

STOFF- UND WÄRMETRANSPORT IN SCHÜTTSCHICHTEN—II WÄRMETRANSPORT UND AXIALE WÄRMELEITUNG

D. GELBIN, K.-H. RADEKE, B. ROSAHL und W. STEIN

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

(Received 25 March 1975)

Zusammenfassung—Mit einer dynamischen Meßmethode wird der Wärmetransport in zwei Strömungsrohren unterschiedlicher Wandstärke untersucht. Die Schüttungen bestehen aus porösen Katalysatoren bzw. aus Stahlkugeln. Die Auswertung der ersten Momente zeigt, daß für technische Zwecke die Methode zur Bestimmung der spezifischen Wärme des Schüttgutes benutzt werden kann. Die Ergebnisse mit dem zweiten Moment lassen vermuten, daß der effektive Wärmetransport zur Schütttschicht stark durch Dispersionseffekte herabgesetzt wird. Daraufhin wird die axiale Wärmeleitfähigkeit der Schütttschicht bei stationären und instationären Versuchen in zwei Strömungsrohren unterschiedlicher Wandstärke bestimmt und mit Literaturergebnissen verglichen. Auf den Anteil des Wärmetransports in der Reaktorwand an der gesamten axialen Wärmeleitung wird hingewiesen. Der Einfluß der axialen Wärmeleitung auf den effektiven Wärmeübergang wird in Form eines Wirkungsgrades ausgedrückt.

NOMENKLATUR

a ,	spezifische Oberfläche der Partikel [cm^2/cm^3];
d ,	Durchmesser [cm];
D ,	Dispersionskoeffizient [cm^2/s];
j_n ,	j -Faktor nach Chilton-Colburn;
k ,	Übergangszahl [cm/s];
K ,	Gleichgewichtskonstante;
m ,	Feststoffvolumen/Leervolumen;
T ,	Temperatur [$^\circ\text{K}$];
w ,	lineare Zwischenraumgeschwindigkeit [cm/s];
x ,	Längenkoordinate [cm];
η ,	Wirkungsgrad;
ϑ ,	normierte Temperatur [grd/grd];
λ ,	Wärmeleitfähigkeit [$\text{cal}/\text{cm s }^\circ\text{C}$];
μ'_n ,	n -tes statistisches Moment [s^n];
μ_n ,	n -tes zentrales Moment [s^n];
ν ,	kinematische Zähigkeit [cm^2/s];
$(\rho c_p)_g$,	spezifische Wärme des Gases [$\text{cal}/\text{cm}^3 \text{ }^\circ\text{C}$];
σ ,	Standardabweichung [%];
ϕ ,	Volumen der Wand/Leervolumen.

Indices

B ,	Schütttschicht;
eff,	effektiv;
E ,	Ende;
o ,	Anfang;
p ,	Partikel;
s ,	auf den Feststoff bezogen;
t ,	Rohr;
th ,	thermisch;
w ,	auf die Wand bezogen;
x ,	axial.

EINLEITUNG

IM TEIL I [1] dieser Arbeit haben wir den Stand der Forschung und die mathematische Auswertung von dynamischen Untersuchungen des Stoff- und Wärme-

übergangs behandelt. Für den Stoffübergang haben wir dynamische Untersuchungen mit einer Dirac-Störung, für wärmetechnische Untersuchungen mit einer Schrittveränderung der Temperatur am Eingang beschrieben und die Ausdrücke für die ersten drei Momente in beiden Fällen angegeben. In diesem Aufsatz führen wir die Ergebnisse von wärmetechnischen Messungen an.

(A) WÄRMETRANSPORT ZUR SCHÜTTTSCHICHT

Beschreibung der Apparatur und der Meßmethode

Für die Untersuchung des Wärmetransports wurde zuerst der für frühere reaktionskinetische Versuche [2] verwendete Technikumsreaktor eingesetzt, der hier als Normalwandreaktor bezeichnet wird. Einige Einflußfaktoren bzw. Parameter blieben dadurch unverändert, so daß in der Schüttung die gleichen Bedingungen bezüglich Strömungsprofil, Einlaufstörungen, Störungen durch Thermolemente, Wärmeleitung durch Wand und Isolierung wie bei den reaktionskinetischen Versuchen vorlagen.

