

ÜBER EINE MODIFIZIERTE STRAHLAGGLOMERATIONSANLAGE  
ZUR HERSTELLUNG SCHNELL DISPERGIERBARER PULVER

*SH*

# Über eine modifizierte Strahlagglomerationsanlage zur Herstellung schnell dispergierbarer Pulver

Zur Erlangung des akademischen Grades eines  
**Doktors der Ingenieurwissenschaften (Dr.-Ing.)**  
von der Fakultät für Chemieingenieurwesen  
der Universität Fridericiana Karlsruhe  
(Technische Hochschule)

genehmigte

**Dissertation**

von  
Dipl.-Ing. Stefan Heinrich Hogekamp  
aus Lyallpur in Pakistan (heute: Faisalabad)

Tag des Kolloquiums:	12.07.1997
Referent:	Prof. Dr.-Ing. habil. H. Schubert
Korreferent:	Prof. Dr. rer. nat. H. Buggisch



152 Abbildungen, 7 Tabellen, 1 Farbtafel

Copyright © MCMXCVII by S. Hoge­kamp, Karlsruhe  
Alle Rechte der Vervielfältigung und Veröffentlichung vorbehalten  
Nachdruck, auch auszugsweise, nur mit schriftlicher Einwilligung des Verfassers  
Grafische Gestaltung, Satz, Druck und Bindung:  
S. Hoge­kamp und C. Persch, Karlsruhe

1. Aufl. – 1997  
Printed in Germany

Verbindlich für die Rechtschreibung: DUDEN, 20., neu bearb. und erw. Aufl. Mannheim : Dudenverl. 1991

# Vorwort

Diese Dissertation enthält den überwiegenden Anteil der Ergebnisse meiner Arbeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Lebensmittelverfahrenstechnik der Universität Fridericiana Karlsruhe in den Jahren 1993 bis 1996. Im Lauf einer vorangegangenen annähernd vierjährigen Tätigkeit in der chemischen Industrie hatte sich bei mir der Wunsch entwickelt, zumindest eine Zeitlang als Wissenschaftler an einem Universitätsinstitut zu arbeiten.

Mein besonderer Dank gilt daher an dieser Stelle meinem Doktorvater, Herrn Professor Helmar Schubert, der es mir nicht nur ermöglichte, diesem Wunsch nachzukommen sondern durch viele Anregungen und – zumeist wohlwollende – Kritik diese Arbeit wesentlich mitgestaltet hat. Herr Professor Hans Buggisch vom Institut für Mechanische Verfahrenstechnik und Mechanik der Universität Karlsruhe übernahm freundlicherweise das Korreferat. Für die Gelegenheit, einige Experimente im Institut für Mechanische Verfahrenstechnik der TU Bergakademie Freiberg durchzuführen, bedanke ich mich bei Herrn Professor Klaus Husemann und seinen Mitarbeitern.

An dieser Stelle muß auch erwähnt werden, daß eine Dissertation in einem ingenieurwissenschaftlichen Fach außer den Geistesblitzen des Doktoranden üblicherweise erheblichen konstruktiven und experimentellen Aufwand erfordert. Die vorliegende Arbeit macht hiervon keine Ausnahme. Sie wäre unmöglich gewesen ohne die Mitarbeit der technischen Angestellten des Instituts sowie der mechanischen Werkstatt und ohne die zahlreichen Studenten der Fakultät für Chemieingenieurwesen, die als Hilfsassistenten, Seminar-, Studien- oder Diplomarbeiten an diesem Projekt mitgewirkt haben.

Meinen Kolleginnen und Kollegen am Institut danke ich für anregende Diskussionen, viele Tips und Hilfestellung bei der Überwindung der unvermeidlichen Stolpersteine. Ein großes Dankeschön an Tina, ohne die diese Arbeit nicht ihre ansehnliche äußere Form hätte, an Rainer, der mich auf die Idee zur Formulierung des Modells der sedimentationsbedingten Agglomeration brachte und an Kerstin, Evi und Silke für akribisches Korrekturlesen.

Auch die fleißigsten Mitarbeiter können die oben erwähnten Geistesblitze nicht in die Tat umsetzen, wenn es an dem fehlt, „was die Welt im Innersten zusammenhält“. J. W. v. GOETHE war sich bei der Niederschrift des „Faust“ bezüglich der Identität dieses Stoffs vielleicht noch nicht im klaren, doch heute wissen wir es besser. G. B. Shaw schrieb hierzu schon zu Beginn dieses Jahrhunderts: “The universal regard for money is the one hopeful fact in our civilization, the one sound spot in our social conscience. Money is the most important thing in the world. It represents health, strength, honour, generosity, and beauty as conspicuously as the want of it represents illness, weakness, disgrace, meanness, and ugliness.” Ich habe dem nichts hinzuzufügen außer meinem Dank an die Deutsche Forschungsgemeinschaft, die Arbeitsgemeinschaft für industrielle Forschungsförderung, das International Fine Particle Research Institute sowie verschiedene Industriefirmen für die Bereitstellung kleinerer und größerer Mengen dieser unverzichtbaren Substanz.

Karlsruhe, im Juli 1997

*Stefan Hegekamp*

# Inhalt

<b>1</b>	<b>Einleitung und Problemstellung</b> .....	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Bisheriger Wissensstand</b> .....	<b>5</b>
<b>2.1</b>	<b>Haftkräfte zwischen Partikeln im Haufwerk</b> .....	<b>5</b>
2.1.1	Systematik der Haftkräfte .....	5
2.1.2	Haftkräfte zwischen trockenen Partikeln .....	7
2.1.3	Haftkräfte zwischen Partikeln bei Vorhandensein freibeweglicher Flüssigkeit .....	13
2.1.4	Zusammenhang zwischen Haftkraft und Zugfestigkeit eines Agglomerats .....	15
2.1.5	Einfluß von Rauigkeiten auf die Haftkräfte .....	16
2.1.6	Einfluß äußerer Kräfte auf die Partikelhaftung .....	19
<b>2.2</b>	<b>Dampfstrahlagglomeration von Pulvern</b> .....	<b>20</b>
2.2.1	Systematik der Agglomerationsverfahren .....	21
2.2.2	Ergebnisse der Untersuchungen von SCHUCHMANN .....	24
2.2.3	Patentliteratur .....	29
<b>3</b>	<b>Meßmethoden</b> .....	<b>33</b>
<b>3.1</b>	<b>Charakterisierung der Eigenschaften des Ausgangsmaterials</b> .....	<b>33</b>
3.1.1	Bestimmung der Partikelgröße .....	34
3.1.2	Bestimmung des Wassergehalts .....	37
3.1.3	Prüfmethode zur Abschätzung der Eignung eines Pulvers für die Dampfstrahlagglomeration .....	38
3.1.4	Bestimmung weiterer Eigenschaften .....	44

<b>3.2</b>	<b>Charakterisierung der Eigenschaften des agglomerierten Produkts</b> .....	49
3.2.1	Bestimmung der Partikelgröße .....	49
3.2.2	Bestimmung der Agglomeratporosität .....	63
3.2.3	Bestimmung der Bruch- und Abriebfestigkeit .....	68
3.2.4	Bestimmung des Benetzungsverhaltens .....	70
3.2.5	Bestimmung der Schüttdichte .....	73
<b>3.3</b>	<b>Beschreibung der Strömungsverhältnisse in der Dampfstrahl-Agglomerationsanlage</b> .....	73
3.3.1	Visuelle Beobachtung .....	74
3.3.2	Hitzdrahtanemometrie .....	75
<b>4</b>	<b>Voragglomeration</b> .....	77
<b>4.1</b>	<b>Methoden zur Agglomeration ohne Zusatz von Bindemitteln</b> .....	78
4.1.1	Wälzdruckkompaktieren und Tablettieren .....	79
4.1.2	Lochpressen und Extrudieren .....	83
4.1.3	Agglomeration unter Vibrationseinfluß .....	87
4.1.4	Roll- und Mischagglomeration .....	89
4.1.5	Sintern .....	92
<b>4.2</b>	<b>Experimente zur Voragglomeration</b> .....	93
4.2.1	Vorversuche zur Beeinflussung der Haftkräfte im Pulver .....	93
4.2.2	Wälzdruckkompaktieren .....	101
4.2.3	Andere Methoden zur Voragglomeration .....	110
<b>5</b>	<b>Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone</b> .....	117
<b>5.1</b>	<b>Grundlagen der Partikelabscheidung</b> .....	118
5.1.1	Kräfte an einer umströmten Einzelpartikel .....	118
5.1.2	Trägheitsbedingte Partikelabscheidung .....	120
<b>5.2</b>	<b>Bestimmung der kritischen Relativgeschwindigkeit kollidierender Partikeln</b> .....	122
5.2.1	Modell zur Beschreibung des geraden, zentralen Stoßes flüssigkeitsumhüllter Partikeln .....	122
5.2.2	Versuchsaufbau und experimentelle Untersuchungen .....	125
5.2.3	Ergebnis der Modellexperimente und Übertragung auf die Verhältnisse bei der Dampfstrahlagglomeration .....	128
<b>5.3</b>	<b>Experimente zur Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone</b> .....	133
5.3.1	Aufbau der Dampfstrahl-Agglomerationsanlage .....	133
5.3.2	Untersuchung der Strömungsverhältnisse im Dampfraum der Agglomerationsanlage .....	137
5.3.3	Einfluß der Stellung der Dampfdußen auf die Agglomeratgröße .....	142
5.3.4	Weitere Eigenschaften des agglomerierten Materials .....	148



5.4	Modellierung der Aufbauagglomeration im sedimentierenden Schwarm .....	153
5.4.1	Grundlegende Annahmen .....	153
5.4.2	Aufbau des Modells .....	155
5.4.3	Ergebnis der Modellrechnungen .....	157
6	Zusammenfassung .....	169
7	Literatur .....	173
8	Anhang .....	A 1
8.1	Anhang I – Programme und Makros .....	A 1
8.2	Anhang II – Stoffdaten .....	A 10
8.3	Anhang III – Instanteigenschaften handelsüblicher Produkte .....	A 20
8.4	Anhang IV – Mitwirkende <sup>1</sup> .....	A 22

---

<sup>1</sup> Nur Ganzleinausgabe.



# Formelzeichen und Abkürzungen

## Lateinisches Alphabet

$a$	Kontaktabstand	m
$a$	Beschleunigung	$\text{m} \cdot \text{s}^{-2}$
$a$	Dampfdüsenabstand	m
$A$	Bruchfläche	$\text{m}^2$
$\bar{A}$	mittlere Projektionsfläche	$\text{m}^2$
$a_{eff}$	effektiver Dampfdüsenabstand	m
$a_i, b_i$	Anpassungskoeffizienten zur Beschreibung des Zusammenhangs zwischen $\varepsilon$ und $i\xi$	–
$a_W$	Wasseraktivität	–
$a, b$	Anpassungskoeffizienten zur Beschreibung des Zusammenhangs zwischen $\eta$ und $\Psi$	–
$a, b, c$	Achsenlängen eines Ellipsoids	m
$a, b, c, d$	Anpassungskoeffizienten zur Beschreibung des Zusammenhangs $Ca_{50} = f(Re^*, \rho_p \cdot \rho_l^{-1}, x \cdot s^{-1})$	–
$a_1 \dots a_4$	Anpassungskoeffizienten für Kraft-Weg-Kurven	–
$c$	Konzentration (Volumenanteil)	–
$c_{p,p}$	spezifische Wärmekapazität einer Partikel	$\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
$c_w$	Widerstandsbeiwert	–
$Ca_{50}$	kritische Kapillarzahl	–
$d$	Dicke der Sorptionsschicht auf einer Oberfläche	m
$d$	Kapillardurchmesser	m
$d_A$	Agglomeratdurchmesser	m
$d_p$	Partikeldurchmesser	m
$e$	Durchmesser des abscheidungswirksamen Querschnitts vor einer angeströmten Partikel	m
$E_v$	beim Stoß dissipierte Energie	J

Formelzeichen und Abkürzungen	$f$	Korrekturfaktor	–
	$F$	Kraft (Haftkraft)	N
	$F_i$	an einer einzelnen Kontaktstelle übertragene Kraft	N
	$F_{max}$	maximale Haftkraft	N
	$F_p$	Anpreßkraft	N
	$F_{tr}$	Trennkraft	N
	$F_{vdW}^{oi}$	van der Waals-Kraft Kugel–Halbraum	N
	$F_{vdW}^{oo}$	van der Waals-Kraft Kugel–Kugel	N
	$F_{vdW,r}^{oi}$	van der Waals-Kraft Rauhigkeitserhebung (Radius $r$ )–Halbraum	N
	$F_{vdW,R}^{oi}$	van der Waals-Kraft Kugel (Radius $R$ )–Halbraum	N
	$F_{z,i}$	Komponente von $F_i$ in $z$ -Richtung	N
	$GW$	Grauwert	–
	$GW(i,j)$	Grauwert des Bildpunkts $j$ in Bildzeile $i$	–
	$h$	Fallhöhe	m
	$\Delta h_v$	spezifische Verdampfungsenthalpie des Wassers	$J \cdot kg^{-1}$
	$\Delta \tilde{h}_v$	molare spezifische Verdampfungsenthalpie des Wassers	$J \cdot mol^{-1}$
	$H$	Höhe einer Pulverschüttung	m
	$i, k$	Zählvariablen	–
	$k$	Koordinationszahl	–
	$k$	Stoßzahl	–
	$L$	Länge der Agglomerationszone	m
	$L_{Walze}$	Länge einer Walze des Wälzdruckkompaktierers	m
	$m_k$	Kondensatmasse	kg
	$M_{1,2}$	vollständiges erstes Moment der Oberflächen- dichteverteilung eines Partikelkollektivs	m
	$M_{3,0}$	vollständiges drittes Moment der Anzahl- dichteverteilung eines Partikelkollektivs	m
	$n$	Gesamtzahl der Partikeln	–
	$N_i$	Zahl der Partikeln der Klasse $i$ in einer Höhenschicht	–
	$O_p$	Oberfläche einer Partikel	$m^2$
	$p$	Druck allgemein bzw. Gesamtdruck	Pa
	$p^*$	Dampfdruck in der Agglomerationszone	Pa
	$p_k$	Kapillardruck	Pa
	$p_{pl}^H$	Hertzsche Härte	Pa
	$p_{vdW}$	van der Waals-Druck	Pa
	$p_{vdW12}(z_0)$	van der Waals-Druck zwischen zwei Halbräumen $1$ und $2$ im Abstand $z_0$	$N \cdot m^{-2}$
	$Q$	Wärmemenge	J
	$r$	Radius einer halbkugeligen Rauhigkeitserhebung	m
	$r_i$	effektiver Radius abreinigender Partikeln der Klasse $i$	m
	$R$	Kugel-/Partikelradius allgemein	m
	$R_1$	Radius Kugel 1	m
	$R_2$	Radius Kugel 2	m
	$s$	Dicke einer Flüssigkeitsschicht	m
	$s$	Höhe des Düsenpals	m

$t$	Zeit allgemein	s	Formelzeichen und Abkürzungen
$t_b$	Benetzungszeit einer Pulverschüttung	s	
$T$	absolute Temperatur	K	
$u_g$	Gasgeschwindigkeit	$m \cdot s^{-1}$	
$v$	Geschwindigkeit allgemein	$m \cdot s^{-1}$	
$V$	Volumen allgemein	$m^3$	
$v_h$	Gasgeschwindigkeitskomponente in Horizontalrichtung	$m \cdot s^{-1}$	
$v_i$	Geschwindigkeit von Partikeln der Klasse $i$ relativ zu kleineren Partikeln	$m \cdot s^{-1}$	
$v_{Gas,max}$	maximale Gasgeschwindigkeit	$m \cdot s^{-1}$	
$v_{0,Gas}$	Gasgeschwindigkeit an der Düsenmündung	$m \cdot s^{-1}$	
$v_{\perp}$	Geschwindigkeit senkrecht zur Oberfläche	$m \cdot s^{-1}$	
$v_{\parallel}$	Geschwindigkeit parallel zur Oberfläche	$m \cdot s^{-1}$	
$v'_{\parallel}$	Geschwindigkeit parallel zur Oberfläche nach einer Kollision ohne Haftung	$m \cdot s^{-1}$	
$\Delta v_0$	Relativgeschw. sedimentierender Einzelpartikeln	$m \cdot s^{-1}$	
$\Delta v'$	reduzierte Relativgeschwindigkeit (im Schwarm)	$m \cdot s^{-1}$	
$V_{abger,i}$	Durch Partikeln der Klasse $i$ abgereinigtes Volumen	$m^3$	
$V_{ges}$	Gesamtvolumen	$m^3$	
$V_h$	Hohlraumvolumen	$m^3$	
$V_L$	Volumen einer Flüssigkeitsbrücke	$m^3$	
$V_s$	Volumen eines Festkörpers	$m^3$	
$V_1$	Volumen der 1. Schicht des Rechenmodells	$m^3$	
$w$	Bewegungsgeschwindigkeit einer Partikel	$m \cdot s^{-1}$	
$W_{tr}$	Trennarbeit	J	
$WG$	Wassergehalt (kg Wasser / kg Trockensubstanz)	–	
$x$	Kugel-/Partikeldurchmesser allgemein	m	
$x$	Ortskoordinate	m	
$x_{1,2}$	Sauterdurchmesser	m	
$x_{50,3,A}$	Medianwert der Partikelgrößenverteilung der Agglomerate in der Mengengart Volumen	m	
$x_{50,3,E}$	Medianwert der Partikelgrößenverteilung des zudosierten (voragglomerierten) Pulvers	m	
$x_{50,3,A,0}$	$x_{50,3,A}$ zum Zeitpunkt $t = 0$	m	
$x_{50,3,E,0}$	$x_{50,3,E}$ zum Zeitpunkt $t = 0$	m	
$x_{\infty}$	unendlicher Abstand	m	
$z$	Ortskoordinate senkrecht zu einer Ebene	m	
$z$	Zählvariable der Höhenschichten	–	

## Griechisches Alphabet

$\alpha$	Anstellwinkel der Dampfdüsen zur Horizontalen	–
$\alpha$	Wärmeübergangskoeffizient	$W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$
$\alpha_E$	Greifwinkel	–

Formelzeichen und Abkürzungen	$\alpha'_E$	Einzugswinkel	–
	$\beta$	halber Zentriwinkel einer Flüssigkeitsbrücke	–
	$\beta$	Stoffübergangskoeffizient	$\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$
	$\gamma_l$	Oberflächenspannung einer Flüssigkeit	$\text{N} \cdot \text{m}^{-1}$
	$\gamma_{l/g}$	Grenzflächenspannung einer Flüssigkeit gegen Luft	$\text{N} \cdot \text{m}^{-1}$
	$\delta_{12}$	Diffusionskoeffizient	$\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
	$\delta_{dyn}, \delta_{eff}$	dynamischer und effektiver Randwinkel	–
	$\varepsilon$	Volumenporosität	–
	$\varepsilon_1, \varepsilon_2 (i\xi)$	relative Dielektrizitätskonstante des Körpers 1 bzw. 2 bei der komplexen Frequenz $i\xi$	–
	$\varepsilon_a$	Agglomeratporosität	–
	$\varepsilon_{ges}$	Gesamtporosität	–
	$\varepsilon_p$	Primärpartikelporosität	–
	$\eta_l$	dynamische Viskosität einer Flüssigkeit	$\text{Pa} \cdot \text{s}$
	$\lambda$	Wellenlänge	$\text{m}$
	$\lambda_A$	Wärmeleitfähigkeit eines Agglomerats	$\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
	$\lambda_{diff}$	äquiv. Wärmeleitfähigkeit durch Dampfdiffusion	$\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
	$\nu_g$	kinematische Viskosität eines Gases	$\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
	$\rho$	Dichte allgemein	$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$
	$\rho, \rho'$	Haftbereichsradius bei Festkörperberührung	$\text{m}$
	$\rho_A$	Agglomeratdichte	$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$
	$\rho_g$	Gasdichte	$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$
	$\rho_l$	Flüssigkeitsdichte	$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$
	$\rho_p$	Partikeldichte	$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$
	$\sigma$	Streuungsparameter einer Verteilung	–
	$\sigma, \sigma_z$	Zugfestigkeit	$\text{Pa}$
	$\sigma_A$	Streuungsparameter der Partikelgrößenverteilung am Ausgang der Agglomerationszone	–
	$\sigma_E$	Streuungsparameter der Partikelgrößenverteilung am Eingang der Agglomerationszone	–
	$\sigma_{A,0}$	$\sigma_A$ zum Zeitpunkt $t = 0$	–
	$\nu$	Temperatur allgemein	$^{\circ}\text{C}$
	$\nu_{p,0}$	Temperatur einer Partikel zum Zeitpunkt $t = 0$	$^{\circ}\text{C}$
$\omega$	Kreisfrequenz	$\text{s}^{-1}$	
$\bar{\omega}$	charakteristische Kreisfrequenz der Fluktuation des elektromagnetischen Felds	$\text{s}^{-1}$	
$\varphi$	bezogenes Volumen einer Flüssigkeitsbrücke	–	

## Konstanten

$g$	Erdbeschleunigung	$9,81 \text{ m} \cdot \text{s}^{-2}$
$h$	Plancksches Wirkungsquantum	$6,62618 \cdot 10^{-34} \text{ J} \cdot \text{s}$
$\tilde{R}$	Universelle Gaskonstante	$8,3144 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
$z_0$	Minimaler Abstand ideal glatter Festkörper	$0,4 \text{ nm}$
$\pi$	Kreiszahl	$3,14159$

## Funktionen

Formelzeichen und  
Abkürzungen

$\partial$	partielle Differentiation
$\Delta$	Differenz
$q_0(x)$	Anzahldichteverteilung eines Partikelkollektivs (in $\text{mm}^{-1}$ )
$q_2(x)$	Oberflächendichteverteilung eines Partikelkollektivs (in $\text{mm}^{-1}$ )
$q_3(x)$	Volumendichteverteilung eines Partikelkollektivs (in $\text{mm}^{-1}$ )
$Q_0(x)$	Anzahlsummenverteilung eines Partikelkollektivs
$Q_3(x)$	Volumensummenverteilung eines Partikelkollektivs

## Dimensionslose Kennzahlen

$Ca$	Kapillarzahl	$v \cdot \eta_l \cdot \gamma_l^{-1}$
$Fo$	Fourierzahl (hier f. Einzelpartikel)	$4 \cdot \lambda_p \cdot t \cdot \rho_p^{-1} \cdot c_{p,p}^{-1} \cdot d_p^{-2}$
$K$	$Re^*$ · Dichteverhältnis	$\rho_p \cdot x \cdot \gamma_l/g \cdot \eta_l^{-2}$
$Re$	Reynoldszahl	$v \cdot d \cdot \rho \cdot \eta^{-1}$
$Re_A$	Agglomerat-Reynoldszahl	$u_g \cdot d_A \cdot v_g^{-1}$
$Re^*$	modifizierte Reynoldszahl	$\rho_l \cdot x \cdot \gamma_l/g \cdot \eta_l^{-2}$
$\eta$	Auftreffgrad	$e^2 \cdot d_A^{-2}$
$\Pi$	dimensionslose Größe allgemein	–
$\Pi_1$	Verlustenergieanteil	$^{12}/\pi \cdot E_v \cdot x^{-3} \cdot v^{-2} \cdot \rho_p^{-1}$
$\Psi$	Trägheitsparameter	$\rho_p \cdot u_g \cdot d_p^2 \cdot \eta_g^{-1} \cdot \gamma_l^2$
–	Dichteverhältnis	$\rho_p \cdot \rho_l^{-1}$
–	Geometrieverhältnis	$x \cdot s^{-1}$

## Abkürzungen

bit	<i>bit</i> of information, kleinste digitale Informationseinheit
Byte	8 bit = 1 Datenwort
CCD	<i>charge coupled device</i> , lichtempfindliches Halbleiterelement
DMS	Dehnmessstreifen
dpi	<i>dots per inch</i> , Einheit der Packungsdichte von CCDs
Megabyte, MB	$2^{20}$ Byte
NiCrNi	Nickel-Chrom-Nickel(-Thermoelement)
PAL	<i>phase angle luminance</i> , Videonormsystem
Pixel	<i>picture element</i> , Bildpunkt, auch Längeneinheit
PT100	temperaturvariabler Widerstand mit Nennwert 100 $\Omega$
RAM	<i>random access memory</i> , Computer-Arbeitsspeicher
REM	Raster-Elektronenmikroskop
RI	Rohrleitungen und Instrumentierung





*"Where shall I begin, please  
your Majesty?" he asked.  
"Begin at the beginning,"  
the King said, gravely,  
"and go on till you come  
to the end: then stop."  
Alice's Adventures in  
Wonderland  
LEWIS G. CARROLL*

# 1 Einleitung und Problemstellung

In vielen Industriezweigen, unter anderem auch in der Lebensmittelverarbeitung, hat sich seit langem die Agglomeration als Methode zur Verbesserung bestimmter Eigenschaften disperser Feststoffsysteme bewährt. Durch Agglomeration werden feindisperse Partikel zu größeren zusammengefügt, die als Schüttgut besser handhabbar sind und über definierte Eigenschaften verfügen. Agglomerationsverfahren werden angewandt, wenn der feindisperse Zustand des Feststoffs – verursacht durch seinen Herstellungsprozess oder erforderlich für seine spätere Weiterverarbeitung – vorübergehend aufgehoben werden soll. Hierzu zählen auch Anwendungen, bei denen staubförmige Produktionsrückstände mit Hilfe der Partikelvergrößerung einer Weiterverarbeitung überhaupt erst zugänglich gemacht werden. Die zu behandelnden Produkte können diskontinuierlich oder kontinuierlich in Mengen zwischen 100 kg/a und 100 Mio. t/a anfallen.

Die erforderliche Festigkeit der Bindungen zwischen den Primärpartikeln eines Agglomerats richtet sich nach dessen weiterem Verwendungszweck. Eigenschaften wie gleichmäßiges Schüttgewicht, gute Fließfähigkeit und Transportstabilität beeinflussen den Handhabungsaufwand des Herstellers und damit die Herstellungskosten. Dem stehen bestimmte Erwartungen des Anwenders bezüglich des Redispersierungsverhaltens des agglomerierten Produkts gegenüber, die bei der Beurteilung der Qualität entscheidend sein können. In der Lebensmittelindustrie, aber auch bei pharmazeutischen Anwendungen, ist häufig ein schnelles und vollständiges Zerfallen der Agglomerate nach der Wiederbefeuchtung erwünscht. Ähnliches gilt beispielsweise für Dispersionslacke, da der optische Eindruck und die Oberflächenqualität einer lackierten Fläche entscheidend vom Dispersitätszustand der Pigmentpartikeln abhängen. In diesen Fällen sind schwache Bindungskräfte im Agglomerat erforderlich, die außerdem beim Einbringen des Produkts in ein flüssiges Dispersiermedium verschwinden und möglichst durch abstoßende Wechselwirkungskräfte ersetzt werden sollen. Produkte, die aufgrund ihrer Be-

handlung in speziellen technischen Prozessen ein verbessertes Benetzungs-, Untersink- und Dispergierverhalten zeigen, werden häufig als „instantisiert“ bezeichnet. Verfahren wie beispielsweise die Agglomeration auf Tellern oder in Trommeln können meist nicht zum Instantisieren von Pulvern eingesetzt werden. Sie verleihen dem Produkt zwar gute Handhabbarkeit in Form einer hohen Agglomeratstabilität, die jedoch häufig auch bei der Wiederbefeuchtung erhalten bleibt und somit die Dispergierbarkeit einschränkt.

Es ist leicht einzusehen, daß nicht jede Methode zur Partikelvergrößerung für jeden Anwendungsfall eingesetzt werden kann. Es ist ebenfalls nicht möglich, alle interessierenden Eigenschaften eines Pulvers gleichermaßen zu optimieren, da in vielen Fällen einander widersprechende Forderungen gleichzeitig erfüllt werden müßten. Obwohl alle in der Industrie angewendeten Agglomerationsverfahren seit langem bekannt sind, existieren kaum Regeln zur Auslegung oder Fahrweise eines Apparats, um für das agglomerierte Produkt z.B. eine definierte Partikelgröße oder einen bestimmten Wert für Agglomeratfestigkeit und -porosität zu erzielen. Neben dem häufig nicht vorhersagbaren und bei Naturprodukten auch schwankenden Verhalten der Einsatzstoffe – dies betrifft insbesondere die Lebensmittelverfahrenstechnik – spielt hierbei auch eine Rolle, daß bei den meisten Verfahren alle Eigenschaften des Endprodukts im wesentlichen in einem einzigen Schritt eingestellt werden.

Allgemein gilt, daß zur Erzeugung stabiler Agglomerate zunächst die Primärpartikeln miteinander in Kontakt gebracht werden müssen, was üblicherweise durch Aufbringen äußerer Kräfte geschieht. Stärke und Reichweite der an den Kontaktstellen auftretenden Haftkräfte müssen so groß sein, daß das entstandene Agglomerat allen zu erwartenden trennenden Kräften widerstehen kann. Verfahren, in denen hohe Kräfte auf die einzelnen Partikeln einwirken, bewirken üblicherweise hohe Haftkräfte und führen zu stabilen, gleichmäßig geformten Agglomeraten von geringer Porosität und guter Handhabbarkeit, aber häufig ungünstigem Dispergierverhalten.

Das Agglomerieren von wasserlöslichen Produkten im Dampffreistrahler – im folgenden meist abgekürzt „Strahlagglomeration“ genannt – ist im Prinzip auch seit längerem bekannt und wird in verschiedenen Bauformen im industriellen Maßstab eingesetzt. Freifallende Partikeln werden hierbei in einer Befeuchungskammer oder einem Fallschacht durch kondensierenden Dampf und eventuell zusätzlich fein verdünte Flüssigkeit befeuchtet, gegeneinander bewegt – wobei aufgrund von Kollisionen die Partikelvergrößerung eintritt – und anschließend getrocknet. Ein wichtiges Einsatzgebiet des Verfahrens in der Nahrungsmittelindustrie ist die Herstellung von Instant-Getränkpulvern. Einsatzstoffe sind unter anderem verschiedene Zucker, wasserlösliche Lebensmittelextrakte, Milchpulver oder pulverisierte Milchbestandteile und Kakaopulver, die zur Verbesserung der Löslichkeit als feindisperse Pulver vorgelegt werden.

Es handelt sich bei der Strahlagglomeration also nach der bislang gängigen Vorstellung um ein Aufbauagglomerationsverfahren, bei dem das zu agglomerierende Material allerdings nicht in Form eines Gutbetts oder einer Wirbelschicht, sondern als sedimentierender Feststoff-Partikelschwarm vorliegt. Aufgrund der

Anlagerung von Partikeln aus einem niedrigkonzentrierten Schwarm und der hierbei wirkenden, kleinen Kräfte entstehen bei der Strahlagglomeration üblicherweise sehr lockere Agglomerate mit guten Redispersiereigenschaften. Ihre Festigkeit ist jedoch, verglichen z.B. mit Agglomeraten aus einer Wirbelschicht, etwas niedriger. Als wesentlicher Vorteil des Verfahrens gilt – neben der kontinuierlichen Fahrweise mit kurzen Verweilzeiten – der niedrige Flüssigkeitsbedarf, der eine entsprechend kleine Trocknungsleistung erfordert. Das Produkt wird thermisch wenig belastet, was insbesondere für die Verarbeitung von Lebensmitteln (Erhalt der Aromastoffe) und Pharmazeutika (Schonung empfindlicher Wirksubstanzen) von Bedeutung ist.

In dieser Arbeit wird eine modifizierte Variante des Strahlagglomerationsverfahrens vorgestellt, die sich von den gängigen Bauweisen durch den Versuch der räumlichen und funktionalen Trennung produktbeeinflussender Schritte unterscheidet. Hierdurch ist beabsichtigt, einerseits das Einstellen einzelner Produkteigenschaften bei verminderter gegenseitiger Beeinflussung und andererseits die Beschreibung der wirksamen physikalischen Mechanismen zu erleichtern.

Als Versuchsmaterialien dienen bei der Mehrzahl der Experimente reine Zucker in unterschiedlicher Korngröße: Saccharose, ein Disaccharid und Hauptbestandteil vieler Instant-Getränkpulver, Fructose, ein stark hygroskopisches Monosaccharid und Xylitol, ein Zuckeralkohol. Fructose und Xylitol eignen sich für Diabetiker-nahrung, Xylitol bewirkt außerdem eine reduzierte Kariesanfälligkeit.

Feindisperse Pulver – insbesondere Zucker – neigen bereits während der Zudosierung in den Agglomerationsapparat aufgrund von oberflächlich adsorbiertem Wasser und der van-der-Waals-Kraft zur Agglomeration. Mittels in-line-Messung der Größenverteilung der aus unterschiedlichen Dosiereinrichtungen austretenden Partikeln – nachfolgend als „Trocken-“ oder „Voragglomerate“ bezeichnet – und des feuchtagglomerierten Materials unterhalb der Dampfzone des Strahlagglomerationsapparats ist eine Aufteilung des gesamten Agglomerationsvorgangs in zwei getrennt zu betrachtende Vergrößerungsschritte möglich. Hierbei wird auch auf Möglichkeiten zur Beeinflussung der Voragglomeration des zudosierten Materials eingegangen. Die Partikelgrößenanalyse stützt sich im wesentlichen auf im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Bildauswertungsverfahren, die auch bei einem Experiment zur Bestimmung der Agglomeratporosität Verwendung finden.

Da die Agglomeration im Dampfraum von der Relativbewegung der Partikeln und der Haftwahrscheinlichkeit beim Partikelstoß abhängt, werden auch diese Aspekte experimentell untersucht und eine Beziehung zur Ermittlung kritischer Relativgeschwindigkeiten angegeben. Die in den oben genannten Experimenten ermittelten Daten werden zur Modellierung der durch unterschiedliche Sedimentationsgeschwindigkeiten bewirkten Agglomeration mit einer Populationsbilanz herangezogen.

Angaben zum optimalen Betrieb der vorgestellten Apparatur stützen sich auf die Ergebnisse der Modellrechnungen, Untersuchungen der Gasströmung im Agglomerationsraum und Partikelgrößenanalysen von Agglomeraten, die bei unterschiedlichen Betriebsbedingungen hergestellt wurden.



## 2 Bisheriger Wissensstand

### 2.1 Haftkräfte zwischen Partikeln im Haufwerk

#### 2.1.1 Systematik der Haftkräfte

Die von RUMPF (1958) erstmals aufgestellte Systematik der „Bindungsmechanismen der Kornvergrößerung“ ist heute in der verfahrenstechnischen Literatur allgemein anerkannt (z.B. CAPES, 1980, PIETSCH, 1991). Fünf Bindungsarten werden als wesentlich für das Agglomerieren bezeichnet. Alternativ können die Bindemechanismen auch anhand der Frage, ob stofflicher Kontakt zwischen den Partikeln besteht, in zwei Gruppen eingeteilt werden (vergl. SCHUBERT, 1986). Untenstehend werden die Bindungsmechanismen entsprechend der von RUMPF vorgenommenen Klassifizierung kurz vorgestellt und, soweit sie für das Thema dieser Arbeit von Bedeutung sind, in den nachfolgenden Kapiteln näher erläutert.

Es ist zu beachten, daß die Eigenschaften eines Agglomerats vor allem von Art, Stärke und Reichweite der Haftkräfte abhängen, die die Primärpartikeln verbinden. Haftkräfte unterliegen darüber hinaus zeitlichen Änderungen, verursacht z.B. durch Beanspruchung des Agglomerats und Wechselwirkungen mit der Umgebung, wie Ad- und Desorption, Wärmeübertragung, Austausch einer umgebenden Gasphase durch eine benetzende Flüssigkeit usw. Sie sind einer direkten Messung nicht zugänglich, da sie sich erst beim Versuch, aneinander haftende Partikeln zu trennen, bemerkbar machen. KRUPP (1967) definiert die Haftkraft dementsprechend als „... der absolute Betrag einer Kraft, die im Schwerpunkt einer Partikel angreift und parallel zur auswärts gerichteten Flächennormalen des Substrats wirkt, und als minimale Kraft zur Trennung der Verbindung zwischen Partikel und Substrat innerhalb einer vorgegebenen Zeitspanne erforderlich ist.“

Dementsprechend lässt sich die für die Trennung von Partikel und Substrat aufzuwendende Arbeit  $W_{tr}$  als Integral der abstandsabhängigen Haft- bzw. Trennkraft entlang des Trennwegs definieren (meist als Trenn- oder Haftenergie bezeichnet)<sup>1</sup>:

$$W_{tr} = \int_{x_0}^{x_{\infty}} F_{tr}(x) dx \quad (2-1)$$

### A. Festkörperbrücken

Ursache: Sinterung (oberhalb  $\frac{1}{2}$ – $\frac{2}{3}$  der absoluten Schmelztemperatur), Rekristallisation, Kornwachstum, chemische Reaktion, Schmelzhaftung (lokal an Rauigkeitskontakten durch Pressen und Reibungswärme), erhärtende Bindemittel und Kristallisation gelöster Substanzen. Im Extremfall können durch Festkörperbrücken Spannungen bis zur Bruchfestigkeit des Feststoffs, aus dem die Brücke besteht, übertragen werden. Das Deformationsverhalten des Feststoffs bestimmt die Reichweite der Haftkraft. Eine Zerstörung der Festkörperbrücke ist üblicherweise irreversibel.

### B. Grenzflächenkräfte und Kapillardruck an freibeweglichen Flüssigkeitsoberflächen (kapillare Haftkräfte)

Ursache: Flüssigkeitsbrücken zwischen den einzelnen Partikeln, Kapillarkräfte an der Oberfläche von flüssigkeitserfüllten Haufwerken und Oberflächenspannung partikelgefüllter Tropfen. Die Bindungskräfte werden durch die Grenzflächenkraft an der Berührungslinie Fest-Flüssig-Gas sowie durch den kapillaren Unterdruck übertragen. Brücken aus freibeweglicher Flüssigkeit sind per Definition leicht verformbar und können nach einer Trennung bei erneutem Kontakt der Partikeln wieder aufgebaut werden.

### C. Adhäsions- und Kohäsionskräfte in nicht freibeweglichen Bindemittelbrücken

Ursache: zähflüssige Bindemittel, Klebstoffe, Adsorptionsschichten (z.B. adsorbierte Wasserschichten mit einer Dicke  $< 3$  nm). Hierbei tragen Kohäsionskräfte zwischen den Bindemittelmolekülen im gesamten Querschnitt der Brücke zur Übermittlung der Haftkraft bei. Brücken aus zähflüssigen Bindemitteln sind nur in geringem Maße deformierbar (elastische Deformation gegenüber Fließen im Fall B), können aber nach einer Zerstörung bei erneutem Kontakt ebenfalls wieder aufgebaut werden.

---

<sup>1</sup> Die Formelzeichen sind zu Beginn der Arbeit zusammengestellt.

---

## D. Anziehungskräfte zwischen den Festkörperteilchen

Haftkräfte zwischen  
Partikeln im Haufwerk

Ursache: van-der-Waals-Kräfte (bei kleinen Abständen an Kontaktstellen zwischen Primärpartikeln), elektrostatische Kräfte (bei gegensinniger Aufladung der Partikeln), magnetische Anziehung und Valenzkräfte (bei der Agglomeration von untergeordneter Bedeutung). Die übertragbaren Haftkräfte sind meist niedriger als in den Fällen A, B und C. Es existiert eine reversible funktionale Abhängigkeit zwischen dem Partikelabstand und der Stärke der Wechselwirkung. Elektrostatische Wechselwirkungen zwischen elektrisch nichtleitenden Partikeln (Coulomb-Kräfte) haben von allen Bindemechanismen die höchste Reichweite (RUMPF, 1974).

## E. Formschlüssige Bindung

Ursache: Eine Partikelform, die das Verhaken der Partikeln erlaubt. Dieser Mechanismus ist vorwiegend für faserförmiges Material von Bedeutung. Auch hier werden theoretisch Spannungen bis zur Festigkeit des Feststoffs übertragen.

### 2.1.2 Haftkräfte zwischen trockenen Partikeln

Aus der Aufzählung der möglichen Haftmechanismen im vorangegangenen Abschnitt geht hervor, daß auch ohne direkten Kontakt stets Wechselwirkungskräfte zwischen Partikeln existieren. Insbesondere die van-der-Waals-Kraft ist stets vorhanden und trotz ihrer kurzen Reichweite von großem Einfluß auf das Verhalten feindisperser Partikeln in einem Haufwerk. Coulomb-Kräfte können bei der Agglomeration ebenfalls eine maßgebliche Rolle spielen, da sie einem geringeren Abstandseinfluß unterliegen.

Unter normalen Atmosphärenbedingungen ist allerdings immer davon auszugehen, daß sich auf den Oberflächen von Festkörpern unter anderem adsorbierte Wassermoleküle befinden. Sofern diese Adsorptionsschichten hinreichend dünn sind, d.h. die adsorbierten Moleküle noch nicht freibeweglich sind, sollen diese Partikeln trotzdem als „trocken“ angesehen werden.

Die unter diesen Bedingungen auftretenden Haftkräfte bestimmen auch das Verhalten des feindispersen Materials in der Pulverzufuhr einer Strahlagglomerationsanlage. Von ihnen hängt unter anderem die makroskopisch wahrgenommene Partikelgrößenverteilung des Aufgabeguts ab, die, wie später gezeigt werden wird, von Bedeutung für die Wirksamkeit der Aufbauagglomeration in der Dampfzone ist. Eine weitere, von Haftkräften abhängige Eigenschaft ist die Porosität des Haufwerks bzw. der Trockenagglomerate, die sich unter dem Einfluß äußerer Druck- und Schubbeanspruchung während der Dosierung des Pulvers einstellt. Es wird ebenfalls gezeigt werden, daß die Aufbauagglomeration keine wesentliche Änderung der Porosität zur Folge hat. Damit hängen zwei wichtige Eigenschaften des Endprodukts von den im Ausgangsmaterial wirkenden Haftkräften ab.

Die van-der-Waals-Wechselwirkung von Molekülen und makroskopischen Körpern wird durch elektromagnetische Fluktuationen hervorgerufen und ist – unabhängig vom Aggregatzustand der Materie – stets existent. Die *mikroskopische Theorie* der van-der-Waals-Kraft, die unter anderem von DE BOER, LONDON und HAMAKER in den dreißiger Jahren entwickelt wurde (vgl. KRUPP, 1967), beruht auf den Wechselwirkungen zwischen einzelnen Atomen und Molekülen und ihrer postulierten Superponierbarkeit zur Beschreibung des Verhaltens makroskopischer Körper. LIFSHITZ dagegen ging bei der Entwicklung der *makroskopischen Theorie* (vgl. KRUPP) im Jahr 1956 direkt von den optischen Eigenschaften der wechselwirkenden Körper aus und berechnete die Intensität der Fluktuation aus dem komplexen Anteil der Dielektrizitätskonstante der jeweiligen Substanz und den Maxwell'schen Gleichungen. Für molekular kristallisierende Substanzen ist hauptsächlich der UV-Bereich des elektromagnetischen Absorptionsspektrums von Interesse. KRUPP übertrug das makroskopische Modell von LIFSHITZ auf die Wechselwirkung einer Kugel mit einem Halbraum und auf die Wechselwirkung zwischen zwei Kugeln (siehe Abbildung 2-1).

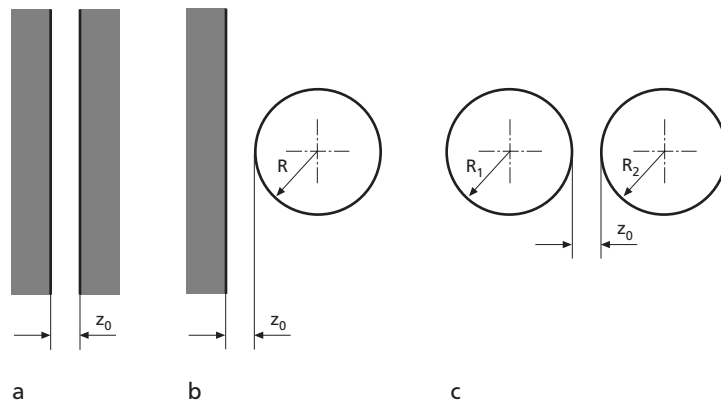


Abbildung 2-1: Schematische Darstellung der Haftsysteeme Halbraum-Halbraum (a), Kugel-Halbraum (b) und Kugel-Kugel (c).

Für die Wechselwirkung zwischen zwei Halbräumen im Abstand  $z_0$  (siehe Abbildung 2-1 a) liefert die makroskopische Theorie für die van-der-Waals-Kraft bezogen auf die Kontaktfläche (auch als van-der-Waals-Druck bezeichnet) das folgende Ergebnis:

$$P_{vdw}^- = \frac{\hbar \bar{\omega}}{8 \pi^2 z_0^3} \quad (2-2)$$

Die van-der-Waals-Anziehungskraft zwischen einem Halbraum und einer Kugel mit Radius  $R$  (siehe Abbildung 2-1 b), beziehungsweise zwischen zwei Kugeln mit unterschiedlichen Radien  $R_1$  und  $R_2$  (Abbildung 2-1 c), läßt sich ebenfalls berechnen:



$$F_{vdW}^{\infty} = \frac{\hbar \bar{\omega} R}{8 \pi z_0^2} \quad (2-3)$$

Haftkräfte zwischen  
Partikeln im Haufwerk

$$F_{vdW}^{\infty} = \frac{\hbar \bar{\omega}}{8 \pi z_0^2} \cdot \frac{R_1 \cdot R_2}{R_1 + R_2} \quad (2-4)$$

Es ist hierbei:

$$2 \pi \hbar = h \quad (\text{Plancksches Wirkungsquantum}) \quad (2-5)$$

$$\bar{\omega} = \int_0^{\infty} \frac{\varepsilon_1(i\xi) - 1}{\varepsilon_1(i\xi) + 1} \cdot \frac{\varepsilon_2(i\xi) - 1}{\varepsilon_2(i\xi) + 1} d\xi \quad (2-6)$$

Die Dielektrizitätskonstanten  $\varepsilon_i$  werden hierbei aus Gründen der besseren Handhabbarkeit als reale Größen in Abhängigkeit von der komplexen Frequenz  $i\xi$  dargestellt. Liegt das Spektrum der Dielektrizitätskonstanten im relevanten Frequenzbereich vor, können die van-der-Waals-Wechselwirkungen nach den Gleichungen 2-2 bis 2-4 berechnet werden, indem das Integral in Gleichung 2-6 numerisch ausgewertet wird. In den meisten Fällen sind nach KRUPP die folgenden Vereinfachungen zulässig:

$$\frac{\varepsilon_i(i\xi) - 1}{\varepsilon_i(i\xi) + 1} = a_i \exp(-b_i i\xi) \quad (2-7)$$

und damit

$$\int_0^{\infty} \frac{\varepsilon_1(i\xi) - 1}{\varepsilon_1(i\xi) + 1} \cdot \frac{\varepsilon_2(i\xi) - 1}{\varepsilon_2(i\xi) + 1} d\xi = \frac{a_1 \cdot a_2}{b_1 + b_2} \quad (2-8)$$

Hieraus wird abgeleitet, daß sich die van-der-Waals-Wechselwirkung zwischen zwei Körpern unterschiedlicher Zusammensetzung als geometrisches Mittel der Wechselwirkungen zwischen entsprechenden Körpern aus jeweils nur der einen oder der anderen Substanz berechnen läßt:

$$P_{vdW12}^-(z_0) \approx \sqrt{P_{vdW11}^-(z_0) \cdot P_{vdW22}^-(z_0)} \quad (2-9)$$

Es wird bei allen oben genannten Berechnungen vorausgesetzt, daß die Grenzflächen der Körper bzw. Halbräume ideal glatt sind und im Zwischenraum Vakuum herrscht (wobei allerdings eine Gasatmosphäre aufgrund ihrer geringen Dichte ebenfalls noch zulässig ist). Ein Schwachpunkt in dieser Vorgehensweise ist der unbekannte Wert des minimalen Kontaktabstands  $z_0$ . KRUPP setzte hier erstmals – aus Plausibilitätsüberlegungen heraus, aber letztendlich willkürlich – einen Wert von 0,4 nm an.

Für reale Stoffsysteme nimmt die Lifshitz-van-der-Waals-Konstante  $\hbar \bar{\omega}$  Werte zwischen 0,6 und 9 eV an. Große Werte werden von Metallen erreicht, während

höhermolekulare Stoffe eher in der Größenordnung  $< 1$  eV liegen (für Wasser beträgt  $\hbar\omega$  nach KRUPP 1,4 eV). Mit der Annahme  $z_0 = 0,4$  nm ergeben sich entsprechend Gleichung 2–2 van-der-Waals-Drücke zwischen 20 und 300 MPa. Diese Werte liegen im Bereich der Festigkeit der soliden Materie, insbesondere bei molekular kristallisierenden Substanzen, da hier auch im Kristall die van-der-Waals-Kraft der dominierende Bindungsmechanismus ist.

Die Wechselwirkungen zwischen zwei Körpern bzw. Halbräumen 1 und 2 können stark verändert werden, wenn der Raum zwischen ihnen von einem dritten Körper eingenommen wird (KRUPP, 1967, SCHÜTZ, 1979). Der Körper 3 – dies kann auch eine Adsorptionsschicht auf Körper 1 und/oder Körper 2 sein – kann die van-der-Waals-Kraft auf verschiedene Arten beeinflussen:

- Abschirmung der Wechselwirkung 1–2 durch Absorption der elektromagnetischen Strahlung,
- Verringerung der Wechselwirkung 1–2 aufgrund des vergrößerten Abstands zwischen den Körpern,
- Auftreten zusätzlicher Wechselwirkungen 1–3 und 3–2, wobei die schwächere dieser beiden zusätzlich zur (veränderten!) Wechselwirkung 1–2 überwunden werden muß, wenn die beiden Körper getrennt werden sollen.

Für Wechselwirkungen zwischen Halbräumen können diese Veränderungen berechnet werden, sofern die Dicke des Körpers 3 größer als die Strecke ist, innerhalb derer die elektromagnetischen Fluktuationen korreliert sind. Nur in diesem Fall ist die Theorie von LIFSHITZ gültig. In vielen praktischen Fällen ist davon auszugehen, daß die Wechselwirkung 1–2 aufgrund der  $z^{-3}$ -Abhängigkeit praktisch vollständig abgeschirmt wird und die resultierende Haftkraft die kleinere der Wechselwirkungen 1–3 und 3–2 ist. Falls der Körper 3 über eine geringe optische Dichte im UV-Spektrum verfügt, führt dies zu einer erheblichen Verringerung der Haftkraft. Eine optisch dichte Schicht zwischen zwei Körpern mit schwacher van-der-Waals-Konstante kann dagegen eine Verstärkung der Haftkraft bewirken (KRUPP). Das System Halbraum–Halbraum kann von praktischem Interesse sein, da (insbesondere gemahlene) kristalline Substanzen üblicherweise eine Oberfläche haben, die aus ebenen Teilflächen zusammengesetzt ist. Allerdings ist zu berücksichtigen, daß sich auf realen Festkörperoberflächen stets Nanorauhigkeiten befinden, die den Kontaktabstand vergrößern und somit einen wesentlichen Einfluß auf die Haftkraft ausüben.

SCHÜTZ (1979) befaßte sich bei seinen Untersuchungen zur Haftung von Feststoffpartikeln an Festkörperoberflächen bereits mit dem komplizierteren Fall, daß eine Kugel mit einem Halbraum in Wechselwirkung steht, der von einer dünnen Sorptionsschicht bedeckt ist (Abbildung 2–2). Hier ist von entscheidender Bedeutung, ob die Sorptionsschicht starr ist oder beim Kontakt mit der Kugel nachgibt und den Festkörperkontakt erlaubt. Als Beispiel soll der Fall einer kugelförmigen Partikel von 100 µm Durchmesser betrachtet werden, auf der sich ein Sorptionsfilm von 1 % der Kugelmasse befindet. Die Dicke der Schicht beträgt bei einer Dichte von  $1.000 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  etwa 16 nm. Für den hypothetischen Fall eines

völlig starren Films (Abbildung 2–2 a) und unter der Annahme des Minimalabstands von  $z_0 = 0,4 \text{ nm}$  reduziert sich die Wechselwirkung Kugel–Halbraum um einen Faktor von mehr als 1.600. Eine Wechselwirkung zwischen der Sorptionsschicht und der Kugel kann die Abschirmung der ursprünglichen Haftkraft nur kompensieren, wenn die Sorptionsschicht eine dem Feststoff vergleichbare oder höhere van-der-Waals-Konstante hat. Dieser Fall ist für höhermolekulare Festkörper, die üblicherweise niedrige van-der-Waals-Konstanten haben, denkbar.

Haftkräfte zwischen Partikeln im Haufwerk

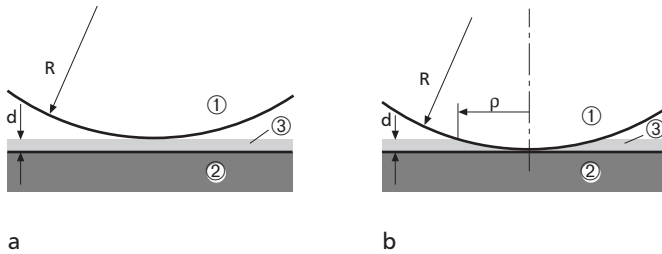


Abbildung 2–2: Haftsystme Kugel/Halbraum bei Vorhandensein einer Sorptionsschicht auf dem Substrat (SCHÜTZ, 1979).  
a: starke Sorption  
b: schwache Sorption

Wenn die Sorptionsschicht das Eintauchen der Kugel und den direkten Kontakt zwischen den Festkörpern erlaubt (Abbildung 2–2 b), reduziert sich die abschirmende Wirkung auf die Wechselwirkung Kugel–Halbraum verglichen mit dem oben genannten Fall. Es tritt nun jedoch zusätzlich eine anziehende Wechselwirkung im Kontaktbereich Kugel–Sorptionsschicht auf. Für kleine Schichtdicken  $d$  beträgt die Größe dieses Kontaktbereichs ungefähr  $2 \cdot \pi \cdot R \cdot d$  (SCHÜTZ, 1979), woraus sich für oben genanntes Beispiel einer  $100 \mu\text{m}$ -Kugel eine Kontaktzone von  $\approx 5 \mu\text{m}$  Durchmesser ergibt. Sofern die Wechselwirkungen zwischen Halbraum und Sorptionsschicht bzw. Kugel und Sorptionsschicht nicht wesentlich schwächer sind als die Wechselwirkung Kugel–Halbraum, ist eine Verstärkung der Haftkraft möglich. Es kann daher erwartet werden, daß beispielsweise molekular kristallisierende organische Substanzen in Anwesenheit von wäßrigen Sorptionsschichten intensivere Haftung zeigen.

Eine quantitative Bestimmung der Haftkraftverstärkung ist jedoch selbst für ideale Geometrien nicht möglich. Zum einen kann nicht vorhergesagt werden, wie weit sich zwei Körper bei Anwesenheit einer Sorptionsschicht einander nähern können, da die Intensität der Bindung der Moleküle in der Sorptionsschicht an die Festkörperoberfläche mit zunehmender Nähe zur Oberfläche ansteigt. Es wird sich also stets ein Zustand zwischen den in Abbildung 2–2 a und b dargestellten Extremen einstellen. Zum anderen erlaubt die Theorie von LIFSHITZ die Berechnung der van-der-Waals-Wechselwirkung nur, wenn die Dicke der beteiligten Körper größer als ihre jeweilige Korrelationslänge ist (KRUPP, 1967, SCHÜTZ, 1979). Ist das Material des Festkörpers in der adsorbierten Schicht löslich, wie z.B. bei der Materialpaarung Zucker–Wasser, werden die Verhältnisse nochmals wesentlich komplizierter. In diesem Fall lassen sich sowohl die Deformationseigenschaften der Sorptionsschicht als auch die Intensität ihrer elektromagnetischen Wechselwirkung mit den beteiligten festen Phasen nicht exakt beschreiben.

Elektrostatische Kräfte können im Gegensatz zur van-der-Waals-Kraft anziehende oder abstoßende Wirkung haben, je nachdem ob die wechselwirkenden Körper gegenseitig oder gleichsinnig geladen sind. Elektrostatische Aufladung eines Pulvers kann als Folge der Reibung der Partikeln an den Wänden von Apparaten auftreten (*Triboelektrizität*), aber auch durch Zerkleinerung oder die Absorption von Ladungsträgern. An Kontaktstellen zwischen Partikeln aus unterschiedlicher Substanz kann ein Ladungsaustausch infolge unterschiedlicher Elektronenaustrittsarbeit erfolgen.

Der Maximalwert der Überschußladungsdichte liegt bei 100 Elementarladungen je  $\mu\text{m}^2$ . Für ideal glatte, kugelförmige Körper unterhalb 100  $\mu\text{m}$  Durchmesser muß die elektrostatische Kraft nicht berücksichtigt werden, da sie auch bei maximaler Ladungsdichte bzw. hohen Kontaktpotentialen deutlich kleiner als die van-der-Waals-Kraft ist. Bei realen Stoffsystemen ist sie dagegen nicht mehr vernachlässigbar (KRUPP, 1967, RUMPF, 1974).

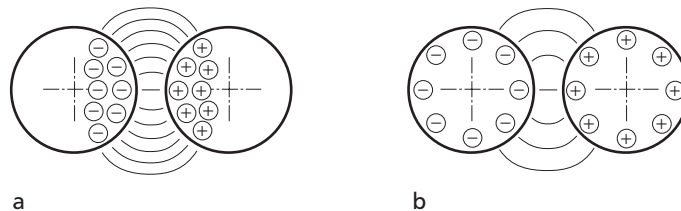


Abbildung 2-3: Ladungsverteilung bei elektrisch leitenden Körpern (a) und elektrischen Isolatoren (b).

Die Verteilung der Ladungsträger hängt von der Leitfähigkeit der beteiligten Stoffe ab (Abbildung 2-3). Sobald ein Kontakt erfolgt, kann einerseits eine aufgrund vorheriger, gegensinniger Aufladung bestehende Anziehungskraft bei leitfähigen Partikeln nachlassen, da ein Ladungsausgleich möglich ist. PIETSCH (1991) schließt daraus, daß eine Anziehung zwischen Partikeln aufgrund von Überschußladungen allenfalls im Anfangsstadium der Agglomeratbildung von Bedeutung ist. Unterschiede in der Elektronenaustrittsarbeit können jedoch andererseits bewirken, daß sich an Berührungspunkten zwischen Partikeln aus unterschiedlichem Material ein Kontaktpotential aufbaut und ebenfalls eine elektrostatische Anziehungskraft wirksam wird.

In Kollektiven von Partikeln aus der gleichen Substanz ist im Normalfall nur eine gleichsinnige Aufladung möglich, die eine Abstoßung der Partikeln zur Folge hat. Bei den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Reinstoffsystemen kann die elektrostatische Kraft demnach keinen Beitrag zur Agglomeration liefern. Es ist im Gegenteil darauf zu achten, daß bei allen Verfahrensschritten elektrostatische Aufladung vermieden wird. Dies gilt sowohl für die eigentliche Agglomeration als auch für Laborexperimente zur Ermittlung bestimmter Stoffeigenschaften. Unter ungünstigen Umständen kann z. B. bei Saccharose die abstoßende Coulomb-Kraft bis zu Partikelgrößen von etwa 1 mm größer als die Gewichtskraft sein.

### Einführung

Mit zunehmender Dicke einer Sorptionsschicht von Wassermolekülen auf einem festen Substrat läßt die Bindung der Moleküle in der gas/flüssig-Grenzfläche an das Substrat nach, bis sich schließlich eine sogenannte freie Flüssigkeitsoberfläche einstellt. Es existiert also ein Übergangsbereich zwischen fester Sorption und freier Beweglichkeit der Flüssigkeit. Eine benetzende Flüssigkeit mit freibeweglicher Oberfläche im Kontaktbereich zweier Körper trägt aufgrund der Grenzflächen-spannung der Flüssigkeit zur Haftung bei. Die Haftkraft wird hierbei ausschließlich durch Oberflächenkräfte in der gas/flüssig-Grenzfläche übertragen (RUMPF, 1958).

Agglomerate aus Feststoffpartikeln und geringen Mengen Flüssigkeit, die in dieser Arbeit betrachtet werden, befinden sich nach der üblichen Einteilung der Sättigungszustände flüssigkeitserfüllter Haufwerke im sogenannten *Brückenbereich*, d.h., die einzelnen Partikeln sind durch isolierte Flüssigkeitsbrücken miteinander verbunden. Die Stärke der an den Kontaktpunkten übertragenen Haftkraft hängt von der Geometrie der beteiligten Körper, den Benetzungseigenschaften der Flüssigkeit und den Abmessungen der Brücke ab (Abbildung 2–4). PIETSCH und RUMPF (1967) veröffentlichten eine Näherungslösung zur Berechnung der Haftkraft für monodisperse Kugelschüttungen.

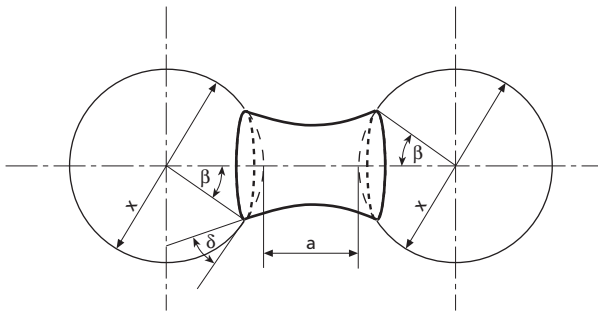


Abbildung 2–4: Flüssigkeitsbrücke zwischen zwei gleich großen Kugeln (SCHUBERT, 1972).

SCHUBERT (1972, 1982) löste erstmals auf numerischem Weg für verschiedene rotationssymmetrische Geometrien die Differentialgleichung, die den Konturverlauf der Flüssigkeitsbrücke beschreibt. Damit war es ihm möglich, die übertragene Haftkraft zu berechnen und in Form von Diagrammen darzustellen. Die Voraussetzung für die Gültigkeit der Lösungen sind auch hier ideal glatte Oberflächen und exakte Einhaltung der Geometrie.

Für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Stoffsysteme aus Zuckern und ihren wässrigen Lösungen spielt Haftung aufgrund von Flüssigkeitsbrückenkräften eine wichtige Rolle. Im Kontakt mit Luft kann sich – in Abhängigkeit von der Wasseraktivität – bereits im „trockenen“ Ausgangsmaterial ein Wassergehalt ein-

stellen, der das Auftreten von Flüssigkeitsbrücken erlaubt. Auch bei Raumtemperatur sind gesättigte Zuckerlösungen noch mittelviskos (siehe Anhang II), so daß die Flüssigkeitsbrücken im Haufwerk unter dem Einfluß der Grenzflächenspannung ihre Gleichgewichtsform ausbilden können (die allerdings für reale Fälle aufgrund der komplizierten Geometrie nicht berechenbar ist).

Vergleich mit der van-der-Waals-Kraft

Es soll wieder das Beispiel einer 100 µm-Kugel betrachtet werden, auf die zu Beginn des Gedankenexperiments eine Wasserschicht von 16 nm Dicke aufgebracht werde. Unter Verwendung der Werte für Löslichkeit und Lösungsdichte von Saccharose bei Raumtemperatur (siehe Anhang II) erhöht sich das Volumen der Flüssigkeitsschicht bis zur Sättigung annähernd auf das Dreifache.<sup>1</sup> Für eine monodisperse Kugelschüttung der Porosität  $\epsilon = 0,5$  hat die Koordinationszahl etwa den Wert 6 (siehe Gleichung 2-11), so daß das Volumen  $\varphi$  einer Flüssigkeitsbrücke zwischen zwei Kugeln, bezogen auf das Volumen der beiden Kugeln, den Wert  $10^{-3}$  annimmt. Nach SCHUBERT (1972) hat die bezogene Haftkraft  $F / (\gamma \cdot x)$  für einen minimalen Festkörperabstand von 0,4 nm in diesem Fall einen Wert von  $\approx 3$  (siehe Abbildung 2-5). Mit der Grenzflächenspannung einer gesättigten, wäßrigen Saccharoselösung bei Raumtemperatur von  $\gamma = 80 \text{ mN} \cdot \text{m}^{-1}$  ergibt sich für die Flüssigkeitsbrückenkraft ein Wert von etwa  $2,5 \cdot 10^{-5} \text{ N}$ .

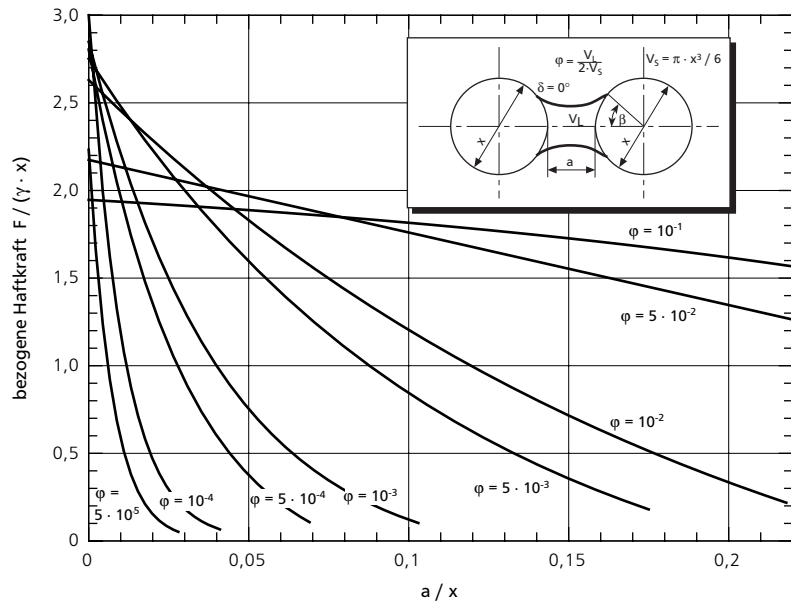


Abbildung 2-5: Bezogene Haftkraft  $F / (\gamma \cdot x)$  zwischen zwei gleichgroßen Kugeln für einen Randwinkel  $\delta$  von  $0^\circ$  als Funktion des bezogenen Kugelabstands. Parameter  $\varphi$  ist das bezogene Flüssigkeitsvolumen (SCHUBERT, 1972).

<sup>1</sup> Bei diesen Abmessungen ist eine Rechnung wie im makroskopischen Bereich wohl noch zulässig, wenn man berücksichtigt, daß die Größe eines Glucosemoleküls etwa 1 nm beträgt.

Im Vergleich dazu ist die für den Kontaktpunkt Festkörper–Festkörper mit  $\hbar\omega = 1 \text{ eV}$  nach Gleichung 2-4 berechnete van-der-Waals-Kraft von  $10^{-6} \text{ N}$  praktisch vernachlässigbar. Die Gewichtskraft einer Kugel (angenommene Dichte des Feststoffs:  $1.600 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) beträgt nur etwa  $10^{-8} \text{ N}$ , spielt also im Vergleich zu den Haftkräften keine Rolle.

Die Reichweite der Flüssigkeitsbrückenkraft ist im oben diskutierten Beispiel ebenfalls deutlich höher als die der van-der-Waals-Kraft. Aus Abbildung 2–5 geht hervor, daß eine Halbierung der Haftkraft bei einem Abstandsverhältnis  $a/x$  von 0,025 eintritt, entsprechend einem Abstand der Kugeln von  $1,25 \mu\text{m}$ . Demgegenüber halbiert sich die van-der-Waals-Anziehung bereits bei einer Vergrößerung des Kontaktabstands von  $z_0 = 0,4 \text{ nm}$  auf  $a = 0,56 \text{ nm}$ .

### 2.1.4 Zusammenhang zwischen Haftkraft und Zugfestigkeit eines Agglomerats

Die Zugfestigkeit einer Pulverschüttung ist eine meßbare Größe, die sich zur vergleichenden Untersuchung von Agglomeraten eignet (RUMPF, 1958, SCHUBERT, 1972). In dieser Arbeit wird an späterer Stelle darüber hinaus angenommen, daß sie unter bestimmten Bedingungen auch eine charakteristische Größe bei der Bildung von Agglomeraten ist, und zwar dann, wenn diese Agglomerate durch Abtrennen einzelner Volumenelemente aus einem Haufwerk entstehen. RUMPF (1970) schlägt vor, die Zugfestigkeit  $\sigma$  einer Pulverschüttung aus konvexen Partikeln als Funktion der Porosität  $\varepsilon$ , der Koordinationszahl  $k$ , der Haftkraft  $F$  und der Partikeloberfläche  $O_p$  nach folgender Beziehung zu berechnen:

$$\sigma = (1 - \varepsilon) \cdot k \cdot \frac{F}{O_p} \quad (2-10)$$

bzw. für kugelförmige Partikeln und mit der Annahme, daß

$$\varepsilon \cdot k \approx \pi \quad (2-11)$$

$$\sigma \approx \frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon} \cdot \frac{F}{x^2} \quad (x = \text{Partikeldurchmesser}) \quad (2-12)$$

Es wird ferner vorausgesetzt, daß die Haftkräfte superponierbar sind. Falls die Partikeln nicht monodispers sind, ist eine Auswertung der Zugfestigkeitgleichung nicht möglich, da in diesem Fall sowohl die Haftkraft als auch die Koordinationszahl in unbekannter Weise verteilt sind. Anstelle der Partikelgröße  $x$  wäre hier das vollständige erste Moment der Oberflächendichteverteilung des Partikelkollektivs,  $M_{1,2}$ , einzusetzen (RUMPF und TURBA, 1964). An späterer Stelle wird hiervon Gebrauch gemacht, um Versuche zur Trockenagglomeration bei streuenden Werten der Partikelgröße des Ausgangsmaterials zu vergleichen. Hierbei wird angenommen, daß die Partikelgrößenverteilungen der betrachteten Pulver einander so ähnlich sind, daß  $F$  und  $k$  in ihnen jeweils in ähnlicher (wenn auch unbekannter) Weise verteilt sind.

## Modell der Oberflächenrauigkeit

Man erkennt aus den Gleichungen 2–2 bis 2–4, daß der Wert von  $z_0$  bzw. der Kontaktabstand allgemein einen bedeutenden Einfluß auf die van-der-Waals-Haftkraft hat. Ähnliches gilt für elektrostatische Wechselwirkungen – wobei hier die Abstandsabhängigkeit weniger stark ausgeprägt ist – und für Flüssigkeitsbrücken bei geringen Sättigungsgraden.

Die starke Abstandsabhängigkeit der Haftkräfte hat zur Folge, daß für reale Stoffsysteme die geometrischen Verhältnisse im Berührungsbereich der Partikeln berücksichtigt werden müssen. Die beliebigen Kontaktgeometrien realer Partikeln machen eine einheitliche, analytische Beschreibung der Haftkräfte in Abhängigkeit von der Kontaktgeometrie unmöglich, bzw. lassen sie aufgrund der großen Variationsmöglichkeiten auch als nicht mehr sinnvoll erscheinen. Zur Veranschaulichung des Effekts von Oberflächenrauigkeiten eignet sich jedoch ein von KRUPP vorgeschlagenes Modell einer Kugel, die in Wechselwirkung mit einem Halbraum steht und über eine halbkreisförmige Rauigkeitserhebung in der Kontaktzone verfügt (siehe Abbildung 2–6).

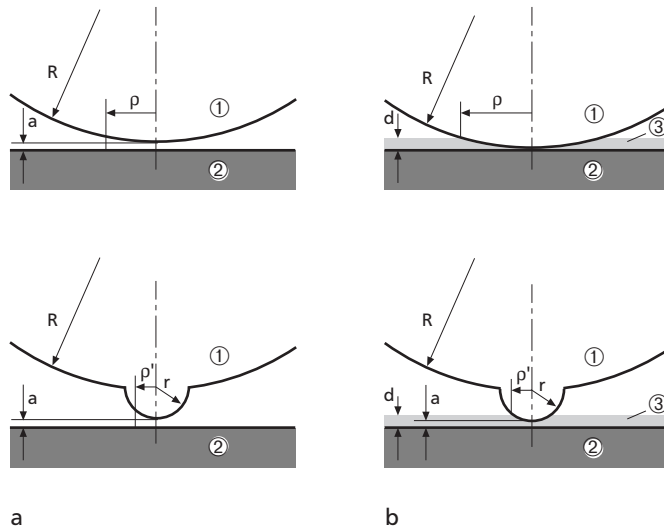


Abbildung 2–6: Vergleich der Kontaktzonengröße (Radien  $\rho$  und  $\rho'$ ) für eine ideal glatte Kugel und eine Kugel mit halbkugeliger Rauigkeitserhebung im Kontakt mit einer ideal glatten, festen Oberfläche.  
a: reiner Festkörperkontakt  
b: bei Vorhandensein einer Sorptionsschicht

Diese schematische Darstellung veranschaulicht, daß kleine Rauigkeiten, wie sie auf realen Partikeloberflächen stets vorhanden sind, eine starke Abnahme der Haftkräfte im Vergleich zu ideal glatten Körpern bewirken können. Dies gilt sowohl für reine Feststoffoberflächen als auch für Oberflächen, auf denen sich eine Sorptionsschicht befindet. Bei der Berechnung der van-der-Waals-Anziehungskraft ist also nicht nur der makroskopische Partikeldurchmesser, sondern



auch der Krümmungsradius der Oberflächenrauigkeit im Kontaktbereich zu berücksichtigen.

Zur Berechnung der van-der-Waals-Wechselwirkung  $F_{vdW}$  für das in Abbildung 2-6 a gezeigte Modellsystem Kugel-Halbraum werden daher der Anteil  $F_R$  der Kugel (Radius  $R$ ) sowie der Anteil  $F_r$  der Rauigkeitserhebung (Radius  $r$ ) überlagert (RUMPF, 1974, SCHÜTZ, 1979):

$$F_{vdW,r}^{oi} = \frac{\hbar \bar{\omega} r}{8 \pi z_0^2} \quad (2-13)$$

$$F_{vdW,R}^{oi} = \frac{\hbar \bar{\omega} R}{8 \pi (z_0 + r)^2} \quad (2-14)$$

$$F_{vdW}^{oi} = F_{vdW,R}^{oi} + F_{vdW,r}^{oi} \quad (2-15)$$

RUMPF (1974) stellt den mit diesen Gleichungen berechneten Verlauf der Haftkraft als Funktion des Radius  $r$  der Rauigkeitserhebung für verschiedene Kugeldurchmesser  $R$  dar. Da bei den hier untersuchten Stoffsystemen größere Partikeln und vermutlich niedrigere Werte von  $\hbar \bar{\omega}$  vorliegen, ist der Verlauf der van-der-Waals-Kraft für Partikeln von 10, 20, 50 und 100  $\mu\text{m}$  Durchmesser für  $\hbar \bar{\omega} = 1 \text{ eV}$  in Abbildung 2-7 dargestellt.

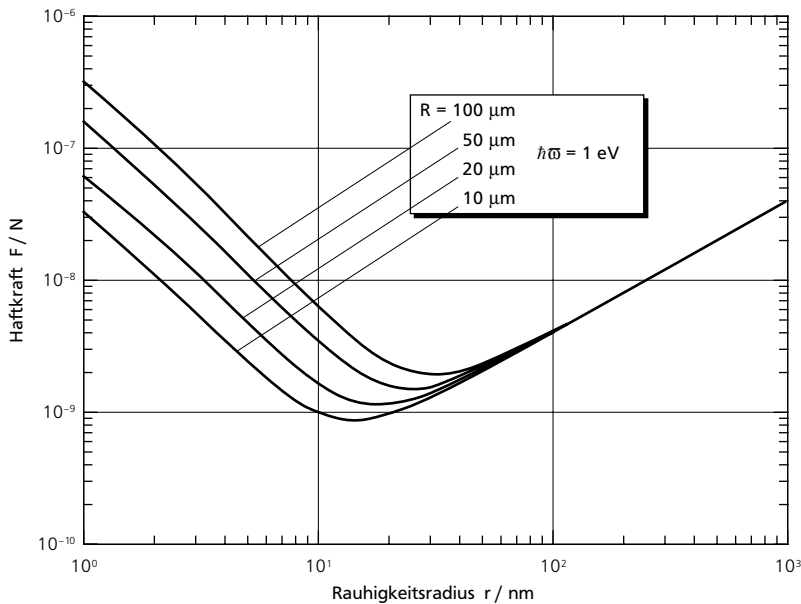


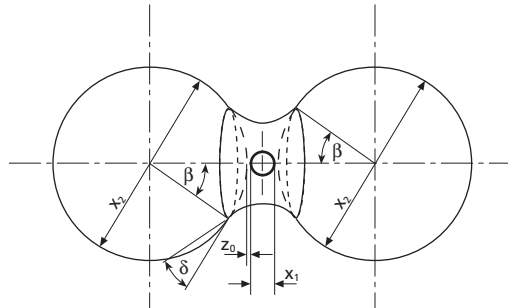
Abbildung 2-7: Einfluß des Rauigkeitsradius  $r$  auf die Haftkraft zwischen Kugel und Halbraum. Kurvenparameter ist der Kugelradius  $R$ .

Im Bereich zwischen 15 und 30 nm Rauigkeitsradius durchlaufen alle dargestellten Kurven ein Minimum, in dem die Haftkraft etwa um zwei Größenordnungen niedriger als für ideal glatte Körper (im Diagramm nicht dargestellt) liegt.

Haftkräfte zwischen Partikeln im Haufwerk

Ähnliche Wirkung wie Oberflächenrauigkeiten haben kleine Partikeln im Kontaktbereich zwischen größeren Partikeln. Dieser Fall (siehe Abbildung 2–8) wurde von SCHUBERT (1982) untersucht.

Abbildung 2–8: Flüssigkeitsbrücke mit eingeschobener Kugel des Durchmessers  $x_1$  zwischen zwei gleichgroßen Kugeln des Durchmessers  $x_2$  (SCHUBERT, 1972).



Ist die Flüssigkeitsbrücke groß, wie in Abbildung 2–8 angedeutet, umhüllt sie die eingeschobene Partikel vollständig, so daß sich im Vergleich zum direkten Kontakt der beiden großen Kugeln nur der Effekt der Brückendehnung haftkraftvermindernd auswirkt. Steht dagegen nur wenig Flüssigkeit zur Verfügung, bilden sich zwei getrennte Brücken aus, die die kleinere Kugel mit den beiden größeren verbinden. In diesem Fall ist die Haftkraft erheblich reduziert. Dies läßt sich anhand von Abbildung 2–5 erläutern:

- Für sehr kleine Flüssigkeitsbrücken beträgt der Wert  $F^{oo} / (\gamma \cdot x)$  der bezogenen Haftkraft im Fall vollständiger Benetzung der Festkörperoberflächen und einem Haftabstand  $z_0 = 0,4 \text{ nm}$  ( $a / x \approx 0$ ) annähernd  $\pi$ . Die Geometrie in der Kontaktzone nähert sich dem Grenzfall Ebene / Ebene an. Bei direktem Kontakt der großen Kugeln ergibt sich die bezogene Haftkraft  $F_{22} = F^{oo} / (\gamma \cdot x_2)$ .
- Befindet sich eine wesentlich kleinere Kugel mit dem Durchmesser  $x_1$ , gegen die das Volumen der Flüssigkeit nach wie vor klein sei, zwischen den beiden größeren (siehe Abbildung 2–8), ergibt sich in den nun bestehenden zwei Flüssigkeitsbrücken die bezogene Haftkraft  $F^{o'} / (\gamma \cdot x_1)$ . Das Haftsystem kleine/große Kugel wird hierbei in erster Näherung durch das System Kugel/Halbraum ersetzt, mit  $F^{o'} / (\gamma \cdot x_1) \approx 2 \cdot \pi$  unter oben genannten Bedingungen (SCHUBERT, 1982).
- Damit ergibt sich das Verhältnis der absoluten Haftkräfte zu

$$\frac{F^{o'}}{F^{oo}} \approx \frac{2 \cdot x_1}{x_2} \tag{2–16}$$

---

Ist das Verhältnis  $x_1 / x_2$  entsprechend klein, kann dies zur Folge haben, daß die Haftkraft  $F_{21}$  kleiner als die Gewichtskraft der großen Kugeln ist und die Flüssigkeitsbrücke damit instabil wird.

Bei dem in Abschnitt 2.1.3 diskutierten Beispiel ( $x_2 = 100 \mu\text{m}$ , bezogenes Flüssigkeitsvolumen  $\varphi \approx 1 \%$ ) wirkt sich eine kleinere Partikel im Bereich zwischen den großen Kugeln nur geringfügig haftkraftvermindernd aus. Dies liegt daran, daß hier selbst größere Partikeln noch von der Brückenflüssigkeit umhüllt werden können.<sup>1</sup>

Haftkräfte zwischen Partikeln im Haufwerk

### 2.1.6 Einfluß äußerer Kräfte auf die Partikelhaftung

In den vorangegangenen Abschnitten wurde bei allen Modellrechnungen angenommen, daß die beteiligten Festkörper ideale Geometrie besitzen und weder elastisch noch plastisch deformierbar sind. Reale Stoffsysteme erfüllen diese Voraussetzungen üblicherweise nicht.

Bereits unter dem Einfluß der zwischen den Partikeln wirkenden Anziehungskräfte tritt zunächst eine elastische Verformung der Kontaktbereiche ein, der je nach Stärke der Anziehungskraft und abhängig von den Materialeigenschaften der Partikeln eine stärkere oder schwächere inelastische Deformation überlagert ist. KRUPP (1967) gibt aufgrund von Modellrechnungen für ideale Geometrien an, daß bei weichen Materialien wie Kunststoffen bereits unter dem Einfluß der van-der-Waals-Kraft plastische Deformation im Kontaktbereich möglich ist. In späteren Veröffentlichungen wird allgemein angenommen (SCHÜTZ und SCHUBERT, 1976, SCHUBERT, SOMMER, RUMPF, 1976, SCHÜTZ, 1979), daß bei realen Partikeloberflächen zuerst Rauigkeitserhebungen abgeflacht oder eingeebnet werden, bevor die Deformation größerer Kontaktflächen einsetzt. In größerem Umfang tritt inelastische Deformation jedoch erst unter der Einwirkung äußerer (Druck-) Kräfte ein.

Für den Fall, daß van-der-Waals-Wechselwirkungen den wesentlichen Haftmechanismus in einem Partikelkollektiv darstellen, bewirkt der geringere Partikelabstand aufgrund der Deformation von Unebenheiten im nm-Maßstab eine erhebliche Verstärkung der Haftkräfte. Hier besteht eine Abhängigkeit zwischen der Haftkraft und der zweiten bzw. dritten Potenz des Haftabstands. Im Vergleich dazu ist der Einfluß der Kontaktflächenvergrößerung durch plastische Deformation der gesamten Kontaktzone weniger stark. SCHÜTZ (1979) gibt unter der Voraussetzung, daß der plastische Deformationsanteil den elastischen überwiegt, was bei

---

<sup>1</sup> Die Verhältnisse für fein gemahlene Zucker als Ausgangsmaterial für die Strahlagglomeration sind mit o. g. Beispiel vergleichbar: Die mittlere Partikelgröße beträgt 50–100  $\mu\text{m}$ , der typische Wassergehalt des Schüttguts liegt bei 0,03–0,3 Volumenprozent. Feinstpartikeln wirken sich also nicht oder nur wenig auf die durch Flüssigkeitsbrücken übertragenen Haftkräfte aus.

mittleren und hohen Anpreßkräften der Fall ist, einen linearen Zusammenhang zwischen Haftkraft  $F$  und Anpreßkraft  $F_p$  an:

$$\frac{\partial F}{\partial F_p} = \frac{\rho_{vdW}^-}{\rho_{pl}^H} \quad (2-17)$$

Hierbei bezeichnet  $\rho_{vdW}^-$  den nach Gleichung 2-2 berechneten van-der-Waals-Druck der Materialpaarung und  $\rho_{pl}^H$  die Hertzsche Härte des Materials im Mikrobereich (Nach SCHÜTZ, 1979, ist diese üblicherweise eine bis zwei Größenordnungen höher als die makroskopische Härte).

Als Ergebnis der von ihm durchgeführten Versuche zur Steigerung der Haftkraft durch Anzentrifugieren von Partikeln auf Stahlsubstrate fand SCHÜTZ bei niedrigen Anpreßkräften in der Größenordnung der Haftkräfte einen sehr hohen Wert von  $\partial F / \partial F_p = 0,3$ . Dies erklärt, warum bereits leichtes Verdichten eines Haufwerks eine starke Zunahme der Haftkräfte bewirkt. Für mittlere und hohe Anpreßkräfte beobachtete SCHÜTZ allerdings einen wesentlich weniger steilen Zusammenhang zwischen der Haftkraftzunahme und der aufgebrachten Kraft von  $5 \cdot 10^{-4} < \partial F / \partial F_p < 5 \cdot 10^{-3}$ , wie auch unter Annahme plausibler Stoffwerte nach Gleichung 2-17 zu erwarten ist. SCHÜTZ führt die Haftkraftsteigerung auf die plastische Deformation von Nanorauhigkeiten zurück und schreibt ihr eine wesentliche Bedeutung für die Verfestigung von Schüttgütern zu.

Flüssigkeitsbrückenkräfte sind, wie bereits erwähnt, deutlich weniger abstandsabhängig als van-der-Waals-Kräfte. Dementsprechend bewirken äußere Druckkräfte bei bereits vorhandenen Flüssigkeitsbrücken nur unwesentliche Steigerungen der Haftkraft. Ein makroskopisch beobachtbarer Anstieg der Zugfestigkeit eines Partikelhaufwerks kann aber dadurch hervorgerufen werden, daß sich zusätzliche Flüssigkeitsbrücken bei ausreichender Annäherung der Partikeln bilden. Eine Annäherung kann dabei sowohl aufgrund elastischer Verformungen, als auch infolge der Umlagerung von Partikeln bzw. Fließen des Schüttguts eintreten. Ein Teil der neu entstandenen Brücken bleibt auch bei einer nachfolgenden Entlastung und elastischen Rückdehnung des Haufwerks bestehen und bewirkt eine Verfestigung des Haufwerks.

## 2.2 Dampfstrahlagglomeration von Pulvern

Über die Dampfstrahlagglomeration wasserlöslicher Pulver sind in der verfahrenstechnischen Literatur wenig Informationen zu finden. PIETSCHE (1991) erwähnt das Verfahren in seinem Übersichtswerk über Grundlagen und Methoden der Agglomeration überhaupt nicht, ebensowenig CAPES (1980); in anderen Veröffentlichungen (z.B. SCHUBERT, 1986, 1990) wird es kurz als Möglichkeit zur Herstellung von Instantprodukten genannt. Das im Prinzip ähnliche *Blaw-Knox*-Verfahren wird von LÜHRS und WACHSMUTH (1976) als geeignet zur Erzeugung von gut

dispergierbaren Agglomeraten aus einer großen Bandbreite von Ausgangsprodukten beschrieben (siehe auch CAPES, 1980). Es werden jedoch keine Angaben über Auslegungsregeln, Durchsätze, erzielbare Partikelvergrößerung, konkrete Anwendungen usw. gemacht.

