Zahl
MSE	-	mittlerer quadratischer Fehler
RSD	-	Relative Standardabweichung oder Variationskoeffizient
RSD_Z	-	Relative Standardabweichung oder Varia- tionskoeffizient der stochastischen Homoge- nität
RSD_M	-	Relative Standardabweichung oder Varia- tionskoeffizient der Messungenauigkeit

Literaturverzeichnis

- [1] P. Serno, P. Kleinebudde und K. Knop, "Granulieren: Grundlagen, Verfahren, Formulierungen", *ECV-Editio-Cantor-Verlag*, 2007.
- [2] V. Wenzel, R. S. Moeller und H. Nirschl, "Influence of Mixing Technology and the Potential to Modify the Morphological Properties of Materials used in the Manufacture of Lithium-Ion Batteries", *Energy Technology*, (2), Seiten 176-182, 2014.
- [3] V. Wenzel, H. Nirschl und D. Nötzel, "Challenges in Lithium-Ion-Battery Slurry Preparation and Potential of Modifying Electrode Structures by Different Mixing Processes", *Energy Technology*, (3), Seiten 692-698, 2015.
- [4] B. Bitsch, N. Willenbacher, V. Wenzel, S. Schmelzle und H. Nirschl, "Einflüsse der mechanischen Verfahrenstechnik auf die Herstellung von Elektroden für Lithium-Ionen-Batterien", *Chemie Ingenieur Technik*, (87), Seiten 466-474, 2015.
- [5] M. Baunach, S. Jaiser, S. Schmelzle, H. Nirschl, P. Scharfer und W. Schabel, "Delamination Behavior of Lithium-Ion Battery Anodes: Influence of Drying Temperature During Electrode Processing", *Drying Technology*, (34), Seiten 462-473, 2015.
- [6] M. Schmitt, P. Scharfer und W. Schabel, "Slot die coating of lithium-ion battery electrodes: investigations on edge effect issues for stripe and pattern coatings", *Journal of Coatings Technology and Research*, (11), Seiten 57-63, 2014.
- [7] B. Daumann und H. Nirschl, "Einfluss der Mischtechnik auf trockene und feuchte Feststoffschüttungen", *Aufbereitungs-Technik*, (48), Seiten 19-33, 2007.
- [8] F. Bertrand, L. A. Leclaire und G. Levecque, "DEM-based models for the mixing of granular materials", *Chemical Engineering Science*, (60), Seiten 2517-2531, 2005.

- [9] S. Schmelzle, S. Leppert und H. Nirschl, "Influence of impeller geometry in a vertical mixer described by DEM simulation and the dispersion model", *Advanced Powder Technology*, (26), Seiten 1473-1482, 2015.
- [10] P. A. Cundall und O. D. Strack, "A discrete numerical model for granular assemblies", *Geotechnique*, (29), Seiten 47-65, 1979.
- [11] J. Neuwirth, S. Antonyuk, S. Heinrich und M. Jacob, "CFD-DEM study and direct measurement of the granular flow in a rotor granulator", *Chemical Engineering Science*, (86), Seiten 151-163, 2013.
- [12] S. Pietsch, S. Heinrich, K. Karpinski, M. Müller, M. Schönherr und F. Kleine Jäger, "CFD-DEM modeling of a three-dimensional prismatic spouted bed", *Powder Technology*, (316), Seiten 245-255, 2017.
- [13] S. Antonyuk, M. Khanal, J. Tomas, S. Heinrich und L. Mörl, "Impact breakage of spherical granules: Experimental study and DEM simulation", *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, (45), Seiten 838-856, 2006.
- [14] A. Spetl, M. Dosta, S. Antonyuk, S. Heinrich und V. Schmidt, "Statistical investigation of agglomerate breakage based on combined stochastic microstructure modeling and DEM simulations", *Advanced Powder Technology*, (26), Seiten 1021-1030, 2015.
- [15] E. Alizadeh, H. Hajhashemi, F. Bertrand und J. Chaouki, "Experimental investigation of solid mixing and segregation in a tetrapodal blender", *Chemical Engineering Science*, (97), Seiten 354-365, 2013.
- [16] E. Alizadeh, F. Bertrand und J. Chaouki, "Discrete element simulation of particle mixing and segregation in a tetrapodal blender", *Computers & Chemical Engineering*, (64), Seiten 1-12, 2014.
- [17] L. Konopka und J. Kosek, "Discrete element modeling of electrostatic charging of polyethylene powder particles", *Journal of Electrostatics*, (87), Seiten 150-157, 2017.