Die Schütttschicht von 525 mm Höhe befindet sich in einem V2A-Stahlrohr mit 96 mm Nennweite und 3 mm Wandstärke (Abb. 1). Durch seitlich angeschweißte Rohre ragen Eisen-Konstantan-Thermolemente aus 0,7 mm Draht isoliert durch keramische Zwei-Loch-Rohre ohne Schutzhülse bis in die Rohr- bzw. Schichtmitte. Das erste Thermolement ist 20 mm vom Rohrboden entfernt, 4 weitere sind um jeweils 80 mm versetzt ebenfalls radial eingeführt. Als Wärmeisolierung umgab den Reaktor eine 70 mm dicke Schlackenwollschicht, die von einem Blechmantel gehalten wurde. Um die Meßstrecke adiabatisch zu betreiben, wurden auf dem Blechmantel 4 Zwischenheizkreise und zusätzliches Isoliermaterial angebracht. Die Temperatur wurde in der Mitte der Isolierung zwischen Reaktor und Blechmantel bzw. Heizung auf der mittleren Temperatur zwischen beiden Niveaus des Temperatursprunges 80°C und 100°C gehalten.

Dadurch sollte gewährleistet sein, daß nur die Heizleistungen der Zwischenheizkreise die Wärmeverluste des Systems decken. Auf Grund der auch in der Schlackenwolle-Isolierschicht vorhandenen Wärmeleitung wanderte dort die Temperatur sehr verzögert um maximal 2 Grad vom Sollwert nach oben bzw. nach unten. Um die aus der Richtung des Temperatursprunges möglichen Auswirkungen auf die Ergebnisse auszuschalten, wurden die Versuche in jeder Meßreihe mit Sprüngen zu höheren und niedrigeren Temperaturen durchgeführt.

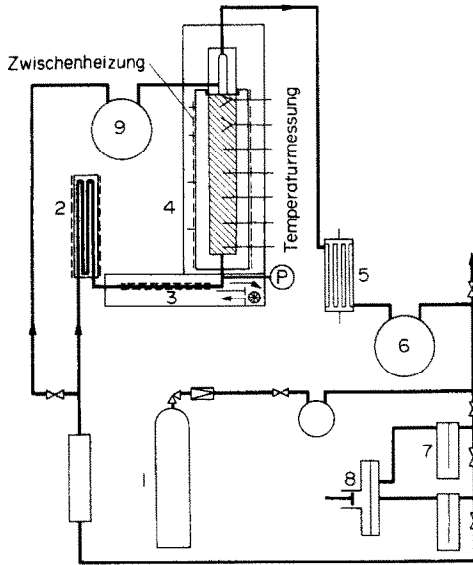


ABB. 1. Apparatur zur Messung des Wärmetransports und der axialen Wärmeleitung in Schütttschichten.

Nach Durchführung der ersten Meßreihe ergaben sich neue Fragen bezüglich des Einflusses der Wand, der relativ dicken Thermolemente und der seitlich durch die Zwischenheizung herausragenden Rohre. Für weitere Versuche wurde darum ein neues Strömungsrohr mit geringerer Wandstärke eingesetzt. Dieser Dünnwandreaktor bestand aus V2A-Blech von 0,5 mm Dicke, hatte die Nennweite 100 mm und die Höhe 520 mm. Der Deckelflansch war dünn ausgebildet (2,5 mm), die radial im Abstand von 40 mm eingeführten 1,0 mm dicken Mantelthermolemente waren nur an der Durchführungsstelle in die Wand eingelötet. Die 75 mm dicke Isolierschicht aus lockerer Glaswolle wurde von einem Streckmetallmantel gehalten, auf dem sich 5 Heizkreise befanden. Die Betriebsweise war die gleiche wie beim Normalwand-