SCHUCHMANN (1993) veröffentlichte als erster Ergebnisse von systematischen Untersuchungen an einer Pilotanlage zur Strahlagglomeration pulverförmiger Lebensmittel. Es gelang ihm dabei, sowohl den Einfluß unterschiedlicher Befeuchtungsmechanismen bei der Wasseraufnahme der Agglomerate, als auch die Beteiligung von zwei unterschiedlichen Mechanismen der Partikelvergrößerung nachzuweisen.

Im weiteren Verlauf dieser Arbeit wird gezeigt werden, daß das Strahlagglomerationsverfahren in einzelne Teilschritte zerlegt werden kann. Da es sich bei diesen Teilschritten um gut erforschte Verfahren handelt, kann die Auslegung einer Gesamtanlage auf die Dimensionierung der jeweiligen Einzelschritte heruntergebrochen werden. Zum besseren Verständnis und zur Einschätzung der Variationsmöglichkeiten der Dampfstrahlagglomeration wird hier zunächst eine von RUMPF (1975) eingeführte und in ähnlicher Weise auch von SCHUBERT (1986) gewählte Gliederung der Agglomerationsverfahren dargestellt, gefolgt von einer Übersicht über die von SCHUCHMANN erzielten Ergebnisse und vorliegende Patente zur Strahlagglomeration.

## 2.2.1 Systematik der Agglomerationsverfahren

Für alle Agglomerationsverfahren gilt, daß zur Erzeugung von Agglomeraten zunächst die Primärpartikeln miteinander in Kontakt gebracht werden müssen. An den Kontaktstellen treten dann Haftkräfte auf, wie im Abschnitt 2–1 dargestellt. Stärke und Reichweite dieser Haftkräfte müssen so groß sein, daß das entstandene Agglomerat den stets einwirkenden trennenden Kräften widerstehen kann. Welche Agglomerationsmethoden im jeweiligen Fall angewendet werden können, richtet sich also auch nach den im weiteren Verfahrensablauf zu erwartenden Belastungen. Da, wie bereits angesprochen, Haftkräfte auch zeitlichen Veränderungen unterliegen, muß hierbei auch die zu erwartende Lebensdauer der Haftmechanismen berücksichtigt werden.

Wenn hohe mechanische Belastungen zu erwarten sind oder die gute Handhabbarkeit des Produkts primäre Zielgröße ist, müssen Verfahren angewandt werden, die hohe Haftkräfte und niedrige Agglomeratporosität bewirken. Stehen dagegen das Wiederbefeuchtungs- und Dispergierverhalten der Agglomerate an erster Stelle, gilt das Gegenteil. Auch die chemische und die physikalische Beschaffenheit des zu agglomerierenden Ausgangsmaterials sollten, sofern beeinflussbar, bereits unter Berücksichtigung der zu erwartenden Auswirkungen auf die Agglomerateigenschaften eingestellt werden.

RUMPF (1975) und SCHUBERT (1986) fassen eine Reihe von auf den ersten Blick sehr unterschiedlichen Agglomerationsverfahren unter dem Begriff *Aufbauagglomeration* zusammen. Dies ist sinnvoll, da sich die Verfahren dieser Gruppe im wesentlichen nur nach Art und Stärke der Haftkräfte unterscheiden. Gemeinsam ist ihnen aber die Art der Agglomeratentstehung durch Zusammenlagerung mehr oder weniger frei beweglicher Primärpartikeln zu größeren Einheiten bzw. Anlagerung von Primärpartikeln an diese.

Die Anlagerung von gegeneinander bewegten Partikeln kann sowohl in einem Haufwerk (*Gutbett*), als auch in einem Aerosol oder einer Suspension erfolgen. Entscheidend für die Struktur und Festigkeit der Agglomerate ist die Intensität der während der Agglomeratbildung wirkenden Trennkräfte. Je höher diese sind, desto stabiler ist das entstehende Agglomerat, da nur diejenigen Primärpartikeln dauerhaft agglomerieren können, zwischen denen auch hinreichend hohe Haftkräfte wirken (*Selektionsprinzip*, SCHUBERT, 1986).

Sowohl im Gutbett als auch in Aerosolen und Suspensionen besteht eine breite Variationsmöglichkeit der wirkenden Trennkräfte, so daß sowohl sehr feste als auch lockere Agglomerate entstehen können. Generell liegt die Bandbreite der Festigkeit von in Aerosolen erzeugten Agglomeraten niedriger als bei den beiden anderen Gruppen, da hier niedrigere absolute Trennkräfte wirken. Im Gutbett lassen sich die höchsten Festigkeiten erzielen, da hier sowohl die höchsten trennenden als auch die höchsten vereinigenden Kräfte eingebracht werden können. Tabelle 2-1 nennt Beispiele (z. T. nach PIETSCH, 1991) für stabile und empfindliche Agglomerate aus den drei Untergruppen der Aufbauagglomeration.

Tabelle 2-1: Beispiele für stabile und empfindliche Agglomerate aus Gutbett-, Aerosol- und Suspensionsverfahren.

Methode	Agglomeration im Gutbett	Agglomeration in gasförmiger Umgebung	Agglomeration in Flüssigkeiten
stabil	Eisenerzpellets (Teller, Trommel, Konus)	Düngemittel (Wirbelschicht)	Kohlestaubpellets (Rührapparat)
empfindlich	Lactosepellets (ohne Wasser/Binder hergest.)	Aschefflocken (in staubhaltigen Rauchgasen)	Flocken (bei der Abwasseraufbereitung)

Gängige Apparate zur Aufbauagglomeration im Gutbett sind Granulierteller, -trommeln und -kessel, konusförmige Rotationsbehälter (*Rollagglomeration*) sowie verschiedene Bauarten von Pulvermischern (*Mischagglomeration*). Sie lassen sich absatzweise oder kontinuierlich betreiben, wobei je nach Bauart Rezirkulationsraten bis zu einigen hundert Prozent erforderlich sind, wenn eine enge Partikelgrößenverteilung der Agglomerate gefordert wird (PIETSCH, 1991).

Die Aufbauagglomeration in gasförmiger Umgebung und in Flüssigkeiten unterscheidet sich von den Gutbett-Verfahren dadurch, daß die zu agglomerierenden Partikeln sich nicht ständig berühren. Erst Relativbewegungen der Partikeln führen zum Kontakt. Unterschiedliches Relaxationsverhalten der Partikeln bei schwankenden Strömungsgeschwindigkeiten, unterschiedliche Sedimentations-

geschwindigkeiten in stationären Strömungen oder ruhenden Fluiden und elektrostatische Wechselwirkungskräfte können solche Relativbewegungen hervorrufen.

Bei einem Kontakt zweier Partikeln muß die kinetische Energie der Relativbewegung dissipiert werden. Gleichzeitig müssen Haftkräfte wirksam werden, die angreifenden Strömungskräften oder Erschütterungen bei der Kollision mit weiteren Partikeln widerstehen. Eine effiziente Agglomeration erfordert eine hohe Kollisionsrate und gleichzeitig eine hohe Haftwahrscheinlichkeit. Es existieren zahlreiche unterschiedliche Bauformen zur absatzweisen und kontinuierlichen Agglomeration durch Anlagerung in Aerosolen, wobei auch hier üblicherweise eine Kreislaufführung von Unter- und (zerkleinertem) Oberkorn erforderlich ist:

- Wirbelschichtagglomeration (auch kombiniert mit einer Sprühtrocknung z.B. *Niro* Wiederbefeuchtungs-Instantizer),
- Agglomeration im Dampfstrahl oder im Dampfvorhang (u.a. *Nestlé*-Verfahren, System *Blaw-Knox*, System *Kraft General Foods*, *Ortho*sches Verfahren),
- Naßabscheidung und Agglomeration im Zykloneinlauf zur Abluftreinigung (MOTHES, 1982),
- Elektrostatisches Entstauben und elektrostatisches Coaten.

Ein modernes Verfahren zur Agglomeration in Flüssigkeiten ist die sogenannte *spherical agglomeration*, bei der alle Verfahrensschritte in der flüssigen Phase ablaufen. Die Suspension der zu agglomerierenden Partikeln wird mit einer dritten, ebenfalls flüssigen Phase versetzt, die bevorzugt den Feststoff benetzt und die Partikeln durch Flüssigkeitsbrücken miteinander verbindet. Nach dem Agglomerationsschritt ist eine fest-flüssig-Trennung und anschließend eine Trocknung erforderlich. In der pharmazeutischen Industrie kann dieses Agglomerationsverfahren z.B. als Vorstufe einer Tablettierung eingesetzt werden (MÜLLER, 1996).

## Preßagglomeration

Pulverförmige Feststoffe können auch durch alleinige Einwirkung äußerer Druckkräfte zu Agglomeraten verarbeitet werden. Dies kann entweder dadurch geschehen, daß eine definierte Menge Pulver in einer Matrize mit einem Stempel verdichtet wird (Tablettieren), oder durch Abziehen eines Pulverstroms aus einem Vorrat und kontinuierliches Verpressen in geeigneten Maschinen. Beispiele hierfür sind das Brikettieren und das Walzenpressen (eventuell mit nachgeschalteter Zerkleinerung der Schülpen). Eine unerwünschte Form der Preßagglomeration ist das Verbacken von Pulvern in Silos unter dem Einfluß des eigenen Gewichts.

Je nach Fließfähigkeit des Pulvers ist eine Agglomeration auch dadurch möglich, daß das Pulver kontinuierlich (z.B. in einem Kollergang oder mit einer Stopfschnecke) durch Löcher in Sieben, Walzen oder Matrizen gepreßt wird (*Formieren*). Sofern hierbei Preßstränge entstehen, müssen diese eventuell definiert zerkleinert werden.

Bevorzugter Haftmechanismus bei der Preßagglomeration ist die van-der-Waals-Kraft, abhängig vom Wassergehalt des Materials spielen jedoch auch Flüssigkeitsbrückenkräfte eine Rolle. Unter der Wirkung von Druck- und Scherkräften kann der Feststoff auch an den Kontaktstellen der Partikeln lokal erweichen bzw. aufschmelzen. Oft werden dem Material auch Schmier- und Bindemittel zugesetzt oder die Verpreßbarkeit durch Temperaturerhöhung verbessert (RUMPF, 1975).

Bezüglich der Struktur der Agglomerate ist die Variationsbreite im Vergleich zur Aufbauagglomeration eingeschränkt. Falls Haftung zwischen den Partikeln ausschließlich durch van-der-Waals-Kräfte vermittelt werden soll, sind meist sehr hohe Preßdrücke (bis 1.000 MPa, RUMPF, 1975) erforderlich. Bei feuchtem Gut liegen die Preßdrücke zwar um zwei bis vier Größenordnungen niedriger, es ist jedoch trotzdem in praktisch allen Fällen mit einer deutlichen Verringerung der Porosität im Verlauf des Preßvorgangs zu rechnen. Eine Ausnahme hiervon sind Methoden, bei denen aus einem gering verdichteten Haufwerk kleinere Volumenelemente abgeteilt werden (was strenggenommen nicht als Agglomerationsverfahren bezeichnet werden kann). Die Herstellung von sehr lockeren Agglomeraten ist mit den Methoden der Preßagglomeration nicht möglich.

### Sintern

Der bevorzugte Einsatzbereich für das Agglomerieren durch Sintern ist die Eisenerzaufbereitung. Grundsätzlich ist das Verfahren jedoch auch auf zahlreiche andere Produkte anwendbar, sofern diese die Sinterbedingungen (Temperatur oberhalb  $\frac{2}{3}$  des absoluten Schmelzpunkts, längere Warmhaltezeiten) ohne Schädigung vertragen. Beispielsweise können auch Schüttungen von Zuckerpartikeln durch Sintern erheblich verfestigt werden, es ist jedoch z. T. nicht möglich, Zersetzungs- und Umwandlungsreaktionen („Karamelisieren“) zu vermeiden.

Die Porosität der Sinterkörper kann in einem weiten Bereich variiert werden, indem vor Beginn des Sinterns die Schüttung in geeigneter Weise aufgebaut wird. Die Korngröße der Sinterkörper wird entweder durch Zerkleinern der verfestigten Schüttung oder bereits durch Vorlegen des Ausgangsmaterials in Form vorgeformter Agglomerate eingestellt, so daß auch in dieser Hinsicht weitreichende Variationsmöglichkeiten bestehen.

#### 2.2.2 Ergebnisse der Untersuchungen von SCHUCHMANN

SCHUCHMANN (1993) untersuchte einen von ihm auf der Grundlage eines älteren Apparats von SCHUBERT konstruierten Technikumsapparat zur Strahlagglomeration wasserlöslicher Pulver. Er führte Experimente zur Bestimmung geeigneter Betriebszustände dieses Apparats durch und untersuchte die Anteile unterschiedlicher Befeuchtungsmechanismen an der Wasseraufnahme des Pulvers während der Agglomeration.



## Aufbau der Apparatur

## Dampfstrahlagglomeration von Pulvern

Abbildung 2–9 zeigt die Strahlagglomerationsapparatur von SCHUCHMANN, die im wesentlichen aus einer kombinierten Befeuchtungs- und Agglomerationskammer mit einem rechteckigen Querschnitt von 300 mm · 300 mm und einer Höhe von 800 mm bestand. Die Zufuhr des Feststoffs geschah mit einer Vibrationsdosierrinne (nicht im Bild), die das zu agglomerierende Pulver durch ein Sieb in einen trichterförmigen Kanal mit einem rechteckigen Querschnitt von 10 mm · 80 mm am Auslaß förderte. Am Ende des Schachts traten die Partikeln in die Agglomerationskammer ein und wurden von dieser Stelle an mit Dampf befeuchtet. Der Dampf strömte aus zwei ebenfalls schlitzförmigen, unmittelbar an die Seiten des Zufuhrschachts grenzenden Düsen.

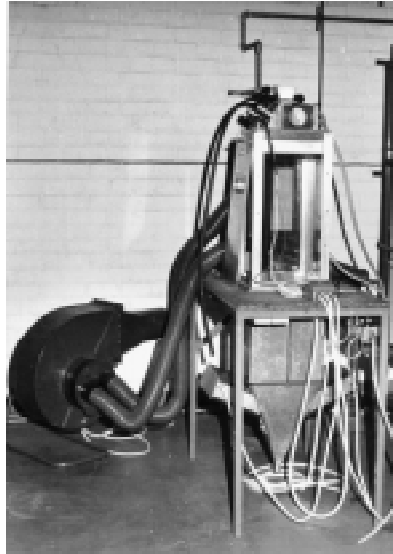


Abbildung 2–9: Apparat von SCHUCHMANN zur Strahlagglomeration wasserlöslicher Pulver (Erläuterungen im Text).

Die aus den beiden Düsen austretenden Dampfstrahlen vermischten sich mit dem Pulverstrom und der zusammen mit dem Pulver eintretenden Umgebungsluft. In dieser Mischungszone, deren Länge unter anderem vom Dampfmengestrom abhängig war, fand die Befeuchtung des Pulvers durch direkte Kondensation und Zusammenstöße von Feststoffpartikeln und Kondensattropfen statt. Gleichzeitig war die Mischungszone auch der Bereich, in dem die Partikeln aufgrund ihrer angelösten Oberflächen agglomerierten. Ein kurzer Fallschacht unterhalb der Kammer diente als Trocknungszone, an deren Ende die Agglomerate auf ein mit Warmluft durchströmtes, geneigtes Sieb fielen. Durch Abgleiten über das Sieb verließ das Produkt die Apparatur.

Die im unteren Teil der Agglomerationskammer eingespeiste, elektrisch aufgeheizte Trocknungsluft, nicht verbrauchter Dampf sowie die durch den Dosierkanal und den Produktauslaß in die Anlage gelangte Umgebungsluft wurden mit Hilfe eines Saugzuggebläses abgezogen. Die Ansaugleitungen des Gebläses endeten in zwei Öffnungen, die sich auf der Oberseite der Kammer an den Seiten des Pulverzufuhrkanals befanden. Abbildung 2–10 zeigt den etwa 300 mm breiten Kopfteil des von SCHUCHMANN verwendeten Apparats. In der Bildmitte befindet sich der 200 mm hohe Zufuhrkanal für den Feststoff. Der untere Teil dieses Kanals mündet in der Befeuchtungszone des Apparats. Links im Bild sind die Dampfzuleitungen in schwarzer Wärmeisolierung zu erkennen, eine dieser Leitungen endet vor dem Zufuhrkanal, die andere dahinter. Links und rechts des Zufuhrkanals befinden sich die Abgasauslässe.

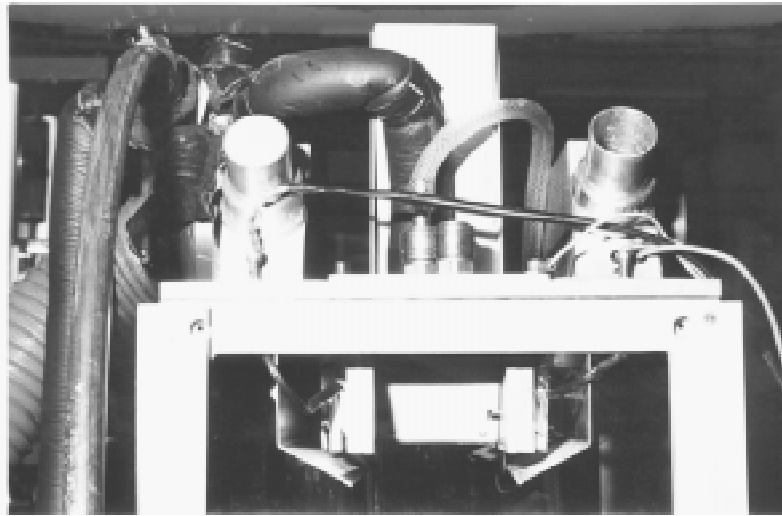


Abbildung 2–10: Detailsicht des Kopfteils des Agglomerationsapparats von SCHUCHMANN (Erläuterungen im Text).

### Ergebnisse der Experimente

SCHUCHMANN stellte fest, daß in der oben beschriebenen Apparatur sowohl die Kondensation von Wasserdampf an der Partikeloberfläche als auch Kollisionen mit Kondensattropfen zur Befeuchtung beitragen und bezeichnete die Befeuchtung durch Kondensation als den unter allen Betriebsbedingungen vorherrschenden Mechanismus. Für eine Partikeltemperatur von  $-18\text{ }^{\circ}\text{C}$  am Eintritt in den Zufuhrkanal gab er den Anteil der Tropfenbefeuchtung mit etwa 30 % an<sup>1</sup> und wies darauf hin, daß der Befeuchtung durch Kondensation der Vorzug gegeben werden sollte. Kondensation von Wasserdampf an der Partikeloberfläche setzt die Kondensationswärme frei und führt daher bei gleicher Wassergehaltsänderung zu einer höheren Energiezufuhr als die Kollision mit heißen Kondensattropfen. Dies vergrößert die Lösegeschwindigkeit, wodurch auch die Viskosität der an der Oberfläche der Partikeln gebildeten Flüssigkeitsschicht schneller ansteigt. Nach SCHUCHMANN bilden sich dadurch schneller stabile Flüssigkeitsbrücken zwischen den Partikeln.

---

<sup>1</sup> Hierzu ist anzumerken, daß ein Tropfenbefeuchtungsanteil von 30 % bereits ein hoher Wert ist, der bei höheren Starttemperaturen des Feststoffs noch weiter ansteigt! Ursache hierfür ist die kleinere Enthalpiedifferenz der Feststoffpartikeln zwischen Eintritt in die Dampfzone und Erreichen der Gleichgewichtstemperatur, denn der entscheidende Mechanismus der Erwärmung ist die Freisetzung der Verdampfungsenthalpie des Wasserdampfs bei der Kondensation. Kondensation findet nur statt, solange die Partikeln noch nicht die Umgebungstemperatur erreicht haben, während die Häufigkeit der Kollisionen mit Tropfen davon nicht beeinflusst wird und nur mit der Tropfenkonzentration in der Agglomerationskammer zusammenhängt.

Es wurde ferner bereits erkannt und meßtechnisch belegt, daß das zu agglomerierende Material schon bei der Dosierung einen mehr oder weniger großen Anteil an Trockenagglomeraten enthielt (siehe Abbildung 2–II). Aufgrund des verwendeten Laserbeugungs-Meßverfahrens war es allerdings nicht möglich, diesen Effekt bei betriebsüblichen Mengenströmen zu quantifizieren.

## Dampfstrahlagglomeration von Pulvern

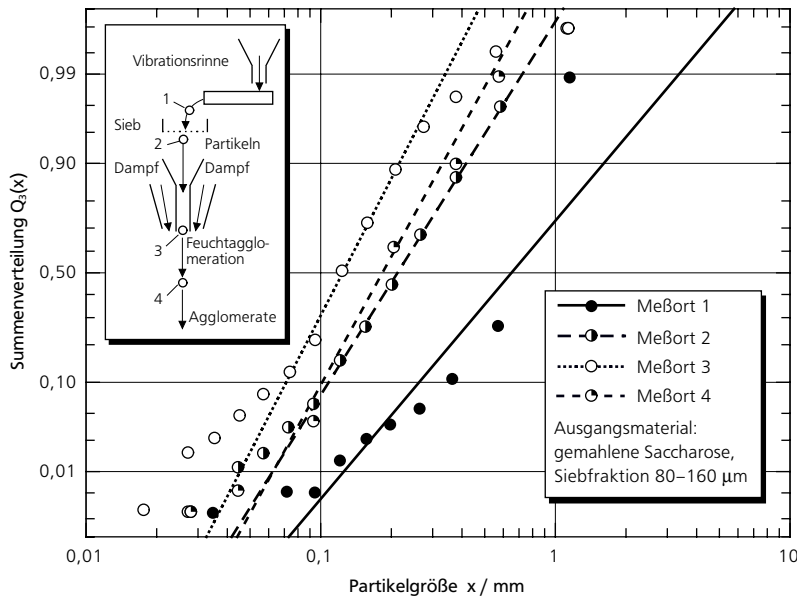


Abbildung 2–11: Partikelgrößenverteilungen an verschiedenen Meßorten (siehe Skizze) im von SCHUCHMANN untersuchten Strahlagglomerationsapparat. Meßpunkte: SCHUCHMANN, Kurven: An die Datenpunkte angepaßte logarithmische Normalverteilungsfunktionen.

Man erkennt anhand der Kurven in Abbildung 2–II deutlich, daß die größten Partikeln am Auslauf der Dosiereinrichtung vorlagen. Unmittelbar vor der Befehungszone war die Partikelgröße durch Deglomeration im Zufuhrkanal stark verringert. Während des Feuchttagglomerationsschritts stieg sie etwa wieder um den Faktor 1,5 an. SCHUCHMANN zog aus seinen Messungen zur Agglomeration von Pulvern mit unterschiedlicher Partikelgrößenverteilung folgende Schlüsse:

- Bei feindispersen Mahlgut dominierte die trockene Voragglomeration. Die Befehung in der Agglomerationskammer war ausreichend, um die für eine Stabilisierung der Agglomerate notwendigen Flüssigkeitsbrücken zu bilden. Zusätzlich wurde durch Abscheidung an den Agglomeraten der Feingutanteil in der Agglomerationszone vermindert.
- Größere Primärpartikeln wurden erst in der Befehungszone durch Aufbauagglomeration miteinander verbunden und bildeten Agglomerate, die nur aus wenigen Partikeln bestanden.

Hinsichtlich der Neigung der Ausgangsmaterialien zur trockenen Voragglomeration stellte SCHUCHMANN fest, daß gemahlene Saccharose eine stärkere Agglomerationsneigung zeigte als gewachsene Kristalle gleicher Größe. Außerdem genügte

nach seinen Angaben ein Massenanteil von 20 Prozent Feingut, um auch größere Partikeln zu Trockenagglomeraten zu verbinden.

Untersuchungen mit Ausgangsmaterialmischungen aus unterschiedlich gefärbten Partikeln sollten zeigen, wie intensiv der Mischungseffekt in der Befeuchtungszone aufgrund der auftreffenden Dampffreistrahlen war. Zu diesem Zweck wurde die Art der Zufuhr des Ausgangsmaterials variiert (in der Vorlage gemischt, im Zufuhrkanal gemischt oder bis zur Befeuchtungszone getrennt zugeführt). Es zeigte sich, daß die Mischintensität und die Kollisionshäufigkeit in der Befeuchtungszone niedrig waren.

### Praktische Aspekte des Betriebs der Anlage von SCHUCHMANN

Da bei der Konstruktion dieser Anlage erst wenige Erfahrungen mit dem praktischen Betrieb von Dampfstrahl-Agglomerationsanlagen vorlagen, konnten viele Aspekte noch nicht berücksichtigt werden, was in manchen Fällen zu Problemen im praktischen Betrieb führte.

Die Anlage verfügte nicht über eine Luftkonditionierung, z.B. durch eine Kältefalle oder eine Adsorptionsentfeuchtung, weshalb sich das zu agglomerierende Pulver im Zulauf im Kontakt mit Umgebungsluft mit zum Teil erheblicher Wasserbeladung befand. Aus diesem Grund kam es häufig zu unerwünschter und undefinierter Agglomeration des Ausgangsmaterials in der Produktzufuhr und zu Schwankungen der Befeuchtung der Partikeln in der Agglomerationszone. Die fehlende Luftentfeuchtung führte außerdem zusammen mit der undefinierten Strömungsführung in der Anlage zu einer unzureichenden Trocknungswirkung, so daß das agglomerierte Produkt häufig beim Austrag noch oberflächlich feucht war. Unzureichende Wärmeisolierung vor allem im unteren Teil der Apparatur verminderte die Trocknungswirkung ebenfalls.

Aufgrund der Konstruktion des Anlagenkopfs war es nur eingeschränkt möglich die Düsen zu verschieben, um den Abstand zwischen den Düsenmündungen und der Austrittsöffnung der Pulverzufuhr zu variieren. Der Ausströmwinkel der Dampffreistrahlen war ebenfalls konstruktiv vorgegeben. Als problematisch erwies sich in diesem Zusammenhang auch, daß die Luftmenge, die zusammen mit dem Pulver in die Anlage eintrat, von der Ejektorwirkung der Düsen abhing, wobei sich ein starker Einfluß des Dampfstroms zeigte. Der Dampfstrom konnte daher nur in begrenztem Umfang variiert werden. Da eine Messung der Luftmengenströme nicht möglich war, war der Zustand in der Befeuchtungszone, deren Länge ebenfalls vom Dampfstrom abhing, undefiniert.

Insgesamt war die Apparatur nicht vollständig mit Meß- und Regeleinrichtungen ausgerüstet und aufgrund ihrer Konstruktion bezüglich der Variabilität eingeschränkt. Trotzdem ließen sich bereits für eine Reihe von Produkten gute Agglomerationsergebnisse erzielen und verschiedene Aspekte des Agglomerationsvorgangs systematisch untersuchen. Die Betriebserfahrungen mit dieser Anlage hatten wesentlichen Einfluß auf die Konstruktion der in dieser Arbeit verwendeten Dampfstrahl-Agglomerationsanlage.

## Patente der Firma NESTLÉ

Zahlreiche Varianten der Strahlagglomeration und damit verbundene Anwendungen zur Herstellung unterschiedlicher Instantprodukte wurden von der Firma NESTLÉ in den vergangenen Jahren patentiert (NESTLÉ, 1974, 1982, 1986, 1990). In diesen Schutzrechten werden hauptsächlich verschiedene Bauformen von Ring-spaltdüsen dargestellt (teilweise in Verbindung mit anderen axialsymmetrischen Begasungsvorrichtungen), die koaxial zu einem rohrförmigen Pulverauslauf angeordnet sind. Eine schematische Darstellung einer typischen, neueren Ausführung zeigt Abbildung 2-12.

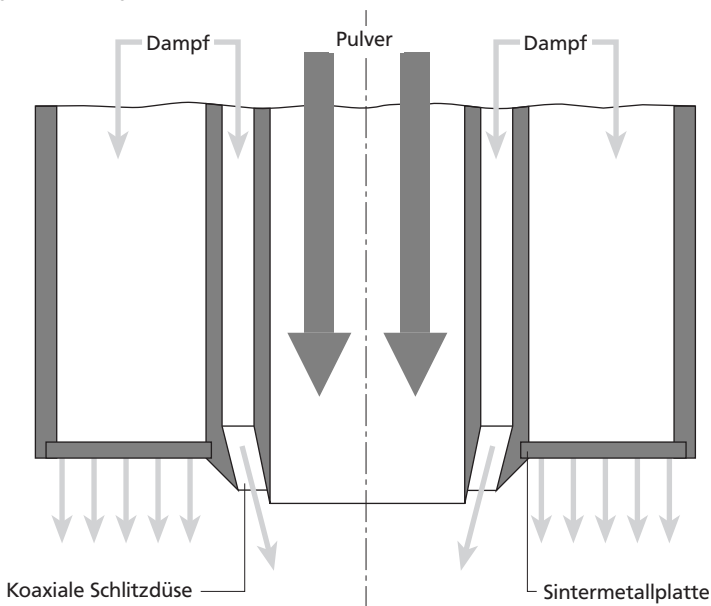


Abbildung 2-12: Strahlagglomerationskopf mit Koaxialdüse und Sintermetallplatte zur Instantisierung pulverförmiger Lebensmittel (NESTLÉ, 1990).

Ein häufig auftretendes Problem von Anordnungen, bei denen Dampföfen und Feststoffaustritt unmittelbar aneinandergrenzen, ist das Verkleben der Pulverzufuhr durch aufwachsende Verkrustungen. Hierauf wird auch in den Patentschriften hingewiesen (NESTLÉ, 1990). Konstruktionen mit mehreren koaxialen Schlitzdüsen sollen dieses Problem vermeiden, indem durch den innersten Düsen-schlitz ein Strom von Spülluft geleitet wird. Die Verwendung von mehreren Gasströmen, die sich unabhängig voneinander einstellen lassen, soll außerdem verhindern, daß das Pulver vorzeitig den Dampf-bereich verläßt und mit Luft in Berührung kommt. Eine weitere Variante ist die Anordnung einer zusätzlichen Dampföfen in der Mitte des Pulverrohrs. In diesem Fall wird der vorher kolbenförmige Pulverstrom zu einem ringförmigen Vorhang, der beidseitig befeuchtet wird. Dadurch soll ein

gleichmäßigeres Eindringen der Feuchtigkeit in alle Bereiche des Pulverstroms erreicht werden.

Verfahrensziel der Behandlung eines Pulvers mit einer derartigen Vorrichtung ist laut Angabe in den Patentschriften nicht allein die Agglomeration, sondern allgemein die Verbesserung der Rieselfähigkeit, Benetzbarkeit, Löslichkeit, Härte und Farbe von wasserlöslichen Pulvern. Es wird auch die Möglichkeit angesprochen, Partikeln, die bereits in der gewünschten Größe vorliegen, ohne weitere Agglomeration nur zur Veränderung anderer Eigenschaften nachzubehandeln. Für bestimmte Produkte kann der Agglomerationskopf auch im gleichen Apparat mit einer Sprühtrocknungseinrichtung kombiniert werden.

Ähnlich wie bei der von SCHUCHMANN verwendeten Apparatur (siehe Abschnitt 2.2.2) ist bei dem NESTLÉ-System die Länge der Befeuchtungszone vom eingestellten Dampfmassenstrom abhängig. Dieser Betriebsparameter beeinflusst aber gleichzeitig auch andere wichtige Größen, unter anderem den Volumenstrom der angesaugten Fremdluft bei offener Anbringung der Düsen über einem Fallschacht und den Turbulenzgrad in der Agglomerationszone. Fremdluft von undefiniertem Zustand kann sich unter Umständen wie bei der von SCHUCHMANN betriebenen Pilotanlage störend auf den Betrieb auswirken.

Als Pulverdosiereinrichtung ist in den zu den Patentschriften gehörenden Fließschemata verschiedentlich ein Schneckenförderer eingezeichnet. Aufgrund des kohäsiven Verhaltens vieler der mit diesem Verfahren behandelten Produkte kann davon ausgegangen werden, daß unter dem Einfluß der in der Schnecke wirkenden Normal- und Scherspannungen bereits in der Pulverzufuhr Agglomerate entstehen (vergl. Kapitel 4). Hierzu enthalten die Patentschriften keine konkreten Angaben, die Existenz von Agglomeraten in der Zufuhr wird jedoch als prinzipiell möglich bezeichnet.

### Patente der Firma KRAFT GENERAL FOODS

Die Firma KRAFT GENERAL FOODS hält ebenfalls Patente, in denen Verfahren beschrieben sind, die auf einer Kombination aus trockener Voragglomeration und nachfolgender Dampfbehandlung beruhen (GENERAL FOODS CORPORATION, 1986). Im Gegensatz zu den Patentschriften der Firma NESTLÉ wird hier die Voragglomeration durch Beeinflussung der Kohäsion des pulverförmigen Ausgangsmaterials und leichtes Verdichten ausdrücklich erwähnt und anhand konkreter Beispiele erläutert. Andererseits wird die Agglomeration im Dampf aufgrund von Partikelkollisionen nur als Möglichkeit, nicht aber als Haupteffekt des Verfahrens beschrieben.

Zweck der Dampfbehandlung ist es, bei der Herstellung von Instantkaffee bereits gebildete Voragglomerate (als „Cluster“ bezeichnet) mit einer festen Hülle zu versehen, um ihre Stabilität zu erhöhen. Die Befeuchtung und anschließende Trocknung des Materials soll außerdem eine Farbveränderung hervorrufen, die ebenfalls als wichtiger, beabsichtigter Effekt bezeichnet wird.

Die Zufuhr des Feststoffs in die Befeuchtungszone geschieht bei diesem Verfahren in Form eines oder mehrerer, langgestreckter Pulvervorhänge. Quer zur Fallrichtung der Partikel strömt Dampf aus bis zu drei übereinander angeordneten Schlitzdüsen. Während des Durchtritts durch die Dampffreistrahlen nimmt das Pulver Feuchtigkeit auf und erwärmt sich. Je nach Austrittsgeschwindigkeit des Dampfes werden die Partikel mehr oder weniger weit in Querrichtung abgetrieben und fallen entweder auf ein Förderband oder direkt in einen nachgeschalteten Trocknungsapparat. Das Prinzip des Verfahrens ist in Abbildung 2-13 dargestellt.

## Dampfstrahlagglomeration von Pulvern

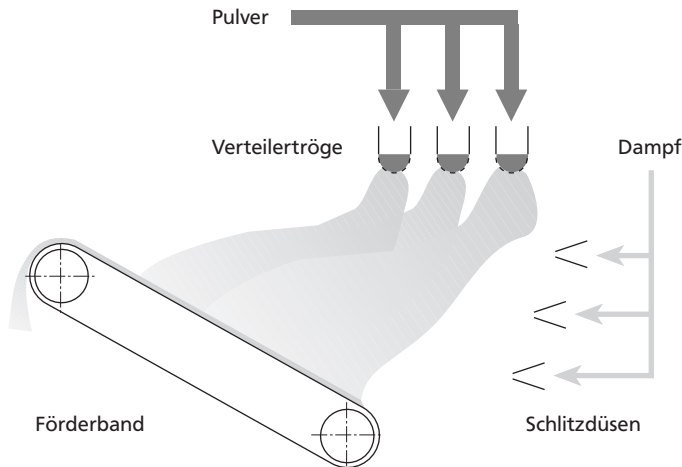


Abbildung 2-13: Schematische Darstellung des „Dampfvorhang-Agglomerationsverfahrens“ von KRAFT GENERAL FOODS.

Bei der oben gezeigten Konstruktion können unter Umständen zwei Probleme auftreten, die das Agglomerationsergebnis ungünstig beeinflussen: Fällt das voragglomerierte Pulver in einem breiten Schwarm oder – wie oben gezeigt – aus mehreren Zuführungen, dringen die Dampffreistrahlen möglicherweise nicht weit genug in den Partikelschwarm ein, um alle Partikel gleichmäßig zu befeuchten. Bei hohen Ausströmgeschwindigkeiten des Dampfes, die eventuell zur gleichmäßigen Durchfeuchtung erforderlich sind, kann andererseits ein Teil der instabilen Trockenagglomerate beim Eintritt in die Dampfstrahlen aufgrund der auftretenden Scherkräfte zerstört werden. Dies ist ein grundsätzlicher Nachteil der Befeuchtung des Partikelschwarms von nur einer Seite aus.





*Wer den Zweck will, will  
(sofern die Vernunft auf  
seine Handlungen ent-  
scheidenden Einfluß hat)  
auch das dazu unentbehr-  
lich notwendige Mittel,  
das in seiner Gewalt ist.*  
IMMANUEL KANT

## 3 Meßmethoden

Im Verlauf des Projekts war es notwendig, verschiedene Stoffeigenschaften der feindispersen Ausgangsmaterialien und der agglomerierten Produkte zu bestimmen. In mehreren Fällen konnte dabei nicht auf vorhandene Methoden zurückgegriffen werden, was die Entwicklung neuer Meßverfahren erforderte. Hierzu zählen die Bestimmung der Partikelgröße und der Porosität der Agglomerate durch computergestützte Bildanalyse. Für bestimmte Anwendungen wurden außerdem bekannte Meßmethoden modifiziert, wie z.B. der Friabilitätstest.

### 3.1 Charakterisierung der Eigenschaften des Ausgangsmaterials

Für die in dieser Arbeit beschriebenen Experimente wurden im wesentlichen nur die drei Saccharide *Saccharose*, *Fructose* und *Xylitol* verwendet. Diese Substanzen sind in der Natur weitverbreitet und Bestandteil zahlreicher Nahrungsmittel. Sie lagen, mit Ausnahme von handelsüblichem Puderzucker, in grobkristalliner Form vor und wurden mit Schlagrotormühlen auf die erforderliche Feinheit gemahlen.<sup>1</sup>

Saccharose ist ein kristallines Disaccharid aus je einem Glucose- und Fructose-Monosaccharid. Sie ist Hauptbestandteil aller Instant-Kakaogetränke sowie einer Vielzahl weiterer Instantprodukte. Handelsübliche Saccharose enthält höchstens 0,3 % Fremdbestandteile und 0,06 % Wasser (KRÜGER, 1990), der Schmelzpunkt liegt bei  $186 \pm 4$  °C (SOPADE et al., 1988). Hauptquelle ist die Zuckerrübe.

---

<sup>1</sup> Hierzu dienten eine Schlagrotormühle Typ *SR3* der Firma *Retsch* sowie eine größere Anzahl elektrischer Kaffeemühlen der Fabrikate *Bosch*, *Krups* und *Moulinex*, mit denen sich (bei kleinen Durchsätzen) reproduzierbar fast die gleichen Mahlfeinheiten wie mit der Schlagrotormühle erreichen ließen. Da zum Preis einer üblichen Labormühle etwa 250 Kaffeemühlen beschafft werden können, stellen sie trotz der kurzen Lebensdauer eine preiswerte Lösung dar.

Fructose ist ein stark hygroskopisches Monosaccharid mit einem Schmelzpunkt von 102–105 °C (KRÜGER, 1990). Sie wird z.B. durch Kristallisation aus Invertzuckersirup gewonnen und ist von besonderer Bedeutung für die Diabetikerernährung. Fructose ist reaktionsfreudig und neigt bei höheren Temperaturen zum Karamellisieren und in Anwesenheit von Proteinen zu Maillard-Reaktionen.

Xylitol ist ein in der Natur weit verbreiteter Monosaccharid-Alkohol, der aus pflanzlichen Materialien, wie z.B. Birkenholz, gewonnen wird. Er ist wenig hygroskopisch und schmilzt bei 92–96 °C (KRÜGER, 1990). Xylitol ist ebenfalls für Diabetiker geeignet und wirkt kariesunterdrückend.

### 3.1.1 Bestimmung der Partikelgröße<sup>1</sup>

#### Laserbeugungsspektrometrie

Die Laserbeugungsspektrometrie zur Messung von Partikelgrößenverteilungen hat in den vergangenen Jahren allgemeine Verbreitung gefunden und ist Stand der Technik. Meßgröße ist das von einem Partikelkollektiv erzeugte, in einem bestimmten Raumwinkel erfaßte Beugungsmuster einer Laserlichtquelle, die das Meßvolumen mit einem Lichtstrahl konstanter Intensität und Wellenlänge durchleuchtet. Ein Laserbeugungsmeßgerät besteht aus einer optischen Bank sowie einer Sende- und einer Empfangseinheit, die das gebeugte Licht mit einem Linsensystem auf die Meßeinheit abbildet. In dieser Arbeit wurde ein Gerät mit 800 mm freiem Strahlengang eingesetzt (Abbildung 3-1). Die zu untersuchenden Partikeln können mit einem Dosiergerät als Partikelschwarm in den Strahlengang dosiert werden, oder als repräsentative Probe einer Suspension ortsfest in einer Naßmeßzelle vorliegen, die vor der Empfängerlinse angebracht wird (Abbildung 3-2).

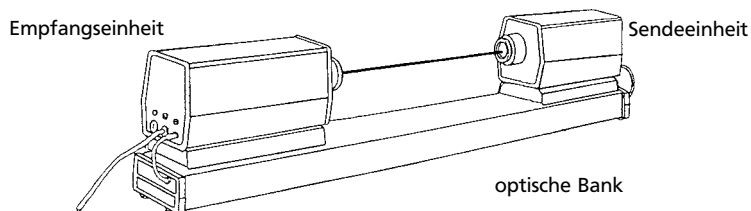


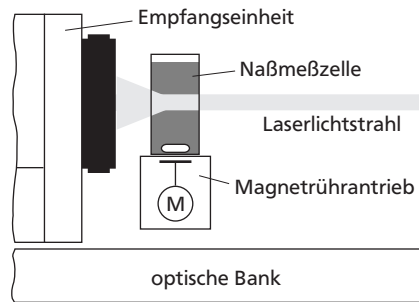
Abbildung 3-1: Malvern 2600c-Laserbeugungsmeßgerät, bestehend aus Laserlichtquelle, Empfänger-einheit und optischer Bank.

Die winkelabhängige Verteilung der Intensität des an den Partikeln gebeugten Lichts ist die Dispersitätsgröße. Nach der Fraunhofer-Theorie gilt vereinfacht, daß bei gegebener, konstanter Wellenlänge Licht an großen Partikeln mit hoher Intensität um kleine Winkel, an kleinen Partikeln mit niedriger Intensität um große Winkel gebeugt wird. Die Gesamtintensität des gebeugten Lichts hängt

<sup>1</sup> Partikelgrößenverteilungen erscheinen in dieser Arbeit durchgehend als mono- oder bimodale logarithmische Normalverteilungen in Summendarstellung.

von der Zahl der Partikeln im Meßvolumen ab, nicht jedoch die winkelabhängige Lichtverteilung. Die Beugungsmuster aller Einzelpartikeln überlagern sich in der Meßebeine zu einem für die Gesamtprobe charakteristischen, bei kugelförmigen Partikeln zur Achse des Laserstrahls punktsymmetrischen Interferenzmuster.

In der Meßebeine befindet sich ein Multielement-Detektor aus lichtempfindlichem Halbleitermaterial. Dieser besteht bei dem hier verwendeten Laserbeugungsgerät des Typs 2600c der Firma *Malvern Instruments* aus 32 konzentrischen, unabhängigen Segmenten. Die unterschiedlich starken Streulichtintensitäten großer und kleiner



Partikeln werden bereits während der Messung durch unterschiedlich große Detektorsegmente ausgeglichen. Die zeitlichen Mittelwerte der während einer Messung in den 32 Detektorsegmenten erhaltenen Lichtintensitäten werden als Meßwerte für ein numerisches Auswerteverfahren gespeichert. Bei der Malvern-Iterationsmethode wird aus diesen Werten eine „Start“-Partikelgrößenverteilung abgeleitet. Zu dieser angenommenen Verteilung wird mathematisch exakt das zugehörige Beugungsmuster berechnet und mit dem ursprünglich gemessenen Signal verglichen. Mit den aus diesem Vergleich erhaltenen Differenzen wird eine neue, besser an die Messung angeglichene Partikelgrößenverteilung geschätzt. Der Vorgang wird so lange wiederholt, bis zusätzliche Schritte keine weitere Annäherung der gerechneten an die gemessene Streulichtverteilung ergeben. Die Iterationsmethode ist unabhängig von vorgegebenen Verteilungsfunktionen und kann multimodale, enge oder breite Partikelgrößenverteilungen analysieren. Nach Herstellerangabe ist die Reproduzierbarkeit der Messung besser als 1 %.

Die Grenzen der Methode werden von physikalischen Gesetzmäßigkeiten und der technischen Ausführung bestimmt. Die allgemein verwendeten He-Ne-Laser haben eine Wellenlänge von  $\lambda = 633 \text{ nm}$ . Die Fraunhofer-Theorie gilt für Partikeln, deren Durchmesser verglichen mit der Wellenlänge der Strahlung groß ist. Die Untergrenze des Meßbereichs liegt damit bei etwa  $2\text{--}20 \text{ }\mu\text{m}$ , abhängig vom Brechungsindex der untersuchten Partikeln. Es wird ferner vorausgesetzt, daß die betrachteten Partikeln kugelförmig und lichtabsorbierend, d.h. nicht transparent sind. Die Partikelkonzentration im Meßbereich darf nicht zu hoch sein, sonst tritt Mehrfachbeugung auf, andererseits aber auch nicht zu niedrig, da sonst das nutzbare Meßsignal zu schwach ist. Unter bestimmten Umständen wird auch eine zu breite Partikelgrößenverteilung vorgetauscht: Je mehr die Partikeln von der Kugelform abweichen, desto breiter erscheint die Verteilung.

Das verwendete Gerät kann mit Hilfe verschiedener Vorsatzlinsen nach Herstellerangabe in sechs verschiedenen Meßbereichen Partikeln zwischen  $0,6 \text{ }\mu\text{m}$  und  $1,88 \text{ mm}$  Größe erfassen. Es erwies sich zur Partikelgrößenanalyse unregelmäßig geformter Agglomerate jedoch als nur bedingt geeignet und wurde daher hauptsächlich zur Messung der Partikelgrößenverteilung des gemahlten Ausgangs-

Charakterisierung der Eigenschaften des Ausgangsmaterials

Abbildung 3-2: Gerührte Naßmeßzelle im Strahlengang des Laserbeugungsgeräts.

materials sowie von Abrieb eingesetzt. Hierbei wurden (je nach Art des Pulvers) Partikelsuspensionen in Aceton, Hexan oder n-Butanon hergestellt und in eine gerührte Naßmeßzelle gefüllt.

Die mit dem verwendeten Gerät bestimmten Partikelgrößenverteilungen der gemahlene Pulver sind aus oben genannten Gründen nur untereinander vergleichbar, nicht aber mit Meßergebnissen von anderen Laserbeugungsgeräten, die mit anderen Auswertelgorithmen arbeiten, oder anderen Meßprinzipien. Ein Beispiel für die Unterschiede, die sich bei Verwendung verschiedener Laserbeugungsgeräte ergeben können, zeigt Abbildung 3–3.

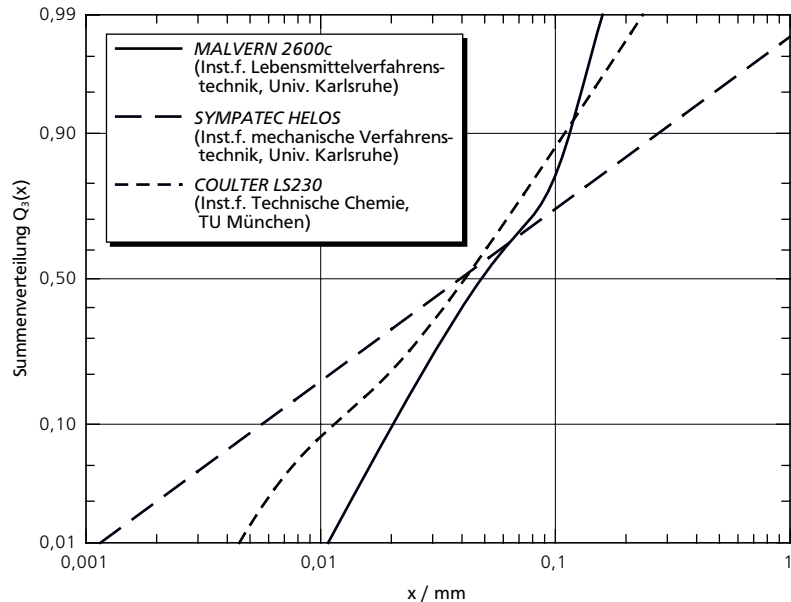


Abbildung 3–3: Partikelgrößenverteilungen von gemahlener Saccharose, gemessen mit drei verschiedenen Laserbeugungs-Meßgeräten. Vergl. Abb. 3–25 zur typischen Breite des 67 %-Vertrauensbereichs einer Laserbeugungsmessung.

Die Abweichungen zwischen den einzelnen Geräten sind beachtlich. Am vertrauenswürdigsten scheint die mit dem *Coulter LS230* gemessene Verteilung, da dieses neuere Gerät im Gegensatz zu den Geräten von *Malvern* und *Sympatec* nicht nur über 32, sondern 122 Detektorsegmente verfügt und zusätzlich das Streulicht der Partikelprobe auswertet. Die Meßergebnisse stützen die gelegentlich anzutreffende Meinung, daß Laserbeugungsmeßgeräte den Mittelwert einer Verteilung meist korrekt erkennen, jedoch Schwierigkeiten bei der Interpretation der Verteilungsbreite haben.

### Siebanalyse

Die Partikelgrößenverteilung des Ausgangsmaterials wurde bei einer Versuchsserie mit Saccharose durch Naßsiebung bestimmt, da zu diesem Zeitpunkt noch keine Naßmeßzelle für das Laserbeugungsgerät zur Verfügung stand. Die Siebanalyse erfolgte nach DIN 66165, Teil 1 als Einzelsiebung mit Rundloch-

Mikropräzisionssieben auf einer Vibrationsmaschine. Den Transport der Partikeln durch die Sieböffnungen bewirkte die Bewegung des Siebbodens und Spülen mit reiner Dispergierflüssigkeit. Als Dispergier- und Spülflüssigkeit wurde Aceton verwendet. Die Siebeinrichtung wurde freundlicherweise vom Institut für Mechanische Verfahrenstechnik und Mechanik der Universität Karlsruhe gestellt.

Für Partikelgrößenanalysen und zur Fraktionierung von Mahlgut stand eine Siebmaschine vom Typ *Retsch VibroControl VE1000* zur Verfügung. Diese Siebmaschine arbeitet mit 8"-Standardsieben (Quadratloch-Siebewebe) und verfügt über eine elektronische Regelung zur lastunabhängigen Kontrolle der vertikalen Bewegung im Bereich 0,3–3 mm. Während der Vorversuche im Rahmen der Erarbeitung einer geeigneten Methode zur Bestimmung der Partikelgrößenverteilung von unregelmäßig geformten, empfindlichen Agglomeraten wurden mit diesem Gerät auch Siebanalysen von agglomeriertem Material durchgeführt.

### 3.1.2 Bestimmung des Wassergehalts

#### Karl-Fischer-Titration

Wie bereits im Abschnitt 2.1 erläutert, hat der Flüssigkeitsgehalt eines Haufwerks entscheidenden Einfluß auf die zwischen den Partikeln wirkenden Haftkräfte. Die Stärke der Haftkräfte geht in die Zug- und Scherfestigkeit des Pulvers ein und beeinflusst damit bei bestimmten Agglomerationsverfahren die Größe, die Struktur und die Stabilität der aus dem Pulver geformten Agglomerate. Bei den hier vorgestellten Experimenten bestand die Flüssigkeit in den Pulvern ausschließlich aus Wasser und gelöstem Feststoff (Zucker).

Eine zuverlässige und schnelle Methode zur Wassergehaltsbestimmung ist die Karl-Fischer-Titration. Hierbei wird ein methanolisches Zweikomponenten-Reagenz verwendet. Die erste Komponente (*Solvent*) wird im Titriergefäß vorgelegt und löst das adsorbierte und kapillar gebundene Wasser von der hinzugefügten Feststoffprobe ab. Falls die untersuchte Substanz in Methanol löslich ist, wird auch im Feststoff absorbiertes Wasser erfaßt. Dies trifft auf die hier untersuchten Zucker zwar zu einem gewissen Grad zu, dieser Fehler spielt jedoch keine Rolle, wenn darauf geachtet wird, daß sich während der Analyse ein Bodensatz der Substanz im Reaktionsgefäß befindet.

Die zweite Komponente (*Titrant*) besteht aus einer methanolischen Jodlösung und wird volumetrisch kontrolliert in die Vorlage dosiert. Es findet eine chemische Reaktion unter Verbrauch von Jod und Wasser statt. Ist das in der Vorlage gelöste Wasser verbraucht, tritt freies Jod in der Lösung auf und verändert deren Leitfähigkeit. Dieser Vorgang wird mit Hilfe einer Leitfähigkeitssonde verfolgt, um den Titrationsendpunkt zu ermitteln. Für die Messungen stand ein vollautomatisches Titrationsgerät der Firma *Metrohm* zur Verfügung, dessen Nachweisgrenze nach Angabe des Herstellers bei 0,5 mg Wasser liegt.

Die einfachste Methode zur Ermittlung des Wassergehalts einer Probe ist die Ermittlung des Gewichtsverlusts bei Trocknung. Für die Bestimmung des Wassergehalts der hier untersuchten Pulver konnte diese Methode jedoch nicht eingesetzt werden, da je nach Trocknungsbedingungen sowohl oberflächlich adsorbiertes als auch im Feststoff absorbiertes Wasser entfernt wird. Für das Kohäsionsverhalten des Pulvers ist jedoch nur das an der Oberfläche vorhandene Wasser von Bedeutung.

### 3.1.3 Prüfmethode zur Abschätzung der Eignung eines Pulvers für die Dampfstrahlagglomeration

Ein wesentlicher Effekt der Dampfstrahlagglomeration ist die Verfestigung von Agglomeraten, die ganz oder teilweise aus wasserlöslichen Partikeln bestehen. Die Verfestigung beruht darauf, daß bei der Befeuchtung ein Teil des Feststoffs in Lösung geht und während der darauffolgenden Trocknung an den Berührungspunkten der Partikeln erstarrt. Bei diesem Vorgang muß in Sekunden eine zur Stabilisierung ausreichende Menge Feststoff in den Kontaktbereich zwischen den Partikeln gelangen. Abbildung 3-4 zeigt ein Beispiel für eine solche Festkörperbrücke zwischen zwei Saccharosepartikeln.

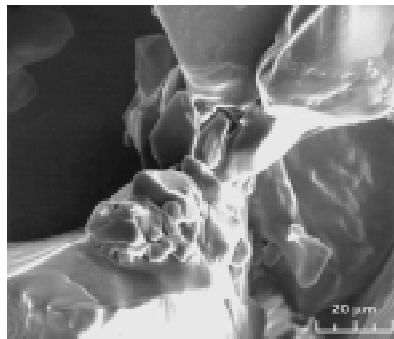


Abbildung 3-4: REM-Aufnahme einer Feststoffbrücke zwischen zwei Saccharosepartikeln.

Im Lauf des Projekts zeigte sich bei Vorversuchen, daß nicht alle wasserlöslichen Stoffe für die Strahlagglomeration geeignet sind. Andererseits kann

in vielen Fällen eine wasserlösliche Komponente die Funktion eines „Klebers“ oder einer Matrix erfüllen, so daß wasserunlösliche Partikeln von wasserlöslichen umschlossen werden und auf diese Weise stabile Agglomerate entstehen. Aufschluß darüber geben üblicherweise nur Testläufe auf einer Pilotanlage, die jedoch mit erheblichem Aufwand verbunden sind. Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher ein Schnelltest entwickelt, um die Eignung eines Pulvers für die Dampfstrahlagglomeration im Labor zu prüfen und überflüssige Versuche mit einer Technikumsanlage zu vermeiden.

Das Testverfahren erlaubt es, die verfestigende Wirkung der kurzzeitigen Behandlung einer Pulverschüttung mit kondensierendem Dampf und nachfolgender Trocknung zu überprüfen. Hierzu wird eine definierte Menge Wasserdampf durch eine kleine Pulverschüttung gedrückt. Die Schüttung wird getrocknet und die Verfestigung im Vergleich zum Ausgangszustand durch Eindringen eines Prüfkörpers ermittelt. Die erhaltenen Ergebnisse wurden in der Erprobungsphase des Tests mit dem Verhalten des untersuchten Materials in der Dampfstrahlagglomeration

merationsanlage verglichen, wobei sich die Eignung des Tests zur qualitativen Beurteilung der Agglomerierbarkeit eines Pulvers bestätigte.

Charakterisierung der Eigenschaften des Ausgangsmaterials

### Aufbau der Bedampfungseinrichtung

Wichtigstes Element der Apparatur ist ein wärmeisolierter, mit einem Doppelmantel versehener Kolbenprober, der bis zu 200 ml Dampf faßt. Die aufgezugene Dampfmenge läßt sich an einer Skala auf dem Kolbenprober ablesen. Die Dampfzufuhr geschieht durch den hohlen Stempel, der zu diesem Zweck am oberen Ende abgesägt und am Boden mit einem Schlitz versehen ist. Ein Thermoelement an der Innenwand des Stempels dient zur Überwachung der Temperatur im Innenraum des Kolbens. Dampfquelle ist ein mit destilliertem Wasser gefüllter, elektrisch beheizter Rundkolben, der gleichzeitig auch den Heizdampf für den Doppelmantel liefert. An verschiedenen Stellen in der Apparatur sind Kondensatfänge eingebaut. Abbildung 3-5 zeigt schematisch die Einzelteile des modifizierten Kolbenprobers.

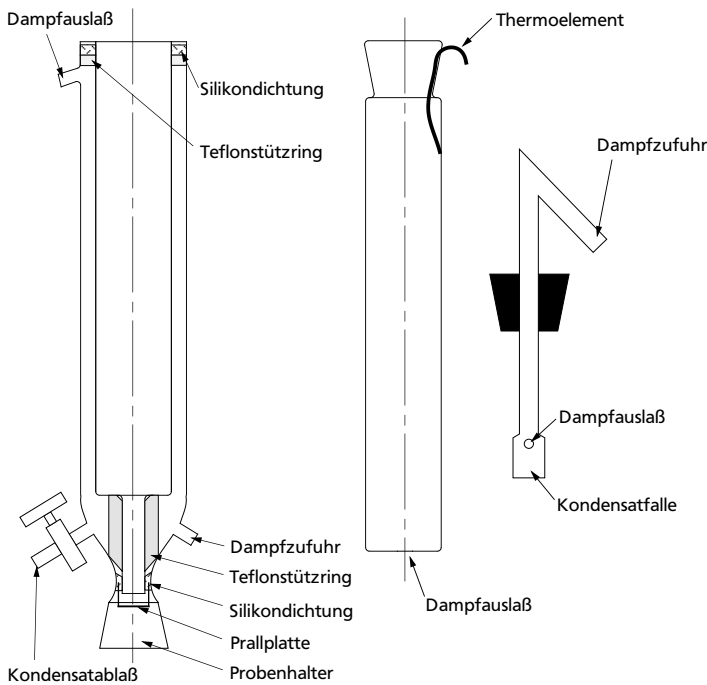


Abbildung 3-5: Einzelteile des als Bedampfungsvorrichtung modifizierten Kolbenprobers (Zusammengebaute Apparatur siehe Abbildung 3-6).

Der Heizmantel ist mit zwei Teflonringen abgestützt und mit Silikondichtmasse abgedichtet. Das untere Ende des Mantels mündet in einen Normschliff, der als Halterung für die Probengefäße dient. Um ein gleichmäßiges Bedampfen der Proben zu ermöglichen, ist in der Silikonmasse am Auslaß des Kolbenprobers eine

Prallplatte befestigt. Sie bildet auch einen Schutz gegen eventuell herabtropfendes Kondensat.

Die vollständige Bedampfungseinrichtung ist in Abbildung 3-6 zu sehen. Eine Abtauchung am Dampfaußlaß bewirkt eine leichte Druckerhöhung in der Apparatur, so daß die Betriebstemperatur geringfügig oberhalb von 100 °C liegt. Auf diese Weise ist ein weitgehend kondensatfreier Betrieb über längere Zeit möglich. Die gesamte Apparatur und die Dampfzuleitungen sind mit Glaswolle wärmeisoliert.

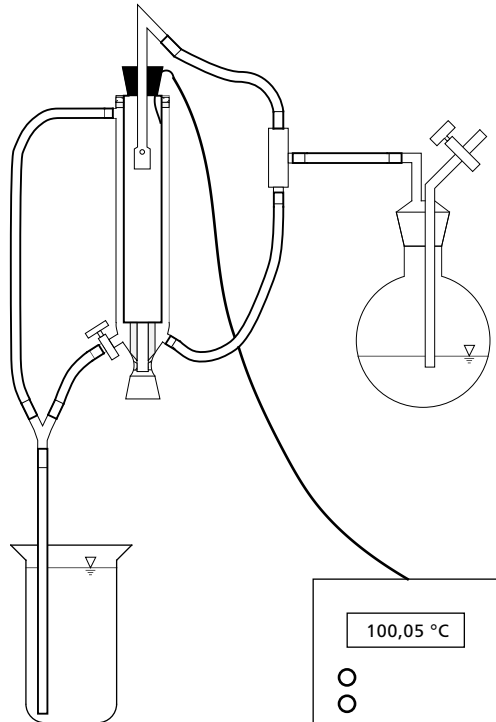


Abbildung 3-6: Anschlußschema der Bedampfungsvorrichtung.

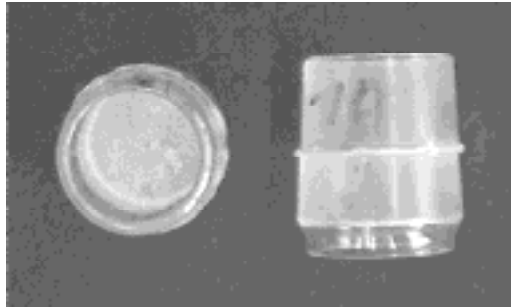
### Meßverfahren zur Bestimmung der Verfestigung einer Pulverprobe

Abbildung 3-7 zeigt zwei der verwendeten Probengefäße: Zwischen den beiden Hälften eines quer durchgesägten NS 29-Normschliffstutzens ist mit Silikonkleber ein Drahtnetz eingefügt. Auf diesem Netz wird vor Versuchsbeginn etwa 1 g Pulver verteilt. Anschließend wird das Probengefäß in den Normschliffstutzen des Kolbenprobers eingesetzt und durch Herabdrücken des Kolbens innerhalb von 2 s etwa 0,12 g Dampf durch die Schüttung gedrückt, wovon höchstens die Hälfte kondensiert. Um ein Aufwirbeln des Pulvers während des Bedampfens zu verhindern, kann ein Kunststoffnetz auf die Pulverschüttung gelegt werden. Eine Feder



drückt das Netz während des Bedampfens auf die Schüttung. Dadurch wird eine glatte Oberfläche erzeugt, die für die nachfolgenden Eindrückversuche vorteilhaft ist. Die Probe wird bei 70 °C und 1.000 Pa mindestens 1 h getrocknet und anschließend auf Raumtemperatur abgekühlt.

Eine eventuelle Verfestigung der bedampften und getrockneten Proben wird mit Eindrückversuchen ermittelt. Dabei wird ein zylinderförmiger Prüfkörper mit konstanter Geschwindigkeit in die



Charakterisierung der Eigenschaften des Ausgangsmaterials

Abbildung 3-7: Probengefäße aus Normschliffstutzen NS 29.

Schüttung gedrückt. Bei den hier durchgeführten Versuchen betrug der Durchmesser des Prüfkörpers 2 mm und die Vorschubgeschwindigkeit  $50 \mu\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ . Die Messung der Eindrückkraft in Abhängigkeit von der Eindringtiefe ergibt ein Kraft-Weg-Diagramm, das jeweils für die Probe im Ausgangszustand und für die bedampfte Probe aufgenommen wird. Der Vergleich dieser beiden Diagramme erlaubt eine Beurteilung der Verfestigung.

Der Aufbau der Meßapparatur ist in Abbildung 3-8 zu sehen. Der Proben-tisch wird von einem stufenlos regelbaren Elektromotor angetrieben und der zurückgelegte Weg mit einem induktiven Wegaufnehmer gemessen. Die Eindrückkraft wird mit einer Kraftmeßdose registriert, wobei die Einstellung des jeweils erforderlichen Meßbereichs durch Einbau einer entsprechenden Meßdose realisiert wird. Beide Sensoren sind als induktive Halbbrücken geschaltet.

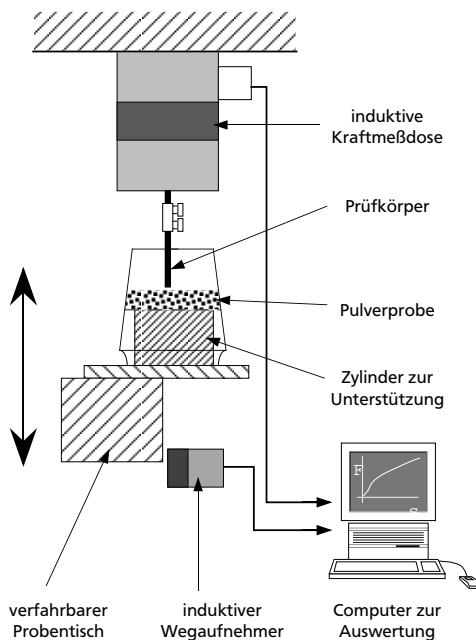


Abbildung 3-8: Schematische Darstellung der Druckprüfeinrichtung.

Bei den Experimenten stand zur Verarbeitung der Meßsignale ein digitaler Trägerfrequenzmeßverstärker des Typs *DMCplus* der Firma *Hottinger Baldwin Meßtechnik* zur Verfügung. Mit der zugehörigen Meßsoftware *BEAM DMCplus* kann dieser Meßverstärker von einem *Apple Macintosh*®-Rechner angesteuert werden. Die Software dient sowohl zur schnellen und reproduzierbaren Einstellung der Verstärkerparameter als auch zur Auswertung der Meßergebnisse.

### Typische Kraft-Weg-Kurven

Während der Erprobungsphase des Tests wurden als Versuchsmaterial Stoffe verwendet, die zur selben Zeit auf der Strahlagglomerationsanlage getestet wurden oder deren Agglomerierbarkeit bereits aus früheren Versuchen bekannt war. Es handelte sich dabei unter anderem um Puderzucker und Lactose, die als Beispiele für gut bzw. schlecht strahlagglomerierbare Substanzen gelten können (siehe Abbildungen 3–9 und 3–10).

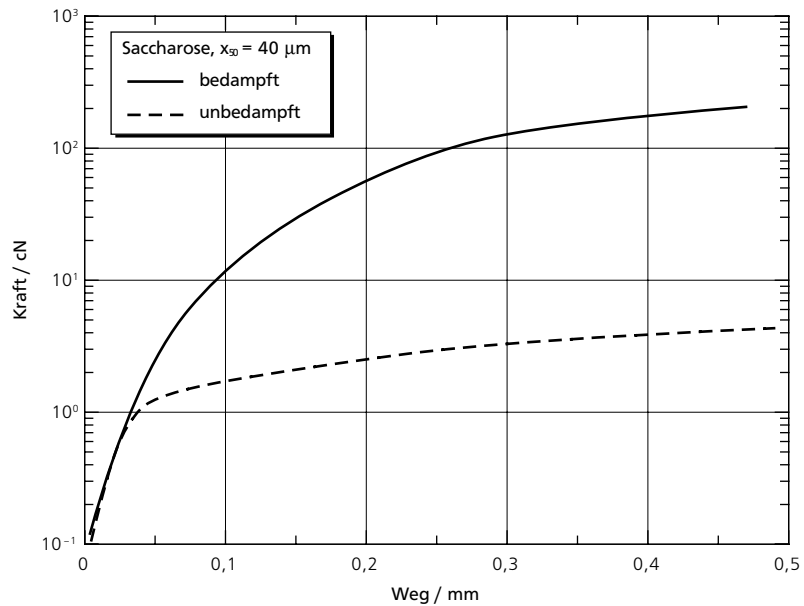
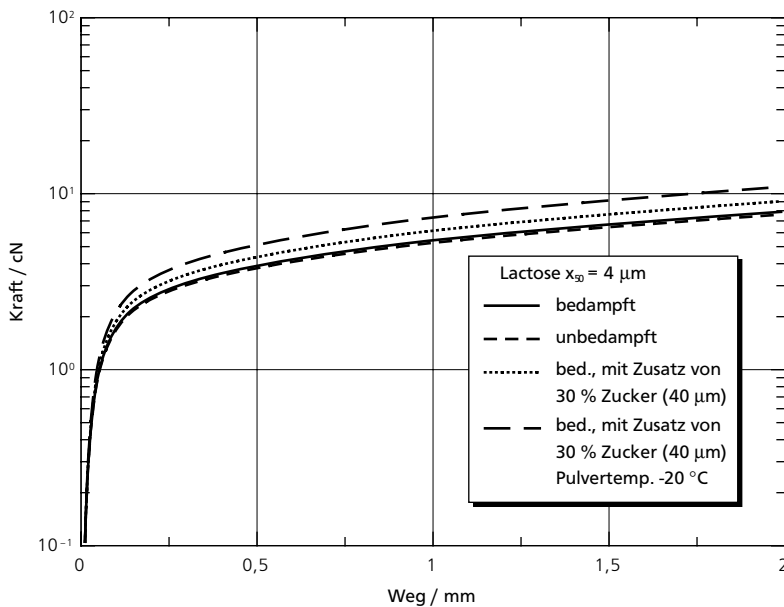


Abbildung 3–9: Kraft-Weg-Diagramm für das Eindringen eines zylindrischen Prüfkörpers von 2 mm Durchmesser in eine trockene und eine bedampfte Schicht gemahlener Saccharose (geglättete Einzelmessungen). Wasseraktivität während der Versuchsdurchführung  $\approx 0,3$ .

Ein zur Strahlagglomeration nach dem hier beschriebenen Verfahren geeignetes Material sollte vor der Befeuchtung bereits im leicht verdichteten Zustand einen meßbaren Widerstand gegen das Eindringen des Prüfkörpers zeigen. Ist dies der Fall, kann aufgrund von Haftkräften im trockenen Pulver mit der Bildung von Voragglomeraten gerechnet werden. Sowohl Saccharose (Abbildung 3–9) als auch Lactose (Abbildung 3–10) zeigen dieses Verhalten. Die verwendete mikronisierte Lactose neigt besonders stark zur Trockenagglomeration.



## Charakterisierung der Eigenschaften des Ausgangsmaterials

Abbildung 3-10: Kraft-Weg-Diagramm für das Eindringen eines zylindrischen Prüfkörpers von 2 mm Durchmesser in eine trockene und eine bedampfte Schicht mikronisierter Lactose bzw. eine Mischung aus Lactose und gemahlener Saccharose (geglättete Einzelmessungen). Wasseraktivität während der Versuchsdurchführung  $\approx 0,3$ .

Bei einem Vergleich zwischen den Kraft-Weg-Kurven für bedampfte Saccharose und Lactose – man beachte die unterschiedlichen Achseneinteilungen – fällt auf, daß Saccharose mit einem Anstieg der Eindringkraft um etwa 1,5 Größenordnungen auf das Bedampfen reagiert, reine Lactose dagegen praktisch keine Veränderung zeigt. Erst wenn der Lactose Saccharose beigemischt und die Mischung zusätzlich vor dem Versuch auf  $-20\text{ °C}$  abgekühlt wird, um die Wasseraufnahme zu steigern, zeigt sich ein geringfügig höherer Widerstand gegen das Eindringen des Prüfkörpers.

Ein qualitativer Zusammenhang mit der Agglomerierbarkeit des jeweiligen Pulvers war aufgrund der gleichzeitig durchgeführten Strahlagglomerationsversuche leicht herzustellen: Saccharose bildete bei der Dosierung Voragglomerate, die durch die Dampfbehandlung verfestigt wurden. Lactose bildete ebenfalls Voragglomerate etwa derselben Größe, diese ließen sich jedoch nicht stabilisieren und zerfielen bereits bei kleinsten Belastungen. Mischungen aus Lactose und Saccharose ließen sich bei Vorkühlung des Ausgangsmaterials zu Agglomeraten von geringer Festigkeit verarbeiten.

Die Resultate zeigen, daß sich der Test zur Beurteilung der Eignung eines pulverförmigen, wasserlöslichen Materials für die Strahlagglomeration eignet. Die hier verwendete Apparatur ist aufgrund des Prüfkörperdurchmessers von 2 mm nur für Pulverproben mit einer Oberkorngrenze bis etwa  $200\text{ µm}$  geeignet. Grobkörnigeres Material ist für die Strahlagglomeration nach dem hier vorgestellten Prinzip allerdings ohnehin nicht von Interesse, da es nicht in ausreichendem Maß Trockenagglomerate bildet.

Bei der Neuentwicklung oder Anpassung von Verfahren zur Messung von Stoffeigenschaften der für die Strahlagglomeration eingesetzten Pulver wurde auch mit Methoden gearbeitet, die auf die Bestimmung von Haftkräften in Schüttgütern abzielen. Diese Arbeiten führten im Rahmen dieser Arbeit nicht zu Eigenschaftsfunktionen, die Stoffeigenschaften des Produkts mit Stoffeigenschaften des Ausgangsmaterials verknüpfen. Es zeigte sich aber bereits interessante Tendenzen, die es sinnvoll erscheinen lassen, diese Methoden weiterzuentwickeln, um sie an die speziellen Anforderungen bei der Beurteilung von Ausgangsmaterial für das Strahlagglomerationsverfahren anzupassen.

### Zugfestigkeit einer verdichteten Pulverschüttung

Die Zugfestigkeit eines Partikelhaufwerks kann im Idealfall mit der maximal durch Haftkräfte übertragbaren Zugspannung identisch sein (SCHUBERT und WIBOWO, 1970) und ist eine mit geeigneten Methoden meßbare Größe. Nach RUMPF (1974) ist sie im Fall des spröden Versagens eines Agglomerats unter äußerer Beanspruchung auch die maßgebende Kenngröße des Schüttguts. Die Zugfestigkeit hängt von Stärke und Reichweite der Haftkräfte zwischen den Partikeln im Haufwerk, dem Verdichtungszustand des Haufwerks und der Partikelgröße bzw. -größenverteilung ab. Es wird angenommen, daß sie bei dem im Rahmen dieser Arbeit hauptsächlich verwendeten Verfahren der Trockenagglomeration ebenfalls der maßgebliche Kennwert zur Abschätzung der zu erwartenden Agglomeratgröße ist.

Die Zugfestigkeit  $\sigma_z$  ist hierbei definiert als die bei einem Zugversuch ermittelte, maximale Zugkraft  $F_{max}$  bezogen auf die theoretische Bruchquerschnittsfläche  $A$ . Die Zugkraft ist die Summe der an den Kontaktpunkten zwischen den einzelnen Partikeln des Schüttguts in  $z$ -Richtung wirkenden Komponenten der Haftkräfte  $F_i$ . Der Bruch, der sich nach Überschreiten der Zugfestigkeit ergibt, steht senkrecht zur Zugkraft. In der Realität ist der Bruch nicht eben, sondern folgt der Kontur der Partikeln an der Bruchfläche (Abbildung 3-11).

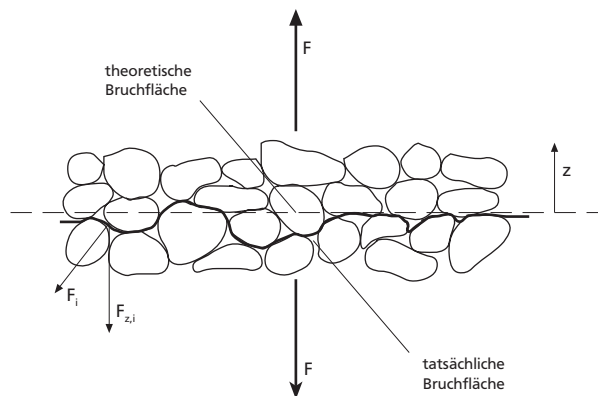
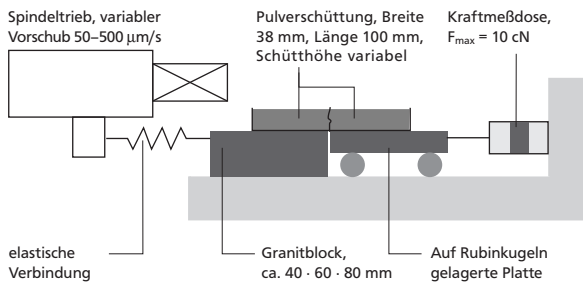


Abbildung 3-11: Theoretischer und tatsächlicher Bruchverlauf in einer Pulverschüttung.

Für die Untersuchungen wurde die *Zugtisch-Apparatur* von SCHUBERT und WIBOWO (1970) zur Messung der Zugfestigkeit von feuchten Schüttgütern modifiziert. Die Apparatur wurde wegen der geringen Zugfestigkeit von trockenen Pulvern mit einer empfindlichen Kraftmeßdose (Auflösung  $\approx 10^{-6}$  N) ausgerüstet. Die hier verwendete Pulveraufnahme war zweigeteilt (siehe Abbildung 3-12). Der mit der Kraftmeßdose verbundene Teil war reibungsfrei auf drei Rubinkugeln gelagert. Der andere Teil der Pulveraufnahme befand sich auf einem verschiebbaren Granitblock, der über eine elastische Verbindung mit einem Spindeltrieb verfahren werden konnte (maximale Vorschubgeschwindigkeit  $\approx 50 \mu\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ ). Durch diese Maßnahme war die Kraftmeßdose weitgehend von Vibrationen des Antriebs entkoppelt.



Charakterisierung der Eigenschaften des Ausgangsmaterials

Abbildung 3-12: Modifizierte Zugtisch-Apparatur zur Bestimmung der Zugfestigkeit von trockenen Pulverschüttungen.

Während der Versuchsdurchführung wurde die Pulverschüttung durch Verfahren des Spindeltriebs einer Zugspannung ausgesetzt und die Zugkraft bis zum Reißen der Schüttung aufgezeichnet. Die Kraftmeßdose war dabei an den bereits in Abschnitt 3.1.3 erwähnten digitalen Trägerfrequenzmeßverstärker des Typs *DMCplus* der Firma *Hottinger Baldwin Meßtechnik* angeschlossen. Auch hier wurde zur Auswertung der Daten die Software *BEAM DMCplus* auf einem *Apple Macintosh*®-Rechner eingesetzt.

Es war ursprünglich vorgesehen, Pulverschüttungen mit ähnlichem Wassergehalt wie bei der Voragglomeratbildung der Strahlagglomerationsanlage zu untersuchen und die Proben mit vergleichbaren Drücken zu verdichten. Dies ließ sich mit dieser Apparatur jedoch aus folgenden Gründen nicht realisieren:

- Aus mechanischen Gründen war es nicht möglich, die erforderlichen hohen Preßkräfte aufzubringen. Hierzu hätten die Lager der verschiebbaren Teile Kräfte bis zu 2.000 N aufnehmen müssen und wären einer beträchtlichen Gefahr der Beschädigung ausgesetzt gewesen.
- Bereits bei geringer Verdichtung zeigten einige Pulver ab einem Wassergehalt von 0,2 % eine so starke Kohäsion, daß beim Zugversuch die gesamte Schüttung die Form einer Tablette annahm, die sich vom Boden der Matrize ablöste und nicht zerrissen werden konnte.

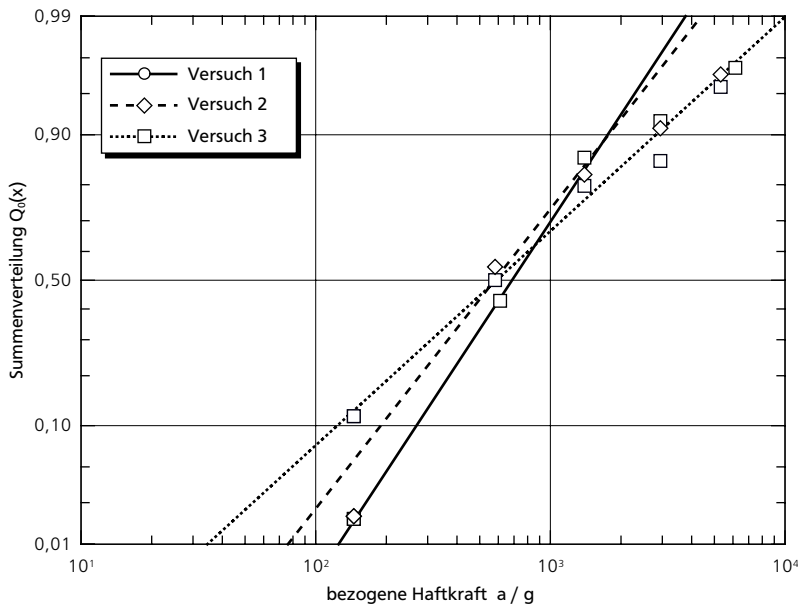
Es wurden daher nur einige orientierende Versuchsreihen durchgeführt, die Grundinformationen für eine verbesserte Apparatur lieferten.

Ein anderer, von mehreren Autoren eingeschlagener Weg zur Charakterisierung der Hafteigenschaften von Partikeln ist die *Zentrifugenmethode* (u.a. BÖHME et al., 1964, KRUPP, 1967, POLKE, 1971, SCHÜTZ, 1979). Hierbei werden Partikeln auf ein Substrat an der Außenseite eines Zentrifugenrotors aufgebracht und anschließend einer wachsenden Zentrifugalbeschleunigung ausgesetzt. Der Anteil der noch haftenden Partikeln als Funktion der Beschleunigung wird ermittelt, indem der Rotor jeweils nach Erreichen bestimmter Drehzahlen wieder gestoppt und entweder die Zahl der noch haftenden oder der bereits abgeschleuderten Partikeln ermittelt wird.

Mit dieser Methode können Unterschiede im Haftverhalten verschiedener Materialien untersucht werden. Sie eignet sich für Partikeln, bei denen der Einfluß der Schwerkraft auf das Haftvermögen vernachlässigbar ist ( $5 \mu\text{m} < x < 100 \mu\text{m}$ , SCHÜTZ, 1979). Das Ergebnis ist allerdings von mehreren Parametern abhängig, deren Einflüsse sich nicht voneinander trennen lassen. So sind z.B. im allgemeinen weder die van-der-Waals-Konstante der Materialpaarung Partikel-Substrat noch die Kontaktgeometrie oder die Anzahl der Kontaktpunkte zwischen Partikel und Substrat bekannt. Dieses Problem verschärft sich noch, wenn Sorptionschichten vorhanden sind. SCHÜTZ nennt als Voraussetzung für die Messung eine annähernd monodisperse Partikelgrößenverteilung und ebene Kontaktflächen.

Ein Vorteil der Zentrifugenmethode ist, daß das Ergebnis einer Messung das Haftverhalten einer großen Zahl von Partikeln beinhaltet, also ein Durchschnittswert einer Partikelpopulation ist. Üblicherweise wird der Anteil der abgeschleuderten Partikeln in Form einer Summenverteilung über der Haftkraft aufgetragen. In vielen Fällen lassen sich diese Verteilungen gut durch logarithmische Normalverteilungsfunktionen beschreiben. Die Auftragung kann auch über der Fliehbeschleunigung erfolgen, die für monodisperse Partikeln proportional der Haftkraft ist. Abbildung 3-13 zeigt ein Beispiel für drei Messungen mit dem gleichen Material. Ordinatenswert ist hier das Verhältnis von Flieh- zu Erdbeschleunigung, d.h. die auf die Gewichtskraft bezogene Trennkraft (zur Definition siehe Abschnitt 2.1.1). SCHÜTZ erwähnt außerdem die Möglichkeit, die Winkelabhängigkeit der Haftkraft durch schräge Montage des Substrats am Rotor zu untersuchen und verweist auf entsprechende Experimente von anderen Autoren.

Die bei den Agglomerationsexperimenten in dieser Arbeit verwendeten Zucker Saccharose, Fructose und Xylitol zeigten unterschiedliches und wassergehaltsabhängiges Kohäsionsverhalten. Mit Hilfe der Zentrifugenmethode wurde versucht, dieses Verhalten auf charakteristische Hafteigenschaften einzelner Partikeln der jeweiligen Substanz zurückzuführen. Die hier vorgestellten Ergebnisse haben allerdings nur orientierenden Charakter. Sie stammen aus einer Serie von Experimenten, die der Verfasser am Institut für Mechanische Verfahrenstechnik der TU Bergakademie Freiberg durchführte. An dieser Stelle sei dafür nochmals Herrn Prof. Husemann und seiner Mitarbeiterin Frau Dipl.-Ing. Wolf für diese Gelegenheit und die freundliche Betreuung gedankt.



### Charakterisierung der Eigenschaften des Ausgangsmaterials

Abbildung 3-13: Typische Verläufe von Haftkraftverteilungen (annähernd monodisperse Fructosepartikeln,  $x_{50} = 70 \mu\text{m}$ ,  $\rho_p \approx 1.600 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ , relative Luftfeuchte während der Versuchsdurchführung  $\approx 0,4$ , Partikeln vor Versuchsbeginn 7 d bei  $a_W \approx 0$  konditioniert).

Für die Experimente stand eine Laborzentrifuge mit einer maximalen Drehzahl von etwa 7.000 Umdrehungen pro Minute zur Verfügung. Der Rotor der Zentrifuge ist für die Aufnahme von bis zu sechs Zentrifugierbechern vorgesehen. Für zwei derartige Becher waren Substralthalter vorhanden (siehe Abbildung 3-14), die so gestaltet waren, daß sie schnell demontiert und wieder eingesetzt werden konnten. Mit einem effektiven Rotorradius von 0,13 m (Entfernung des Substrats von der Rotorachse) ergab sich eine maximal erreichbare Fliehbeschleunigung von etwa 7.100 g.