- [18] J. Lindner, K. Menzel und H. Nirschl, "Simulation of magnetic suspensions for HGMS using CFD, FEM and DEM modeling", *Computers & Chemical Engineering*, (**54**), Seiten 111-121, 2013.
- [19] K. W. Chu, B. Wang, A. B. Yu und A. Vince, "CFD-DEM modelling of multiphase flow in dense medium cyclones", *Powder Technology*, (**193**), Seiten 235-247, 2009.
- [20] Y. C. Zhou, B. D. Wright, R. Y. Yang, B. H. Xu und A. B. Yu, "Rolling friction in the dynamic simulation of sandpile formation", *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications*, (**269**), Seiten 536-553, 1999.
- [21] N. G. Deen, M. Van Sint Annaland, M. A. Van der Hoef und J. A. M. Kuipers, "Review of discrete particle modeling of fluidized beds", *Chemical Engineering Science*, (**62**), Seiten 28-44, 2007.
- [22] H. Kruggel-Emden, S. Rickelt, S. Wirtz und V. Scherer, "A study on the validity of the multi-sphere Discrete Element Method", *Powder Technology*, (**188**), Seiten 153-165, 2008.
- [23] P. A. Cundall, "Formulation of a three-dimensional distinct element model—Part I. A scheme to detect and represent contacts in a system composed of many polyhedral blocks", *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences & Geomechanics Abstracts*, (**25**), Seiten 107-116, 1988.
- [24] E. G. Nezami, Y. MA Hashash, D. Zhao und J. Ghaboussi, "Shortest link method for contact detection in discrete element method", *International journal for numerical and analytical methods in geomechanics*, (**30**), Seiten 783-801, 2006.
- [25] D. Höhner, S. Wirtz, H. Kruggel-Emden und V. Scherer, "Comparison of the multi-sphere and polyhedral approach to simulate non-spherical particles within the discrete element method: Influence on temporal force evolution for multiple contacts", *Powder Technology*, (**208**), Seiten 643-656, 2011.
- [26] A. Di Renzo und F. P. Di Maio, "Comparison of contact-force models for the simulation of collisions in DEM-based granular flow codes", *Chemical Engineering Science*, (**59**), Seiten 525-541, 2004.

- [27] H. Kruggel-Emden, E. Simsek, S. Rickelt, S. Wirtz und V. Scherer, "Review and extension of normal force models for the discrete element method", *Powder Technology*, (171), Seiten 157-173, 2007.
- [28] B. Remy, "Granular flow, segregation and agglomeration in bladed mixers", PhD Thesis, Rutgers The State University of New Jersey-New Brunswick, 2010.
- [29] T. Piechatzek, "Charakterisierung von Rührwerkskugelmühlen auf Basis der Diskrete-Elemente-Methode (DEM)", Dissertation, Universität Braunschweig, 2009.
- [30] Y. Tsuji, T. Tanaka und T. Ishida, "Lagrangian numerical simulation of plug flow of cohesionless particles in a horizontal pipe", *Powder Technology*, (71), Seiten 239-250, 1992.
- [31] H. Hertz, "On the contact of elastic solids", *Journal für die reine und angewandte Mathematik*, (92), Seite 110, 1881.
- [32] B. Mishra, "A review of computer simulation of tumbling mills by the discrete element method: part I -contact mechanics", *International Journal of Mineral Processing*, (71), Seiten 73-93, 2003.
- [33] J. M. Ting und B. T. Corkum, "Computational laboratory for discrete element geomechanics", *Journal of computing in civil engineering*, (6), Seiten 129-146, 1992.
- [34] A. O. Raji, "Discrete element modelling of the deformation of bulk agricultural particulates", PhD Thesis, Newcastle University, 1999.
- [35] P. Mueller, S. Antonyuk, M. Stasiak, J. Tomas und S. Heinrich, "The normal and oblique impact of three types of wet granules", *Granular Matter*, (13), Seiten 455-463, 2011.
- [36] S. Antonyuk, S. Heinrich, N. Deen und H. Kuipers, "Influence of liquid layers on energy absorption during particle impact", *Particuology*, (7), Seiten 245-259, 2009.