reaktor. Das Fließschema der Versuchsapparatur ist in Abb. 1 zu sehen. Der Stickstoff bzw. Wasserstoff wird Druckgasflaschen (1) entnommen. Die Aufheizung des Gases erfolgt im Vorheiz (2) und im Spitzenvorheiz (3). Der Vorheiz wird so geregelt, daß ihn das Gas mit konstanter Temperatur verläßt. Der Spitzenvorheiz wird nicht geregelt, sondern mit konstanter Heizleistung betrieben, damit das sprunghafte Umstellen auf eine andere konstante Leistung möglich ist. Der Spitzenvorheiz hat eine geringe Wärmekapazität, die nur eine kleine Verzögerung beim Umschalten bewirkt. Der Raum um den Spitzenvorheiz wird durch eine geregelte Heizung und Kühlung auf konstanter Temperatur gehalten. Der Druck wird bei allen Versuchen am Eingang des Strömungsrohres (4) konstant auf 0,1 kP/cm² Überdruck gehalten. Das die Schütttschicht verlassende Gas wird in einem Kühler (5) auf Raumtemperatur abgekühlt und mit einem Kammergaszähler (6) volumetrisch gemessen. Das Gas wird durch Windkessel (7) von einer Membranumwälzpumpe (8) im Kreislauf zum Vorheiz geführt. Die Versuchsanlage erlaubt einen Durchsatz von 1500 bis 15 000 l/h.

Die Meßwerte der Thermolemente werden von einem 12-Punkt-Motorkompensator-Schreiber angezeigt und registriert sowie über ein Digitalvoltmeter einem Streifendrucker zugeführt und ausgedruckt. Nach Übertragung auf Lochstreifen erfolgt die weitere Auswertung der Meßdaten durch den Rechner ODRA 1013. Eine Zusammenfassung der Versuchsbedingungen befindet sich in der Tabelle 1.

Auswertung der 1. Momente

Die in der Gleichung (21) (Teil I) geforderte lineare Abhängigkeit des 1. Momentes von der Länge der Meßstrecke wurde im allgemeinen gut erfüllt. Durch Geradenausgleich wurde jeweils die mittlere Steigung ermittelt und die Gleichung (21) in der Form

$$1 + mK_s + \phi K_w = w \cdot \frac{\Delta \mu'_1}{\Delta x} \quad (29)$$

gelöst. Bei dem Geradenausgleich wurden gelegentliche Ausreißer an den niedrigsten bzw. höchsten Meßstellen nicht berücksichtigt. In diesen Fällen führten offensichtlich Wärmeleitungsverluste zu Abweichungen von den durch die mittleren Punkte gezogenen Geraden, so daß der mittlere Teil der Kolonne als Meßstrecke betrachtet werden konnte. Um die Wärmeverluste in vorgegebenen Grenzen zu halten, wurde außerdem darauf geachtet, daß von dem am Eingang aufgegebenen Temperatursprung von 20° mindestens 19° am fünften Thermolement registriert wurden.

Tabelle 1. Daten der durchgeführten Meßreihen im Teil

Meßreihe	Wand/Schüttung/Gas	d_p	ϵ	ϕ	T_{\min}	T_{\max}
1	N-L5784/N ₂	0,36	0,43	0,291	81	104
2	D-L6301/N ₂	0,98	0,43	0,047	82	104
3	D-L6301/H ₂	0,98	0,43	0,047	80	102
4	D-Stahl/N ₂	0,3	0,4	0,05	81	103
5	D-Stahl/H ₂	0,3	0,4	0,05	80	102

Die mit Gleichung (29) berechneten summarischen thermischen Gleichgewichtskonstanten ($1+mK_s+\phi K_w$) sind in der Tabelle 2, Spalte 1, als Mittelwerte für die einzelnen Meßreihen eingetragen. In der Spalte 2 sind die dazugehörigen Standardabweichungen angegeben; sie betragen 3,0 bis 11,6%, was bei wärmetechnischen Messungen in diesem Maßstab als gutes Ergebnis anzusehen ist. Innerhalb der einzelnen Meßreihen sind die thermischen Gleichgewichtskonstanten auch unabhängig von der Geschwindigkeit, wie es die Theorie verlangt (s. Abb. 2). Der Gesamt-

Wert erhalten wir, wenn wir die Wandstärke und den Durchmesser mit der bekannten spezifischen Wärme in die Gleichung (24) unter Vernachlässigung der Isolierkapazität sowie von Einflüssen der Thermo-elemente einsetzen. Für den Normalwandreaktor beträgt ϕK_w nach Gleichung (24) 1011 und stimmt somit mit dem Versuchsergebnis von 943 (Tabelle 2) im Rahmen der Fehlerbreite überein. Für den Dünnwandreaktor jedoch beträgt ϕK_w nach Gleichung (24) nur 163, während die in Tabelle 2 angegebenen Meßwerte mit ca 600 etwa das Vierfache betragen. Es hat den

