

# STOFF- UND WÄRMEÜBERGANG IN SCHÜTTSCHICHTEN—I

## ÜBERBLICK UND MATHEMATISCHE GRUNDLAGEN

D. GELBIN, K.-H. RADEKE, W. STEIN und H.-J. WOLFF

Zentralinstitut für physikalische Chemie der Akademie der Wissenschaften der DDR, Berlin, DDR

(Received 17 December 1973)

**Zusammenfassung**—Nach einer Kritik der in der Literatur angegebenen Methoden zur Bestimmung von Stoff- und Wärmeübergangszahlen in Schütttschichten wurden die mathematischen Grundlagen einer Methodik beschrieben, die auf Auswertung der Impuls- bzw. Sprungantwortfunktion des Strömungsrohres auf Konzentrations- bzw. Temperaturstörungen am Kolonnenanfang mittels der Momentenmethode beruht. Die Bilanzgleichungen unter Berücksichtigung der Axialdispersion und des Übergangs zwischen fluidem Medium und den unporösen Füllkörpern wurden im Laplace-Raum gelöst. Über vorläufige Ergebnisse wird berichtet.

### BEZEICHNUNGEN

- $a$ , spezifische Oberfläche der Partikel [ $\text{cm}^2/\text{cm}^3$ ];
- $c$ , Konzentration [ $\text{mol}/\text{cm}^3$ ];
- $c_p$ , spezifische Wärme [ $\text{cal}/\text{g grad}$ ];
- $d$ , Durchmesser [ $\text{cm}$ ];
- $D$ , Dispersionskoeffizient [ $\text{cm}^2/\text{s}$ ];
- $D_{AB}$ , Molekulardiffusionskoeffizient [ $\text{cm}^2/\text{s}$ ];
- $D_c$ , Diffusivität im Festkörper [ $\text{cm}^2/\text{s}$ ];
- $k$ , Übergangszahl [ $\text{cm}/\text{s}$ ];
- $K$ , Gleichgewichtskonstante;
- $m$ , Feststoffvolumen/Leervolumen,  $= \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon}$ ;
- $R$ , Partikelradius [ $\text{cm}$ ];
- $Re$ ,  $= wd_p/\nu$  Reynolds-Zahl;
- $s$ , Wandstärke [ $\text{cm}$ ];
- $S$ , Laplace-variable [ $\text{s}^{-1}$ ];
- $t$ , Zeitkoordinate [ $\text{s}$ ];
- $T$ , Temperatur [ $^\circ\text{K}$ ];
- $w$ , lineare Zwischenraumgeschwindigkeit [ $\text{cm}/\text{s}$ ];
- $x$ , Längenkoordinate [ $\text{cm}$ ];
- $\alpha$ , Wärmeübergangszahl [ $\text{cal}/\text{cm}^2 \text{s grad}$ ];
- $\varepsilon$ , Leerraumanteil;
- $\vartheta$ , normierte Temperatur [ $\text{grad}/\text{grad}$ ];
- $\phi$ ,  $= \frac{4s}{\varepsilon d_p}$ , Volumen der Wand/Leervolumen;
- $\lambda$ , Wärmeleitzahl [ $\text{cal}/\text{cm s grad}$ ];
- $\mu'_n$ ,  $n$ -tes statistisches Moment [ $\text{s}^n$ ];
- $\mu_n$ ,  $n$ -tes zentrales Moment [ $\text{s}^n$ ];
- $\nu$ , kinematische Zähigkeit [ $\text{cm}^2/\text{s}$ ];
- $\rho$ , Dichte [ $\text{g}/\text{cm}^3$ ];
- $\tau$ , Tortuositätsfaktor.

### Indices

- $0$ , Anfang;
- $A$ , Adsorption;
- $E$ , Ende;
- $g$ , auf das Gas bezogen;
- $i$ , auf die Isolierung bezogen;
- $p$ , Partikel;
- $s$ , auf den Feststoff bezogen;

- stat, statisch;
- $t$ , Rohr;
- $th$ , thermisch;
- $w$ , auf die Wand bezogen;
- $x$ , axial.

### 1. EINLEITUNG

ÜBER Stoff- und Wärmeübergangskoeffizienten von der fluiden Phase auf die festen Partikeln einer Schüttung wird seit vielen Jahren in der Literatur berichtet. Leider weichen die vorliegenden Ergebnisse und die darauf aufbauenden Modellvorstellungen so stark voneinander ab, dass noch keine einheitliche Erfassung der Übergangsvorgänge vorliegt.

Im Bereich grosser  $Re$ -Zahlen lassen sich, wie u.a. in den Zusammenstellungen [1-5, 36, 37] gezeigt wurde, die Ergebnisse zum grössten Teil mit einem nicht zu grossen Fehlerbereich gemeinsam darstellen. Demgegenüber weichen die Resultate im Bereich niedriger  $Re$ -Zahlen je nach den Mess- und Auswerteverfahren sehr erheblich—bis zu einigen Zehnerpotenzen—voneinander ab [Abb. 1].