- [37] B. Crüger, V. Salikov, S. Heinrich, S. Antonyuk, V. S. Sutkar, N. G. Deen und J. A. M. Kuipers, "Coefficient of restitution for particles impacting on wet surfaces: An improved experimental approach", *Particuology*, (**25**), Seiten 1-9, 2016.
- [38] V. S. Sutkar, N. G. Deen, J. T. Padding, J. Kuipers, V. Salikov, B. Crüger, S. Antonyuk und S. Heinrich, "A novel approach to determine wet restitution coefficients through a unified correlation and energy analysis", *Aiche Journal*, (**61**), Seiten 769-779, 2015.
- [39] R. Mindlin, "Compliance of elastic bodies in contact", *Journal of Applied Mechanics*, (**16**), 1949.
- [40] R. D. Mindlin und H. Deresiewicz, "Elastic Spheres in contact under varying oblique forces", *Journal of Applied Mechanics-Transactions of the Asme*, (**20**), Seiten 327-344, 1953.
- [41] O. Walton und R. Braun, "Stress calculations for assemblies of inelastic speres in uniform shear", *Acta mechanica*, (**63**), Seiten 73-86, 1986.
- [42] K. L. Johnson, *Contact mechanics*, Cambridge university press, 1987.
- [43] J. Tomas, "Adhesion of ultrafine particles—A micromechanical approach", *Chemical Engineering Science*, (**62**), Seiten 1997-2010, 2007.
- [44] L. Verlet, "Computer" experiments" on classical fluids. I. Thermodynamical properties of Lennard-Jones molecules", *Physical review*, (**159**), Seite 98, 1967.
- [45] A. Munjiza und K. R. F. Andrews, "NBS contact detection algorithm for bodies of similar size", *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, (**43**), Seiten 131-149, 1998.
- [46] R. W. Hockney und J. W. Eastwood, *Computer simulation using particles*, CRC Press, 1988.
- [47] J. Q. Gan, Z. Y. Zhou und A. B. Yu, "A GPU-based DEM approach for modelling of particulate systems", *Powder Technology*, (**301**), Seiten 1172-1182, 2016.

- [48] H. Mio, A. Shimosaka, Y. Shirakawa und J. Hidaka, "Cell optimization for fast contact detection in the discrete element method algorithm", *Advanced Powder Technology*, (**18**), Seiten 441-453, 2007.
- [49] R. Weiler, M. Ripp, G. Dau und S. Ripperger, "Anwendung der Diskrete-Elemente-Methode zur Simulation des Verhaltens von Schüttgütern", *Chemie Ingenieur Technik*, (**81**), Seiten 749-757, 2009.
- [50] T. Gröger und A. Katterfeld, "On the numerical calibration of discrete element models for the simulation of bulk solids", in Proceeding: *Conveying and Handling of Particulate Solids (CHoPS-05)*, Sorrento, Italy, 2006.
- [51] P. W. Cleary und D. Hoyer, "Centrifugal mill charge motion and power draw: comparison of DEM predictions with experiment", *International Journal of Mineral Processing*, (**59**), Seiten 131-148, 2000.
- [52] Z. Ning, "Elasto-plastic impact of fine particles and fragmentation of small agglomerates", PhD Thesis, University of Aston in Birmingham, 1995.
- [53] B. Alchikh-Sulaiman, F. Ein-Mozaffari und A. Lohi, "Evaluation of poly-disperse solid particles mixing in a slant cone mixer using discrete element method", *Chemical Engineering Research and Design*, (**96**), Seiten 196-213, 2015.
- [54] B. Remy, J. G. Khinast und B. J. Glasser, "Wet granular flows in a bladed mixer: Experiments and simulations of monodisperse spheres", *Aiche Journal*, (**58**), Seiten 3354-3369, 2012.
- [55] M. Sommerfeld, "Kinetic simulations for analysing the wall collision process of non-spherical particles", in Proceeding: *ASME 2002 Joint US-European Fluids Engineering Division Conference*, Seiten 539-547, 2002.
- [56] M. Stieß und S. Ripperger, *Mechanische Verfahrenstechnik Partikeltechnologie 1*, Springer-Verlag, 2009.