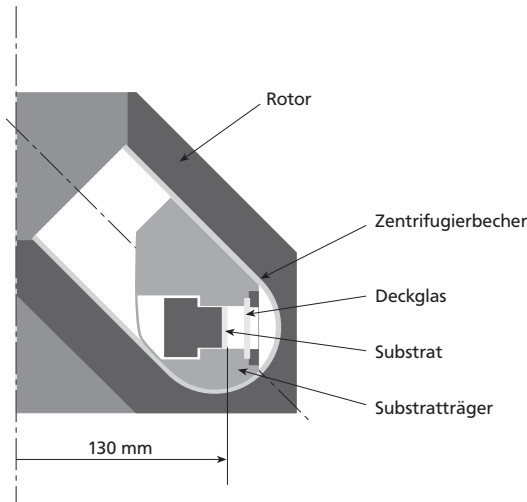


Abbildung 3-14: Schematische Darstellung des Zentrifugenrotors mit eingesetztem Becher und Substratträger.

Die zu untersuchenden Partikeln wurden aus grobkörnigem Material durch Mahlen und Naßsieben hergestellt und die Siebfraktionen mittels Laserbeugungsspektrometrie kontrolliert. Von fünf Siebfraktionen je Substanz wurden kleine Mengen abgeteilt und in verschlossenen Sorptionsgefäßen bei konstanter Temperatur und Wasseraktivität konditioniert.

Zur Versuchsdurchführung wurde eine kleine Menge des jeweiligen Pulvers durch ein passend ausgewähltes Stück Siebgewebe auf die Substrate (in diesem Fall Glas) so aufgestäubt, daß die einzelnen Partikeln deutlich voneinander unterscheidbar waren. Eine Aufnahme der präparierten Substrate – hierzu diente ein spezielles Meßmikroskop mit Adapter für die Substratträger – hielt den Start-

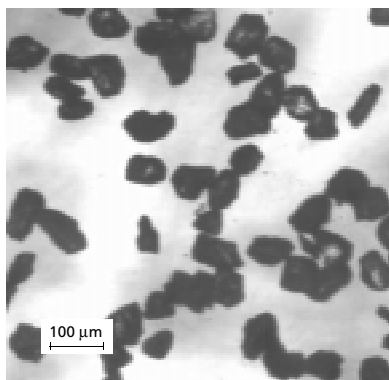


Abbildung 3-15: Teilansicht einer Aufnahme eines mit Saccharosepartikeln belegten Glassubstrats vor Beginn der Zentrifugation.

zustand fest (siehe Abbildung 3-15). Anschließend wurden die Substratträger in die Zentrifuge eingesetzt und verschiedene Drehzahlen angefahren. Sofort bei Erreichen der gewünschten Drehzahl wurde die Zentrifuge abgebremst, die Substratträger entfernt und unter dem Mikroskop aufgenommen. Das Speichern der Bilder erfolgte auf einem *Apple Macintosh*®-Rechner, an den die zur Aufnahme verwendete CCD-Kamera angeschlossen war. Zur Kamerakontrolle und Speicherung der Bilder diente das Programm *NIH Image*.<sup>1</sup>

Die während der Zentrifugation bei der jeweils letzten angefahrenen Drehzahl abgeschleuderten Partikeln ergaben sich aus der Differenz des Bilds bei dieser Drehzahl im Vergleich zum Bild bei der vorherigen Drehzahl. Da alle zur Auswertung erforderlichen Bilder digitalisiert vorlagen, konnten die Unterschiede zweier Bilder durch Überlagern am Monitor und Markieren der abzentrifugierten Partikeln ermittelt werden. Zur Auswertung diente das Bildbearbeitungsprogramm *Adobe Photoshop*® auf einem *Apple PowerMacintosh*® (siehe Abbildung 3-16).

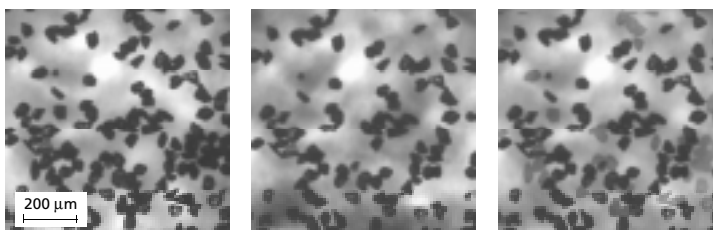


Abbildung 3-16: Zwei Aufnahmen eines mit Saccharosepartikeln belegten Substrats bei aufeinanderfolgenden Drehzahlen und überlagertes Bild (ganz rechts). Fehlende Partikeln erscheinen heller als die verbliebenen.

<sup>1</sup> Der folgende Verwendungs- und Bezugsnachweis erscheint auf Wunsch der NIH:

*NIH Image* was also used on several *Macintosh*® and *PowerMacintosh*® computers for image enhancement and analysis, as will be described in following sections of this thesis. This program is in the public domain. It was developed at the U.S. National Institutes of Health and is available from the Internet by anonymous FTP from [zippy.nimh.nih.gov](http://zippy.nimh.nih.gov) or on floppy disk from the National Technical Information Service, Springfield, Va., part number PB95 - 500 195 GEI.



---

## 3.2 Charakterisierung der Eigenschaften des agglomerierten Produkts

Charakterisierung der  
Eigenschaften des  
agglomerierten Produkts

Während der ersten Vorversuchsreihen mit der hier vorgestellten Agglomerationsanlage zeigte sich, daß die besonderen Eigenschaften der erzeugten Agglomerate mit der vorhandenen Partikelmeßtechnik nicht zufriedenstellend erfaßt werden konnten. Form, optische Eigenschaften und in vielen Fällen auch Größe der Agglomerate machten sie für eine Partikelgrößenanalyse durch Laserbeugungsspektrometrie ungeeignet. Aufgrund der lockeren Struktur der Agglomerate waren auch die Siebanalyse zur Partikelgrößenbestimmung sowie die Quecksilberporosimetrie zur Ermittlung des Hohlraumanteils nicht anwendbar. Die Größe der bei der Voragglomeration entstehenden Trockenagglomerate ließ sich mit konventionellen Methoden ebenfalls nicht bestimmen, da diese Agglomerate so instabil waren, daß sie nicht aufgefangen werden konnten. Es wurden daher geeignete, neue Verfahren entwickelt. Andere Eigenschaften des agglomerierten Produkts konnten mit vorhandenen oder modifizierten Methoden gemessen werden.

### 3.2.1 Bestimmung der Partikelgröße

Bei ersten Versuchen zur Partikelgrößenanalyse der durch Strahlagglomeration hergestellten lockeren, unregelmäßig geformten Zuckeragglomerate wurden deutliche Abweichungen zwischen den Ergebnissen der Siebanalyse und der Laserbeugungsspektrometrie festgestellt. Beide Verfahren lieferten häufig unbefriedigende Ergebnisse, da die Siebanalyse zu Abrieb und Bruch führte, das Laserbeugungsverfahren hingegen aufgrund der Form und der optischen Eigenschaften der Agglomerate falsche Partikelgrößenverteilungen anzeigte. In vielen Fällen überschritt die Maximalgröße der Agglomerate außerdem die obere Meßgrenze des *Malvern 2600c* von 1,88 mm.

Die exakteste Methode der Partikelgrößenanalyse besteht darin, die Geometrie einzelner Partikeln unmittelbar zu vermessen. Hierfür kommen Abbildungsverfahren in Betracht, die die Umrisse der Partikeln eindeutig erkennen lassen (z.B. licht- oder elektronenmikroskopische Aufnahmen, holographische Abbildungen, Hochgeschwindigkeitsfilmaufnahmen). Die Bildauswertung kann mit Schablonen, durch Planimetrie oder im Fall der Rechnerauswertung durch elektronische Bildanalyse geschehen. Die wichtigste Meßgröße ist hierbei die Projektionsfläche einer Partikel. Zur Volumenberechnung müssen Annahmen über den Zusammenhang zwischen dieser Fläche und dem Objektvolumen getroffen werden.

Computergestützte Bildauswertung erlaubt die schnelle Erfassung zahlreicher Partikeln, hat jedoch auch den Nachteil, daß ihre Genauigkeit von der Auflösung digitalisierter Bilder abhängt, die deutlich geringer ist als das Auflösungsvermögen einer Fotoemulsion. Häufig muß entweder auf die Auswertung der kleinsten Partikeln verzichtet oder es können auf einem Bild nur sehr wenige große Partikeln erfaßt werden. Bei der Verwendung von Lichtmikroskopen besteht darüberhin-

aus eine Beschränkung durch die begrenzte Schärfentiefe. Es können entweder nur die kleinsten oder die Umrisse der größten Objekte scharf abgebildet werden.

Aus statistischen Gründen ist – außer bei sehr engen Verteilungen – das Ausmessen mehrerer tausend Partikeln erforderlich, um die erforderliche Mindestanzahl der größten Partikeln zu erreichen. Rechnergestützte Verfahren mit direkter Bildaufnahme erfordern bei Verwendung von CCD-Kameras, die üblicherweise höchstens  $\approx 1.200 \cdot 1.200$  Bildpunkte liefern, die Auswertung zahlreicher Bilder.

Um Bilder mit Computersystemen verarbeiten zu können, müssen sie durch *Digitalisierung* in rechnerkompatible Datenformate umgesetzt werden. Die Digitalisierung umfaßt zwei Vorgänge, die als *Rasterung* und *Quantisierung* bezeichnet werden. Bei der Rasterung wird die Bildvorlage durch Überlagerung mit einem rechteckigen oder quadratischen Gitter in einzelne Rasterflächenstücke unterteilt. Zur Quantisierung wird jedem dieser *Pixel* (für *picture element*) genannten Stücke ein Helligkeitswert oder – für Farbwiedergabe – ein Wertetripel der Grundfarben Rot, Grün und Blau zugewiesen. Diese Helligkeitswerte sind ganzzahlig und haben bei einfachen Aufnahmegeräten den Wertebereich 0–255 (8 *bit* = 1 *Byte* pro Farbe), bei hochwertigen Geräten den Wertebereich 0–4096 (12 *bit* = 1,5 *Byte* pro Farbe). Ein digitalisiertes Bild ist also eine zweidimensionale Matrix aus ganzen Zahlen oder Tripeln ganzer Zahlen.

Diese Form der Repräsentation eines Bildes gestattet es, Manipulationen wie Farb- oder Kontraständerungen, Weichzeichnen oder Schärfen als mathematische Operationen zu definieren, die auf die Zahlenwerte der Matrix angewendet werden. Ebenso können Bilder mit identischen Matrixdimensionen miteinander verrechnet werden. Eine umfassende Einführung in die Technik der digitalen Bildverarbeitung gibt Russ (1995).

Die Rasterweite beeinflusst die Qualität des Bildes. Ist die Fläche eines einzelnen Bildelements groß, gehen Details des Originals verloren, ist sie klein, ist das Datenaufkommen sehr hoch. Die Abbildung beliebig konturierter Objekte auf ein Raster ist also zwangsläufig mit einem Informationsverlust verbunden. Dieser ist umso gravierender, je näher sich die Abmessungen des abzubildenden Objekts und die Abmessungen der Rasterelemente kommen (siehe Abbildung 3–17). Im Zeitalter preiswerter und leistungsstarker Rechner geht der Trend jedoch zur höheren Bildauflösung und Farbtiefe, d.h. zu höherem Informationsgehalt.

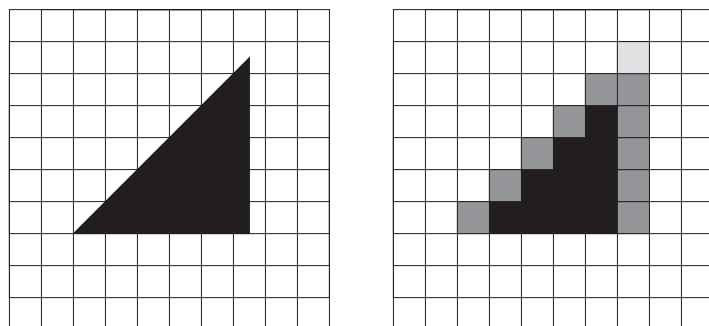


Abbildung 3–17: Abbildung einer dreiecksförmigen Projektionsfläche auf ein Graustufenraster. Je nach Überdeckung wird den Bildelementen ein Helligkeitswert (= Graustufe) zugewiesen.

## Rechnergestützte Bildauswertung mit Flachbettscanner

Charakterisierung der  
Eigenschaften des  
agglomerierten Produkts

Eine häufig verwendete Methode zur computergestützten Bildauswertung besteht darin, eine Fotografie mit Hilfe eines Flachbettscanners in einen Rechner einzulesen. Abbildung 3–18 veranschaulicht die Funktionsweise eines solchen Geräts. Das Arbeitsprinzip beruht auf dem schrittweisen Abtasten der auf einer Glasplatte liegenden Vorlage durch eine Zeile lichtempfindlicher Sensoren. Bei der Digitalisierung wird die Vorlage von einer starken Lichtquelle angeleuchtet und das Bild über ein Spiegelsystem und eine Linse auf eine Reihe von CCD-Elementen abgebildet. Diese liefern je nach Intensität des auftreffenden Lichts eine Spannung, die von einem Analog-Digital-Wandler in einen Binärwert übersetzt wird. Das digitalisierte Bild wird an den steuernden Computer übergeben. Da das Abbildungssystem mit langen Brennweiten und vergleichsweise großen Objektweiten arbeitet, muß die Vorlage nicht unbedingt exakt auf der Glasplatte liegen. Der Tiefenschärfebereich eines handelsüblichen, einfachen Graustufenscanners vom Typ *Apple OneScanner*® erstreckte sich bei einem Vorversuch des Verfassers über mehr als 10 Millimeter.<sup>1</sup>

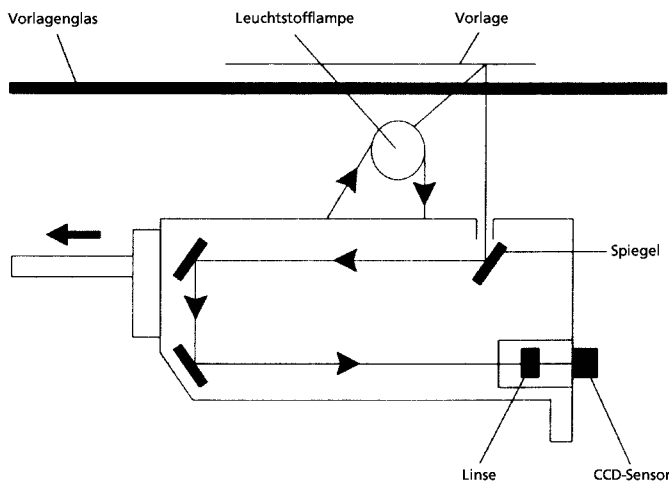


Abbildung 3–18: Schematische Darstellung der Arbeitsweise eines CCD-Flachbettscanners im Auflichtbetrieb (PETRI und KLITSCHER, 1993).

Dieser beachtliche Tiefenschärfebereich ließ es möglich erscheinen, die Projektionen dreidimensionaler Objekte in die Vorlagenebene durch direkte Abbildung zu digitalisieren. Vorteile dieser Methode (HOGKAMP, FAKOUHI, SCHUBERT, 1995) sind zum einen die große verfügbare Bildfläche (üblicherweise  $\geq$  DIN A4), zum anderen die – verglichen mit CCD-Kameras – hohe Bildauflösung. Bereits einfache Geräte verfügen derzeit (Stand Anfang 1997) über CCD-Zeilen mit einer Sensordichte von 300 Elementen pro Zoll (abgekürzt *dpi = dots per inch*), die

<sup>1</sup> Der Vorversuch bestand im wesentlichen darin, die eigene Hand bei einem Abstand von etwa 2 cm zur Vorlagenebene aufzunehmen. Details, wie z.B. Papillarlinien, waren fast genauso gut zu erkennen wie auf Bildern, bei denen diese „Vorlage“ korrekt auf der Glasplatte positioniert war.

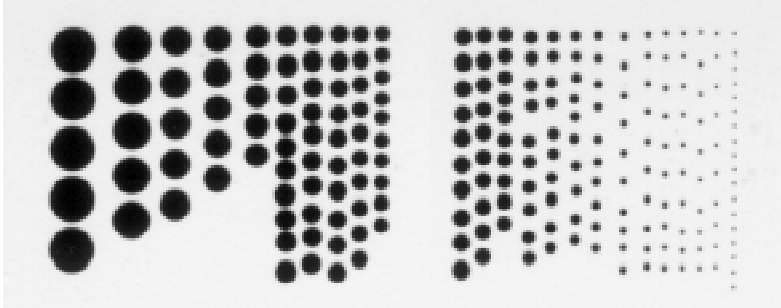
Schrittfrequenz beim zeilenweisen Vorschub der Sensorleiste beträgt mindestens 600 Schritte pro Zoll. Dies entspricht einer Detailauflösung von  $42\ \mu\text{m}$  in Abtastrichtung und  $85\ \mu\text{m}$  quer dazu. Während der Entwicklung der hier beschriebenen Meßmethode stand ein Scanner mit einer Auflösung von 300 dpi in Längs- und Querrichtung zur Verfügung. Nach erfolgreicher Ausarbeitung eines Meßverfahrens wurde ein Gerät mit einer Auflösung von  $600 \cdot 1.200$  dpi (*UMAX PowerLook*, Abbildung 3–19) beschafft und zur Partikelgrößenbestimmung von Agglomeraten eingesetzt.



Abbildung 3–19: Flachbettscanner mit Durchlichtaufsatz (links, Deckel geöffnet) und Monitor des Bildanalyserechners.

In begrenztem Umfang kann die Detailauflösung eines Graustufen- oder Farbbildes durch Interpolationsmethoden verbessert werden. Die beim Scannen anfallenden Daten werden dabei mit Hilfe von geeigneten Algorithmen, z.B. Mittelwertberechnungen der Helligkeitswerte benachbarter Pixel, um zusätzliche Bildpunkte ergänzt, so daß sich beispielsweise eine Verdopplung der Zahl der Bildpunkte (d.h. Halbierung der Punktgröße) ergibt. Häufig sind derartige Funktionen, die bei geeigneten Vorlagen bis zu einem Faktor 4 noch Verbesserungen ergeben können, bereits als Hardware im Scanner eingebaut. Aufgrund der hohen Auflösung des für die Partikelgrößenmessungen verwendeten Scanners wurde auf diese Möglichkeit jedoch praktisch nie zurückgegriffen. Hier muß auch daran erinnert werden, daß bereits ein 8 bit-Graustufenbild einer Vorlage von  $15 \cdot 15\ \text{cm}^2$  bei einer Auflösung von 600 dpi einen Datenumfang von etwa 12 Megabyte hat. Bei einer Interpolation um den Faktor 2 auf 1.200 dpi wächst der Datenumfang dementsprechend auf 48 MB an. Berücksichtigt man außerdem, daß im verarbeitenden Rechner zur Analyse eines Bildes etwa viermal soviel Arbeitsspeicher (RAM) vorhanden sein muß, wie das Bild selbst umfaßt, erkennt man hier schnell die Grenze des Verfahrens bei Anwendung auf Kleincomputern. Der maximale Arbeitsspeicher beispielsweise eines *Apple PowerMacintosh*® (Stand Anfang 1997) beträgt 768 MB.

Die Eignung des Flachbettscanners zur direkten Abbildung von Partikeln wurde mit verschiedenen Testmethoden überprüft. Zur Ermittlung des Tiefenschärfebereichs und der Fehler, die bei der Analyse ungeeignet kleiner Objekte auftreten können, diente ein Satz von reprografisch verkleinerten, schwarzen Punkten verschiedener Größe. Dieser Punktesatz ist in Abbildung 3–20 abgebildet.



Charakterisierung der Eigenschaften des agglomerierten Produkts

Abbildung 3–20: Reprografisch hergestellter Satz Testpunkte in Größen von 0,15–3 mm.

Diese Testpunkte wurden zunächst mit Hilfe von Glasscheiben in sechs verschiedenen Abständen zur Lesefläche positioniert, gescannt und analysiert. Hierbei ergaben sich keine signifikanten Unterschiede. Die durch Bildanalyse bestimmten Durchmesser der Punkte stimmten im Rahmen der Ablesegenauigkeiten mit den unter einem Mikroskop bestimmten Durchmessern überein.

Es ergaben sich jedoch typische Fehler bei den kleineren Punktgrößen: Obwohl der Mittelwert selbst der kleinsten Punktegruppe korrekt erkannt wurde, stiegen die Standardabweichungen der einzelnen Zehnergruppen zu kleineren Punktdurchmessern hin beträchtlich an (siehe Abbildung 3–21).

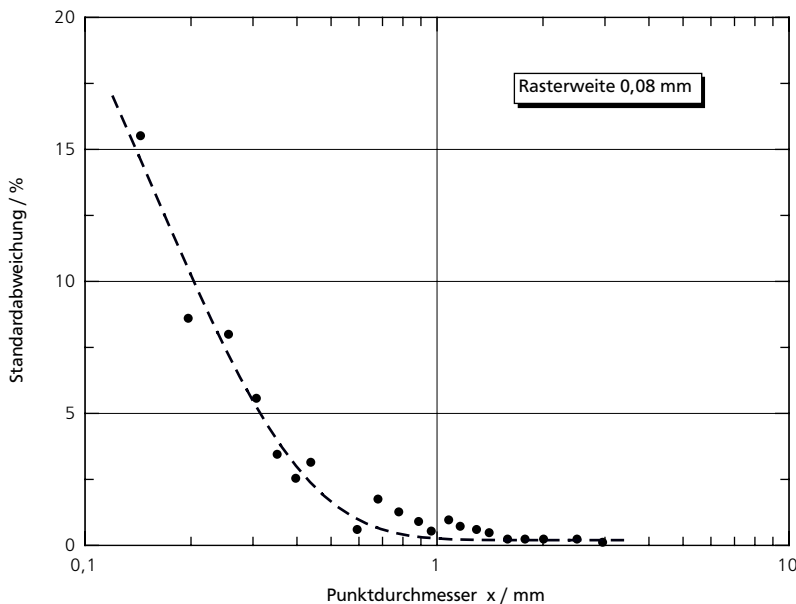


Abbildung 3–21: Standardabweichung des bildanalytisch bestimmten mittleren Durchmessers einer Gruppe von 10 Testpunkten als Funktion des tatsächlichen Durchmessers.

Aus diesem Ergebnis wurde gefolgert, daß eine zu analysierende Partikel mindestens die dreifache Größe eines Bildpunkts (Pixel) haben muß, um korrekt erkannt zu werden. Kleinere Objekte wurden während aller späteren Analysen automatisch von der Auswertung ausgeschlossen. Der Abstand der Partikeln zur Lesefläche bzw. der Abstand der bei senkrechter Parallelprojektion konturgebenden Begrenzungen eines Objekts spielt bis zu einem Abstand von 6 mm zur Lesefläche keine Rolle (d.h., daß beispielsweise kugelförmige Objekte bis 12 mm Durchmesser zulässig sind).

Die korrekte Wiedergabe der Projektionsfläche war damit als Grundvoraussetzung erfüllt, so daß im folgenden Schritt geeignete Annahmen zur Volumenbestimmung getroffen werden konnten. Eine übliche Vorgehensweise ist z.B., aus der Partikelprojektionsfläche den Durchmesser einer projektionsflächengleichen Kugel und daraus das zugehörige Kugelvolumen zu berechnen. Unter der Annahme, daß unregelmäßig geformte Partikeln nach dem Ausstreuen auf die Lesefläche des Scanners in stabiler Lage liegen, wird auf diese Weise jedoch ein zu großes Volumen ermittelt.

Das verwendete Bildanalyseprogramm *NIH Image* ist jedoch auch in der Lage, während der Bildauswertung alle erkannten Einzelflächen durch flächengleiche Ellipsen zu approximieren und die Längen der Ellipsenachsen als Meßwerte auszugeben. Für die weiteren Auswertungen wurden die zu untersuchenden Partikeln unter Annahme zufälliger Formgebung bei isotroper Verteilung der äußeren Einflüsse als räumliche Ellipsoide mit drei unterschiedlich langen Achsen angenähert, wobei jeweils die längste Achse zur mittleren Achse im gleichen Verhältnis stehen soll wie die mittlere Achse zur kürzesten:

$$\frac{a}{b} = \frac{b}{c} \quad (3-1)$$

Anstelle der allgemeinen Gleichung zur Bestimmung des Volumens eines Ellipsoids

$$V = \frac{\pi}{6} \cdot a \cdot b \cdot c \quad (3-2)$$

tritt damit folgende vereinfachte Gleichung zur Berechnung des Objektvolumens:

$$V = \frac{\pi}{6} \cdot b^3 \quad (3-3)$$

Für Fälle, in denen die obige Annahme nicht zutrifft, ist selbstverständlich eine andere geeignete Methode zur Approximierung der z-Dimension anzuwenden. Diese Möglichkeit wurde in den Makroprogrammen zur Bildauswertung vorgesehen und mit entsprechenden Testpartikeln überprüft; zur Analyse der Zukeragglomerate mußte hierauf aber nicht zurückgegriffen werden.

Abbildungen realer Partikeln haben meist einen schlechteren Kontrast zum Bildhintergrund als die in Abbildung 3-20 gezeigten Testpunkte. Da die Bildauswertung auf einem Auszählen schwarzer Bildpunkte vor einem weißen Hintergrund beruht und eine schwarz-weiß-Separation des Graustufenbildes erfordert, ist eine weitere wichtige Größe der sogenannte *Schwellenwert (Threshold)*. Der

Schwellenwert ist eine Ganzzahl im Bereich 1–254. Grauwerte, die größer als diese Zahl sind, werden nach der Separation schwarz (255) dargestellt, alle anderen weiß (0). Bei kontrastarmem Übergang zwischen Objekt und Hintergrund beeinflusst die Wahl des Schwellenwerts – die manuell, teil- oder vollautomatisch erfolgen kann – die Größe der erkannten Projektionsfläche. Zur Veranschaulichung wird auf das Beispiel aus Abbildung 3–17 zurückgegriffen:

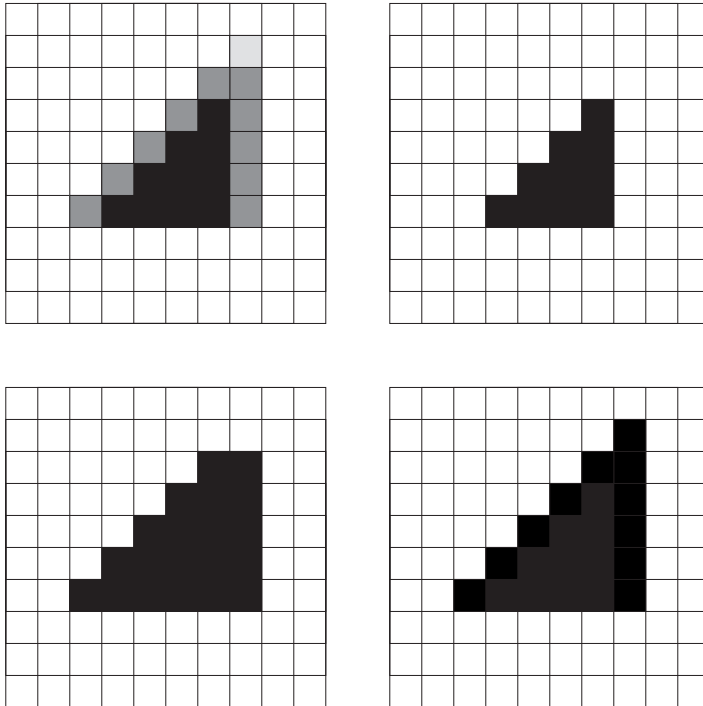


Abbildung 3–22: Verschiedene Ergebnisse der schwarz-weiß-Separation eines Graustufen-Rasterbilds bei unterschiedlich gesetztem Schwellenwert.

Zuckeragglomerate ergeben allerdings aufgrund ihrer weißen Farbe im Auflicht stets einen sehr guten Kontrast zum Bildhintergrund (der in diesem Fall schwarz erscheint). Lichtabsorbierende, dunkle Partikeln können ebenfalls mit gutem Kontrast abgebildet werden, wenn statt im Auflicht im Gegenlicht gearbeitet wird. Hierzu ist eine sogenannte *Durchlichteinrichtung* erforderlich, die im wesentlichen aus einer vergrößerten Scannerabdeckung besteht, in der sich eine Lichtquelle befindet (auch in Abbildung 3–19 zu sehen). Diese wird synchron mit der CCD-Zeile bewegt und anstelle der unteren Lichtquelle (vergl. Abbildung 3–18) benutzt, so daß sich die Partikeln zwischen Lichtquelle und Empfänger befinden. Auf diese Weise können sogar Glaspartikeln (zumindest als Konturlinie) abgebildet und analysiert werden.

Zur eigentlichen Durchführung der Partikelgrößenanalysen wurden repräsentative Partikelproben durch Probenteilung hergestellt (hierzu dienten bei allen Versuchen Rotationsprobenteiler) und gleichmäßig verteilt auf die Lesefläche des Scanners ausgestreut. Hierbei wurde auf hinreichende Vereinzelung der Partikeln

geachtet. Anschließend wurde die Lesefläche bei nach wie vor offener Scannerabdeckung abgetastet und das erhaltene Abbild der Partikelprojektionsflächen als 8 bit-Graustufenbild in den angeschlossenen Rechner eingelesen. Hierbei erschienen die Objekte hell (da lichtreflektierend) vor dunklem Hintergrund. Eine Invertierung der Grauwerte führte zum gewünschten Bild dunkler Objekte vor hellem Hintergrund, das anschließend schwarz-weiß-separiert wurde. Abbildung 3-23 zeigt einen Ausschnitt eines Originalbilds (Saccharosekristalle).

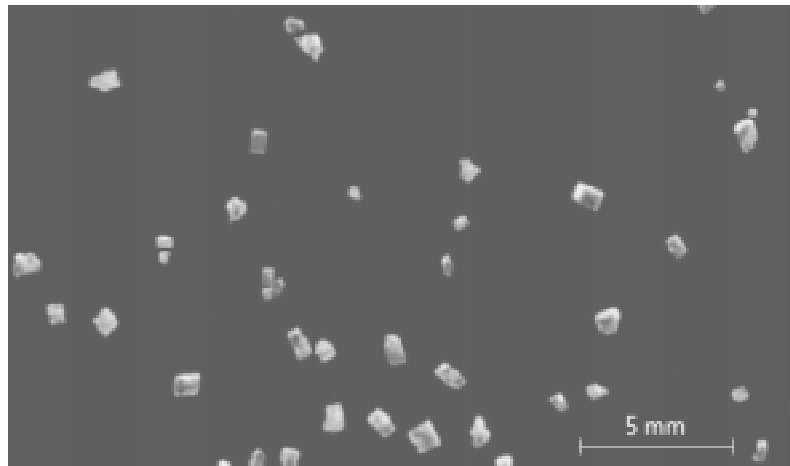


Abbildung 3-23: Abbildung von Saccharosekristallen auf der Lesefläche des Flachbettscanners.

Das Ergebnis von Invertierung und schwarz-weiß-Separation zeigt Abbildung 3-24.

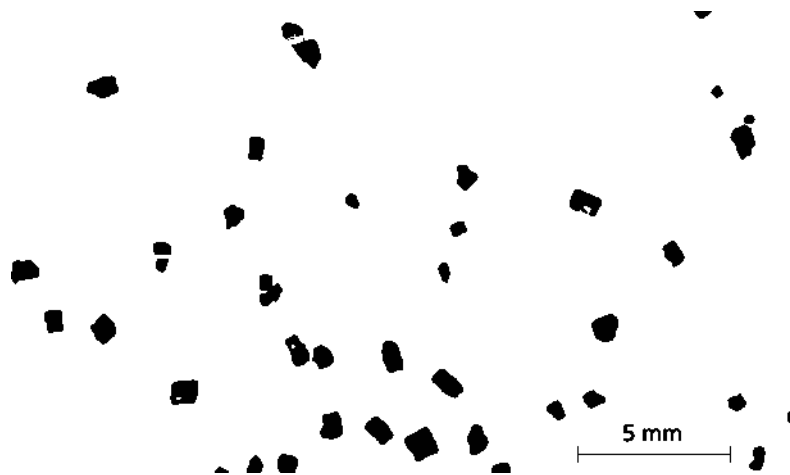


Abbildung 3-24: Abbildung 3-23 nach Invertierung und Separation als schwarz-weiß-Bild.

Bei Vorversuchen wurde festgestellt, daß das Verfahren sowohl bei wiederholtem Scannen der gleichen Vorlage als auch bei wiederholtem Ausstreuen der gleichen Probe reproduzierbar arbeitet. Kontakte zwischen ausgestreuten Partikeln wirken



sich, sofern sie nicht übermäßig oft vorkommen, nicht auf das Ergebnis aus. Der Anwender hat nach kurzer Einarbeitung genügend Erfahrung, um festzustellen, ob ein Bild aus diesem Grund eventuell zur Auswertung ungeeignet ist.

Zu einem abschließenden Test wurde das Bildanalyseverfahren unter Verwendung verschiedener Schüttgutproben mit der Siebanalyse und der Laserbeugungsspektrometrie verglichen. Bei unregelmäßig geformten und teiltransparenten oder reflektierenden Partikeln zeigten sich Schwächen der Laserbeugungsmethode, die sich in zu breiten Verteilungen niederschlugen. Die Siebanalyse wiederum führte erwartungsgemäß bei empfindlichen Produkten zur Entstehung von Abrieb (siehe Abbildung 3–25).

Charakterisierung der Eigenschaften des agglomerierten Produkts

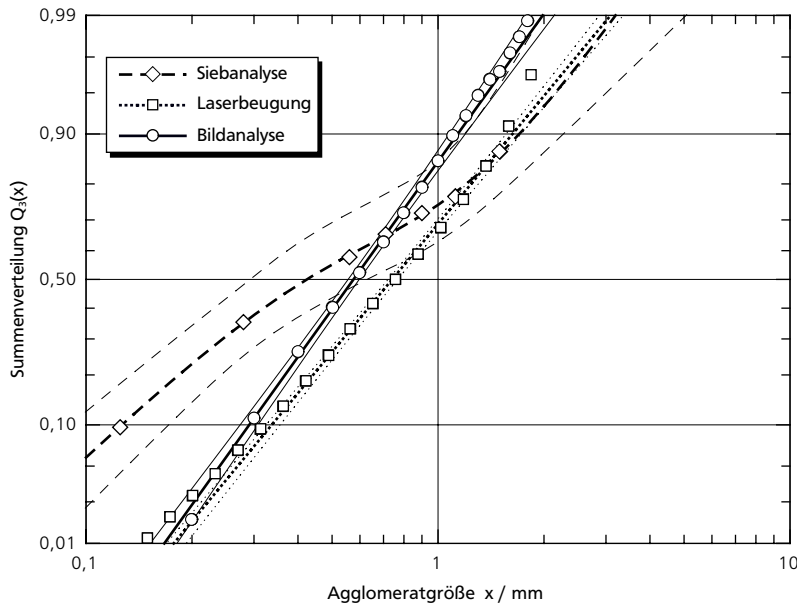


Abbildung 3–25: Ergebnisse der Partikelgrößenanalyse von unregelmäßig geformten und abriebempfindlichen Partikeln mit drei Meßverfahren (Einzelmessungen, Meßpunkte und angepaßte Verteilungsfunktionen mit 67 %-Vertrauensbereichen).

Die computergestützte Bildauswertung mit Flachbettscanner ist ebenfalls keine perfekte Methode zur Partikelgrößenanalyse, bietet aber für die Untersuchung der im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Agglomerate einige entscheidende Vorteile. Verglichen mit dem Laserbeugungsverfahren ist der Meßbereich nach oben hin erweitert, während die Störanfälligkeit bei unregelmäßig geformten und lichtdurchlässigen Partikeln deutlich geringer ist. Abriebentstehung, der Schwachpunkt der Siebanalyse, ist bei der Scannermethode nicht zu erwarten. Die Einteilung der Meßkanäle ist nicht an Siebmaschenweiten gebunden, sondern vom Anwender definierbar.

Die Vorgehensweise bei der Bildaufnahme, -aufbereitung und -auswertung sowie bei der nachfolgenden Umrechnung der Rohdaten in Partikelgrößenverteilungen wird vom Anwender bei jedem Experiment erneut mitverfolgt, wodurch eine gute Absicherung gegen Fehlbedienung gegeben ist.

Die hohe Auflösung, die ein Scanner bietet, ist mit der Videotechnik nicht erreichbar. Hier ist die vertikale Auflösung (Bildhöhe) von 574 sichtbaren Zeilen technisch fest vorgegeben. Qualitätsunterschiede gibt es jedoch in der horizontalen Auflösung (Bildbreite). Die in der PAL-Norm angegebenen 764 Punkte werden im praktischen Betrieb bei Magnetbandaufzeichnungen auf üblichen Videorecordern nicht erreicht, es besteht jedoch auch die Möglichkeit der direkten Bildaufzeichnung auf einem Kleincomputer mit Videonorm-Adapterkarte (*Framegrabber*). Im Gegensatz zu einem Zeilenabtaster können mit Videonorm-Kameras Objekte in Bewegung erfaßt werden. Hochwertige Geräte erreichen kürzeste Verschlusszeiten von 10 µs.

Ähnlich der im vorangegangenen Abschnitt beschriebenen Scanner-Methode ist es auch bei der Aufnahme von Bildern mit einer *CCD-Kamera* (Kamera mit Festkörpersensor) möglich, mit Aufsicht oder Gegenlicht zu arbeiten. Entsprechend sorgfältiges Vorgehen bei der Konstruktion der Versuchsaufbauten und der Einstellung der Aufnahmeparameter vorausgesetzt, ist mit beiden Methoden eine hohe Aufnahmequalität erreichbar. Bei Aufsichtsaufnahmen muß die Reflektion des Lichts vom Bildhintergrund unterdrückt werden, Gegenlichtaufnahmen erfordern höheren Aufwand bei der Einstellung der Helligkeit und der Kameraverstärkung, um ein kontrastreiches Bild ohne Korona-Effekte zu erhalten. Die Abbildungen 3-26 und 3-27 zeigen freifallende Agglomerate im

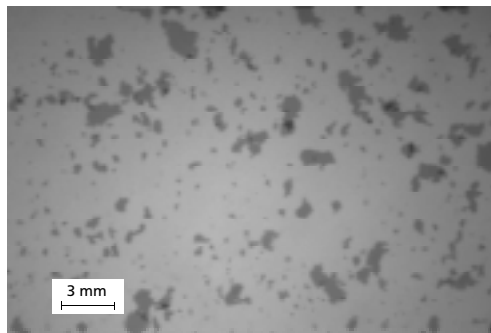


Abbildung 3-26: Freifallende Agglomerate im Gegenlichtverfahren aufgenommen.

Gegenlicht und im Aufsicht. In beiden Fällen ist es, im Gegensatz zur Scanner-Methode, sinnvoll, ein Bild des Hintergrunds aufzuzeichnen, um vor der späteren Bildanalyse eine sogenannte *background subtraction* (Bild der Differenz zwischen Aufnahme und Hintergrund) vornehmen zu können. Dadurch werden von der Kamera verursachte Störungen (hauptsächlich Staubpartikeln auf dem Objektiv und Verschmutzungen des CCD-Sensors), und im Fall von Gegenlichtaufnahmen eine etwaige ungleichmäßige Hintergrundhelligkeit, ausgeglichen.

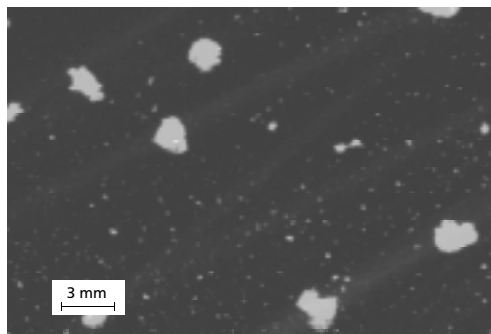


Abbildung 3-27: Freifallende Agglomerate im Aufsicht.

Der Informationsgehalt eines einzelnen Bildes nach Videonorm ist erheblich geringer als der einer Scanneraufnahme. Es enthält etwa  $4,4 \cdot 10^5$  Bildpunkte, während beispielsweise mit dem in dieser Arbeit verwendeten Scanner-System Einzelaufnahmen mit bis zu  $2 \cdot 10^7$  Bildpunkten möglich sind. Aus diesem Grund wurden bei der Bildanalyse von Videoaufnahmen jeweils Serien von bis zu 128 Bildern ausgewertet. Die begrenzte Bildgröße wirkt sich aber auch auf die Dynamik des Meßbereichs aus.

Es wurde bereits bei der Erläuterung der Bildanalyse mit dem Flachbettscanner darauf hingewiesen, daß die kleinsten noch auswertbaren Objekte eine Größe von  $3 \cdot 3$  Bildpunkten besitzen müssen. Andererseits sollten die größten abgebildeten Objekte möglichst keine Längenausdehnung haben, die größer als etwa der fünfte Teil der Bildbreite ist (beim Scanner unproblematisch, bei Videonorm aber nur 150 Bildpunkte!). Sie berühren sonst zu oft den Bildrand oder liegen teilweise außerhalb des Bildausschnitts. Aus diesen beiden Randbedingungen ergibt sich das Durchmesser Verhältnis von größten zu kleinsten Partikeln bei der Bildanalyse von Aufnahmen nach PAL-Videonorm zu  $\frac{150}{3} = 50$ . Für die Partikelgrößenanalyse von freifallenden Agglomeraten konnte ein ausreichender Meßbereichsumfang von 0,1–5 mm realisiert werden.

Ein weiterer Unterschied zur Scanner-Methode bestand im abweichenden Vorgehen zur Bestimmung des Volumens eines Objekts aus seiner Projektionsfläche. Es wurde die Annahme getroffen, daß sich die freifallenden Partikeln in einer zufälligen Lage befanden und damit bei der Aufnahme nicht ihren größten Querschnitt zeigten. Dies ist zulässig, wenn die Umströmung der Partikeln laminar bzw. noch am Anfang des Übergangsbereichs ist, da sich in diesem Fall noch kein ausgeprägter Staupunkt bildet. Die Ausdehnung in z-Richtung wurde aus diesem Grund als geometrisches Mittel der Achsenlängen der vom Bildanalyseprogramm zur Projektionsflächenapproximierung verwendeten Ellipse abgeschätzt:

$$c = \sqrt{a \cdot b} \quad (3-4)$$

Das Volumen des Körpers ergibt sich damit zu:

$$V = \frac{\pi}{6} \sqrt{a^3 \cdot b^3} \quad (3-5)$$

Mit dieser Annahme ergaben sich durch Bildanalyse der Videoaufnahmen insgesamt gute Ergebnisse. Um eine möglichst enge Übereinstimmung zwischen der als Referenzverfahren eingesetzten Scanner-Methode und dem Videoverfahren zu erzielen, wurde das Video-Verfahren vor jeder Versuchsserie mit Hilfe von Testpartikeln auf die Ergebnisse der Scanner-Messungen kalibriert. Bei engen Verteilungen ließ sich eine sehr gute Übereinstimmung zwischen beiden Methoden erreichen. Ein Beispiel zeigt Abbildung 3–28, wobei zum Vergleich auch das Ergebnis einer Messung mittels Laserbeugungsspektrometrie eingetragen ist. Die untersuchten Partikeln waren teiltransparent, was eine gravierende Abweichung der Laserbeugungsmessung von den Bildanalyseverfahren verursachte.

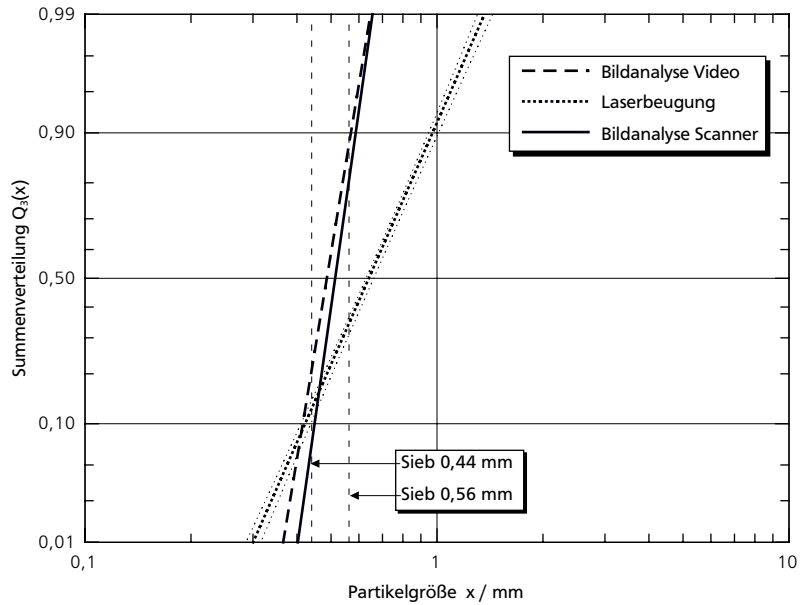


Abbildung 3-28: Vergleich der Ergebnisse einer Partikelgrößenmessung mit Scanner, CCD-Kamera und Laserbeugung für eine schmale Partikelfraktion (Vertrauensintervalle bei allen Methoden etwa gleich breit, aus Gründen der Übersichtlichkeit nur für Laserbeugungsmessung eingetragen).

Eine exakte Übereinstimmung der Ergebnisse für bimodale Testverteilungen, die aus zwei deutlich voneinander getrennten, engen Partikelfraktionen gemischt wurden, war schwieriger zu erreichen. Dies lag aber hauptsächlich daran, daß es bei den Kalibriermessungen schwierig war, exakt gleiche Mischungsanteile der zwei Fraktionen bei der Scanner- und der Videoanalyse zu gewährleisten (siehe Abbildung 3-29).

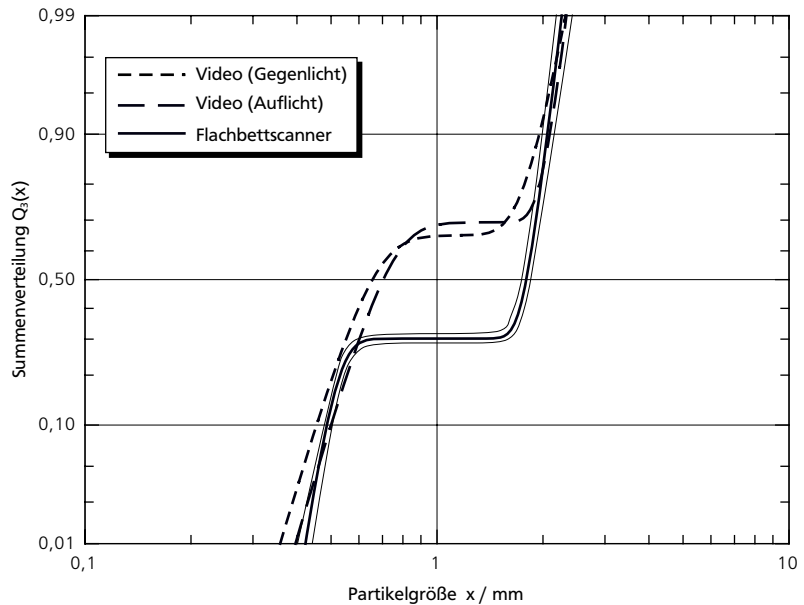


Abbildung 3-29: Vergleich der Ergebnisse einer Partikelgrößenmessung mit Scanner und CCD-Kamera im Auflicht- und Gegenlichtverfahren für eine ausgeprägt bimodale Probe (Vertrauensintervalle bei allen Methoden etwa gleich breit, aus Gründen der Übersichtlichkeit nur für Scannermessung eingetragen).

Es ist jedoch gut zu erkennen, daß sowohl die Lage als auch die Breite der Moden im Aufricht- und im Gegenlichtverfahren mit zufriedenstellender Genauigkeit wiedergegeben werden. Die Entwicklung der Gegenlichtmethode erlaubte auch erstmals die Messung der Partikelgrößenverteilung von freifallenden Agglomeraten in der Strahlagglomerationsanlage, da die Objektweite und der Abstand zur Hintergrundbeleuchtung so gewählt werden konnten, daß das Anbringen des Meßaufbaus am Fallschacht der Agglomerationsanlage möglich war. Der Massenstrom des Pulvers lag bei den Messungen mit etwa  $30 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$  an der Untergrenze des betriebsüblichen Bereichs, so daß hier auch erstmals eine in-line-Messung unter realistischen Bedingungen gelang.

Die Hauptanwendung der Bildauswertung mit CCD-Kamera lag jedoch in der Partikelgrößenanalyse von Trockenagglomeraten. Diese Trockenagglomerate bilden eine Vorstufe für die weitere Partikelvergrößerung in der Dampfzone der Strahlagglomeration und entstehen beim Einsatz kohäsionsbehafteter Ausgangsmaterialien in allen Förder- und Dosiereinrichtungen (selbst in einem einfachen Siloauslauf). Sie sind jedoch üblicherweise so instabil, daß es nicht gelingt, aus einem Schwarm fallender Agglomerate eine Probe zu entnehmen und z.B. durch Analyse auf einem Scanner zu untersuchen. Die Videotechnik erlaubte dagegen berührungsloses Messen.

Partikelgrößenanalysen von Trockenagglomeraten wurden mit verschiedenen Materialien, bei unterschiedlichen Wassergehalten der Stoffe, bei wechselnden Mengenströmen des Pulvers und unter Verwendung unterschiedlicher Dosiergeräte durchgeführt. In den meisten Fällen konnte mit der Aufrichttechnik gearbeitet werden. Hierfür wurde ein in seinen Abmessungen der Strahlagglomerationsanlage nachempfunderer Versuchsstand gebaut (siehe Abbildung 3-30), auf dessen Oberseite die verschiedenen Pulverdosier- und Fördergeräte angebracht wurden. Die fallenden Partikel wurden von der Kamera in einer Falltiefe aufgenommen, die etwa der Strecke zwischen Dosiergerät und Beginn der Dampfzone in der Agglomerationsanlage entsprach.

Die zur Ausleuchtung des Kamerasichtfelds verwendeten Halogenstrahler waren so angeordnet, daß kein Licht auf die der Kamera gegenüberliegende Wand fiel, wodurch diese vollständig schwarz erschien. Zusätzlich war das Innere der Kammer mattschwarz gefärbt, um Lichtreflexionen zu unterdrücken. Auf diese Weise gelangen sehr kontrastreiche Aufnahmen (vgl. Abbildung 3-27). Da in diesem Versuchsstand nur ein Teil des Partikelschwarms durch eine Schlitzblende

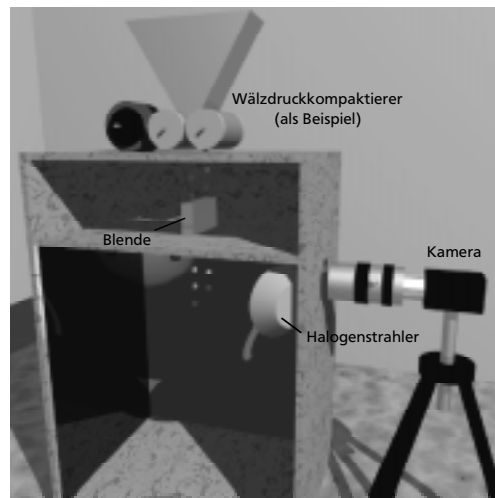


Abbildung 3-30: Vereinfachte Darstellung des Versuchsstands zur Partikelgrößenbestimmung freifallender Voragglomerate durch Bildanalyse (Vorderwand weggelassen). Fallstrecke Dosiergerät-Meßort  $\approx 35 \text{ cm}$ , Abstand Objektiv-Meßort  $\approx 15 \text{ cm}$ , Kammerhöhe  $\approx 120 \text{ cm}$ .

in den Sichtbereich der Kamera gelangte, konnten hohe Massenströme (bis etwa  $100 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ ) eingestellt werden, um einen eventuellen Einfluß auf die Trockenagglomeration zu untersuchen. Bei Gegenlichtaufnahmen war dieser Versuchsstand nicht erforderlich. Kamera und Hintergrundbeleuchtung, bestehend aus Halogenlampe und Milchglasscheibe, wurden für diesen Zweck frei montiert („fliegender Aufbau“).

Die eigentliche Versuchsdurchführung einer Partikelgrößenanalyse mit der Videomethode umfaßte die folgenden Schritte:

- Überprüfung der Kameraeinstellungen (Belichtungszeit  $100 \mu\text{s}$ , Blende 8–16, Fokussierung, Vergrößerungsfaktor),
- Einstellung des Massenstroms mit visueller Prüfung der Konzentration im Bildausschnitt (erforderlich zur Vermeidung von Meßfehlern durch überlappende Partikeln),
- Aufnehmen einer Serie von bis zu 128 Bildern (maximal 5 s Aufnahmedauer),
- Auswertung der Bilderserie mit dem Bildanalyseprogramm *NIH Image*,
- Weiterverarbeitung der Rohdaten (approximierte Projektionsflächen) zu einer Partikelgrößenverteilung,
- Approximation der Partikelgrößenverteilung durch eine geeignete Funktion (in den meisten Fällen eine bimodale logarithmische Normalverteilung).

Mit dem verwendeten Objektiv ergab sich bei einer Objektweite von  $175 \text{ mm}$  ein Bildausschnitt von ungefähr  $20 \cdot 26 \text{ mm}^2$ , bei einem Tiefenschärfebereich von etwa  $10 \text{ mm}$  und einer Detailauflösung von  $32\text{--}36 \mu\text{m}$ . Die kleinsten in die Analysen aufgenommenen Objekte hatten demnach einen Durchmesser von etwa  $100 \mu\text{m}$ . Eine beispielsweise um den Faktor 2 höhere Auflösung ( $50 \mu\text{m}$ ) wäre grundsätzlich durch Anwendung der Interpolationsmethode erreichbar gewesen. Die damit verbundene rechnerische Vervielfachung des Bildinhalts ist – insbesondere bei höherwertigen Interpolationsalgorithmen – allerdings sehr rechenintensiv, so daß sich die Analysenzeit trotz des hier verwendeten schnellen Rechnersystems unvermeidbar verlängert hätte.

Zur Auswertung einer Serie von 128 Bildern benötigte der zur Bildauswertung hauptsächlich eingesetzte *Apple PowerMacintosh® 7500/100* eine Zeitspanne von etwa 15 Minuten, die sich bei Einfügen eines Interpolationsschritts in den Analysevorgang mindestens um das Zehnfache verlängert hätte. Es wurde daher kein Gebrauch von dieser Möglichkeit gemacht, wobei die Meßergebnisse in nahezu allen Fällen vermuten ließen, daß durch die Begrenzung des Meßbereichs auf Partikeln  $\geq 100 \mu\text{m}$  kein Meßfehler entstand, der sich auf die Bestimmung einer Massenverteilung kritisch hätte auswirken können.

Im Gegenlichtbetrieb konnte die CCD-Kamera auch eingesetzt werden, um Bilder der sedimentierenden Partikeln bzw. Agglomerate im Strahlagglomerationsapparat aufzunehmen. Hierzu wurden Kamera und Hintergrundbeleuchtung kurz unterhalb der Agglomerationszone (vgl. Kapitel 5 zur Konstruktion der Anlage) an gegenüberliegenden Seiten des Apparats angebracht. Bei dieser Anordnung betrug die Detailauflösung etwa  $40 \mu\text{m}$ .

### 3.2.2 Bestimmung der Agglomeratporosität

Charakterisierung der  
Eigenschaften des  
agglomerierten Produkts

Neben der Partikelgröße ist die *Porosität* eine weitere wichtige Eigenschaft eines Agglomerats. Sie beeinflusst unter anderem die Agglomeratfestigkeit (siehe Abschnitt 2.1.4, Gleichung 2–12), das Wiederbefeuchtungsverhalten des Agglomerats und das Schüttgewicht des agglomerierten Pulvers. Allgemein ist die Porosität  $\varepsilon$  als Hohlraumvolumenanteil definiert:

$$\varepsilon = \frac{V_h}{V_{ges}} \quad (3-6)$$

Der Hohlraumvolumenanteil eines Agglomerats kann im allgemeinen Fall aus Hohlräumen in den Primärpartikeln und Hohlräumen zwischen den Primärpartikeln bestehen. Die Gesamtporosität des Agglomerats setzt sich dementsprechend aus zwei Anteilen zusammen:

$$1 - \varepsilon_{ges} = (1 - \varepsilon_p) \cdot (1 - \varepsilon_a) \quad (3-7)$$

Zur Berechnung der Porosität nach Gleichung 3–6 müssen zwei Volumina bekannt sein. Anstelle einer Messung des Hohlraumvolumens ist alternativ die Bestimmung des Feststoffvolumens oder, bei bekannter Dichte, der Feststoffmasse möglich. Die Porosimetrie beruht daher überwiegend auf Volumenmessungen:

- Intrusion einer vollständig benetzenden Flüssigkeit bekannter Dichte in alle zugänglichen Poren und Messung der Flüssigkeitsmenge durch Wägung. Diese Methode erlaubt die Bestimmung des Hohlraumvolumens von Partikeln, Agglomeraten oder Partikelschüttungen.
- Intrusion einer nicht benetzenden Flüssigkeit in eine Schüttung unter äußerem Druck, üblicherweise als Quecksilberporosimetrie realisiert, ermöglicht zusätzlich die Berechnung von Porenradien.
- Bestimmung des Gesamtvolumens von Partikeln durch Verdrängen nicht-betzender Flüssigkeiten oder fließfähiger Schüttgüter.
- Bestimmung des Feststoffvolumens durch Verdrängung von Fluiden.

Nicht jedes dieser Verfahren ist zur Messung der Porosität lockerer Agglomerate geeignet. Vorversuche zeigten, daß insbesondere die Quecksilberporosimetrie nicht für strahlagglomerierte Pulver geeignet ist: Wegen ihrer lockeren Struktur dringt bereits beim Auffüllen des Hohlraumvolumens zwischen den Agglomeraten Quecksilber in diese ein, so daß kein Startpunkt ermittelt werden kann.

Die Intrusion einer vollständig benetzenden Flüssigkeit bekannter Dichte (Silikonöl) war dagegen durch manuelles Benetzen einzelner Agglomerate durchführbar, aber vom Geschick des Experimentators abhängig und zeitaufwendig. Die für die Messung erforderlichen Agglomerate können anschließend nicht für andere Untersuchungen verwendet werden. Aufgrund der guten Erfahrungen mit der Bildanalyse wurde darum die im folgenden beschriebene Methode zur zerstörungsfreien optischen Partikelvolumenbestimmung entwickelt.

Die Bestimmung der Porosität von strahlagglomerierten Zuckern wird dadurch erleichtert, daß die Primärpartikeln nicht porös sind und ihre Dichte bekannt ist. Der Feststoffvolumenanteil eines Agglomerats kann daher durch Wägung bestimmt werden. Wenn zusätzlich das Gesamtvolumen des Agglomerats bekannt ist, kann die Porosität berechnet werden.

Es wurde daher nach einer mit vorhandenen Mitteln realisierbaren Methode gesucht, um das Volumen von einzelnen, unregelmäßig geformten Objekten möglichst exakt zu bestimmen. Versuche mit hochauflösenden Bildern des Flachbettscanners führten nicht zum Erfolg. Eine Schätzung der Höhe der Partikeln aus ihrer Projektionsfläche ist zwar für die Ermittlung von Partikelgrößenverteilungen aufgrund der großen Zahl der vermessenen Partikeln hinreichend, zur exakten Volumenbestimmung einzelner Objekte aber zu ungenau.

Um ein Einzelobjekt möglichst genau beschreiben zu können, sind Aufnahmen unter verschiedenen Blickwinkeln erforderlich, um auch die räumliche Ausdehnung des Objekts zu erfassen. Zu diesem Zweck wurde von UMHAUER (1992) ein Versuchsaufbau entwickelt, bei dem einzelne, freifallende Partikeln aus drei zueinander orthogonalen Richtungen einer Lichtextinktionsmessung unterzogen werden. Aus den drei Projektionsflächen kann – unter Anwendung von Formfaktoren – das Partikelvolumen ermittelt werden. Das Verfahren erlaubt bis zu 30 Messungen pro Sekunde, ist allerdings apparativ relativ aufwendig.

Ein derartig hoher Aufwand konnte für die Porositätsmessung im Rahmen dieser Arbeit nicht getrieben werden. Daher wurde zuerst versucht, einzelne Partikeln auf einem Drehteller aus zahlreichen Winkeln abzubilden, um auf diese Weise ihr Volumen zu bestimmen. Abbildung 3–31 zeigt den Versuchsaufbau.

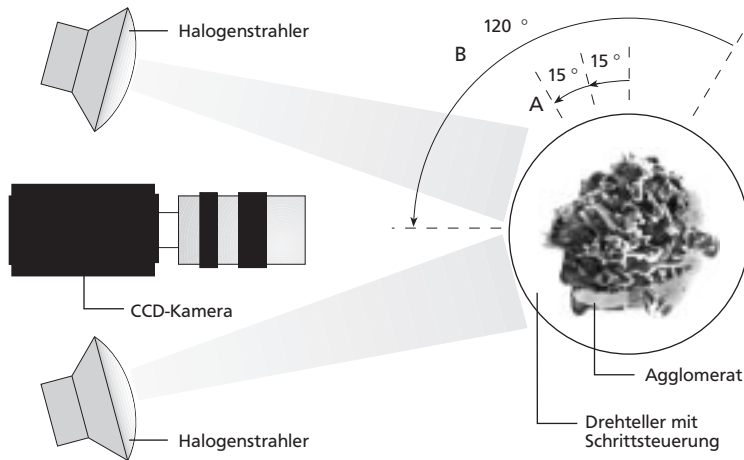


Abbildung 3–31: Schematische Darstellung eines Versuchsaufbaus zur Aufnahme mehrerer Ansichten einer Partikel senkrecht zu ihrer Rotationsachse.

Jede Messung umfaßte zwölf Aufnahmen, wobei der Drehteller jeweils um 15° weiterrotiert wurde. Die Kamera war horizontal in der Drehtellerebene ausgerichtet,



entsprechend Variante „A“ in Abbildung 3–34. Jede Aufnahme repräsentiert bei dieser Vorgehensweise zwei Teilvolumina links und rechts der Rotationsachse (vergleichbar mit Tortenstücken, siehe Draufsicht in Abbildung 3–31). Aus jeder der zwölf Projektionsflächen wurde durch Rotation um  $15^\circ$  um die Mittelsenkrechte des Bildes das Volumen der „Tortenstücke“ rekonstruiert.

Diese Rekonstruktion geschah mit Hilfe des Bildverarbeitungsprogramms *NIH Image* in folgenden Schritten:

- Helligkeitsumkehr des Bildes, um ein dunkles Objekt vor hellem Hintergrund zu erhalten (siehe Abbildung 3–33),
- Automatische horizontale Ausrichtung des Objekts in der Bildmitte,
- Schwarz-weiß-Separation und Normierung, so daß der Helligkeitswertebereich eines Bildpunkts nur noch die ganzen Zahlen „0“ und „1“ umfaßte (0 = weiß = Hintergrund, 1 = schwarz = Objekt),
- Multiplikation des schwarz-weiß-Bildes mit einer speziellen Graustufenmaske (Abbildung 3–32), bei der die Grauwerte von der Bildmitte aus nach links und rechts zum Rand hin linear ansteigen, entsprechend der Gleichung:

$$GW = \frac{2 \cdot \pi \cdot r}{24} \quad (3-8)$$

$r$  ist hierbei der Betrag des Abstands zur Mittelsenkrechten in der Einheit Pixel.

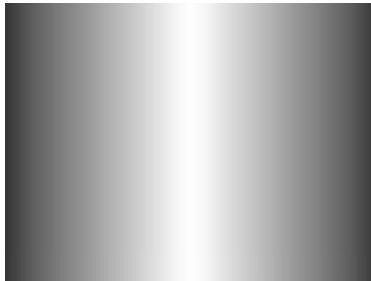


Abbildung 3–32: Graustufenmaske zur fiktiven Rotationskörperbildung.

Die Multiplikation ist keine Matrixmultiplikation, sondern gehorcht der Vorschrift:

$$GW_{Bild,neu}(i, j) = GW_{Bild,s-w}(i, j) \cdot GW_{Maske}(i, j) \quad (3-9)$$

$GW(i, j)$  ist dabei der Grauwert des Bildpunkts in Zeile  $i$  und Spalte  $j$  des Bildes. Das Ergebnis dieser pixelweisen Multiplikation ist ein gewichtetes Bild (siehe Abbildung 3–33). Nach außen nehmen die Grauwerte zu, wobei der Grauwert eines Bildpunkts das zugeordnete Volumen bei Rotation um die Mittelsenkrechte des Bildes um einen Winkel von  $15^\circ$  repräsentiert.

- Abschließend werden die Grauwerte aller Pixel im Bild aufaddiert:

$$V = \sum_{i=1}^{576} \sum_{j=1}^{768} GW(i, j) \quad (3-10)$$

Der Wert  $V$  entspricht dem Volumen des  $15^\circ$ -Rotationskörpers, gemessen in der Einheit  $\text{Pixel}^3$ . Da die Kantenlänge eines Bildpunkts durch Kalibrierung bestimmt werden kann, ist eine Umrechnung z.B. in  $\text{mm}^3$  problemlos möglich. Abbildung 3-33 veranschaulicht den Vorgang an einem Beispiel.

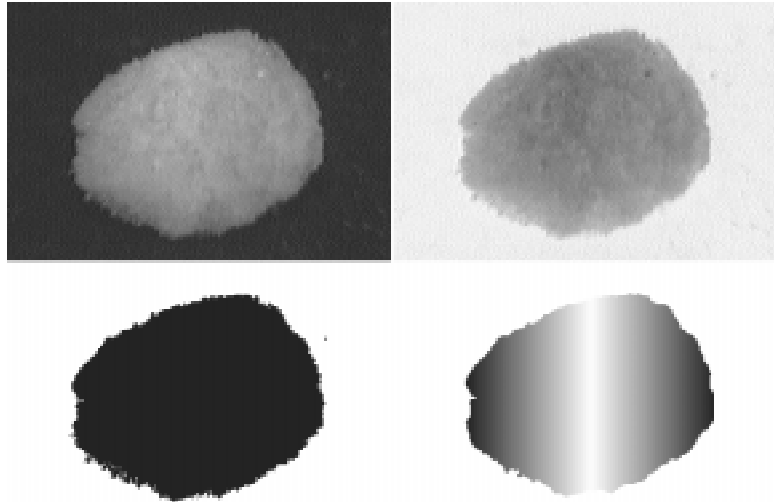


Abbildung 3-33: Bearbeitung des Originalbilds: Invertierung, schwarz-weiß-Separation und Multiplikation mit der Graustufenmaske (Abbildung 3-32).

Durch Aufaddieren der auf diese Weise aus den zwölf Teilbildern erhaltenen Volumina ergibt sich das Gesamtvolumen des Objekts. Vergleichsmessungen mit Präzisionskugeln und mit Kalksteinpartikeln (Porosität  $\phi$ ) ergaben, daß diese Methode der Gesamtvolumenbestimmung bei konvexen Objekten gut funktioniert. Weichen die Meßobjekte jedoch stark von dieser Voraussetzung ab, treten zum Teil große Fehler auf. Auch eine Erhöhung der Zahl der Aufnahmen ergab keine Verbesserung. Offensichtlich werden konkave Bereiche in der Partikelkontur dem Volumen zugeschlagen und führen zu einer scheinbar höheren Porosität.

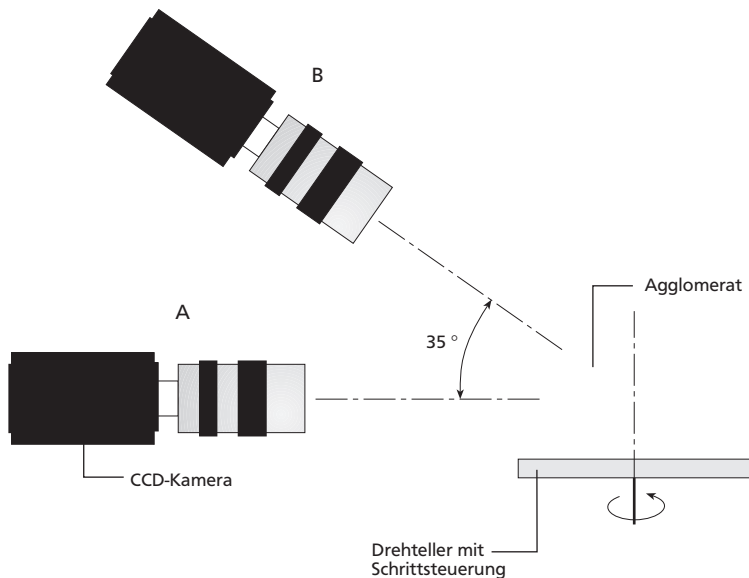
Die Zerlegung des Gesamtvolumens in 24 Teilvolumina benötigt im Gegensatz zur im folgenden beschriebenen Methode der Auswertung von drei orthogonalen Projektionen mehr Speicherplatz, ist zeitaufwendiger und benötigt ein komplizierteres Auswertungsprogramm. Da dieser höhere Aufwand nicht zu deutlich besseren Meßergebnissen führte, wurde dieser Weg nicht weiterverfolgt.

Das Prinzip der Auswertung von drei orthogonalen Projektionen beruht auf der Bestimmung des Volumens der projektionsflächengleichen Kugel. Hierzu wird das Objekt aus drei zueinander orthogonalen Richtungen abgebildet, die mittlere Projektionsfläche bestimmt und daraus das Volumen berechnet. Die Partikel liegt wie im zuvor beschriebenen Versuch auf dem Drehteller, wird aber von Aufnahme zu Aufnahme jeweils um  $120^\circ$  gedreht. Die Kamera ist um  $35^\circ$  zur Horizontalen geneigt (siehe Abbildung 3-34, Anordnung „B“).

Die einzelnen Aufnahmen werden zunächst, in gleicher Weise wie oben beschrieben, bis zum schwarz-weiß-Bild aufbereitet. Im Binärbild kann dann die Projektionsfläche gemessen und bei vorheriger Kalibrierung direkt in der Einheit

mm<sup>2</sup> bestimmt werden. Die drei zu einem Agglomerat gehörenden Projektionsflächen werden gemittelt und das Volumen der projektionsflächengleichen Kugel nach folgender Gleichung berechnet:

$$V = \frac{4}{3} \sqrt{\frac{A^3}{\pi}} \quad (3-11)$$



Charakterisierung der Eigenschaften des agglomerierten Produkts

Abbildung 3-34: Schematische Darstellung eines Versuchsaufbaus zur Aufnahme mehrerer Ansichten einer Partikel senkrecht zu ihrer Rotationsachse (Anordnung „A“) bzw. von drei orthogonalen Ansichten (Anordnung „B“).

Um zunächst die optimalen Meßbedingungen und Programmparameter zu finden, wurden Vorversuche mit Präzisionskugeln durchgeführt. Dies diente der Kalibrierung der Kamerabilder mit Hilfe eines Maßstabsfaktors, der das Verhältnis des Durchmessers der Kugel in Pixel zum Orginaldurchmesser in Millimetern angibt. Daneben dienten die Vorversuche zur optimalen Einstellung der Beleuchtung und der Kameraeinstellungen. Das Volumen der Präzisionskugeln konnte auf diese Weise exakt gemessen werden.

Mit Kalksteinpartikeln (Porosität 0), deren äußere Form annähernd der der Zuckeragglomerate glich, wurden ebenfalls Meßreihen durchgeführt. Das Ergebnis war eine scheinbare Porosität von 20 %, d.h. das gemessene Gesamtvolumen war zu groß. Verursacht wurde diese Abweichung von Oberflächenrauigkeiten und konkaven Bereichen der Partikeln, die auch bei dieser Auswertungsmethode nicht erkannt und dem Gesamtvolumen zugeschlagen wurden. Konsequenz aus diesem Ergebnis war die Einführung eines Korrekturfaktors  $f=0,8$  zur Reduzierung des gemessenen Volumens.

Das Verfahren arbeitet also nicht fehlerfrei, erlaubt aber vergleichende Untersuchungen der Porosität von Partikeln, deren äußere Form annähernd gleich ist.

Durch Strahlagglomeration hergestellte Produkte besitzen meist eine lockere, poröse Struktur, sind also bezüglich ihres Redispergierverhaltens optimiert. Damit ist andererseits der Nachteil einer geringen Festigkeit verbunden, die Agglomerate können leicht unter äußerer Beanspruchung zerstört werden.

Die in dieser Arbeit untersuchten Agglomerate, die ausschließlich oder im wesentlichen aus Zuckern bestehen, sind bei Raumtemperatur und  $a_w$ -Werten unterhalb des Löslichkeitsbereichs spröde, da Festkörperbrücken zwischen den Primärpartikeln der vorherrschende Haftmechanismus sind. Bei Einleitung entsprechend großer Kräfte in ein Agglomerat kann dieses entweder in mehrere Teile zerfallen (*Bruch*), oder es lösen sich aus der äußersten Schicht einzelne Primärpartikeln, was als *Abrieb* bezeichnet wird (siehe Abbildung 3–35).

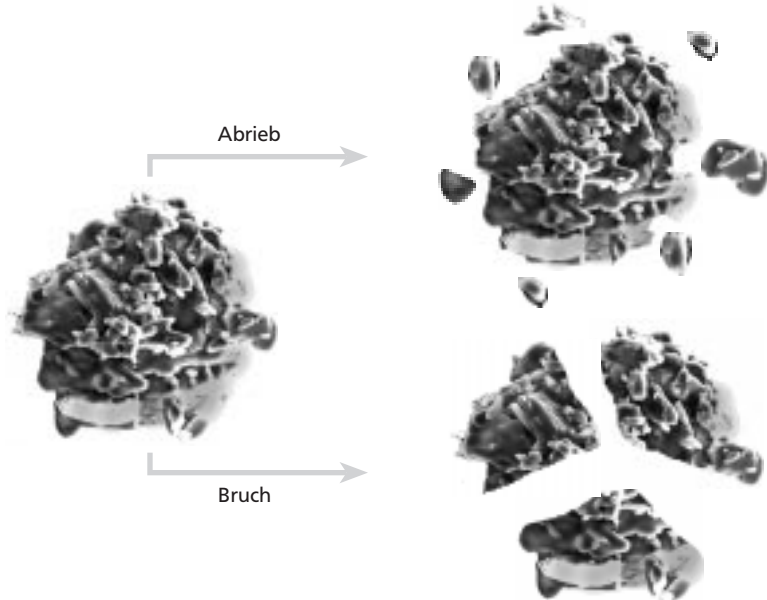


Abbildung 3–35: Zerstörung von Agglomeraten durch Abrieb und Bruch.

Abrieb ist besonders unerwünscht, da die Vermeidung von Feingut eine Voraussetzung für die meisten Qualitätsverbesserungen ist, die durch Agglomeration eines Schüttguts erzielt werden sollen. Feingut führt zur Staubfreisetzung, verschlechtert das Fließverhalten und behindert die Wiederbefeuchtung. Das Zerbrechen von Agglomeraten ist demgegenüber weniger problematisch, solange die Bruchstücke nicht so klein werden, daß sie auch zum Feingut gerechnet werden müssen. Die kritische Grenze liegt je nach Produkt im Bereich 0,1–0,2 mm.

Bei sehr unregelmäßigen, porösen Agglomeraten ist es schwer möglich, einen Bruchtest an Einzelpartikeln durchzuführen. Die übliche Methode, ein einzelnes Agglomerat zwischen zwei Stempeln bis zum Bruch zu belasten, ist in diesem Fall schwer auszuwerten, da es statt eines eindeutigen Bruchs (wie z.B. bei Tabletten) zu zahlreichen Teilbrüchen kommt, bei denen kleinere Stücke des Agglomerats

abbrechen. Reine Abriebtests sind bei porösen Agglomeraten ebenfalls in vielen Fällen nicht auswertbar, da sich abgeriebene Partikeln in Poren der Agglomerate einlagern.

Die Anfälligkeit der hier erzeugten Agglomerate gegen Bruch und Abrieb konnte jedoch in zufriedenstellender Weise mit Hilfe der nachfolgend beschriebenen, modifizierten Friabilatormethode getestet werden. Zahlreiche weitere Bauformen vergleichbarer Testgeräte existieren auf dem Laborgerätemarkt, bzw. sind in der entsprechenden Literatur erwähnt, die Friabilatormethode ist hiervon eine der einfachsten. Bei der hier beschriebenen Variante ist nur eine Laborwaage zur Messung des unerwünschten Feingutanteils erforderlich.

### Modifizierter Friabilitätstest

Der Roche-Friabilator nach SHAFER, WOLLISH und ENGEL (1955) wird hauptsächlich in der pharmazeutischen Industrie zur Bestimmung des Abriebs von Tabletten eingesetzt. Für einen Abriebtest wird eine vorgegebene Materialmenge in einer horizontal rotierenden Trommel über einen bestimmten Zeitraum beansprucht. Die Trommel hat einen Durchmesser von etwa 30 cm und besitzt eine Schaufel, die das enthaltene Material bei jeder Umdrehung bis in Höhe der Rotationsachse anhebt, von wo es bis zum Trommelmantel herabfällt. Es handelt sich demnach um einen kombinierten Prall- und Abriebtest, dessen Ergebnisse nicht direkt mit Messungen zu vergleichen sind, die mit anderen Prüfgeräten ermittelt wurden. Abbildung 3-36 zeigt eine schematische Darstellung des verwendeten Geräts.

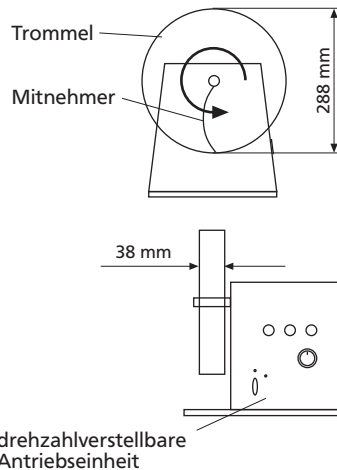


Abbildung 3-36: Schematische Darstellung eines Friabilators nach Roche-Prinzip.

Zur Durchführung des Versuchs wurde jeweils eine Menge von 20 g feingutfreiem, agglomeriertem Pulver eingesetzt (meist eine Siebfraction grobdisperser Agglomerate, beschreibbar mit einer monomodalen Verteilungsfunktion). Der Abriebtest im Friabilator dauerte bei einer Rotationsfrequenz von  $25 \text{ min}^{-1}$  20 Minuten. Anschließend wurde die Probe wieder entnommen und durch vorsichtiges Sieben (Maschenweite 0,2 mm) eine Grobgut- und eine Feingutfraktion hergestellt. Der Gewichtsanteil der Feingutfraktion wurde als Maß für die Widerstandsfähigkeit des Materials gegen Bruch und Abrieb verwendet. In einigen Fällen wurden die Feingut- und die Grobgutfraktion einer Partikelgrößenanalyse unterzogen. Zur Untersuchung des Feinguts diente die Laserbeugungsspektrometrie, während das Grobgut mit dem Flachbettscanner durch Bildanalyse vermessen wurde.

Hierdurch wurde versucht abzuschätzen, ob die Verringerung der Partikelgröße des Materials eher durch Abrieb oder durch Bruch geschah: Herrscht Abrieb

vor, entsteht in der Dichteverteilung der Partikelgröße des Probenmaterials üblicherweise ein deutlich erkennbarer „Feingutpeak“, ohne daß sich die Lage und die Breite des Grobgutanteils der Verteilung ändern. Tritt dagegen vorwiegend Bruch auf, verschiebt sich die Partikelgrößenverteilung zu kleineren Partikeldurchmessern und wird gleichzeitig breiter (MALAVE-LOPEZ und PELEG, 1986).

Es zeigten sich allerdings bei der Untersuchung von Agglomeraten aus der Dampfstrahlagglomerationsanlage gelegentlich auch beide Effekte: Während sich ein Anteil von Feingut unterhalb der 0,2 mm-Grenze bildete (bei einer mittleren Primärkorngröße von 50 µm), entstand zugleich auch im Grobgutbereich ein weiterer Peak aus Bruchstücken großer Agglomerate. Die detaillierte Beschreibung dieses Vorgangs erschien unverhältnismäßig aufwendig und unterblieb meist zugunsten der ausschließlichen Ermittlung des Massenanteils von Partikeln kleiner 0,2 mm.

### 3.2.4 Bestimmung des Benetzungsverhaltens

Beim Aufbringen eines (löslichen) Pulvers auf eine Flüssigkeit laufen nacheinander, aber auch teilweise zeitlich überlagert, mehrere Vorgänge ab: Eindringen von Flüssigkeit in das Porensystem, Absinken der Partikel in die Flüssigkeit, Dispergieren und Lösen der Partikel. Die Eigenschaften eines Pulvers, die sein Verhalten während dieser Vorgänge festlegen, werden unter dem Begriff *Instanteigenschaften* zusammengefaßt (SCHUBERT, 1990). Ein gutes Instantprodukt sollte so beschaffen sein, daß möglichst alle diese Teilvorgänge schnell und ohne gegenseitige Behinderung ablaufen.

Nach SCHUBERT (1990) ist bei Lebensmittelprodukten meist das Benetzen der Partikel, und damit verbunden das Eindringen der Flüssigkeit in das Haufwerk, der geschwindigkeitsbestimmende Schritt. Treibende Kraft ist der Kapillardruck  $\rho_k$ , der für eine zylindrische Kapillare mit dem Durchmesser  $d$  definiert ist als

$$\rho_k = \frac{4 \cdot \gamma_L}{d} \cos \delta(v) \quad (3-12)$$

Der Kapillardruck hängt in dieser Gleichung unter anderem von der Oberflächenspannung  $\gamma_L$  der Flüssigkeit sowie dem (wiederum von der Geschwindigkeit  $v$  des aufsteigenden Flüssigkeitsmeniskus<sup>1</sup> abhängigen) Randwinkel  $\delta$  ab.<sup>1</sup>

Im Gleichgewicht mit dem Kapillardruck steht der Druckverlust  $\Delta\rho$ , für den bei laminarer Durchströmung einer zylindrischen Kapillare gilt:

$$\Delta\rho = \frac{32 \cdot \eta_L \cdot x \cdot v}{d^2} \quad (3-13)$$

<sup>1</sup> Die Größen  $\gamma$  und  $\delta$  werden wiederum maßgeblich von den van-der-Waals-Wechselwirkungen zwischen den Molekülen der festen und der flüssigen Phase beeinflusst.

Hierin ist  $\eta_L$  die dynamische Viskosität der Flüssigkeit und  $x$  die Länge der von der Flüssigkeit durchströmten Strecke. Mit der Gleichsetzung von Kapillardruck und Druckverlust und der Vereinfachung  $\delta(v) = \delta = const$  erhält man die Geschwindigkeit  $v$  der eindringenden Flüssigkeit:

$$v = \frac{\gamma_L \cdot d}{8 \cdot \eta_L \cdot x} \cos \delta \quad (3-14)$$

Diese – stark vereinfachte – Darstellung verdeutlicht bereits, daß der Kapillardurchmesser und der Kosinus des Randwinkels einen entscheidenden Einfluß auf den Eindringvorgang haben. Technisch kann der Kapillardurchmesser über die Porosität der Packung und die Partikelgröße beeinflußt werden. Der Randwinkel  $\delta$  kann mit Benetzungshilfsmitteln verringert werden, z.B. Lecithin in der Lebensmitteltechnik. SCHUBERT (1990) führte aufgrund einer differenzierteren Betrachtung des Problems den effektiven Randwinkel  $\delta_{eff}$  ein und gab folgende Beziehung für die Benetzungszeit  $t_B$  einer Kugelschüttung der Höhe  $H$  an:

$$t_B = \frac{15 \cdot (1 - \epsilon) \cdot \eta_L \cdot H^2}{\epsilon \cdot \gamma_L \cdot x \cdot \cos \delta_{eff}} \quad (3-15)$$

Aus dieser Beziehung geht auch der Einfluß der Partikelgröße  $x$  und der Porosität  $\epsilon$  hervor. Da der effektive Randwinkel nicht direkt gemessen werden kann, ist allerdings eine quantitative Vorhersage der Benetzung von realen Partikelhaufwerken unmöglich, so daß in jedem Fall Versuche erforderlich sind. Zur Beurteilung des Benetzungsverhaltens der strahlagglomerierten Pulver im Vergleich mit anderen agglomerierten Produkten diente ein einfaches Testgerät.

### Benetzungsprüfgerät

Das einem Vorschlag der IDF (1978) nachempfundene Gerät (Abb. 3-37 und 3-38) ermöglicht die Wahl des Volumens oder der Masse der Pulverprobe unabhängig vom Schüttgewicht und eine gleichmäßige Aufgabe der Probe auf die Flüssigkeitsoberfläche. Meßgröße ist die Zeit bis zum vollständigen Benetzen aller Partikeln.

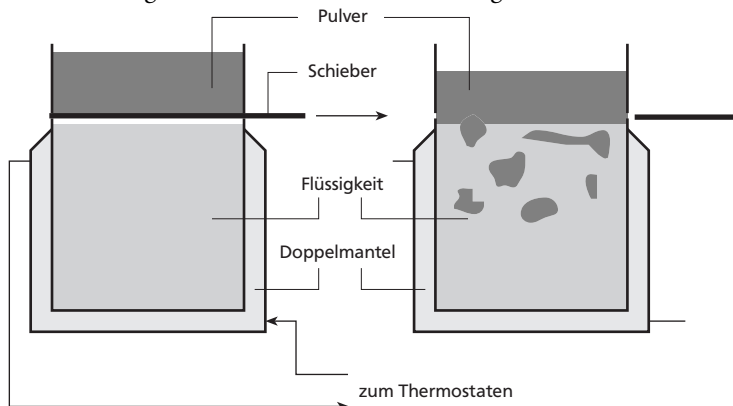


Abbildung 3-37: Schematische Darstellung des Testgeräts zur Bestimmung des Benetzungsverhaltens von Pulvern. Becherdurchmesser 50 mm, Volumen der Flüssigkeit  $\approx$  80 ml.

Um bei unterschiedlichen Temperaturen der Flüssigkeit experimentieren zu können, wurde als Flüssigkeitsvorlage ein Doppelmantelgefäß mit wechselbarem Bechereinsatz vorgesehen, an das ein Thermostat angeschlossen wird.

Das Pulver befindet sich in einer Matrize mit kreisförmigem Querschnitt, deren Boden von einem schnell öffnenden, federgespannten Schieber gebildet wird. Dies sorgt dafür, daß die Schüttung bei Auslösung des Federmechanismus' nur minimal in Querrichtung mitgeführt wird und somit gleichmäßig auf die Oberfläche auftrifft. Der geringe Abstand von Schüttung und Flüssigkeit vor Versuchsbeginn stellt sicher, daß die Partikel nahezu unbeschleunigt auftreffen (Größere Teilchen sollen nicht schon durch ihren Impuls durch die Oberfläche treten). Die Benetzungszeit wird manuell mit einer Stoppuhr ermittelt.