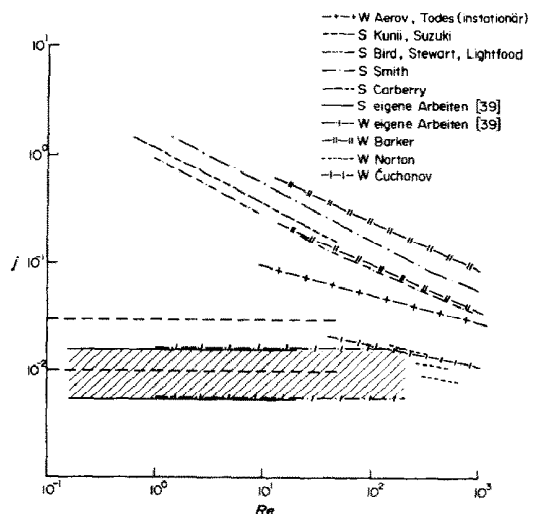


ABB. 1. Vergleich der Messergebnisse verschiedener Autoren.

Bei den Literaturergebnissen muss man unterscheiden zwischen Einzelkornmessungen und solchen an Füllkörperschüttungen. Einzelkornmessungen haben den Vorteil der besseren theoretischen und messtechnischen Erfassung, sind jedoch prinzipiell nicht als Modell für die statistisch verteilte Vielkörperschüttung anzusehen, in der die Strömungsverhältnisse völlig von denen an der Einzelkugel verschieden sind. Durch Überlagerung der Strömungsgebiete der Füllkörper entstehen stagnierende Zonen, die sich deutlich von den durchströmten Gebieten abheben [6]. Dadurch wird die für den Übergang verfügbare Oberfläche des Kornes geringer als für die Einzelkugel berechnet [7]. Andererseits wird die Strömung durch die häufigen Umlenkungen stärker gestört und damit der Übergang zur festen Phase vergrößert. Solche Effekte führen dazu, dass das Einzelkorn nicht als Modellfall der Füllkörperschüttung dienen kann.

Die meisten Messungen von Übergangskoeffizienten in Füllkörperschüttungen wurden mit stationären Methoden und integralen Auswerteverfahren durchgeführt. Häufig werden dabei solche Untersuchungen angewandt, bei denen der Übergang von Wärme von einem entgegengesetzt gerichteten sehr starken Stoffstrom begleitet wird, wie z.B. Trocknungs- und Sublimationsversuche.

Ein Beispiel für die Ermittlung von Stoff- und Wärmeübergangszahlen aus Trocknungsversuchen ist die Arbeit von De Acetis u. Thodes [8]. Aus der gemessenen Oberflächentemperatur der Partikeln und einer diskontinuierlichen Auswaage der Füllung wurden integrale Übergangskoeffizienten ermittelt. Dabei ist sowohl das Verhältnis der Durchmesser von Rohr und Partikeln

$$\left(\frac{d_r}{d_p} = 6\right)$$

als auch die Höhe der Schüttung gering. Bei der Auswertung werden evtl. vorhandene Einlaufstörungen sowie mögliche Veränderungen der Dampfkonzentration über die Höhe und mit der Zeit nicht berücksichtigt. Es wurde nicht nachgewiesen, dass die Voraussetzung einer konstanten Trockenperiode erfüllt ist. Dennoch stimmen diese Werte gut bis befriedigend mit einer Reihe von Ergebnissen anderer Autoren, auch in flüssigem Medium [9–11] überein, bei denen Sublimation, Verdampfung oder die Auflösung fester Körper in Flüssigkeiten gemessen wurden. Andererseits gibt es reaktionskinetische Messungen, deren Ergebnisse mit Stoff- bzw. Wärmeübergangskoeffizienten, z.B. aus Trocknungsversuchen, nicht zu modellieren sind [12, 13].

Möglicherweise liegt die Ursache für diese Diskrepanz in den unterschiedlichen Vorgängen bei von Stoff- und Wärmeübergängen begleiteten chemischen Reaktionen und z.B. bei der Trocknung. Während bei chemischen Reaktionen in den meisten Fällen zweiseitig gerichtete Stoffströme vorliegen, ist bei der Trocknung mit einem Wärmestrom ein starker, einseitiger Stoffstrom gekoppelt. Dieser Unterschied macht es fraglich, ob Stoff- und Wärmeübergangs-

zahlen aus Trocknungsversuchen zur Modellierung von reaktionstechnischen Problemen geeignet sind.