- [57] K. Sommer und H. Rumpf, "Varianz der stochastischen Homogenität bei Körnermischungen und Suspensionen und praktische Ermittlung der Mischgüte", *Chemie Ingenieur Technik*, **(46)**, Seiten 257-257, 1974.
- [58] K. Sommer, *Probenahme von Pulvern und körnigen Massengütern: Grundlagen, Verfahren, Geräte*, Springer-Verlag, 2013.
- [59] K. Sommer, *Sampling of powders and bulk materials*, Springer-Verlag, 1986.
- [60] P. M. C. Lacey, "Developments in the theory of particle mixing", *Journal of Applied Chemistry*, **(4)**, Seiten 257-268, 1954.
- [61] V. N. P. Le, P. Leterme, A. Gayot und M. P. Flament, "Influence of granulation and compaction on the particle size of ibuprofen—Development of a size analysis method", *International Journal of Pharmaceutics*, **(321)**, Seiten 72-77, 2006.
- [62] T. K. Bock und U. Kraas, "Experience with the Diosna mini-granulator and assessment of process scalability", *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, **(52)**, Seiten 297-303, 2001.
- [63] T. Schaefer, H. Bak, A. Jaegerskou, A. Kristensen, J. Svensson, P. Holm und H. Kristensen, "Granulation in different types of high speed mixers. I: Effects of process variables and up-scaling", *Pharmazeutische Industrie*, **(48)**, Seiten 1083-1089, 1986.
- [64] J. R. Johanson, "Particle segregation... and what to do about it", *Chemical Engineering*, **(85)**, Seiten 183-188, 1978.
- [65] V. Wenzel, S. Schmelzle und H. Nirschl, "Homogenität und Strukturbildung beim diskontinuierlichen Feststoffmischen", in *Technische Keramische Werkstoffe, Losebl.-Ausg. Kap. 3.3.2.2. (146)*, Hrsg.: J. Kriegesmann, 2015.
- [66] K. Sommer, "Mechanistics of Powder Mixing", *Chemie Ingenieur Technik*, **(49)**, Seiten 305-311, 1977.
- [67] N. G. van Kampen, "Die Fokker-Planck-Gleichung", *Physik Journal*, **(53)**, Seiten 1012-1013, 1997.

- [68] K. Sommer, E. Schlosser und H. Dauth, "The Fokker-Planck Equation – A Way to Describe Axial Transport and Mixing Processes in a Tube Reactor", *Chemie Ingenieur Technik*, (**85**), Seiten 264-271, 2013.
- [69] D. Dopfer, "Konvektiver und dispersiver Massentransport in kontinuierlichen dynamischen Feststoffmischern", Dissertation, Technische Universität München, 2009.
- [70] V. Kehlenbeck, "Continuous dynamic mixing of cohesive powders", Dissertation, Technische Universität München, 2006.
- [71] B. F. C. Laurent und P. W. Cleary, "Comparative study by PEPT and DEM for flow and mixing in a ploughshare mixer", *Powder Technology*, (**228**), Seiten 171-186, 2012.
- [72] A. Ingram, J. P. K. Seville, D. J. Parker, X. Fan und R. G. Forster, "Axial and radial dispersion in rolling mode rotating drums", *Powder Technology*, (**158**), Seiten 76-91, 2005.
- [73] J. R. Third, D. M. Scott und S. A. Scott, "Axial dispersion of granular material in horizontal rotating cylinders", *Powder Technology*, (**203**), Seiten 510-517, 2010.
- [74] B. Daumann, A. Fath, H. Anlauf und H. Nirschl, "Determination of the mixing time in a discontinuous powder mixer by using image analysis", *Chemical Engineering Science*, (**64**), Seiten 2320-2331, 2009.
- [75] L. T. Fan, S. J. Chen und C. A. Watson, "Solids Mixing", *Industrial and Engineering Chemistry*, (**62**), Seiten 53-69, 1970.
- [76] C. A. Radeke, B. J. Glasser und J. G. Khinast, "Large-scale powder mixer simulations using massively parallel GPU architectures", *Chemical Engineering Science*, (**65**), Seiten 6435-6442, 2010.
- [77] V. Mizonov, H. Berthiaux und C. Gatumel, "Theoretical search for solutions to minimize negative influence of segregation in mixing of particulate solids", *Particuology*, (**25**), Seiten 36-41, 2016.