Tabelle 2. Kennzahlen aus den 1. Momenten

	$1+mK_s+\phi K_w$	$\pm\sigma$ [%]	ϕK_w	$\pm\sigma$ [%]	mK_s	$\pm\sigma$ [%]
N-L5784/N ₂	2910	5,3	943	16,5		
D-L6301/N ₂	2554	9,7	587	42,3	2047	13,4
D-L6301/H ₂	2634	11,6	667	45,7	2097	14,4
D-Stahl/N ₂	6258	4,1	569	41,7		
D-Stahl/H ₂	6283	3,0	569	33,2		

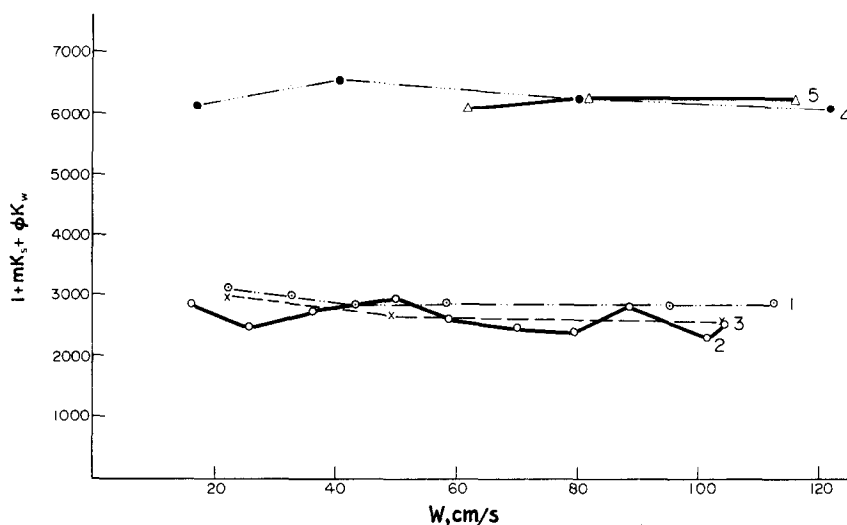


ABB. 2. Auftragung der summarischen thermischen Gleichgewichtskonstanten über der Geschwindigkeit w für die Meßreihen 1 bis 5.

wärmehaushalt der Anlage wurde also beherrscht, so daß man zu weiteren Auswertungen berechtigt ist, wobei entweder mK_s oder ϕK_w vorgegeben und die jeweilige andere Größe ermittelt wird.

Ermittlung von ϕK_w

Bei Vorgabe von mK_s ist es möglich, die Gleichgewichtskonstante für die Wand ϕK_w aus den in Tabelle 2, Spalte 1, angegebenen Konstanten zu berechnen. Zu diesem Zweck wurden die spezifischen Wärmen der jeweiligen Schüttung aus Literaturangaben bzw. unabhängigen Messungen [3] vorgegeben. Die errechneten Konstanten für den Wandanteil am Wärmehaushalt sind in der Tabelle 2, Spalte 3, eingetragen. Die Streuung, Spalte 4, steigt dabei auf 45% an, da der Wärmehaushalt der Wand als Differenz von zwei großen Zahlen berechnet wird. Trotz dieses Vorbehaltes ist ein Vergleich zwischen dem ermittelten und zu erwartenden ϕK_w aufschlußreich. Den letzteren

Anschein, als ob beim Dünnwandreaktor auch die Isolierung zwischen Wand und Zwischenheizung durch den thermischen Sprung erfaßt wurde, während dies beim Normalwandreaktor nicht der Fall ist. Auf Grund der unterschiedlichen Isolierung sowie der verschiedenen Art ihrer Anbringung in beiden Reaktoren können wir diese Wirkung nicht genau analysieren. Trotz des im Vergleich zum Normalwandreaktor nur wenig geringeren Wandanteils des Dünnwandreaktors mit Isolierung am Gesamtwärmehaushalt dürften die axialen Wandleitungseinflüsse im Dünnwandreaktor erheblich kleiner sein. Auf die Bedeutung dieser Feststellung gehen wir später ein.