Aus diesem Grunde wird in der vorliegenden Arbeit versucht werden, Stoff- und Wärmeübergangszahlen nach Methoden zu ermitteln, die denen in reaktionstechnischen Prozessen ähnlicher sind. Dabei wird besonders der Bereich niedriger Reynoldszahlen ( $Re < 500$ ) untersucht werden, denn eine ganze Reihe von chemisch-technologischen Verfahren, u.a. Molsieb-adsorption und heterogen-katalytische Verfahren, arbeiten wegen der Intrapartikel-Diffusionshemmungen mit kleinen Korngrößen und dementsprechend niedrigen Reynoldszahlen.

## 2. AUSWERTUNGSMETHODEN

Neben der Messmethodik spielt offenbar auch die Auswertemethode der primären Versuchsergebnisse eine erhebliche Rolle. Auf die integrale, d.h. durch diskontinuierliches Auswägen, erfolgende Auswertung von Sublimations- und Verdampfungsversuchen wurde schon hingewiesen.

Regeneratorversuche werden meist im kurzzeitigen Swing gefahren, so dass nicht das gesamte örtlich-zeitliche Temperaturverhalten der Messstrecke erfasst wird, sondern zur Auswertung nur ein kurzes, geradliniges Kurventeil zur Verfügung steht [14].

Das Verhalten des Strömungsrohres ist exakt durch die Auswertung der gesamten Antwortfunktion einer bekannten Signalgröße zu ermitteln. Dazu können stufen- und impulsförmige sowie periodische Eingangssignale verwendet werden. Die Parameter, die das System unter den gegebenen Bedingungen bestimmen, werden dann durch Anpassung der Antwortfunktion an das aus Bilanzgleichungen herführende Modell gewonnen. Die Anpassung kann in verschiedenen Funktionsräumen erfolgen, und zwar entweder im Originalraum (Zeitbereich) oder in transformierten Räumen (z.B. Laplace-Raum) [15–17]; jede dieser Anpassungsmethoden hat unter bestimmten Bedingungen und für die verschiedenen Modelle ihre Vor- und Nachteile. Dabei hat die Momentenmethode den Vorteil, dass die Parameter mit relativ geringem rechentechnischen Aufwand und im Vergleich mit anderen Methoden guter Genauigkeit ermittelt werden können. Ein Nachteil der Momentenmethode ist die Empfindlichkeit gegen Abweichungen im Schwanzteil der Messkurve, also bei grossen Zeiten. Dies gilt insbesondere für die Impulsfunktion. Die Impulsfunktion mit dem Dirac-Impuls als Eingangsgröße ist praktisch nur bei Versuchen des Stoffübergangs anwendbar, denn bei wärmephysikalischen Versuchen bewirkt die im Vergleich zu der der strömenden Gase grosse spezifische Wärmekapazität des Bettes eine weitgehende Verschmierung des Wärmeimpulses schon nach einer sehr kurzen Messstrecke [18]. Hinzu kommen als stark wirksame Fehlerquellen die Verluste über die Wand sowie durch evtl. vorhandene Inhomogenitäten in der Anfangstemperaturverteilung. Darum können bei Wärmeversuchen nur periodische Eingangssignale oder die Stufenfunktion verwendet werden. Messungen mit periodischen (sinusförmigen)

Eingangssignalen wurden u.a. von Littman u. Mitarb. (19) beschrieben.

### Modelle

Die in den Bilanzgleichungen ausgedrückten Modellvorstellungen haben für die zu ermittelnden Parameter eine entscheidende Bedeutung. Die Grundlage des Modells muss das gesamte System, also das gesamte Strömungsrohr mit der dazugehörigen Isolation sein, wobei zunächst prinzipiell alle ablaufenden Vorgänge berücksichtigt werden müssen. Dies führt jedoch zu komplizierten, oftmals nichtlinearen, partiellen gekoppelten Differentialgleichungen höherer Ordnung, deren Lösung auch im Laplace-Raum nicht mehr analytisch möglich ist. Aus diesem Grunde werden häufig vereinfachte Modelle aufgestellt, die nur die wesentlichsten Vorgänge bzw. die, die man als solche ansieht, berücksichtigen.

Wir werden im folgenden sehen, dass die Modellgleichungen für den Stofftransport in der Kolonne relativ einfach sein können; der Wärmetransport hingegen ist komplizierter zu beschreiben, da die Wand und die Isolation gegenüber der Wärme nicht inert sind und auch eine endliche Leitfähigkeit besitzen.