- [78] H. Berthiaux, V. Mizonov und V. Zhukov, "Application of the theory of Markov chains to model different processes in particle technology", *Powder Technology*, **(157)**, Seiten 128-137, 2005.
- [79] G. R. Chandratilleke, A. B. Yu, R. L. Stewart und J. Bridgwater, "Effects of blade rake angle and gap on particle mixing in a cylindrical mixer", *Powder Technology*, **(193)**, Seiten 303-311, 2009.
- [80] J. Neuwirth, "Charakterisierung und Diskrete Partikel-Modellierung des Strömungs- und Dispersionsverhältnen im Rotorgranulator", Dissertation, Technische Universität Hamburg-Harburg, 2017.
- [81] P. Du, R. Weber, P. Luszczek, S. Tomov, G. Peterson und J. Dongarra, "From CUDA to OpenCL: Towards a performance-portable solution for multi-platform GPU programming", *Parallel Computing*, **(38)**, Seiten 391-407, 2012.
- [82] E. Siegmann, D. Jajcevic, C. Radeke, D. Strube, K. Friedrich und J. G. Khinast, "Efficient Discrete Element Method Simulation Strategy for Analyzing Large - Scale Agitated Powder Mixers", *Chemie Ingenieur Technik*, **(89)**, Seiten 995-1005, 2017.
- [83] A. Bailey, "Electrostatic phenomena during powder handling", *Powder Technology*, **(37)**, Seiten 71-85, 1984.
- [84] T. Oschmann, K. Vollmari, H. Kruggel-Emden und S. Wirtz, "Numerical Investigation of the Mixing of Non-spherical Particles in Fluidized Beds and during Pneumatic Conveying", *Procedia Engineering*, **(102)**, Seiten 976-985, 2015.
- [85] S. Schmelzle und H. Nirschl, "DEM simulations: mixing of dry and wet granular material with different contact angles", *Granular Matter*, **(20)**, 2018.
- [86] W. Pietsch und H. Rumpf, "Haftkraft, Kapillardruck, Flüssigkeitsvolumen und Grenzwinkel einer Flüssigkeitsbrücke zwischen zwei Kugeln", *Chemie Ingenieur Technik*, **(39)**, Seiten 885-893, 1967.

- [87] T. Mikami, H. Kamiya und M. Horio, "Numerical simulation of cohesive powder behavior in a fluidized bed", *Chemical Engineering Science*, (**53**), Seiten 1927-1940, 1998.
- [88] F. Soulie, F. Cherblanc, M. S. El Youssofi und C. Saix, "Influence of liquid bridges on the mechanical behaviour of polydisperse granular materials", *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics*, (**30**), Seiten 213-228, 2006.
- [89] A. Anand, J. S. Curtis, C. R. Wassgren, B. C. Hancock und W. R. Ketterhagen, "Segregation of cohesive granular materials during discharge from a rectangular hopper", *Granular Matter*, (**12**), Seiten 193-200, 2010.
- [90] G. Lian und J. Seville, "The capillary bridge between two spheres: New closed-form equations in a two century old problem", *Advances in Colloid and Interface Science*, (**227**), Seiten 53-62, 2016.
- [91] H. J. Butt und M. Kappl, *Surface and Interfacial Forces*, Wiley-VCH Verlag, 2010.
- [92] K. Hotta, K. Takeda und K. Iinoya, "The capillary binding force of a liquid bridge", *Powder Technology*, (**10**), Seiten 231-242, 1974.
- [93] H. Schubert, *Kapillarität in porösen Feststoffsystemen*, Springer-Verlag, 1982.
- [94] G. Lian, C. Thornton und M. J. Adams, "A Theoretical Study of the Liquid Bridge Forces between Two Rigid Spherical Bodies", *Journal of Colloid and Interface Science*, (**161**), Seiten 138-147, 1993.
- [95] C. D. Willett, M. J. Adams, S. A. Johnson und J. P. Seville, "Capillary bridges between two spherical bodies", *Langmuir*, (**16**), Seiten 9396-9405, 2000.
- [96] A. Darhuber, S. Miller, S. Troian und S. Wagner, "Process simulation for contact print microlithography", in *Proceeding: Technical Proceedings of the 2000 International Conference on Modeling and Simulation of Microsystems*, 2000.