Ermittlung von mK_s

Auf ähnliche Art lassen sich auch durch Vorgabe von ϕK_w Werte für mK_s ermitteln, d.h. die Apparatur wird als "Kalorimeter" zur Bestimmung der spezifischen Wärme des Schüttgutes betrachtet. Für den

Dünnwandreaktor wurde der mit der Stahlschüttung ermittelte ϕK_w von 569 als Eichwert genommen und zur Berechnung der spezifischen Wärme des Katalysators L 6301 im gleichen Reaktor eingesetzt. Die thermische Gleichgewichtskonstante mK_s aus beiden Meßreihen, Tabelle 2, Spalte 5, stimmt mit dem auf Literaturangaben basierenden Wert $mK_s = 1966$ für technische Zwecke hinreichend gut überein.

Auswertung der 2. Momente

Auch die 2. Momente zeigten bei Auftragung über die Meßstreckenlänge eine lineare Abhängigkeit. Die Streuung der Meßwerte war allerdings größer als bei Darstellung der 1. Momente. Mit der Steigung $\Delta\mu_2/\Delta x$ wurde die Auswertung nach Gleichung (22) vorgenommen.

Bei der Auswertung von μ_2 sind die drei Parameter $D_{x,th}$, $k_{s,th}$ und $k_{w,th}$ zu berücksichtigen. Es kann jeweils unter Vorgabe von zwei Parameterwerten nur eine Größe bestimmt werden. Hier wird $k_{s,th}$ als unbekannt behandelt. Im Abschnitt (B) erfolgt eine Auswertung mit $D_{x,th}$ als unbekannter Größe. Nach gleichzeitiger Lösung der Gleichungen (22) und (25)–(28) erhielten wir $k_{s,th}$ und damit j_h :

$$j_h = \frac{Nu}{Re \cdot Pr^{1/3}} \tag{30}$$

Die j_h -Zahlen sind als Funktion der Reynolds-Zahl in Abb. 3 dargestellt, wobei zum Vergleich die von

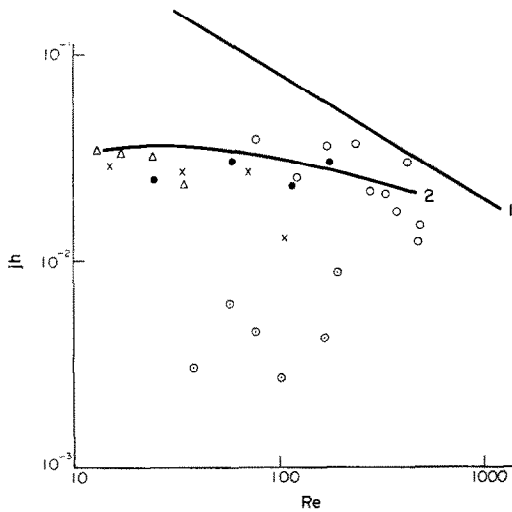


ABB. 3. Auftragung von j_h über Re : \circ , Meßreihe 1; \circ , Meßreihe 2; \times , Meßreihe 3; \bullet , Meßreihe 4; \triangle , Meßreihe 5; 1, Gleichung (31) für Einzelkugel; 2, Gleichungen (25), (31), (38); $D_{x,th}$ nach (6).

Bird, Stewart, Lightfoot [4] angegebene Korrelation für die Einzelkugel

$$Nu = 2,0 + 0,6 \cdot Re^{1/2} \cdot Pr^{1/3} \tag{31}$$

ebenfalls in Form der j_h -Zahlen als Kurve 1 eingezeichnet ist.

Die im Normalwandreaktor gewonnenen j -Zahlen liegen bis zu zwei Zehnerpotenzen niedriger als die Einzelkugelwerte und bestätigen in etwa Ergebnisse, die wir im früheren CHISA-Vortrag [5] gegeben haben. Die damaligen Meßwerte führen wir hier nicht an, weil sie mittels einfacherer Datenerfassung erhalten wurden und daher unserer Meinung nach mit noch größeren Fehlern behaftet sein können. Die Streuungen der j_h -Zahlen im Normalwandreaktor sind erheblich und lassen die Schlußfolgerung zu, daß dieser Apparat für eine Bestimmung von Wärmeübergangszahlen nicht geeignet ist. Der Wärmeübergang zur Schüttschicht stellt nur einen kleinen Anteil an den gesamten im 2. Moment erfaßten Wärmetransportvorgängen dar. Zweck der Berücksichtigung dieser Meßreihe innerhalb unseres Aufsatzes ist es, auf die Verhältnisse in einem normalen katalytischen Versuchsreaktor hinzuweisen.