### Bilanzgleichungen und Rand- bzw. Anfangsbedingungen

1. *Stofftransport.* Gemessen wird die Antwortfunktion einer mit nichtporösen Festkörpern gefüllten Kolonne auf einen Dirac-Impuls, wobei die Tracerkonzentration gering gehalten wird, um voraussetzen zu können, dass an der Oberfläche der Füllkörper eine nach der Henry-Isotherme erfolgende Adsorption stattfindet. Im Modell werden Konvektion, Axialdispersion, Übergang zur Festkörperoberfläche sowie Akkumulation im Gas und am Festkörper berücksichtigt. Daraus ergibt sich folgende Differentialgleichung

$$D_x \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - w \frac{\partial c}{\partial x} - k_s a_s m(c - c_s) = \frac{\partial c}{\partial t} \quad (1)$$

Die Kopplungsbedingung für den Übergang zur Festphase lautet:

$$k_s a_s (c - c_s) = K_A \frac{\partial c_s}{\partial t} \quad (2)$$

Die Anfangs- und Randbedingungen für den Dirac-Impuls lauten:

$$\begin{aligned} x &\geq 0; & t &= 0; & c &= 0 \\ x &= 0; & 0 &\leq t \leq t_0; & c &= c_0 \\ x &= 0; & t &> t_0; & c &= 0 \\ x &\rightarrow \infty; & t &\geq 0; & c &\neq \infty. \end{aligned} \quad (3)$$

Dieses System von Differentialgleichungen und Randbedingungen wurde von uns gelöst [s. auch 20]; für die ersten drei Momente erhielten wir: [mit  $t_0 \rightarrow 0$ ]

$$\mu'_1 = \frac{x}{w} [1 + mK_A] \quad (4)$$

$$\mu'_2 = \frac{2x}{w} \left[ D_x \frac{(1 + mK_A)^2}{w^2} + \frac{mK_A^2}{k_s a_s} \right] \quad (5)$$

$$\mu'_3 = \frac{6x}{w} \left[ \frac{2D_x^2(1 + mK_A)^3}{w^4} + \frac{2(1 + mK_A)mK_A^2 D_x}{w^2 k_s a_s} + \frac{mK_A^3}{k_s^2 a_s^2} \right] \quad (6)$$

Schneider und Smith (21) haben den gleichen Fall für eine mit porösen Füllkörpern gefüllte Kolonne behandelt. Während die Gleichung für das erste Moment identisch mit Gl. (4) ist, erhielten sie für das zweite zentrale Moment:

$$\mu_2 = \frac{2x}{w} \left[ D_x \frac{(1 + mK_A)^2}{w^2} + \frac{mK_A^2 R^2}{15D_c} + \frac{mK_A^2}{k_s a_s} \right] \quad (7)$$

$t_0 \rightarrow 0.$

Das 3. Moment ist in diesem Fall nicht elementar auswertbar; es enthält Glieder mit noch unbestimmten Integralen.

Aus dem ersten Moment erhält man die Adsorptionsgleichgewichtskonstante, während die 2. und 3. Momente die Stoffübergangs- und Axialdispersionskoeffizienten liefern. Sollte die Messgenauigkeit des 3. Momentes eine exakte Auswertung nicht zulassen, dann können die Axialdispersionskoeffizienten, die für das Auflösen der Gleichung des 2. Momentes nach der Stoffübergangszahl benötigt werden, auch nach der Gleichung von Edwards u. Richardson [22] berechnet werden:

$$D_x = \tau D_{AB} + \frac{0.45wd}{1 + \frac{10\tau \cdot D_{AB}}{wd}} \quad (8)$$

Der Tortuositätsfaktor  $\tau$  wird durch die Auswertung von vorherigen Messungen mit nicht adsorbierbaren Substanzen [20] bestimmt.

2. *Wärmetransport.* Im Gegensatz zum Stofftransport wird bei den wärmephysikalischen Versuchen eine sprunghafte Änderung der Temperatur am Anfang der Kolonne aufgegeben. Bei der Behandlung des Wärmetransportes in der Kolonne kann die Wand keinesfalls als inert angenommen werden.

Es kommen also der Übergang zur und die Akkumulation in der Wand in die Bilanzgleichungen hinein:

$$\begin{aligned} D_{x,th} \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} - w \frac{\partial T}{\partial x} - k_{s,th} a_s m(T - T_s) \\ - k_{w,th} a_w \phi(T - T_w) = \frac{\partial T}{\partial t} \end{aligned}$$

mit

$$k_{in} = \frac{\alpha}{(\rho c_p)_g} \quad (9)$$

Die Randbedingungen am Korn bzw. an der Wand lauten:

$$k_{s,th} a_s (T - T_s) = K_s \frac{\partial T_s}{\partial t} \quad (10)$$

$$k_{w,th} a_w (T - T_w) = K_w \frac{\partial T_w}{\partial t} \quad (11)$$

Dabei wird vorausgesetzt, dass die Leitfähigkeit im Korn und in der radialen Richtung der Wand so gross ist, dass sich die Temperatur darin sehr schnell ausgleicht.

Diese Prämissen wurden experimentell geprüft und als zutreffend gefunden [23]. Im vorliegenden Modell wird weiterhin angenommen, dass das System hinter der Isolierung adiabatisch abgeschlossen ist. Ferner wird die axiale Leitfähigkeit in der Wand und auch die in der Isolierung vernachlässigt, was eine geringe Wandstärke der Kolonne voraussetzt.