- [97] X. Pepin, D. Rossetti, S. M. Iveson und S. J. Simons, "Modeling the evolution and rupture of pendular liquid bridges in the presence of large wetting hysteresis", *Journal of Colloid and Interface Science*, (**232**), Seiten 289-297, 2000.
- [98] H.-J. Butt und M. Kappl, "Normal capillary forces", *Advances in Colloid and Interface Science*, (**146**), Seiten 48-60, 2009.
- [99] B. Derjaguin, "Untersuchungen über die Reibung und Adhäsion, IV", *Kolloid-Zeitschrift*, (**69**), Seiten 155-164, 1934.
- [100] O. Pitois, P. Moucheron und X. Chateau, "Liquid bridge between two moving spheres: An experimental study of viscosity effects", *Journal of Colloid and Interface Science*, (**231**), Seiten 26-31, 2000.
- [101] D. Shi und J. J. McCarthy, "Numerical simulation of liquid transfer between particles", *Powder Technology*, (**184**), Seiten 64-75, 2008.
- [102] R. Zhang und J. Li, "Simulation on mechanical behavior of cohesive soil by Distinct Element Method", *Journal of Terramechanics*, (**43**), Seiten 303-316, 2006.
- [103] O. Reynolds, "IV. On the theory of lubrication and its application to Mr. Beauchamp tower's experiments, including an experimental determination of the viscosity of olive oil", *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, (**177**), Seiten 157-234, 1886.
- [104] M. Adams und V. Perchard, "The cohesive forces between particles with interstitial liquid", in *Proceeding: Institute of Chemical Engineering Symposium*, Seiten 147-160, 1985.
- [105] A. Goldman, R. G. Cox und H. Brenner, "Slow viscous motion of a sphere parallel to a plane wall—I Motion through a quiescent fluid", *Chemical Engineering Science*, (**22**), Seiten 637-651, 1967.
- [106] K. Washino, E. L. Chan, T. Matsumoto, S. Hashino, T. Tsuji und T. Tanaka, "Normal viscous force of pendular liquid bridge between two relatively moving particles", *Journal of Colloid and Interface Science*, (**494**), Seiten 255-265, 2017.

- [107] J. J. McCarthy, "Micro-modeling of cohesive mixing processes", *Powder Technology*, (**138**), Seiten 63-67, 2003.
- [108] G. Lian, C. Thornton und M. J. Adams, "Discrete particle simulation of agglomerate impact coalescence", *Chemical Engineering Science*, (**53**), Seiten 3381-3391, 1998.
- [109] S. C. Yang, "Segregation of cohesive powders in a vibrated granular bed", *Chemical Engineering Science*, (**61**), Seiten 6180-6188, 2006.
- [110] B. Remy, T. M. Canty, J. G. Khinast und B. J. Glasser, "Experiments and simulations of cohesionless particles with varying roughness in a bladed mixer", *Chemical Engineering Science*, (**65**), Seiten 4557-4571, 2010.
- [111] H. Nakamura, H. Fujii und S. Watano, "Scale-up of high shear mixer-granulator based on discrete element analysis", *Powder Technology*, (**236**), Seiten 149-156, 2013.
- [112] T. Hoffmann, "Mischen und Befeuchten von Schüttgütern", Dissertation, Universität Gesamthochschule Paderborn, 1995.
- [113] B. Chaudhuri, A. Mehrotra, F. J. Muzzio und M. S. Tomassone, "Cohesive effects in powder mixing in a tumbling blender", *Powder Technology*, (**165**), Seiten 105-114, 2006.
- [114] K. van den Dries und H. Vromans, "Relationship between inhomogeneity phenomena and granule growth mechanisms in a high-shear mixer", *International Journal of Pharmaceutics*, (**247**), Seiten 167-177, 2002.
- [115] S. Oka, H. Emady, O. Kaspar, V. Tokarova, F. Muzzio, F. Stepanek und R. Ramachandran, "The effects of improper mixing and preferential wetting of active and excipient ingredients on content uniformity in high shear wet granulation", *Powder Technology*, (**278**), Seiten 266-277, 2015.
- [116] R. Mani, D. Kadau, D. Or und H. J. Herrmann, "Fluid depletion in shear bands", *Physical review letters*, (**109**), 2012.