Die j_h -Zahlen im Dünnwandreaktor rücken näher zur Einzelkorn-Korrelation und streuen etwas weniger. Wir halten es trotzdem nicht für angebracht, diese Ergebnisse durch eine eigene Korrelation zu erfassen und zu verallgemeinern. Vielmehr möchten wir die möglichen Ursachen für die Abweichungen zum Einzelkornverhalten diskutieren.

Im Teil I wiesen wir darauf hin, daß das Einzelkorn nicht als Modell für die Schüttung anzusehen ist. In einer statistisch verteilten Füllkörperschüttung gibt es strömende und stagnierende Zonen, in denen der Wärmetransport unterschiedlich erfolgt. In den stagnierenden Zonen wird der Wärmetransport im Vergleich zum Einzelkorn verzögert. Darüber hinaus muß man erwarten, daß in den von uns untersuchten kleinen Reaktoren die axiale Wärmeleitung in der Reaktorwand auch von wesentlichem Einfluß ist. Diese Vermutung wird durch die unterschiedliche Größe der j_h -Zahlen im Normalwand- und Dünnwandreaktor bestätigt. Allerdings werden die radiale Inhomogenität von Geschwindigkeit und Temperatur sowie die Wärmeleitung in der Wand normalerweise zu den Dispersionseinflüssen und nicht zum Wärmeübergangsschritt gezählt. Es ist also zu untersuchen, ob die in Gleichung (22) eingesetzten $D_{x,th}$ -Werte zu klein sind und eine zu niedrige j_h -Zahl ergeben.

Im Teil I haben wir auch die Möglichkeit der Verwendung des 3. Momentes für eine unabhängige Bestimmung von $D_{x,th}$ und $k_{s,th}$ erwähnt. Die Gleichungen (22)–(23) wurden gleichzeitig nach $k_{s,th}$ und $D_{x,th}$ gelöst und parametrisch untersucht. Ist der angenommene Meßwert für μ_3 zu groß, dann wird $k_{s,th}$ negativ. Ist μ_3 zu klein, dann enthält $D_{x,th}$ ein imaginäres Glied. Der ganze Bereich von μ_3 , in dem ein physikalisch sinnvolles Ergebnis erhalten wird, läßt einen Meßfehler des dritten Momentes von nur $\pm 20\%$ zu. Uns scheint es unwahrscheinlich, daß die dritten Momente mit noch engeren Fehlergrenzen für die genaue Bestimmung der Parameter gemessen werden können. Deshalb wurden getrennte Messungen der thermischen Axialdispersion durchgeführt, um die bisherigen Meßergebnisse bezüglich der Anteile der einzelnen Transportmechanismen analysieren zu können.

(B) AXIALE WÄRMELEITUNG IN DER SCHÜTTTSCHICHT
Methodik und Auswertung

Die Durchführung von unabhängigen Versuchen zur Messung der axialen Wärmeleitung erfolgte in dem oben beschriebenen Normalwandreaktor. Aufbau und Betriebsweise der Versuchsanlage (Abb. 1) ähneln dem schon beschriebenen. In den Reaktor wurde Katalysator L 204 eingefüllt, der mit 3 mm Kugeldurchmesser und seinen chemischen Bestandteilen den anderen verwendeten Katalysatoren gleich. Oberhalb der Schütttschicht wird in den freien Rohrquerschnitt Kaltgas (N₂) eingeleitet, das vor dem Vorheizler aus dem Kreislauf abgezweigt und im Kammergaszähler (9) volumetrisch gemessen wird. Das Verhältnis von Gas konstanter Eintrittstemperatur (150°C) zu Kaltgas von Raumtemperatur (20°C) wird bei allen eingestellten Strömungsgeschwindigkeiten konstant gehalten. Der Spitzenvorheizler wurde mit regelbarer Heizung betrieben, die Verwendung der Zwischenheizung entfiel. Zur genaueren Erfassung des Temperaturprofils am Schütttschichtende wurden zusätzlich in geringeren Abständen 3 Thermoelemente installiert. Ausgewertet wurden hier die im stationären Zustand sich ergebenden Temperaturprofile.

Diese lassen sich mit der Differentialgleichung

$$D_{x,th} \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + w \frac{\partial T}{\partial x} = 0 \tag{32}$$

mit den Randbedingungen

$$\begin{aligned} x = 0, & \quad T = T_0 \\ x = L, & \quad T = T_E \end{aligned}$$

beschreiben.