Die Anfangs- und Randbedingungen für die Sprungfunktion am Anfang des Strömungsrohres lauten:

$$\begin{aligned} x = 0; \quad t > 0; \quad T = T_E \\ x \geq 0; \quad t = 0; \quad T = T_0 \\ x \rightarrow \infty; \quad t \geq 0; \quad T \neq \infty. \end{aligned} \quad (12)$$

Normieren wir die Temperaturen

$$\begin{aligned} \vartheta &= \frac{T - T_0}{T_E - T_0} \\ \vartheta_s &= \frac{T_s - T_{0s}}{T_E - T_0} \\ \vartheta_w &= \frac{T_w - T_{0w}}{T_E - T_0} \end{aligned} \quad (13)$$

und setzen noch bei

$$\begin{aligned} t = 0 \\ T_0 = T_{0w} = T_{0s} \end{aligned} \quad (13)$$

dann bleiben die Gleichungen (9–11) in der Form erhalten, während sich die Anfangs- und Randbedingungen zu denen des Einheitssprunges vereinfachen:

$$\begin{aligned} x = 0; \quad t > 0; \quad \vartheta = 1 \\ x \geq 0; \quad t = 0; \quad \vartheta = 0 \\ x \rightarrow \infty; \quad t \geq 0; \quad \vartheta \neq \infty. \end{aligned} \quad (12a)$$

Diese Gleichungen werden nun auf dem üblichen Wege in den Laplace-Raum transformiert [24] und die entsprechende gewöhnliche Differentialgleichung für  $\bar{\vartheta}(s)$  gelöst.

Im Gegensatz zu der Berechnung der Momentengleichung für die Impulsstörung ist bei der Momentenberechnung der Schrittveränderung zu beachten, dass die Schrittveränderung in  $T$  einer Impulsveränderung in  $\partial T/\partial t$  entspricht. Man bestimmt also nicht die Momente von  $T$ , sondern die von  $\partial T/\partial t$ : [25]

$$\mu'_n \left( \frac{d\vartheta}{dt} \right) = -(-1)^n \lim_{s \rightarrow 0} \left( d^n \left( \frac{d\bar{\vartheta}}{ds^n} \right) \right) \quad (14)$$

$$\mu'_1 = \int \frac{d\vartheta}{dt} \cdot t \cdot dt = \int t d\vartheta \approx \sum t \Delta\vartheta \quad (15)$$

$$\mu'_2 = \int \frac{d\vartheta}{dt} \cdot t^2 dt = \int t^2 d\vartheta \approx \sum t^2 \Delta\vartheta \quad (16)$$

$$\mu_2 = \mu'_2 - (\mu'_1)^2 \quad (17)$$

$$\mu'_3 = \int \frac{d\vartheta}{dt} \cdot t^3 dt = \int t^3 d\vartheta \approx \sum t^3 \Delta\vartheta \quad (18)$$

$$\mu_3 = \mu'_3 - 3\mu'_2 \mu'_1 + (2\mu'_1)^3. \quad (19)$$

In neueren Veröffentlichungen wird häufig über die Vorteile von gewichteten Momenten berichtet, bei denen die Überbewertung des Kurvenschwanzes durch

eine  $e^{-st}$ -Funktion kompensiert wird [16, 17, 26, 27]:

$$\mu'_ig = \int_0^\infty t^i e^{-st} \frac{d\vartheta}{dt} \cdot dt. \quad (20)$$

Wir werden bei der Auswertung der Messergebnisse den Einfluss der Wichtung im einzelnen diskutieren.

Für die Momente erhält man Lösungen, die denen für den Stofftransport völlig analog sind, jedoch noch den Übergang zur Wand enthalten:

$$\mu'_1 = \frac{x}{w} [1 + mK_s + \phi K_w] \quad (21)$$

$$\mu_2 = \frac{2x}{w} \left[ \frac{D_{th,x} (1 + mK_s + \phi K_w)^2}{w^2} + \frac{mK_s^2}{k_{s,th} a_s} + \frac{\phi K_w^2}{k_{w,th} a_w} \right] \quad (22)$$

$$\begin{aligned} \mu_3 = \frac{6x}{w} \left[ \frac{2D_{th,x} (1 + mK_s + \phi K_w)^3}{w^3} \right. \\ \left. + 2D_{th,x} \frac{(1 + mK_s + \phi K_w)}{w^2} \left( \frac{mK_s^2}{k_{s,th} a_s} + \frac{\phi K_w^2}{k_{w,th} a_w} \right) \right. \\ \left. + \frac{mK_s^3}{k_{s,th}^2 a_s} + \frac{\phi K_w^3}{k_{w,th}^2 a_w} \right]. \end{aligned} \quad (23)$$

Aus dem 1. Moment erhält man bei Vorgabe der Wand- und Isolierungskapazität

$$K_w = \frac{\phi_1 \rho_w c_{pw} + \phi_2 \rho_i c_i}{(\rho c_p)_g} \quad (24)$$

die thermische Gleichgewichtskonstante der Füllkörper  $K_s = \rho_s c_s / (\rho c_p)_g$  und daraus deren spezifische Wärme  $c_{ps}$  oder auch umgekehrt.