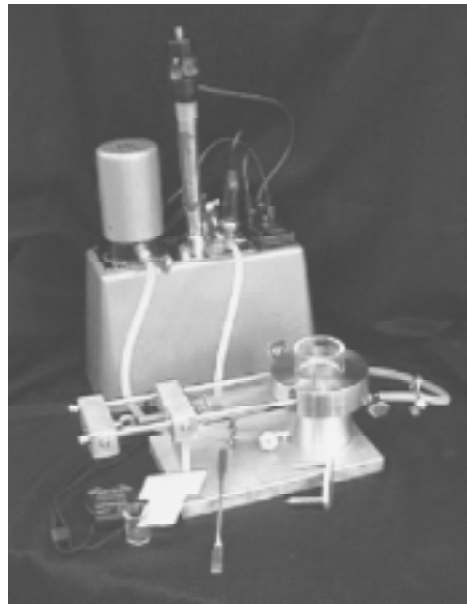


Abbildung 3-38: Ansicht des Testgeräts zur Bestimmung des Benetzungsverhaltens mit angeschlossenem Thermostaten.

Dieses Benetzungsprüfgerät wurde auch zur Untersuchung von handelsüblichen Instantprodukten eingesetzt, um das Verhalten von strahlagglomerierten Pulvern im Vergleich beurteilen zu können. Ergebnisse der Benetzungsmessungen verschiedener agglomerierter Handelsprodukte finden sich in Abschnitt 5.3.4 und im Anhang II. Untersucht wurden folgende Produktgruppen:

- Kakaohaltige Instantgetränke (Hauptbestandteile: Kakao, Saccharose, Glucose, Lactose, Lecithin),
- Instantkaffee und koffeinhaltige Instantgetränke (Hauptbestandteile: löslicher Kaffee und Saccharose),
- Kaffeeweißer (Hauptbestandteile: Milchpulver oder pulverförmige Milchbestandteile, pflanzliches Eiweiß und Kohlehydrate, Fette, Glucose),
- Speisestärken.



---

### 3.2.5 Bestimmung der Schüttdichte

Beschreibung der  
Strömungsverhältnisse  
in der Dampfstrahl-  
Agglomerationsanlage

Die Schüttdichte eines Pulvers ist eine sowohl für Hersteller als auch Anwender wichtige Größe. Sie beeinflusst z.B. das Wiederbefeuchtungsverhalten eines Produkts während des Redispersierens, da sie im Zusammenhang mit der Schüttungsporosität steht (vgl. hierzu Gleichung 3-14).

Im Rahmen dieser Arbeit wurden allerdings keine systematischen Untersuchungen zur Schüttdichte der durch Strahlagglomeration erzeugten Agglomerate durchgeführt, da die Schüttdichte nicht notwendigerweise bereits während des Agglomerationsvorgangs auf den endgültigen Wert eingestellt wird. Sie kann auch nachträglich noch durch Beeinflussung der Partikelgrößenverteilung der Agglomerate erhöht oder reduziert werden.

Im Gegensatz zur Schüttdichte ist die Rütteldichte eines Pulvers einfacher zu ermitteln. Während sich die Schüttdichte beim Befüllen eines Behälters aufgrund zahlreicher Eigenschaften des Schüttguts und der Art des Füllvorgangs in einer gewissen Bandbreite undefiniert einstellt, ist die Rütteldichte ein vergleichsweise stabiler Zustand. Mit geeigneten Meßmethoden kann die Rütteldichte daher reproduzierbar gemessen und zur Charakterisierung eines Pulvers verwendet werden. In einigen Fällen wurden daher Messungen der Rütteldichte von strahlagglomerierten Pulvern durchgeführt.

Hierzu stand ein ENGELSMANN-Stampfvolumeter zur Verfügung, mit dem Messungen des Stampfvolumens bzw. der Stampfdichte durchgeführt werden können. Das Gerät besteht im wesentlichen aus einem vertikal beweglich gelagerten 250 ml-Meßzylinder, der auf einem Nockenrad ruht. Bei einer Drehung des Nockenrads wird der Zylinder um 3 mm angehoben und fällt dann wieder in die Ausgangslage zurück. Hierdurch wird eine Verdichtung des in den Zylinder eingewogenen Schüttguts bewirkt. Üblicherweise werden bei einer Messung 30 Hübe durchgeführt, danach wird das Volumen der Schüttung abgelesen und ihre scheinbare Dichte berechnet.

## 3.3 Beschreibung der Strömungsverhältnisse in der Dampfstrahl-Agglomerationsanlage

Wie bereits in Abschnitt 2.2 dargestellt, findet bei der Dampfstrahlagglomeration eine Partikelvergrößerung in einem Feststoff-Partikelschwarm statt. In diesem Schwarm sedimentieren Feststoffpartikeln, bzw. bereits entstandene Agglomerate, mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten. Zusätzlich trifft Dampf in Form eines oder mehrerer Freistrahlen auf den Partikelschwarm und bewirkt weitere Relativbewegungen zwischen den Partikeln.

Es ist sowohl die Agglomeration fördernde als auch störende Wirkungen der Dampfstrahlen denkbar (siehe Kapitel 5). Die Konstruktion der hier vorgestellten Strahlagglomerationsanlage ermöglicht es, die Strömungsverhältnisse in der Agglomerationszone zu beeinflussen. Von dieser Möglichkeit wurde bei den

anfänglichen Agglomerationsexperimenten ausgiebig Gebrauch gemacht, um herauszufinden, unter welchen Bedingungen ein optimales Agglomerationsergebnis erreicht wird. Optimierungskriterium war dabei die Partikelgrößenverteilung der Agglomerate.

Zum Verständnis der Vorgänge in der Agglomerationszone erschien es außerdem wünschenswert, die dort herrschenden Strömungsverhältnisse meßtechnisch zu untersuchen. Hierfür standen allerdings nur die Möglichkeit der Beobachtung der partikelbeladenen Strömung mit einer Videokamera und der Geschwindigkeitsmessung der feststofffreien Strömung mit einem Hitzdrahtanemometer zur Verfügung. Die erzielten Ergebnisse besitzen deshalb nur qualitativen Charakter.

### 3.3.1 Visuelle Beobachtung

Der erste Ansatz zur Beurteilung der Strömungsverhältnisse in der Agglomerationszone bestand darin, die Bewegung der im Schwarm sedimentierenden Partikeln mit Hilfe einer Videokamera aufzuzeichnen. Bei dieser Methode kann die Bewegung einzelner Partikeln aufgrund der Einschränkungen durch die Videotechnik (50 Halbbilder pro Sekunde, begrenzte Bildauflösung) allerdings nicht verfolgt werden, da eine Partikel immer nur höchstens einmal abgebildet wird.<sup>1</sup> Der Vorteil der Methode lag darin, daß der Einfluß unterschiedlicher Einstellungen der Dampfdufen bei realistischen Mengenströmen untersucht werden konnte.

Hierzu wurde die Anlage anstelle von Dampf mit Luft betrieben und ein Teil einer Seitenwand im Bereich der Agglomerationszone entfernt, so daß der vom Partikelschwarm eingenommene Bereich mit der Videokamera aufgenommen werden konnte. Zur Versuchsdurchführung wurde zunächst eine bestimmte geometrische Einstellung der Dampfdufen vorgenommen, um die gewünschte Anströmung des Partikelschwarms zu erreichen (siehe Kapitel 5 für nähere Angaben zur Konstruktion der Anlage). Ein Rotationsdurchflußmesser ermöglichte die Kontrolle des Gasmengenstroms. Das Versuchsmaterial (Saccharose) wurde in gleicher Weise wie für die sonst durchgeführten Feuchtagglomerationsversuche vorbereitet, um gleiches Verhalten der Trockenagglomerate zu gewährleisten.<sup>2</sup> Anschließend wurde bei laufender Kamera für etwa 15 Sekunden zudosiert.

Die Aufnahmen wurden von mehreren Personen qualitativ bewertet und die Bewertungen mit Partikelgrößenanalysen von Feuchtagglomeraten verglichen, die unter vergleichbaren Bedingungen hergestellt worden waren.

---

<sup>1</sup> Die Beobachtung einzelner Partikeln zur indirekten Bestimmung der Strömungsgeschwindigkeit wäre übrigens auch bei Verwendung einer Hochgeschwindigkeitskamera kaum möglich gewesen. Es sollte bei hohen Massenströmen des Feststoffs gearbeitet werden, um realistische Bedingungen zu schaffen, und bei derartigen Bedingungen wäre es unmöglich gewesen, die Bewegung einzelner heller Partikeln in einem dichten Schwarm ähnlicher Partikeln zu verfolgen.

<sup>2</sup> Diese Bedingung machte es unmöglich, für die Messungen andere Substanzen zu verwenden, die eventuell über günstigere optische Eigenschaften verfügen.

---

### 3.3.2 Hitzdrahtanemometrie

Beschreibung der  
Strömungsverhältnisse  
in der Dampfstrahl-  
Agglomerationsanlage

Im Gegensatz zur Videotechnik bietet die Hitzdrahtanemometrie die Möglichkeit, den Betrag der Strömungsgeschwindigkeit an einem bestimmten Ort zu ermitteln. Je nach Sensorempfindlichkeit können auch der mittleren Geschwindigkeit überlagerte zeitliche Schwankungen erfaßt werden, um daraus auf die Turbulenz am Meßort zu schließen. Es wird jedoch keine Information über die Strömungsrichtung gewonnen. Das Funktionsprinzip des Hitzdrahtanemometers beruht darauf, die Abkühlung einer elektrisch beheizten Platinsonde aufgrund der Umströmung durch ein Fluid zu messen. In Kombination mit einer gleichzeitigen Messung der Fluidtemperatur kann hieraus die Strömungsgeschwindigkeit berechnet werden. Dies setzt allerdings bei den üblichen, vorkalibrierten Hitzdrahtanemometern voraus, daß in dem Fluid gemessen wird, auf das das Gerät kalibriert wurde.

Es muß außerdem vermieden werden, daß Fremdstanz auf die Sonde gelangt. Im hier vorliegenden Fall der Gasströmung in der Befeuchtungszone der Strahlagglomerationsanlage bedeutete dies, daß eine Messung bei Vorhandensein befeuchteter Zuckerpartikeln nicht möglich war. Eine reine Dampfatmosfera im Apparat war ebenfalls unzulässig, da Kondensation an der Sonde bzw. das Auftreffen von Kondensatropfen auf die Sonde verhindert werden mußte. Die vorhandene Sonde war auf den Betrieb in Luft bei Temperaturen unterhalb von 80 °C kalibriert, so daß bei den Versuchen zur quantitativen Bestimmung der Gasgeschwindigkeit statt Dampf Preßluft durch die Düsen geleitet wurde.

Hierbei entstand zwar – verglichen mit einer reinen Dampfatmosfera ohne Feststoffpartikeln – ein gewisser Fehler, da die kinematische Viskosität von Dampf bei 100 °C etwa den Wert  $2,1 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  hat, während der Wert für Luft von 30 °C ungefähr bei  $1,6 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  liegt (jeweils bei  $10^5 \text{ Pa}$  Gesamtdruck). Daher ergeben sich im Vergleich etwas zu niedrige Werte der Reynoldszahl. Es wurde angenommen, daß sich dieser Fehler insofern nicht bei den Messungen auswirkte, als nur der Betrag der mittleren Gasgeschwindigkeit Gegenstand der Messungen war.

Zur Versuchsdurchführung wurde die Agglomerationszone in ein räumliches Raster von Meßorten aufgeteilt. Die Meßorte wurden so gewählt, daß sich möglichst viele in Bereichen befanden, in denen starke Geschwindigkeitsgradienten vermutet wurden. Obwohl die Strömung theoretisch im Bereich des Partikel-schwarms aufgrund der Konstruktion der Anlage ein ebenes Profil annimmt, wurde in insgesamt sieben Ebenen gemessen. Mit Hilfe eines Interpolationsverfahrens wurden die Meßergebnisse auf ein äquidistantes, höherauflösendes Raster abgebildet und als Falschfarbenbilder dargestellt. Dabei wird jedem Punkt im Raster, entsprechend dem dazugehörigen Geschwindigkeitswert, eine Farbe aus einer kontinuierlichen Skala zugeordnet, anhand derer sich die Geschwindigkeiten ablesen und Bereiche mit starken Gradienten identifizieren lassen. Zum Zeitpunkt der Gasgeschwindigkeitsmessungen war die Düsengeometrie bereits anhand der Partikelgrößenverteilung von Agglomeraten, die bei unterschiedlichen Einstellungen hergestellt worden waren, optimiert. Die Messungen mit dem Hitzdrahtanemometer sollten diese Wahl absichern.



## 4 Voragglomeration

In Kapitel 2 wurde bereits ausführlich dargestellt, daß auch zwischen augenscheinlich nicht „klebrigen“ Einzelpartikeln eines Haufwerks Bindungskräfte wirken, die dazu führen, daß sich – je nach äußerer Belastung – mehr oder weniger umfangreiche Kollektive von Partikeln wie Einzelkörper verhalten. Die „Größe einer Einzelpartikel“ in einem Haufwerk feiner Partikeln ist daher nicht eindeutig festlegbar. Puderzucker ist hierfür ein allgemein geläufiges Beispiel: Je mehr Energie zur Dispergierung des Haufwerks aufgewendet wird, desto kleiner ist die gemessene Partikelgröße – auch ohne daß es dabei zu einer Zerkleinerung von Festkörpern kommt.

Umgekehrt kann hieraus der Schluß gezogen werden, daß sich bei entsprechender Vorgehensweise aus einem Haufwerk kohäsionsbehafteter Partikeln mit geringem Energieeinsatz Einzelkollektive herauslösen lassen. Bei diesen Einzelkollektiven handelt es sich definitionsgemäß um Agglomerate, obwohl sie nicht durch einen der üblichen Agglomerationsprozesse entstanden sind. Sofern sich die Haftkräfte zwischen den Partikeln auf einfache Weise beeinflussen lassen, besteht auf diese Weise die Möglichkeit, mit geringstem Aufwand Agglomerate von bestimmter *Form*, *Größe* und *Porosität* herzustellen. Die variable Größe ist in diesem Fall die *Festigkeit* der Agglomerate, die erheblich schwanken kann. Dies ist selbstverständlich noch ein unbefriedigender Zustand, da die Agglomeratfestigkeit von genauso großer Bedeutung für die Produktqualität ist wie die drei anderen Größen. Es ist also in jedem Fall ein zusätzlicher Verfahrensschritt erforderlich, um auch die Festigkeit der Bindungen zwischen den Primärpartikeln auf den gewünschten Wert einzustellen.

Die Erkenntnis, daß in einem Agglomerationsprozeß insgesamt mindestens vier charakteristische Eigenschaften eines Agglomerats eingestellt werden müssen, ist eigentlich trivial, und entsprechende Schritte finden mehr oder weniger zielgerichtet in den meisten Verfahren statt. In der hier vorgestellten Arbeit wird jedoch versucht herauszustreichen, daß eine Vorgehensweise, bei der nicht alle vier Größen in einem einzigen Schritt gemeinsam eingestellt werden, vorteilhaft

ist. Vielmehr wird bei dem hier vorgestellten Verfahren zunächst die Größe der Agglomerate eingestellt („*trockene*“ *Voragglomeration*) und anschließend möglichst ohne mechanische Beanspruchung eine Verfestigung, kombiniert mit einem weiteren Aufbauagglomerationsschritt, durchgeführt. Auf diese Weise wird versucht, den ohnehin zwangsläufig auftretenden Vorgang der Aggregation feindisperser Partikeln für das Verfahren nutzbar zu machen.

In Kapitel 5 wird dargestellt, warum die Anwesenheit von größeren Partikeln von Vorteil für die Aufbauagglomeration in einem Schwarm aus sedimentierenden Feststoffpartikeln ist und die wesentliche Bedeutung der Voragglomeration für das Gesamtergebnis der Strahlagglomeration erklärt.

#### 4.1 Methoden zur Agglomeration ohne Zusatz von Bindemitteln

Auch ohne Zusatz von Bindemitteln können die zwischen den Partikeln eines Haufwerks wirkenden Kräfte so groß sein, daß auch poröse Agglomerate von technisch interessanter Größe ( $10^{-4}$ – $10^{-2}$  m) zumindest dem Schwerkrafteinfluß und der bei stationärer Sedimentation in gasförmiger Umgebung auftretenden Widerstandskraft standhalten. Damit eignen sie sich für die hier vorgestellte Variante des Strahlagglomerationsverfahrens – falls sie aus löslicher Substanz bestehen und in der im folgenden Kapitel beschriebenen Weise nachträglich verfestigt werden können.

Unter dieser Voraussetzung ist eine Vielzahl von Agglomerationsmethoden geeignet, die für ein schnell dispergierbares Produkt erforderlichen, lockeren Agglomerate zu erzeugen. Es werden daher nachfolgend auch einige Verfahren erwähnt, die üblicherweise nur bei Zusatz von Bindemitteln betrieben werden, da ansonsten das Endprodukt keine ausreichende Festigkeit besitzt. Diese Aufzählung erhebt aber keinen Anspruch auf Vollständigkeit. Sie soll vielmehr einen Überblick über die verschiedenen Möglichkeiten der Erzeugung geeigneter Voragglomerate geben.

Bei sehr feindispersen Ausgangsmaterialien steht als Haftmechanismus neben den häufig vorhandenen Schichten aus adsorbiertem Wasser auch die van-der-Waals-Kraft zur Verfügung (vergl. Kapitel 2). Das Kohäsionsverhalten der in dieser Arbeit hauptsächlich als Versuchsgut verwendeten Saccharide, aber auch zahlreicher anderer Stoffe, kann bereits beim Lagern, Fördern und Zerkleinern über Temperatur und Luftfeuchtigkeit beeinflusst werden. Wie in Kapitel 2 dargestellt, existiert außerdem die Möglichkeit der Haftkraftverstärkung durch definiertes Aufbringen äußerer Kräfte, wobei allerdings die Verkopplung mit der Porositätsverminderung die Anwendbarkeit für schnell dispergierbare, poröse Agglomerate einschränkt.

Prinzip

Das Wälzdruckkompaktieren und das Tablettieren sind die bekanntesten Verfahren zur Preßagglomeration ohne Bindemittelzugabe (siehe auch Abschnitt 2.2.1). Ihre Wirkung beruht auf folgenden Effekten:

- Verstärkung von van-der-Waals-Haftkräften durch elastische und inelastische Verformung von Kontaktbereichen,
- Vergrößerung der Zahl der Kontaktpunkte durch Umlagern von Partikeln bzw. Verdichten des Haufwerks, da bei Unterschreiten eines kritischen Abstands van-der-Waals- oder Flüssigkeitsbrückenkräfte wirksam werden.
- Lokales Aufweichen des Feststoffs an Kontaktstellen durch Reibung und damit verbundene Kontaktflächenvergrößerung durch Fließen oder Haftkraftverstärkung durch Verschmelzen,

Für die Erzeugung lockerer Agglomerate durch Preßagglomeration sind die beiden ersten Punkte in dieser Aufzählung von Interesse, da die ansonsten aufzuwendenden, großen Kräfte eine unerwünscht starke Verdichtung des Haufwerks bewirken würden. Allgemein gilt, daß der Zusammenhang zwischen der Porosität eines Haufwerks und seiner Zug- bzw. Scherfestigkeit eine nur experimentell ermittelbare Materialeigenschaft ist. Auch die Fließeigenschaften des Feststoffs spielen hierbei eine wichtige Rolle, da von ihnen die plastische Deformierbarkeit der Kontaktzonen abhängt. Aus den schüttgutmechanischen Eigenschaften eines Pulvers (meist als Fließort dargestellt) wiederum die Eigenschaften eines aus diesem Pulver herzustellenden Preßagglomerats vorherzusagen, ist allerdings nicht in allen Fällen möglich.

Beim Einzelformpressen (Tablettieren) von Pulvern besteht grundsätzlich die Möglichkeit, Agglomerate von weitgehend beliebiger Porosität, Form und Größe herzustellen. Das zu agglomerierende Material wird in definierter Menge in eine Matrize gefüllt, mit Hilfe zweier beweglicher Stempel verdichtet und aus der Matrize ausgestoßen (siehe Abbildung 4-1). Die Porosität wird dabei über die Wahl des Endvolumens vorgegeben. Kenntnis der Schüttguteigenschaften zur Dimensionierung technischer Preßvorrichtungen ist z.B. in Form einer Druckspannungs-Porositäts-Beziehung erforderlich.

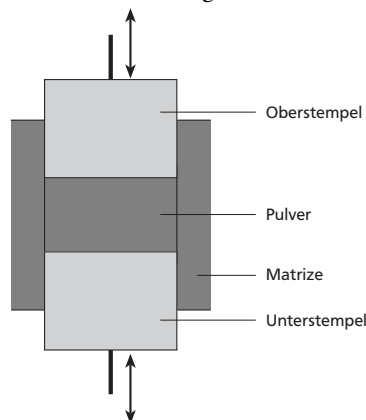


Abbildung 4-1: Prinzip des Tablettierens.

## Voragglomeration

Die Wälzdruckkompaktierung ist ein bewährtes und in vielen Varianten eingesetztes Verfahren zur kontinuierlichen Agglomeration von Massengütern. Zur theoretischen Beschreibung existieren zwei Ansätze, die von HERRMANN (1973) zusammenfassend dargestellt wurden: Russische Autoren befassen sich in ihren Arbeiten hauptsächlich mit dem Walzen von Metallpulvern zu Bändern, während JOHANSON (1965) für kohäsive Schüttgüter Beschreibungsansätze aus der Schüttgutmechanik verwendet, um Brikettierpressen auszulegen. Diese Vorgehensweise ist eher zur Beschreibung der Agglomeration bei geringer Verdichtung des Pulvers geeignet, wie sie hier von Interesse ist.

Ansätze zur Beschreibung der Wälzdruckkompaktierung mit glatten Walzen gehen vom sogenannten *Streifenmodell* aus (siehe Abbildung 4-2). Hierbei bewegen sich von parallelen Flächen begrenzte Volumenelemente des Pulvers zwischen zwei gegensinnig rotierenden Walzen hindurch.

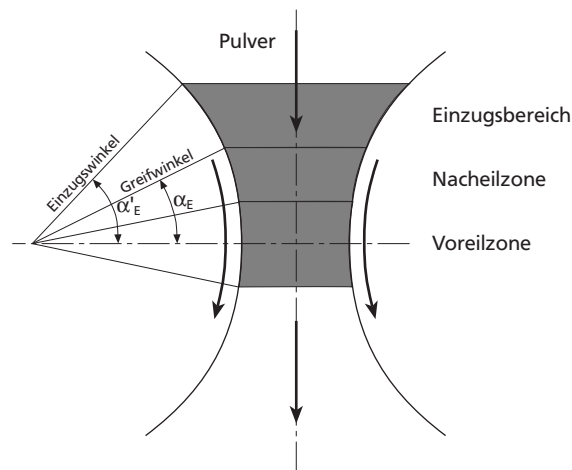


Abbildung 4-2: Prinzip des Wälzdruckkompaktierens.

Das Schüttgut wird unter dem Einfluß der Schwerkraft oder des Vordrucks einer Stopfschnecke und der Reibung an den Walzenoberflächen in den Spalt eingezogen, beschleunigt und verdichtet. Der Raum zwischen den Walzen kann vereinfacht in drei Bereiche eingeteilt werden, nämlich in die *Beschleunigungszone*, die *Kompressionszone* und die *Rückdehnzone*. In der Beschleunigungszone führt die Umorientierung und Verschiebung der Partikeln gegeneinander zu einer größeren Packungsdichte; es tritt hier nach HERRMANN (1973) nur eine geringe Verfestigung des Schüttguts ein. In der Kompressionszone wird das Schüttgut durch den senkrecht zur Walzrichtung wirkenden Walzdruck elastisch und plastisch verformt. Die an den Kontaktstellen zwischen einzelnen Partikeln wirksam werdenden Haftkräfte führen zu einer Verfestigung des Pulvers. In der Rückdehnzone gehen die elastischen Verformungen im Schüttgut zurück, und es kommt zu einer Auflockerung.

Es treten grundsätzlich die gleichen Verfestigungsmechanismen wie beim Tablettieren auf. Auch hier sind für eine Erzeugung poröser Agglomerate nur



Betriebszustände mit geringen Preßdrücken und entsprechend geringer Verdichtung des Pulvers von Interesse. Die bekannten Ansätze, z. B. von JOHANSON (1965), beziehen sich dagegen auf hohe Drücke zur Erzeugung stabiler Preßkörper. Die dazu erforderlichen „günstigen“ Preßdrücke müssen allerdings experimentell ermittelt und nach Erfahrung bewertet werden. Die Porosität des verdichteten Materials stellt sich als Folge des höchsten Drucks im Walzenspalt ein.

Die Auslegungsvorschläge für Walzenverdichter zielen ausschließlich auf das Erreichen des erforderlichen Drucks sowie die Berechnung der erforderlichen Antriebsleistung. Eine Methode, bei der die Porosität des verdichteten Materials ohne Berücksichtigung seiner Endfestigkeit Zielgröße der Auslegung ist, ist nicht bekannt. Dies verwundert nicht, da diese Größe im Zusammenhang mit briquetierten Materialien wie Kohle, Dünger, Stäuben etc. üblicherweise völlig belanglos ist. Nach PIETSCH (1991) existiert nach wie vor keine umfassende Theorie zur Beschreibung des Verdichtungs Vorgangs von Pulvern zwischen Walzen. Dies gilt insbesondere auch für den hier nicht näher betrachteten Fall des Formwalzens, bei dem die Walzen nicht glatt oder profiliert sind, sondern über Einbuchtungen verfügen, die den Preßlingen die Form geben. Hier existieren nur für Spezialfälle empirische Regeln.

Im Gegensatz zur üblichen Wälzdruckkompaktierung bietet sich zur schonenden Verdichtung kohäsiver Pulver folgende einfache Vorgehensweise an: Das aus einer Vorlage zulaufende Material wird erst unterhalb des Greifwinkels in den Walzenspalt eingeleitet. Der Verdichtungsgrad ergibt sich dann im wesentlichen nur aus der Geometrie, d.h. aus dem Verhältnis der Spaltbreite am Aufgabepunkt zur engsten Spaltbreite. Hierzu muß der Greifwinkel („nip angle“) bekannt sein, der sich jedoch nach der Methode von JOHANSON mit Hilfe bestimmter, in Labortests zu ermittelter Daten finden läßt:

- Der innere Reibungswinkel des Pulvers und der Reibungswinkel zwischen Pulver und Walzenmaterial sind mit der Jenike-Scherzelle zu bestimmen.
- Die Kompressibilität des Schüttguts ergibt sich aus Tests in einer Matrize bei Preßdrücken zwischen 70 und 5.000 bar. Diese Drücke sind allerdings weit höher, als zur Erzeugung geringverdichteter Agglomerate erforderlich.
- Der Druckbereich, in dem akzeptable Preßlinge entstehen, ist vom Anwender entsprechend seinen Anforderungen zu wählen.

## Technische Realisierung

Konkrete Anwendungen des Tablettierens zur Erzeugung lockerer Agglomerate sind nicht bekannt. Wie der Name bereits sagt, wird das Verfahren zur Herstellung relativ großer, bruch- und abriebfester Agglomerate eingesetzt. Insbesondere in der pharmazeutischen Technik spielt hierbei das exakte Einhalten eines bestimmten Tablettengewichts die Hauptrolle. Hierzu wird bei den üblichen Exzenter- und Rundläuferpressen ein erheblicher technischer Aufwand betrieben (siehe hierzu z. B. PIETSCH, 1991).

Wenn lockere Agglomerate von exakt vorgegebenem Gewicht erzeugt werden sollten, müßte das zu agglomerierende Material zumindest so kohäsiv sein, daß der erzeugte Preßling sich rückstandsfrei und ohne zu zerfallen von der Matrize bzw. den Stempeln löst. Es ist damit zu rechnen, daß dies bei den meisten Substanzen nicht erreichbar ist. Wenn exakte Gewichtseinhaltung nicht erforderlich ist, könnte der technische Aufwand zwar geringer ausfallen, übliche Tablettenpressen erscheinen aber nicht als wirtschaftliche Methode zur Erzeugung lockerer Voragglomerate.

Technische Ausführungen von Walzenkompaktierern, sowohl mit als auch ohne Vorrichtungen zur Unterstützung des Pulvereinzugs (wie z.B. Stopfschnecken), existieren in großer Zahl (PIETSCH, 1991). Eine häufig eingesetzte Bauform ist die Anordnung der Walzen horizontal nebeneinander, wie in Abbildung 4-2 gezeigt. In diesem Fall kann das zu kompaktierende Material unmittelbar aus einer Vorlage in den Einzugsbereich der Walzen zulaufen. Üblicherweise wird eine der Walzen horizontal verschiebbar gelagert und hydraulisch abgestützt.

Für das Verdichten von kohäsiven Pulvern unter geringem Druck ist eine Einzugshilfe meist nicht erforderlich. Eine Austragshilfe am vorgeschalteten Pulverbehälter, z.B. in Form einer Vibrationseinrichtung, wird jedoch häufig benötigt, da nur so ein gleichmäßiger Massenstrom gewährleistet ist. In diesem Fall erreicht das Material bei leichtem Überstau im Walzeneinzugsbereich die Rütteldichte, vorausgesetzt, der Durchsatz durch den Walzenspalt ist nicht höher als der Auslaufvolumenstrom aus der Vorlage. Die weitere Verdichtung des Materials findet bei hinreichend niedrigen Umfangsgeschwindigkeiten dann unabhängig vom Durchsatz statt.

Wenn die definierte Einstellung einer Porosität gefordert wird, kann auch mit fest vorgegebener Geometrie des Walzenspalts gearbeitet werden. Falls Deckschichtbildung auf den Walzen verhindert oder auf einen bekannten Wert begrenzt werden kann, bietet dieses Vorgehen den Vorteil, daß die Spannungs-Porositäts-Kennlinie des zu verdichtenden Pulvers nicht exakt bekannt sein muß. Auch in diesem Fall muß aus Gründen der Überlastsicherheit nach wie vor eine Walze seitlich ausweichen können. Im Normalbetrieb wird die verschiebbare Lagerung jedoch mit so hoher Kraft gegen den Anschlag, dessen Position die Breite des Walzenspalts vorgibt, gedrückt, daß die sich im Pulver einstellende Reaktionskraft zur Verschiebung nicht ausreicht. Es ist außerdem sinnvoll, mit profilierten Walzen zu arbeiten, da hier an die Stelle des Reibungswinkels Gut-Walzenmaterial infolge einer Schichtbildung der innere Reibungswinkel des Guts tritt. Nach den von JOHANSON veröffentlichten Diagrammen vergrößern sich dadurch im allgemeinen Einzugswinkel und Greifwinkel, wodurch eine Pulverzugabe innerhalb des Greifwinkels leichter sicherzustellen ist.

Je nach gewünschter Verdichtung und der sich dabei einstellenden Festigkeit des verpreßten Materials kann es bei sehr kohäsiven Gütern, wie z. B. Zucker bei  $a_w$ -Werten nahe am Lösungsast der Sorptionsisothermen, zur Bildung eines durchgehenden Streifens aus verdichtetem Material kommen. Diese sogenannte *Schülpfenbildung* ist im Zusammenhang mit der Erzeugung lockerer Voragglomerate

nicht erwünscht, da sie einen Zerkleinerungsschritt erforderlich macht. Schülpen oder Schülpenstücke können bereits entstehen, wenn die Porosität des Materials noch im Bereich um 0,5 liegt, d.h. noch im Bereich guter Flüssigkeitsaufnahme-fähigkeit des Haufwerks.

Das Walzenkompaktieren bietet die Möglichkeit, auch Agglomerate mit einer für Instantprodukte günstigen Porosität herzustellen. Vorzüge sind die einfache Bauweise, die Verfügbarkeit in zahlreichen Bauformen und die Möglichkeit, die Verdichtungsbedingungen schnell zu variieren. Zur definierten Erzeugung von porösen Agglomeraten sind allerdings die oben genannten Maßnahmen und eine von den üblichen Methoden abweichende Auslegung erforderlich. Hierbei sind vorteilhafterweise aufgrund der geringen Verdichtung Anpreß- bzw. Lagerkräfte und die Antriebsleistung keine relevanten Größen.

#### 4.1.2 Lochpressen und Extrudieren

##### Prinzip

Im Gegensatz zum Walzenverdichten und Tablettieren, die im wesentlichen unter dem Einfluß von Normalspannungen ablaufen, herrscht beim Lochpressen bzw. Extrudieren von Pulvern ein in vielen Fällen deutlich komplizierterer Spannungszustand im Schüttgut. Das zu verdichtende Material wird hierbei nicht zwischen begrenzenden Flächen verdichtet, sondern durch Öffnungen gepreßt, wobei sich der erreichte Verdichtungszustand im Zusammenspiel der Geometrie, des Durchsatzes und der Fließeigenschaften des Pulvers einstellt. Der Transport des Materials kann hierbei kontinuierlich oder schubweise erfolgen (Abbildung 4-3).

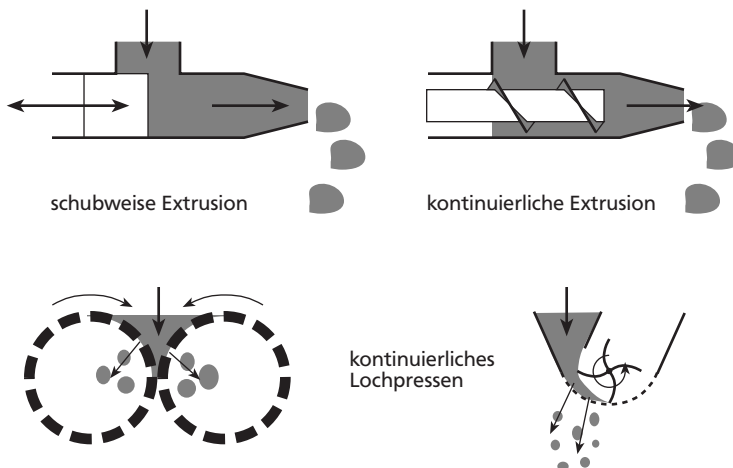


Abbildung 4-3: Prinzip des Extrudierens und Lochpressens.

Alle Varianten des Extrudierens und Lochpressens beruhen darauf, daß das zu agglomerierende Schüttgut unter Druckbelastung ausreichend zu verfestigen ist. Die zur Verdichtung erforderliche Reaktionskraft wird aber nicht von einer festen, der verdichtenden Kraft gegenüberstehenden Begrenzung aufgenommen, sondern muß über die innere Reibung des Pulvers in Form von Tangentialspannungen auf die seitlichen Begrenzungen des Agglomerationsraums oder auf die Randzonen der Austrittsöffnungen in der Matrize abgeleitet werden.

Als Haftmechanismen kommen bei leicht deformierbaren Stoffen van-der-Waals-Kräfte und allgemein Flüssigkeitsbrücken oder viskose Bindemittel in Frage. Das Schüttgut befindet sich während des Agglomerationsvorgangs in Bewegung und strömt bei einigen Varianten ähnlich wie ein Fluid mit einem Geschwindigkeitsprofil durch die Extrusionsöffnungen. Entscheidend ist, daß trotz der Relativbewegungen der Partikeln im Pulver im Moment des Austretens aus der Matrize hinreichend starke Haftmechanismen wirksam sind. Die Reichweite der Bindungen muß so groß sein, daß sie bei der elastischen Rückdehnung des Schüttguts erhalten bleiben.

Ein wichtiger Punkt ist der Zusammenhang zwischen der Porositätsabnahme und der Festigkeitszunahme durch Haftkraftverstärkung während des Verdichtens. Erforderlich ist eine ausreichende Verfestigung bei möglichst hohen Porositäten. Nur Schüttgüter, die diese Voraussetzung erfüllen, sind nach den Ausführungen zu Beginn dieses Kapitels für die hier vorgestellte Methode zur Herstellung schnell dispergierbarer Agglomerate grundsätzlich von Interesse, da in diesem Fall Voragglomerate hergestellt werden können, deren Porosität in einem für Instantprodukte günstigen Bereich liegt.

PIETSCH (1991) referiert verschiedene Ansätze zur Auslegung von Kolbenextruderpressen und Schneckenextrudern, die jedoch, ähnlich den meisten anderen Preßagglomerationsverfahren, die Herstellung fester, kompakter Agglomerate zum Ziel haben. Die Porosität des verpreßten Materials taucht als Zielgröße in diesen Ansätzen nicht auf. Auch hier gilt, genau wie bei den typischen Einsatzbereichen des Walzenkompaktierens, daß die Porosität für die üblichen Anwendungen belanglos ist und die Stabilität der erzeugten Preßlinge im Vordergrund des Interesses steht. Zur Auslegung von Ringmatrizenpressen finden sich in den Übersichtswerken von CAPES (1980) und PIETSCH (1991) keine Regeln, wobei PIETSCH jedoch einige grundsätzliche Hinweise auf die Gestaltung der Öffnungen in der Matrize gibt.

Das Materialverhalten von extrudierbaren Pulvern erlaubt prinzipiell die unterschiedlichsten Formen von Extrusionsquerschnitten, wobei aber üblicherweise nur zylinderförmige Querschnitte eingesetzt werden. Entsprechende Gestaltung des Apparats sowie ausreichende Kohäsion des Pulvers vorausgesetzt, kann das Extrusionsgut auch zu einem durchgehenden Strang geformt werden. Die Größe der einzelnen Agglomerate kann in diesem Fall durch Ablängen des Strangs eingestellt werden. Bei weniger kohäsivem Material tritt dagegen beim Austritt des verdichteten Pulvers aus der Extrusionsöffnung meist ein zufälliger Zerfall ein. Ursache hierfür ist die ungleichmäßige Rückdehnung des zuvor unter Spannung stehenden Materials.

## Technische Realisierung

## Methoden zur Agglomeration ohne Zusatz von Bindemitteln

Wie in den Prinzipskizzen in Abbildung 4-3 angedeutet, bieten sich unterschiedliche Realisierungsmöglichkeiten des Extrusionsprinzips an. Auch hier kann, wie bei den in den vorangegangenen Abschnitten vorgestellten Verfahren, bei geeigneter Wahl der Ausrüstung eine definierte, geringfügige Verdichtung des Pulvers erzielt werden, wie sie für gut dispergierbare Agglomerate erforderlich ist. Da das Verdichtungsergebnis bei einigen Extrudervarianten in kritischer Weise von den Fließeigenschaften des Schüttguts abhängt, muß in diesen Fällen auf gleichbleibende Eigenschaften des zugeführten Pulvers geachtet werden.

Beispiele für ein derartiges Verhalten sind die Kolben- und die Schneckenextruderpresse, bei denen das Material durch einen sich verjüngenden Kanal gepreßt wird (siehe Abbildung 4-3 oben). Bei der Kolbenextruderpresse geschieht dies taktweise mit Hilfe eines von einem Kurbeltrieb bewegten Kolbens. Das verdichtete Material kann sich bei der Rückholbewegung des Kolbens wieder ausdehnen, wenn es nicht aufgrund hoher innerer Spannung und entsprechender Reibung des Pulvers an der Kanalwand zum Haften kommt. Ist die innere Reibung des Materials zu gering, kommt es unter Umständen nicht zu einer Verfestigung, sondern zu einem Ausfließen aus der Extrudermündung. Ähnliches gilt für den Schneckenextruder, wobei hier aufgrund des kontinuierlichen Betriebs etwas günstigere Bedingungen vorliegen.

Extruder zur geringfügigen Verdichtung von Pulvern sind auf dem Maschinenmarkt erhältlich, wie der nach PIETSCH (1991) für pharmazeutische Anwendungen eingesetzte *Xtruder* der Firma *Fuji Pandal*, Osaka, Japan. Es handelt sich hierbei um einen Schneckenextruder mit einer oder zwei Schneckenwellen, der mit unterschiedlichen Extrudervorsätzen bestückt werden kann. Bei diesem Gerät (siehe Abbildung 4-4) kann sowohl ein geringfügiger als auch ein mittlerer Preßdruck erzielt werden, womit es sich auch für die Herstellung poröser Agglomerate anbietet.

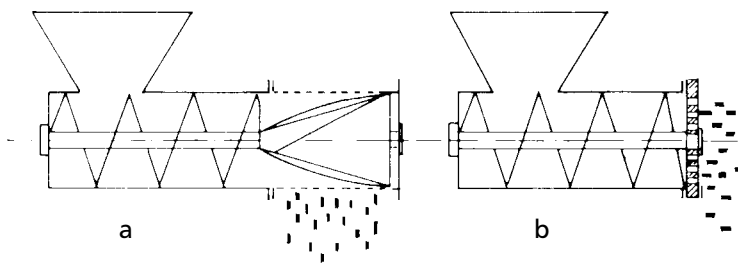


Abbildung 4-4: ‚Xtruder‘ mit Vorsätzen für niedrigen (a) und mittleren (b) Extrusionsdruck (PIETSCH, 1991).

Die links in Abbildung 4-4 gezeigte Variante besteht im wesentlichen aus einer Förderschnecke, die das Pulver unter leichter Verdichtung in einen zylindrischen Raum mit Siebmantel fördert. In diesem befinden sich mit der Schneckenwelle gekoppelte, umlaufende Schaber, die das Material durch den Siebmantel drücken. Es handelt sich hierbei also um eine Kombination aus Extrusion und Loch-

pressen. Der Lochdurchmesser beträgt nach PIETSCH (1991) 0,5 mm oder größer. Damit ist dieses Verfahren auch als Vorstufe zur Herstellung von Voragglomeraten für die Strahlagglomeration von Interesse.

Bei der in Abbildung 4–4 rechts gezeigten Bauform (die unwillkürlich an einen Fleischwolf erinnert) baut die Förderschnecke vor einer stirnseitig aufgesetzten Lochplatte einen Druck auf, unter dem das Pulver aus den Extrusionsöffnungen fließt. Hierbei kommt es durch Brückenbildung vor den Öffnungen zu einem höheren Widerstand als bei der Variante „a“. Ob unter diesen Umständen auch eine für schnell dispergierbare Agglomerate akzeptable Porosität erreichbar ist, kann nicht ohne entsprechende Experimente vorhergesagt werden. Denkbar ist allenfalls, daß bei entsprechend großem Lochanteil am Gesamtquerschnitt und größeren Lochdurchmessern auch hier niedrige Verdichtungsdrücke erzielt werden könnten.

Kontinuierlich arbeitende Lochpressen nach dem in Abbildung 4–3 links unten gezeigten Prinzip dürften, im Vergleich mit anderen Methoden, ebenfalls eine eher starke Verdichtung bewirken, da es sich auch hier um eine Extrusion gegen sich aufbauende Brückenkräfte handelt. Ähnlich den Vorgängen bei der Walzenkompaktierung wird das Pulver in einen sich verjüngenden Bereich eingezogen und dabei verdichtet. Anstelle des Walzenspalts als maßgeblichem geometrischen Parameter für die Agglomeratgröße treten hier die Öffnungen im Trommelmantel (bzw. bei Kollerpressen in der Matrize) und gewährleisten gleichmäßig geformte Preßlinge. Diese Geräte, im englischen Sprachraum als „pellet mills“ bezeichnet, sind auf dem Maschinenmarkt in zahlreichen Varianten zu finden. Sie erscheinen aus oben genannten Gründen zur Erzeugung lockerer Voragglomerate nur geeignet, wenn die Lochgeometrie entsprechend sorgfältig gewählt wird.

Das in Abbildung 4–3 unten rechts gezeigte Verfahrensprinzip wird häufig als „Siebagglomeration“ (engl. „screen granulation“) bezeichnet. Das zulaufende Material wird von umlaufenden Schabern über eine Fläche aus Siebgewebe oder ein perforiertes Blech hinweggeschoben. Im Spalt zwischen Schaber und Siebfläche baut sich hierbei ein leichter Druck auf, der das Pulver durch die Öffnungen austreten läßt. Im Gegensatz zu den oben beschriebenen Methoden wird durch die Bewegung des Schabers verhindert, daß sich über den Austrittsöffnungen Brücken aufbauen können. Die Bewegung der Schaber kann dabei umlaufend oder oszillierend sein. Es existieren auch hier unterschiedliche Varianten, die von zahlreichen Herstellern angeboten werden.

Nach CAPES (1980) arbeitet dieses Verfahren mit geringen Verdichtungsdrücken. Die Agglomerationswirkung hängt bei gegebener Geometrie des Apparats von den Fließigenschaften des Pulvers ab. Pulver, deren Wassergehalt so hoch ist, daß sie deutlich kohäsives Verhalten zeigen, können mit diesem Verfahren zu lockeren, unregelmäßig geformten Agglomeraten verarbeitet werden (CAPES, 1980, S. 119 f.: „crumbly texture“). Als Beispiel für eine industrielle Anwendung wird die Erzeugung fließfähiger Pulver als Zulauf für Tablettenpressen genannt. Die Siebagglomeration ist aus oben genannten Gründen ein geeignetes Verfahren, um mit geringem Aufwand Agglomerate von hoher Porosität als Vorstufe für die Dampfstrahlagglomeration herzustellen.

### Prinzip

In einem Pulver, das zu einem Gutbett von geringer Schütthöhe aufgeschichtet wird, können sich unter dem Einfluß von Vibrationen – ebenfalls ohne Zugabe von Flüssigkeit – Agglomerate bilden. Dieser Effekt ist, da er schwer zu kontrollieren ist, oft unerwünscht und wird z.B. bei der Vibrationsförderung von feinen Partikeln häufig beobachtet. Die Vibration führt zu einer Bewegung der Teilchen relativ zueinander, so daß zum einen neue Kontaktstellen zwischen den Partikeln entstehen können, während andererseits schwache Verbindungen aufgebrochen werden.

Die Agglomerationswirkung hängt von der Stärke der Wechselwirkungen zwischen den Partikeln bezogen auf ihre Masse ab, da bei der Vibrationskompaktierung Trägheitskräfte die Hauptrolle spielen. Üblicherweise entstehen sehr lockere Agglomerate, da keine großen Kräfte aufgebracht werden können. Die Dichte derartiger Agglomerate liegt meist noch unter der mit einem Stampfvolumeter ermittelten Rütteldichte. Damit sind günstige Voraussetzungen für ein schnelles Eindringen von Flüssigkeit in die Agglomerate gegeben und gute Redispersiereigenschaften zu erwarten.

Die hohe Porosität von Agglomeraten, die durch Vibrationskompaktierung entstanden sind, macht für Produkte, die in agglomerierter Form verpackt, transportiert und gelagert werden sollen, jedoch immer einen zusätzlichen Verfestigungsschritt erforderlich.

### Technische Realisierung

Zahlreiche Apparate und Apparatekomponenten, wie z.B. Vibrationsförderrinnen oder Plansichter, sind im Prinzip Agglomeratoren. Die in ihnen entstehenden Agglomerate stellen aber – häufig in geschlossenen Apparaten gar nicht wahrgenommene – „Übergangszustände“ des Schüttguts dar, die nur existieren, solange die äußeren Krafteinwirkungen sehr niedrig sind. Es werden jedoch keine Apparate auf dem Markt angeboten, deren Agglomerationswirkung ausschließlich auf dem Vibrationseffekt beruht, mit Ausnahme der sogenannten *Vibrationskompaktierer* zur Herstellung von Reaktorbrandstäben. Hierbei wird das pulverförmige Ausgangsmaterial in einem intensiv vibrierenden Rohr zu einem festen Stab verdichtet.

Die vielfach verwendeten Vibrationsförderer (siehe Abbildung 4–5) eignen sich unter bestimmten Voraussetzungen gut zur Erzeugung von Voragglomeraten aus trockenen Pulvern. Aufgrund der geringen Beschleunigungen, die die Pulverpartikeln erfahren, kann die „stabile Agglomeratgröße“ bei kohäsivem Material schnell sehr hohe Werte erreichen. Dies eröffnet einerseits die Möglichkeit, mit geringstem Aufwand einen sehr starken Partikelvergrößerungseffekt zu erzielen.

## Voragglomeration

Andererseits werden bei schwankenden Eigenschaften des Pulvers auch starke Schwankungen der Agglomeratgröße auftreten. Da derartige Schwankungen schon durch inhomogene Feuchtigkeitsverteilung im Gut hervorgerufen werden können, ist es empfehlenswert, die durchschnittliche Agglomeratgröße deutlich höher als den eigentlich gewünschten Wert einzustellen und anschließend das Überkorn durch Sichten oder definiertes Zerkleinern zu entfernen.

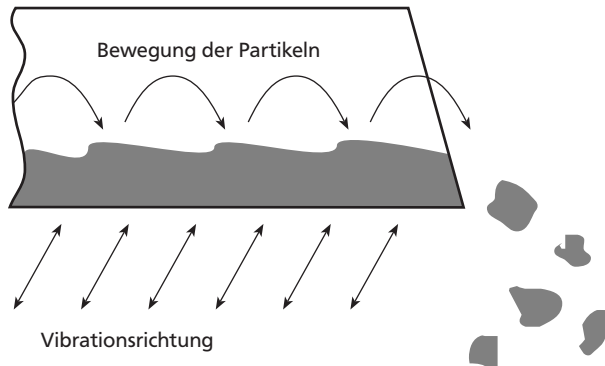


Abbildung 4-5: Prinzip der Partikelbewegung auf einer Vibrationsförderrinne.

Das in Abschnitt 2.2.3 erwähnte Schutzrecht der Firma KRAFT GENERAL FOODS (1985) beinhaltet die Verwendung von vertikal schwingenden Verteilertrogen zur Erzeugung von Voragglomeraten. Diese Methode (siehe Abbildung 4-6) nutzt ebenfalls die Trägheitskräfte der Partikel beim Anheben und Zurückfallen der Schüttung aus. Der Übergang zum Lochpressen ist jedoch fließend, da die Trägheitskräfte gleichzeitig dazu dienen, das Pulver durch die Löcher im Trogboden zu transportieren.

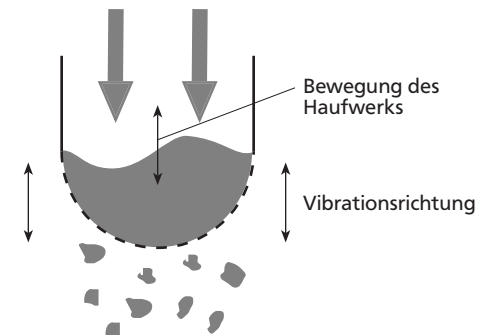


Abbildung 4-6: Prinzip der Haufwerksbewegung und Agglomeration in einem vertikal schwingenden Trog mit Siebboden.

Es wird ausdrücklich darauf hingewiesen, daß die Voragglomeration von der Kohäsivität des Pulvers abhängt. Die Patentschrift nennt auch Beispiele für Maßnahmen, mit denen die Kohäsivität beeinflusst werden kann, wie z.B. Zugabe oder Entzug von Flüssigkeit, elektrostatische Aufladung oder Zugabe feindisperser Fließhilfsmittel.



#### 4.1.4 Roll- und Mischagglomeration

Methoden zur  
Agglomeration ohne  
Zusatz von Bindemitteln

##### Prinzip

Die Herstellung von Agglomeraten durch Abrollbewegungen gehört zu den ältesten Agglomerationsverfahren. Bei diesem Prinzip findet in einem bewegten Gutbett eine Anlagerung von Primärpartikeln an bereits vorhandene, in etwa kugelförmige Agglomerate statt (siehe Abbildung 4–7). Diese führen im Gutbett Rollbewegungen durch, wobei sich meist die größten Agglomerate an der Oberfläche der Schüttung aufhalten. Rollagglomeration kann kontinuierlich oder absatzweise betrieben werden, aber auch unerwünscht auftreten, z.B. in Plansichtern.

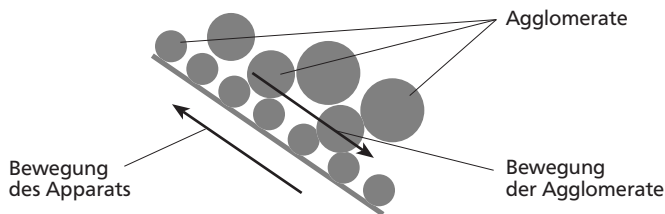


Abbildung 4–7: Prinzip der Rollagglomeration.

Üblicherweise wird während des Agglomeriervorgangs Flüssigkeit als Bindemittel zugegeben. Der vorherrschende Bindemechanismus in den erzeugten Agglomeraten ist in diesem Fall der kapillare Unterdruck (RUMPF, 1975), der eine vergleichsweise hohe Agglomeratfestigkeit bewirkt. Bei sehr feindispersen Material ist jedoch auch eine Agglomeration ohne Flüssigkeitszugabe möglich, wobei ebenfalls kugelförmige Agglomerate von geringerer Festigkeit entstehen. Dies setzt voraus, daß van-der-Waals-Kräfte oder Adsorptionsschichten eine ausreichend starke Bindung bewirken.

Das Agglomeratwachstum kann beispielsweise in einem absatzweise betriebenen Apparat durch Anlagerung von Partikeln aus dem vorgelegten Pulver an die im Gutbett abrollenden Agglomerate erfolgen. Eine Anlagerung weiterer Partikeln findet dann statt, wenn die Haftkraft Partikel<sup>1</sup>–Agglomerat größer ist als die Haftkraft Partikel–Gutbett. Bei kontinuierlichem Betrieb wird einem Gutbett aus abrollenden Agglomeraten ständig Feingut zugegeben, das sich an Agglomerate anlagert. Bei der Rollagglomeration gilt allgemein, daß die Agglomeratstabilität (und auch die scheinbare Dichte) umso höher ist, je steiler und länger die Bahn der Agglomerate verläuft, was z.B. über den Durchmesser des rotierenden Agglomerationsbehälters, den Böschungswinkel des Gutbetts und die Drehzahl beeinflußt werden kann. Unvorteilhaft für die Herstellung von gut dispergierbaren Pulvern ist die enge Porengrößenverteilung der erzeugten Agglomerate.

<sup>1</sup> „Partikel“ bezeichnet hier eine Partikel oder ein Agglomeratbruchstück in der obersten Schicht des Gutbetts.

## Voragglomeration

Die Vorgänge bei der Mischagglomeration (siehe Abbildung 4–8) ähneln denen bei der Rollagglomeration insofern, als auch hier die zu agglomerierenden Partikeln in einem Gutbett miteinander im unmittelbaren Kontakt stehen. Es werden auch die gleichen Haftmechanismen, bzw. Mechanismen der Haftkraftverstärkung, genutzt. Der Unterschied zur Rollagglomeration besteht darin, daß bei der Agglomeratbildung keine Rollbewegung stattfindet, die Agglomerate daher unregelmäßiger geformt sind und eine breitere Porengrößenverteilung besitzen.

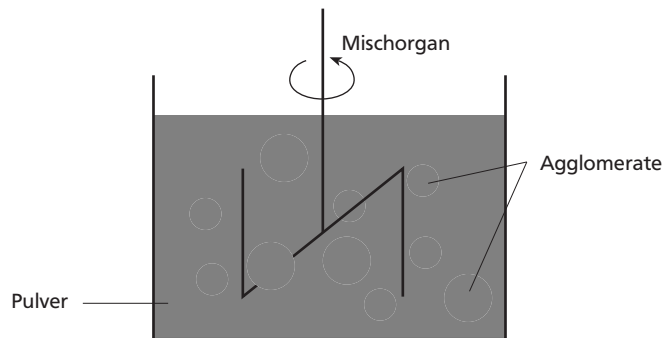


Abbildung 4–8: Prinzip der Mischagglomeration.

Die zur Partikelvergrößerung erforderlichen Kräfte werden über ein oder mehrere Mischorgane in das Gutbett eingetragen. Hieraus ergibt sich eine im Vergleich zur Rollagglomeration größere Bandbreite der erzielbaren Agglomeratfestigkeit. Neben der Festigkeit kann auch die Porosität der Agglomerate über die Mischintensität variiert werden.

Der Agglomerationsraum ist bei diesem Verfahrensprinzip theoretisch ideal durchmischt. Im Gegensatz zu den Rollverfahren neigen die Agglomerate kaum dazu, sich entsprechend ihrer Größe an bestimmten Orten im Apparat aufzuhalten. Hieraus folgt, daß das System zum kontinuierlichen Betrieb schlecht geeignet ist, da es ein theoretisch unendlich breites Verweilzeitspektrum besitzt. Es werden daher vorzugsweise diskontinuierlich arbeitende Mischagglomeratoren eingesetzt.

## Technische Realisierung

Häufig eingesetzte Apparate zur Rollagglomeration sind Granulierteller, Granuliertrommeln und konusförmige Rotationsbehälter (siehe Abbildung 4–9).

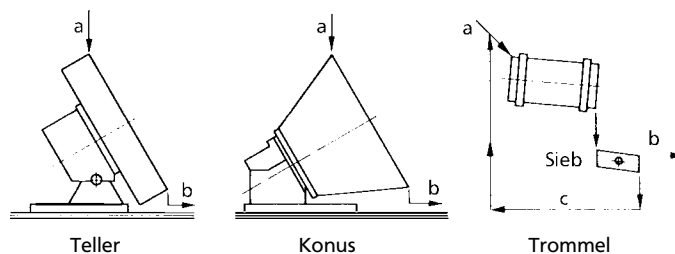


Abbildung 4–9: Verschiedene Möglichkeiten der kontinuierlichen Rollagglomeration: a: Aufgabegut + Flüssigkeit, b: Agglomerate, c: Unterkorn (RUMPF, 1975).

Granulierteller und -konus bieten sich besonders zur Herstellung gleich großer, kugelförmiger Agglomerate im kontinuierlichen Betrieb an, da hier die größten Agglomerate zuerst den Apparat verlassen. Demgegenüber liefert die Granuliertrommel ein breiteres Partikelgrößenspektrum, weshalb häufig eine Unterkornrezirkulation erforderlich ist. Zur definierten Erzeugung schnell dispergierbarer, poröser Agglomerate hat sich dieses Prinzip nicht bewährt. Das enge Porengrößenspektrum macht aufgrund der Kapillardruckhysterese ein schnelles Befeuchten derartiger Agglomerate praktisch unmöglich (SCHUBERT, 1990).

Auch aus produktionstechnischen Gründen ist die Herstellung poröser Agglomerate durch Rollagglomeration problematisch, da die erforderlichen kurzen bzw. flach verlaufenden Partikelrollwege die Verwendung kleiner, kapazitätsschwacher Apparate erfordern. Als Vorstufe für die Dampfstrahlagglomeration bietet sich die Rollagglomeration daher nur in sehr eingeschränktem Maß an. In absatzweise arbeitenden, kleineren Apparaten können zwar die gewünschten Agglomerateigenschaften hervorgebracht werden, die Kombination mit einem (kontinuierlich arbeitenden!) Strahlagglomerationsapparat erscheint aber allenfalls für spezielle Anwendungen, wie z.B. hochwertige und empfindliche Pharmaprodukte, sinnvoll.

Die Mischagglomeration wird meist in Feststoff- bzw. Fest-flüssig-Mischern durchgeführt. Praktisch jedes dieser Geräte ist hierfür geeignet, und häufig tritt in ihnen auch eine unbeabsichtigte Agglomeration auf. Da die Bewegung der im Apparat befindlichen Partikeln weniger von den Kohäsionseigenschaften des Pulvers als vielmehr von der Tätigkeit des Mischorgans abhängt, ist eine bessere Kontrolle des Agglomerationsvorgangs als bei der Rollagglomeration möglich.

Neben der in Abbildung 4–8 dargestellten Bauform werden auch trogförmige Behälter eingesetzt, in denen eine mit Pflugscharen ausgerüstete, horizontal gelagerte Welle rotiert. Derartige Apparate eignen sich auch zum kontinuierlichen Betrieb, weil hier ein engeres Verweilzeitspektrum erreicht werden kann. Da das Pulver in einem Gutbett vorliegt, hängt die Porosität der erzeugten Agglomerate stark von der Mischintensität ab. Zur Erzeugung poröser, gut dispergierbarer Agglomerate sind niedrige Mischintensitäten und eine langsame, möglichst gleichmäßige Befeuchtung erforderlich, was sich entsprechend negativ auf die Kapazität derartiger Apparate auswirkt.

Eine für die Erzeugung gut dispergierbarer Agglomerate durchaus geeignete Bauform stellen die Hochgeschwindigkeitsmischer dar, wie z.B. der sogenannte *Schugi-Mischer*. In diesem kontinuierlich arbeitenden Apparat (siehe Abbildung 4–10, aus CAPES, 1980) können bei geringer Feuchtigkeitszugabe Agglomerate mit günstigen Instanteigenschaften hergestellt werden, da aufgrund der hohen Mischintensität eine gleichmäßige Befeuchtung gewährleistet ist. Gleichzeitig kann die Agglomerationswirkung über den Mengenstrom des Pulvers so eingestellt werden, daß keine Agglomeration im Gutbett, sondern in einem stark verwirbelten Fest-flüssig-Aerosol stattfindet. Die Verwendung als Vorstufe eines Strahlagglomerationsapparats mit dem Ziel der Herstellung schnell dispergierbarer Produkte ist jedoch insofern nicht empfehlenswert, als auch in diesem Gerät eine

## Voragglomeration

Abrollbewegung der Agglomerate an der Wand des Apparats eine enge Porengrößenverteilung bewirkt. Im allgemeinen ist es mit einem Schugi-Mischer nicht möglich, besonders poröse Voragglomerate zu erzeugen, bei denen eine Nachverfestigung im Dampfstrahl sinnvoll ist.

Wenn Mischagglomeratoren zur Erzeugung von porösen Voragglomeraten eingesetzt werden sollen, ist wohl den kontinuierlich arbeitenden Varianten der Vorzug zu geben. Denkbar ist beispielsweise der Einsatz von langgestreckten Pflugscharmischern, bei denen der Feststofftransport durch den Neigungswinkel des Apparats von der Tätigkeit des Mischorgans entkoppelt werden kann. Auf diese Weise wäre bei entsprechend niedrigen Drehzahlen und gleichmäßiger Befuchtung (z.B. mit feuchter Luft) eine schonende Agglomeration möglich.

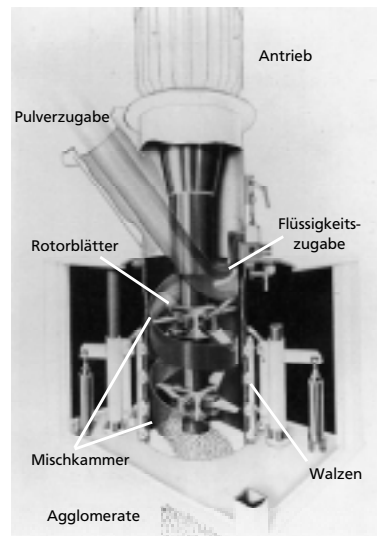


Abbildung 4-10: Schematische Darstellung eines kontinuierlichen Schugi-Schnellmischers (aus PIETSCH, 1991). Die Mischkammer besteht aus flexiblem Material und ist mit Walzen zum Bewegen der Kammerwand versehen, da auf dieser im Betrieb Ablagerungen auftreten können.

### 4.1.5 Sintern

Wie in Kapitel 2 erwähnt, ist das Sintern bei zahlreichen Produkten anwendbar, sofern diese die Sinterbedingungen ohne Schädigung vertragen. Sintern beruht auf diffusivem Stofftransport über die feste Phase, die Phasengrenzfläche oder die Gasphase an die Kontaktstellen der Primärpartikeln. Dementsprechend ist die Sintergeschwindigkeit stark temperaturabhängig. Prinzipiell können durch Sintern Agglomerate mit hoher Porosität (bis zur Schüttporosität des Pulvers) hergestellt werden, deren Festigkeit über die Sinterzeit einflußbar ist.

Schüttungen von Zuckerpartikeln können durch Sintern erheblich verfestigt werden, wobei aber im Fall von Saccharose entweder unvertretbar lange Behandlungszeiten oder Bräunungsreaktionen in Kauf genommen werden müssen. Bei niedriger schmelzenden Substanzen kann dies eventuell vermieden werden. Technisch interessant ist das Sintern erst bei Temperaturen oberhalb  $\frac{2}{3}$  des absoluten Schmelzpunkts des Feststoffs, wobei jedoch bei Vorversuchen mit Saccharose erst

bei deutlich höheren Temperaturen ein signifikanter Effekt zu beobachten war. Wenn sehr kurze Behandlungszeiten im Sekundenbereich gefordert sind, kann die Verbindung der Partikeln jedoch vermutlich nur durch oberflächliches Anschmelzen der Partikeln und nicht durch Sintern erzielt werden.

Für Lebensmittel- und Pharmaprodukte dürfte das Sintern allgemein nicht von Interesse sein, da die Sinterbedingungen die thermische Zersetzung und den Verlust flüchtiger Inhaltsstoffe begünstigen. Insbesondere eine Kombination mit der Dampfstrahlagglomeration, deren Hauptvorteil in der geringen Wärmebelastung des Produkts besteht, erscheint daher nicht sinnvoll.

## 4.2 Experimente zur Voragglomeration

Experimente zur definierten Erzeugung von Voragglomeraten wurden mit unterschiedlichen Geräten durchgeführt, das Wälzdruckkompaktieren stand jedoch im Vordergrund. Die Experimente dienten dazu, die Möglichkeiten der Beeinflussung der Agglomeratgröße bei der Wälzdruckagglomeration zu ermitteln, sowie zur Beurteilung der grundsätzlichen Eignung anderer Agglomerationsmethoden.

Die einzige quantitative Meßgröße dieser Versuchsreihe war die Partikelgröße, bzw. die Partikelgrößenverteilung der erzeugten Agglomerate. Andere Eigenschaften, z.B. die Porosität, konnten nicht untersucht werden, da die Agglomerate zu empfindlich waren, um aufgefangen zu werden. Die mit den verschiedenen Dosiergeräten voraussichtlich zu erzielenden Durchsätze sowie Erfahrungen hinsichtlich der Betriebssicherheit waren Randergebnisse der Experimente.

Die in Kapitel 5 beschriebenen Versuche zum Einfluß der Strömungsverhältnisse in der Dampfzone der Strahlagglomerationsanlage lassen allerdings auch qualitative Rückschlüsse auf die Stabilität der Trockenagglomerate zu. Hierbei wurden vergleichende Messungen mit einer Vibrationszuteilrinne und dem nachfolgend beschriebenen Wälzdruckkompaktierer durchgeführt.

Die Voragglomeration eines Pulvers nach den hier vorgestellten Verfahren setzt voraus, daß das Material kohäsiv ist. Bei den verwendeten Sacchariden hängt das Kohäsionsverhalten stark vom Wassergehalt ab. Es wurden daher auch eine Reihe von begleitenden Experimenten durchgeführt, um das Verhalten der Substanzen bei unterschiedlichen Wassergehalten zu studieren und Zusammenhänge mit der Entstehung von Voragglomeraten zu finden.

### 4.2.1 Vorversuche zur Beeinflussung der Haftkräfte im Pulver

In früheren Untersuchungen (siehe Abschnitt 2.2.2) hatten sich häufig Schwierigkeiten bei der Reproduzierbarkeit der Pulverzufuhr gezeigt, deren Ursache die von den Lagerbedingungen und vom Zustand der Raumluft abhängige Kohäsionsneigung der Versuchsmaterialien war. Zu Beginn der hier vorgestellten Versuche

wurde daher in den meisten Fällen mit vakuumgetrockneten Pulvern gearbeitet, um einen definierten Ausgangszustand zu gewährleisten.

Auf diese Weise wurde zwar eine gute Reproduzierbarkeit der Agglomerationsversuche erreicht, insbesondere bei Saccharose erwies sich dieses Vorgehen jedoch als unbefriedigend, da die Neigung des feindispersen Pulvers zur Trockenagglomeration unter diesen Bedingungen stark nachließ.

Es wurde daher nach Möglichkeiten gesucht, die Kohäsion der Versuchsmaterialien, und damit ihre Neigung zur Trockenagglomeration, definiert zu beeinflussen. Als einfachste Möglichkeit bot sich hier die Einstellung des Wassergehalts an, der über die Sorptionsisothermen mit der Lagertemperatur und der Wasseraktivität verknüpft ist (LONCIN und WEISSER, 1977). Der Effekt der Lagerung unter bestimmten Bedingungen wurde mit den in den Abschnitten 3.1.3 und 3.1.4 beschriebenen Methoden überprüft.

### Bestimmung des Widerstands gegen einen eindringenden Prüfkörper

Mit der in Abschnitt 3.1.3 beschriebenen Eindrückapparatur wurden kleine Proben von Fructose, Saccharose und Xylitol daraufhin untersucht, ob sich durch Lagerung unter definierten Bedingungen (*Konditionierung*) die Haftkräfte im Pulver gezielt beeinflussen lassen.

Das gemahlene und von Partikeln über 140 µm getrennte Ausgangsmaterial wurde zur Konditionierung in die in Abbildung 3–7 dargestellten Probengefäße gefüllt und mehrere Tage in Sorbostaten gelagert. Als Sorbostaten dienten hierbei temperaturgeregelte Trockenschränke, in denen die Wasseraktivität mit gesättigten wässrigen Lösungen unterschiedlicher Salze auf bestimmten Werten gehalten wurde (siehe Abbildung 4–11).

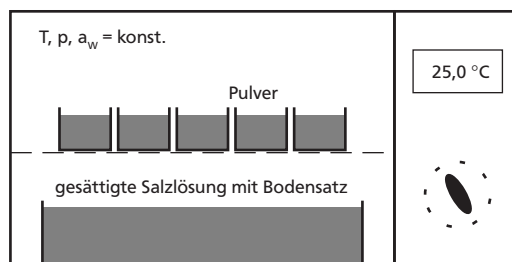


Abbildung 4–11: Schematische Darstellung der Probenkonditionierung in einem als Sorbostat verwendeten Trockenschrank.

Unmittelbar nach Entnahme aus dem Sorbostaten wurden mit jeder der konditionierten Proben zehn Eindrückversuche mit einer zylinderförmigen Sonde von 2 mm Durchmesser durchgeführt. Die gemessenen Kraft-Weg-Kurven wurden gemittelt und durch eine geeignete empirische Funktion angenähert, um die Darstellung zu vereinfachen.

Abbildung 4–12 zeigt Meßergebnisse für Saccharoseproben, die bei fünf verschiedenen Wasseraktivitäten konditioniert wurden. Beim Eindringen des Prüf-

körpers in die Pulverschüttung (Punkt o/o) ist ein mehr oder weniger steiler Anstieg der Eindringkraft zu beobachten. Im weiteren Verlauf schließt sich in den meisten Fällen (siehe auch Abbildungen 4-13 und 4-14) ein Bereich an, in dem die Kraft langsamer steigt, bis der Prüfkörper die Nähe des Gefäßbodens erreicht. Der schnelle Anstieg der Kurven in diesem Bereich des Diagramms ist nicht sehr aussagekräftig, weil hier die undefinierte Verdichtung des Pulvers gegen den Gefäßboden gemessen wird.

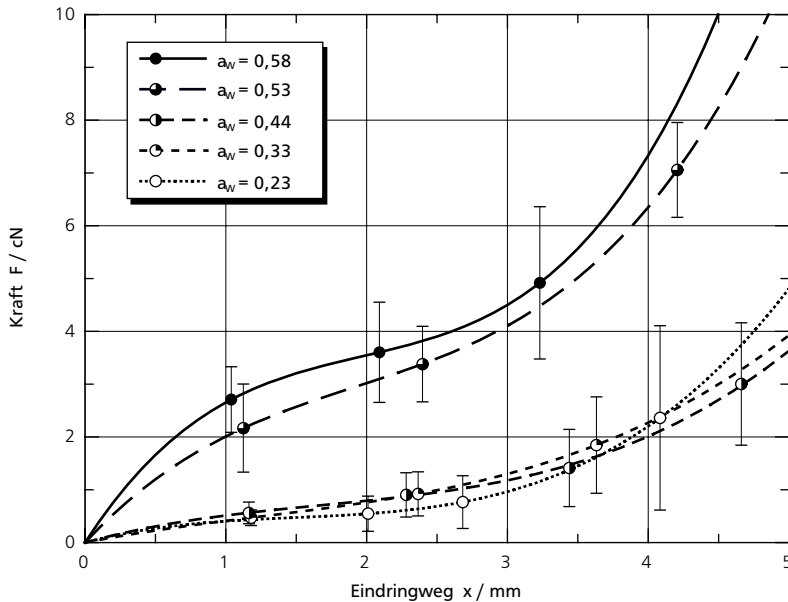


Abbildung 4-12: Kraft-Weg-Kurven für das Eindringen eines 2 mm durchmessenden, zylindrischen Prüfkörpers in konditionierte Saccharose. Aus zehn Versuchen gemittelte, approximierte Kurven und einzelne Meßwerte mit Standardabweichung. Temperatur bei Versuchsdurchführung 25 °C.

Die Verläufe der Kraft-Weg-Kurven werden mit wachsendem  $a_W$ -Wert steiler, d.h. die Verfestigung des Pulvers nimmt zu. Dies ist bei den niedrigen  $a_W$ -Werten nicht ganz klar zu erkennen, doch die Kurven für  $a_W = 0,53$  und  $a_W = 0,58$  setzen sich deutlich ab. Wie sich bei späteren Experimenten herausstellte, kann Saccharose bei sorgfältiger Kontrolle in Atmosphären bis zu  $a_W = 0,75$  konditioniert werden. Voraussetzung ist allerdings, daß dem frisch gemahlene Material in einer Vor-konditionierungsphase im Vakuumtrockenschrank zuerst alle Feuchtigkeit entzogen wird, die in den während des Mahlens entstehenden amorphen Schichten enthalten ist. Auf die Notwendigkeit dieser Konditionierung von gemahlene Zucker weist bereits ROTH (1975) hin.

Die Kraft-Weg-Verläufe für Fructose zeigen einen ähnlichen Verlauf wie die Kurven für Saccharose (siehe Abbildung 4-13). Allerdings setzt sich bereits die Kurve für  $a_W = 0,44$  deutlich nach oben ab. Bei  $a_W = 0,53$  ist die Schüttung schon weitgehend verfestigt und die Näherungskurve entartet zu einer steilen Geraden. Pulverförmige Fructose zeigt also insgesamt bei gegebener Wasseraktivität stärkere Kohäsion als Saccharose. Eine mögliche Erklärung hierfür ist die Sorptionsisotherme von Fructose, die oberhalb derjenigen von Saccharose verläuft (siehe Anhang II). Bei gleichem  $a_W$ -Wert enthält demnach Fructose mehr Wasser als

Voragglomeration

Saccharose. Sobald die sich auf den Partikeln bildenden Lösungshüllen freibewegliche Oberflächen haben, verstärkt der Mechanismus der Flüssigkeitsbrückenbildung die Haftkräfte erheblich (vergl. Kapitel 2).

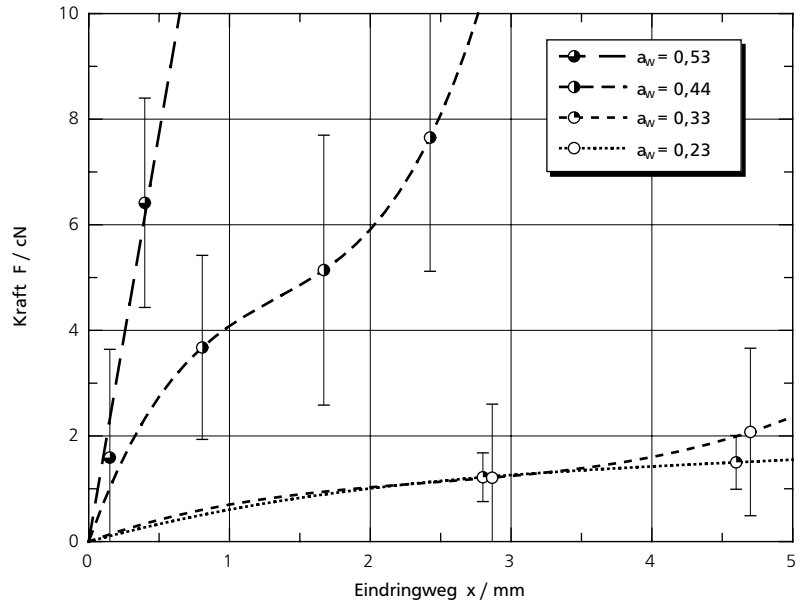


Abbildung 4-13: Kraft-Weg-Kurven für das Eindringen eines 2 mm durchmessenden, zylindrischen Prüfkörpers in konditionierte Fructose. Aus zehn Versuchen gemittelte, approximierte Kurven und einzelne Meßwerte mit Standardabweichung. Temperatur bei Versuchsdurchführung 25 °C.

Das Diagramm für Xylitol (siehe Abbildung 4-14) zeigt unerwarteterweise bereits bei niedrigen  $a_w$ -Werten eine sehr starke Verfestigung des Pulvers. Es wurden höhere Eindringkräfte als bei Fructose gemessen.

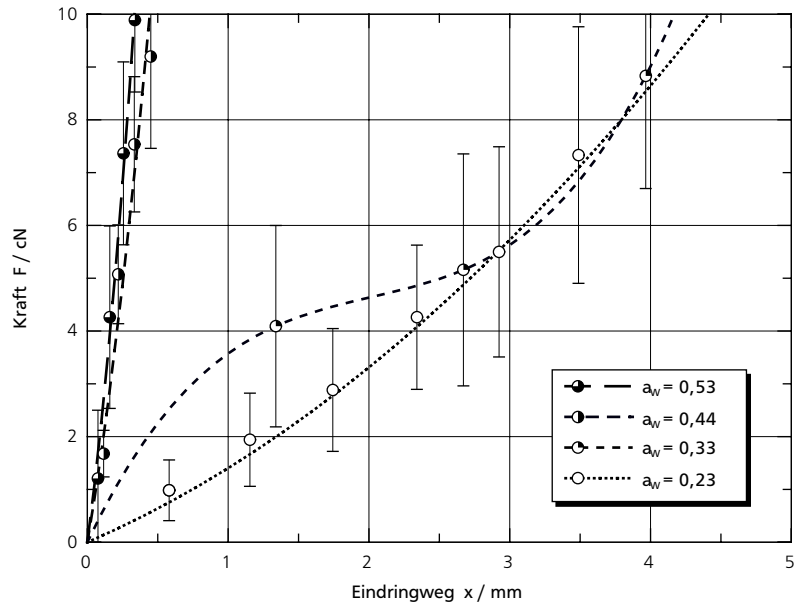


Abbildung 4-14: Kraft-Weg-Kurven für das Eindringen eines 2 mm durchmessenden, zylindrischen Prüfkörpers in konditioniertes Xylitol. Aus zehn Versuchen gemittelte, approximierte Kurven und einzelne Meßwerte mit Standardabweichung. Temperatur bei Versuchsdurchführung 25 °C.



Die Tatsache, daß die Sorptionsisotherme von Xylitol unterhalb der von Fructose verläuft, läßt den Schluß zu, daß der Wassergehalt nicht der einzig ausschlaggebende Einflußfaktor für die Verfestigung des gemahlene Pulvers während der Konditionierung ist.

Die gemessenen Kraft-Weg-Kurven wurden mit der folgenden empirischen Gleichung angenähert, die bei allen Versuchen geeignet war, den Kraft-Weg-Verlauf im gesamten Meßbereich gut zu beschreiben ( $F$  = Eindrückkraft,  $x$  = Eindringweg):

$$F = a_1 \cdot (1 - e^{-a_2 \cdot x}) + a_3 \cdot e^{x - a_4} \quad (4-1)$$

Es handelt sich hierbei um eine Größengleichung, deren Parameter für die Wegeinheit mm und die Krafteinheit cN ermittelt wurden.

Um die in den Abbildungen 4-12 bis 4-14 dargestellten Näherungskurven für Saccharose, Fructose und Xylitol untereinander vergleichen und mit dem Verhalten der Stoffe bei der Voragglomeration in Beziehung setzen zu können, wurde die Kurvensteigung am Koordinatenursprung berechnet. Diese ergibt sich nach Ableiten von Gleichung 4-1 und Einsetzen von  $x = 0$  zu:

$$\left. \frac{dF}{dx} \right|_{(x=0)} = a_1 \cdot a_2 + a_3 \cdot e^{-a_4} \quad (4-2)$$

Abbildung 4-15 zeigt die berechneten Werte von  $dF/dx_{(x=0)}$  als Funktion der Wasseraktivität, bei der das Versuchsmaterial konditioniert wurde. Da für die Auftragung die Einheit  $N \cdot m^{-1}$  gewählt wurde, unterscheiden sich die Werte um den Faktor 10 von den nach Gleichung 4-2 berechneten Werten.

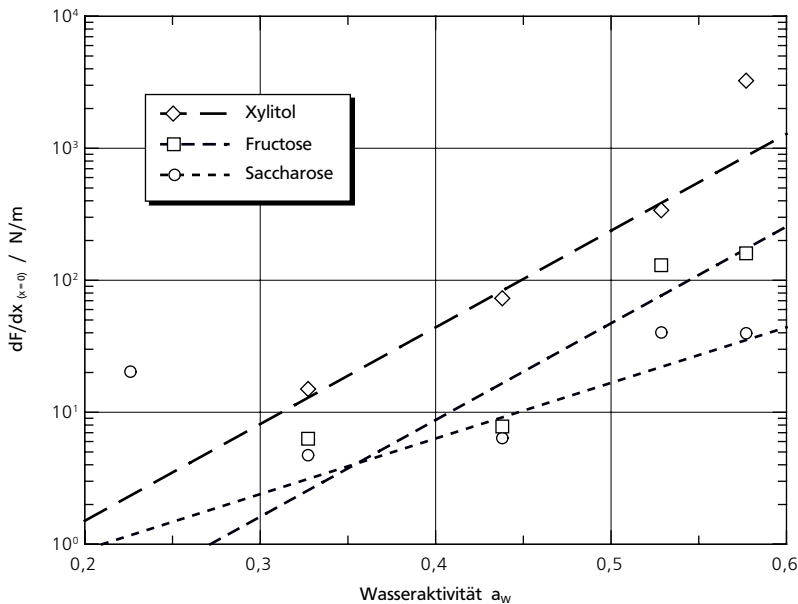


Abbildung 4-15: Nach Gl. 4-2 berechnete Anfangssteigungen der Kraft-Weg-Kurven aus Abbildung 4-12 bis 4-14.

Ein Vergleich der in Abbildung 4–15 dargestellten Kurvenverläufe mit der Eignung der Pulver für die Voragglomeration ergab, daß ein Wert von  $dF/dx_{x=0}$  von  $100 \text{ N} \cdot \text{m}^{-1}$  in etwa die Grenze für eine Verarbeitung mit dem Wälzdruckkompaktierer (siehe Abschnitt 4.2.2) darstellt. Bei höheren Werten – hervorgerufen durch eine zu hohe Wasseraktivität im Sorbostaten – verfestigt sich das Pulver während des Konditionierens stark, was sich darin äußert, daß der Prüfkörper kaum noch eindringen kann.

Falls das Pulver nicht durch Wälzdruckkompaktieren, sondern auf einer Vibrationsförderrinne voragglomert wird (siehe Abschnitt 4.2.3), muß bei deutlich niedrigeren Gutsfeuchten bzw. Wasseraktivitäten gearbeitet werden. Der Wert von  $dF/dx_{x=0}$  liegt hier eher in der Größenordnung von  $10 \text{ N} \cdot \text{m}^{-1}$ .

Auf der Grundlage der Ergebnisse der Eindrückversuche war es möglich, für die folgenden Versuchsreihen zur Voragglomeration geeignete Konditionierungsbedingungen für Saccharose, Fructose und Xylitol auszuwählen. Die Methode der Pulverbefeuchtung in modifizierten Trockenschränken (siehe Abbildung 4–11) erlaubte die Konditionierung des Versuchsmaterials im kg-Maßstab.

Die definierte Beeinflussung der Kohäsionsneigung ermöglichte es auch, die Abhängigkeit der Trockenagglomeratbildung von den im Pulver herrschenden Haftkräften mit verschiedenen Dosiergeräten unter Einsatz der drei hauptsächlich interessierenden Modellsubstanzen zu studieren. Ansonsten wäre die Verwendung anderer, von der Praxis der Lebensmittel- oder Pharmatechnik weiter entfernter Modellsysteme erforderlich gewesen.

Fazit der Eindrückversuche ist, daß Xylitol bei gegebener Wasseraktivität die stärksten interpartikulären Haftkräfte zeigt, gefolgt von Fructose und Saccharose. Bei den in den Abschnitten 4.2.2 und 4.2.3 beschriebenen Experimenten zur definierten Voragglomeration konditionierter Pulver zeigte sich, daß Saccharose in einem weiten  $a_w$ -Bereich konditioniert und gehandhabt werden kann, während bei den beiden anderen Substanzen üblicherweise Wasseraktivitätswerte von 0,4 bis 0,5 nicht überschritten werden dürfen. Bei höheren Temperaturen könnte sich dieses Problem noch verschärfen, da Fructose (wie Saccharose) mit steigender Temperatur bei gegebenem  $a_w$ -Wert mehr Wasser adsorbiert (*Anomalie der Sorptionsisothermen*, vergl. LONCIN und WEISSER, 1977) und sowohl Fructose als auch Xylitol deutlich niedrigere Schmelzpunkte als Saccharose besitzen.

### Messung der Zugfestigkeit geringverdichteter Pulverschüttungen

Die Messungen mit der in Abschnitt 3.1.4 beschriebenen, modifizierten Zugtischapparaturlieferten, wie bereits erwähnt, eher qualitative Aussagen über das Verhalten der Pulver. Es wurden Versuchsserien mit gemahlener Saccharose, Fructose und Xylitol durchgeführt (GEORGESCU, HOGKAMP und SCHUBERT, 1996).

Prinzipiell zeigten sich die erwarteten Abhängigkeiten der Zugfestigkeit von bestimmten Einflußgrößen: Die Zugfestigkeit stieg bei allen durchgeführten Versuchsserien mit dem Wassergehalt des Materials und mit dem Verdichtungsdruck an (siehe Abbildung 4-16).