- [117] R. Mani, D. Kadau und H. J. Herrmann, "Liquid migration in sheared unsaturated granular media", *Granular Matter*, (**15**), Seiten 447-454, 2013.
- [118] M. S. van Buijtenen, N. G. Deen, S. Heinrich, S. Antonyuk und J. A. M. Kuipers, "A discrete element study of wet particle–particle interaction during granulation in a spout fluidized bed", *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, (**87**), Seiten 308-317, 2009.
- [119] D. Jain, N. G. Deen, J. A. M. Kuipers, S. Antonyuk und S. Heinrich, "Direct numerical simulation of particle impact on thin liquid films using a combined volume of fluid and immersed boundary method", *Chemical Engineering Science*, (**69**), Seiten 530-540, 2012.
- [120] B. Mohan, C. Kloss, J. Khinast und S. Radl, "Regimes of liquid transport through sheared beds of inertial smooth particles", *Powder Technology*, (**264**), Seiten 377-395, 2014.
- [121] S. Schmelzle, E. Asylbekov, B. Radel und H. Nirschl, "Modelling of partially wet particles in DEM simulations of a solid mixing process", *Powder Technology*, (**338**), Seiten 354-364, 2018.
- [122] K. Washino, K. Miyazaki, T. Tsuji und T. Tanaka, "A new contact liquid dispersion model for discrete particle simulation", *Chemical Engineering Research and Design*, (**110**), Seiten 123-130, 2016.
- [123] Á. González, "Measurement of areas on a sphere using Fibonacci and latitude–longitude lattices", *Mathematical Geosciences*, (**42**), Seiten 49-64, 2010.
- [124] R. Swinbank und R. James Purser, "Fibonacci grids: A novel approach to global modelling", *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, (**132**), Seiten 1769-1793, 2006.
- [125] M. J. Gregory, A. J. Kimerling, D. White und K. Sahr, "A comparison of intercell metrics on discrete global grid systems", *Computers, Environment and Urban Systems*, (**32**), Seiten 188-203, 2008.

- [126] C. Kuhlemeier, "Phyllotaxis", *Trends in Plant Science*, (**12**), Seiten 143-150, 2007.
- [127] B. Keinert, M. Innmann, M. Sanger und M. Stamminger, "Spherical fibonacci mapping", *ACM Transactions on Graphics*, (**34**), Seiten 1-7, 2015.
- [128] L. Bravais und A. Bravais, *Essai sur la disposition symetrique des inflorescences*, 1837.
- [129] B. Freireich, R. Kumar, W. Ketterhagen, K. Su, C. Wassgren und J. A. Zeitler, "Comparisons of intra-tablet coating variability using DEM simulations, asymptotic limit models, and experiments", *Chemical Engineering Science*, (**131**), Seiten 197-212, 2015.
- [130] M. Tousey, "Tablet coating basics", *Tablets Capsules*, (**3**), Seiten 20-24, 2005.
- [131] K. Washino, H. S. Tan, M. J. Hounslow und A. D. Salman, "Meso-scale coupling model of DEM and CIP for nucleation processes in wet granulation", *Chemical Engineering Science*, (**86**), Seiten 25-37, 2013.
- [132] R. Patel, D. Wang und C. Zhu, "Modeling of Liquid Bridge and Surface Wetting on Two Rigid Spherical Particles", in Proceeding: *ASME 2010 3rd Joint US-European Fluids Engineering Summer Meeting collocated with 8th International Conference on Nanochannels, Microchannels, and Minichannels*, Seiten 397-401, 2010.