Im 2. und 3. Moment sind wieder die kinetischen Koeffizienten enthalten. Für die Berechnung von  $D_{x,th}$  und  $k_{s,th}$  muss noch  $k_{w,th}$  vorgegeben werden. Wir verwendeten die Gleichung von Yagi [28]:

$$\alpha_w = 0.18 \frac{\lambda_g}{d} \cdot Re^{0.8}. \quad (25)$$

Ein Vergleich mit der Wärmeübergangszahl aus dem eindimensionalen Modell von De Wasch und Frommet [35] ergab nur geringe Abweichungen in  $\alpha_w$  bzw.  $k_w$ .

Bei zu geringer Genauigkeit des 3. Momentes kann man auch—unter der Annahme, dass die Korrelation von Edwards u. Richardson auch für die Dispersion der Wärme gilt—die Axialdispersionskoeffizienten nach der folgenden Gleichung berechnen:

$$D_{th} = D_{stat} + \frac{0.45wd}{1 + \frac{10D_{stat}}{wd}}. \quad (26)$$

Als Bestimmungsgleichung für die statische Bettleitfähigkeit

$$\lambda_{stat} = D_{stat} (\rho c_p)_g \quad (27)$$

verwendeten wir die bei Babcock [29] angegebene Gleichung von Hamilton [30]

$$\lambda_{stat} = \frac{\lambda_g [\lambda_s + 2\lambda_g - 2(1-\varepsilon)(\lambda_g - \lambda_s)]}{\lambda_s + 2\lambda_g + (1-\varepsilon)(\lambda_g - \lambda_s)}. \quad (28)$$

Die Wahl der Gleichungen (26, 27) kann durchaus kritisch sein. Ein Vergleich mit anderen in der Literatur angegebenen Korrelationen (Krupička [31], Vortmeyer [32], Seidel [33], Schlünder [34] zeigt, dass der Gesamtwert der thermischen Axialdispersion—verglichen mit den obengenannten Beziehungen—für unsere Messbedingungen durchaus um den Faktor 3–4 schwanken kann.

Der Einfluss des Wertes des Axialdispersionskoeffizienten auf die Wärmeübergangszahlen hängt vom Anteil des Dispersionsgliedes am 2. Moment ab. Ausserdem ist die Genauigkeit des ermittelten Wärmeübergangskoeffizienten sehr stark durch den Anteil der Wand und der Isolierung am Gesamtwärmehaushalt und durch die Exaktheit der Vorgabewerte bedingt. Um diese Schwierigkeiten zu umgehen, haben wir versucht, das 3. Moment zur Auswertung heranzuziehen.

Die thermische Trägheit der Isolierung, d.h. die endliche radiale Leitfähigkeit des Isoliermaterials, ist bei dieser Betrachtung noch nicht berücksichtigt; hier liegt eine Fehlerquelle, die noch einer eingehenderen Analyse bedarf.

Eine Einschätzung der Ergebnisse kann durch Vergleich der aus dem ersten Moment gewonnenen Wärmekapazitäten von Eichsubstanzen und auch durch Analyse der Geschwindigkeitsabhängigkeit des am Ende des Strömungsrohres messbaren Anteils des aufgegebenen Temperatursprunges vorgenommen werden.

#### Bisherige Ergebnisse

Frühere Ergebnisse aus unserem Arbeitskreis wurden in [39] vorgelegt. Darin sind Versuchsreihen aus 7 verschiedenen Apparaturen mit 5 Festkörpern, 7 Tracergasen [ $\text{CH}_4$ ,  $i\text{-C}_4\text{H}_{10}$ ,  $n\text{-C}_6\text{H}_{14}$ ,  $\text{C}_6\text{H}_6$ ,  $n\text{-C}_8\text{H}_{18}$ ,  $n\text{-C}_{10}\text{H}_{22}$ ,  $\text{NH}_3$ ], 1 Tracerflüssigkeit, bei Temperaturen zwischen 25 und 400°C, bei  $Re$ : 15, ..., 190 und  $Sc$  bzw.  $Pr$ : 0,7, ..., 288 zusammengefasst. Insgesamt wurden ca. 200 Stoff- und Wärmeübergangszahlen ermittelt, wobei jede fünfmal reproduziert worden war.