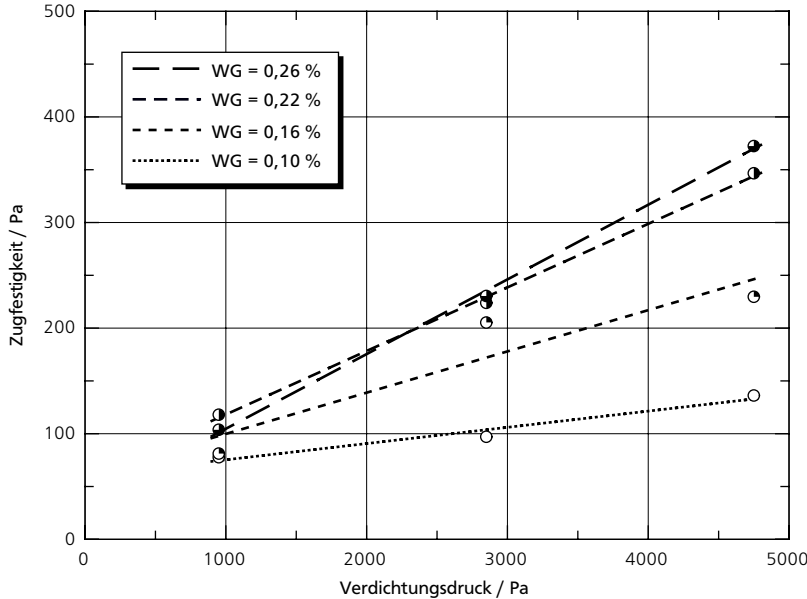


Abbildung 4-16: Zugfestigkeit einer ungefähr 5 mm hohen Schicht aus gemahlener, konditionierte Fructose bei unterschiedlichen Wassergehalten als Funktion des Verdichtungsdrucks (Mittelwerte aus 5 Messungen und Ausgleichskurven).

Es zeigten sich außerdem auch reproduzierbare Unterschiede zwischen den drei Versuchsmaterialien, die jedoch wegen unterschiedlicher Partikelgrößenverteilungen nicht quantitativ ausgewertet wurden. Generell lag die Zugfestigkeit von Saccharoseschüttungen bei gegebenem Wassergehalt deutlich niedriger als bei den beiden anderen Stoffen, obwohl hier die kleinste mittlere Partikelgröße vorlag. Die höchsten Zugfestigkeiten wurden mit Fructose gemessen.

Als unbefriedigend erwies sich erstens, daß die Messungen aufgrund der Konstruktion der Versuchsanlage nicht bei vorgegebener Porosität der Schüttungen durchgeführt werden konnten. Zweitens war es aus konstruktiven Gründen ebenfalls nicht möglich, Preßdrücke in der Größenordnung der Drücke in der Verdichtungszone des hauptsächlich für die Agglomerationsversuche eingesetzten Wälzdruckkompaktierers aufzubringen. Drittens wäre für eine Messung frei von zufälligen Umgebungseinflüssen die Durchführung aller Arbeitsgänge unter kontrollierter Atmosphäre erforderlich.

Aus diesen Gründen haben die Meßergebnisse der Zugversuche nur qualitativen Charakter und ergaben dementsprechend keine neuen Gesichtspunkte. Die im Eindrückversuch gewonnenen Erfahrungen und die Beobachtungen bei der Voragglomeration der verschiedenen Pulver mit unterschiedlichen Dosiergeräten wurden jedoch grundsätzlich bestätigt.

## Messung der Haftkraft von Einzelpartikeln an einem Glassubstrat

Zur Bestimmung der Hafteigenschaften einzelner Partikeln der drei Versuchsmaterialien Saccharose, Fructose und Xylitol wurden für jede Substanz zwei Serien von Zentrifugerversuchen nach der in Abschnitt 3.1.4 beschriebenen Methode an der TU Freiberg durchgeführt. Der Einfluß unterschiedlicher Wassergehalte sollte dabei durch Konditionieren des Versuchsmaterials bei unterschiedlichen Wasseraktivitäten ermittelt werden.

Wie sich erst bei der Auswertung zeigte, wäre jedoch eine größere Zahl von Versuchen erforderlich gewesen, um quantitative Aussagen über die Haftneigung der untersuchten Substanzen machen zu können. Während der Experimente stand außerdem kein Gerät zur Bestimmung des Wassergehalts zur Verfügung, so daß die gemessenen Haftkräfte, bzw. Mittelwerte der Haftkraftverteilungen, nur als Funktion der Wasseraktivität im Konditionierungsgefäß aufgetragen werden können (siehe Abbildung 4–17).

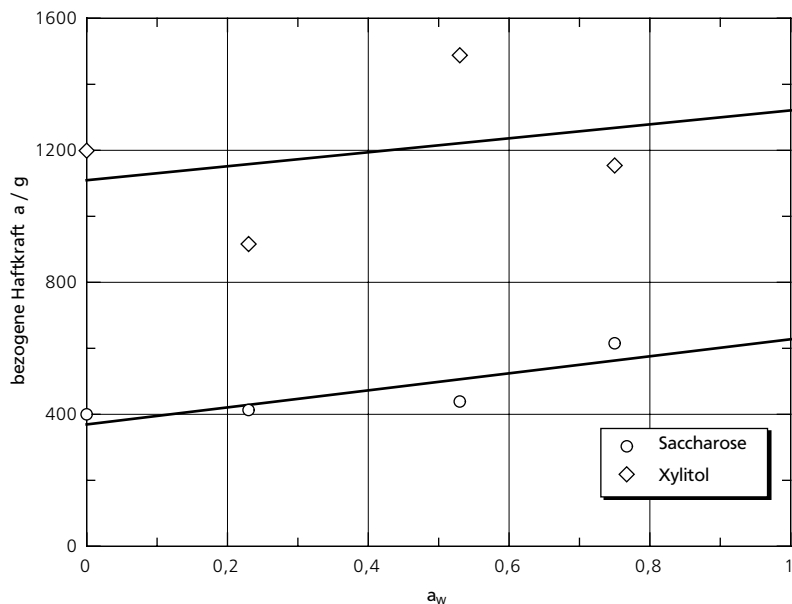


Abbildung 4–17: Haftkraft von annähernd monodispersen, etwa  $70\ \mu\text{m}$  durchmessenden Saccharose-, Fructose- und Xylitolpartikeln an Glas, bezogen auf die Gewichtskraft. Mittelwerte aus 2 Versuchsserien und Ausgleichsgeraden. Feststoffdichte  $\approx 1.600\ \text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ , relative Luftfeuchte während der Versuche  $\approx 0,4$ .

Bedauerlicherweise lagen die Ergebnisse für Fructose (hier nicht dargestellt), abgesehen vom Meßwert für vakuumgetrocknetes Pulver, in keiner Weise den Erwartungen entsprechend. Die im Vergleich zu den beiden anderen Stoffen sehr viel höheren Haftkräfte der Xylitolpartikeln überraschen ebenfalls. Nur tendenziell stimmt dieses Ergebnis mit den Eindruckversuchen an konditionierten Pulverproben überein, bei denen ebenfalls für Xylitol die höchsten Kräfte gemessen wurden (s.o.). Bei Saccharose und Xylitol steigt die Haftkraft erwartungsgemäß mit der Wasseraktivität, und damit dem Wassergehalt an.

Abgesehen von der Möglichkeit einer fehlerhaften Probenkonditionierung ist zu berücksichtigen, daß die Zentrifugierversuche zeitaufwendig waren. Falls die konditionierten Partikeln je nach Substanzart während eines Versuchs verschieden schnell auf die Umgebungsatmosphäre reagierten, konnte dies zu nicht nachvollziehbaren Ergebnissen führen.

#### 4.2.2 Wälzdruckkompaktieren

Für die aufgrund der Erfahrungen mit der Strahlagglomerationsapparatur von SCHUCHMANN (1993) neukonstruierte Technikumsanlage wurde eine zuverlässige, reproduzierbar einzustellende Dosiereinrichtung benötigt. Zu diesem Zweck wurde bei den ersten Versuchen ein kleines Silo mit einer Austragshilfe aus zwei gegensinnig rotierenden Moosgummiwalzen verwendet. Dieses Gerät erzeugte den gewünschten, gleichmäßigen Pulvermassenstrom. Meßergebnisse wiesen außerdem auch auf eine definiertere Trockenagglomeration des Versuchsguts hin als z.B. bei einer Vibrationszuteilrinne.

Daraufhin wurde eine größere Ausführung dieses Geräts als Niederdruck-Walzenkompaktierer gebaut. Mit diesem Gerät wurden einerseits Agglomerationsversuche in der Strahlagglomerationsanlage durchgeführt, es wurde jedoch auch zum Studium der Trockenagglomeratbildung unterschiedlicher Pulver bei variierendem Wassergehalt verwendet. Im folgenden wird dieses Gerät auch als „Walzendosiergerät“ bezeichnet.

#### Beschreibung des verwendeten Kompaktierers

Das in Abbildung 4–18 dargestellte Walzendosiergerät verfügt über zwei Walzen von 80 mm Durchmesser und 130 mm Länge. Die Walzenmäntel sind auswechselbar, bei den hier vorgestellten Versuchen waren jedoch ausschließlich angeraute Aluminiummäntel montiert (Diagonalriffelung 0,5 mm Tiefe). Eine der Walzen ist verschiebbar gelagert und wird mit einer Anpreßkraft von etwa 500 N gegen einen verstellbaren Anschlag gedrückt. Die Position dieses Anschlags legt die lichte Weite des Walzenspalts im Bereich zwischen 0,5 und 4 mm fest.

Im Normalbetrieb wird der zwischen den Walzen eingezogene Pulverstreifen beim Durchgang bis auf die eingestellte Spaltweite verdichtet. Bei sehr kohäsivem Material weicht allerdings die Loswalze seitlich aus, wenn die zur Verdichtung erforderliche Kraft größer als die Federkraft ist. In diesem Fall wird das Material weniger stark kompaktiert.

Die verschiebbare Lagerung einer Walze dient also bei dieser Konstruktion hauptsächlich zum Schutz des Antriebs (stark untersetzter Gleichspannungsmotor) vor Überschreiten des maximal zulässigen Drehmoments. Festwalze und Loswalze sind über Zahnräder direkt gekoppelt, so daß sie stets mit exakt gleicher Drehzahl rotieren.

## Voragglomeration

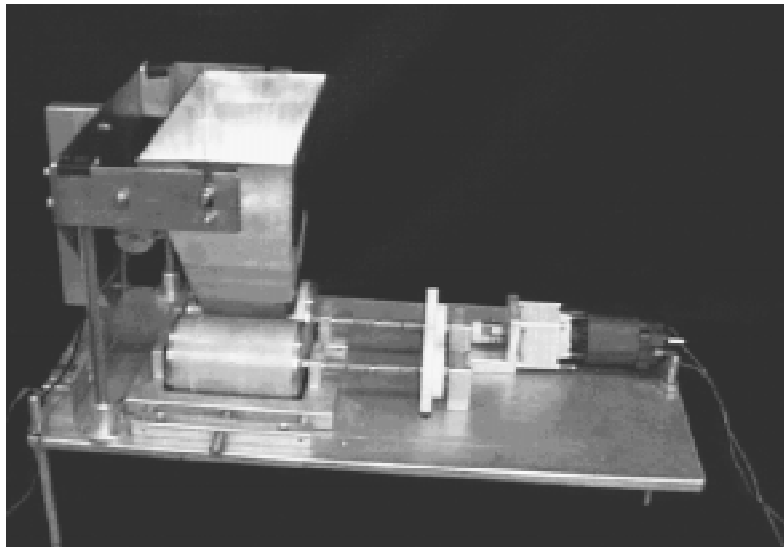


Abbildung 4-18: Fotografie des für die Agglomerationsversuche hauptsächlich verwendeten Wälzdruckkompaktierers (Funktionsprinzip siehe Abbildung 4-2).

Das Pulversilo hat ein Volumen von etwa 2,5 l und ist mit einem Unwuchtantrieb ausgerüstet, um auch schlechtfließende Materialien handhaben zu können. An der Auslauföffnung befinden sich verschiebbare Verlängerungen der Silowände. Es handelt sich dabei um PTFE-Scheiben, mit deren Hilfe die Breite des Auslaufs reduziert werden kann, ohne den Anstellwinkel der Silowände zu verändern oder ein Fließhindernis aufzubauen. Die Breite des Auslaufs wurde bei den Versuchen üblicherweise auf 8–10 mm eingestellt.

Zur Bestimmung des Massenstroms des Pulvers dient eine DMS-Wägezelle des Typs *PW 2-2* der Firma *Hottinger Baldwin Messtechnik*. Das Pulversilo ist mit Kugelhäufchen auf zwei Führungsstäben vertikal reibungsfrei verschiebbar gelagert. Sein Gewicht wird über ein Einpunktlager auf die Wägezelle abgeleitet. Diese Anordnung ermöglicht es, das Gewicht der Pulvervorlage auch bei laufendem Unwuchtantrieb zu messen und aus einem Schreiberprotokoll den Massenstrom zu ermitteln.

Der drehzahlregulierbare Antrieb des Geräts erlaubt Umfangsgeschwindigkeiten der Walzen bis etwa  $0,45 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ . Bei dieser Umfangsgeschwindigkeit ergibt sich bei 3 mm Spaltbreite und 10 cm Spaltlänge ein theoretischer Volumenstrom von  $0,5 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ . Mit einer Porosität des Pulvers an der engsten Stelle des Spalts von 0,5 wäre hierbei für Saccharose (Feststoffdichte  $\approx 1.600 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) ein Massenstrom von  $400 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$  möglich.

Die *charakteristische Umfangsgeschwindigkeit* der Walzen, bei der die Fliehbeschleunigung an der Mantelfläche gleich der Erdbeschleunigung ist, liegt bei  $0,63 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ . Unterhalb dieser Umfangsgeschwindigkeit ist der Feststoffdurchsatz der Umfangsgeschwindigkeit annähernd proportional (LUBJUH, 1992), so daß unabhängig vom eingestellten Durchsatz in etwa die gleiche Verdichtung erreicht wird. Bei den in diesem Kapitel vorgestellten Versuchen zur Trockenagglomeration wurden nur Massenströme  $\leq 180 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$  eingestellt.

## Betriebsverhalten des Kompaktierers

## Experimente zur Voragglomeration

Eine Serie von Vorversuchen (siehe Abbildungen 4–19 und 4–20) diente zur Klärung der Frage, ob die Partikelgrößenverteilung der erzeugten Trockenagglomerate vom Ort der Entstehung (in Walzenlängsrichtung) und vom eingestellten Pulvermassenstrom abhängt. Bei allen Versuchen wurde mit gemahlener, vakuumgetrockneter Saccharose gearbeitet. Der sehr geringe Wassergehalt des direkt nach Entnahme aus dem Trockner verarbeiteten Pulvers ist der Grund dafür, daß die Trockenagglomerate relativ klein waren. Dies wird jedoch durch den Vorteil der bei allen Versuchen weitgehend gleichen Hafteigenschaften der Partikeln ausgeglichen.

Es wurden zunächst drei Teilmassenströme an unterschiedlichen Stellen entlang der halben Walzenlänge untersucht: am Walzenrand (5 % der Gesamtwalzenlänge), bei  $\frac{1}{4}$  der Gesamtwalzenlänge und in der Mitte der Walzen.

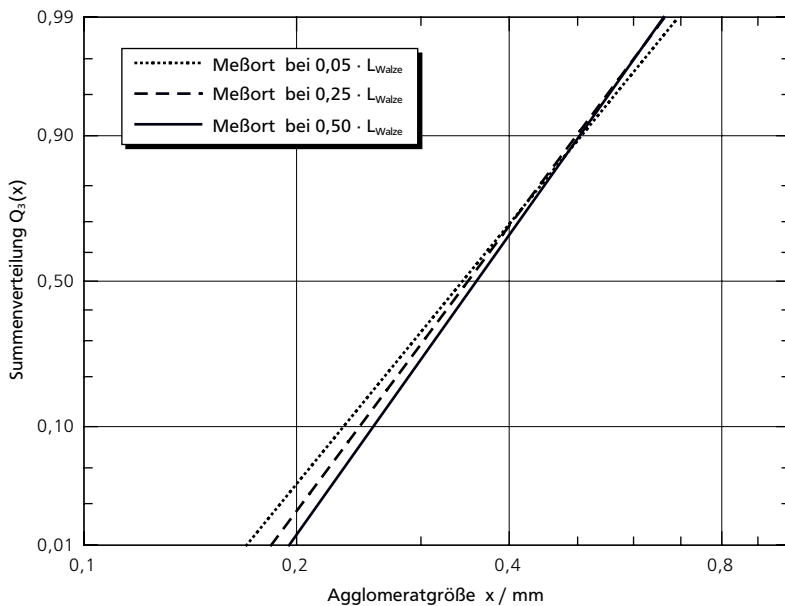


Abbildung 4–19: Partikelgrößenverteilungen von Saccharose-Trockenagglomeraten aus dem Walzendosiergerät an drei unterschiedlichen Meßorten in Walzenlängsrichtung. Meßmethode: Bildanalyse.

Aus den in Abbildung 4–19 dargestellten Volumensummenverteilungen geht hervor, daß wenn überhaupt nur ein sehr geringer Ortseinfluß vorliegt. Tendenziell scheinen in der Walzenmitte etwas größere Agglomerate zu entstehen. Da die Unterschiede zwischen den drei Kurven jedoch noch im Bereich der Meßgenauigkeit liegen, wird im folgenden davon ausgegangen, daß an jedem Ort entlang der Horizontalausdehnung des Pulverschwarms die gleiche Partikelgrößenverteilung vorliegt. Bei den Modellrechnungen zur Agglomeration (siehe Abschnitt 5.4) wird diese Annahme ebenfalls zugrundegelegt.

Messungen der Trockenagglomeratgröße bei verschiedenen Pulvermassenströmen zeigten ebenfalls keinen signifikanten Einfluß dieses Parameters im untersuchten Bereich (Massenströme bis  $180 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ ). Dies bestätigte die Annahme, daß die Umfangsgeschwindigkeiten der Walzen so weit unterhalb des kritischen

Voragglomeration

Bereits lagen, daß stets unter gleichen Einzugsbedingungen gearbeitet wurde. Abbildung 4-20 zeigt die entsprechenden Versuchsergebnisse.

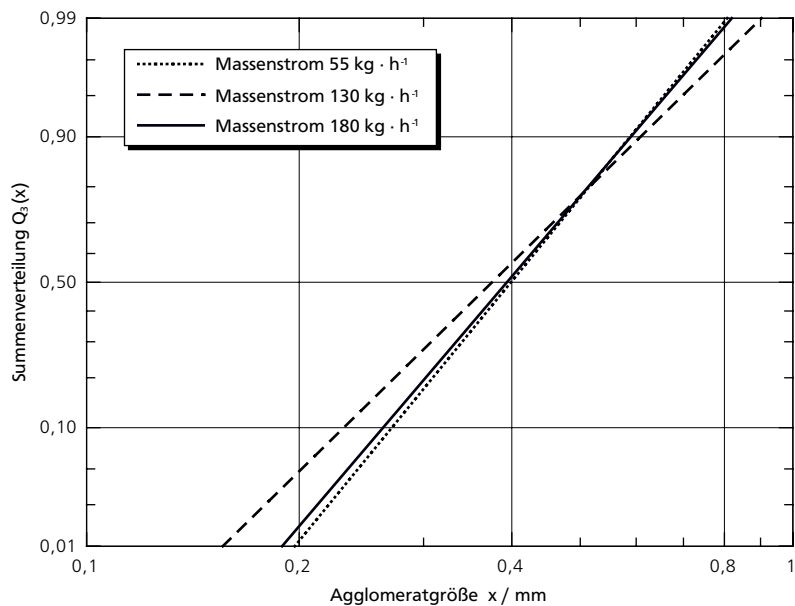


Abbildung 4-20: Partikelgrößenverteilungen von Saccharose-Trockenagglomeraten bei drei verschiedenen Dosiergeschwindigkeiten des Kompaktierers. Meßmethode: Bildanalyse.

In Abbildung 4-21 sind die Partikelgrößenverteilungen unterschiedlich fein vermahlener Saccharoseproben dargestellt. Versuche mit diesen Pulvern dienen zur Untersuchung der Abhängigkeit der Trockenagglomeratgröße von der Größe der Primärpartikeln.

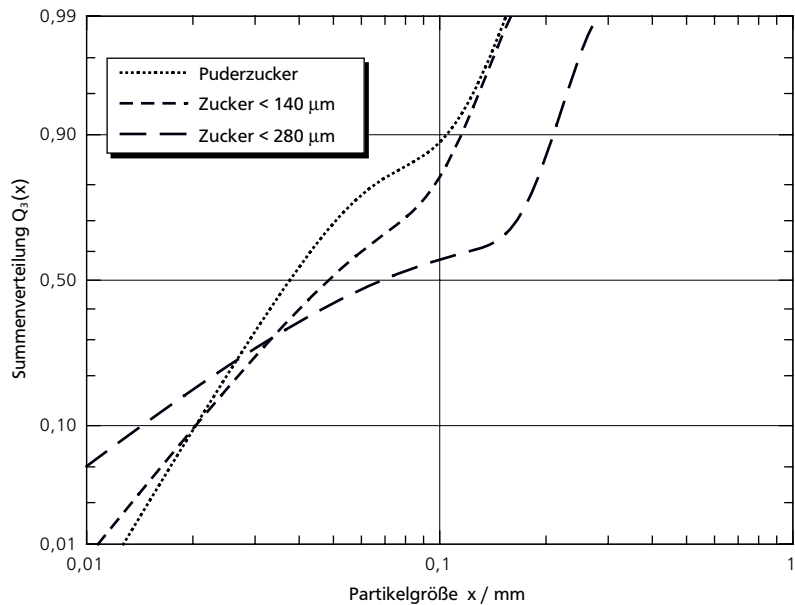


Abbildung 4-21: Partikelgrößenverteilungen von unterschiedlich fein gemahlener Saccharose (Puderzucker: Handelsprodukt). Meßmethode: Laserbeugung.



Puderzucker wurde als handelsübliche Ware von der Firma *Südzucker* bezogen. Die beiden anderen Pulver wurden durch Mahlen von kristalliner Saccharose (Streuzucker, Ausgangspartikelgröße  $\approx 0,8$  mm) und Absieben mit der angegebenen Siebmaschenweite hergestellt. Es handelt sich also um sehr ähnliche Pulver, die sich nur im Gehalt an Partikeln zwischen 140 und 280  $\mu\text{m}$  unterscheiden.

Nach RUMPF (Gleichung 2–12) gilt, daß bei gegebener Porosität und gegebener Haftkraft je Kontaktstelle die Zugfestigkeit eines Haufwerks umgekehrt proportional zum Quadrat der Partikelgröße ist. Die Haftkräfte müssen superponierbar sein, was bei Anwesenheit adsorbierter Flüssigkeitsschichten auch für Trockenagglomerate näherungsweise gilt (s. Abschn. 2.1.3). Die Haftkraft wiederum ist in vielen Fällen (theoretisch) proportional der Partikelgröße. Daraus folgt, daß die Zugfestigkeit eines Haufwerks mit fallender Partikelgröße im Modellfall proportional zunimmt. Wie dieser Zusammenhang tatsächlich aussieht, kann allerdings für reale Stoffsysteme nicht vorhergesagt werden. Unter der Annahme, daß die Größe der im Walzendosiergerät entstehenden Trockenagglomerate von der Zugfestigkeit des zugeführten Schüttguts abhängt, kann erwartet werden, daß umso größere Trockenagglomerate entstehen, je feindisperser das Ausgangsmaterial ist. Hierbei wird unterstellt, daß sich bei der Verdichtung etwa gleiche Porositäten ergeben.

Die Versuche zur Trockenagglomeration unter Verwendung unterschiedlich feinst vermahlener Pulver zeigten in der Tendenz das erwartete Ergebnis. Abbildung 4–22 zeigt Partikelgrößenverteilungen von Trockenagglomeraten, die bei der Dosierung der drei Ausgangsmaterialien bei einer Spaltweite zwischen den Walzen des Dosiergeräts von 2 mm entstanden.

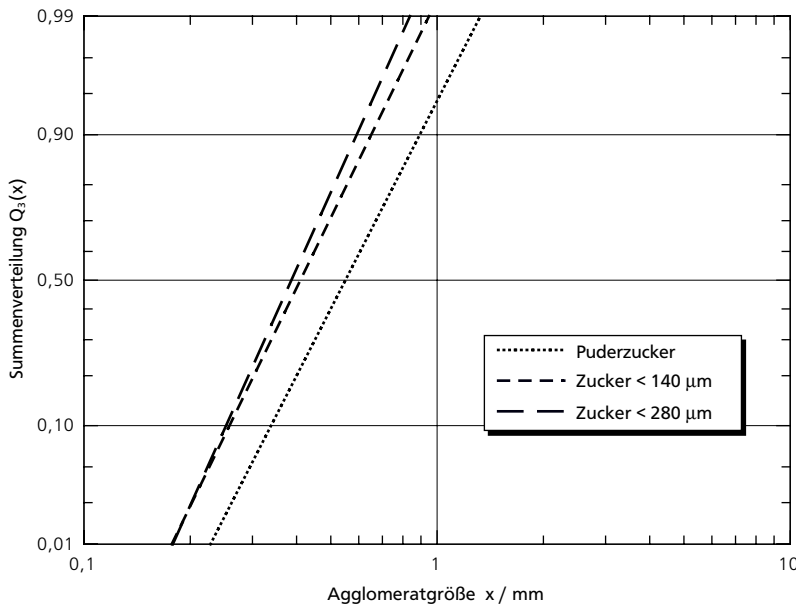


Abbildung 4–22: Partikelgrößenverteilungen von Saccharose-Trockenagglomeraten aus dem Walzendosiergerät für unterschiedlich feines Aufgabegut (Walzenspaltweite 2 mm). Meßmethode: Bildanalyse.

Bei Verwendung von Puderzucker als Ausgangsmaterial ergaben sich deutlich größere Trockenagglomerate als bei den beiden anderen Pulvern, die praktisch

keine Unterschiede bei der Trockenagglomeratbildung zeigten. Dies war anhand der Partikelgrößenverteilungen der Pulver nicht erwartet worden und deutet darauf hin, daß noch andere Faktoren, wie z.B. Primärpartikelform oder Lagerzeit von Bedeutung für die Trockenagglomeration sind.

Aus diesen Ergebnissen wurde der Schluß gezogen, daß sich kleinere Schwankungen bei der Vorbereitung der selbstgemahlene Pulverproben nicht auf die Trockenagglomeration auswirken würden. Solche kleinen Schwankungen können beispielsweise durch unterschiedliche Mühlendurchsätze oder wetterabhängige Luftfeuchtigkeit beim Mahlen hervorgerufen werden.

Die Versuche zur Trockenagglomeration unterschiedlich feiner Pulver wurden bei einer Spaltweite zwischen den Walzen des Dosiergeräts von 3 mm wiederholt, um auch einen möglichen Einfluß dieses Parameters abschätzen zu können. Die entsprechenden Partikelgrößenverteilungen der Trockenagglomerate sind in Abbildung 4-23 dargestellt.

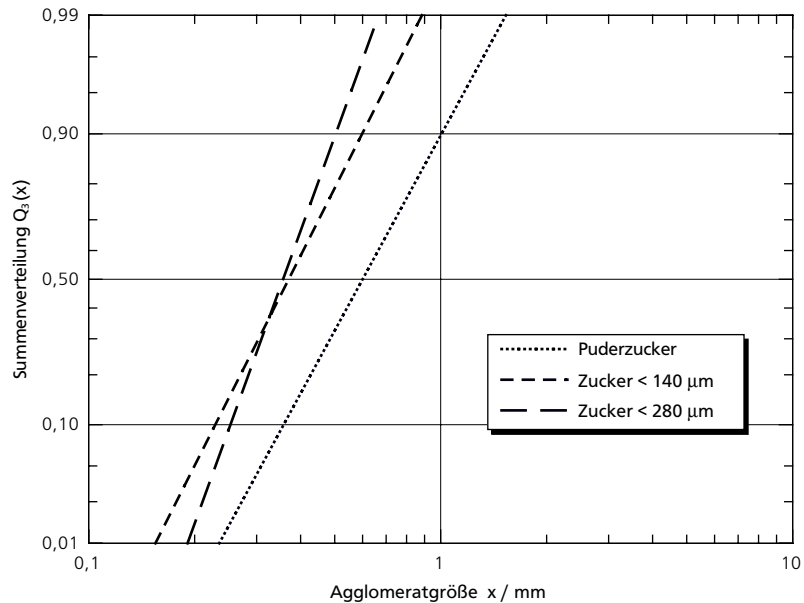


Abbildung 4-23: Partikelgrößenverteilungen von Saccharose-Trockenagglomeraten aus dem Walzendosiergerät für unterschiedlich feines Aufgabegut (Walzenspaltweite 3 mm). Meßmethode: Bildanalyse.

Die durch Mahlen und Sieben aus grober Saccharose hergestellten Pulver zeigten wiederum keinen signifikanten Unterschied bei der Trockenagglomeratbildung, während sich bei Verwendung von Puderzucker als Aufgabegut auch hier deutlich größere Agglomerate bildeten. Die Unterschiede zwischen den Ergebnissen bei 2 und 3 mm Spaltweite sind nicht signifikant.

In allen Fällen lag der Durchmesser der Trockenagglomerate weit unter der Breite des Spalts zwischen den Walzen. Daraus wurde geschlossen, daß zumindest Pulver mit ähnlichem Kohäsionsverhalten wie die untersuchten Proben unabhängig von kleineren Schwankungen der Spaltweite trocken agglomeriert werden können. Im praktischen Betrieb kann sich der Spalt z.B. durch Belagbildung verengen. Bei den folgenden Experimenten wurde die Spaltweite daher auf 3 mm eingestellt.

Nach Abschluß der oben beschriebenen Vorversuche zum Betriebsverhalten des Walzenkompaktierers sollten die nachfolgend vorgestellten Experimente klären, inwieweit sich unterschiedliche Wassergehalte bei Saccharose und anderen Stoffen auf die Trockenagglomeration auswirken. Auf der Grundlage der Ergebnisse der Eindrückversuche wurden für Saccharose, Fructose und Xylitol je vier unterschiedliche Wassergehalte (siehe Abbildung 4–24) in einem sinnvoll erscheinenden Bereich durch Variation der Konditionierungsbedingungen eingestellt.

Hieraus ergaben sich zwölf unterschiedliche Kombinationen aus Stoffart und Wassergehalt. Die zu agglomerierenden Pulverproben wurden durch Mahlen von grobkristallinem Produkt und Absieben von Grobgutpartikeln  $\geq 140 \mu\text{m}$  hergestellt und mehrere Tage konditioniert.

Mit den konditionierten Pulvern wurden jeweils drei Kompaktierungsversuche durchgeführt, die  $x_{50,3}$ -Werte der Partikelgrößenverteilungen der erzeugten Trockenagglomerate bestimmt und gemittelt, um die Ergebnisse statistisch abzusichern. Die gemittelten Werte sind in Abbildung 4–24 als Funktion des Wassergehalts des Pulvers dargestellt. Diese Darstellungsweise wurde gewählt, weil üblicherweise auch in einem praktischen Konditionierungsprozeß der Wassergehalt des Materials die entscheidende Meßgröße wäre. Der Wassergehalt und die Größe der Primärpartikeln des zu agglomerierenden Pulvers wurden unmittelbar vor Versuchsbeginn ermittelt.

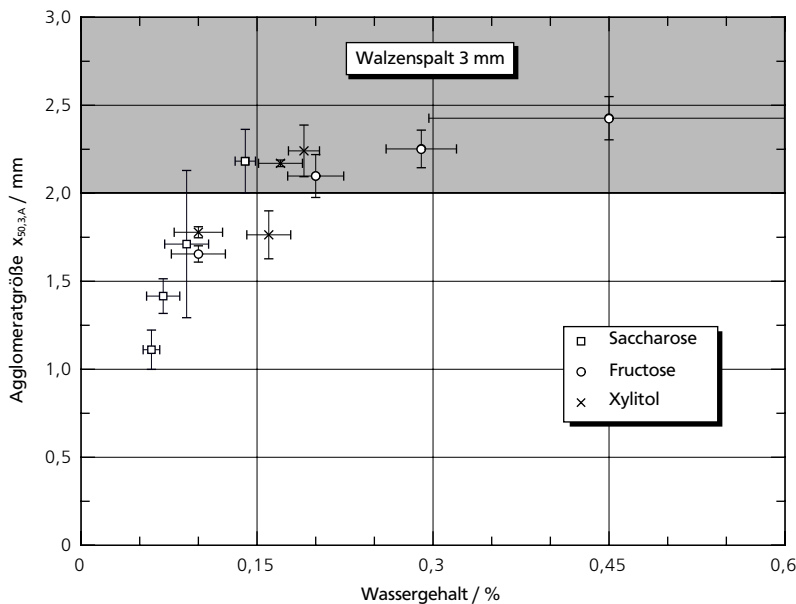


Abbildung 4–24:  $x_{50,3}$ -Werte der Partikelgrößenverteilungen von Saccharose-, Fructose- und Xylitol-Trockenagglomeraten aus dem Walzendosiergerät bei Variation des Wassergehalts des Aufgabeguts (mit Standardabweichungen der Abszissen- und Ordinatenwerte). Betriebstemperatur 25 °C.

Die Lage der Meßpunkte in Abbildung 4–24 scheint anzudeuten, daß keine eindeutigen Unterschiede im Verhalten der drei Stoffe bezüglich des Zusammenhangs zwischen Trockenagglomeratgröße und Gutsfeuchte existieren. Diese Schlußfolgerung hat jedoch keinen Bestand, wenn die Partikelgrößenverteilung der verwendeten gemahlten Pulver in die Betrachtung miteinbezogen wird.

Mittlere Trockenagglomeratgrößen  $\geq 2$  mm (grau unterlegter Bereich in Abbildung 4–24 und 4–26) bei einem Walzenspalt von 3 mm sind kritisch zu betrachten, da hier mit beginnender Schülpenbildung zu rechnen ist.

Die oben beschriebenen Vorversuche hatten zwar ergeben, daß geringfügige Schwankungen in der Partikelgröße des Aufgabeguts keine signifikanten Unterschiede bei der Trockenagglomeration hervorrufen. Die Partikelgrößenverteilungen der einzelnen Proben wichen jedoch bei dieser Versuchsserie teilweise erheblich voneinander ab, sowohl bei der gleichen Substanz als auch insbesondere zwischen Saccharose und den beiden anderen Zuckern. Ursache hierfür sind zum einen unterschiedliche Materialeigenschaften der Substanzen, zum anderen Schwankungen der Mahlbedingungen (Wassergehalt des Mahlguts, Luftfeuchte und -temperatur, Betriebstemperatur der Mühle usw.). Abbildung 4–25 zeigt drei typische Beispiele.

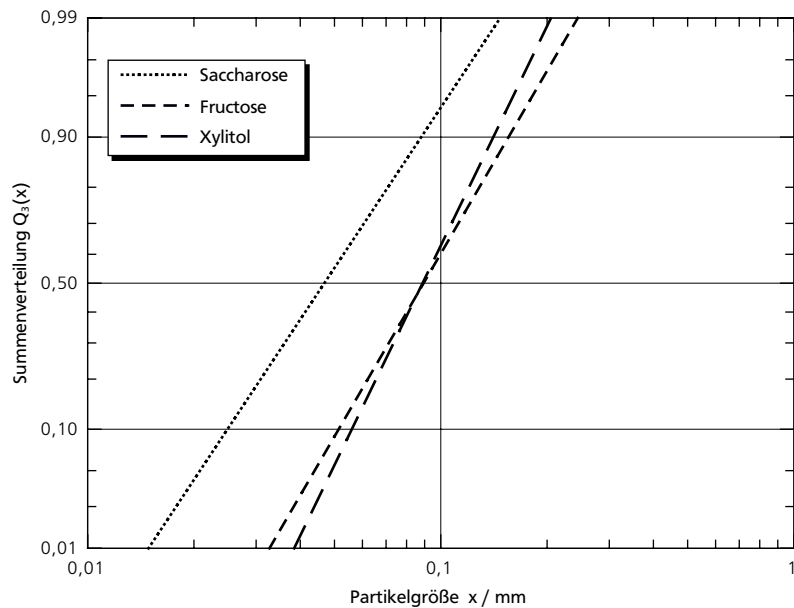


Abbildung 4–25: Beispiele für Partikelgrößenverteilungen von gemahlener Saccharose, Fructose und Xylitol als Aufgabegut für die Trockenagglomeration mit dem Walzendosiergerät. Meßmethode: Laserbeugung.

Allgemein waren die Saccharoseproben deutlich feinkörniger als die Fructose- und Xylitolproben. Bei allen drei Versuchsmaterialien schwankten sowohl der Mittelwert als auch die Breite der Partikelgrößenverteilung des Ausgangsmaterials von Experiment zu Experiment.

Es wurde daher der Versuch unternommen, die Ergebnisse der einzelnen Experimente unter Berücksichtigung der Dispersität des eingesetzten Materials darzustellen. Hierbei wurden folgende Annahmen getroffen:

- Die mittlere Haftkraft  $F$  sei der Primärpartikelgröße  $x$  proportional.
- Die Zugfestigkeit  $\sigma_z$  im Agglomerat sei der mittleren Haftkraft  $F$  proportional sowie dem Quadrat der Primärpartikelgröße  $x$  umgekehrt proportional,  $\Rightarrow \sigma_z \sim x^{-1}$ .

- Die mittlere Trockenagglomeratgröße sei proportional  $\sigma_z$ ,  $\Rightarrow x_A \sim x^{-1}$ .
- Als maßgebliche Primärpartikelgröße  $x$  sei das vollständige erste Moment der  $q_2$ -Verteilung des Partikelkollektivs  $M_{1,2} = x_{1,2}$  (Sauter-Durchmesser) einzusetzen, vergl. Abschnitt 2.1.4.

Die Meßwerte aus Abbildung 4–24 wurden daraufhin entsprechend umgerechnet, wobei der höchste aufgetretene  $x_{1,2}$ -Wert aller Versuche als Bezugsgröße diente. Der zu diesem Wert gehörende Meßpunkt behielt also den ursprünglichen Wert, während alle anderen Werte im Verhältnis ihrer  $x_{1,2}$ -Werte zum Bezugswert nach unten korrigiert wurden. Das Ergebnis ist in Abbildung 4–26 dargestellt, wobei den Meßpunkten aus Abbildung 4–24 die Resultate weiterer Experimente hinzugefügt wurden. Diese sind ebenfalls im Verhältnis ihrer  $x_{1,2}$ -Werte zum Bezugswert korrigiert.

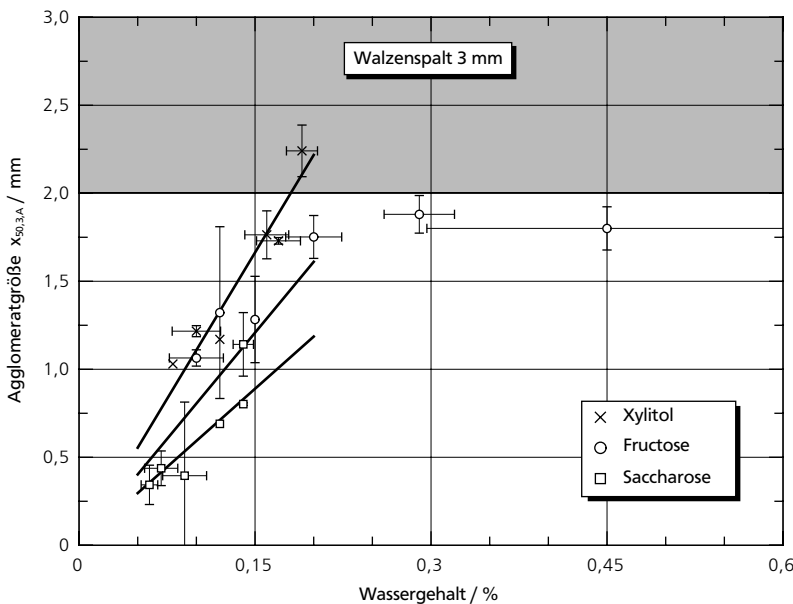


Abbildung 4–26: Im Verhältnis der  $x_{1,2}$ -Werte des Aufgabeguts korrigierte  $x_{50,3}$ -Werte der Partikelgrößenverteilungen von Saccharose-, Fructose- und Xylitol-Trockenagglomeraten aus dem Walzenspaltgerät bei Variation des Wassergehalts des Aufgabeguts (mit Standardabweichungen der Abszissen- und Ordinatenwerte, z.T. Einzelwerte oder gemittelte Werte ohne Standardabweichung in Abszissenrichtung).

In Abbildung 4–26 sind die Meßwerte für die drei Versuchsmaterialien besser voneinander abgegrenzt als in Abbildung 4–24. Ob tatsächlich – wie im Diagramm gezeigt – die mittlere Größe der Trockenagglomerate dem Wassergehalt des Pulvers proportional ist, muß zwar aufgrund der Vielzahl möglicher Einflußgrößen bezweifelt werden. Im Bereich zwischen 0,05 und 0,2 % Wassergehalt, der für diese drei Substanzen auch von praktischer Bedeutung ist, ist dies – und damit die Annahme, die Haftkraft sei dem Wassergehalt proportional – jedoch eine akzeptable Näherung.

Die Tatsache, daß die Meßwerte für Fructose bei 0,29 und 0,45 % Wassergehalt aus diesem Schema fallen, kann mit der starken Haftung von Fructose an den Mantelflächen der Walzen und der hiervon verursachten Verengung des Spalts begründet werden.

Aus diesen Ergebnissen ist zu folgern, daß die drei untersuchten Stoffe sich in ihrer Agglomerierbarkeit grundsätzlich unterscheiden, was durchaus plausibel erscheint. Alle reagieren jedoch in ähnlicher Weise auf Veränderungen des Wassergehalts, was – je nach Standpunkt des Betrachters – als Problem oder als Möglichkeit zur gezielten Einflußnahme gesehen werden kann. Im Bereich bis 0,2 % Wassergehalt ist die mittlere Trockenagglomeratgröße der Gutsfeuchte näherungsweise proportional.

### 4.2.3 Andere Methoden zur Voragglomeration

Das Wälzdruckkompaktieren zur Erzeugung von porösen Agglomeraten mit guten Redispersiereigenschaften ist bislang nicht Stand der Technik. Industriell werden zur Pulverdosierung in Instantisier- bzw. Agglomerieranlagen andere Apparate eingesetzt. Daher wurden auch einige andere Dosiermethoden hinsichtlich der Trockenagglomeration des Aufgabeguts im Vergleich zum Wälzdruckkompaktieren untersucht.

Konkret wurde die Trockenagglomeration mit einer Vibrationsförderrinne, einem vertikal schwingenden Sieb und einer Lochpresse als mögliche Alternative zum Walzendosiergerät untersucht. Als Versuchsmaterial diente gemahlene Fructose mit unterschiedlichen Wassergehalten. Alle Versuchsergebnisse sind untereinander direkt vergleichbar, da alle in diesem Abschnitt vorgestellten Experimente mit Aufgabegut von weitgehend identischer Partikelgröße durchgeführt wurden. Die Partikelgrößenverteilung der verwendeten gemahlene Fructose ist in Abbildung 4-27 dargestellt.

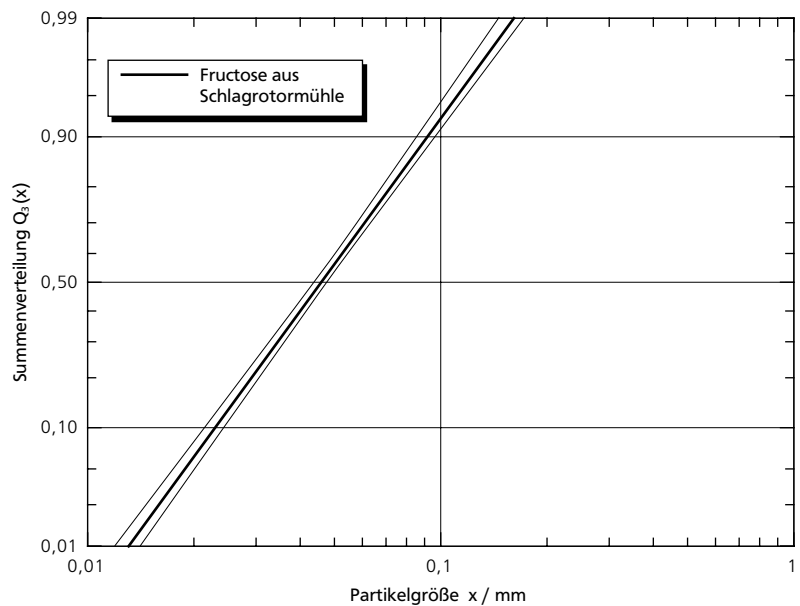


Abbildung 4-27: Partikelgrößenverteilung der für die Voragglomerationsversuche mit Dosierrinne, Schwingsieb und Lochpresse verwendeten Fructose. Meßmethode: Laserbeugung. Näherungsfunktion mit 67 %-Vertrauensbereich.

Wie bei den Experimenten mit dem Walzendosiergerät war hauptsächlich die Größe der beim Dosiervorgang erzeugten Agglomerate von Interesse. Einige Angaben zur Porosität und zur Abriebfestigkeit von Agglomeraten finden sich jedoch im Kapitel 5. Die Partikelgrößenverteilungen der Agglomerate wurden wie bei den im vorigen Abschnitt beschriebenen Versuchen durch Bildverarbeitung mit dem in Abschnitt 3.2.1 beschriebenen Videosystem bestimmt. Weitere Gesichtspunkte waren der erzielbare Massenstrom sowie die Zuverlässigkeit der Geräte. Alle Versuche wurden je dreimal durchgeführt und die Ergebnisse gemittelt.

### Dosieren mit einer Vibrationsförderrinne

Die verwendete Vibrationsförderrinne transportiert das Material durch periodisch aufeinanderfolgende Wurfbewegungen mit kleiner Amplitude. Die Rinne ist schwingfähig gelagert und von rechteckigem Querschnitt. Sie wird durch Einkopplung eines magnetischen Wechselfelds über eine Induktionsspule und einen Eisenanker in Schwingung versetzt (siehe Abbildung 4–28). Größere Vibrationsförderer, wie sie z.B. auch in Industrieanlagen eingesetzt werden, werden auch über Exzenter angetrieben.

Die Förderleistung hängt zum einen von Frequenz und Amplitude der Schwingbewegung ab, zum anderen vom Massenstrom am Auslauf der Pulvorlage. Die Schwingbewegung beeinflusst auch die Agglomeration der Pulverpartikeln auf ihrem Weg entlang der Förderrinne. Am Ende der Rinne zerfällt die Schüttung in Agglomerate bzw. Einzelpartikeln. Eine typische Partikelgrößenverteilung von Trockenagglomeraten, die durch Dosieren von gemahlener Fructose mit der Vibrationsrinne erzeugt wurden, ist in Abbildung 4–29 dargestellt.

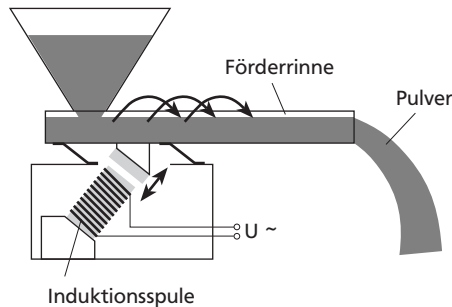


Abbildung 4–28: Schematische Darstellung der Funktionsweise der verwendeten Vibrationsförderrinne.

Bei den hier vorgestellten Versuchen wurde eine Vibrationszuteilrinne des Typs *Retsch DR1000* mit einer 210 mm langen und 40 mm breiten Rinne eingesetzt. Vorversuche ergaben, daß nur unmittelbar vor Versuchsbeginn frisch gemahlene Fructose reproduzierbare Ergebnisse lieferte. Konditioniertes Pulver bildete schon im Auslauf der Vorlage unerwünscht große Agglomerate, die die Rinne unverändert passierten. Auch unkonditionierte Fructose, die frisch gemahlen einige Minuten in einem Vorratsgefäß bis zum Versuchsbeginn lagerte, lieferte Ergebnisse mit großer Streuung.

Daher wurden alle Versuche mit kleinen, unmittelbar vor Versuchsbeginn gemahlene Pulvermengen durchgeführt. Wegen der kleinen, für einen Bildanalyseversuch erforderlichen Menge wurde auf den Vorlagetrichter verzichtet und das Pulver direkt im hinteren Teil der Rinne vorgelegt. Zur Begrenzung des Massenstroms und der Schüttungshöhe wurde die Auslaufhöhe aus dem Vorlagebereich

## Voragglomeration

in den Förderteil der Rinne durch einen Schieber eingeschränkt, der senkrecht so in die Rinne eingepaßt war, daß darunter nur eine lichte Höhe von 8 mm verblieb. Bei einem Förderweg von 120 mm nach dem Schieber und Mittelstellung der Antriebsregelung ergab sich ein Massenstrom von  $13,5 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ .

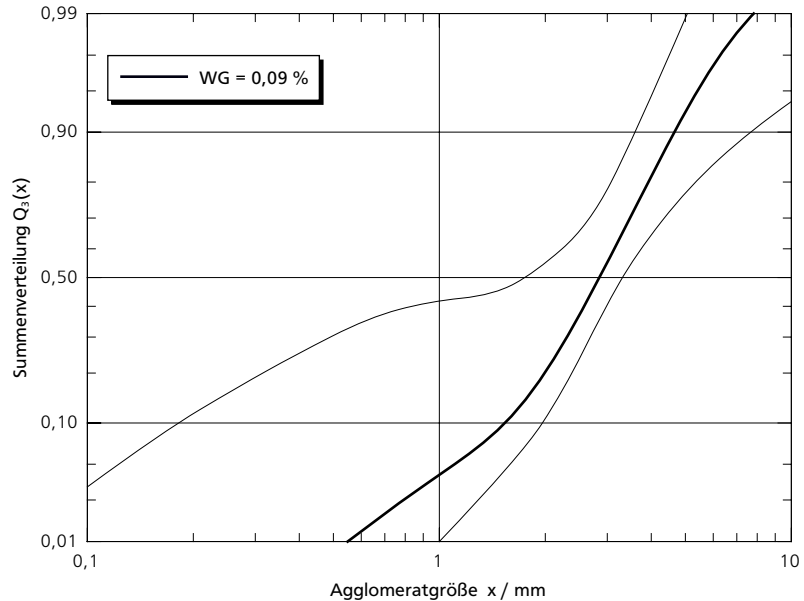


Abbildung 4-29: Partikelgrößenverteilung von auf der Vibrationsförderrinne entstandenen Fructose-Trockenagglomeraten (Auslaufhöhe der Schüttung auf 8 mm begrenzt). Näherungsfunktion mit 67 %-Vertrauensbereich.

Wie in Abbildung 4-29 zu erkennen ist, bildeten sich vergleichsweise große Trockenagglomerate, was aufgrund der kleinen im Pulver wirkenden Kräfte zu erwarten war. Das Partikelkollektiv enthielt kein Feingut unterhalb der für Instantprodukte kritischen Grenze von 0,2 mm. Aus den Versuchsergebnissen, die sich hinsichtlich der Empfindlichkeit bezüglich der Feuchte der Umgebungsluft und der Gefahr der unkontrollierten Agglomeration mit früheren Erfahrungen deckten, wurde die Schlußfolgerung gezogen, daß feindisperse Pulver bei Dosierung mit einer Vibrationsförderrinne große, augenscheinlich sehr lockere Trockenagglomerate bilden. Dieser Vorgang reagiert sensibel auf Schwankungen in der Kohäsionsneigung des Pulvers. Versuche mit Saccharose (hier nicht abgebildet) ergaben, entsprechend den Erfahrungen mit dem Walzendosiergerät, kleinere mittlere Agglomeratgrößen. Der breite Vertrauensbereich in Abbildung 4-29 ist auf die Verwendung einer fünfparametrischen Approximationsfunktion zurückzuführen.

## Dosieren mit einem Schwingsieb

Die Trockenagglomeration im Schwingsieb oder -trog (vergl. Abschnitt 4.1.3 und GENERAL FOODS CORPORATION, 1985) wird durch periodische vertikale Schwingungen mit konstanter Amplitude bewirkt. Die Pulverschüttung wird dabei verdichtet, und Agglomerate fallen durch die Maschen des Siebs bzw. Löcher im



Trogboden. Vorversuche zeigten, daß die jeweils günstigste Amplitude von Fall zu Fall bestimmt werden muß. Ist sie zu niedrig, werden kaum Agglomerate gebildet, und der Durchgang ist gering. Ist sie zu hoch, werden entstehende Agglomerate durch die starke Vibration gleich wieder zerstört.

Alle hier vorgestellten Versuche wurden mit einer Vertikalsiebmaschine des Typs *Retsch VE1000* mit einem Prüfsieb der Maschenweite 2,36 mm (DIN 4188) durchgeführt. Bei dieser Maschine wird die Amplitude elektronisch geregelt. Um einen hinreichend großen Freiraum für die Videoaufnahmen der erzeugten Trockenagglomerate zu haben, wurde das Sieb in eine speziell angefertigte Halterung eingepaßt und mit dieser in die Maschine eingespannt (siehe Abbildung 4-30). Damit die Partikeln nur im Tiefenschärfbereich der Kamera durch die Beobachtungszone fielen, enthielt der Siebboden eine Abdeckung, die das Austreten von Partikeln nur in einem Bereich von 10 mm · 80 mm (parallel zur Maschenaufrichtung des Siebgewebes) erlaubte.

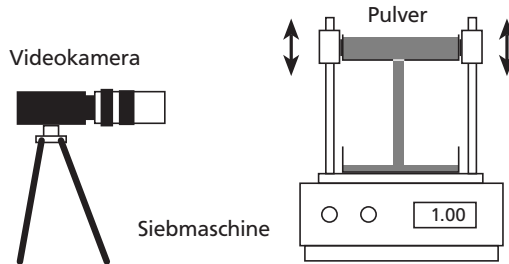


Abbildung 4-30: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur Trockenagglomeration mit einem Schwingsieb.

Es wurden Versuche mit Fructose mit den Wassergehalten 0,11, 0,16 und 0,24 % durchgeführt. Die Probe mit dem Wassergehalt 0,11 % war frisch gemahlen und unconditioniert. In Abbildung 4-31 sind die – weitgehend identischen – Ergebnisse dargestellt. Hier war die Größe der entstandenen Trockenagglomerate also nicht vom Wassergehalt des Pulvers abhängig. Die mittlere Partikelgröße betrug etwa 60 % der Siebmaschenweite.

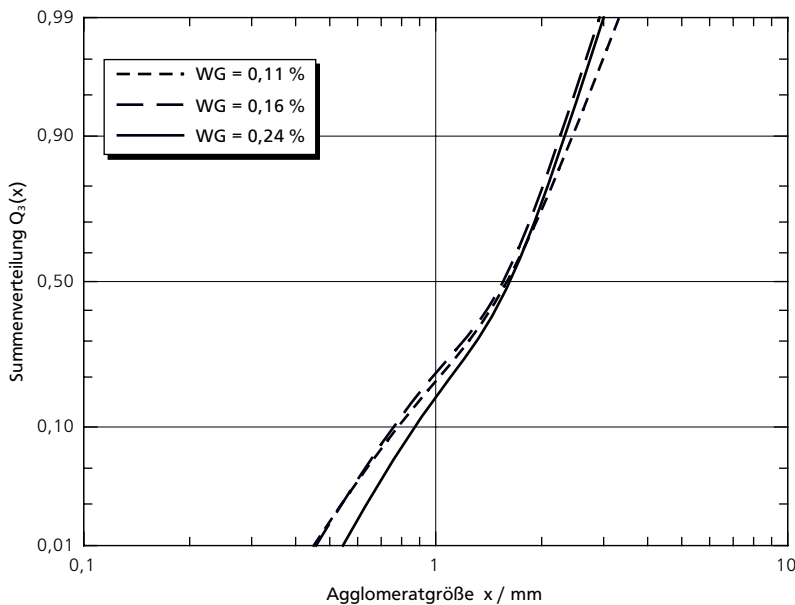


Abbildung 4-31: Partikelgrößenverteilungen der im Schwingsieb entstandenen Fructose-Trockenagglomerate bei drei unterschiedlichen Wassergehalten des Ausgangsmaterials.

## Voragglomeration

Bei der Versuchsdurchführung zeigte sich eine Abhängigkeit des Durchsatzes vom Wassergehalt des Pulvers. Die jeweils günstigste Schwingungsamplitude mußte auf der Grundlage von Vorversuchen abgeschätzt werden. Für den Wassergehalt 0,11 % wurde 0,2 mm, für 0,16 % 0,4 mm und für 0,24 % 0,6 mm gewählt. Der erzielbare Durchsatz war deutlich niedriger als bei der Vibrationsrinne und lag im Bereich von wenigen  $\text{kg} \cdot \text{h}^{-1}$ .

Problematisch war die Entstehung größerer und stabilerer Agglomerate, die besonders bei höheren Wassergehalten beobachtet wurde. Diese Agglomerate blieben als Rückstand auf dem Siebboden zurück. Die Verwendung eines Schwingensiebs bietet sich nach diesen Ergebnissen nur an, wenn die Entstehung solcher Agglomerate vermieden werden kann. Der Wassergehalt des Pulvers darf hierzu einen bestimmten, vermutlich produktabhängigen Wert nicht überschreiten.

## Dosieren mit einer Lochpresse

Bei der im Rahmen dieser Arbeit eingesetzten Lochpresse wird das pulverförmige Aufgabegut von einem schräg stehenden umlaufenden Schieber durch den perforierten Boden eines Gefäßes gedrückt (siehe Abbildung 4-32). Die Reibung zwischen Gefäßboden und Pulverschüttung führt zu einer Verdichtung des Pulvers und zum Aufbau von Druckspannungen, unter deren Einfluß das Material durch die Löcher der Perforation gedrückt und dabei zu Agglomeraten geformt wird (vergl. Abschnitt 4.1.2). Aufgrund der seitlichen Bewegung des Schiebers kommt es jedoch nicht zur Brückenbildung im Pulver. Der Lochdurchmesser betrug bei dem verwendeten Gerät 2 mm.

Es wurden Versuche mit Fructose mit den Wassergehalten 0,07, 0,16 und 0,29 % durchgeführt. Die Probe mit dem Wassergehalt 0,07 % war frisch gemahlen (nicht konditioniert). Die in Abbildung 4-33 dargestellten Partikelgrößenverteilungen der Trockenagglomerate sind weitgehend identisch. Das Ergebnis für den Wassergehalt von 0,07 % überrascht wegen des im Vergleich höheren Mittelwerts. Hierbei ist aber zu berücksichtigen, daß bei diesen Versuchen mit einem selbstgebauten Gerät mit ungleichmäßigem Durchsatz gearbeitet wurde, wodurch sich die Meßunsicherheit vergrößert. Bei 0,07 % Wassergehalt entstand nach Augenschein tatsächlich mehr Feingut, was unter Umständen Fehlauswertungen des Bildanalyse-systems durch überlappende Partikeln verursachte.

Die mittlere Agglomeratgröße war bei der Lochpresse im Rahmen der Meßgenauigkeit unabhängig vom Wassergehalt des Pulvers. Probleme mit Rückstand in der Vorlage traten nicht auf. Mit einem ausgereifteren Gerät wären Durchsätze ähnlich wie mit einer Vibrationsrinne möglich gewesen, so daß das Lochpressen insgesamt als vorteilhafte Methode zur trockenen Voragglomeration von Pulvern erschien.

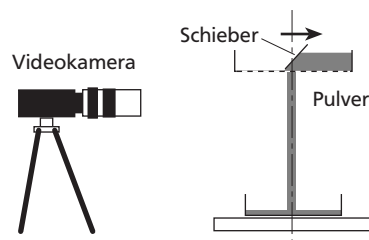


Abbildung 4-32: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur Trockenagglomeration durch Lochpressen.

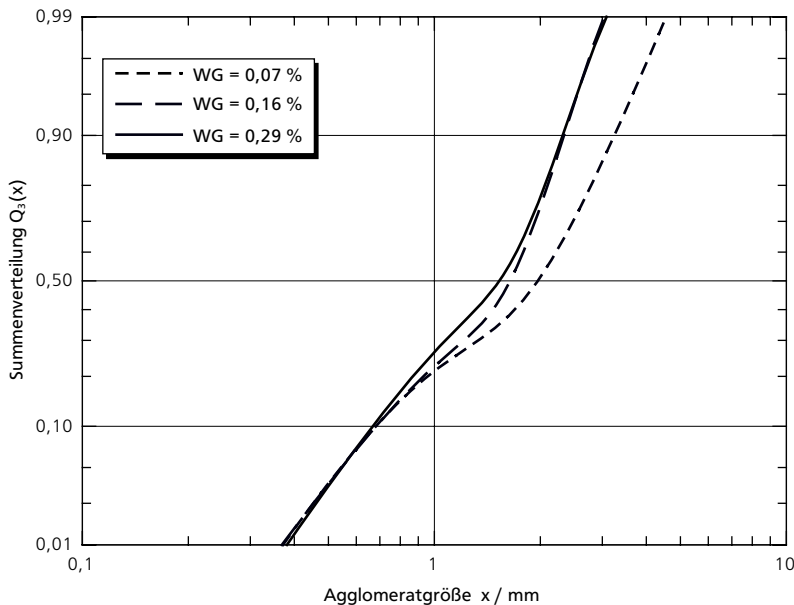


Abbildung 4-33: Partikelgrößenverteilungen der durch Lochpressen bei drei unterschiedlichen Wassergehalten des Ausgangsmaterials erzeugten Fructose-Trockenagglomerate.

## Schlußfolgerungen

Die in diesem Abschnitt beschriebenen Methoden der Voragglomeration unterscheiden sich vom Wälzdruckkompaktieren in zweierlei Hinsicht. Zum einen ist zu erwarten, daß aufgrund der geringeren äußeren Kräfte während des Agglomerationsvorgangs porösere Agglomerate entstehen. Hierbei haben vermutlich die mit der Vibrationsrinne erzeugten Agglomerate die höchste Porosität, gefolgt von denjenigen aus dem Schwingsieb und den durch Lochpressen entstandenen.

Zum zweiten verhalten sich die Verfahren bezüglich des Wassergehalts des Pulvers deutlich anders: Vibrationsrinne und Schwingsieb eignen sich nach den hier vorliegenden Ergebnissen vorzugsweise für sehr trockene Pulver. Eine Steigerung der Kohäsion im Pulver aufgrund erhöhten Wassergehalts führt bei der Vibrationsrinne zu unkontrollierbarer Klumpenbildung und beim Schwingsieb zu stark verringertem Durchsatz sowie ebenfalls zur Klumpenbildung. Die Methode des Lochpressens dagegen zeigte sich hinsichtlich der Gutsfeuchte als sehr unempfindlich und damit als betriebssicheres Verfahren, wenn mit schwankender Kohäsionsneigung des Pulvers zu rechnen ist. Zwar entfällt hiermit auch die Möglichkeit zur Steuerung der Agglomeratgröße durch Variation der Gutsfeuchte, dies kann jedoch höchstwahrscheinlich durch Einsatz unterschiedlich gelochter Matrizen ausgeglichen werden.



## 5 Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

Nach Verlassen des Dosiergeräts tritt das trocken voragglomerierte Pulver im freien Fall in die Befeuchtungszone des Strahlagglomerationsapparats ein. Hier werden die Agglomerate und eventuell noch vorhandene Einzelpartikeln durch Kondensation von Dampf befeuchtet und, da sie im Normalfall aus wasserlöslicher Substanz bestehen, oberflächlich angelöst. Die Partikeln sedimentieren in einem Schwarm, wobei sie je nach Größe unterschiedliche Sinkgeschwindigkeiten besitzen. Aufgrund dieser Geschwindigkeitsunterschiede sind Kollisionen zwischen Partikeln möglich, die unter geeigneten Bedingungen zur Agglomeration führen.

Im Randbereich des Schwarms befinden sich die Partikeln zudem im Einflußbereich der Dampffreistrahlen, die aus Düsen austreten und im Normalfall auf den Schwarm gerichtet sind. Obwohl der Impulsstrom dieser Freistrahlen meist deutlich kleiner als der Impulsstrom des Feststoffs ist, kann die Partikelbewegung von ihnen stark beeinflusst werden. Von den Freistrahlen bewirkte Turbulenzen fördern nach Literaturangaben durch Bewegen der Partikeln relativ zueinander die Agglomeration. Die Aufbauagglomeration hängt aber nicht nur davon ab, wie häufig Stöße zwischen den Partikeln stattfinden, sondern erfordert auch, daß zusammengestoßene Partikeln aneinander haften. Die Experimente sollten unter anderem klären, unter welchen Bedingungen Agglomeration möglich ist.

Der erwarteten vorteilhaften Wirkung der Dampffreistrahlen steht die mögliche Zerstörung empfindlicher Trockenagglomerate durch Strömungskräfte gegenüber. Diese gegenläufigen Effekte wurden experimentell untersucht, um die günstigste Einstellung des verwendeten Düsensystems zur möglichst wirksamen Agglomeration und zur Vermeidung von Feingut zu ermitteln.

Unter bestimmten Voraussetzungen kann die Agglomeration in der Befeuchtungszone der Strahlagglomerationsanlage berechnet werden. Hierzu dient ein Populationsbilanz-Modell der Agglomeration in einem Schwarm von Partikeln mit durchmesserabhängiger Sedimentationsgeschwindigkeit.

## 5.1 Grundlagen der Partikelabscheidung

Das hier betrachtete Problem der Agglomeration in einem Schwarm aus unterschiedlich schnell sedimentierenden Feststoffpartikeln unterscheidet sich von der klassischen Abscheidungstechnik zur Luftreinhaltung, da abscheidende und abzuschheidende Partikeln identisch sind. Es ist daher auch unzweckmäßig, einen Trenngrad zu verwenden, da das Ziel der Operation weniger die vollständige Entfernung einer Komponente als vielmehr die Zusammenlagerung aller Partikeln zu möglichst großen Agglomeraten ist. Die Abscheidung von Feingutpartikeln ist allerdings insofern von Bedeutung, als diese, falls sie in die Abluft gelangen, eine Umweltbelastung darstellen und ansonsten die Handhabbarkeit und die Redispersiereigenschaften des Endprodukts verschlechtern.

Im folgenden wird kurz dargestellt, unter welchen Bedingungen ein Kontakt zwischen zwei unterschiedlich großen, sedimentierenden Partikeln eintreten kann. Dieser Fall beschreibt die Anlagerung einer kleinen Partikel an ein größeres, schneller sedimentierendes Objekt. Grundsätzlich kann auf diese Weise aber auch das Verhalten von Partikeln im Einflußbereich von Gasfreistrahlen beschrieben werden: Hierbei entsteht eine Relativbewegung zwischen kleinen und großen Partikeln aufgrund ihrer unterschiedlichen Trägheit, sobald die Partikeln in den Wirkungsbereich des Freistrahls eintreten. Zur Vereinfachung werden bei allen theoretischen Erörterungen in diesem und in den folgenden Abschnitten nur kugelförmige Partikeln betrachtet.

### 5.1.1 Kräfte an einer umströmten Einzelpartikel

Auf eine einzelne Partikel, die sich frei von Wechselwirkungen mit anderen Partikeln in einem gasförmigen Medium befindet, können Feldkräfte, Strömungskräfte, Druckkräfte und Diffusionskräfte einwirken (LÖFFLER, 1988). Im Fall einer von einem kontinuierlichen Fluid gleichmäßig umströmten, homogenen Kugel wird die Resultierende dieser Kräfte durch den Kugelschwerpunkt gehen, so daß als Ergebnis der Krafteinwirkung nur eine Translationsbewegung der Partikel zu diskutieren ist.

Im für die Strahlagglomeration interessanten Partikelgrößenbereich sind Druck- und Diffusionskräfte vernachlässigbar. Daraus folgt, daß die Bewegung einer Einzelpartikel von Feldkräften und Strömungskräften bestimmt wird. Die entscheidende Feldkraft bei den hier vorgestellten Experimenten ist die Gewichtskraft der Partikeln. Elektrostatische Kräfte können aufgrund ihrer großen Reichweite ebenfalls von Bedeutung sein, ihr gezielter Einsatz zum Zweck der Agglomeration erfordert jedoch einen hohen apparativen Aufwand. Die verwendeten Versuchsgeräte waren hierfür nicht geeignet.

Aus dem oben gesagten folgt, daß die Bewegung einer in einem ruhenden Gas sedimentierenden Partikel mit Hilfe eines Kräftegleichgewichts berechnet werden kann, in das nur die Gewichtskraft, die Widerstandskraft und, im Fall der be-

schleunigten Bewegung, die Trägheitskraft eingehen. Alle diese Kräfte wirken parallel zur Bewegungsrichtung der Partikel. Aus diesem Kräftegleichgewicht folgt die Bewegungsgleichung der Partikel (LÖFFLER, 1988):

$$\frac{dw}{dt} = g - \frac{3}{4} \cdot \frac{\rho_g}{\rho_p} \cdot \frac{1}{d_p} \cdot c_w(Re) \cdot w^2 \quad (5-1)$$

Diese Bewegungsgleichung kann numerisch gelöst werden, wenn für den Zusammenhang zwischen Widerstandsbeiwert  $c_w$  und Reynoldszahl  $Re$  eine Näherungsgleichung eingesetzt wird. Hierzu wurde eine von KÜR TEN, RAASCH und RUMPF (1966) vorgeschlagene Beziehung verwendet, die im Bereich bis  $Re = 4.000$  nur um höchstens 4 % vom empirisch ermittelten Widerstandsbeiwert abweicht (LÖFFLER, 1988).

$$c_w = \frac{21}{Re} + \sqrt{\frac{36}{Re}} + 0,28 \quad (5-2)$$

Die Lösung der Bewegungsgleichung ist für das hier beschriebene Strahlagglomerationsverfahren von Bedeutung, da kleine Partikeln in der Befuchtungszone des Apparats schon stationär sedimentieren, während größere Partikeln (Agglomerate) sich noch in der Beschleunigungsphase befinden. Zur Bestimmung von Relativgeschwindigkeiten zwischen verschieden großen Partikeln können daher die stationären Sinkgeschwindigkeiten nicht herangezogen werden. Abbildung 5-1 zeigt Lösungen der Bewegungsgleichung für Agglomerate ( $\rho_A = 600 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) und Primärpartikeln ( $\rho_p = 1.600 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ). Die Sinkgeschwindigkeit ist als Funktion der zurückgelegten Fallstrecke dargestellt. Der grau unterlegte Bereich entspricht einem Aufenthalt der Partikel in der Befuchtungszone des Apparats.

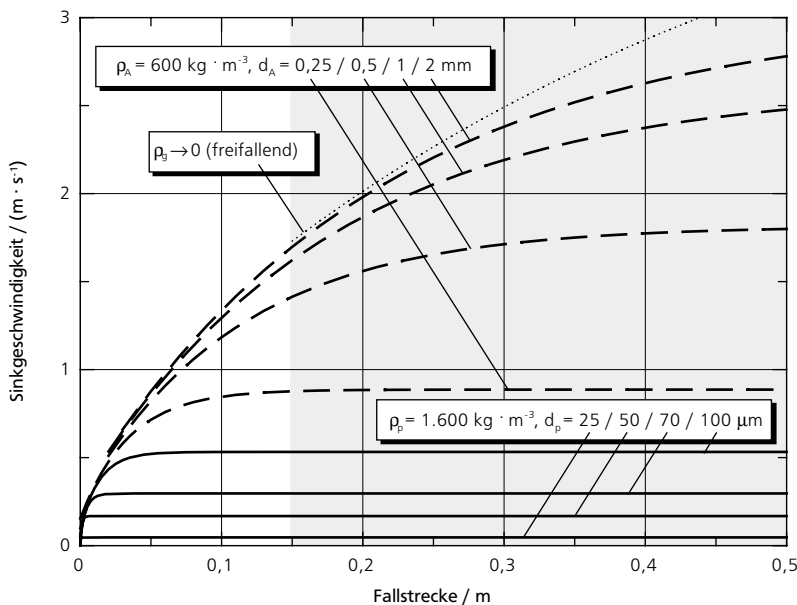
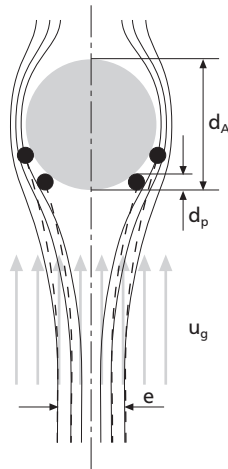


Abbildung 5-1: Sedimentationsgeschwindigkeit einzelner Partikeln als Funktion des Wegs.

Die maximale Geschwindigkeitsdifferenz z.B. zwischen einem Agglomerat von 2 mm Durchmesser und einer Staubpartikel von 25 µm Durchmesser, die sich frei von Wechselwirkungen mit anderen Partikeln bewegen, beträgt nach einer Fallstrecke von 0,5 m etwa  $2,7 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ .

### 5.1.2 Trägheitsbedingte Partikelabscheidung

Zur Beschreibung der Agglomeration unterschiedlich schnell sedimentierender Partikeln wird hier die zur Darstellung der Vorgänge bei der Staubabscheidung gängige Vorgehensweise gewählt (vergl. LÖFFLER, 1988).



In Abbildung 5-2 ist eine Kugel (*Agglomerat*) mit dem Durchmesser  $d_A$  abgebildet, die von einem Gas mit der Geschwindigkeit  $u_g$  umströmt wird. Dieses Gas führt kleinere, kugelförmige Partikeln des Durchmessers  $d_p$  mit sich. Zur einfacheren Darstellung wird das Agglomerat als ruhend angesehen, während die Partikeln sich zunächst mit der Geschwindigkeit des anströmenden Gases bewegen sollen. Bei der Umlenkung der Stromlinien um das Hindernis verlassen die Partikeln aufgrund ihrer Trägheit ihre ursprünglichen Stromlinien. Eine Berührung zwischen einer im Gas mitgeführten Partikel und der großen Kugel geschieht bei allen Partikeln, die sich im ungestörten Strömungsfeld vor der Kugel innerhalb bestimmter

Grenzstromlinien aufhalten. Aus Symmetriegründen kann dieser Bereich mit dem Durchmesser  $e$  des abscheidewirksamen Querschnitts der Kugel beschrieben werden. Das Verhältnis aus abscheidewirksamem und geometrischem Querschnitt wird als *Auftreffgrad*  $\eta$  bezeichnet:

$$\eta = \left( \frac{e}{d_A} \right)^2 \quad (5-3)$$

Aus den für den Abscheidvorgang relevanten physikalischen Grundgrößen lassen sich drei dimensionslose Größen bilden. Hierbei handelt es sich um das Dichteverhältnis zwischen Partikel und Agglomerat (das nur von geringem Einfluß ist und im folgenden nicht weiter berücksichtigt wird), die Reynoldszahl  $Re_A$  der Umströmung des Agglomerats sowie den sogenannten *Trägheits-* oder *Stokes-Parameter*  $\Psi$ . Dieser kann entweder durch Dimensionsanalyse oder mit dem Stokesschen Widerstandsgesetz hergeleitet werden (LÖFFLER, 1988).

$$Re_A = \frac{u_g \cdot d_A}{\nu_g} \quad (5-4)$$

$$\Psi = \frac{\rho_p \cdot u_g \cdot d_p^2}{18 \cdot \eta_g} \quad (5-5)$$

Abbildung 5-2: Partikelbahnen bei der Umströmung einer Kugel.



Die Reynoldszahl charakterisiert hierbei das Strömungsfeld um die große Partikel, während der Trägheitsparameter ein Maß für die Beweglichkeit der kleinen Partikel ist. In bestimmten Wertebereichen der Reynoldszahl kann der Auftreffgrad als Funktion des Trägheitsparameters analytisch oder numerisch berechnet werden. Nach LÖFFLER (1988) lassen sich die erhaltenen Lösungen im allgemeinen gut durch Näherungsgleichungen der folgenden Form beschreiben:

$$\eta = \left( \frac{\Psi}{\Psi + a} \right)^b \quad (5-6)$$

Abbildung 5-3 zeigt einige Beispiele für solche Kurvenverläufe. Die dargestellten Kurven sind annähernd identisch mit den analytischen bzw. numerischen Lösungen (SCHUCH, 1978), obwohl zu ihrer Berechnung Werte der Parameter  $a$  und  $b$  dienen, die auf Grundlage der Literaturwerte (LÖFFLER, 1988) als Funktion der Reynoldszahl approximiert wurden. Erst hierdurch wird eine vollständig analytische Berechnung des Auftreffgrads ermöglicht, die für die im Abschnitt 5.4 beschriebene Modellierung der Agglomeration erforderlich ist.

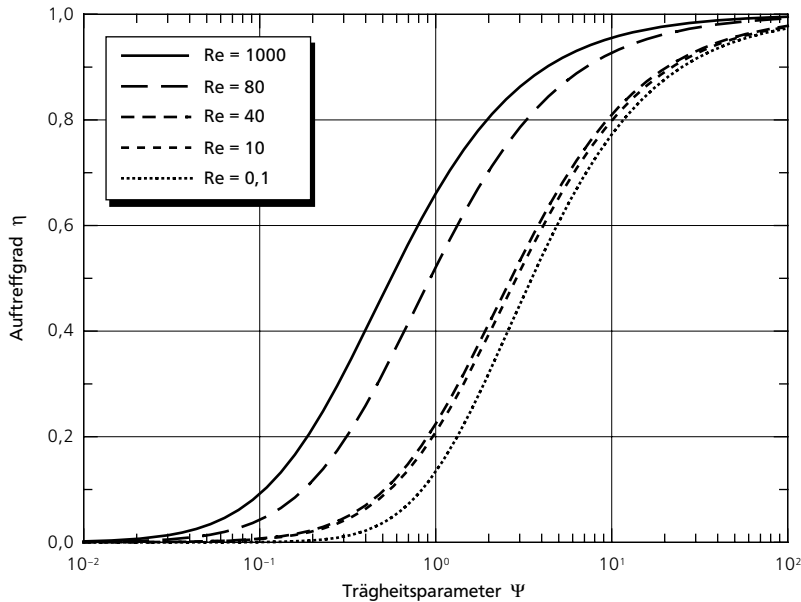


Abbildung 5-3: Auftreffgrad  $\eta$  als Funktion des Trägheitsparameters  $\Psi$  für verschiedene Werte der Reynoldszahl  $Re_A$  nach Gleichung 5-6 berechnet.

Mit Hilfe der oben aufgeführten Beziehungen ist es möglich, den Vorgang des Auftreffens kleinerer Partikeln auf größere Objekte, wie z.B. Agglomerate, zu berechnen. Es wird jedoch nur festgestellt, ob es zu einer Berührung kommt oder nicht, wobei die Möglichkeit besteht, daß die auftreffende Partikel nach dem Stoß wieder abprallt. In der Luftreinigungstechnik wird bei der Abscheidung von Stäuben an Flüssigkeitstropfen üblicherweise angenommen, daß jede Berührung einer Staubpartikel mit einer Tropfenoberfläche zur Haftung führt (LÖFFLER, 1988). Bei der Strahlagglomeration kann dies nicht ohne weiteres vorausgesetzt werden. Die Untersuchung dieses Gesichtspunkts ist im folgenden Abschnitt beschrieben.

## 5.2 Bestimmung der kritischen Relativgeschwindigkeit kollidierender Partikeln

Bei der Strahlagglomeration nach dem in dieser Arbeit vorgestellten Verfahren sedimentieren die Partikeln in einem Schwarm durch den Apparat. Wie bereits in den vorangegangenen Kapiteln erläutert, handelt es sich dabei im wesentlichen um Agglomerate mit Durchmessern zwischen 0,1 und 2 mm. Sie bestehen aus Primärpartikeln mit einem Durchmesser zwischen 5 und 200  $\mu\text{m}$ .

Um eine möglichst hohe Agglomerationsrate in einer Strahlagglomerationsanlage zu erzielen, muß einerseits die Stoßhäufigkeit zwischen den einzelnen Partikeln möglichst groß sein, was, außer einer hohen Partikelkonzentration, eine breite Geschwindigkeitsverteilung erfordert. Andererseits sollte aber auch jeder Stoß zur Anlagerung führen, was nur der Fall ist, wenn die kinetische Energie der Relativbewegung der kollidierenden Partikeln beim Stoß vollständig in andere Energieformen umgewandelt wird. Der hierfür hauptsächlich verantwortliche Mechanismus ist die Energiedissipation in den Flüssigkeitshüllen, die sich in der Befeuchtungszone der Strahlagglomerationsanlage auf den Oberflächen der Partikeln durch Kondensation von Dampf bilden.

Es existiert also eine *kritische Relativgeschwindigkeit*, die von den Eigenschaften der Partikeln und der sie umgebenden Flüssigkeitshüllen abhängt. Da der genaue Wert dieser Relativgeschwindigkeit aufgrund der komplizierten Geometrie für reale Partikeln nicht vorausberechnet werden kann, wird in dieser Arbeit ein Modell verwendet. Dieses Modell ermöglicht die Untersuchung des geraden, zentralen Stoßes flüssigkeitsumhüllter Partikeln im Laborexperiment und die Übertragung der Ergebnisse auf den Größenmaßstab der in der Strahlagglomeration eingesetzten Partikeln mit Hilfe der Ähnlichkeitstheorie.

### 5.2.1 Modell zur Beschreibung des geraden, zentralen Stoßes flüssigkeitsumhüllter Partikeln

Die erste Vereinfachung der Verhältnisse beim Partikelstoß in einer Strahlagglomerationsanlage besteht darin, nur kugelförmige, glatte Partikeln zu betrachten. Darüber hinaus wird nicht der Zusammenstoß zweier Partikeln untersucht, sondern der Aufprall einer einzelnen, flüssigkeitsumhüllten Kugel auf eine Ebene mit der Geschwindigkeit  $v$ . Dies entspricht aus Symmetriegründen näherungsweise dem Zusammenstoß zweier identischer, von identischen Flüssigkeitshüllen umgebener Kugeln mit der Relativgeschwindigkeit  $2 \cdot v$ , wobei Bewegungsrichtung und Stoßnormale auf der Geraden durch die Mittelpunkte der beiden Kugeln liegen.

Die Anzahl der für den Stoßvorgang relevanten, physikalischen Grundgrößen reduziert sich auf diese Weise. Außerdem kann der Einfluß der verschiedenen Parameter mit Hilfe eines vergleichsweise einfachen Versuchs ermittelt werden, bei dem sich die Flüssigkeit aus experimentellen Gründen hauptsächlich auf der Ebene befindet.

In die Relevanzliste zur dimensionsanalytischen Beschreibung des Stoßvorgangs wurden folgende Größen aufgenommen (siehe auch Abbildung 5–4):

- die beim Stoß dissipierte Energie  $E_v$ ,
- die Geschwindigkeit  $v$  der Kugel vor dem Stoß,
- die Dichte  $\rho_p$  des Kugelmaterials,
- der Durchmesser  $x$  der Kugel,
- die Dicke  $s$  der Flüssigkeitsschichten auf Kugel und Ebene,
- die Viskosität  $\eta_l$  und die Dichte  $\rho_l$  der Flüssigkeit,
- die Grenzflächenspannung  $\gamma_{l/g}$  der Flüssigkeit gegen Luft,
- der dynamische Randwinkel  $\delta_{dyn}$ ,
- die Stoßzahl  $k$  der Materialpaarung Kugel/Ebene.

Bestimmung der kritischen Relativgeschwindigkeit kollidierender Partikeln

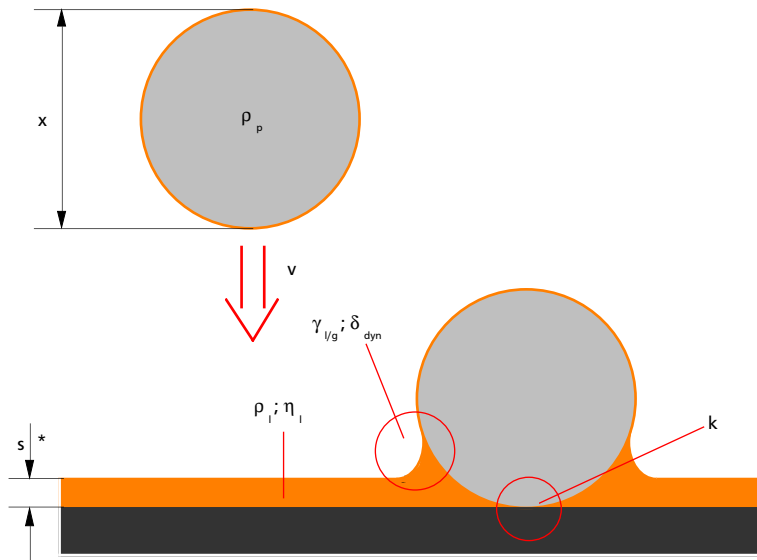


Abbildung 5–4: Schematische Darstellung des Aufpralls einer flüssigkeitsumhüllten Kugel auf eine flüssigkeitsbeschichtete Ebene und relevante physikalische Grundgrößen.

\* Die Dicke der Flüssigkeitsschicht auf der Kugel wird zur Vereinfachung zur Dicke der Schicht auf der Ebene addiert.

Die Relevanzliste umfasst insgesamt zehn Größen. Das physikalische Einheitensystem beinhaltet die drei Größen Masse, Länge und Zeit. Hieraus ergibt sich eine Dimensionsmatrix mit zehn Spalten und drei Zeilen:

	$\gamma_{l/g}$	$x$	$\eta_l$	$E_v$	$\rho_p$	$\rho_l$	$s$	$v$	$\delta_{dyn}$	$k$
M	1	0	1	1	1	1	0	0	0	0
L	0	1	-1	2	-3	-3	1	1	0	0
T	-2	0	-1	-2	0	0	0	-1	0	0

Abbildung 5–5: Dimensionsmatrix der relevanten Größen des Stoßexperiments und der physikalischen Einheiten.

Diese Matrix hat den Rang 3, d.h. es lassen sich aus den physikalischen Grundgrößen der Relevanzliste sieben voneinander unabhängige  $\Pi$ -Produkte (dimensionslose Kennzahlen) bilden, die das Problem vollständig beschreiben.

Diese  $\Pi$ -Produkte wurden so kombiniert, daß die experimentell zu variierenden Größen möglichst nur in jeweils einer Kennzahl enthalten sind. Es ergaben sich die folgenden Kennzahlen:

- Der *Verlustenergieanteil*  $\Pi_1$ :

$$\Pi_1 = \frac{12 \cdot E_v}{\pi \cdot x^3 \cdot \rho_p \cdot v^2} \quad (5-7)$$

$\Pi_1$  ist das Verhältnis der beim Stoß dissipierten Energie zur ursprünglichen kinetischen Energie. Der Wertebereich liegt zwischen 0 (keine Energiedissipation) und 1 (vollständige Energiedissipation, Haftung). Von Interesse sind Zustände, bei denen  $\Pi_1$  den Wert 1 erreicht.

- Die *Kapillanzahl*  $Ca$ :

$$Ca = \frac{\eta_l \cdot v}{\gamma_{l/g}} \quad (5-9)$$

Die Kapillanzahl enthält die Aufprallgeschwindigkeit der Kugel, die im Experiment durch Wahl der Fallhöhe eingestellt werden kann.