Die Messungen wurden in der Form  $j = f(Re)$  korreliert. Es konnte festgestellt werden: (a) die Korrelation  $j_{w,s} = f(Re)$  ist im untersuchten Bereich linear, wobei sich die  $j_s$ -Werte bei  $Re \leq 10$  gut an die  $j_w$ -Zahlen anschliessen; (b) die Ergebnisse liegen an der unteren Grenze aller in der Literatur bisher bekannten Korrelationen; (c) die Genauigkeit der mit den in [39] genannten Methoden (elektronische Schreiber, grosse Wandstärke der wärmetechnischen Apparatur, geringe Quellentätigkeit auf den unporösen Schüttungen) durchgeführten Messungen war noch zu gering. Durch den on-line-Anschluss eines Prozessrechners TPA 1001 [40] sowie Umbau von Apparaturen konnte inzwischen die Messgenauigkeit verbessert und die Messwertanzahl in der Zeiteinheit erhöht werden. Mit dieser verbesserten Methodik wurden sowohl die Untersuchungen in den genannten Systemen wiederholt als auch neue durchgeführt. Über Einzelheiten werden wir in weiteren Mitteilungen berichten.

#### LITERATUR

1. J. J. Barker, Heat transfer in packed beds, *Ind. Engng Chem.* **57**(5), 43–51 (1965).
2. H. Brauer und D. Mewes, Strömungswiderstand sowie Stoff- und Wärmeübergang in ruhenden Füllkörperschichten, *Chemie-Ingr.-Tech.* **44**, 93–96 (1972).
3. W. Kast, Konvektive Wärme- und Stoffübertragung in einheitlicher Betrachtung, *Verfahrenstech.* **6**, 1–9 (1972).
4. E. K. Schlünder, Über eine zusammenfassende Darstellung der Grundgesetze des konvektiven Wärmeübergangs, *Verfahrenstech.* **4**, 11–16 (1970).
5. D. Kunii und M. Suzuki, Particle-to-fluid heat and mass transfer in packed beds of fine particles, *Int. J. Heat Mass Transfer* **10**, 845–852 (1967).
6. V. A. Kirillov und Ju. Š. Matros, Perenos weschtschestwa w swobodnom objeme nepodwiznowo sernistowo sloja, *Inzh.-Fiz. Zh.* **20**, 515–521 (1971).
7. M. G. Slynko und N. S. Beskov, Modelirovanie chimitscheskich Prozessow i Reaktorow Votr. Int. Sommerschule, Varna 10–20 Mai 1973.
8. J. De Acetis und G. Thodos, Flow of gases through spherical packings, *Ind. Engng Chem.* **52**, 1003–1006 (1960).
9. L. K. McCune und R. H. Wilhelm, Mass and momentum transfer in solid-liquid system, *Ind. Engng Chem.* **41**, 1124–1134 (1949).
10. B. J. Gaffney und T. B. Drew, Mass transfer from packing to organic solvents in single phase flow through a column, *Ind. Engng Chem.* **42**, 1120–1127 (1950).
11. R. Wilhelm, Der Stoffübergang fest-flüssig bei Einzelkörpern und Schüttungen in freier und erzwungener Strömung, *ForschHft. Ver. Dt. Ing.* 531 (1969).
12. K.-P. Roethe, A. Roethe, B. Rosahl und D. Gelbin, Vergleichende Untersuchungen einer Modellreaktion in verschiedenen Versuchsreaktoren, *Chemie-Ingr.-Tech.* **42**, 805–812 (1970).
13. J. Wojciechowski, Determination of external mass transfer factor by means of kinetic data, Vortag J 2.5 CHISA-Tagung, Prag (1972).
14. H. Glaser, Wärmeübertragung in Regeneratoren, *Z. Ver. Dt. Ing.* **3**, 112–125 (1938).
15. J. L. Johnson, L. T. Fan und Y. S. Wu, Comparison of moments, S-plane and frequency response methods for analysing pulse testing data from flow systems, *I/EC Process Des. Dev.* **10**, 425–431 (1971).
16. W. Böxkes und H. Hofmann, Vor- und Nachteile verschiedener Befragungstechniken zur Analyse des Mischverhaltens in chemische Reaktoren, *Chemie-Ingr.-Tech.* **44**, 882–889 (1972).
17. M. Richter, Eine verbesserte Methode zur Auswertung isotopentechnischer Verweilzeituntersuchungen an Chemieanlagen, *Chem. Tech.* **25**, 27–30 (1973).
18. M. Sagara, P. Schneider und J. M. Smith, The determination of heat-transfer parameters for flow in packed beds using testing and chromatography theory, *Chem. Engng* **1**, 47–56 (1970).
19. H. Littmann, R. G. Barile und A. H. Pulsifer, Gas-particle heat transfer coefficients in packed beds at low Reynolds numbers, *I/EC Fundamentals* **7**, 554–559 (1968).
20. A. Roethe, K.-P. Roethe und D. Gelbin, Bestimmung axialer Dispersionskoeffizienten in Gas-fest-Systemen, *Chem. Tech.* **23**, 88–92 (1971).
21. P. Schneider und J. M. Smith, Chromatographic study of surface diffusion, *A.I.Ch.E. JI* **14**, 886–895 (1968).
22. M. E. Edwards und J. F. Richardson, Gas dispersion in packed beds, *Chem. Engng Sci.* **23**, 109–123 (1968).
23. M. J. Goss und G. A. Turner, Simultaneous computation of heat transfer and dispersion coefficients and thermal conductivity value in a packed bed of spheres, *A.I.Ch.E. JI* **17**, 590–594 (1971).
24. G. Doetsch, Anleitung zum praktischen Gebrauch der Laplace-Transformation, München (1961).

25. M. Kočirik und A. Zikanova, The statistical moments method for the calculation of the coefficients of radial diffusion from kinetic measurements, *Phys. Chemie NF* **71**, 311–319 (1970).
26. M. L. Michelsen und K. Østergaard, The use of residence time distribution data for estimation of parameters in the axial dispersion model, *Chem. Engng Sci.* **25**, 583–592 (1970).
27. A. S. Anderssen und E. T. White, Parameter estimation by the weighted moments method, *Chem. Engng Sci.* **26**, 1203–1221 (1971).
28. S. Yagi und D. Kunii, Studies on heat transfer near wall surface in packed beds, *A.I.Ch.E. JI* **6**, 97–104 (1960).
29. R. E. Babcock, R. H. Perry und O. K. Crosser, Longitudinal eddy mixing of thermal energy in fixed beds, *Chem. Engng Prog. Symp. Ser.* **63**, 102–108 (1967).
30. R. L. Hamilton, Ph. D. diss. Norman, Oklahoma (1960).
31. R. Krupička, Berechnung der Wärmeleitfähigkeit von Schüttungen, *Int. Chem. Engng* **7**, 122–130 (1967).
32. D. Vortmeyer, Wärmeleitung in Schüttungen, *Verfahrenstech.* **5**, 409–414 (1971).
33. P. Seidel, Untersuchungen zum Wärmetransport in Füllkörperssäulen, *Chemie-Ing.-Tech.* **37**, 1125–1132 (1965).
34. E. H. Schlünder, Heat transfer in packed beds, *Wärme-Stoffübertragung I*, 153–158 (1968).
35. A. P. De Wasch und G. F. Fromment, Heat transfer in packed beds, *Chem. Engng Sci.* **27**, 567–576 (1972).
36. A. P. De Wasch, *Lehrbuch der chem. Verfahrenstechnik*. Grundstoffind, Leipzig (1973).
37. M. E. Aerov und O. M. Todes, *Hydraulische und thermische Grundlagen der Wirkung von Apparaturen mit stationären und siedenden Kornschüttungen* (Russ.). Izd. Chimija, Leningrad (1968).
38. L. F. Čuchanov, Heat and mass transfer between gas and granular material, *Int. J. Heat Mass Transfer* **14**, 337–351 (1971).
39. D. Gelbin, K.-H. Radeke, K.-P. Roethe, A. Roethe und B. Rosahl, Untersuchung des Stoff- und Wärmetransports in gasdurchströmten Festbetten, Vortrag CHISA Prag (1972).
40. H.-J. Wolff, K.-P. Roethe und D. Gelbin, Der Einsatz des Prozeßrechners TPA 1001 bei der verfahrenstechnischen Forschung, *Chem. Tech.* **27**, 209–214 (1975).

#### HEAT AND MASS TRANSFER IN PACKED BEDS

**Abstract**—Methods of determination of heat- and mass-transfer coefficients in a packed bed are surveyed and compared. Mathematical methods based on the evaluation of the methods of column moments of response to an impulse or stepwise change of inlet concentration or temperature are also described. Balance equations, accounting for longitudinal diffusion and heat and mass transfer of a gas (liquid) with non-porous solid particles, are solved in the Laplace domain. Preliminary results of the work are given.

#### TRANSFERT DE CHALEUR ET DE MASSE DANS LES COUCHES FLUIDES EN ECOULEMENT LIBRE

**Résumé**—On présente une vue d'ensemble comparative des méthodes de détermination des coefficients de transfert de chaleur et de masse dans une couche stationnaire. Sont également décrites les méthodes mathématiques basées sur l'évaluation, que donnent les méthodes des moments des couches stationnaires, de la réponse à une impulsion ou à un échelon de concentration ou de température d'entrée. Les équations de bilan, tenant compte de la diffusion longitudinale et du transfert de chaleur et de masse d'un gaz (ou d'un liquide) avec les particules solides non poreuses, sont résolues par transformation de Laplace. On donne les résultats préliminaires de ces travaux.

#### ТЕПЛО- И МАССООБМЕН В СЫПУЧИХ СЛОЯХ

**Аннотация** — Проводится критический обзор методов определения коэффициентов тепло- и массообмена в неподвижном слое. Описываются математические методы, основанные на оценке методов моментов отклика неподвижного слоя на импульсное или ступенчатое изменение концентрации или температуры у входа в слой. Уравнения баланса, учитывающие продольную диффузию и тепломассообмен газа (жидкости) с непористыми твердыми частицами, решаются в Лапласовом пространстве. Приведены предварительные результаты работы.