- Die *modifizierte Reynoldszahl*  $Re^*$ :

$$Re^* = \frac{\rho_l \cdot \gamma_{l/g} \cdot x}{\eta_l^2} = \frac{Re}{Ca} \quad (5-10)$$

Der Wert von  $Re^*$  wird im Experiment durch Wahl der Flüssigkeitsviskosität eingestellt.

- Das *Geometrieverhältnis*  $x/s$ , dessen Wert über den Kugeldurchmesser oder über Aufbringen verschieden dicker Flüssigkeitsfilme variiert werden kann.

- Das *Dichteverhältnis*  $\rho_p/\rho_l$ , das durch Wahl des Kugelmaterials eingestellt wird.

- Der *dynamische Randwinkel*  $\delta_{dyn}$  und die *Stoßzahl*  $k$  sind bereits entsprechend ihrer Definition dimensionslos.

Die übliche Vorgehensweise hätte darin bestanden, auf empirischem Weg beispielsweise den Wert von  $\Pi_1$  als Funktion der sechs anderen dimensionslosen Größen zu ermitteln. Dies hätte jedoch einen sehr großen Versuchsaufwand erfordert. Daher wurden bestimmte Annahmen getroffen, um die Anzahl der zu variierenden Größen zu verringern:

- Von Interesse für die Agglomeration ist nicht die Ermittlung eines stetigen Zusammenhangs zwischen dem Verlustenergieanteil und den anderen Größen, sondern nur der Grenzfall vollständiger Dissipation der kinetischen Energie, also  $\Pi_1 \stackrel{!}{=} 1$ .

- Der Einfluß der Stoßzahl  $k$  wird vernachlässigt. Im Experiment werden Materialpaarungen gewählt, deren Stoßzahlen nahe bei 1 liegen. Im realen Fall ist mit niedrigeren  $k$ -Werten zu rechnen, so daß die Ergebnisse der Modellexperimente auf der sicheren Seite liegen.

Bestimmung der kritischen Relativgeschwindigkeit kollidierender Partikeln

Der nachfolgend beschriebene Versuchsaufbau zur Durchführung von Stoßexperimenten erlaubte es unter den oben getroffenen Annahmen, die Abhängigkeit der Kapillarzahl von den verbleibenden vier dimensionslosen Größen unter der Randbedingung  $\Pi_1 \stackrel{!}{=} 1$  zu ermitteln.

## 5.2.2 Versuchsaufbau und experimentelle Untersuchungen

Zur Untersuchung des Haftens beim Aufprall von Kugeln auf eine Ebene wurde eine Versuchsanordnung gewählt, bei der flüssigkeitsbenetzte bzw. unbenetzte Kugeln (geschliffene Präzisionskugeln) aus einer definierten Höhe  $h$  auf eine mit Flüssigkeit beschichtete Platte fallen (siehe Abbildung 5–6). Haften bzw. Abprallen der Kugel von der Platte wurden durch Auswertung von Videoaufzeichnungen der Stoßexperimente ermittelt.

Um eine Beobachtung der Vorgänge mit einer üblichen Videokamera zu erlauben, wurde ein Kugeldurchmesser von 4 mm gewählt, d.h. eine bis zwei Größenordnungen über der Partikelgröße in der Strahlagglomerationsanlage. Die Übertragung der Ergebnisse sollte unter diesen Bedingungen noch zulässig sein.

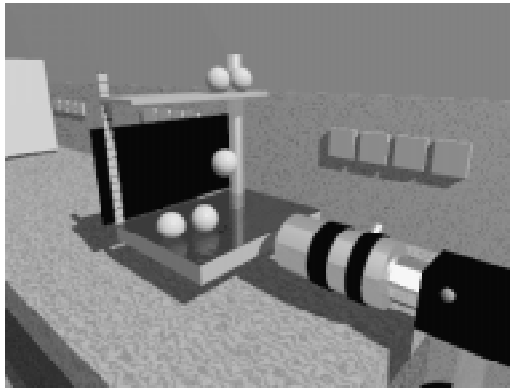


Abbildung 5–6: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur Beobachtung des Aufpralls von Kugeln auf eine mit Flüssigkeit beschichtete Platte.

Die Auftreffgeschwindigkeit  $v$  der Kugeln ergibt sich aus der Fallhöhe. Da nur Fallgeschwindigkeiten bis etwa 15 % der stationären Sinkgeschwindigkeit eingestellt wurden, ist diese Vereinfachung zulässig. Der Einfluß der Stoßzahl  $k$  auf die Energiedissipation kann für die verwendeten Materialpaarungen (Platte aus Plexiglas und Kugeln aus Glas bzw. verschiedenen Kunststoffen) vernachlässigt werden, da die Stoßzahlen nahe bei 1 liegen.

Als Flüssigkeit wurde Silikonöl verwendet, das in einem weiten Viskositätsbereich erhältlich ist. Dichte und Oberflächenspannung des Silikonöls hängen dagegen kaum von der Viskosität ab. Die Schichtdicke der Flüssigkeit auf der Platte wurde mit einem Filmaufziehgerät (siehe Abbildung 5–7) eingestellt, wie es üblicherweise z.B. bei der Gelchromatographie verwendet wird. Hiermit ließen sich Schichtdicken  $> 5 \mu\text{m}$  mit einer Genauigkeit von  $\pm 1 \mu\text{m}$  einstellen.

Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

Da die Dichte von Silikonöl kaum beeinflusst werden kann, dienten Kugeln aus unterschiedlich dichten Feststoffen zur Einstellung des Dichteverhältnisses  $\rho_p/\rho_l$ . Die Kugeln wurden üblicherweise vor Versuchsbeginn mit einer dünnen Ölschicht überzogen, wobei vergleichende Experimente mit unbeschichteten Kugeln

Aufschluß über den Einfluß des Benetzungsvorgangs, d.h. des dynamischen Randwinkels  $\delta_{dyn}$  gaben.

Die Modell-Stoffsysteme aus Kugeln verschiedener Zusammensetzung und unterschiedlich viskosen Silikonölen ermöglichten es, alle für das Stoß-

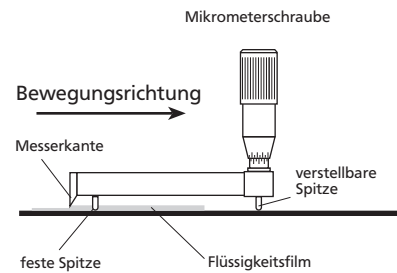


Abbildung 5-7: Filmaufziehgerät zur Erzeugung einer gleichmäßigen Flüssigkeitsschicht.

experiment entscheidenden Kennzahlen auf Werte einzustellen, die auch in der Dampfzone des Strahlagglomerationsapparats bei der Kollision befeuchteter Zuckerpartikeln auftreten (siehe folgende Tabellen und Anhang II).

Tabelle 5-1: Variationsbereiche der physikalischen Größen für reales System (50  $\mu\text{m}$ ) und Modellsystem (4 mm).

	Reales System	Modellsystem
Partikeldurchmesser $x$	50 $\mu\text{m}$	4 mm
Partikeldichte $\rho_p$	1.500–1.600 $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$	1.140–2.520 $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$
Flüssigkeitsdichte $\rho_l$	950–1.350 $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$	930–970 $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$
Grenzflächenspannung $\gamma_{lg}$	60–80 $\text{mN} \cdot \text{m}^{-1}$	20–21 $\text{mN} \cdot \text{m}^{-1}$
Viskosität $\eta_l$	0,5–500 $\text{mPa} \cdot \text{s}$	0,7–1.000 $\text{mPa} \cdot \text{s}$
Schichtdicke $s$	0–10 $\mu\text{m}$	10– $\infty$ $\mu\text{m}$

Tabelle 5-2: Variationsbereiche der dimensionslosen Kennzahlen für reales System (50  $\mu\text{m}$ ) und Modellsystem (4 mm).

	Reales System	Modellsystem
modifizierte Reynoldszahl $Re^*$	0–60.000	0–100.000
Geometrieverhältnis $x/s$	10– $\infty$	0–300
Dichteverhältnis $\rho_p/\rho_l$	1,1–1,7	1,0–2,7
Dynamischer Randwinkel $\delta_{dyn}$	unbekannt	unbekannt

Der dynamische Randwinkel ist z.B. von Bedeutung, wenn eine unbenetzte Partikel auf eine benetzte trifft und bei der Ausbildung der Flüssigkeitsbrücke gleichzeitig eine Oberfläche benetzt werden muß. Dieser Fall kann eintreten, wenn die Befeuchtung der Partikeln nicht durch Kondensation von Dampf an der Partikeloberfläche, sondern durch Kollision mit Kondensat- oder Sprühtröpfchen geschieht.

Bei der Versuchsdurchführung werden zunächst die gewünschten Werte der dimensionslosen Kennzahlen  $Re^*$ ,  $x/s$  und  $\rho_p/\rho_l$  eingestellt. Aus unterschiedlichen Fallhöhen (entsprechend verschiedenen Aufprallgeschwindigkeiten bzw. verschiedenen Werten der Kapillarzahl  $Ca$ ) werden anschließend jeweils 24 Kugeln auf die flüssigkeitsbeschichtete Platte abgeworfen und die Stöße mit einer Videokamera aufgezeichnet. Bei bestimmten Fallhöhen prallen alle Kugeln von der Platte ab, wird die Fallhöhe dagegen hinreichend reduziert, haften alle Kugeln unmittelbar.

Zwischen diesen beiden Fällen existiert ein Übergangsbereich, in dem der Anteil der haftenden bzw. abrallenden Kugeln stetig von der Fallhöhe abhängt.

Der Verlauf des Anteils der haftenden Kugeln über der Kapillarzahl kann mit der inversen Errorfunktion angenähert werden (siehe Abbildung 5–8), woraus sich schließen läßt, daß im Experiment normalverteilte Störeinflüsse auftreten. Theoretisch müßte bis zu einer Grenzfallhöhe bzw. bis zur kritischen Aufprallgeschwindigkeit in allen Fällen Haftung eintreten. Fehlereinflüsse, wie z.B. geringfügige örtliche Schwankungen der Schichtdicke der Flüssigkeit, bewirken eine Streuung der Versuchsergebnisse. Ein weiteres Indiz für diese Annahme ist die Tatsache, daß der Übergangsbereich bei entsprechend sorgfältigem Vorgehen des Experimentators sehr schmal wird ( $\pm 5\%$  Streuung). Der theoretisch zu erwartende und der real gemessene Verlauf des Haftanteils haben einen Schnittpunkt bei einem Haftanteil von 0,5. Der hierzu gehörende Abszissenwert wird als *kritische Kapillarzahl*  $Ca_{50}$  bezeichnet, aus der sich die kritische Aufprallgeschwindigkeit berechnen läßt (bei der die gesamte kinetische Energie der Kugel beim Stoß gerade noch in der Flüssigkeitsschicht dissipiert werden kann).

Bestimmung der kritischen Relativgeschwindigkeit kollidierender Partikeln

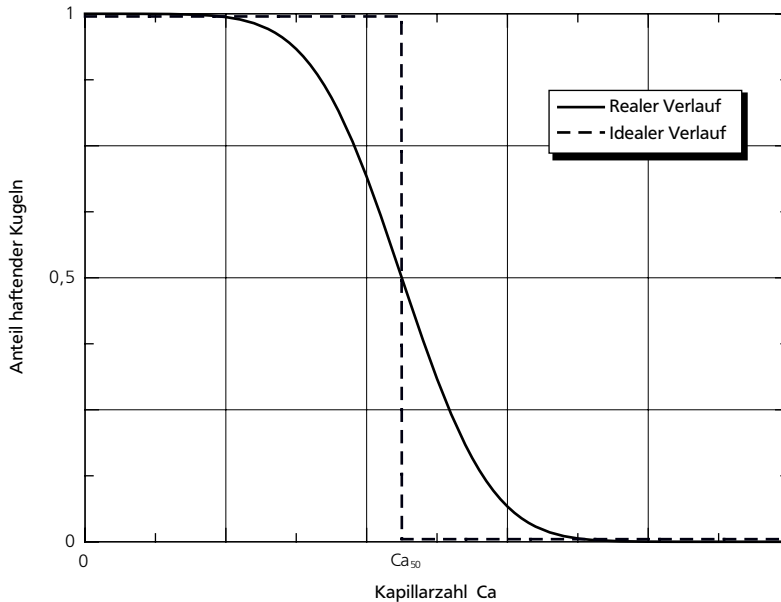


Abbildung 5–8: Prinzipieller realer und theoretischer Verlauf des Haftanteils als Funktion der Kapillarzahl.

Ziel der Experimente war es, die Abhängigkeit der kritischen Kapillarzahl  $Ca_{50}$  von den dimensionslosen Größen  $Re^*$ ,  $x/s$  und  $\rho_p/\rho_l$  zu ermitteln und mit einem Potenzansatz darzustellen:

$$Ca_{50} = a \cdot Re^* \cdot b \cdot \left(\frac{x}{s}\right)^c \cdot \left(\frac{\rho_p}{\rho_l}\right)^d \quad (5-11)$$

Der dynamische Randwinkel konnte nicht gezielt variiert werden. Sein Einfluß wurde jedoch durch Vergleiche zwischen den Ergebnissen für benetzte und unbenetzte Kugeln ermittelt.

5.2.3 Ergebnis der Modellexperimente und Übertragung auf die Verhältnisse bei der Dampfstrahlagglomeration

Abbildung 5-9 zeigt ein Beispiel für eine Versuchsserie, in der bei einem gegebenen Dichteverhältnis und einer gegebenen modifizierten Reynoldszahl das Verhältnis  $x/s$  variiert wurde. Die Ausgleichskurven liegen hier besonders nahe am Idealverlauf. Jeder eingetragene Meßpunkt stellt den Anteil der haftenden Kugeln aus einer Serie von 24 Stoßversuchen dar.

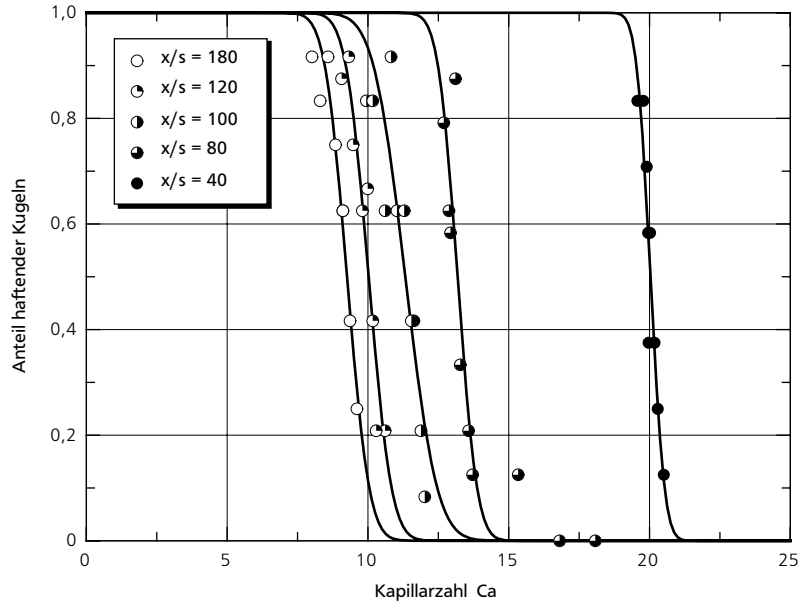


Abbildung 5-9: Beispiel einer Serie von Stoßexperimenten mit  $\rho_p/\rho_l = 1,41$  und  $Re^* = 0,78$ .

Die eingetragenen Ausgleichskurven werden durch die inverse Errorfunktion beschrieben:

$$f(Ca) = 1 - \frac{1}{\sigma \cdot \sqrt{2 \cdot \pi}} \cdot \int_{-\infty}^{Ca} \exp\left(-\frac{1}{2} \left(\frac{Ca - Ca_{50}}{\sigma}\right)^2\right) dCa \quad (5-12)$$

Aus der in Abbildung 5-9 dargestellten Versuchsserie ergeben sich durch die Approximation mit Gleichung 5-12 fünf kritische Kapillarzahlen  $Ca_{50}$ , die den fünf  $x/s$ -Werten für die jeweils festgehaltenen Werte des Dichteverhältnisses und der modifizierten Reynoldszahl zugeordnet sind. Der Streuungsparameter  $\sigma$  der Ausgleichskurve wird bei der Auswertung berücksichtigt: Er dient bei der Anpassung der Parameter in Gleichung 5-11 zur Gewichtung des Meßpunkts, wobei Punkte mit kleinem Streuungsparameter stärker berücksichtigt werden als solche, denen ein großer  $\sigma$ -Wert zugeordnet ist.

Versuchsserien der oben beschriebenen Art wurden für eine Vielzahl von Wertekombinationen der zu variierenden dimensionslosen Kennzahlen sowohl mit benetzten als auch mit unbenetzten Kugeln durchgeführt. Im einzelnen wurden



folgende Wertebereiche der Kennzahlen mit jeweils mindestens vier Stützpunkten abgedeckt:

- Modifizierte Reynoldszahl  $Re^*$ : 0,038–43
- Geometrieverhältnis  $x/s$ : 40–180
- Dichteverhältnis  $\rho_p/\rho_l$ : 1,18–2,63

Bestimmung der kritischen Relativgeschwindigkeit kollidierender Partikeln

Ein wichtiges Ergebnis war, daß sich ein signifikanter Unterschied zwischen benetzten und unbenetzten Kugeln nicht nachweisen ließ, d.h. der Beitrag der Änderung der Oberflächenenergie ist gegenüber der Energiedissipation aufgrund viskoser Reibung vernachlässigbar. Der dynamische Randwinkel  $\delta_{dyn}$  wurde daher aus der Liste der relevanten Parameter gestrichen.

Die experimentell ermittelten kritischen Kapillarzahlen  $Ca_{50}$  hingen dagegen in eindeutiger Weise von den Größen  $Re^*$ ,  $x/s$  und  $\rho_p/\rho_l$  ab. Abbildung 5–10 zeigt eine Auftragung kritischer Kapillarzahlen über der modifizierten Reynoldszahl  $Re^*$  für ein bestimmtes Dichteverhältnis  $\rho_p/\rho_l$  und unterschiedliche Werte des Geometrieparameters  $x/s$ .

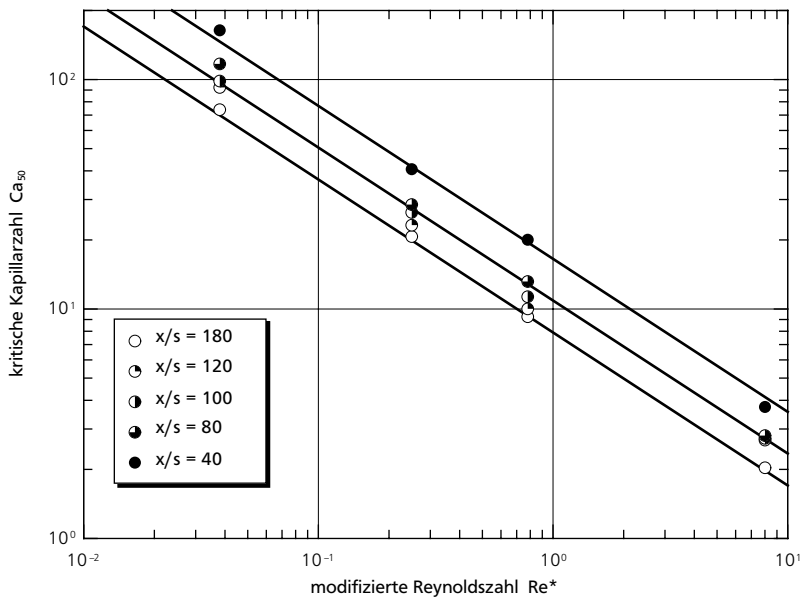


Abbildung 5–10: Kritische Kapillarzahl  $Ca_{50}$  als Funktion der modifizierten Reynoldszahl  $Re^*$  für verschiedenen Werte des Geometrieparameters  $x/s$  und ein Dichteverhältnis  $\rho_p/\rho_l$  von 1,45. Die Steigung der Ausgleichsgeraden beträgt  $\approx -0,7$ .

In analoger Weise ließen sich die kritischen Kapillarzahlen auch als Funktion von  $x/s$  oder  $\rho_p/\rho_l$  darstellen. Die Approximation aller Meßpunkte durch Gleichung 5–11 ergab folgende Werte für den Faktor  $a$  und die Exponenten  $b$ ,  $c$  und  $d$ :

$$\begin{aligned}
 a &= 94 \pm 1,8 \\
 b &= -0,69 \pm 0,0005 \\
 c &= -0,36 \pm 0,004 \\
 d &= -0,66 \pm 0,004
 \end{aligned}$$

Da die Regressionsrechnung für die Exponenten  $b$  und  $d$  mit  $-0,69$  und  $-0,66$  annähernd identische Werte ergab, wurden beide Werte auf  $-2/3$  festgelegt. Der Wert des Exponenten  $c$  wurde auf  $-1/3$  gesetzt. Eine erneute Regressionsrechnung lieferte für den Proportionalitätsfaktor  $a$  den Wert  $81$ . Der Zusammenhang zwischen den untersuchten dimensionslosen Größen lautete damit:

$$Ca_{50} = 81 \cdot Re^* \cdot \left(\frac{x}{s}\right)^{-\frac{1}{3}} \cdot \left(\frac{\rho_p}{\rho_l}\right)^{-\frac{2}{3}} \quad (5-13)$$

Die Kennzahlen  $Re^*$  und  $\rho_p/\rho_l$  weisen nun den gleichen Exponenten auf. Aus diesem Grund können sie zu einer neuen Kennzahl zusammengefaßt werden:

$$K = Re^* \cdot \frac{\rho_p}{\rho_l} = \frac{\rho_l \cdot \gamma_{l/g} \cdot x}{\eta_l^2} \cdot \frac{\rho_p}{\rho_l} = \frac{\rho_p \cdot \gamma_{l/g} \cdot x}{\eta_l^2} \quad (5-14)$$

In der Kennzahl  $K$  taucht die Flüssigkeitsdichte  $\rho_l$  nicht mehr auf. Die Energiedissipation ist demnach im wesentlichen auf viskose Reibung und Oberflächenkräfte zurückzuführen und  $\rho_l$  für den Stoßvorgang nicht relevant. Der Zusammenhang zwischen den dimensionslosen Größen reduziert sich auf folgende Gleichung:

$$\frac{\eta_l \cdot v}{\gamma_{l/g}} = 81 \cdot \left(\frac{x}{s}\right)^{-\frac{1}{3}} \cdot \left(\frac{\rho_p \cdot \gamma_{l/g} \cdot x}{\eta_l^2}\right)^{-\frac{2}{3}} \quad (5-15)$$

Gleichung 5-15 läßt sich nach einem Vorschlag von BUGGISCH (1995) vereinfachen, wobei jedoch keine weiteren physikalischen Grundgrößen entfallen:

$$\frac{v \cdot \rho_p \cdot x}{\eta_l} = 81 \cdot \left(\frac{\rho_p \cdot \gamma_{l/g} \cdot s}{\eta_l^2}\right)^{\frac{1}{3}} \quad (5-16)$$

Die dimensionslose Größe auf der linken Seite von Gleichung 5-16 enthält die kritische Relativgeschwindigkeit  $v$ . Wenn anstelle des Aufpralls einer Kugel auf eine Ebene der gerade, zentrale Stoß mit einer identischen zweiten Kugel betrachtet wird, ist der mit Gleichung 5-16 berechnete Wert von  $v$  zu verdoppeln.

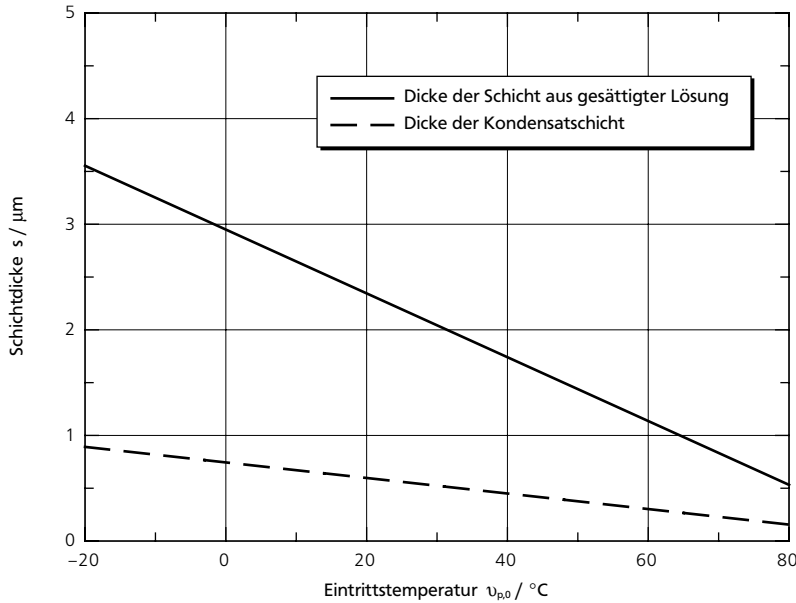
Um Aussagen über die Haftwahrscheinlichkeit bei der Kollision von Partikeln aus wasserlöslicher Substanz in einer Strahlagglomerationsanlage zu treffen, müssen entsprechende Stoffwerte bekannt sein. Die Feststoffdichte sowie die Viskosität und die Grenzflächenspannung der Kondensat- bzw. Lösungsschicht können der Literatur entnommen bzw. mit Standardmethoden gemessen werden (siehe Anhang II). Außerdem wird ein Wert für die Dicke  $s$  der Flüssigkeitsschicht benötigt. Die maximale Kondensatmenge, die sich auf einer Partikel niederschlagen kann, ergibt sich näherungsweise aus einer einfachen Energiebilanz. Dabei wird angenommen, daß für die Temperaturerhöhung der Partikeln beim Eintritt in die Dampfatmosfera die Wärmezufuhr in Form der Kondensationsenthalpie des Wasserdampfs der entscheidende Wärmeübertragungsmechanismus ist.

Unter dieser Voraussetzung gilt, daß die zur Erwärmung einer Partikel von ihrer Ausgangstemperatur  $v_{p,0}$  bis zur Dampfraumtemperatur von  $100^\circ\text{C}$  erforder-

derliche Wärmemenge  $Q$  näherungsweise identisch ist mit der vom Kondensat abgegebenen Wärme:

$$Q = \frac{\pi}{6} \cdot \rho_p \cdot x^3 \cdot c_{p,p} \cdot (100^\circ\text{C} - v_{p,0}) = m_k \cdot \Delta h_v \quad (5-17)$$

Die Kondensatschichtdicke kann mit Gleichung 5-17 abgeschätzt werden. Abbildung 5-II zeigt mit  $c_{p,p} = 1.250 \text{ J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$  (WASHBURN, 1929) und  $\rho_p = 1.587 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  (HIRSCHMÜLLER, 1953) berechnete Schichtdicken für das reine Kondensat und die sich daraus bildende Schicht aus gesättigter Saccharoselösung (etwa 80 Masse-%) für eine kugelförmige Partikel von  $50 \mu\text{m}$  Durchmesser.



Bestimmung der kritischen Relativgeschwindigkeit kollidierender Partikeln

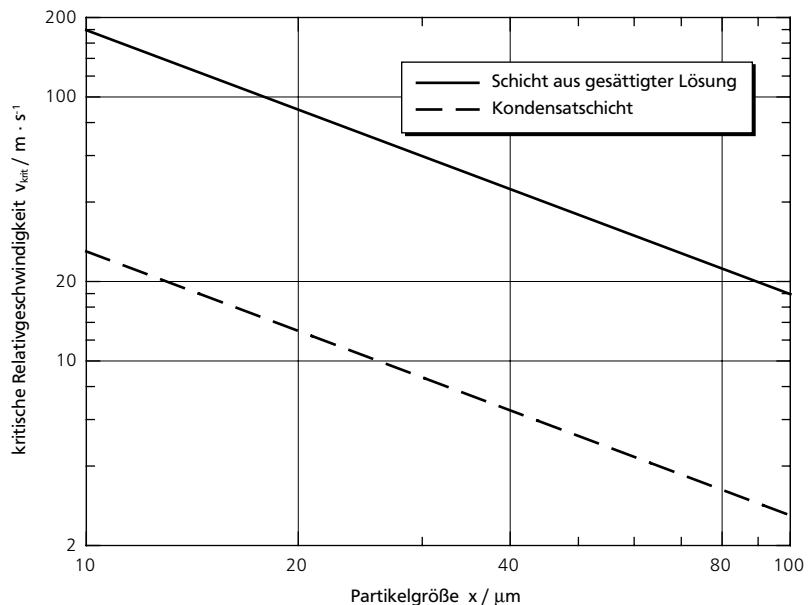
Abbildung 5-11: Mit den Stoffwerten von Saccharose berechnete Dicke der Kondensat- bzw. Lösungsschicht auf einer kugelförmigen Partikel von  $50 \mu\text{m}$  Durchmesser als Funktion der Partikel-Eintrittstemperatur. Temperatur in der Befeuchtungszone:  $100^\circ\text{C}$ .

Die Schichtdicke ist also von der Eintrittstemperatur der Partikeln abhängig. Je niedriger diese Temperatur liegt, desto mehr Feuchtigkeit kondensiert. Dies wirkt sich einerseits positiv auf die Haftwahrscheinlichkeit bei der Kollision von Partikeln aus, zum anderen erhöht sich auch die insgesamt gelöste Menge an Feststoff. Bei der anschließenden Trocknung der Agglomerate erhöht sich auf diese Weise die für die Bildung von Festkörperbrücken an den Kontaktstellen verfügbare Substanzmenge. Für schlecht oder langsam lösliche Substanzen, z.B. Lactose, ist das Vorkühlen des Pulvers vor der Dosierung in den Agglomerationsapparat eine Möglichkeit, die Festigkeit der erzeugten Agglomerate zu verbessern. Nachteilig wirkt sich in diesem Fall allerdings aus, daß die gesteigerte Feuchtigkeitsaufnahme auch einen entsprechend höheren Trocknungsaufwand erfordert.

Mit der Abschätzung der Schichtdicke  $s$  aus Gleichung 5-17 sind alle zur Auflösung von Gleichung 5-16 nach der kritischen Relativgeschwindigkeit erforderlichen Größen bekannt. In Abbildung 5-12 ist  $v_{krit}$  für den geraden, zentralen Stoß von zwei identischen, kugelförmigen Saccharosepartikeln als Funktion des Partikeldurchmessers aufgetragen.

## Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

Abbildung 5-12: Kritische Relativgeschwindigkeit zweier identischer, kugelförmiger Saccharosepartikeln für den geraden zentralen Stoß als Funktion der Partikelgröße. Partikel-Eintrittstemperatur: 25 °C.



Insbesondere für den Fall, daß die Flüssigkeitshülle bereits mit gelöster Substanz gesättigt ist, liegt  $v_{krit}$  um Größenordnungen über der Differenz der Sedimentationsgeschwindigkeit verschieden großer Partikeln (siehe Abbildung 5-1). Obwohl das Modell die Realität nur stark vereinfacht wiedergibt, sollte die Annahme einer Haftwahrscheinlichkeit von 1 gerechtfertigt sein, sofern die tatsächlichen Relativgeschwindigkeiten der Partikeln in der Strahlagglomerationsanlage hinreichend (z.B. um mindestens eine Größenordnung) unter dem theoretischen kritischen Wert liegen. Kleinere Partikeln, die mit einem Agglomerat zusammenstoßen (siehe Abbildung 5-13) haben außerdem die Möglichkeit, mehrmals mit dem Agglomerat zu kollidieren oder aufgrund der porösen Struktur der Agglomerate in einer Kavität „eingelagert“ zu werden.

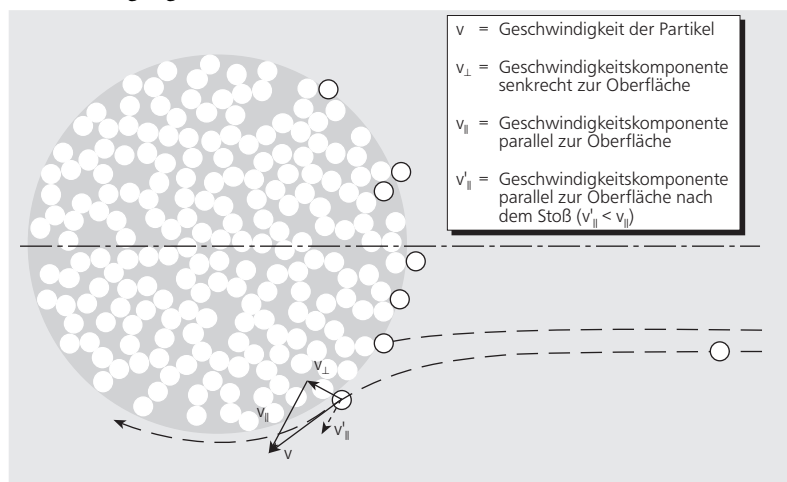


Abbildung 5-13: Schnittbild eines aus isodispersen Partikeln bestehenden Agglomerats mit einer Porosität von 0,5 und auf-treffender Einzelpartikel.

---

## 5.3 Experimente zur Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

## Experimente zur Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

Die in die Strahlagglomerationsanlage dosierten Partikeln bzw. Trockenagglomerate sollen in der Befeuchtungszone des Apparats möglichst stark wachsen. In der Literatur zur Strahlagglomeration (siehe Kapitel 2) wird der Einfluß der Bewegung von Partikeln durch die Dampffreistrahlen als wesentlich für diesen Vorgang bezeichnet. Sowohl für diesen Mechanismus als auch für die Agglomeration von Partikeln mit unterschiedlichen Sinkgeschwindigkeiten ist es außerdem vorteilhaft, wenn die Konzentration an Partikeln in der Agglomerationszone möglichst groß ist, da hierdurch die Kollisionswahrscheinlichkeit steigt. Das Richten von Gasfreistrahlen auf einen Partikelschwarm kann eine solche Konzentrationserhöhung bewirken, wenn es gelingt, die Partikeln aufeinander zuzubewegen.

Andererseits dürfen, wie im vorigen Abschnitt gezeigt, die Relativgeschwindigkeiten der Partikeln nicht zu groß werden. Eine Zerstörung der nur von schwachen Haftkräften zusammengehaltenen Trockenagglomerate durch die von den Dampffreistrahlen ausgeübten Strömungskräfte muß ebenfalls vermieden werden.

Die hier vorgestellten Experimente wurden mit einer neukonstruierten Strahlagglomerationsanlage durchgeführt, die gegenüber der von SCHUCHMANN (1993) eingesetzten Apparatur verschiedene konstruktive Verbesserungen und eine umfangreichere Ausstattung mit Sensoren aufwies. Neben der Wahl unterschiedlicher Methoden zur definierten Trockenagglomeration des zudosierten Pulvers war insbesondere auch die Beeinflussung der Anströmung des Partikelschwarms durch Veränderung der Dampfdüsegeometrie möglich.

### 5.3.1 Aufbau der Dampfstrahl-Agglomerationsanlage

Eine Dampfstrahl-Agglomerationsanlage sollte, aufbauend auf Erfahrungen aus den Versuchen von SCHUCHMANN, folgende Forderungen erfüllen:

- Kontrolle über Größe und Richtung der Stoffströme im Apparat,
- Kontrolle des Zustands der Trocknungsluft,
- Kondensatfreie Dampffzufuhr in die Agglomerationszone,
- Vermeidung von Kondensation an kalten Flächen in der Apparatur,
- Gute Wärmeisolation zur Verbesserung der Trocknungswirkung,
- Vermeidung des Eindringens von Feuchtigkeit in die Feststoffzufuhr ohne Einschränkung der Wahl der Betriebsparameter der Anlage,
- Definierter Atmosphärenzustand in der Agglomerationszone und gleichbleibende, definierte Ausdehnung dieser Zone,
- Variation der Intensität der Anströmung der Partikeln durch die Dampffreistrahlen unabhängig vom Dampfmengenstrom,
- Möglichkeit der in-line-Partikelgrößenmessung bei normalen Pulvermassenströmen.

Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

Abbildung 5-14 zeigt das RI-Schema der neukonstruierten Strahlagglomerationsanlage. Der Apparat ist vollständig geschlossen ausgeführt. Er besteht aus einem *Kopfraum*, in dem das zu agglomerierende Pulver vorgelegt wird, einem *Fallschacht* zur Befeuchtung, Agglomeration und Trocknung des Pulvers sowie einem *Fußraum*, in dem das agglomerierte Material aufgefangen wird. Im Kopfraum können unterschiedliche Pulverdosiergeräte eingebaut werden, um das Material in den Fallschacht zu fördern und dabei trocken vorzuagglomerieren.

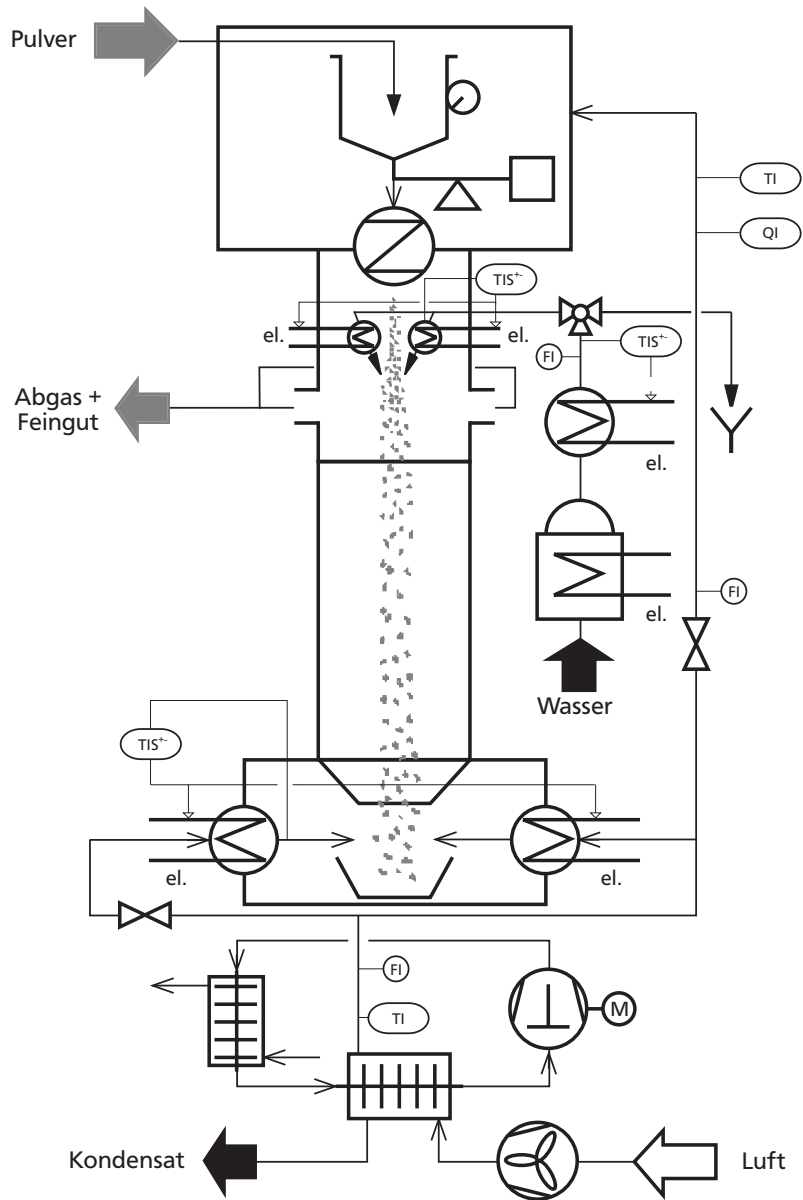


Abbildung 5-14: RI-Schema der neukonstruierten Anlage zur Dampfstrahlagglomeration von wasserlöslichen Pulvern.

Das Fassungsvermögen der Pulvervorlage ist so bemessen, daß ein quasikontinuierlicher Betrieb der Anlage über Zeiträume von 15 bis 60 Sekunden möglich ist. Aufgrund des geringen hold-ups stellt sich unmittelbar nach Einschalten der Pulverzufuhr in die Agglomerationszone ein stationärer Zustand ein, der aussagefähige Messungen ermöglicht. Auf das für einen längeren Betrieb notwendige kontinuierliche Ein- und Ausschleusen des Feststoffs kann daher verzichtet werden.

Der Luftdruck im Kopfraum der Anlage ist im Betrieb stets geringfügig höher als im Fallschacht. Ein Strom gekühlter und getrockneter Luft wird von der Druckseite des zum Einblasen der Trocknungsluft eingesetzten Verdichters abgezweigt und in den Kopfraum geleitet. Von dort strömt die Luft zusammen mit dem zudosierten Feststoff durch einen sich verjüngenden Kanal von oben in den Fallschacht. Dieser Kanal hat an seinem Auslaß am oberen Schachtende einen Querschnitt von  $10 \cdot 80 \text{ mm}^2$ , wodurch der Partikelschwarm als langgestreckter Vorhang in den Schacht eintritt. Der begleitende Luftstrom (Austrittsgeschwindigkeit etwa  $1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ) verhindert das Aufsteigen von Dampf in den Kopfraum.

Im oberen Teil des Fallschachts, der *Befeuchtungs- und Agglomerationszone*, befinden sich zwei elektrisch beheizte Dampfdufen. Es handelt sich dabei um zwei parallele, horizontal angeordnete Aluminiumrohre (Durchmesser 50 mm) mit je einem längs eingefrästen Schlitz als Dampfaustritt. Der Auslaßquerschnitt beträgt jeweils  $2 \cdot 130 \text{ mm}^2$ . Der Partikelschwarm fällt zwischen den Düfen in den Schacht und kann so von beiden Seiten gleichmäßig befeuchtet werden.

Die Düfenrohre können um ihre Längsachse verdreht und in horizontaler Richtung verschoben werden. Hierdurch kann der Abstand zwischen den Düfenmündungen und dem Partikelschwarm sowie der Winkel, unter dem die Freistrahlen auf den Schwarm treffen, verändert werden. Abbildung 5-15 zeigt die Düfenrohre von schräg unten bei einem Anstellwinkel zur Horizontalen von etwa  $60^\circ$  und einem Abstand von etwa 50 mm zwischen den Düfenmündungen.

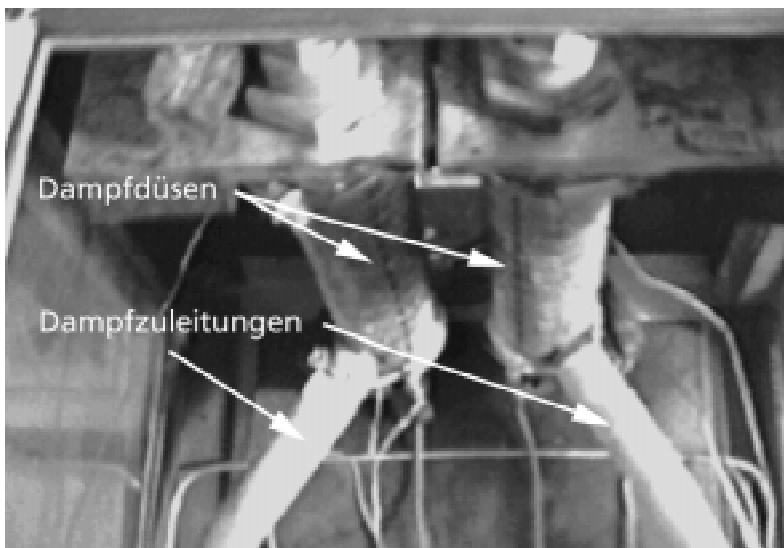


Abbildung 5-15: Blick in den oberen Teil des Fallschachts der Agglomerationsanlage. Dampfdufen auf minimalen Abstand und Anstellwinkel von  $60^\circ$  zur Horizontalen eingestellt.

## Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

Der Fallschacht hat eine Querschnittsfläche von  $30 \cdot 30 \text{ cm}^2$ . Die Befeuchtungs- und Agglomerationszone endet etwa 30 cm unterhalb der Dampfdufen. Hier befinden sich an beiden Seiten des Schachts Abluftauslässe, durch die unverbrauchter Dampf (von oben kommend) und die Trocknungsluft (von unten kommend) den Apparat verlassen. Während des Betriebs der Anlage herrscht oberhalb der Auslässe eine annähernd reine Dampfatmosfera von  $100 \text{ }^\circ\text{C}$ .

Der untere, etwa 2 m lange Teil des Schachts wird während der Versuche von entfeuchteter Warmluft aufsteigend durchströmt. Der maximale Luftmassenstrom beträgt etwa  $60 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$  und ist damit um eine bis zwei Größenordnungen größer als der vom agglomerierten Pulver abgegebene Mengenstrom an Wasser. Hierdurch wird die Trocknungsstrecke bestmöglich ausgenutzt.

Im Fußteil der Anlage befinden sich zwei temperaturgeregelte Heizregister zur Erwärmung der Trocknungsluft. Diese wird von einem Verdichter zunächst zwecks Entfeuchtung durch einen gekühlten Rippenrohrwärmetauscher gedrückt und anschließend gleichmäßig auf die beiden Heizregister verteilt.

Um eine möglichst ungestörte Beobachtung der Vorgänge in der Anlage zu ermöglichen, wurden hauptsächlich Acrylglas und Glas zur Konstruktion eingesetzt (siehe vereinfachte Darstellung der Anlage in Abbildung 5–16). Ein günstiger Nebeneffekt dieser Bauweise ist die gute Wärmeisolation aufgrund der niedrigen Wärmeleitfähigkeit und der Dicke der Wandmaterialien (bis zu 10 mm).

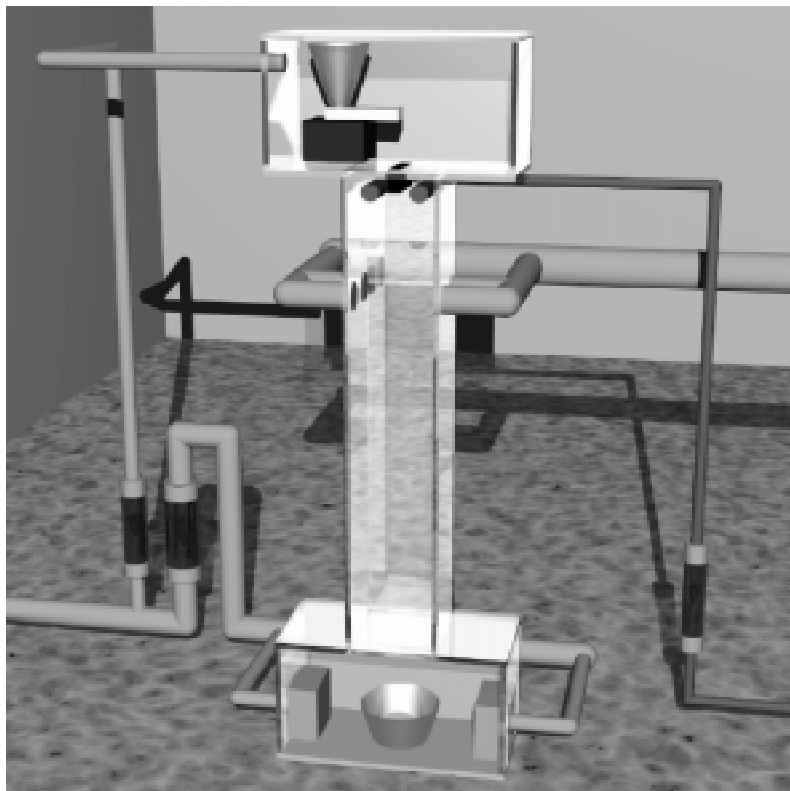


Abbildung 5–16: Vereinfachte Darstellung der Agglomerationsanlage. Als Dosiergerät für das zu agglomerierende Pulver ist im Kopfraum eine Vibrationsrinne dargestellt. Gesamthöhe des Apparats  $\approx 3,5 \text{ m}$ . Zur Anordnung der Dampfdufen vergl. Abbildungen 5–17 und 5–20.



Der Apparat ist zur Kontrolle aller wichtigen Betriebsparameter ausreichend instrumentiert. Schwebekörper-Durchflußmesser zeigen die Mengenströme von Dampf (maximal  $12 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ ), Trocknungsluft ( $60 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ ) und Spülluft für den Kopfraum ( $5 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ ) an. Der Massenstrom des Feststoffs (maximal  $300 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ ) wird durch Differenzieren des Signals einer DMS-Wägezelle bestimmt, auf der das Dosiergerät bzw. seine Pulvervorlage lastet. Die verschiedenen Temperaturmeßstellen sind mit PT100-Fühlern oder NiCrNi-Thermoelementen mit elektronischer Vergleichsmeßstelle bestückt. Ein kombinierter Temperatur- und Feuchtesensor zeigt den Luftzustand im Kopfraum des Apparats an.

Die Anlage beinhaltet folgende Hauptenergieverbraucher:

- Kleindampferzeuger mit 9 kW Heizleistung,
- Heizregister zur Erwärmung der Trocknungsluft mit  $2 \cdot 2 \text{ kW}$ ,
- Mantelheizelemente zur Erwärmung der Dampfdufen mit  $2 \cdot 0,35 \text{ kW}$ ,
- Heizregister zur Überhitzung des Dampfes um  $1-2 \text{ }^\circ\text{C}$  mit  $0,4 \text{ kW}$ ,
- Axialgebläse zur Druckluftversorgung mit  $0,6 \text{ kW}$ ,
- Kälteaggregat zur Luftentfeuchtung mit  $0,4 \text{ kW}$ .

### 5.3.2 Untersuchung der Strömungsverhältnisse im Dampfraum der Agglomerationsanlage

Die aus den Düsen austretenden Dampfstrahlen können beim Auftreffen auf den Partikelschwarm Relativbewegungen zwischen den Partikeln bewirken oder vergrößern und so möglicherweise die Agglomeration fördern. Andererseits muß mit steigender Relativgeschwindigkeit der kollidierenden Partikeln auch mehr kinetische Energie beim Stoß dissipiert werden. Die Möglichkeit der Energiedissipation in den Kondensat- bzw. Lösungshüllen um die Partikeln ist jedoch begrenzt, siehe Abschnitt 5.2. Bei zu großen Relativgeschwindigkeiten tritt daher keine Haftung mehr ein.

In den vorangegangenen Kapiteln wurde dargestellt, daß sich schon während des Zudosierens des Feststoffs in die Befeuchtungszone des Apparats Voragglomerate im Schüttgut bilden. Dieser Agglomerationseffekt wird bei der hier vorgestellten Betriebsweise ausgenutzt, was allerdings voraussetzt, daß diese Agglomerate nicht wieder bei übermäßig heftigen Kollisionen, bei Beschleunigungsvorgängen oder in Scherströmungen zerkleinert werden.

Ziel der Untersuchung der Strömungsverhältnisse in der Befeuchtungszone des Apparats war es daher, eine anschauliche Vorstellung von der Wirkung der Dampfstrahlen zu entwickeln. Die Form des Partikelschwarms und insbesondere das Auftreten von Deglomeration bei verschiedenen Düsenstellungen wurden in Videoaufnahmen festgehalten. Zusätzlich wurden mit einem Hitzdrahtanemometer Strömungsgeschwindigkeiten in der Befeuchtungszone gemessen. Diese Experimente ergänzten die in Abschnitt 5.3.3 beschriebenen Partikelgrößenanalysen zur Optimierung der Düsenstellung.

## Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

### Visuelle Beobachtung

Das Verhalten des Partikelschwarms im Einflußbereich der Dampffreistrahlen wurde bei minimalem und maximalem Abstand der Düsenrohre aufgezeichnet. Dies entsprach einem Abstand der Düsenachsen von  $a = 70$  und  $a = 110$  mm bzw. 20 und 60 mm lichter Weite (vergl. Abbildung 5-17). Der Düsenanstellwinkel  $\alpha$  lag dabei zwischen  $0$  und  $60^\circ$  zur Horizontalen.

#### Trockenagglomerate

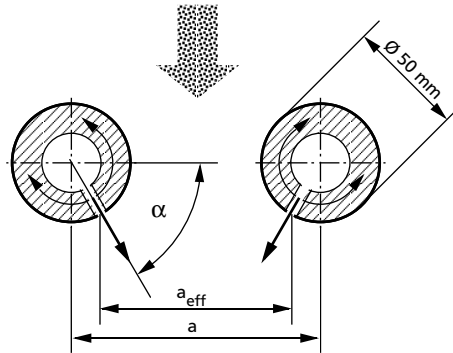


Abbildung 5-17: Senkrechter Schnitt durch die beiden Dampfdüsen zur Veranschaulichung der Verstellmöglichkeiten. Stellbereich des Düsenabstands  $a$ : 70–110 mm, Stellbereich des Winkels  $\alpha$ :  $0$ – $100^\circ$ .

Die Abbildungen 5-18 und 5-19 zeigen jeweils einige digitalisierte Standbilder von Videoaufnahmen bei einem Feststoffmassenstrom von  $140 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ .

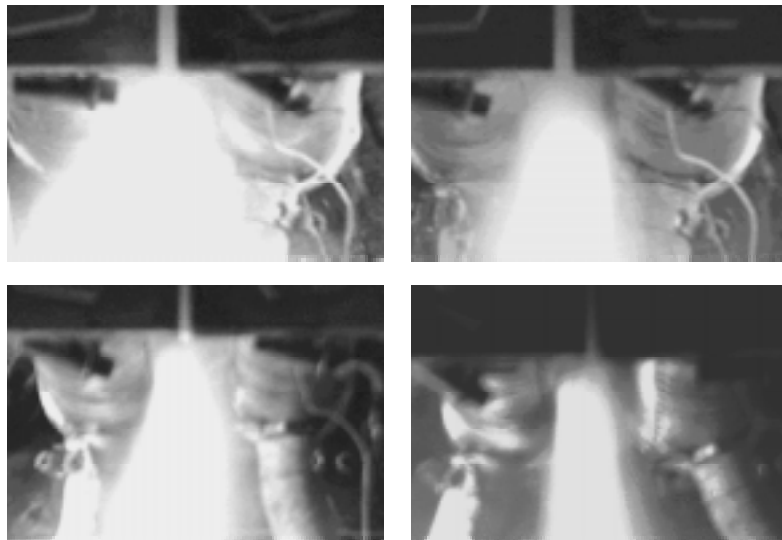
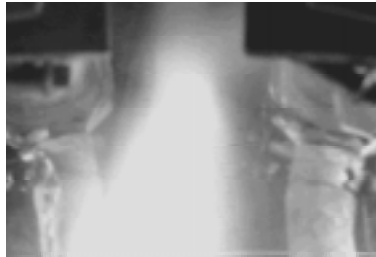
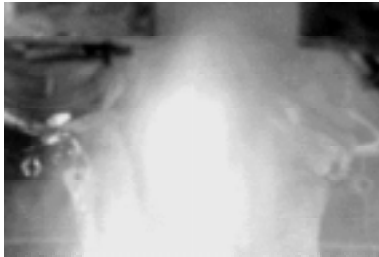


Abbildung 5-18: Standbilder von Videoaufnahmen der Partikel in der Agglomerationszone bei einem Feststoffmassenstrom von  $140 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ . Abstand  $a = 70$  mm, Anstellwinkel  $\alpha = 0^\circ$  (o.l.),  $20^\circ$  (o.r.),  $40^\circ$  (u.l.) und  $60^\circ$  (u.r.). Gasgeschwindigkeit an den Düsenmündungen  $\approx 10 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ .

Trotz der geringen Bildschärfe ist in Abbildung 5-18 gut zu erkennen, wie die Zone, in der sich die Pulverpartikel aufhalten (im Bild hell erscheinend), von links nach rechts und oben nach unten, d.h. größer werdendem Winkel  $\alpha$  kleiner wird.

Ursache hierfür ist der unterschiedliche Anteil an Feingut im Partikelschwarm. Bei kleinen Anstellwinkeln, also direkterer Anströmung des Schwarms durch den Dampf, wurde offensichtlich mehr Feingut durch Zerstörung von Trockenagglomeraten freigesetzt als bei einem Winkel von  $60^\circ$ . Die gleiche Tendenz zeigte sich auch beim maximalen Düsenabstand (siehe Abbildung 5-19).



Hier war jedoch eine geringere Staubentwicklung in der Agglomerationszone zu beobachten. Der Bereich, in dem sich die Partikeln hauptsächlich bewegten, schien in allen Fällen etwas enger und besser abgegrenzt zu sein als bei dem kleinen Düsenabstand.

Unabhängig vom Abstand der Düsen wurden vom Standpunkt der Staubvermeidung Düsenanstellwinkel von  $60^\circ$  oder größer als vorteilhaft bewertet. Ob bei der vergleichsweise intensiveren Anströmung des Partikelschwarms bei kleineren Winkeln trotzdem die Agglomeration aufgrund verstärkter Relativbewegungen gefördert wurde, ließ sich allein mit Hilfe der Videoaufnahmen nicht ermitteln. Zu diesem Zweck dienten die im nächsten Abschnitt besprochenen Agglomerationsversuche, bei denen der Einfluß einer bestimmten Düsenstellung anhand einer Partikelgrößenanalyse der Agglomerate bewertet werden konnte.

Zumindest ein günstiger Effekt des Düsenanstellwinkels  $60^\circ$  konnte jedoch bereits durch visuelle Beobachtung nachgewiesen werden: Der Bereich, in dem sich die Partikeln durch die Agglomerationszone bewegten, war, verglichen mit anderen Einstellungen, am schmalsten. Bei gegebenem Mengenstrom des Feststoffs ergibt sich damit die höchste Konzentration an Partikeln je Volumeneinheit. Neben der Verteilung der Relativgeschwindigkeiten ist die Konzentration an Partikeln ebenfalls maßgeblich für die Kollisionshäufigkeit in der Agglomerationszone.

## Hitzdrahtanemometrie

Die Bestimmung der Partikelgrößenverteilungen von Agglomeraten, die bei unterschiedlichen Einstellungen der Dampfdüsen hergestellt worden waren, hatte zum Zeitpunkt der Gasgeschwindigkeitsmessungen bereits zur Auswahl einer günstigen Düsenstellung geführt. Die Messungen mit dem Hitzdrahtanemometer

Experimente zur Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

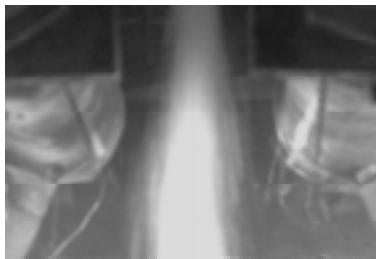


Abbildung 5-19: Standbilder von Videoaufnahmen der Partikeln in der Agglomerationszone bei einem Feststoffmassenstrom von  $140 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ . Abstand  $a = 110 \text{ mm}$ , Anstellwinkel  $\alpha = 0^\circ$  (o.l.),  $20^\circ$  (o.r.) und  $60^\circ$  (u.). Gasgeschwindigkeit an den Düsenmündungen  $\approx 10 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ .

Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

sollten diese Wahl absichern. Hierzu wurden bei Düsenanstellwinkeln  $\alpha$  von  $0^\circ$ ,  $60^\circ$  und  $90^\circ$  zur Horizontalen Messungen der lokalen mittleren Gasgeschwindigkeit in der Agglomerationszone durchgeführt. Abbildung 5–20 zeigt die Anordnung der Meßstellen.

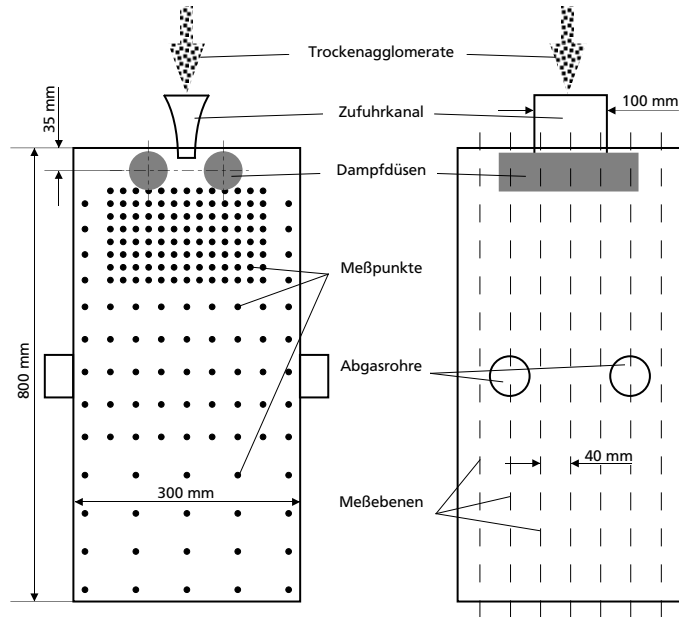
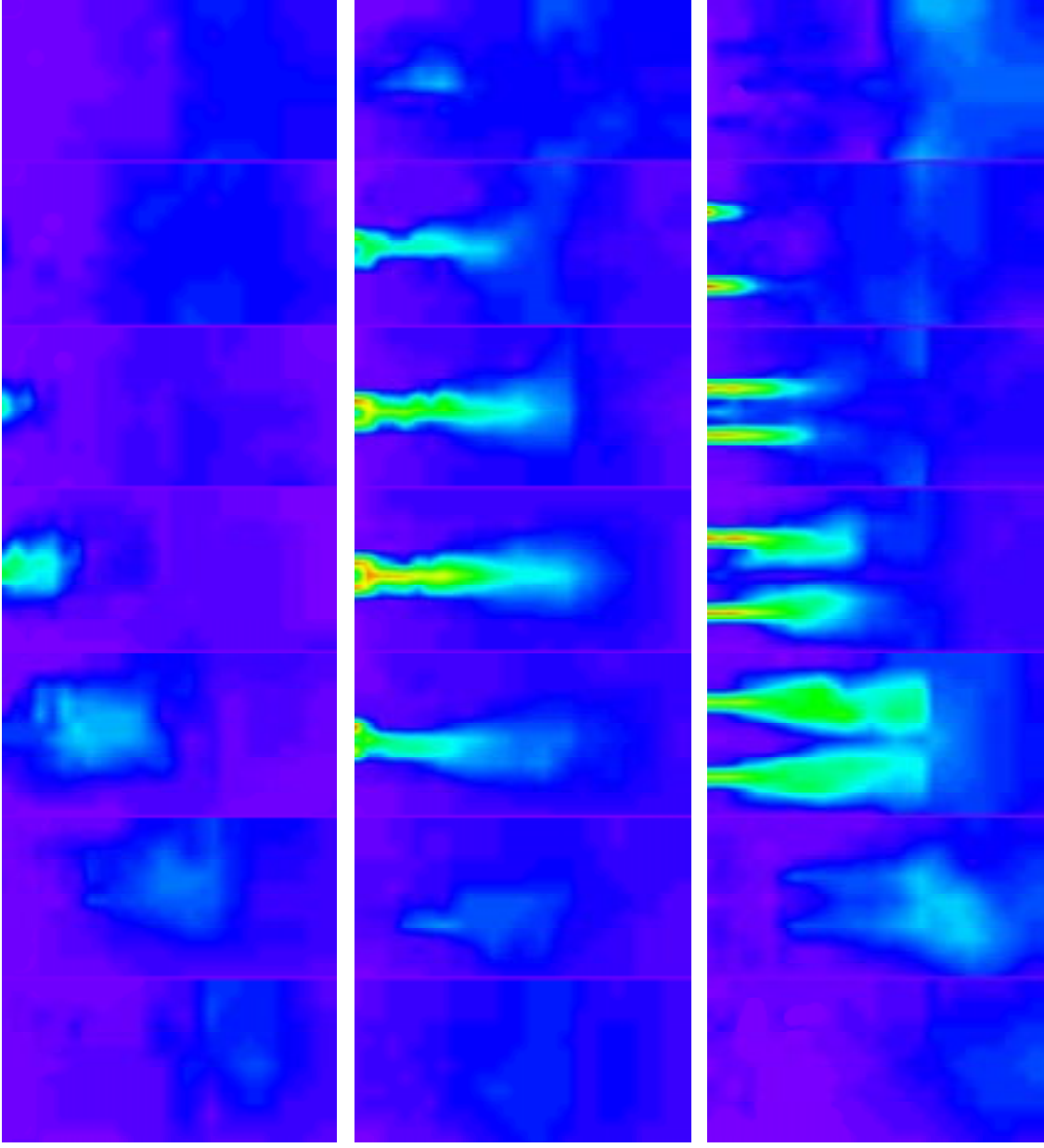


Abbildung 5–20: Schematische Darstellung der Agglomerationszone in Vorder- und Seitenansicht (linker bzw. rechter Teil der Abbildung) mit Lage der Meßorte zur Bestimmung der Strömungsgeschwindigkeit durch Hitzdrahtanemometrie.

An jedem der in Abbildung 5–20 links eingezeichneten Meßorte wurde die Strömungsgeschwindigkeit in den sieben in Abbildung 5–20 rechts dargestellten Ebenen gemessen. Während der Messungen schwankte die Anzeige des Geräts jeweils um einen Mittelwert. Diese Schwankungswerte wurden nicht getrennt ausgewertet, da einerseits angenommen wurde, daß die Trägheit des Sensors die Bestimmung der wahren Schwankungsgeschwindigkeit ohnehin nicht erlaubte und andererseits die zur Interpretation solcher Werte erforderlichen Kenntnisse nicht vorhanden waren.

Wie in Abbildung 5–20 zu erkennen, war die Einteilung der Meßorte nicht äquidistant. Mittels bilinearer Interpolation der innerhalb einer Meßebeene vorhandenen Meßwerte wurde jeweils eine vergrößerte Matrix von  $135 \cdot 270$  Punkten aufgefüllt. Dem errechneten Geschwindigkeitswert jedes dieser Punkte wurde aus einer Farbskala ein eindeutiger Farbwert zugeordnet, so daß sich die vergrößerte Matrix in Form eines Falschfarbenbilds darstellen ließ.

Die Geschwindigkeitsverteilung bei jeder der drei untersuchten Düsenstellungen wurde damit durch je sieben Falschfarbenbilder von  $135 \cdot 270$  Bildpunkten beschrieben. Diese Bildserien sind auf der Farbtafel zwischen Seite 140 und 141 dargestellt, wobei die Reihenfolge von links nach rechts der Reihenfolge der Ebenen in Abbildung 5–20 (rechts) entspricht. Die obere Reihe zeigt das Ergebnis für  $\alpha = 0^\circ$ , darunter sind die Ergebnisse für  $60^\circ$  und  $90^\circ$  abgebildet.



Falschfarbenbilder zur Veranschaulichung der Strömungsverhältnisse in der Agglomerationszone der Strahl- agglomerationsanlage. Abstand der Düsenachsen  $a = 110 \text{ mm}$ , Gas- geschwindigkeit am Düsenaustritt etwa  $7 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ . Düsenstellwinkel  $\alpha = 0^\circ$  (obere Reihe),  $60^\circ$  (mittlere Reihe) und  $90^\circ$  (untere Reihe). Die von der Farbe eines Bildpunkts repräsentierte Gasgeschwindigkeit steigt in der Reihenfolge violett- blau-grün-gelb-orangerot von  $0 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  bis  $3,2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  an (vgl. obenstehende Farbskala).



Die Falschfarbenbilder zeigen, abhängig von der Stellung der Düsen, auffällige Unterschiede im Strömungsverlauf. Für  $\alpha = 0^\circ$  ist die Strömung kaum ausgeprägt, die Strömungsleistung wird vermutlich bereits im Bereich zwischen den Düsen weitgehend dissipiert. Für  $\alpha = 60^\circ$  und  $\alpha = 90^\circ$  bilden sich dagegen deutlich sichtbar zwei Freistrahlen aus, die sich für  $\alpha = 60^\circ$  kurz unterhalb der Düsen zu einem Strahl vereinigen. In beiden Fällen ist die Kernzone der Freistrahlen mit Strömungsgeschwindigkeiten bis etwa  $3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  noch gut zu erkennen.

Während der Geschwindigkeitsmessungen betrug der Volumenstrom der aus den Düsen austretenden Luft etwa  $12 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  und der Volumenstrom der von unten in die Agglomerationszone aufsteigenden Trocknungsluft etwa  $55 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ . Aufgrund der Schachtabmessungen lag die mittlere Leerrohrgeschwindigkeit der Trocknungsluft allerdings mit  $0,15 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  so niedrig, daß sie im Falschfarbenbild nicht erkennbar ist. Die Einlaufströmung in die Abgasrohre (etwa in halber Höhe der Bilder, vergl. Abbildung 5–20) ist aufgrund des starken Abfalls der Strömungsgeschwindigkeit ebenfalls nur in einigen Fällen erkennbar.

Im Normalfall, d.h. Betrieb mit Dampf dürfte die Reichweite der Freistrahlen etwas kürzer sein, da der Dampf unter den üblichen Betriebsbedingungen nur etwa die 0,6fache Dichte der von unten aufsteigenden Trocknungsluft besitzt.

Insgesamt ist der von den Freistrahlen eingenommene Bereich der Agglomerationszone für  $\alpha = 60^\circ$  etwas kleiner als für  $\alpha = 90^\circ$ , aber deutlich größer als bei einem Anstellwinkel von  $0^\circ$ . Die lokale Energiedissipation und dementsprechend die Beanspruchung der Trockenagglomerate durch Strömungskräfte ist daher umso niedriger, je größer der Anstellwinkel der Dampfdüsen ist.

Es ist aber auch die Ejektorwirkung der Freistrahlen zu beachten, d.h. das Ansaugen und Beschleunigen von Gas aus der Umgebung in Strömungsrichtung. Videoaufnahmen des Partikelschwarms mit starker Vergrößerung und längeren Belichtungszeiten zeigten, daß insbesondere kleine Partikel hierbei Stromfäden folgten, die aus dem Partikelschwarm in den Einzugsbereich der Freistrahlen führten. Bei einem Düsenanstellwinkel von  $\alpha = 90^\circ$  bedeutet dies, daß Feingut aus dem Partikelschwarm ausgetragen wird und die Agglomerationswahrscheinlichkeit für diese Partikel stark vermindert ist. Bei Winkeln von  $\alpha \leq 80^\circ$  tritt dieser Effekt zwar ebenfalls auf, die Feingutpartikel werden jedoch von den Freistrahlen wieder in Richtung auf den Schwarm bewegt und können agglomerieren.

Die Ergebnisse der Gasgeschwindigkeitsmessungen legten, ebenso wie die visuelle Beobachtung des Partikelschwarms, die Vermutung nahe, daß ein Optimum der Düsenstellung existiert: Bei großen Anstellwinkeln werden vorhandene Trockenagglomerate kaum beansprucht, andererseits kommt es zu einer Aufweitung des Schwarms und damit zu einer Verringerung der Anzahlkonzentration der Partikel. Darüberhinaus wird selektiv Feingut aus dem Schwarm ausgetragen. Bei kleinen Winkeln ist die Beanspruchung der Trockenagglomerate stärker, die Freistrahlen bewirken jedoch eine Verengung des Schwarms. Bei sehr kleinen Anstellwinkeln entsteht eine Stauzone mit intensiver Turbulenz im Raum zwischen den Düsen. Hierbei werden Agglomerate zerstört und Feingutpartikel in Wirbeln aus dem Schwarm ausgetragen. Die Lage des Optimums konnte jedoch erst durch Partikelgrößenanalyse der erzeugten Agglomerate bestimmt werden.

### 5.3.3 Einfluß der Stellung der Dampfdüsen auf die Agglomeratgröße

In der hier beschriebenen Anlage hat die Stellung der Dampfdüsen einen deutlichen Einfluß auf die Agglomeratgröße, wie sich bereits bei der im vorigen Abschnitt beschriebenen visuellen Beobachtung der Befeuchtungszone zeigte. Die Stellung der Düsen wurde aufgrund von Partikelgrößenanalysen der hergestellten Agglomerate optimiert, wobei in der ersten Versuchsserie die mit einem Laserbeugungsmeßgerät ermittelte Größenverteilung der im Fußteil des Apparats aufgefangenen Feuchtagglomerate Optimierungskriterium war.

Die Entwicklung der Bildanalysemethode (siehe Abschnitt 3.2.1) ermöglichte zu einem späteren Zeitpunkt die direkte, berührungslose Partikelgrößenanalyse der im Fallschacht sedimentierenden Agglomerate. Hierdurch entfielen erstens unter Umständen ergebnisverfälschende Präparationsschritte, zweitens war durch kurzzeitiges Abschalten der Dampfzufuhr ein sofortiger Vergleich zwischen Feucht- und Trockenagglomeraten sowie die Untersuchung der Degglomeration durch Strömungskräfte möglich.

#### Ermittlung der optimalen Düsenstellung durch Partikelgrößenanalyse

Als Modellsubstanz diente bei dieser Versuchsserie Saccharose, die jeweils unmittelbar vor Versuchsbeginn gemahlen wurde. Die durch Naßsiebung bestimmte (und daher nicht direkt mit den in Kapitel 4 gezeigten Laserbeugungsmessungen vergleichbare) Partikelgrößenverteilung des Pulvers ist in Abbildung 5-21 dargestellt.

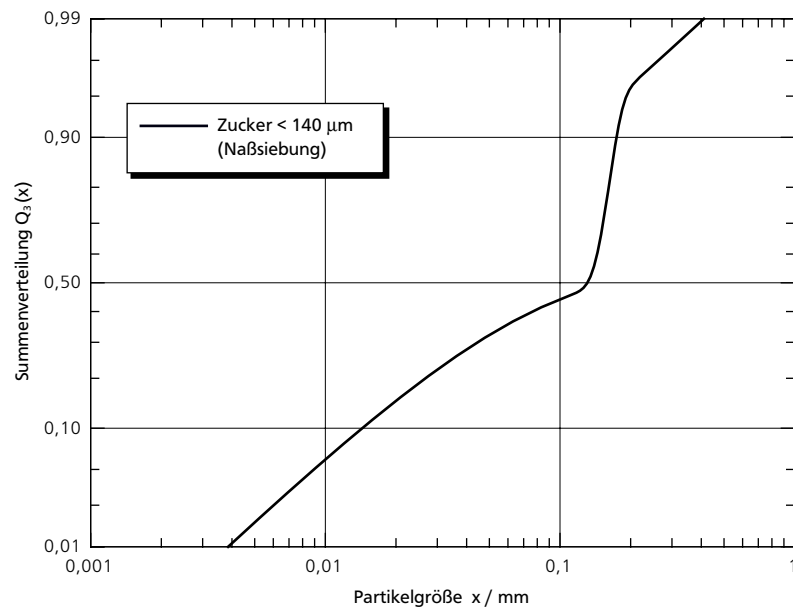


Abbildung 5-21: Partikelgrößenverteilung der für die Untersuchungen zum Einfluß des Düsenstellwinkels verwendeten gemahlene Saccharose (Meßmethode: Naßsiebung).



Nach Begutachtung der im vorigen Abschnitt beschriebenen Videoaufnahmen wurde ein Versuchsplan festgelegt, der die Herstellung von Agglomeraten unter folgenden Bedingungen beinhaltet:

Experimente zur Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

- Feststoffmassenströme von 140 und 280 kg · h<sup>-1</sup>,
- Düsenmündungsabstände  $a_{eff}$  (siehe Abbildung 5-17) von 46 und 64 mm,
- Düsenanstellwinkel  $\alpha$  von 0, 20, 40, 60 und 90 °,
- Dampfmengestrom in Abhängigkeit des Düsenanstellwinkels so eingestellt, daß die Geschwindigkeitskomponente des Freistrahls in Querrichtung, d.h. auf die Partikel zu, bei allen Versuchen (Ausnahme 90 °) jeweils 4,2 m · s<sup>-1</sup> betrug,

$$v_h \cdot \cos \alpha = const. = 4,2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1} \quad (5-18)$$

- Pulverdosierung mit einem Walzenkompaktierer.

Zur Bestimmung der Partikelgrößenverteilung der erzeugten Agglomerate mittels Laserbeugungsspektrometrie wurde das agglomerierte Pulver nach Entnahme aus dem im Fußraum des Apparats befindlichen Auffangbehälter im Wärmeschrank nachgetrocknet und anschließend mit einem Rotationsprobeteiler eine repräsentative Probe hergestellt. Alle Versuche wurden von der Herstellung des Mahlguts bis zur Bestimmung der Agglomeratgröße jeweils dreifach vollständig durchgeführt. Die Abbildungen 5-22 bis 5-25 zeigen die Versuchsergebnisse. In jedem Diagramm ist jeweils für einen Massenstrom und einen Düsenabstand das Meßergebnis bei unterschiedlichen Düsenanstellwinkeln  $\alpha$  zusammengefaßt.

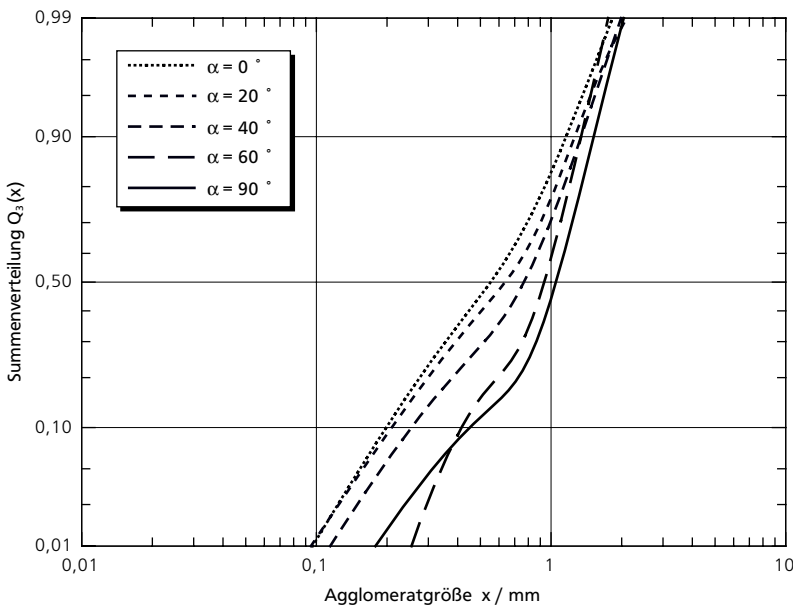


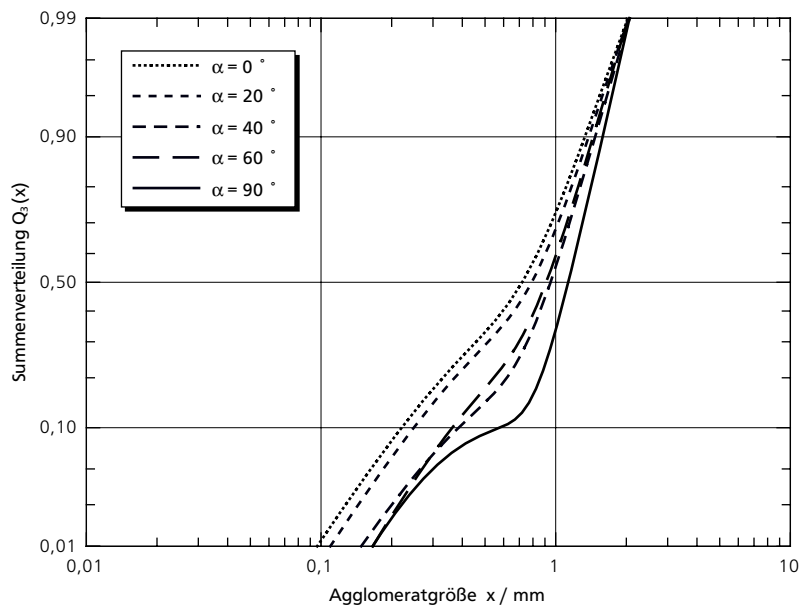
Abbildung 5-22: Partikelgrößenverteilungen von strahlagglomerierter Saccharose bei einem Feststoffmassenstrom von 140 kg · h<sup>-1</sup>. Abstand  $a_{eff} = 46$  mm, Gasgeschwindigkeit an den Düsenmündungen 4,2 bis 11 m · s<sup>-1</sup>, Dosierung mit Walzenkompaktierer.

Der größte mittlere Partikeldurchmesser in Abbildung 5-22 ergibt sich bei einem Anstellwinkel von 90 °, wobei allerdings der Feingutanteil höher als bei 60 ° ist.

Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

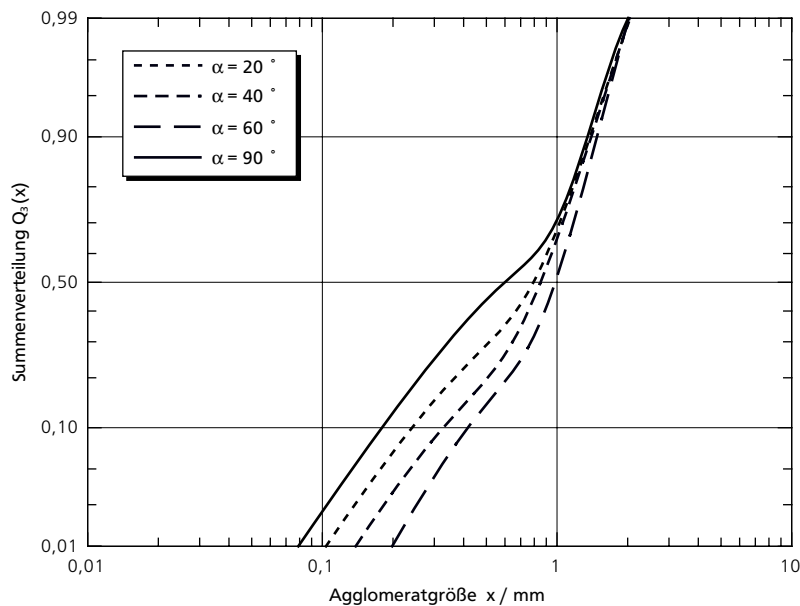
Ein ähnliches Ergebnis stellt sich beim doppelten Feststoffmassenstrom ein (siehe Abbildung 5-23).

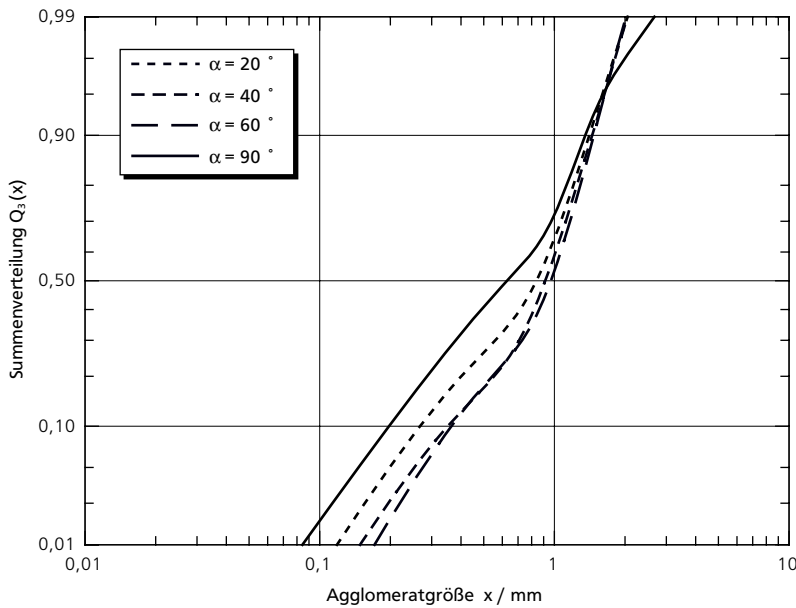
Abbildung 5-23: Partikelgrößenverteilungen von strahlagglomerierter Saccharose bei einem Feststoffmassenstrom von  $280 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ . Abstand  $a_{\text{eff}} = 46 \text{ mm}$ , Gasgeschwindigkeit an den Düsenmündungen  $4,2 \text{ bis } 11 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ , Dosierung mit Walzenkompaktierer.



Bei größerem Düsenabstand ergeben sich jedoch bei beiden Massenströmen für den Winkel  $\alpha = 90^\circ$  die schlechtesten Ergebnisse. Die Winkelstellung  $0^\circ$  konnte hier allerdings nicht untersucht werden, da der Abstand von  $64 \text{ mm}$  aufgrund des unzureichenden Verstellbereichs nicht einstellbar war.

Abbildung 5-24: Partikelgrößenverteilungen von strahlagglomerierter Saccharose bei einem Feststoffmassenstrom von  $140 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ . Abstand  $a_{\text{eff}} = 64 \text{ mm}$ , Gasgeschwindigkeit an den Düsenmündungen  $4,5 \text{ bis } 11 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ , Dosierung mit Walzenkompaktierer.





Experimente zur  
Aufbauagglomeration  
in der Befeuchtungszone

Abbildung 5-25: Partikelgrößenverteilungen von strahlagglomerierter Saccharose bei einem Feststoffmassenstrom von  $280 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ . Abstand  $a_{\text{eff}} = 64 \text{ mm}$ , Gasgeschwindigkeit an den Düsenmündungen  $4,5 \text{ bis } 11 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ , Dosierung mit Walzenkompaktierer.

Als günstigster Anstellwinkel  $\alpha$  erschien der Wert  $60^\circ$ , da sich hier unter allen Bedingungen gleich gute Ergebnisse erzielen ließen. Bei minimalem Düsenabstand ergaben sich zwar für  $\alpha = 90^\circ$  höhere  $x_{50}$ -Werte, die Verteilungen waren jedoch auch breiter. Der enge Düsenabstand führte außerdem schnell zu Feststoffablagerungen auf den Düsenrohren. Obwohl dies die Versuche nicht behinderte, schien es sinnvoll, solche Ablagerungen möglichst von vornherein zu vermeiden. Die Dampf Düsen wurden daher auf größtmöglichen Abstand eingestellt.

### Deglomeration durch Strömungskräfte

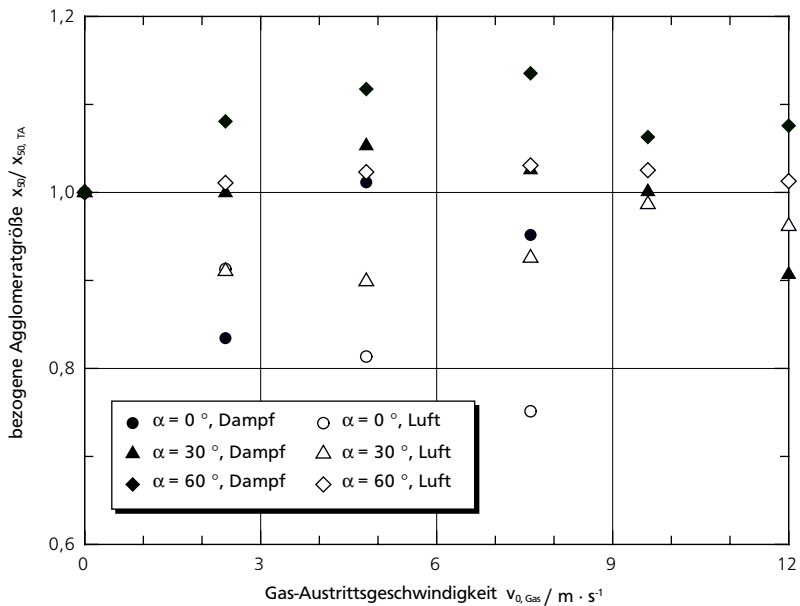
Alle oben dargestellten Partikelgrößenverteilungen sind das Resultat eines Prozesses, der stets Agglomeration und Deglomeration beinhaltet. Die Entwicklung der berührungslosen Partikelgrößenmessung durch Auswertung von Videoaufnahmen der sedimentierenden Partikeln ermöglichte erstmals die getrennte Untersuchung dieser beiden Effekte bei Feststoffmassenströmen bis  $30 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ .

Wird anstelle von Dampf Luft durch die Düsen eingeblasen, entfällt der Agglomerations schritt praktisch völlig, da die Partikeln bei einer Kollision nicht mehr aneinander haften. Eine Deglomeration der zudosierten Trockenagglomerate kann so durch Vergleich der Partikelgrößenverteilungen bei ein- und ausgeschalteter Düsenluft studiert werden, allerdings nur durch Beobachtung der im Fallschacht sedimentierenden Partikeln. Diese bleiben ohne die verfestigende Wirkung des Befeuchtens und Trocknens so instabil, daß sie bei Erreichen des Auffangbehälters im Fußteil der Anlage bereits wieder zerfallen.

Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

Abbildung 5–26 zeigt einen Teil der Ergebnisse dieser Versuchsserie. Hauptsächlich wurde hier mit frischgemahlener Fructose gearbeitet, da diese Substanz ohne Konditionierung bereits genügend Wasser enthielt, um große Trockenagglomerate zu bilden (vergl. Kapitel 4). Dies verbesserte die Meßgenauigkeit der Partikelgrößenanalyse, da die Detailauflösung der Videoaufnahmen bei der verwendeten Anordnung etwa 40 µm betrug und somit nur Partikeln  $\geq 120 \mu\text{m}$  bei der Bildauswertung berücksichtigt werden konnten.

Abbildung 5–26: Normierte und auf die Größe der im jeweiligen Versuch zudosierten Trockenagglomerate bezogene  $x_{50}$ -Werte der Partikelgrößenverteilung von Fructoseagglomeraten im Fallschacht der Anlage. Feststoffmassenstrom  $\approx 25 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ , Düsenabstand 110 mm, Dosierung mit Walzenkompaktierer, Meßort etwa 20 cm unterhalb der Agglomerationszone.



Bei der Interpretation von Abbildung 5–26 ist zu berücksichtigen, daß der Vertrauensbereich eines einzelnen Meßpunkts etwa  $\pm 0,05$  beträgt. Der Punkt 0/1 entspricht der ungestörten Sedimentation der Partikeln ohne Agglomeration. Bei Eindüsen von Luft zeigt sich für  $\alpha = 0^\circ$  und teilweise auch für  $\alpha = 30^\circ$  eine signifikante Verringerung des mittleren Partikeldurchmessers um bis zu 25 %. Bei einem Anstellwinkel von  $60^\circ$  findet hingegen keine Zerkleinerung statt.

Die Meßwerte für Dampf (ausgefüllte Symbole) liegen dagegen in fast allen Fällen signifikant höher als die jeweils zugeordneten Werte für Luft. Hier zeigt sich ein „Bruttozuwachs“ der mittleren Partikelgröße von maximal 20 %. Nur bei einem Düsenanstellwinkel von  $60^\circ$  ergibt sich jedoch auch ein „Nettozuwachs“, da in diesem Fall das Partikelwachstum nicht von einer Deglomeration durch Strömungskräfte überlagert wird.

Die Messungen waren insgesamt nur teilweise quantitativ auswertbar. In verschiedenen Fällen wurde beobachtet, daß insbesondere Feingutpartikeln von der Strömung an der Meßzone vorbeitransportiert wurden. Dieser Effekt wurde zwar im Prinzip durch den unmittelbaren Vergleich zwischen der Eindüsung von Dampf und Luft ausgeglichen, erhöhte aber in vielen Fällen den Meßfehler deutlich.

## Schlußfolgerungen

## Experimente zur Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

Vom Standpunkt der Partikelabscheidung in einem Schwarm aus Partikeln unterschiedlicher Größe könnte angenommen werden, daß Geschwindigkeitsgradienten und turbulente Verwirbelung einen positiven Einfluß auf die Agglomeration haben: Kleine Partikeln passen sich schneller einer veränderten Strömungsgeschwindigkeit an als große, so daß Relativbewegungen entstehen. Diese Idee findet sich sowohl in der Parentliteratur (NESTLÉ, 1974-1, 1974-2, GENERAL FOOD CORPORATION, 1986) als auch in der Arbeit von SCHUCHMANN (1993).

Die Partikelgrößenanalysen der erzeugten Agglomerate widerlegten diese Annahme für die hier gewählten Bedingungen jedoch eindeutig, da eine intensivere Anströmung des Partikelschwarms deutlich geringere Agglomeratgrößen bewirkte. Folgende Gesichtspunkte spielen hier eine Rolle:

- Der wesentliche Schritt zur Partikelvergrößerung ist die Bildung von Vor- bzw. Trockenagglomeraten des feindispersen Ausgangsmaterials im Zuteilgerät. Die Agglomerate der hier untersuchten Pulver waren sehr instabil.
- Instabile Voragglomerate können beim Durchqueren von Zonen mit starken Geschwindigkeitsgradienten, wie z.B. Turbulenzwirbeln, erodiert oder zerkleinert werden. Dieser Effekt kann offensichtlich nicht durch stärkeres Wachstum aufgrund erhöhter Stoßhäufigkeit ausgeglichen werden.
- Geschwindigkeitsschwankungen in Form von Turbulenzwirbeln müssen auch vermieden werden, da andernfalls Feingutpartikeln aus dem Schwarm herausgetragen werden und nicht mehr agglomerieren. Die Flugbahnen größerer Partikeln bleiben dagegen bei den hier gewählten Bedingungen von den Dampfstrahlen unbeeinflusst.

Alle Meßergebnisse deuten an, daß bei dem hier verwendeten Apparat ein Düsenanstellwinkel von etwa  $60^\circ$  bei einem Düsenabstand von 110 mm am günstigsten ist. Bis zu Gasaustrittsgeschwindigkeiten von  $v_{0, Gas} = 12 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  ist dann ausreichendes und schonendes Befeuchten des Feststoffs möglich, da die Geschwindigkeit der Freistrahlen bei Erreichen des Schwarms in der Größenordnung der Sedimentationsgeschwindigkeit der Partikeln liegt (siehe Abb. 5-1). Nach BECKER (1986) gilt:

$$v_{Gas, max}(x) = 2,4 \cdot v_{0, Gas} \cdot \sqrt{\frac{s}{x + 2,5 \cdot s}} \quad (5-19)$$

Mit der Düsenpalthehöhe  $s = 2 \text{ mm}$ , einer Entfernung von  $x \approx 85 \text{ mm}$  vom Düsenmund und einer Gasaustrittsgeschwindigkeit von  $v_{0, Gas} \leq 12 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ :

$$v_{Gas, max} = 0,36 \cdot v_{0, Gas} \leq 4,3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1} \quad (5-20)$$

Unter Einhaltung dieser Bedingung ist auch die Konstruktion anderer Düsenanordnungen mit vergleichbarem Resultat möglich. Je nach Produkt konnten bei diesen Dampfmengeströmen bis zu  $280 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$  Feststoff agglomeriert werden.

### 5.3.4 Weitere Eigenschaften des agglomerierten Materials

Die durch trockene Voragglomeration und nachfolgende Partikelverfestigung und Aufbauagglomeration im Dampf hergestellten Agglomerate besitzen eine unregelmäßige, poröse Struktur und verfügen über gute Instanzeigenschaften. Abbildung 5–27 zeigt eine REM-Aufnahme eines typischen Agglomerats.

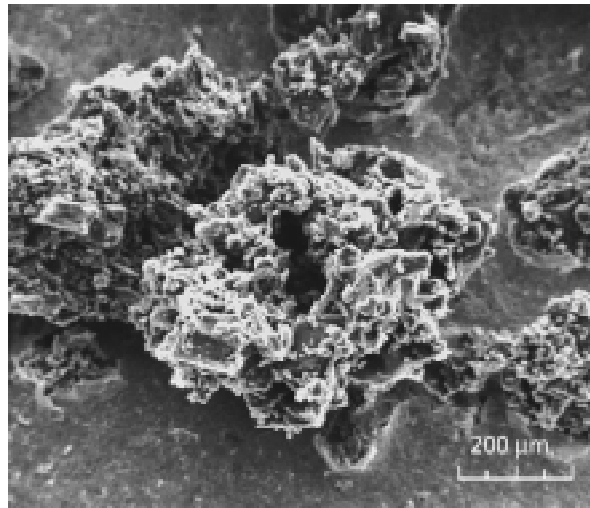


Abbildung 5–27: REM-Aufnahme von strahlagglomerierter Saccharose.

### Benetzungsverhalten

Strahlagglomerierte Pulver aus reinen Zuckern besitzen aufgrund der guten Feststofflöslichkeit ein so gutes Benetzungsverhalten, daß die Meßergebnisse mit üblichen Instantprodukten kaum verglichen werden können. Interessant ist jedoch ein Vergleich mit dem Ausgangsmaterial (kleinste Fraktion in Abbildung 5–28):

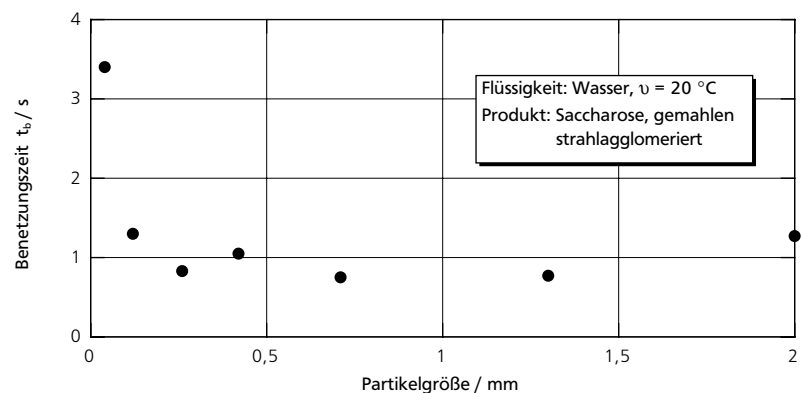
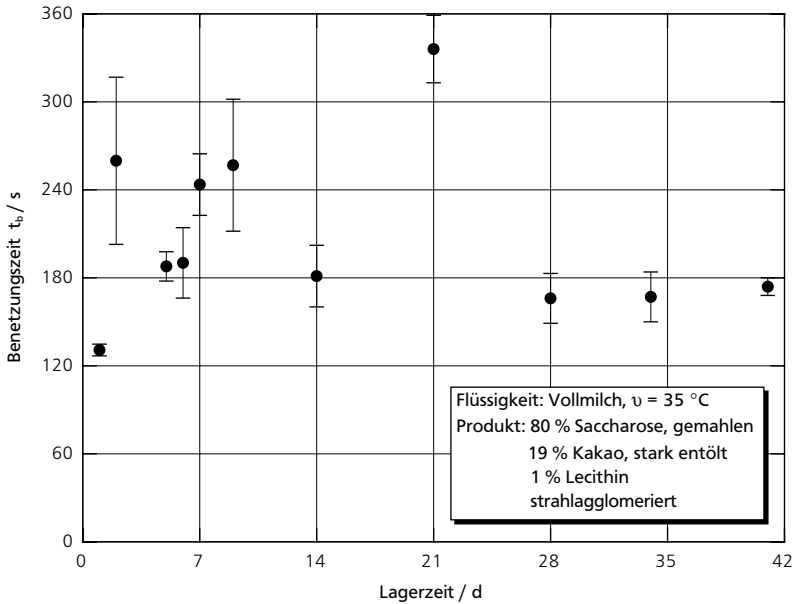


Abbildung 5–28: Benetzungszeit  $t_b$  einer 8 mm hohen Schüttung aus strahlagglomerierter Saccharose für verschiedene Siebfraktionen bzw. für das Ausgangsmaterial (Einzelmessungen).

Die Agglomeration verkürzt die zur Benetzung erforderliche Zeit  $t_b$  (hier bei einer Schichthöhe von 8 mm) etwa auf ein Viertel.

Zum Vergleich mit handelsüblichen Instant-Kakaogetränken wurde eine Mischung aus lecithiniertem Kakao und gemahlener Saccharose agglomeriert und untersucht. Hierbei zeigte sich, daß das Benetzungsverhalten dieses Versuchsprodukts bereits im Bereich der Eigenschaften handelsüblicher Getränkepulver lag (Abbildung 5-29, Tabelle 5-3, Anhang III):



Experimente zur Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

Abbildung 5-29: Benetzungszeit  $t_b$  einer 8 mm hohen Schüttung eines strahlagglomerierten kakaohaltigen Getränkepulvers über einen Lagerzeitraum von 6 Wochen.

Produkt	Benetzungszeit $t_b$ / s	Produkt	Benetzungszeit $t_b$ / s
<i>Die Weissen</i>	9,6 ± 0,7	<i>Nesquik z. r.</i>	299 ± 13
<i>Hanse Wappen</i>	9,8 ± 0,7	<i>Suchard express</i>	134 ± 5,5
<i>Kaba</i>	7,6 ± 0,1	<i>Tchibo</i>	174 ± 10
<i>Milka</i>	146 ± 5,8	<i>Trink-fix</i>	35,3 ± 8,6
<i>Nesquik</i>	21 ± 8,4	<i>Tropengold</i>	37 ± 1,7

Tabelle 5-3: Benetzungszeiten handelsüblicher kakaohaltiger Getränkepulver in Vollmilch bei 35 °C. Schütthöhe 8 mm.

Die Benetzungszeiten der im Handel erhältlichen kakaohaltigen Instantprodukte wichen teilweise um Größenordnungen voneinander ab, obwohl die meisten Produkte eine ähnliche Zusammensetzung aufweisen. Die Unterschiede werden nicht nur durch unterschiedliche Partikelgrößenverteilung der Agglomerate hervorgerufen, sondern auch durch die Beeinflussung zahlreicher anderer Parameter. Da es sich hierbei um Betriebsgeheimnisse der Hersteller handelt und dieses Wissen offensichtlich beträchtlichen Einfluß auf das Instantisierungsergebnis hat, wurde in dieser Arbeit nicht weiter in Richtung Instantkakaoherstellung experimentiert.

### Abriebfestigkeit

Die Abriebfestigkeit der strahlagglomerierten Pulver unterschied sich nicht wesentlich von handelsüblichen Produkten, wie sich bei einigen Einzelmessungen der Friabilität der Kakaogetränkemischung bzw. von strahlagglomerierter Saccharose zeigte.

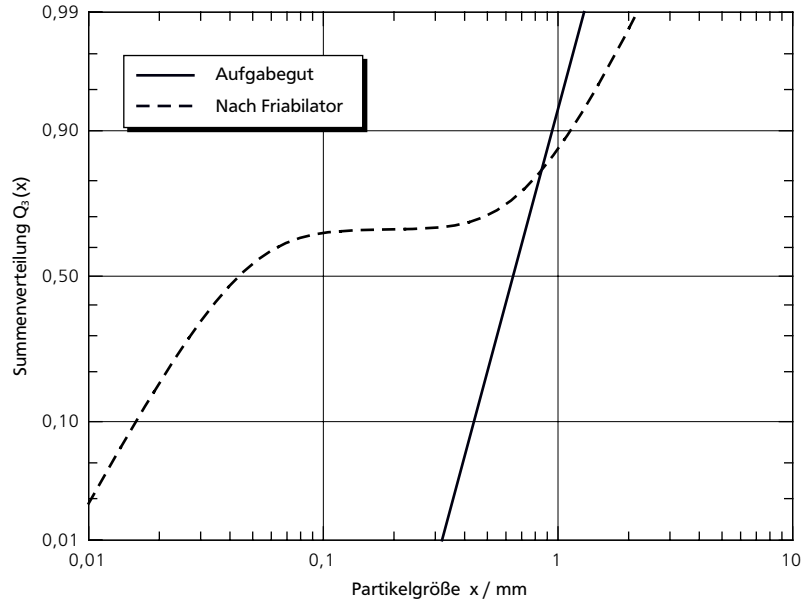


Abbildung 5-30: Ergebnis des Friabilitätstests einer strahlagglomerierten kakaohaltigen Getränkepulvermischung.

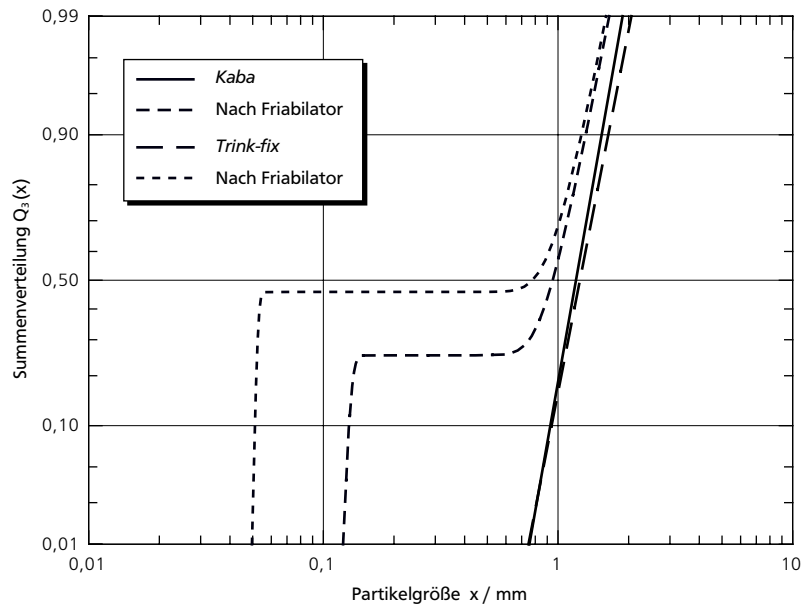
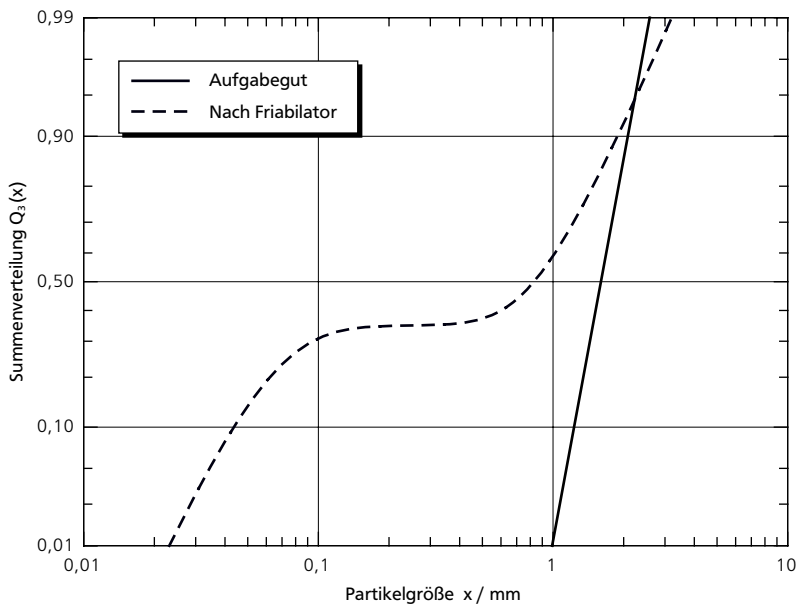


Abbildung 5-31: Ergebnisse der Friabilitätstests von handelsüblichen kakaohaltigen Getränkepulvern.





Experimente zur  
Aufbauagglomeration  
in der Befeuchtungszone

Abbildung 5-32: Ergebnis des Friabilitätstests von strahlagglomerierter Saccharose.

## Porosität

Ähnlich wie bei Pulverschüttungen hat die Porosität auch entscheidenden Einfluß auf das Wiederbefeuchtungsverhalten einzelner Agglomerate (siehe auch Gleichung 3-15). Sofern eine kritische Porosität nicht überschritten wird, ist die Benetzungszeit etwa proportional  $\epsilon^{-1-1}$ . Aus diesem Grund ist bei Produkten, die schnelllöslich sein sollen, neben der Partikelgrößenverteilung des agglomerierten Pulvers auch die Porosität der Agglomerate von Interesse.

Vorversuche mit einem Quecksilberporosimeter, wie es üblicherweise z.B. zur Bestimmung der Porenradienverteilung von Katalysator- oder Aktivkohlekörnern eingesetzt wird, führten bei der Untersuchung von strahlagglomerierten Pulvern nicht zu verwertbaren Ergebnissen. Aufgrund der Struktur der Agglomerate überlappten sich die Porenradienverteilung der Hohlräume zwischen den Agglomeraten und die Porenradienverteilung der Hohlräume zwischen den Primärpartikeln der Agglomerate. Das Eindringen des Quecksilbers in die Agglomerate überlagerte sich mit dem Auffüllen der Hohlräume der Schüttung, so daß der Startpunkt der Intrusion in die Agglomerate nicht festzustellen war.

Mit dem in Abschnitt 3.2.2 beschriebenen Bildanalyseverfahren waren jedoch erste Untersuchungen der Porosität von strahlagglomerierten Pulvern möglich. Messungen konnten für Saccharose sowie für ein Pulver auf Basis des Zuckeraustauschsstoffs *Mannit* durchgeführt werden. Beide Pulver wurden bei der Dosierung mit einem Walzenkompaktierer voragglomeriert. In einer zweiten Versuchsreihe mit Saccharosepulver diente eine Vibrationsförderrinne als Dosiergerät.

Je nach mittlerer Größe der untersuchten Agglomeratfraktionen wurden je Versuchsserie das Volumen und das Gewicht von 20–50 Agglomeraten bestimmt und aus diesen Werten die durchschnittliche Porosität berechnet:

- Die Porositätsmessung von strahlagglomerierter Saccharose (Walzenkompaktierer) ergab sowohl für eine Siebfraction von 1,1–2 mm als auch für eine Fraction von 0,45–0,56 mm Agglomeratgröße jeweils einen Wert von  $\varepsilon = 0,45 \pm 0,05$ .
- Für eine durch Zerkleinern und Sichten von Agglomeraten der Größenklasse 1,1–2 mm erzeugte Vergleichsfraction von ebenfalls 0,45–0,56 mm Agglomeratgröße ergab sich der Wert  $\varepsilon = 0,47 \pm 0,1$ .
- Zur Kontrolle der optischen Porositätsbestimmung wurden zusätzlich einige Experimente durchgeführt, bei denen jeweils 20–50 Agglomerate im Ursprungszustand und nach Benetzen mit Silikonöl gewogen wurden. Hierbei ergab sich für 1,1–2 mm große Partikeln  $\varepsilon = 0,49$ , für Bruchstücke dieser Partikeln  $\varepsilon = 0,47$  und für Partikeln von 0,45–0,56 mm  $\varepsilon = 0,46$ .
- Obwohl die exakte mittlere Feststoffdichte der mannithaltigen Agglomerate (Walzenkompaktierer) unbekannt war, wurde ihre Porosität unter Annahme von  $\rho = 1.500 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  ebenfalls bestimmt, da sie in sehr breiter Größenverteilung vorlagen. Die Untersuchung von insgesamt sechs Größenklassen im Bereich 0,35–3,5 mm ergab einen Wert von  $\varepsilon = 0,49 \pm 0,03$ .
- Die Porositätsmessung der mit der Vibrationsrinne zudosierten, strahlagglomerierten Saccharose ergab für drei Siebfractionen im Bereich zwischen 0,45 mm und 1,8 mm einen Wert von  $\varepsilon = 0,58 \pm 0,03$ .

Aus den Meßergebnissen wurde geschlossen, daß die Porosität der durch Vor-kompaktieren im Dosiergerät und nachfolgende Aufbauagglomeration im Dampf entstandenen Agglomerate im Rahmen der Meßgenauigkeit nicht von ihrer Größe abhängt. Diese Schlußfolgerung steht im Einklang mit dem Ergebnis der Partikelgrößenanalysen der Trockenagglomerate bzw. der im Dampf gewachsenen Agglomerate (siehe vorangegangener Abschnitt). Die Verdichtung im Dosiergerät hat dagegen wesentlichen Einfluß auf die Porosität (vergl. Kapitel 4).

Es ist zwar durchaus denkbar, daß die durch Anlagerung entstandenen äußeren Schichten der Agglomerate sich bezüglich ihrer Porosität vom Agglomeratkern unterscheiden. Mit den in dieser Arbeit verwendeten Methoden konnten solche Unterschiede aber nicht nachgewiesen werden. Dabei ist auch zu berücksichtigen, daß in der Befeuchtungszone der hier verwendeten Strahlagglomerationsanlage erstens kein starkes Wachstum der zudosierten Trockenagglomerate stattfindet und zweitens ein Teil dieses Wachstums wiederum auf Kollisionen von Trockenagglomeraten untereinander beruht. Die Porosität der Agglomerate wird also bereits bei der Voragglomeration weitgehend festgelegt, wodurch die Bedeutung dieses Verfahrensschritts weiter hervorgehoben wird.

## 5.4 Modellierung der Aufbauagglomeration im sedimentierenden Schwarm

Modellierung der Aufbauagglomeration im sedimentierenden Schwarm

### 5.4.1 Grundlegende Annahmen

Das im folgenden vorgestellte Modell zur Berechnung des Agglomeratwachstums in der Befeuchtungszone der Strahlagglomerationsanlage beruht auf einer Reihe von Annahmen, die das Problem soweit vereinfachen, daß es mit vertretbarem Aufwand auf einem Personalcomputer gelöst werden kann.

Das Modell berücksichtigt nur die Agglomeration aufgrund unterschiedlicher Sedimentationsgeschwindigkeiten der Partikeln im Fallschacht des Apparats (*kinematische Agglomeration*, LÖFFLER, 1988). Da im hier betrachteten Fall ein Partikelschwarm in einem Gas sedimentiert und dieses Gas mitbeschleunigt, sind die im Schwarm beobachteten Fallgeschwindigkeiten größer als für Einzelpartikeln. Bei der Berechnung der Relativgeschwindigkeiten werden daher nicht die Lösungen der Bewegungsgleichungen für Einzelpartikeln verwendet, wie in Abbildung 5-1 aufgetragen. Die Bewegungsgleichung 5-1 wurde um einen Term erweitert, der die Beschleunigung des Gases in Fallrichtung mit  $\frac{1}{3} g$  annähert. Mit dieser Voraussetzung ergeben sich realistischere, kleinere Relativgeschwindigkeiten (siehe Abbildung 5-33), wie sie aus doppeltbelichteten Aufnahmen sedimentierender Partikeln abgeschätzt wurden. Die Bewegungsgleichung wurde für Partikeln bis  $100 \mu\text{m}$  Durchmesser mit einer Feststoffdichte von  $1.600 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  gelöst, für Partikeln größer  $200 \mu\text{m}$  mit einer Feststoffdichte von  $600 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  und für dazwischen liegende Partikelgrößen mit einer Feststoffdichte von  $1.000 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ .

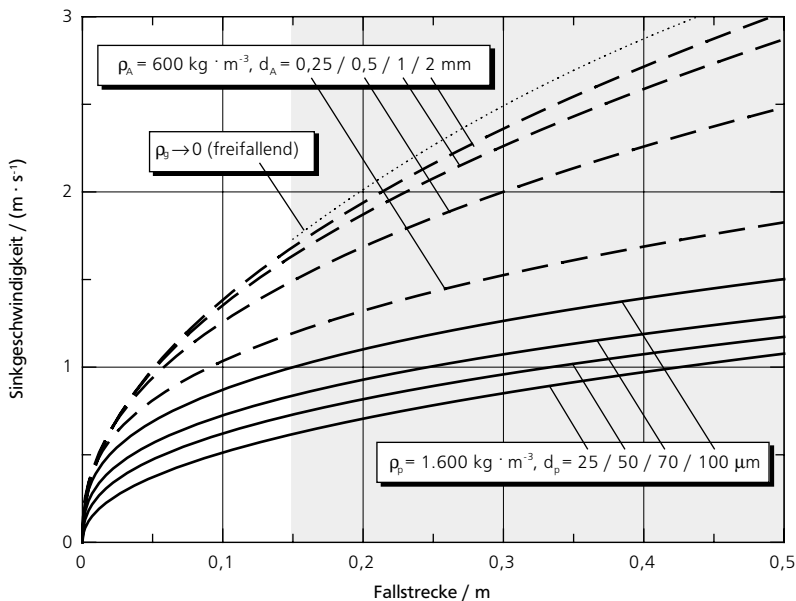


Abbildung 5-33: Fallgeschwindigkeit von Partikeln bei der Schwarm sedimentation als Funktion des Wegs unter der Annahme einer Mitbeschleunigung des Gases mit  $\frac{1}{3} g$ . Der grau unterlegte Bereich entspricht einem Aufenthalt der Partikeln in der Befeuchtungszone des Strahlagglomerationsapparats.

Zur Berechnung der Kollisionsrate dient das in Abschnitt 5.1 dargestellte Abscheidungsmodell. Die hier betrachteten Kombinationen von Partikelgröße und Relativgeschwindigkeit ergeben in den meisten Fällen einen Auftreffgrad von 1. Die Haftwahrscheinlichkeit wird bei allen Rechnungen zu 1 angenommen. Gleichung 5-16 ergibt mit den Stoffwerten gesättigter wäßriger Zuckerlösungen bei 100 °C kritische Relativgeschwindigkeiten, die mindestens eine Größenordnung über den möglichen Relativgeschwindigkeiten liegen (vergl. Abbildung 5-12).

Hierbei gilt die (ungünstigste) Annahme, daß sich das Kondensat nicht als dicker Film an der Außenkontur des Agglomerats, sondern gleichmäßig verteilt auf den freien Oberflächen aller im Agglomerat enthaltenen Primärpartikeln niederschlägt. Dieser Vorgang ist gleichzeitig wesentlich für die Agglomeratverfestigung. Nach MARTIN und GNIELINSKI (1997) kann die Gültigkeit der Annahme durch Vergleich der Wärmeleitfähigkeit des porösen Körpers mit der „Diffusions-Wärmeleitfähigkeit“ (nach SCHLÜNDER und TSOTSAS, 1988, S. 82 ff.) aufgrund des diffusiven Stofftransports in der Gasphase und der Kondensation an noch nicht erwärmten Flächen überprüft werden:

$$\lambda_{diff} = \frac{\varepsilon \cdot \delta_{12}}{\bar{R}^2 \cdot T^3} \cdot \frac{p^*}{1 - \frac{p^*}{p}} \cdot \Delta \bar{h}_V^2 \quad (5-21)$$

Mit der mittleren Temperatur 60 °C, einem mittleren Wasserdampfdiffusionskoeffizienten  $\delta_{12} = 3,3 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  (nach ROSSIE, vergl. SCHLÜNDER, 1984) und einem angenommenen Dampfdruck in der Umgebung des Agglomerats von  $p^* = 0,9 \text{ bar}$  ergibt sich für den diffusionsbedingten Wärmetransport eine äquivalente Wärmeleitfähigkeit von  $\lambda_{diff} \approx 6,7 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ . Die Wärmeleitfähigkeit  $\lambda_A$  eines Trockenagglomerats beträgt demgegenüber nur  $0,065 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$  (ŠANDERA und MIRČEV, 1933, für gemahlene Saccharose bei einer Porosität  $\varepsilon$  von 0,6). Die Tatsache, daß der Dampf in ein Porensystem diffundiert, wird näherungsweise durch Multiplikation von  $\delta_{12}$  mit der Porosität  $\varepsilon$  berücksichtigt.

Das Ergebnis zeigt, daß der Stofftransport durch die Poren des Agglomerats wesentlich schneller ist, als der Wärmetransport über die Kontaktpunkte der Primärpartikeln. Das Agglomerat wird also auch im Inneren befeuchtet, so daß an allen Kontaktstellen der Primärpartikeln zunächst Flüssigkeitsbrücken und bei der nachfolgenden Trocknung Feststoffbrücken gebildet werden. Für ein Agglomerat von z.B. 1 mm Durchmesser ergibt sich mit o.g. Wert von  $\lambda_{diff}$  bereits nach 0,03 s Verweilzeit in der Dampfzone eine Fourierzahl von  $FO = 1$ , d.h. weitgehender Temperatenausgleich, während die tatsächliche Verweilzeit (vergl. Abb. 5-33) 0,15 s beträgt. Trockenagglomerate mit z.B. mehr als 2 mm Durchmesser oder deutlich kleinerer Porosität erreichen den Gleichgewichtszustand allerdings nicht.

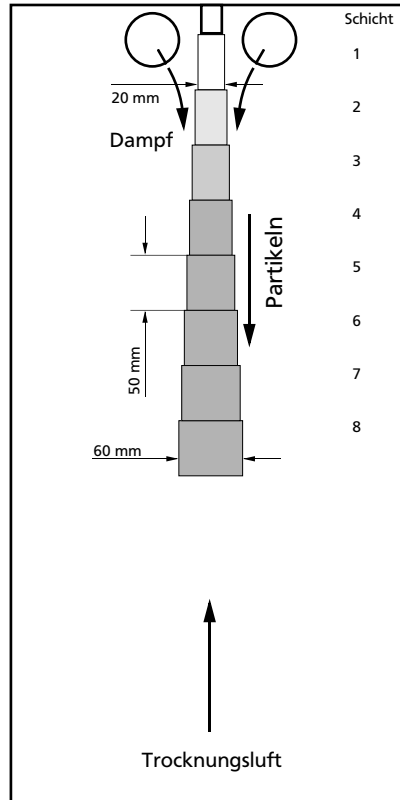
Für die im folgenden vorgestellten Modellrechnungen wird ferner vorausgesetzt, daß die Dampffreistrahlen keine Deglomeration hervorrufen. In den vorigen Abschnitten wurde gezeigt, daß dieser Zustand, bei dem experimentell die besten Agglomerationsergebnisse erzielt wurden, annähernd erreicht ist, wenn die aus den Dampfdufen austretenden Freistrahlen bei Erreichen des Partikel-schwarms etwa die Geschwindigkeit der Partikeln besitzen.

## 5.4.2 Aufbau des Modells

Abbildung 5–34 zeigt schematisch einen senkrechten Schnitt durch die Befeuchtungszone der Strahlagglomerationsanlage. Der Bereich, in dem die Partikel sich bewegen, ist in der Bildmitte angedeutet. Es wird angenommen, daß sich die Partikeln nach Eintreten in die Befeuchtungszone etwa über eine Strecke von 40 cm in einer Dampfatmosfera bewegen. Diese Strecke wird für die Modellierung in acht Abschnitte von jeweils 5 cm Höhe unterteilt. Im Verlauf der Fallstrecke nimmt die Breite der Abschnitte von 2 auf 6 cm zu. Mit einer Ausdehnung senkrecht zur Bildebene von 10 cm ergibt sich ein Volumen von 100 cm<sup>3</sup> für Schicht 1.

Innerhalb einer Schicht wird die Partikelgrößenverteilung als konstant angenommen. Änderungen der Partikelgrößenverteilung in den verschiedenen Schichten werden jeweils nach diskreten Zeitschritten berücksichtigt, indem zum einen die Auswirkungen der innerhalb des Zeitschritts stattfindenden Partikelstöße und zum anderen die Zahl der von oben ein- und nach unten austretenden Partikeln berechnet wird. Hierzu werden die Partikelgrößenverteilungen mit 32 diskreten Größenklassen beschrieben. Diese sind so definiert, daß sich das Volumen einer Einzelpartikel von Klasse zu Klasse jeweils verdoppelt. Alle Partikelgrößenverteilungen im Schwarm können dementsprechend als Matrix mit 8 Spalten und 32 Zeilen beschrieben werden, wobei die Zahlenwerte der Matrixelemente bei jedem Zeitschritt erneut berechnet werden.

Zu Beginn einer Modellrechnung werden alle Höhenschichten mit einer „Start“-Partikelgrößenverteilung (oder vielmehr einem Histogramm) besetzt, indem für jede Größenklasse die Anzahl der als Startwert enthaltenen Partikeln in die Matrix eingetragen wird. Aus Gründen der leichten Berechenbarkeit wurde in allen Fällen zunächst eine logarithmische Normalverteilung als Volumen- bzw. Masseverteilung vorgegeben, da eine log-Normalverteilung sich auf einfache Weise in beliebige Mengenarten umrechnen läßt (vergl. LÖFFLER, 1988). Hierbei gilt, daß der Verteilungsparameter  $\sigma$  sich beim Wechsel der Mengenart nicht ändert. Der neue Medianwert  $x_{50,i}$  läßt sich nach einer einfachen Beziehung aus dem Verteilungsparameter  $\sigma$  und dem alten Medianwert  $x_{50,k}$  berechnen:



Modellierung der Aufbauagglomeration im sedimentierenden Schwarm

Abbildung 5–34: Schematische Darstellung der Einteilung des sedimentierenden Partikel-schwarms in Höhenschichten. Die Abmessungen des Schwarms entsprechen näherungsweise der visuellen Beobachtung bei einem Anstellwinkel der Dampfdufen von 60°.

$$x_{50,j} = x_{50,k} \cdot e^{(j-k)\sigma^2} \quad (5-22)$$

Mit den Verteilungsparametern  $\sigma$  und  $x_{50,0}$  können die Werte der Verteilungsfunktion  $q_0(x)$  für die 32 Größenklassen und hieraus mit den jeweiligen Klassenbreiten die Histogrammbelegungen berechnet werden. Diese Werte sind noch normiert und müssen mit einem Faktor multipliziert werden, um eine gewünschte Feststoffkonzentration  $c$  zu erreichen. Es wird die Konzentration in Schicht 1 vorgegeben. Der Multiplikationsfaktor  $n$  (= Gesamtzahl aller Partikel) ergibt sich aus dem Verhältnis des erforderlichen Gesamt-Feststoffvolumens zur mittleren Größe einer Einzelpartikel:

$$n = \frac{6 \cdot c \cdot V_1}{\pi \cdot M_{3,0}} \quad (5-23)$$

Die rechnerische Bearbeitung der Modellmatrix geschieht in folgenden Schritten:

- Berechnung aller Agglomerationsvorgänge in den  $z$  verschiedenen Höhengschichten. Dies umfaßt für jede Größenklasse  $i$  (angefangen mit den größten, d.h. schnellsten Partikeln) die Berechnung des durch ihre „Mitglieder“ abgereinigten Volumens:

$$V_{abger,j} = \pi \cdot v_j(z,t) \cdot N_j(z,t) \cdot r_j^2 \cdot \eta(Re, \Psi) \cdot \Delta t \quad (5-24)$$

Gleichung 5-24 ist zunächst für alle Kombinationen aus Partikeln der Klasse  $i$  mit den unteren Größenklassen  $k$  zu lösen ( $i = 32 \dots 2, k = i-1 \dots 1$ ), da z.B.  $v_j$  die Relativgeschwindigkeit der Partikeln der Klassen  $i$  und  $k$  ist,  $r_j$  die Summe der Radien der Partikeln der Klassen  $i$  und  $k$ , in  $\Psi$  ebenfalls Werte eingehen, die von der Größenklassenkombination  $i / k$  abhängen etc.

Aus den abgereinigten Volumina ergibt sich mit den jeweiligen Konzentrationen der Partikeln der unteren Größenklassen die Zahl der Partikeln, die aus den Klassen  $k < i$  entnommen und der Klasse  $i$  der „Sammler“ zugeschlagen werden. Hierdurch verringert sich als erstes die Zahl der Partikeln in allen unteren Größenklassen  $k < i$ . Zweitens erhöht sich die in der Klasse  $i$  enthaltene Feststoffmenge, wobei das den „Sammlern“ insgesamt zugeflossene Feststoffvolumen allerdings nicht gleichmäßig auf die Partikeln der Klasse  $i$  verteilt wird. Vielmehr wird berechnet, wieviele neue Sammler aus dem „erbeuteten“ Feststoffvolumen gebildet werden könnten. Aus dieser Zahl  $N$  möglicher neuer Sammler werden dann zusammen mit ebenfalls  $N$  vorhandenen Sammlern  $N$  neue Partikeln der Klasse  $i-1$ , d.h. der nächsthöheren Größenklasse gebildet (man erinnere sich: das Volumen einer Einzelpartikel verdoppelt sich von Klasse zu Klasse). Auch die Anzahl der abreinigenden Partikeln in der Klasse  $i$  verringert sich also aufgrund der Agglomeration um  $N$ , während in die Klasse  $i-1$   $N$  Agglomerate eintreten.

- Berechnung der bewegungsbedingten Zu- und Abgänge für alle Größenklassen. Für alle Klassen wird anhand der lokalen Anzahlkonzentration und Sedimentationsgeschwindigkeit überprüft, wieviele Partikeln die Höhengschicht verlassen und in die darunterliegende Schicht eintreten. Der Schicht 1 gehen dabei Partikeln

---

aus einer Schicht  $z$  zu, die nicht in die Berechnungen einbezogen wird, sondern stets die Startpartikelgrößenverteilung enthält. Die Partikel, die die Schicht  $z$  verlassen, dienen zur Berechnung des Agglomerationsresultats.

Modellierung der Aufbau-  
agglomeration im sedi-  
mentierenden Schwarm

- Korrektur der Geschwindigkeiten der Partikeln aller Höhengschichten und Größenklassen. Das Modell erlaubt zwar keine Variation der Sinkgeschwindigkeit innerhalb einer Größenklasse an einem gegebenen Ort. Der bei der Agglomeration durch das Abreinen kleinerer, d.h. langsamerer Partikeln auftretende Verlust an kinetischer Energie wird aber über eine Impulsbilanz berücksichtigt. Der Gesamtimpuls aller in eine Größenklasse eintretenden und aller in dieser Klasse bereits vorhandenen Partikeln wird addiert und aus dieser Impulssumme die neue mittlere Geschwindigkeit der Partikeln dieser Klasse berechnet. Das Ergebnis wird hiervon allerdings kaum beeinflusst, da das Geschwindigkeitsfeld sich zwar etwas zu niedrigeren Werten verschiebt, die Relativgeschwindigkeiten zwischen den Klassen jedoch nur wenig verändert werden.

Die Zeitschrittweite  $\Delta t$  wurde auf  $0,15$  s festgelegt. Unter diesen Umständen ist die Reichweite der schnellsten Partikeln kleiner als die Schichthöhe, und es kann nicht vorkommen, daß aus rechnerischen Gründen mehr Partikeln eine Höhengschicht verlassen müßten, als tatsächlich in ihr enthalten sind. Insgesamt müssen so viele Zeitschritte durchgerechnet werden, daß in der Matrix keine Veränderungen mehr auftreten. Das System befindet sich dann im stationären Zustand, d.h. alle Größenklassen in allen Höhengschichten verlieren pro Zeitschritt genausoviele Mitglieder an höhere Größenklassen oder die nächsttiefere Höhengschicht wie aus niedrigeren Größenklassen bzw. der nächsthöheren Schicht zuwandern.

Die Anzahl der tatsächlich für die Agglomeration verfügbaren Höhengschichten kann variiert werden. Konkret wurden die meisten der im folgenden Abschnitt vorgestellten Berechnungen mit  $z = 5$  durchgeführt, d.h. Agglomeration nur in den Schichten 4–8. Hierbei wurde angenommen, daß in den Schichten 1, 2 und 3 zunächst der Austausch der miteingetretenen Luft gegen Dampf und die Befeuchtung der Partikeln stattfindet. Wird  $z$  übrigens zu 0 gesetzt, liefert das Modell die Veränderung der Partikelgrößenverteilung aufgrund unterschiedlicher Sedimentationsgeschwindigkeiten.

#### 5.4.3 Ergebnis der Modellrechnungen

Resultat eines Simulationsdurchlaufs mit dem oben beschriebenen Modell ist zunächst ein Histogramm der Partikelzahl je Größenklasse unterhalb der letzten Höhengschicht. Diese Histogramme wurden wieder in Volumendichteverteilungen umgerechnet, an die anschließend eine logarithmische Normalverteilungsfunktion angepaßt wurde. Diese Approximationsfunktionen, die die berechneten Werte stets sehr gut beschreiben, sind im folgenden meist als Volumensummenfunktionen dargestellt.

Abbildung 5–35 zeigt berechnete Agglomeratgrößenverteilungen für verschiedene mittlere Partikelgrößen des Aufgabeguts (Index „E“ = Eingang) bei konstanter Verteilungsbreite  $\sigma$  und konstantem Massenstrom des Aufgabeguts.

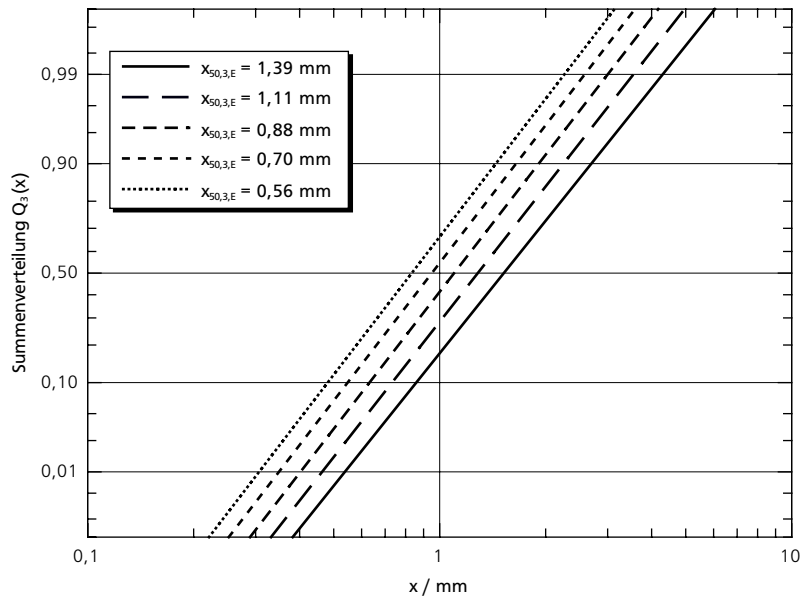


Abbildung 5–35: Berechnete Agglomeratgrößenverteilungen für verschiedene mittlere Partikelgrößen des Aufgabeguts bei  $\sigma = 0,7$  und einem Feststoffmassenstrom von  $\approx 35 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ .

Der Agglomerationseffekt hängt erwartungsgemäß deutlich von der mittleren Partikelgröße ab. Abbildung 5–36 zeigt dies für verschiedene Feststoffmassenströme.

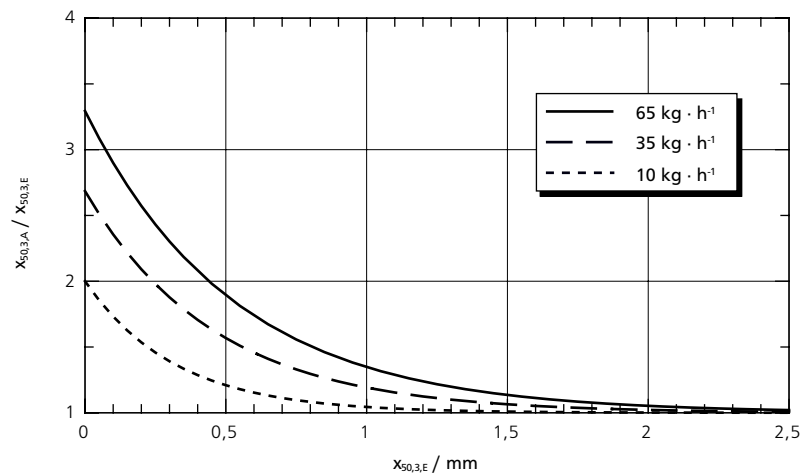


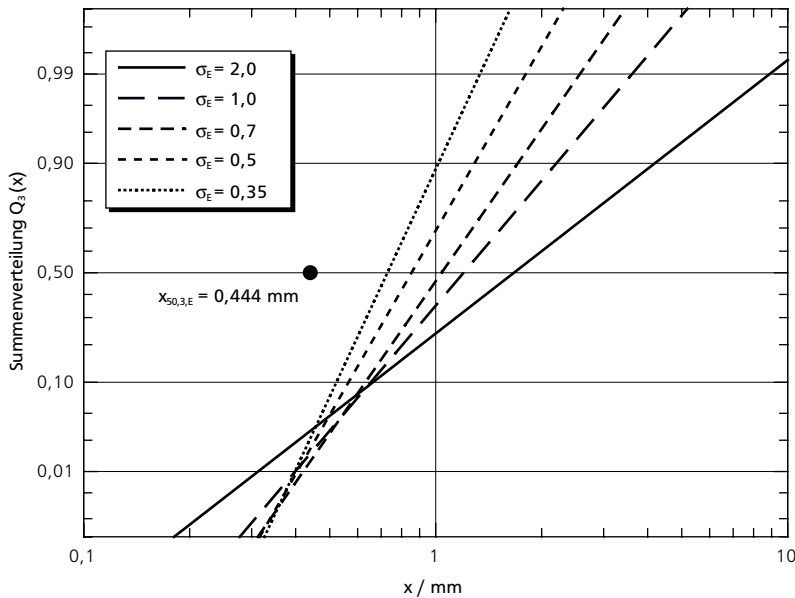
Abbildung 5–36: Berechneter Agglomerationseffekt (mittlere Partikelgröße des agglomerierten Pulvers bezogen auf mittlere Partikelgröße des Aufgabeguts) bei  $\sigma = 0,7$  und verschiedenen Feststoffmassenströmen als Funktion der mittleren Partikelgröße des Aufgabeguts.

Der Feststoffmassenstrom spielt erkennbar eine wichtige Rolle, da Partikelkonzentration und Stoßhäufigkeit in der Agglomerationszone von ihm beeinflusst werden



(siehe unten). Die Breite der Verteilung des agglomerierten Pulvers verringert sich in Abhängigkeit von Massenstrom und mittlerer Partikelgröße des Aufgabeguts geringfügig. Da das Verhältnis von  $\sigma_A/\sigma_E$  sich bei den oben genannten Modellparametern nur im Bereich von 0,8–0,95 bewegte, wurde auf eine Darstellung analog Abbildung 5–36 verzichtet.

Anstelle der mittleren Partikelgröße wurde bei einer weiteren Reihe von Modellrechnungen die Breite der Verteilung des Aufgabeguts variiert. Abbildung 5–37 zeigt berechnete Agglomeratgrößenverteilungen für verschiedene Werte der Breite der Aufgabegutverteilung bei konstanter mittlerer Partikelgröße und konstantem Massenstrom des Aufgabeguts.



Modellierung der Aufbauagglomeration im sedimentierenden Schwarm

Abbildung 5–37: Berechnete Agglomeratgrößenverteilungen für verschieden breite Aufgabegutverteilungen bei 0,444 mm mittlerer Partikelgröße des Aufgabeguts und einem Feststoffmassenstrom von  $\approx 35 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ .

Offensichtlich wirkt sich eine Variation der Breite der Aufgabegutverteilung ebenfalls stark auf das Agglomerationsergebnis aus, und zwar sowohl hinsichtlich der mittleren Partikelgröße als auch der Breite der Verteilung des agglomerierten Pulvers am Ausgang der Agglomerationszone.

Die mittlere Partikelgröße steigt umso stärker an, je breiter die Verteilung des Aufgabeguts ist. Dies ist auch leicht nachvollziehbar, weil eine breite Partikelgrößenverteilung mit einer breiten Verteilung der Sedimentationsgeschwindigkeiten gleichbedeutend ist, was sich wiederum günstig auf die Stoßhäufigkeit auswirkt. Das oben Gesagte gilt, solange das Aufgabegut nicht aus so großen Partikeln besteht, daß alle annähernd im freien Fall die Agglomerationszone durchqueren. In so einem Fall (vergl. auch Abb. 5–36) verschwinden die Relativgeschwindigkeiten und damit die Partikelstöße.

Abbildung 5–38 zeigt den Agglomerations-effekt bezüglich Lage und Breite der Partikelgrößenverteilung des agglomerierten Produkts als Funktion von  $\sigma$ . Für den Grenzfall  $\sigma = 0$ , d.h. monodisperses Aufgabegut, ergibt sich theoretisch kein

Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

Agglomerationseffekt, da sich alle Partikeln mit gleicher Beschleunigung bewegen.  $x_{50,A} / x_{50,E}$  ist in diesem Fall 1. Das Verhältnis  $\sigma_A / \sigma_E$  muß für  $\sigma_E \rightarrow 0$  gegen Unendlich streben, da bereits ein einziger Partikelstoß dazu führt, daß  $\sigma_A \neq 0$  wird.

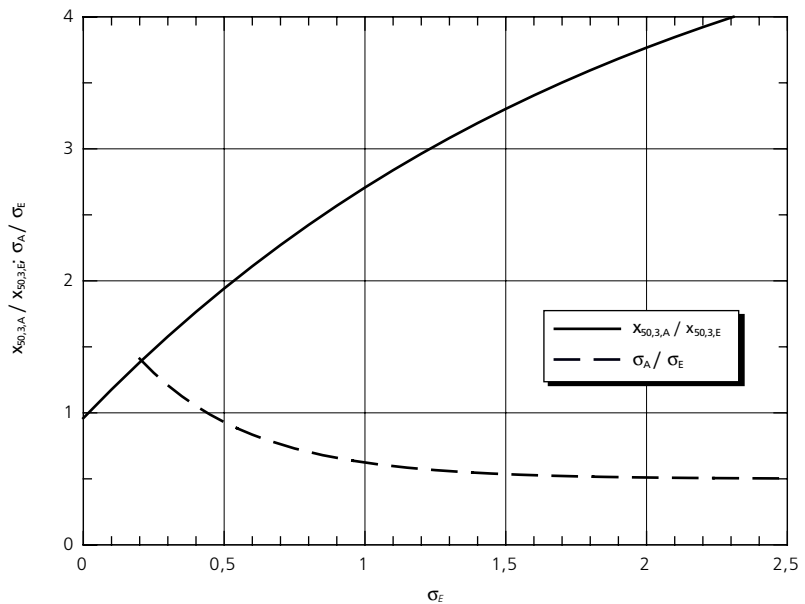


Abbildung 5-38: Berechneter Agglomerationseffekt (Verhältnisse der mittleren Partikelgrößen und der Verteilungsbreiten von agglomeriertem Pulver und Aufgabegut) bei einem Feststoffmassenstrom von  $\approx 35 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$  als Funktion der Breite der Verteilung des Aufgabeguts.

In Abbildung 5-36 ist bereits zu erkennen, daß das Agglomerationsergebnis vom Feststoffmassenstroms abhängt. Abbildung 5-39 zeigt dies nochmals für einen größeren Variationsbereich des Massenstroms bei einem typischen Aufgabegut.

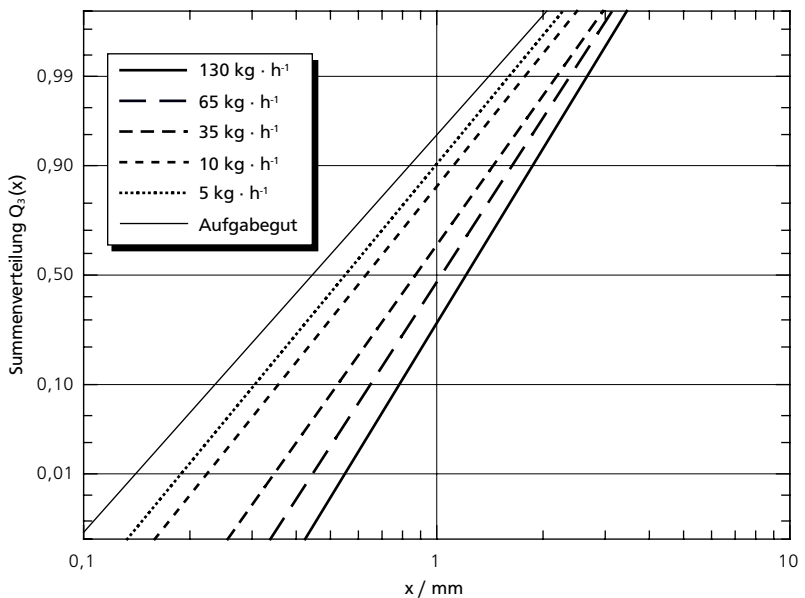


Abbildung 5-39: Berechnete Agglomeratgrößenverteilungen für verschiedene Massenströme des Aufgabeguts bei  $\sigma_E = 0,7$  und  $x_{50,3,E} = 0,444 \text{ mm}$ .

Beim Vergleich von Abbildung 5-39 mit anderen Diagrammen ist zu berücksichtigen, daß mit  $z = 7$  statt  $z = 5$  gerechnet wurde, um die Kurven deutlicher von der Kurve für das Aufgabegut und voneinander abzuheben. Der Agglomerationsseffekt steigt dadurch um etwa 15 % (siehe Abbildung 5-45). Die Abbildungen 5-40 und 5-41 zeigen das Ergebnis für ein bimodal verteiltes Aufgabegut, wobei zur besseren Veranschaulichung die Darstellung als Dichteverteilung gewählt ist.

Modellierung der Aufbauagglomeration im sedimentierenden Schwarm

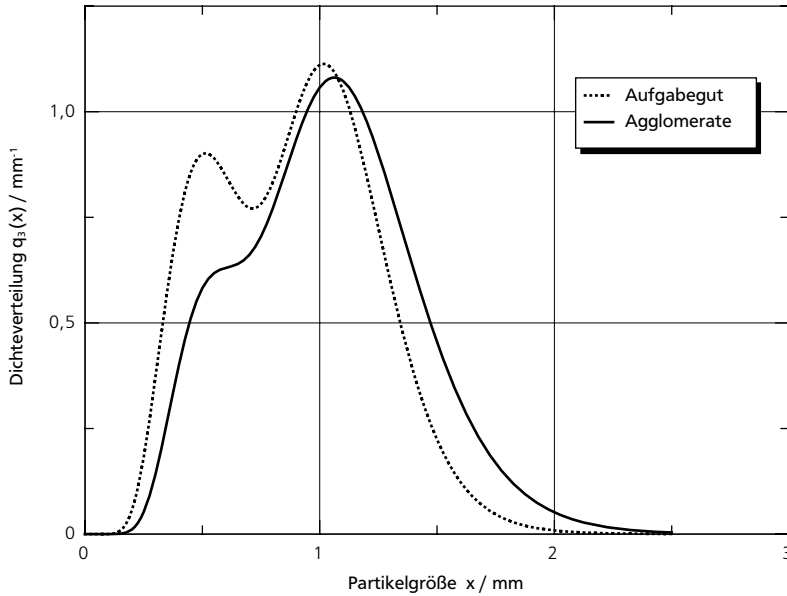


Abbildung 5-40: Berechnete Agglomeratgrößenverteilung für eine bimodale Aufgabegutverteilung und einen Feststoffmassenstrom von  $\approx 10 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ .

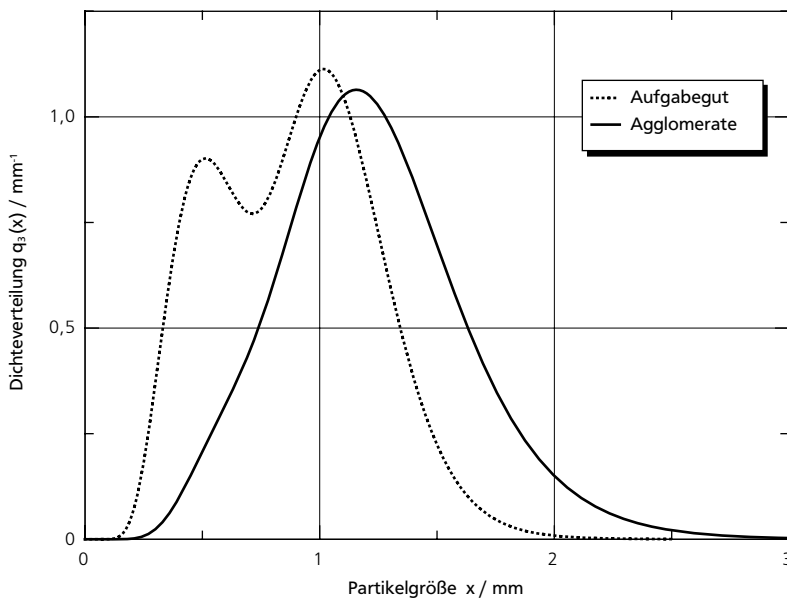


Abbildung 5-41: Berechnete Agglomeratgrößenverteilung für eine bimodale Aufgabegutverteilung und einen Feststoffmassenstrom von  $\approx 35 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ .

Der erste Modus der Partikelgrößenverteilung, der im Aufgabegut einen Anteil von 0,5 hat (Vorgabewert), nimmt in beiden Fällen ab. Wenn zur Beschreibung der Partikelgrößenverteilung des agglomerierten Pulvers auch bei  $35 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$  (siehe Abbildung 5–41) die bimodale logarithmische Normalverteilung verwendet wird, fällt der Rückgang des ersten Modus' aus arithmetischen Gründen kaum stärker aus als bei  $10 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ , was der Anschauung widerspricht. Die in Abbildung 5–41 gezeigte Verteilung des agglomerierten Pulvers kann jedoch bereits mit geringem Fehler von einer einmodalen logarithmischen Normalverteilung mit den Parametern  $x_{50,3,E} = 1,21 \text{ mm}$  und  $\sigma = 0,32$  beschrieben werden.

Dies entspricht eher der Vorstellung, daß bevorzugt kleine Partikeln von größeren aus dem Kollektiv entfernt werden und auf diese Weise eine Vergleichmäßigung der Partikelgrößenverteilung bzw. eine Abnahme ihrer Breite eintritt.

### Vergleich zwischen Rechnung und Messung

Die Modellierung beinhaltet mehrere idealisierende Annahmen, jedoch ist ein Vergleich mit den Meßwerten für mittlere Gasmengenströme in Abbildung 5–26 möglich: Bei  $60^\circ$  Düsenanstellwinkel beträgt das Partikelwachstum etwa 12 %, bei  $0^\circ$  ( $x_{50,3,E} \approx 0,75$  statt 1,1 mm) dagegen zwischen 15 und 20 %. Unter Berücksichtigung des Massenstroms von  $\approx 25 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$  entspricht dies annähernd den aus Abbildung 5–36 abzulesenden, berechneten Werten für das Partikelwachstum.

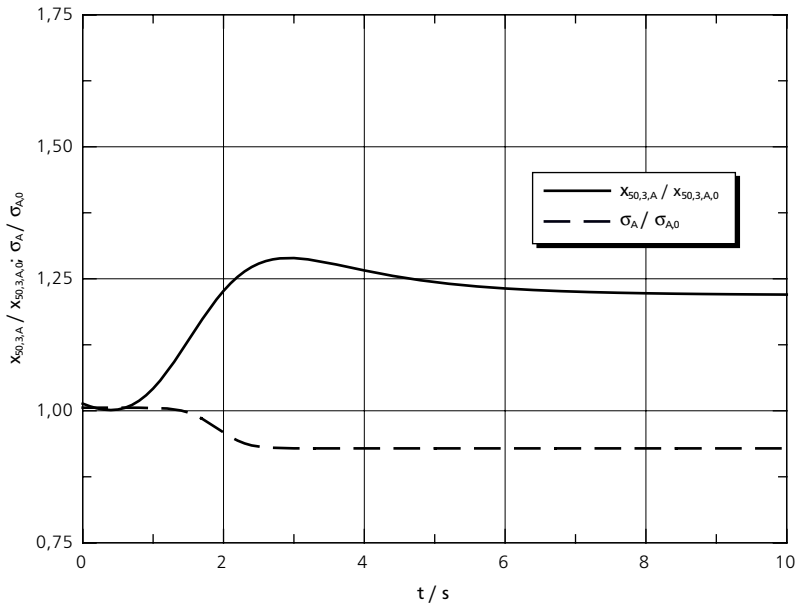
### Dynamisches Verhalten des Agglomerationsvorgangs

In vorangegangenen Kapiteln wurde die – auf empirische Beobachtung gegründete – Behauptung aufgestellt, daß sich die hier vorgestellte Strahlagglomerationsanlage bereits wenige Sekunden nach dem Anfahren im stationären Zustand befindet. Das Rechenmodell ermöglicht durch Simulation von Sprungantworten eine Überprüfung dieser Aussage. Hierzu wird das Modell zunächst für einen gegebenen Parametersatz solange durchgerechnet, bis ein stationärer Zustand vorliegt. Anschließend wird z.B. eine neue Größenverteilung oder ein neuer Massenstrom des Aufgabeguts vorgegeben. Die weiteren Rechnungen werden, unter Beibehaltung der neuen Werte am Eingang der Agglomerationszone, immer nur um jeweils einen einzelnen Zeitschritt weitergeführt, wonach das Ergebnis analysiert und über der Anzahl der Zeitschritte aufgetragen wird. Resultat ist die Veränderung der Partikelgrößenverteilung des agglomerierten Pulvers als Funktion der Zeit. Nach hinreichend vielen Schritten stellt sich in der Agglomerationszone wieder ein, dem neuen Parametersatz entsprechender, stationärer Zustand ein.

Bei den Modellberechnungen zur Klärung des dynamischen Verhaltens des Strahlagglomerationsvorgangs wurde in allen Fällen mit Sprungsignalen gearbeitet, da die Sprungantwort des Systems leicht zu interpretieren ist. Sofern die Entwicklung eines on-line-Partikelgrößenmeßverfahrens zukünftig auch die Regelung des Agglomerationsapparats nach der Partikelgröße ermöglicht, kann das Modell

zur Stabilitätsanalyse oder Festlegung der Zeitkonstanten eines Reglers aber auch mit periodischen Testsignalen durchgerechnet werden. Dies erfordert, im Vergleich zum Sprungsignal, nach jedem Zeitschritt die entsprechende Veränderung der Werte der Partikelgrößenverteilung am Anfang der Agglomerationszone.

Abbildung 5-42 und 5-43 zeigen die Sprungantworten des Systems auf eine Erhöhung des Massenstroms bzw. der mittleren Partikelgröße des zudosierten Pulvers.



Modellierung der Aufbauagglomeration im sedimentierenden Schwarm

Abbildung 5-42: Berechnete Antwort des Modells auf eine sprunghafte Erhöhung des Massenstroms des Aufgabeguts von 35 auf 65 kg · h<sup>-1</sup>.  $x_{50,3,E} = 0,444$  mm,  $\sigma_E = 0,7$ .

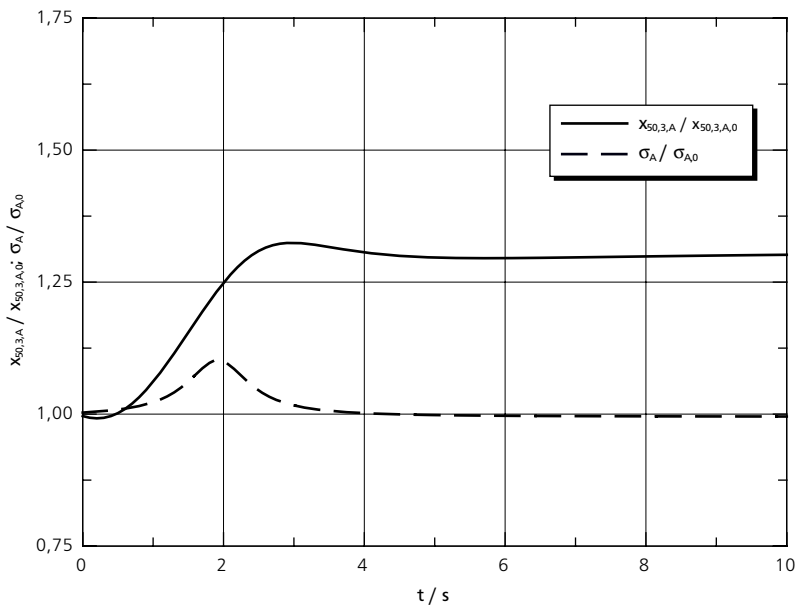


Abbildung 5-43: Berechnete Antwort des Modells auf einen sprunghaften Anstieg der mittleren Partikelgröße des Aufgabeguts von 0,444 mm auf 0,7 mm. Feststoffmassenstrom 35 kg · h<sup>-1</sup>,  $\sigma_E = 0,7$ .

## Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

Die Steigerung des Feststoffmassenstroms führt wie erwartet zu einem verbesserten Agglomerationseffekt, während der Anstieg der mittleren Partikelgröße des Aufgabeguts um den Faktor  $\approx 1,6$  sich – ebenfalls erwartungsgemäß – nur in einer um den Faktor 1,3 erhöhten Partikelgröße am Ausgang niederschlägt. Die Breite der Verteilung verändert sich nur unwesentlich. Die Zeitkonstante des Einschwingvorgangs, d.h. die Zeit in der die Differenz zwischen altem und neuem stationären  $x_{50,3,A}$ -Wert bis auf  $e^{-1}$  abnimmt, beträgt in beiden Fällen etwa 1,5 s.

Abschließend wurde berechnet, wie schnell sich das Einschalten des Dampfes, d.h. die Änderung der Haftwahrscheinlichkeit von 0 auf 1, bei bereits laufender Feststoffdosierung bemerkbar macht (siehe Abbildung 5–44).

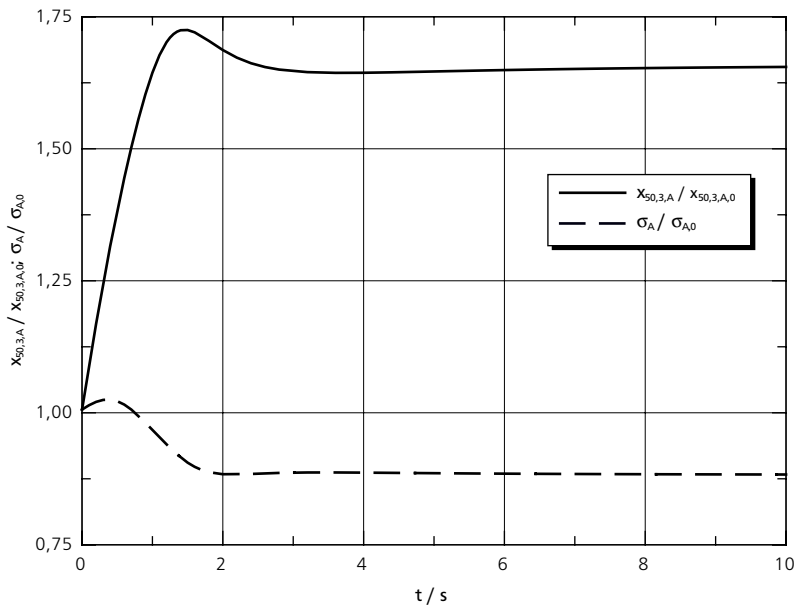


Abbildung 5–44: Berechnete Antwort des Modells auf eine sprunghafte Änderung der Haftwahrscheinlichkeit von 0 auf 1 (durch Einschalten der Dampfzufuhr). Feststoffmassenstrom  $35 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ , mittlere Partikelgröße des Aufgabeguts  $x_{50,3,E} = 0,444 \text{ mm}$ ,  $\sigma_E = 0,7$ .

In diesem Fall beträgt die Zeitkonstante nur etwas mehr als 0,5 s. Wie in den beiden vorangegangenen Abbildungen gilt dies für die Veränderung der mittleren Partikelgröße am Ende der Agglomerationszone.

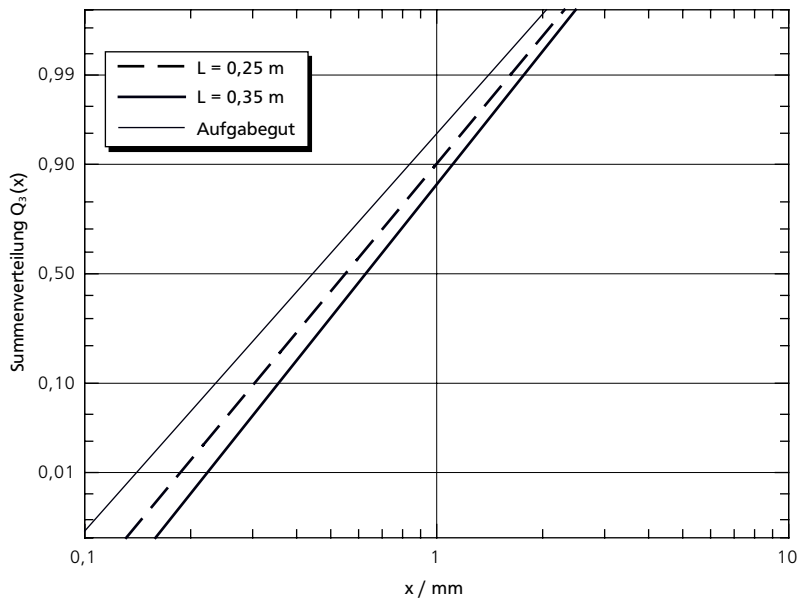
Die Ergebnisse der Simulation des dynamischen Verhaltens des sedimentationsbedingten Agglomerationsvorgangs zeigen, daß die Annahme einer Anlaufzeit von 1–2 s, die sich im wesentlichen auf die visuelle Beobachtung der Befeuchtungszone stützte, gerechtfertigt war.

## Einfluß der Randbedingungen

Beim Aufbau des Modells, siehe Abbildung 5–34, wurde eine bestimmte Form des Partikelschwarms angenommen, die in etwa mit den Beobachtungen der Schwarmform bei üblichen Agglomerationsbedingungen übereinstimmt: Der Partikelschwarm soll sich aufgrund zunehmender Ausdehnung bis zum Ende der

Agglomerationszone etwa auf  $\frac{1}{3}$  der Startkonzentration verdünnen. Der Tatsache, daß zum Austausch der von den Partikeln mitgeführten Luft gegen Dampf und zur oberflächlichen Befeuchtung eine gewisse Fallstrecke erforderlich ist, wird bei der Simulation dadurch Rechnung getragen, daß die Höhe der Zone, in der tatsächlich eine Agglomeration erfolgt, mit nur 25 cm eher niedrig angesetzt wird (siehe Abschnitt 5.4.2, letzter Absatz). Diese beiden Annahmen führen zu einer insgesamt eher konservativen Abschätzung des Agglomerationseffekts.

Die Abbildungen 5–45 und 5–46 veranschaulichen die Auswirkungen einer Verlängerung der Agglomerationszone durch Aktivieren der Agglomerationsbedingung für die Schichten 2 und 3 sowie einer – prinzipiell durch aerodynamische Führung der Schichten – Unterdrückung der Schwarmaufweitung.



Modellierung der Aufbauagglomeration im sedimentierenden Schwarm

Abbildung 5–45: Berechnete Partikelgrößenverteilungen des agglomerierten Pulvers für unterschiedlich lange Agglomerationszonen. Massenstrom des Aufgabeguts  $10 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ ,  $x_{50,3,E} = 0,444 \text{ mm}$ ,  $\sigma_E = 0,7$ .

Sowohl eine Verlängerung der Agglomerationszone als auch eine reduzierte Schwarmaufweitung würden nach Aussage des Modells eine deutliche Steigerung des Agglomerationseffekts bewirken. Es wäre daher erfolgversprechend, entsprechende konstruktive Änderungen an der Strahlagglomerationsanlage durchzuführen.

Eine weitere Randbedingung, die Annahme der Mitbeschleunigung der im Schwarm enthaltenen Luft, beeinflusst die Berechnung des Agglomerationsvorgangs durch Veränderung der Relativgeschwindigkeiten zwischen den Partikeln. Der aufgrund einiger Einzelbeobachtungen verwendete Beschleunigungswert von  $\frac{1}{3} g$  erfüllt zunächst nur die Forderung, die Realität besser anzunähern als die Verwendung der Einzelpartikel-Sinkgeschwindigkeiten. Die Implementierung einer differenzierteren Methode zur Bestimmung der Relativgeschwindigkeiten erschien jedoch ohne genauere Informationen über die Bewegung der im Schwarm sedimentierenden Partikeln nicht sinnvoll.

Aufbauagglomeration in der Befeuchtungszone

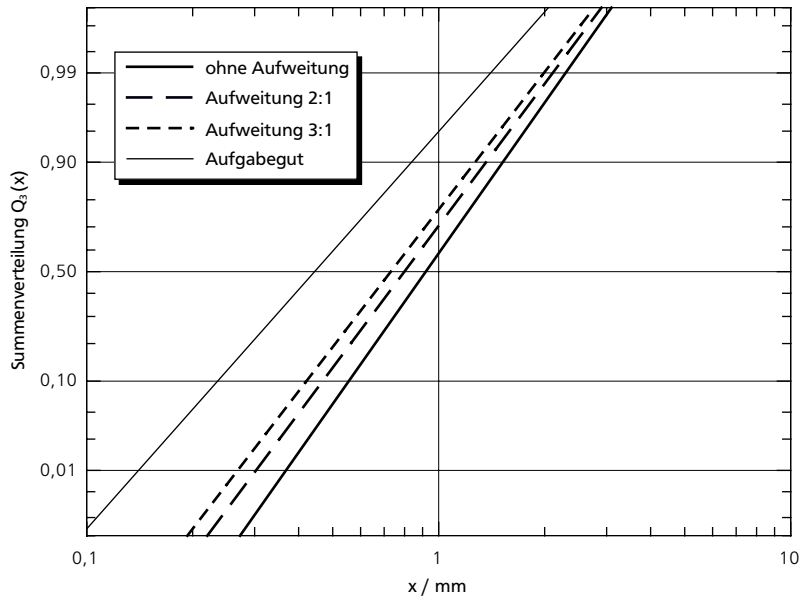


Abbildung 5-46: Berechnete Partikelgrößenverteilungen des agglomerierten Pulvers bei unterschiedlicher Aufweitung des Schwarms. Massenstrom des Aufgabeguts  $35 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ ,  $x_{50,3,E} = 0,444 \text{ mm}$ ,  $\sigma_E = 0,7$ .

Abbildung 5-47 veranschaulicht die Auswirkung der Mitbeschleunigung der Luft. Die aus den Sinkgeschwindigkeiten von Einzelpartikeln resultierenden Relativgeschwindigkeiten (pauschal mit  $\Delta v_0$  bezeichnet) wurden mit verschiedenen Faktoren  $\leq 1$  reduziert und als  $\Delta v'$  in das Modell eingesetzt. Ein Faktor von z.B. 0,1 bedeutet, daß die im Schwarm enthaltene Luft so mitbeschleunigt wird, daß die Relativgeschwindigkeiten zwischen den Partikeln im Schwarm sich auf das 0,1fache der Relativgeschwindigkeiten einzeln sedimentierender Partikeln verringern.

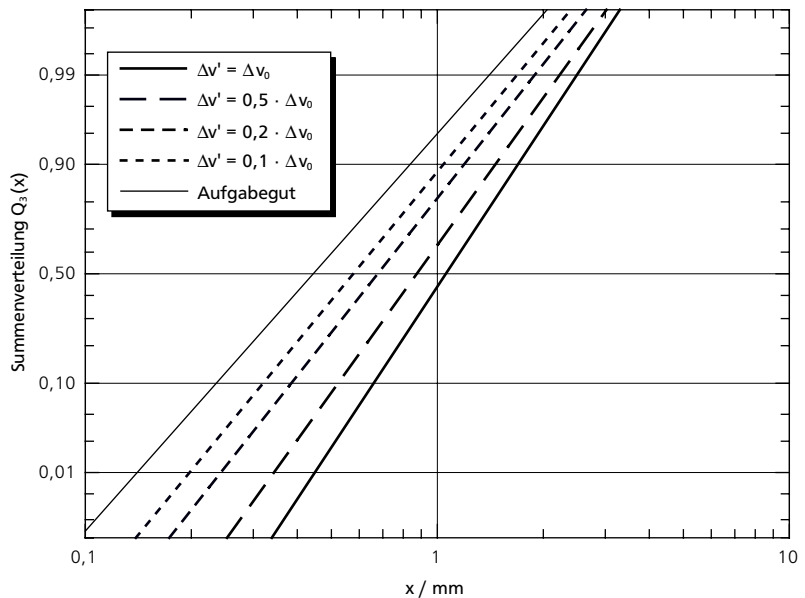


Abbildung 5-47: Berechnete Partikelgrößenverteilungen des agglomerierten Pulvers bei unterschiedlicher Mitbeschleunigung der Luft. Massenstrom des Aufgabeguts  $65 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ ,  $x_{50,3,E} = 0,444 \text{ mm}$ ,  $\sigma_E = 0,7$ .



---

Der Fall, daß die Partikeln jeweils die Einzelpartikel-Sedimentationsgeschwindigkeit besitzen ( $\Delta v' = \Delta v_0$ , durchgezogene Kurve ganz rechts im Diagramm) ist natürlich – insbesondere bei hohen Massenströmen – rein hypothetisch. Er soll nur veranschaulichen, in welchem Bereich das Resultat durch Wahl dieser Randbedingung variiert werden kann.

Modellierung der Aufbauagglomeration im sedimentierenden Schwarm

### Schlußbemerkung

Die Modellierung des Partikelwachstums durch Anlagern langsam sedimentierender Partikeln an größere, schneller sedimentierende Partikeln bzw. Agglomerate ermöglicht bereits in der vorliegenden, vereinfachten Form die ausgiebige Variation von Parametern, die für das Agglomerationsergebnis von Bedeutung sind.

Sowohl der Einfluß der Partikelgrößenverteilung des zudosierten Pulvers als auch des Pulvermassenstroms können untersucht werden, um festzustellen, inwieweit ein Wachstum von Agglomeraten in der Strahlagglomerationsanlage zu erwarten ist. Die durch Simulationsrechnung erhaltenen Angaben zum Partikelwachstum decken sich mit der empirischen Beobachtung, daß die Zunahme der Partikelgröße durch Anlagern im Dampf von vergleichsweise geringerer Bedeutung für das Gesamtergebnis des Verfahrens ist als die Trockenagglomeration in den verschiedenen Dosiergeräten. Das Modell bestätigt in guter Näherung die empirisch ermittelten Werte des Wachstums der Partikeln sowie die beobachtete leichte Verringerung der Breite der Partikelgrößenverteilung des Aufgabeguts.

Das Rechenmodell erlaubt ferner, die Auswirkungen von Konstruktionsänderungen, z.B. eine Verlängerung der Agglomerationszone, hinsichtlich der Steigerung der Agglomerationswirkung zu berechnen. Hierdurch kann abgeschätzt werden, ob eine solche Veränderung bei einem bestimmten Anwendungsfall einen Aufwand rechtfertigende Verbesserung bewirken würde.

Darüberhinaus besteht die Möglichkeit, das dynamische Verhalten des Agglomerationsvorgangs – wiederum in Abhängigkeit von vorgewählten Konstruktions- und Betriebsparametern – zu simulieren. Hieraus kann z.B. anhand des Anfahrverhaltens die für Technikumsversuche erforderliche Mindestlaufzeit ermittelt werden, bzw. die Zeit, nach der frühestens aussagefähige Messungen am stationär laufenden Apparat möglich sind. Sofern die Entwicklung geeigneter Meß- und Stellglieder zukünftig eine Regelung des Agglomerationsvorgangs ermöglicht, kann mit Hilfe des Rechenmodells das zur Auslegung des Regelkreises erforderliche Verhalten der Regelstrecke simuliert werden. Die bisherigen Berechnungen des Verhaltens der hier untersuchten Anlage ergaben charakteristische Zeitkonstanten bei sprunghafter Änderung verschiedener Parameter von unter 2 s. Dieses Ergebnis rechtfertigt im nachhinein die bei den Technikumsversuchen üblicherweise eingestellte Versuchsdauer von 15–30 s.



*There must be a beginning  
of any great matter, but the  
continuing unto the end until  
it be thoroughly finished  
yields the true glory.*

SIR FRANCIS DRAKE

## 6 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird ein modifizierter Strahlagglomerationsapparat vorgestellt, der sich von den in der Patentliteratur und früheren wissenschaftlichen Arbeiten beschriebenen Bauformen in verschiedener Hinsicht unterscheidet. Seine geschlossene Konstruktion erlaubt es, frei von Umgebungseinflüssen unter definierten Bedingungen zu arbeiten. Die für das Agglomerationsergebnis entscheidenden Betriebsparameter können stets reproduzierbar eingestellt werden.

Der Einsatz eines verstellbaren Systems aus zwei langgestreckten Dampfdufen erlaubt es, den in Form eines Vorhangs zulaufenden Feststoff von beiden Seiten gleichmäßig zu befeuchten. Zur Optimierung der Düsengeometrie wurden Versuche bei unterschiedlichen Düsenstellungen durchgeführt und die Größe der entstandenen Agglomerate bewertet. In Verbindung mit Untersuchungen der Gasströmung im Agglomerationsraum zeigte sich, daß die Partikeln so angeströmt werden müssen, daß die Strömungsgeschwindigkeit des Gases bei Erreichen des Partikelschwarms etwa gleich der Fallgeschwindigkeit der Partikeln ist. Turbulente Durchmischung, ein Begriff, der sich in der bisherigen Literatur zur Strahlagglomeration häufig findet, ist zu vermeiden.

Turbulenz ist für das Verfahren deswegen schädlich, weil das zudosierte Pulver in allen hier untersuchten Fällen bereits bei Eintreten in die Befeuchtungszone aus Agglomeraten besteht. Diese Agglomerate, die sich unter dem Einfluß stets präsender Haftkräfte schon während der Zudosierung bilden, besitzen bereits die für Instantprodukte erforderliche Mindestgröße und -porosität, sind aber noch äußerst empfindlich. Sie können jedoch bei geeigneter Einstellung der Düsengeometrie die Befeuchtungszone durchqueren, ohne zerstört zu werden. Be- bzw. Durchfeuchtung dieser Agglomerate und anschließende Trocknung noch im Apparat führen zur erforderlichen Festigkeit. Ein zusätzliches Wachstum der Agglomerate durch Anlagerung ist unter günstigen Bedingungen möglich.

Unter bestimmten Voraussetzungen ist es möglich, die Agglomeration aufgrund unterschiedlicher Sedimentationsgeschwindigkeiten der Partikeln mit einem Modell zu beschreiben. In dieser Arbeit wurden mit einer diskreten

Populationsbilanz Parameterstudien zum Einfluß der Partikelgrößenverteilung und des Massenstroms des Aufgabeguts sowie zum Einfluß bestimmter Konstruktionsparameter durchgeführt. Darüber hinaus wurde das dynamische Verhalten des Agglomerationsvorgangs bei sprunghafter Änderung bestimmter Einflußgrößen berechnet und damit die Annahme von typischen Anfahrzeiten unter 2 s bestätigt. Die Rechnungen zeigen, daß eine breite Partikelgrößenverteilung des Aufgabeguts, d.h. Anwesenheit von Voragglomeraten, den Agglomerationsvorgang begünstigt.

Die Messung der Größe der Voragglomerate konnte mit einem neuentwickelten Bildanalyseverfahren erstmals bei realistischen Massenströmen durchgeführt werden. Hierdurch gelang erstens durch Untersuchung verschiedener Dosiergeräte der Nachweis, daß sich stets Voragglomerate bilden, dieser Vorgang jedoch sowohl von den Eigenschaften des Pulvers als auch von der Art des Dosiergeräts abhängt. Zweitens konnte durch in-line-Messungen am Strahlagglomerationsapparat der Agglomerationseffekt aufgrund der Anlagerung kleinerer an größere Partikeln vom Deglomerationseffekt, d.h. der Zerstörung von Voragglomeraten durch Strömungskräfte, entkoppelt werden. Es zeigte sich, daß die Voragglomeration der entscheidende partikelvergrößernde Schritt ist. Bei ungünstiger Anordnung der Dampfdufen kann die Deglomeration das Wachstum durch Anlagerung bei weitem überwiegen. Die Meßergebnisse für das Partikelwachstum stimmen bei Agglomerationsbedingungen, die den Annahmen für die Modellrechnungen entsprechen, mit deren Ergebnissen in guter Näherung überein.

Zur gleichmäßigen Dosierung und Voragglomeration des Feststoffs bietet sich nach den vorliegenden Versuchsergebnissen ein mit niedrigen Preßkräften betriebener Wälzdruckkompaktierer an. Die Untersuchungen zum Betriebsverhalten eines selbstkonstruierten Geräts ergaben hohe mögliche Durchsätze, allerdings auch die Notwendigkeit zur Kontrolle von Partikelgröße und Wassergehalt des eingesetzten Ausgangsmaterials. Die Porosität der erzeugten Agglomerate lag mit  $\varepsilon \approx 0,45$  in einem Bereich, der für Instantprodukte noch günstig ist. Vergleichende Experimente mit anderen Verfahren zeigten, daß das Pressen des Pulvers durch eine Lochmatrize eine Methode ist, bei der die Agglomeratgröße wenig vom Wassergehalt des Pulvers abhängt. Die erreichbaren Durchsätze sind allerdings niedriger als bei der Wälzdruckkompaktierung. Die Voragglomeration auf einem Vibrationsförderer ergab deutlich porösere Agglomerate ( $\varepsilon \approx 0,58$ ), erforderte jedoch für reproduzierbare Ergebnisse Pulver mit sehr niedrigem Wassergehalt.

Die hier vorgelegten Ergebnisse wurden im wesentlichen mit verschiedenen gemahlten Sacchariden erzielt, die als Modell- bzw. Grundsubstanzen für die Strahlagglomeration angesehen werden können. Sie sind vollständig wasserlöslich und bilden bei der Befeuchtung viskose Oberflächenschichten. Unter anderem aus diesem Grund ist Saccharose Hauptbestandteil vieler agglomerierter Lebensmittel, auch wenn zu deren Herstellung andere Agglomerierverfahren dienen. Es wurden zusätzlich einige Experimente mit kakaohaltigen Pulvermischungen durchgeführt und die Agglomerateigenschaften mit denen handelsüblicher Produkte verglichen.

---

Nicht jedes wasserlösliche Pulver ist für die Strahlagglomeration nach dem hier vorgestellten Verfahren geeignet. Erste Voraussetzung ist die Eignung zur Trockenagglomeration unter leichtem Druck, da hier bereits der wesentliche Partikelvergrößerungsschritt stattfinden muß. Zweitens ist erforderlich, daß bei Befeuchtung mit kondensierendem Dampf innerhalb von Zehntelsekunden eine ausreichende Menge Feststoff gelöst wird, um bei der nachfolgenden Trocknung Festkörperbrücken zu bilden. Die Eignung eines Pulvers für die Strahlagglomeration kann jedoch mit einem einfachen Test beurteilt werden.

Diese Arbeit enthält neben Angaben zur Konstruktion einer Dampfstrahl-Agglomerationsanlage für Durchsätze bis zu  $300 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$  Hinweise zur Auswahl geeigneter Pulverdosiervorrichtungen zur Erzeugung poröser, lockerer Agglomerate als Aufgabegut für die Strahlagglomeration.

Es wird ferner ein vollständiger Satz von Meßmethoden zur Untersuchung aller bei der Strahlagglomeration zu berücksichtigenden Aspekte vorgestellt: Bildanalyseverfahren zur Bestimmung der Partikelgröße von Voragglomeraten, zur Bestimmung der Partikelgröße der durch Verfestigung im Dampf und Aufbauagglomeration erzeugten Endprodukte und zur Messung der Porosität dieser Agglomerate, ein Test zur Abschätzung der Eignung eines Pulvers für das hier beschriebene Verfahren sowie Methoden zur Charakterisierung des Abriebverhaltens und der Instanteigenschaften der hergestellten Produkte.

Die vorgestellte Methode zur Berechnung des Partikelwachstums durch kinematische Agglomeration in der Dampfzone bietet die Möglichkeit, auf der Grundlage der hier verwendeten Technikumsanlage Vorhersagen über die Auswirkungen konstruktiver Änderungen zu treffen.

բև զ բև որ, բայրե՛ճ Ելոր,  
բև զ բև որ, առ ո՛ճա Ելոր, բև որ.

Something that everybody  
wants to have read and  
nobody wants to read.  
MARK TWAIN

## 7 Literatur

BECKER, E.: *Technische Strömungslehre*. 6. Aufl. Stuttgart : Teubner, 1986

BÖHME, G. ; EGEY, Z. ; KRUPP, H.: *Ultrazentrifugen zur Messung der Haftung kleiner Feststoffteilchen an festen Körpern*. In: *Preprints of the IVth Intern. Congr. Surface Activity*. Brüssel, 1964

BUGGISCH, H.: Persönliche Mitteilung. Karlsruhe : 21.04.1995

CAPES, C. E.: *Particle Size Enlargement*. In: WILLIAMS, A. (Hrsg.) ; ALLEN, T. (Hrsg.): *Handbook of Powder Technology*. Bd. 1. Amsterdam : Elsevier, 1980

GEORGESCU, L. ; HOGEKAMP, S. ; SCHUBERT, H.: *Untersuchungen zur Zugfestigkeit von Pulverschüttungen*. In: Internationales Seminar für Forschung und Lehre in Chemieingenieurwesen, Technischer und Physikalischer Chemie an der Universität Karlsruhe (T.H.) (Hrsg.): *Wissenschaftliche Abschlußberichte 31. Internationales Seminar*. Karlsruhe, 1996, S. 163–175

HERRMANN, W.: *Das Verdichten von Pulvern zwischen zwei Walzen*. Weinheim : Verlag Chemie, 1973

HOGEKAMP, S. ; FAKOUHI, N. ; SCHUBERT, H.: *Determination of the particle size distribution of fragile agglomerates using flatbed scanners and image analysis software*. In: DURST, F. (Hrsg.) ; DOMNICK, J. (Hrsg.): *Preprints of the 4th International Congress Optical Particle Sizing*. Nürnberg, 1995

HIRSCHMÜLLER, H.: *Physical Properties of Sucrose*. In: HONIG, P. (Hrsg.): *Principles of Sugar Technology*. Vol. 1. Amsterdam : Elsevier, 1953

JOHANSON, J. R.: *A Rolling Theory for Granular Solids*. In: *Trans. ASME / Journal of Applied Mechanics* (1965), Nr. 12, S. 842–848

KRÜGER, Ch.: *Zucker*. In: BECKETT, S. T. (Hrsg.): *Moderne Schokoladentechnologie: Rohstoffe, Verfahrenstechnik, Qualitätskontrolle, Marketing*. Hamburg : Behr, 1990

KRUPP, H.: *Particle Adhesion Theory and Experiment*. In: *Advan. Colloid Interface Sci.* 1 (1967), S. III–239

KÜRTE, H. ; RAASCH, J. ; RUMPF, H.: *Beschleunigung eines kugelförmigen Feststoffteilchens im Strömungsfall konstanter Geschwindigkeit*. In: *Chem. Ing. Tech.* 38 (1966), Nr. 12, S. 941–948

LÖFFLER, F.: *Staubabscheiden*. Stuttgart : Thieme, 1988

LONCIN, M. ; WEISSER, H.: *Die Wasseraktivität und ihre Bedeutung in der Lebensmittelverfahrenstechnik*. In: *Chem. Ing. Tech.* 49 (1977), Nr. 4, S. 312–319

LUBJUH, U.: *Materialtransport und Druckverteilung im Spalt der Gutbett-Walzenmühle*. Düsseldorf : VDI, 1992 (Fortschr.-Ber. VDI-Reihe 3 Nr. 298)

LÜHRS, G. ; WACHSMUTH, F.: *Agglomeration in der Dampfphase*. In: *Gordian* 3 (1976), S. 82–86

MALAVE-LOPEZ, J. ; PELEG, M.: *Mechanical Attrition Rate Measurements in Agglomerated Instant Coffee*. In: *J. Food Sci.* 51 (1986) Nr. 3, S. 687–690 und 697

MARTIN, H. ; GNIELINSKI, V.: Persönliche Mitteilung. Karlsruhe : 05.03.1997

MOTHES, H.: *Bewegung und Abscheidung der Partikel im Zyklon*. Karlsruhe, Universität Karlsruhe (T.H.), Fakultät für Chemieingenieurwesen, Diss., 1982

MÜLLER, M.: *Untersuchungen zum Flockenwachstum bei der Agglomeration in Flüssigkeiten*. Karlsruhe, Universität Karlsruhe (T.H.), Fakultät für Chemieingenieurwesen, Diss., 1996

Norm DIN 66 165 Teil 1 April 1987. *Partikelgrößenanalyse, Siebanalyse, Grundlagen*

Norm IDF E-DOC 90 1978. *Dispersibility and Wettability of Instant Dried Milk*

PETRI, M. ; KLITSCHER, C.: *Scannen und optische Zeichenerkennung*. Bonn : Addison-Wesley, 1993

PIETSCH, W. ; RUMPF, H.: *Haftkraft, Kapillardruck, Flüssigkeitsvolumen und Grenzwinkel einer Flüssigkeitsbrücke zwischen zwei Kugeln*. In: *Chem. Ing. Tech.* 39 (1967), Nr. 15, S. 885–893

PIETSCH, W.: *Size Enlargement by Agglomeration*. Chichester : Wiley, 1991



POLKE, R.: *Zur Haftung zwischen Festkörpern bei erhöhten Temperaturen*. Karlsruhe, Universität Karlsruhe (T.H.), Fakultät für Chemieingenieurwesen, Diss., 1971

ROTH, D.: *Amorphisierung bei der Zerkleinerung und Rekrystallisation als Ursachen der Agglomeration von Puderzucker und Verfahren zu deren Vermeidung*. Karlsruhe, Universität Karlsruhe (T.H.), Fakultät für Chemieingenieurwesen, Diss., 1976

RUMPF, H.: *Grundlagen und Methoden des Granulierens. 1. Teil: Begriffe, Anwendung und Eigenschaften der Granulate. 2. Teil: Die Festigkeit kompaktdisperser Granulat-körner. 3. Teil: Überblick über die technischen Granuliermethoden*. In: Chem. Ing. Tech. 30 (1958), Nr. 3, S. 144–158 und 30 (1958), Nr. 5, S. 329–336

RUMPF, H.: *The Strength of Granules and Agglomerates*. In: KNEPPER, W. A. (Hrsg.): *Agglomeration. Int. Sympos. Philadelphia, Pa.* New York : Wiley, 1961, S. 379–418

RUMPF, H. ; TURBA, E.: *Über die Zugfestigkeit von Agglomeraten bei verschiedenen Bindemechanismen*. In: Berichte der Dt. Keramischen Gesellschaft e. V. 41 (1964), S. 78–84

RUMPF, H.: *Zur Theorie der Zugfestigkeit von Agglomeraten bei Kraftübertragung an Kontaktpunkten*. In: Chem. Ing. Tech. 42 (1970), Nr. 8, S. 538–540

RUMPF, H.: *Die Wissenschaft des Agglomerierens*. In: Chem. Ing. Tech. 46 (1974), Nr. 1, S. 1–11

RUMPF, H.: *Mechanische Verfahrenstechnik*. In: WINNACKER, K. (Hrsg.) ; KÜCHLER, L. (Hrsg.): *Chemische Technologie* Bd. 7. 3. Aufl. München : Hanser, 1975

RUMPF, H.: *Particle Adhesion*. In: SASTRY, K. V. S. (Hrsg.): *Agglomeration 77*. New York : AIME, 1977

RUSS, J. C.: *The Image Processing Handbook*. 2. Aufl. Boca Raton : CRC Press, 1995

ŠANDERA, K. ; MIRČEV, W.: *Wärmeleitfähigkeit des Zuckers*. In: Z. Zuckerind. Čechoslovak. Rep. 58 (1933/34), Nr. 20, S. 145–148

SCHLÜNDER, E.-U.: *Einführung in die Stoffübertragung*. Stuttgart : Thieme, 1984

SCHLÜNDER, E.-U. ; TSOTSAS, E.: *Wärmeübertragung in Festbetten, durchmischten Schüttgütern und Wirbelschichten*. Stuttgart : Thieme, 1988

SCHUBERT, H. ; WIBOWO, W.: *Zur experimentellen Bestimmung der Zugfestigkeit von gering verdichteten Schüttgütern*. In: Chem. Ing. Tech. 42 (1970), Nr. 8, S. 541–545

SCHUBERT, H. ; SOMMER, K. ; RUMPF, H.: *Plastische Verformung des Kontaktbereichs bei Partikelhaftung*. In: Chem. Ing. Tech. 42 (1970), Nr. 8, S. 716

SCHUBERT, H.: *Untersuchungen zur Ermittlung von Kapillardruck und Zugfestigkeit von feuchten Haufwerken aus körnigen Stoffen*. Karlsruhe, Universität Karlsruhe (T.H.), Fakultät für Chemieingenieurwesen, Diss., 1972

SCHUBERT, H.: *Agglomerieren*. In: DIALER, K. (Hrsg.) ; ONKEN, U. (Hrsg.) ; LESCHONSKI, K. (Hrsg.): *Grundzüge der Verfahrenstechnik und der Reaktionstechnik*. München : Hanser, 1986

SCHUBERT, H.: *Kapillarität in porösen Feststoffsystemen*. Berlin : Springer, 1982

SCHUBERT, H.: *Instantisieren pulverförmiger Lebensmittel*. In: Chem. Ing. Tech. 62 (1990), Nr. II, S. 892–906

SCHUCH, G.: *Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Auslegung von Naßabscheidern*. Karlsruhe, Universität Karlsruhe (T.H.), Fakultät für Chemieingenieurwesen, Diss., 1978

SCHUCHMANN, H.: *Untersuchungen zur Strahlagglomeration pulverförmiger Lebensmittel*. Karlsruhe, Universität Karlsruhe (T.H.), Fakultät für Chemieingenieurwesen, Diss., 1993

SCHÜTZ, W.; SCHUBERT, H.: *Der Einfluß von Anpreßkräften auf die Partikelhaftung*. In: Chem. Ing. Tech. 48 (1976), Nr. 6, S. 567

SCHÜTZ, W.: *Haftung von Feststoffpartikeln an Festkörperoberflächen in gasförmiger Umgebung*. Karlsruhe, Universität Karlsruhe (T.H.), Fakultät für Chemieingenieurwesen, Diss., 1979

Schutzrecht DE 2 348 033 (1974-04-18). SOCIÉTÉ DES PRODUITS NESTLÉ S.A.

Schutzrecht CH 550 605 (1974-06-28). SOCIÉTÉ DES PRODUITS NESTLÉ S.A.

Schutzrecht EP 0 080 607 A1 (1982-11-05). SOCIÉTÉ DES PRODUITS NESTLÉ S.A.

Schutzrecht US 4 594 256 (1986-06-10). GENERAL FOODS CORPORATION

Schutzrecht EP 0 207 384 A2 (1986-06-19). SOCIÉTÉ DES PRODUITS NESTLÉ S.A.

Schutzrecht EP 0 472 744 A1 (1990-05-18). SOCIÉTÉ DES PRODUITS NESTLÉ S.A.

SHAFER, E. G. E. ; WOLLISH, E. G. ; ENGEL C. E.: *The Roche Friabilator*. In: American Pharmaceutical Association, Scientific Edition Journal; 45 (1956), S. 114

SOPADE, P. A. ; KEARSLEY, M. W. ; LEGRYS, G. A.: *Heat of Melting of Sucrose*. In: Int. Sugar Jnl. 90 (1988), Nr. 1080, S. 38

---

UMHAUER, H.: *A New Device for Particle Characterization by Single Particle Light Extinction Measurements*. In: STANLEY-WOOD, N. G. (Hrsg.) ; LINES, R. W. (Hrsg.): *Particle Size Analysis. 25th Anniversary Conference of the Royal Society of Chemistry*. University of Technology, Loughborough, 17.–19.09.1991 – Conference Proceedings

VEREIN DEUTSCHER INGENIEURE VDI-GESELLSCHAFT VERFAHRENSTECHNIK UND CHEMIEINGENIEURWESEN GVC (Hrsg.): *VDI-Wärmeatlas: Berechnungsblätter für den Wärmeübergang*. 5. Aufl. Düsseldorf: VDI, 1988

WASHBURN, E. W. (Hrsg.): *International Critical Tables*. Vol. V. New York : McGraw-Hill, 1929



# 8 Anhang

## 8.1 Anhang I – Programme und Makros

### Programm zur Simulation der Agglomeration

```
program Popelbilanz;

{Dies ist eine spezielle Implementierung der Programmiersprache Pascal}
{als Makrosprache des Programms proFit für Apple Macintosh-Rechner}

{arbeitet mit einer Tabelle von 37 Spalten und 32 Zeilen}
{9 Spalten für Höhenschichten: Eingang, 7 (bzw. 6, 5) Arbeitsschichten, Ausgang}
{1 Spalte für Intervallmitten, 8 Spalten für Geschwindigkeiten}
{Geschwindigkeiten aus Lösung der Bewegungs-Differentialgleichung}
{1 Spalte für Intervallbreiten, 2 Spalten für q0-Verteilungen}
{7 Spalten zur Zwischenspeicherung von Impulssummen}
{7 Spalten für Faktoren zur Geschwindigkeitserhöhung}
{2 Spalten für q3-Verteilungen}
{Höhe einer Schicht = 0,05 m, Δt = 0,015 s}
{Fläche der 1. aktiven Schicht = 0,02 * 0,1 m^2, Fläche der letzten}
{aktiven Schicht = 0,06 * 0,1 m^2}
var i,j,k,l,nt,Anz:integer;
    VolAntAbger,VPartikel,VSammler,Veingefangen,VeingefangenKlasse,
    vrel,vneu,vneuKlasse,Nneu,NneuKlasse,Summe:extended;
    Psi,Re,dummy1,dummy2,dummy3,dummy4,dummy5:extended;
    Kalk:boolean;
const V=1e-4;
    dt=1.5e-2;
    rhop=600; {rhop könnte zur Verfeinerung Funktion der Partikelgröße sein}
    rhog=0.55;
    eta=1.26e-5;
function Auftreffgrad (ReLok,PsiLok: extended): extended;
var aa,bb:extended;
begin
    aa:= 0.23 + 0.65 / (1 + 0.009 * (ReLok - 12)^2) + 0.85 / (1 + 0.0025 * (ReLok
    - 35)^2);
    bb:= 2 + 1.1 * exp((0.42 - ReLok)/0.75);
    Auftreffgrad:=(PsiLok / (aa + PsiLok))^bb;
end;
function Reynolds (v1,v2,d: extended): extended;
```

## Anhang

```
begin
  Reynolds:= 1*(v1 - v2) * d/1000 * rhog / eta;
end;
begin {Hauptprogramm}

  {Initialisierung}

  for i:=22 to 28 do
    begin
      for j:=1 to 32 do
        begin
          data[j,i]:=0; {Impulssummierzellen auf 0 setzen};
        end;
      end;
    end;
  for i:=2 to 9 do
    begin
      for j:=1 to 32 do
        begin
          data[j,i]:=data[j,1]; {Startverteilung in alle Schichten propagieren};
        end;
      end;
    end;
  for i:=12 to 18 do
    begin
      for j:=1 to 32 do
        begin
          data[j,i]:=data[j,i-1] * data[j,i+17]; {Startgeschwindigkeiten
                                                    rekonstruieren};
        end;
      end;
    end;

  {Diese Initialisierung muß entfernt werden, wenn das dynamische Verhalten
  untersucht werden soll!};

  input('Wie viele Zeitschritte?',nt);
  SetWaitTitle('Now calculating "Popelbilanz", please be patient...');
  for i:=1 to nt do {Schleife über nt Zeitschritte  $\Delta t$ }
    begin
      for j:=4 to 8 do {Schleife über 7 bzw. 6, 5 Arbeitsschichten, wenn j = 2
        bzw. 3, 4}
        begin
          for k:=1 to 31 do {Schleife über 31 Größenklassen}
            begin
              Veingefangen:=0;
              Nneu:=0;
              VSammler:=4/3 * pi * (data[k,10] / 2)^3;
              for l:=(k+1) to 32 do {Schleife über alle kleineren Größenklassen}
                begin
                  {Auftreffgrad berechnen}
                  Re:=Reynolds(data[k,j+10],data[32,j+10],data[k,10]);
                  Psi:=rhop * (data[k,j+10] - data[32,j+10]) * (data[l,10])^2 /
                    (18000 * eta * data[k,10]);
                  {Abgereinigten Volumenanteil berechnen}
                  vrel:=(data[k,j+10] - data[l,j+10])*1;
                  if vrel<0 then vrel:= Abs(vrel);
                  VolAntAbger:=pi/4 * (data[k,10] + data[l,10])^2 * 1e-6 * dt *
                    vrel * data[k,j] / (V * (j/3 + 0.3333));
                  {Auftreffgrad berücksichtigen}
                  VolAntAbger:=VolAntAbger * Auftreffgrad(Re,Psi);
                  {Volumen der aufgesammelten Partikeln in mm^3 berechnen}
                  VPartikel:=4/3 * pi * (data[l,10] / 2)^3;
                  VeingefangenKlasse:=VPartikel * data[l,j] * VolAntAbger;
                  { = Gesamtvol. der eingefangenen Partikeln dieser Größenklasse}
                  {Anzahl neuer Partikeln berechnen}
                  NneuKlasse:=VeingefangenKlasse / VSammler;
                  {v der neuen Partikeln ist der Mittelwert aus Sammler- und
                  Partikelgeschwindigkeit}
                  {Dieser Mittelwert mal der Zahl der Neuen wird in der "Impuls-
                  summierzelle" der höheren Größenklasse aufsummiert}
                  if k>1 then data[k-1,j+20]:=data[k-1,j+20] + NneuKlasse *
                    (data[k,j+10] + data[l,j+10]) / 2;
                  Veingefangen:=Veingefangen + VeingefangenKlasse;
                  { = Volumen der insgesamt eingefangenen Partikeln}
                end;
              end;
            end;
          end;
        end;
      end;
    end;
  end;
```

```

    {Anzahl der aufgesammelten Partikeln erniedrigen}
    data[1,j]:=data[1,j] * (1 - VolAntAbger);
    if (data[1,j])<0 then data[1,j]:=0;
    end; {Schleife über alle kleineren Größenklassen}
{Gesamtanzahl neuer Partikeln berechnen}
Nneu:=Veingefangen / VSammler;
{Anzahl der Sammler verringern}
data[k,j]:=data[k,j] - Nneu;
if (data[k,j])<0 then data[k,j]:=0;
{Geschwindigkeit der Partikeln in der darüberliegenden Größenklasse
berechnen: ist = ((Zahl der vorhandenen) * v(vorhandene) + Impuls-
summierzelle) / neue Gesamtzahl}
if k>1 then
    if(data[k-1,j] + Nneu)>0 then data[k-1,j+10]:=(data[k-1,j] *
    data[k-1,j+10] + data[k-1,j+20]) / (data[k-1,j] + Nneu);
    {Impulssummierzelle auf 0 setzen}
    if k>1 then data[k-1,j+20]:=0;
    {Anzahl der Partikeln in der darüberliegenden Größenklasse erhöhen}
    if k>1 then data[k-1,j]:=data[k-1,j] + Nneu;
    end; {Ende Schleife über 32 Größenklassen}
    {Kollisionsauswirkungen in der Schicht sind jetzt berechnet}
end; {Ende Schleife über 7 Schichten}
    {Kollisionsausw. in allen Arbeitsschichten sind jetzt berechnet}
for k:=1 to 32 do {Schleife über 32 Größenklassen}
    begin
    data[k,9]:=data[k,8];
    {= Kopie von Arbeitsschicht 7 vor der Völkerwanderung}
    end; {Ende Schleife über 32 Größenklassen}
for j:=8 downto 2 do {Schleife über 7 Schichten von unten nach oben}
    begin
    for k:=1 to 32 do {Schleife über 32 Größenklassen}
        begin
        {Abgänge aufgrund Bewegung in die nächste Schicht abziehen}
        data[k,j]:=data[k,j] * (1 - data[k,j+10] * dt / 0.05);
        {neue gemittelte Geschwindigkeit unter Berücksichtigung des
        Impulszugewinns aus Beschleunigung ausrechnen}
        if (data[k,j])>0 then
            if (data[k,j-1])>0 then data[k,j+10]:=(data[k,j] * data[k,j+10] +
            data[k,j-1] * data[k,j+27] * (data[k,j+9])^2 * dt / 0.05) /
            (data[k,j] + data[k,j-1] * data[k,j+9] * dt / 0.05);
            {Zugänge aus der darüberliegenden Schicht dazuaddieren}
            data[k,j]:=data[k,j] + data[k,j-1] * data[k,j+9] * dt / 0.05;
            end; {Ende Schleife über 32 Größenklassen}
        end; {Ende Schleife über 7 Schichten von unten nach oben}
        end; {Ende Schleife über nt Zeitschritte Δt}
        {q0- und q3-Verteilung am Eingang berechnen}
        Kalk:=CalcStat(1,false,true,false,false);
        if Kalk=true then
            begin
            GetBasics(dummy1,Summe,dummy2,dummy3,dummy4,dummy5);
            for k:=1 to 32 do {Schleife über 32 Größenklassen}
                begin
                data[k,20]:=data[k,1] / (Summe * data[k,19]); {q0-Verteilung}
                end;
                Summe:=0;
                for k:=1 to 32 do {Schleife über 32 Größenklassen}
                    begin
                    data[k,36]:=data[k,1] * pi/6 * (data[k,10])^3;
                    Summe:=Summe + data[k,36];
                    data[k,36]:=data[k,36] / data[k,19];
                    end;
                    for k:=1 to 32 do {Schleife über 32 Größenklassen}
                        begin
                        data[k,36]:=data[k,36] / Summe; {q3-Verteilung}
                        end;
                        Summe:=0;
                        end;
                        {q0- und q3-Verteilung am Ausgang berechnen}
                        Kalk:=CalcStat(9,false,true,false,false);
                        if Kalk=true then
                            begin
                            GetBasics(dummy1,Summe,dummy2,dummy3,dummy4,dummy5);

```

---

## Anhang

```
for k:=1 to 32 do {Schleife über 32 Größenklassen}
begin
  data[k,21]:=data[k,9] / (Summe * data[k,19]); {q0-Verteilung}
end;
Summe:=0;
for k:=1 to 32 do {Schleife über 32 Größenklassen}
begin
  data[k,37]:=data[k,9] * pi/6 * (data[k,10])^3;
  Summe:=Summe + data[k,37];
  data[k,37]:=data[k,37] / data[k,19];
end;
for k:=1 to 32 do {Schleife über 32 Größenklassen}
begin
  data[k,37]:=data[k,37] / Summe; {q3-Verteilung}
end;
Summe:=0;
end;
SpeakString('All computations completed, sire');
end;
```

## Makro zur Auswertung von Videoaufnahmen

```
macro 'Batch Processing...PGATragg'; {Makro für NIH Image for Apple Macintosh}
{Liest maximal 200 Bilder mit Dateinamen der Form 'Image_1', 'Image_2'..}
var
k,i,m,n,z,width,height,Level,Rand:integer; scale,Skala:real;
unit,Speichername,Hintergrundname,Ergebnis,Listenname,str:string;
begin
Level:= GetNumber('S/w-Schwellenwert (0 für "auto"): ',90);
Rand:= GetNumber('Mit Partikeln am Bildrand? (0:n, 1:j) ',0);
Skala:= GetNumber('Wieviel pixel pro mm? ',37);
Hintergrundname:='Hintergrund';
z:=0;
str:=chr(49+z);
Listenname:=concat('Liste',str);
NewTextWindow(Listenname);
n:=1;
open('SonneHD:lokale_Programme:NIHImage:auszuwertende_Bilder:Hintergrund');
SetOptions('Major; Minor');
LabelParticles(false);
OutlineParticles(false);
If Rand=0 then IgnoreParticlesTouchingEdge(true)
  else IgnoreParticlesTouchingEdge(false);
IncludeInteriorHoles(true);
SetParticleSize(9,999999);
SetPrecision(2);
{GetScale(scale,unit);}
SetScale(Skala,'mm');
for i:=1 to 200 do begin
open('SonneHD:lokale_Programme:NIHImage:auszuwertende_Bilder:Image_',i:1);
SelectWindow(Hintergrundname);
ImageMath('sub',1,2,2,0,'Ergebnis');
SelectWindow('Image_',i:1);
dispose;
SelectWindow('Ergebnis');
Convolve('SonneHD:lokale_Programme:NIHImage:Kernels:Gauss5x5');
if Level=0 then AutoThreshold
  else SetThreshold(Level);
{if threshold < 10 then SetThreshold(10);}
SelectAll;
AnalyzeParticles;
n:=n+rCount;
ShowResults;
if rCount > 0 then begin
CopyResults;
SelectWindow(Listenname);
if n<1600
  then begin
```



```

        paste;
Speichername:=concat('SonneHD:lokale_Programme:NIHImage:
    auszuwertende_Bilder:',Listenname);
SaveAs(Speichername);
SelectWindow('Ergebnis');
dispose;
    end
else begin
    z:=z+1;
    str:=chr(49+z);
    Listenname:=concat('Liste',str);
    n:=rCount;
    close;
    NewTextWindow(Listenname);
    SelectWindow(Listenname);
    paste;
    Speichername:=concat('SonneHD:lokale_Programme:NIHImage:
        auszuwertende_Bilder:',Listenname);
    SaveAs(Speichername);
    SelectWindow('Ergebnis');
    dispose;
    end;
end
else begin
    SelectWindow('Ergebnis');
    dispose;
end;
SelectWindow('Results');
close;
end;
end;

```

## Programm zur Auswertung von Rohdaten aus der Bildanalyse

```

PROGRAM Auswertung48Kq0q3; {Datenanalyseprogramm proFit für Apple Macintosh}
{Konstanten}
CONST
  {Datenstruktur; ZeileMax beliebig groß}
  ZeileMin = 1;
  ZeileMax = 10000;
  {Spalten-Indizes}
  GASpalte           = 1;
  KASpalte           = 2;
  VolumenSpalte      = 3;
  VergleichsDurchmesserSpalte = 4;
  IntervallmitteSpalte = 5;
  IntervallGrenze    = 6;
  IntervallBelegungSpalte = 7;
  IntervallAnzahlSpalte = 8;
  IntervallBreiteSpalte = 9;
  Q3KleinSpalte      = 10;
  Q3GrossSpalte      = 11;
  Q0KleinSpalte      = 12;
  Q0GrossSpalte      = 13;
  {Durchmesser-Indizes}
  DurchmessergrenzeMinIndex = 1;
  DurchmessergrenzeMaxIndex = 48;
  {Durchmessergrenzen}
  DurchmessergrenzeMinWert = 0;
  Durchmessergrenze1 = 0.042;
  Durchmessergrenze2 = 0.05;
  Durchmessergrenze3 = 0.059;
  Durchmessergrenze4 = 0.071;
  Durchmessergrenze5 = 0.084;
  Durchmessergrenze6 = 0.1;
  Durchmessergrenze7 = 0.121;
  Durchmessergrenze8 = 0.14;
  Durchmessergrenze9 = 0.162;
  Durchmessergrenze10 = 0.188;

```

---

## Anhang

```
Durchmessergrenze11 =0.219;
Durchmessergrenze12 =0.25;
Durchmessergrenze13 =0.275;
Durchmessergrenze14 =0.2975;
Durchmessergrenze15 =0.32;
Durchmessergrenze16 =0.345;
Durchmessergrenze17 =0.37;
Durchmessergrenze18=0.4;
Durchmessergrenze19 =0.43;
Durchmessergrenze20 =0.46415;
Durchmessergrenze21 =0.4983;
Durchmessergrenze22 =0.5375;
Durchmessergrenze23 =0.5767;
Durchmessergrenze24 =0.6225;
Durchmessergrenze25 =0.6683;
Durchmessergrenze26 =0.72165;
Durchmessergrenze27 =0.775;
Durchmessergrenze28 =0.83665;
Durchmessergrenze29 =0.8983;
Durchmessergrenze30 =0.97;
Durchmessergrenze31 =1.0417;
Durchmessergrenze32 =1.1242;
Durchmessergrenze33 =1.2067;
Durchmessergrenze34 =1.30335;
Durchmessergrenze35 =1.4;
Durchmessergrenze36 =1.5105;
Durchmessergrenze37 =1.621;
Durchmessergrenze38 =1.7505;
Durchmessergrenze39 =1.880;
Durchmessergrenze40 =2.19;
Durchmessergrenze41 =2.5;
Durchmessergrenze42 =2.87;
Durchmessergrenze43 =3.3;
Durchmessergrenze44 =3.79;
Durchmessergrenze45 =4.35;
Durchmessergrenze46 =5;
Durchmessergrenze47 =5.74;
Durchmessergrenze48 =6.6;
DurchmessergrenzeMaxWert = 10;
{Erste Intervallmitte}
Intervallmittewert =0.021;
{Variablen}
VAR
{Lauf-Variablen}
Counter,
ZeilenCounter,
Anzahl,
DurchmessergrenzCounter: INTEGER;
{Flag zur Bestimmung, ob ein Wert einem Intervall zugeordnet werden konnte}
Sorted: BOOLEAN;
{Zwischengrößen}
NFaktor,
Teilvolumen,
Teilanzahl,
Gesamtvolumen: REAL;
{intern benutzte Funktionen zur Volumenbestimmung bzw. zur Bestimmung des
Vergleichsdurchmessers}
FUNCTION Volumen(KA,Faktor: REAL): REAL;
BEGIN
  Volumen := (PI /6) * KA * KA * KA*Faktor;
END;
FUNCTION VergleichsDurchmesser(KA,Faktor: REAL): REAL;
BEGIN
  VergleichsDurchmesser := EXP((1/3) * LN(Faktor))*KA;
END;
BEGIN
  IF DataOK(1,Volumenspalte) THEN
    NFaktor := Data[1,Volumenspalte]
  ELSE
    NFaktor := 1;
  SetColumnName (1,'GroßeAchse');
  SetColumnName (2,'KleineAchse');
```

```
SetColumnName (3,'Volumen');
SetColumnName (4,'Vgldurchmesser');
SetColumnName (5,'Intervallmitte');
SetColumnName (6,'Intervallgrenze');
SetColumnName (7,'Intervallbelegung');
SetColumnName (8,'Intervallanzahl');
SetColumnName (9,'Intervallbreite');
SetColumnName (10,'q0');
SetColumnName (11,'Q3');
SetColumnName (12,'q0');
SetColumnName (13,'Q0');
Data[1,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze1;
Data[2,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze2;
Data[3,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze3;
Data[4,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze4;
Data[5,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze5;
Data[6,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze6;
Data[7,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze7;
Data[8,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze8;
Data[9,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze9;
Data[10,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze10;
Data[11,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze11;
Data[12,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze12;
Data[13,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze13;
Data[14,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze14;
Data[15,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze15;
Data[16,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze16;
Data[17,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze17;
Data[18,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze18;
Data[19,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze19;
Data[20,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze20;
Data[21,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze21;
Data[22,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze22;
Data[23,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze23;
Data[24,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze24;
Data[25,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze25;
Data[26,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze26;
Data[27,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze27;
Data[28,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze28;
Data[29,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze29;
Data[30,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze30;
Data[31,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze31;
Data[32,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze32;
Data[33,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze33;
Data[34,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze34;
Data[35,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze35;
Data[36,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze36;
Data[37,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze37;
Data[38,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze38;
Data[39,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze39;
Data[40,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze40;
Data[41,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze41;
Data[42,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze42;
Data[43,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze43;
Data[44,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze44;
Data[45,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze45;
Data[46,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze46;
Data[47,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze47;
Data[48,Intervallgrenze] :=Durchmessergrenze48;
{Array zur Aufnahme der Teilvolumina eines Durchmesser-Intervalls mit
Null initialisieren}
FOR DurchmesserrenzCounter :=
  DurchmesserrenzMinIndex TO
  DurchmesserrenzMaxIndex + 1 DO
  BEGIN
  Data[DurchmesserrenzCounter,IntervallBelegungSpalte] := 0;
  Data[DurchmesserrenzCounter,IntervallAnzahlSpalte] := 0;
  END;
{Volumen jedes Meßpunkts berechnen }
FOR ZeilenCounter := ZeileMin TO ZeileMax DO
  {nur vorhandene Punkte berücksichtigen}
  IF DataOk(ZeilenCounter,KASpalte) THEN
```

## Anhang

```

        Data[ZeilenCounter,VolumenSpalte] :=
Volumen(Data[ZeilenCounter,KASpalte],NFaktor);
    {Gesamtvolumen aller Meßpunkte und Partikelanzahl berechnen}
    {initialisieren}
    GesamtVolumen := 0;
    Anzahl := 0;
    {Schleife über alle Meßpunkte}
    FOR ZeilenCounter := ZeileMin TO ZeileMax DO
    {nur vorhandene Meßpunkte berücksichtigen}
    IF DataOk(ZeilenCounter,VolumenSpalte) THEN
    BEGIN
        GesamtVolumen := GesamtVolumen + Data[ZeilenCounter,VolumenSpalte];
        Anzahl := Anzahl + 1;
    END;
    Data[49,Intervallgrenze]:= GesamtVolumen;
    Data[50,IntervallAnzahlSpalte]:= Anzahl;
    {Intervallmitte berechnen und an Tabelle übergeben}
    FOR Durchmesserrenzcounter := DurchmessergrenzeMinindex
    TO DurchmessergrenzeMaxindex-1 DO
        Data[Durchmesserrenzcounter+1,IntervallmitteSpalte] :=
        (Data[Durchmesserrenzcounter,Intervallgrenze]+
        Data[Durchmesserrenzcounter+1,Intervallgrenze])/2;
        Data[1,IntervallmitteSpalte] := IntervallmitteWert;
    {Vergleichsdurchmesser aller Meßpunkte berechnen}
    {Schleife über alle Meßpunkte}
    FOR ZeilenCounter := ZeileMin TO ZeileMax DO
    {nur vorhandene Meßpunkte berücksichtigen}
    IF DataOk(ZeilenCounter,KASpalte) THEN
        Data[ZeilenCounter,VergleichsdurchmesserSpalte] :=
        Vergleichsdurchmesser(Data[ZeilenCounter,KASpalte],NFaktor);
    {anhand der Vergleichsdurchmesser Volumina und Anzahl aller Meßpunkte in In-
    tervallen aufsummieren}
    {äußere Schleife über alle Meßpunkte}
    FOR ZeilenCounter := ZeileMin TO ZeileMax DO
    {nur vorhandene Meßpunkte berücksichtigen}
    IF DataOk(ZeilenCounter,VergleichsdurchmesserSpalte) THEN
    BEGIN
        {Flag rücksetzen: aktueller Meßpunkt ist noch keinem Intervall
        zugeordnet}
        Sorted := FALSE;
        {innere Schleife über alle Intervallgrenzen initialisieren mit
        dem kleinsten Grenzwert; die Elemente müssen mit steigender
        Größe ausgesiebt werden}
        Durchmesserrenzcounter := DurchmessergrenzeMinIndex;
        {innere Schleife}
        REPEAT
            {nur Meßpunkte bearbeiten, die einen kleineren als den geforderten
            Vergleichsquerschnitt haben}
            IF Data[ZeilenCounter,VergleichsdurchmesserSpalte] <
            Data[Durchmesserrenzcounter,Intervallgrenze] THEN
            BEGIN
                {Flag setzen: Element einsortiert}
                Sorted := TRUE;
                {Volumen des Elements zum Teilvolumina des Durchmesser-Intervalls
                addieren und Anzahl aufsummieren}
                Data[Durchmesserrenzcounter,IntervallBelegungSpalte] :=
                Data[Durchmesserrenzcounter,IntervallBelegungSpalte]
                + Data[ZeilenCounter,VolumenSpalte];
                Data[Durchmesserrenzcounter,IntervallAnzahlSpalte] :=
                Data[Durchmesserrenzcounter,IntervallAnzahlSpalte] + 1;
            END;
            {innere Schleifenvariable incrementieren}
            Durchmesserrenzcounter := Durchmesserrenzcounter + 1;
        {innere Schleife wird verlassen, wenn
        1. das Element einsortiert wurde oder
        2. das Element nicht kleiner als die größte Begrenzung ist; es muß
        in diesem Fall (nach Verlassen der inneren Schleife, s.u.) dem
        Endintervall zugeordnet werden.}
        UNTIL((Sorted = TRUE) OR
        (Durchmesserrenzcounter > DurchmessergrenzeMaxIndex));
        {ist das Element noch nicht einsortiert, ist das Element mindestens
        so groß wie die größte Begrenzung und wird daher dem Endintervall

```

```

    zugeordnet, falls es vorhanden ist.)
IF NOT(Sorted) THEN
  BEGIN
    Data[DurchmessergerrenzCounter,IntervallBelegungSpalte] :=
      Data[DurchmessergerrenzCounter,IntervallBelegungSpalte]
      + Data[ZeilenCounter,VolumenSpalte];
    Data[DurchmessergerrenzCounter,IntervallAnzahlSpalte] :=
      Data[DurchmessergerrenzCounter,IntervallAnzahlSpalte] + 1;
  END;
END;
{Intervallbreite in die Tabelle eintragen}
{Laufvariable initialisieren}
DurchmessergerrenzCounter := DurchmessergerrenzMinIndex;
{erstes Intervall, nicht berechnete untere Grenze}
Data[DurchmessergerrenzCounter,IntervallBreiteSpalte] :=
  DurchmessergerrenzMinIndex - DurchmessergerrenzMinWert;
{Schleife für die berechneten Intervallgrenzen}
REPEAT
  {Schleifenvariable incrementieren}
  DurchmessergerrenzCounter := DurchmessergerrenzCounter + 1;
  {eintragen als Differenz zweier berechneter Punkte}
  Data[DurchmessergerrenzCounter,IntervallBreiteSpalte] :=
    Data[DurchmessergerrenzCounter,IntervallGrenze] -
    Data[DurchmessergerrenzCounter - 1,IntervallGrenze];
  {Schleife bis der letzte berechnete Punkt erreicht ist}
UNTIL (DurchmessergerrenzCounter = DurchmessergerrenzMaxIndex);
{letztes Intervall, nicht berechnete obere Grenze}
Data[DurchmessergerrenzCounter + 1,IntervallBreiteSpalte] :=
  DurchmessergerrenzMaxWert -
  Data[DurchmessergerrenzCounter,IntervallGrenze];
{q0,q3-Verteilung berechnen und an Tabelle übergeben}
FOR DurchmessergerrenzCounter :=
  DurchmessergerrenzMinIndex TO
  DurchmessergerrenzMaxIndex + 1 DO
  BEGIN
    Data[DurchmessergerrenzCounter,Q3KleinSpalte] :=
      Data[DurchmessergerrenzCounter,IntervallBelegungSpalte] /
      (Gesamtvolumen * Data[DurchmessergerrenzCounter,IntervallBreiteSpalte]);
    Data[DurchmessergerrenzCounter,Q0KleinSpalte] :=
      Data[DurchmessergerrenzCounter,IntervallAnzahlSpalte] /
      (Anzahl * Data[DurchmessergerrenzCounter,IntervallBreiteSpalte]);
  END;
{Q0,Q3-Verteilung berechnen und an Tabelle übergeben}
FOR DurchmessergerrenzCounter := DurchmessergerrenzMinIndex TO
  DurchmessergerrenzMaxIndex + 1 DO
  BEGIN
    {Teil-Siebvolumen und Teilanzahl berechnen}
    {initialisieren}
    TeilVolumen := 0;
    TeilAnzahl := 0;
    {alle Fraktionen aufsummieren}
    FOR Counter := DurchmessergerrenzMinIndex TO DurchmessergerrenzCounter DO
      BEGIN
        TeilVolumen := TeilVolumen + Data[Counter,IntervallBelegungSpalte];
        TeilAnzahl := TeilAnzahl + Data[Counter,IntervallAnzahlSpalte];
      END;
    {Berechnung und Übergabe an Tabelle}
    Data[DurchmessergerrenzCounter,Q3GrossSpalte] := TeilVolumen / Gesamtvolumen;
    Data[DurchmessergerrenzCounter,Q0GrossSpalte] := TeilAnzahl / Anzahl;
  END;
END;
END;

```

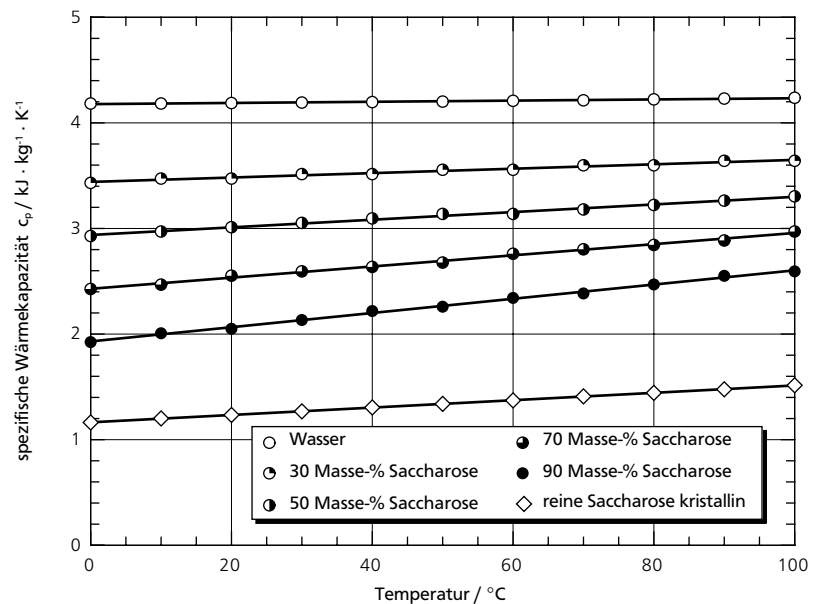
Als Grundlage für die Abschätzung kritischer Relativgeschwindigkeiten (siehe Kapitel 5), aber beispielsweise auch nur zur Abschätzung der Wasseraufnahme durch Kondensation von Dampf (Gleichung 5-17) werden verschiedene Stoffwerte benötigt. Die hier angegebenen Daten wurden teilweise der Literatur entnommen und ansonsten im Labor des Instituts für Lebensmittelverfahrenstechnik der Universität Karlsruhe gemessen.

### Wärmekapazitäten

Tabelle A-1: Spezifische Wärmekapazität verschiedener Zucker bei Raumtemperatur (WASHBURN, 1929)

Substanz	spez. Wärmekapazität $c_p / (\text{kJ} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1})$	Substanz	spez. Wärmekapazität $c_p / (\text{kJ} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1})$
$\alpha$ -Lactose $\cdot 1 \text{ H}_2\text{O}$	1,25	Fructose	1,15
$\beta$ -Lactose	1,2	Glucose	1,26
$\alpha$ -D-Galactose	1,26	Mannit	1,33

Abbildung A-1: Spezifische Wärmekapazität von Wasser, Saccharose und verschiedenen wässrigen Saccharoselösungen als Funktion der Temperatur (WASHBURN, 1929)



Die Dichten wässriger Zuckerlösungen bei verschiedenen Konzentrationen und Temperaturen wurden durch Bestimmung des Auftriebs eines Tauchkörpers mit einem *Prolabo T.D. 2000* gemessen. Angaben zur Dichte von Silikonöl als Funktion der Viskosität bei Raumtemperatur stammen vom Hersteller *Wacker-Chemie*.

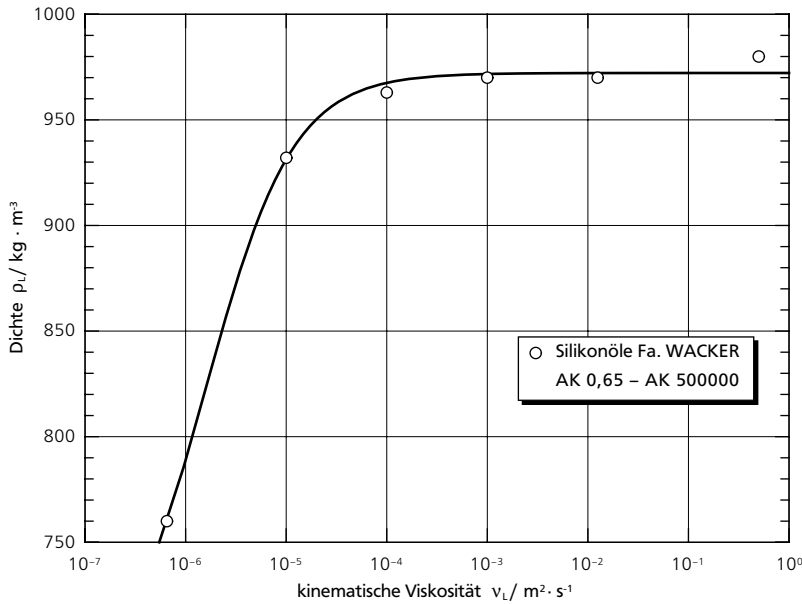


Abbildung A-2: Dichte von Silikonöl als Funktion der kinematischen Viskosität.

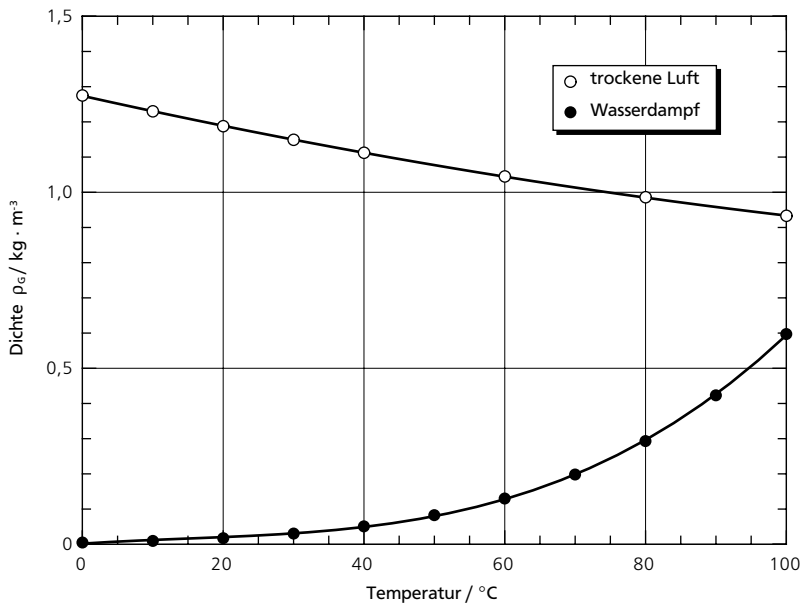


Abbildung A-3: Dichte von Luft und Wasserdampf als Funktion der Temperatur (VDI, 1988).

Anhang

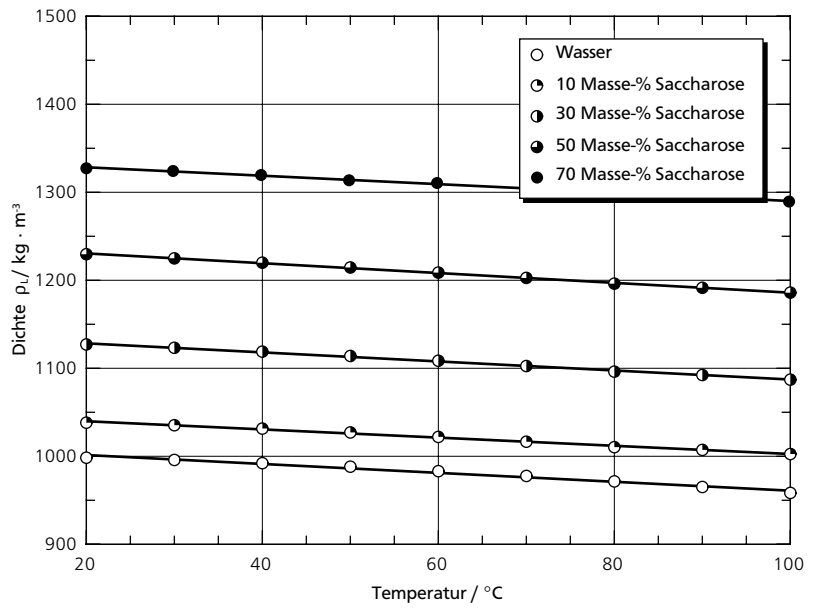


Abbildung A-4: Dichte von verschiedenen wäßrigen Saccharoselösungen als Funktion der Temperatur.

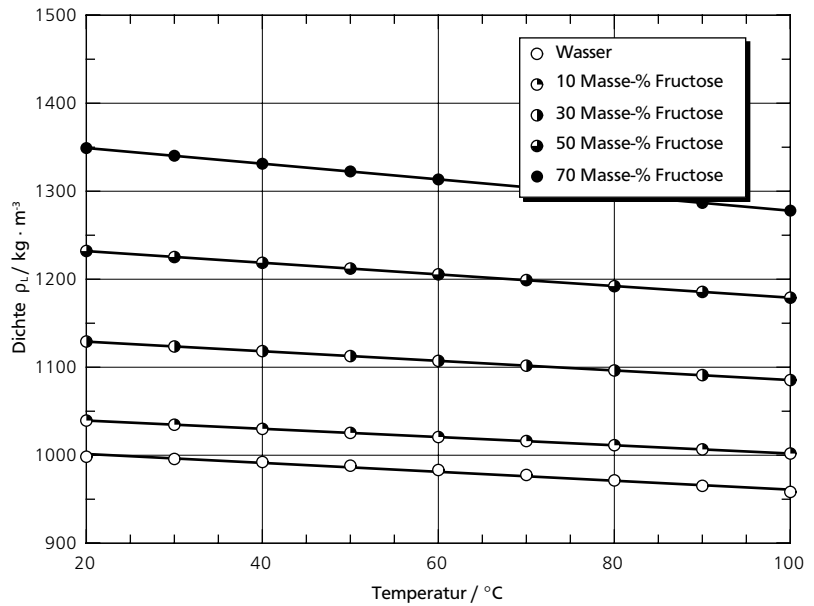


Abbildung A-5: Dichte von verschiedenen wäßrigen Fructoselösungen als Funktion der Temperatur.



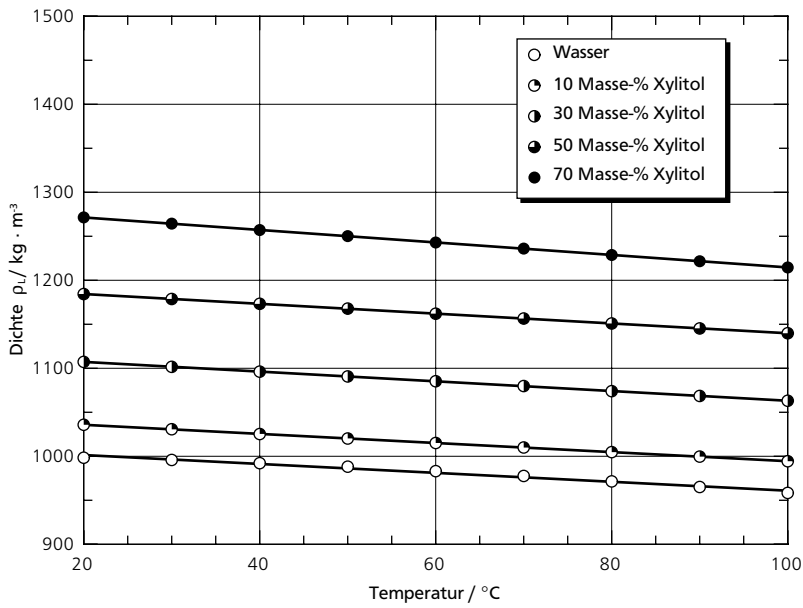


Abbildung A-6: Dichte von verschiedenen wäßrigen Xylitollösungen als Funktion der Temperatur.

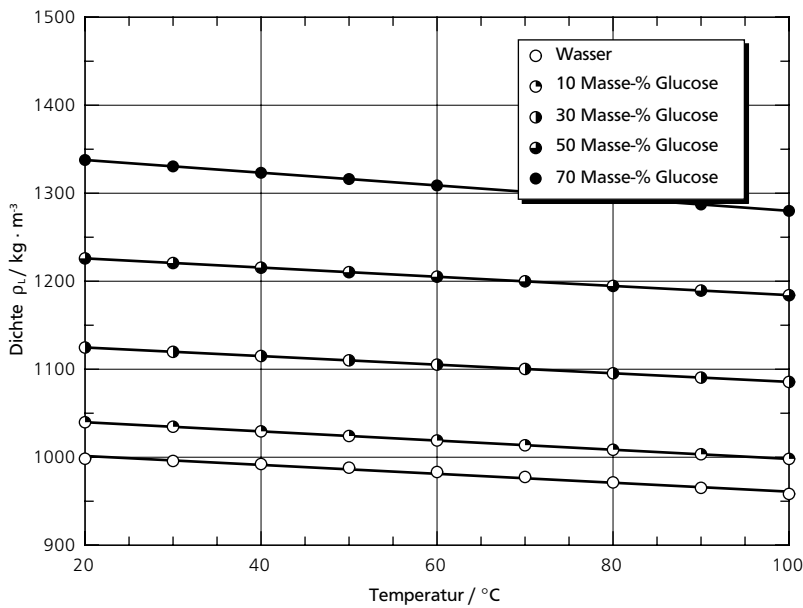


Abbildung A-7: Dichte von verschiedenen wäßrigen Glucoselösungen als Funktion der Temperatur.

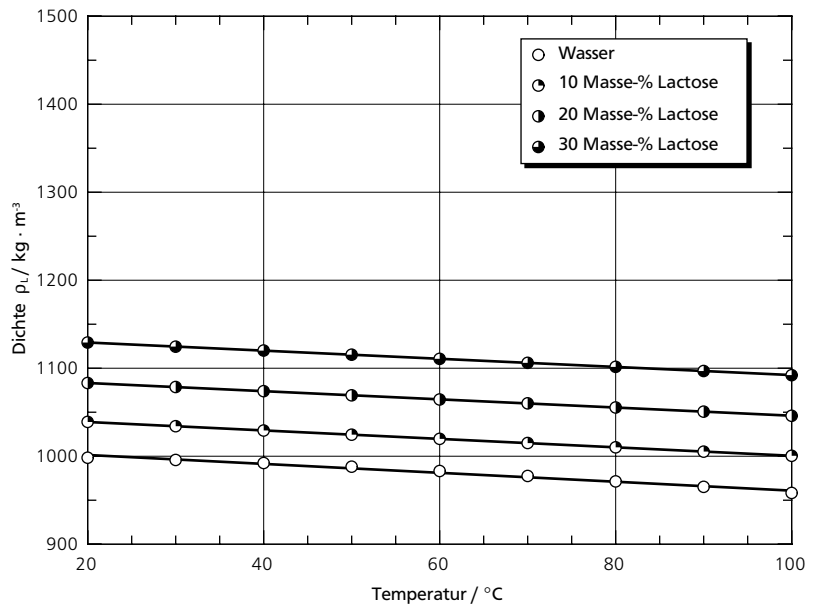


Abbildung A-8: Dichte von verschiedenen wässrigen Lactoselösungen als Funktion der Temperatur.

### Viskositäten

Die Viskositäten wurden mit einem Rheometer Typ *Carrimed CSL 100* mit den Systemen Kegel/Platte ( $\varnothing$ : 4 cm, Winkel: 2°, Luftspalt: 55  $\mu$ m) und Doppelspalt (Meßsystemspalt: 500  $\mu$ m) im Bereich newtonischen Fließverhaltens bestimmt.

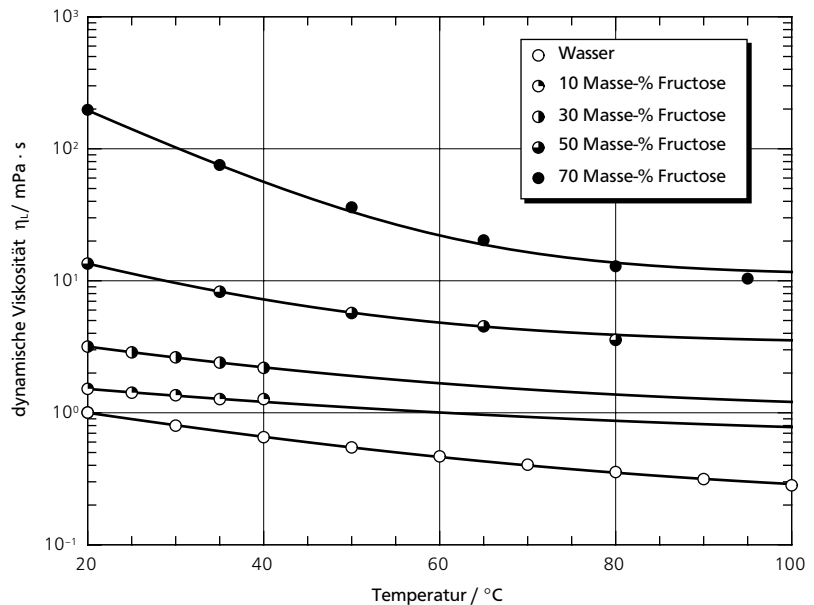


Abbildung A-9: Dynamische Viskosität von verschiedenen wässrigen Fructoselösungen als Funktion der Temperatur.

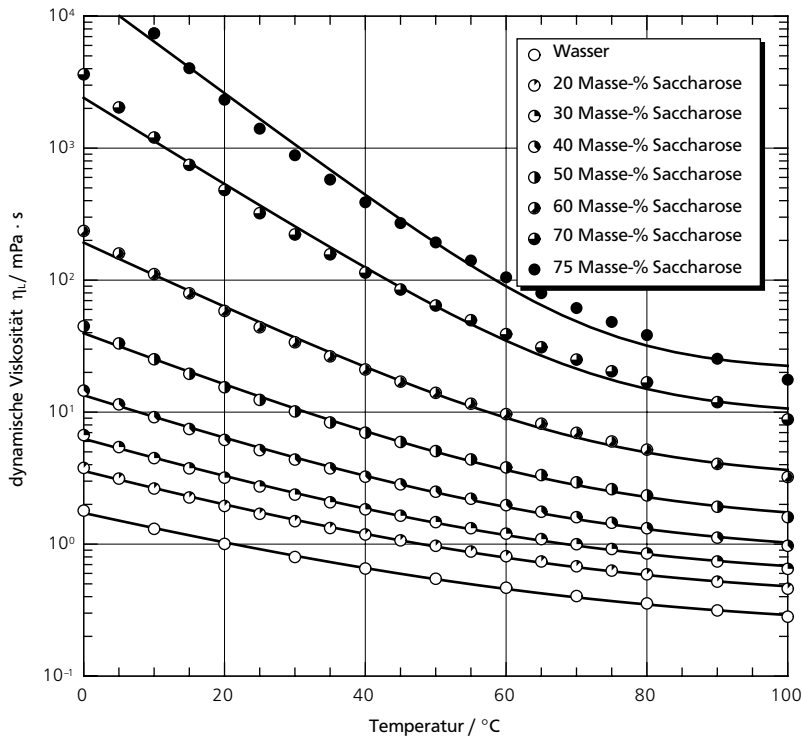


Abbildung A-10: Dynamische Viskosität von verschiedenen wässrigen Saccharoselösungen als Funktion der Temperatur.

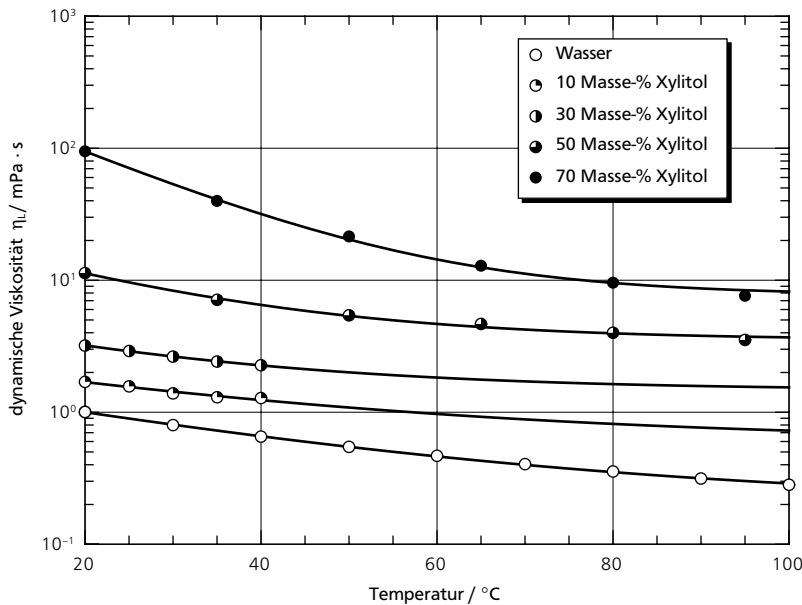


Abbildung A-11: Dynamische Viskosität von verschiedenen wässrigen Xylitollösungen als Funktion der Temperatur.

Anhang

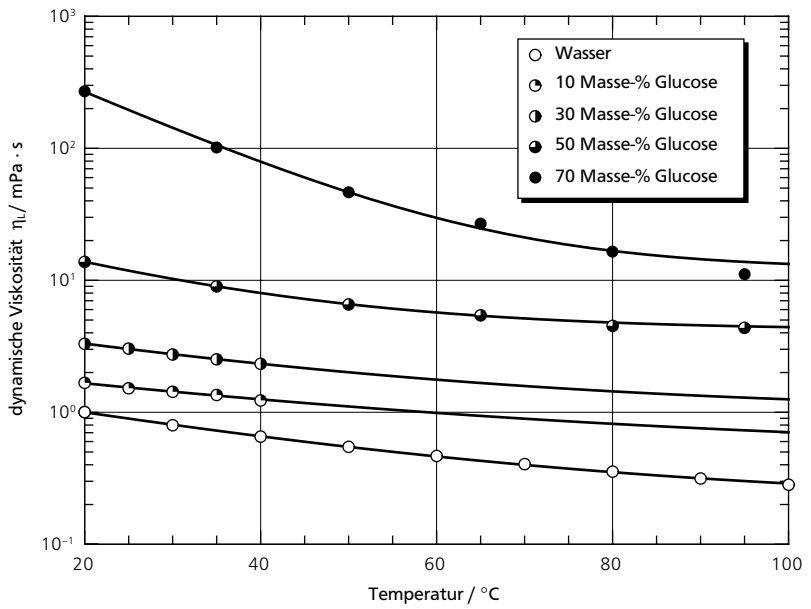


Abbildung A-12: Dynamische Viskosität von verschiedenen wäßrigen Glucoselösungen als Funktion der Temperatur.

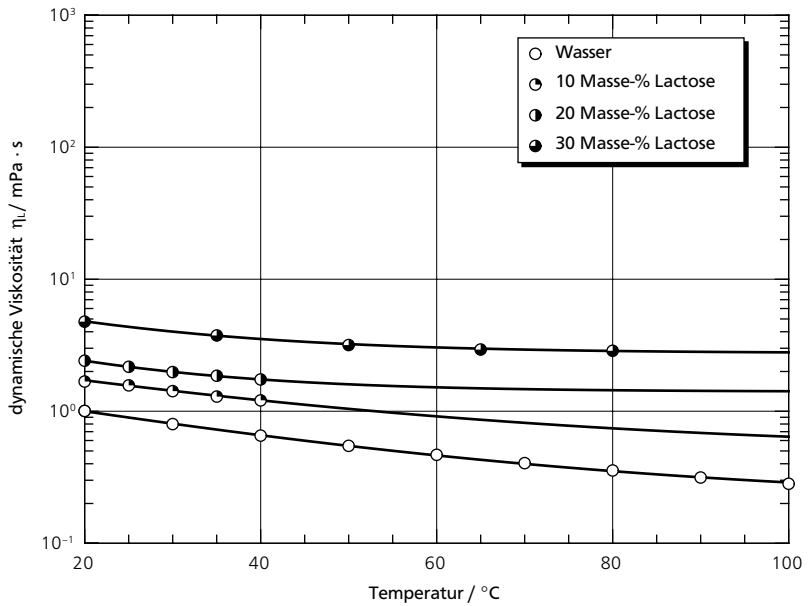


Abbildung A-13: Dynamische Viskosität von verschiedenen wäßrigen Lactoselösungen als Funktion der Temperatur.

Die Grenzflächenspannung wurde ebenfalls mit dem *Prolabo T.D. 2000* gemessen. Als Meßsysteme dienen die Wilhelmy-Platte und der Du Nouy-Ring.

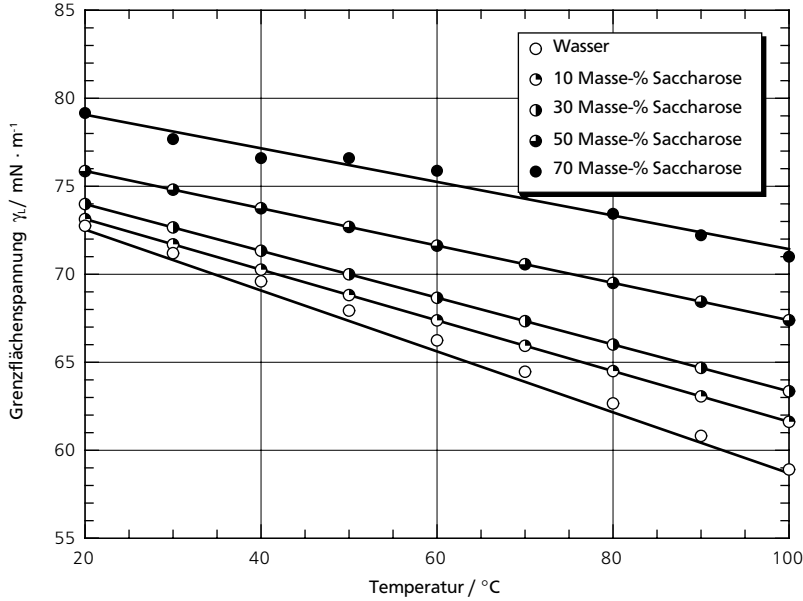


Abbildung A-14: Grenzflächenspannung von verschiedenen wäßrigen Saccharoselösungen als Funktion der Temperatur.

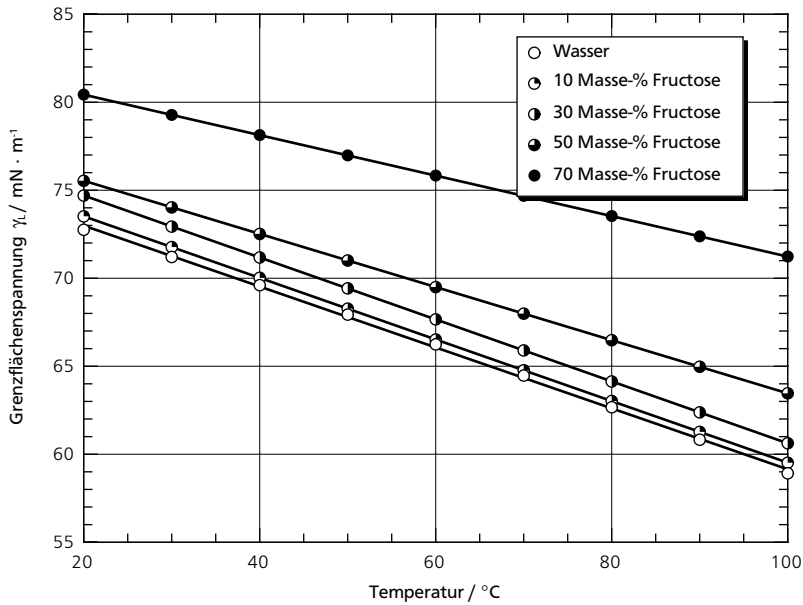


Abbildung A-15: Grenzflächenspannung von verschiedenen wäßrigen Fructoselösungen als Funktion der Temperatur.

Anhang

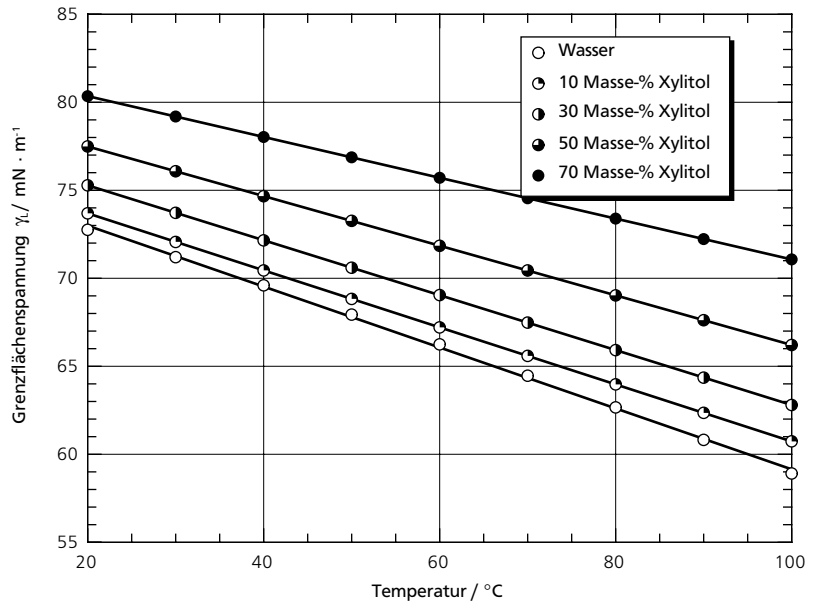


Abbildung A-16: Grenzflächenspannung von verschiedenen wäßrigen Xylitollösungen als Funktion der Temperatur.

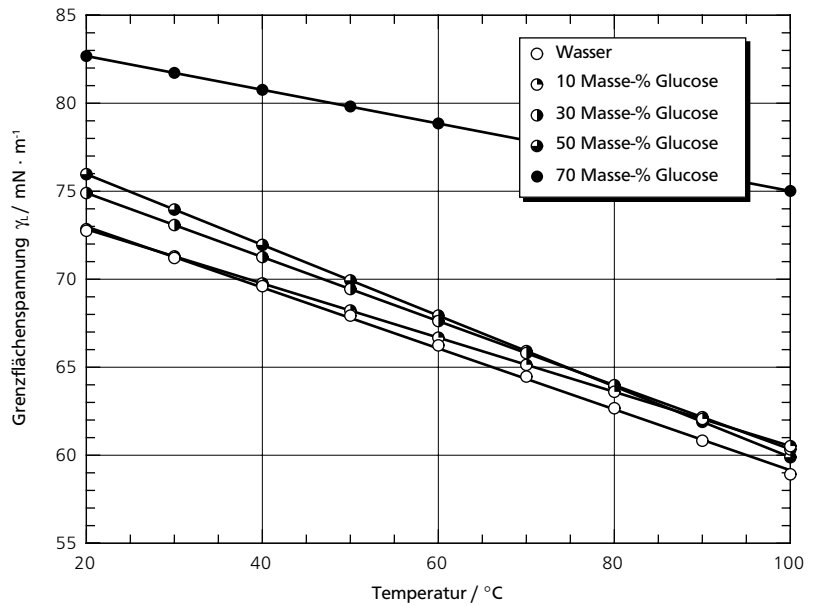


Abbildung A-17: Grenzflächenspannung von verschiedenen wäßrigen Glucoselösungen als Funktion der Temperatur.

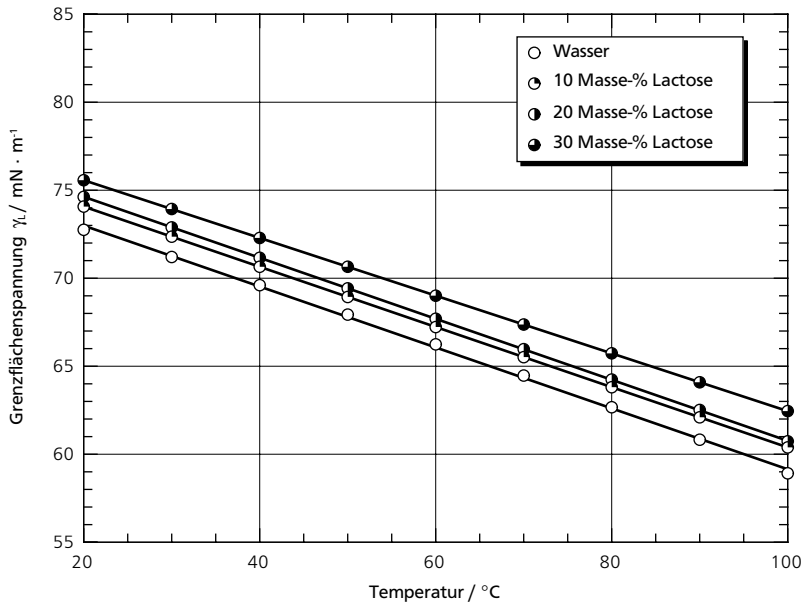


Abbildung A-18: Grenzflächenspannung von verschiedenen wäßrigen Lactoselösungen als Funktion der Temperatur.

### Wasserdampf-Sorptionsisothermen

Abbildung A-19 zeigt die Sorptionsisothermen von Saccharose, Fructose und Xylitol bei Raumtemperatur (zugehörige Partikelgrößenverteilungen siehe Abb. 4-25).

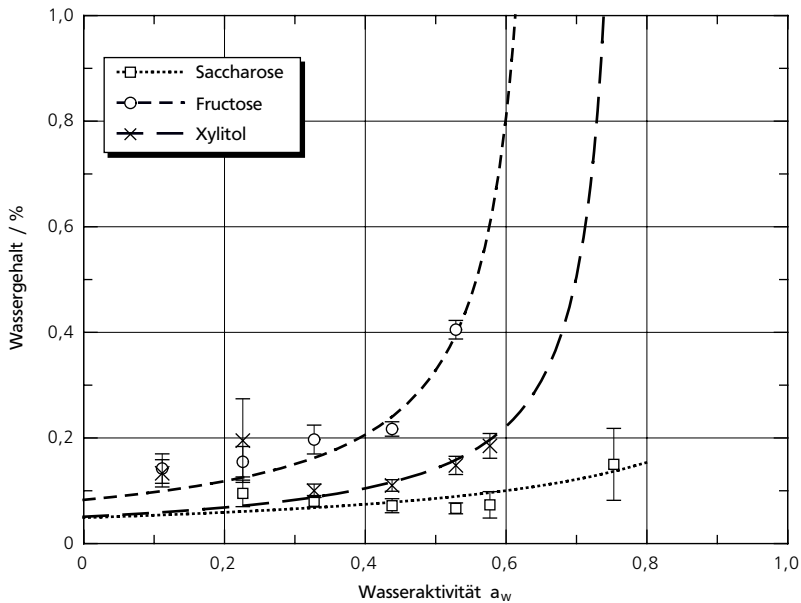


Abbildung A-19: Wasserdampf-Sorptionsisothermen von Saccharose, Fructose und Xylitol bei Raumtemperatur. Meßmethode: 14tägige Lagerung im Sorbostaten über gesättigten Salzlösungen und anschließende titrimetrische Wassergehaltsbestimmung

## Benetzungszeiten

Die angegebenen Benetzungszeiten wurden mit der in Abschnitt 3.2.4 beschriebenen Apparatur bei einer konstanten Schüttungshöhe von 8 mm ermittelt. In der folgenden Tabelle sind Meßwerte für Instant-Eiskaffees verschiedener Hersteller angeführt. Es handelt sich dabei um Produkte, die praktisch vollständig aus löslichen Komponenten (vor allem Saccharose) bestehen.

Tabelle A-2: Benetzungszeiten von verschiedenen Instant-Eiskaffeepulvern (Flüssigkeit: Vollmilch von 9 °C).

Produkt	Benetzungszeit s	Produkt	Benetzungszeit s
<i>Eduscho</i>	2,4 ±0,2	<i>Jacobs</i>	18 ±1,2
<i>frappé</i>	8,8 ±0,4	<i>picco</i>	99 ±2,5
<i>Grandos</i>	1,8 ±0,1	<i>picco schoko-mint</i>	74 ±8,4

Abbildung A-20 zeigt etwas detaillierter Zusammenhänge zwischen Agglomeratgröße, Flüssigkeitstemperatur und Benetzungszeit für ein typisches handelsübliches Instantkakaotränk.

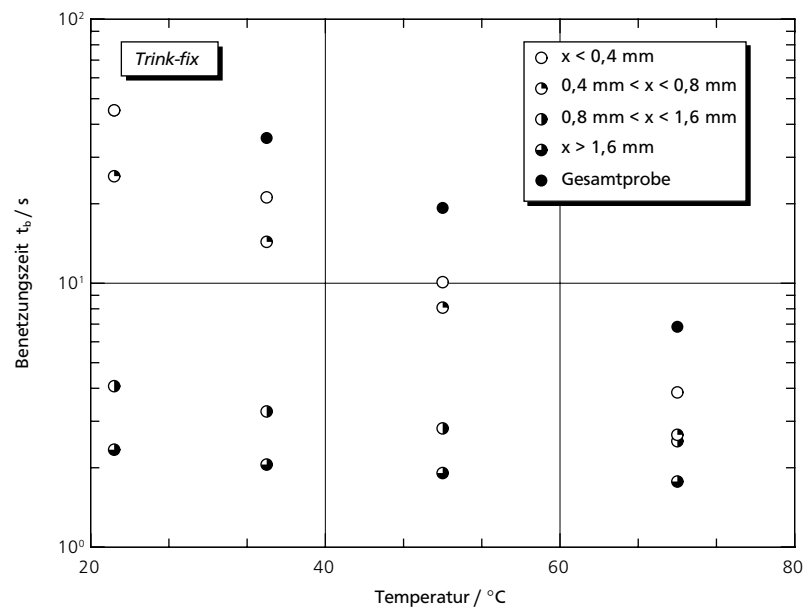


Abbildung A-20: Benetzungszeit des Produkts Trink-fix bzw. von Fraktionen dieses Produkts als Funktion der Temperatur. Flüssigkeit: Vollmilch.



Die Gesamtprobe zeigt ein schlechteres Benetzungsverhalten als jede Einzelfraktion. Ursache hierfür ist vermutlich die bei breiteren Verteilungen höhere Schüttdichte. Die Partikelgrößenverteilung dieses Produkts ist in Abbildung A-21 dargestellt.

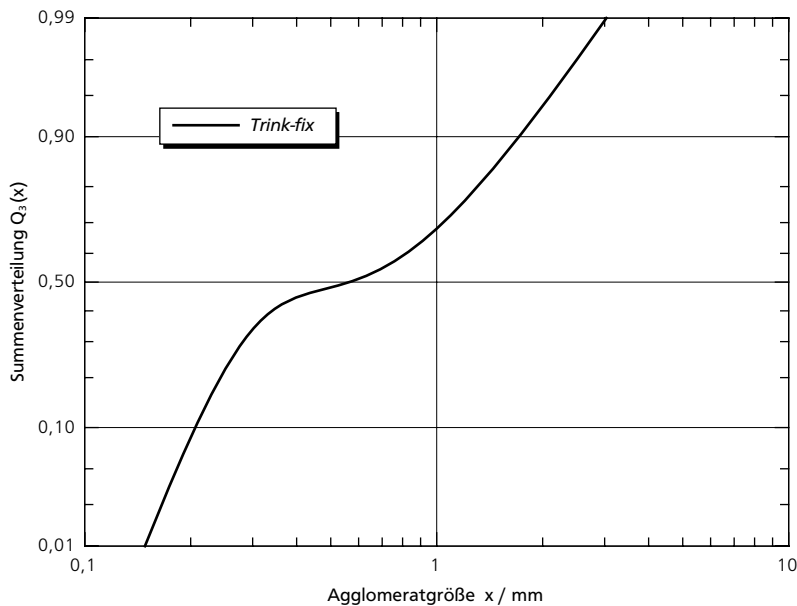


Abbildung A-21: Partikelgrößenverteilung des Produkts Trink-fix.

## Dispergiergrad

Der Dispergiergrad ist neben dem Benetzungsverhalten die entscheidende Kenngröße zur Charakterisierung eines Instantprodukts (SCHUBERT, 1990). Trotzdem ist er im Hauptteil dieser Arbeit nicht erwähnt, da strahlagglomerierter Zucker stets vollständig dispergierbar ist.

Im Rahmen der Versuche zur Dampfstrahlagglomeration wurden jedoch auch kakaohaltige Mischungen agglomeriert (vergl. Kapitel 5). Der Dispergiergrad dieser Produkte lag mit  $85 \pm 2$  % im Bereich der handelsüblichen Produkte (siehe nachfolgende Tabelle). Zur Messung wurde die von SCHUBERT (1990) entwickelte photometrische Methode eingesetzt.

Produkt	Dispergiergrad %	Produkt	Dispergiergrad %
<i>Die Weissen</i>	$93,1 \pm 1,06$	<i>Nesquik z. r.</i>	$77,2 \pm 1,59$
<i>Hanse Wappen</i>	$91,0 \pm 0,29$	<i>Suchard express</i>	$81,3 \pm 1,10$
<i>Kaba</i>	$70,7 \pm 1,71$	<i>Tchibo</i>	$66,3 \pm 1,95$
<i>Milka</i>	$91,4 \pm 0,54$	<i>Trink-fix</i>	$89,5 \pm 0,99$
<i>Nesquik</i>	$87,1 \pm 2,27$	<i>Tropengold</i>	$94,9 \pm 0,56$

Tabelle A-3: Photometrisch bestimmter Dispergiergrad verschiedener handelsüblicher Instant-Kakaogetränkpulver (Flüssigkeit: Wasser bei Raumtemperatur).