Mit der normierten Temperatur

$$\vartheta = \frac{T - T_0}{T_E - T_0}$$

ergibt sich die Lösung

$$\vartheta = \frac{\left(\exp \frac{wx}{D_{x,th}} \right) - 1}{\left(\exp \frac{wL}{D_{x,th}} \right) - 1} \tag{33}$$

Auswertung der stationären Messungen

Die Gleichung (33) wurde für verschiedene Werte von $w/D_{x,th}$ numerisch berechnet und in Nomogrammform aufgetragen. Die gemessenen Temperaturprofile wurden in das Nomogramm eingetragen und aus den graphisch angepaßten $w/D_{x,th}$ -Werten $D_{x,th}$ ermittelt. Abbildung 4 zeigt die Lösung für die beiden linearen Geschwindigkeiten 15,4 und 62,6 cm/s. Es mußte leider festgestellt werden, daß die Bestimmung von $D_{x,th}$ auf diese Art nur im unteren Teil des linearen Geschwindigkeitsbereiches im Vergleich zu den Messungen mit der dynamischen Methode möglich war. Bei noch höheren linearen Geschwindigkeiten in den stationären Versuchen mit Kaltgaseinleitung drängte sich die Temperaturabnahme auf eine derart kleine Kolonnenlänge zusammen, daß eine genügend genaue Messung des Temperaturverlaufs nicht mehr möglich war. Ab-

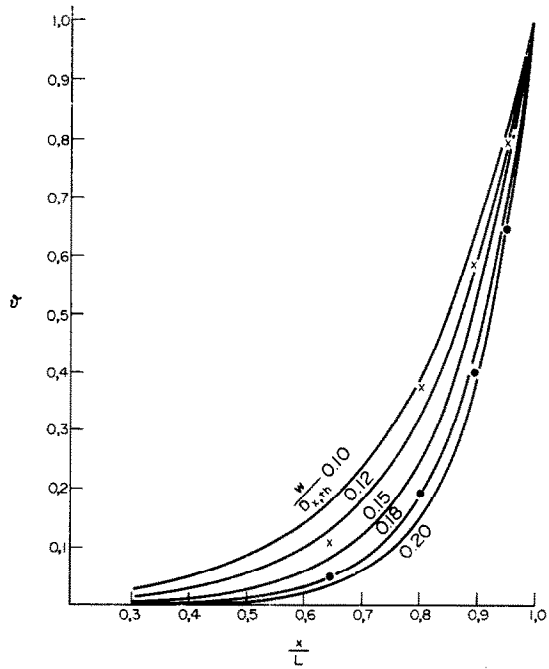


Abb. 4. Nomogramm zur Auswertung axialer Temperaturprofile; O, $w = 15,4$ cm/s (N₂ bei 140°C); ×, $w = 62,6$ cm/s.

bildung 4 gibt auch eine Antwort auf mögliche Bedenken, daß zusätzliche, durch die Kaltgaseinspritzung bedingte Turbulenzeffekte das Meßergebnis verfälschen würden. Eine evtl. am Kolonnenausgang entstehende Turbulenz müßte dazu führen, daß die effektiven Dispersions- Koeffizienten mit zunehmender Entfernung vom Schichtende abnehmen. Wie in Abb. 4 zu erkennen ist, bleiben die Dispersions-Koeffizienten über der Meßstreckenlänge relativ konstant. Wir können daher feststellen, daß die Kaltgaseinspritzung keine nennenswerte Erhöhung der Rückvermischung innerhalb der Schütttschicht verursacht hat. Dagegen dürfte durch die Turbulenz im Reaktorkopf wohl dafür gesorgt worden sein, daß die Reaktorwandtemperatur am Ausgang gleich der Gasausgangstemperatur war.

Die Meßergebnisse mit der Kaltgaseinleitung sind in Abb. 5 als Funktion der Reynoldszahl mit den rechnerischen Korrelationen nach Votruba [6], Yagi [7] und Gleichung (26) verglichen. Durch die Meßpunkte mit Kaltgaseinleitung wurde zur Verdeutlichung der Abhängigkeit eine überschlägige Kurve gelegt. Die auftretenden Unterschiede zwischen den Korrelationen in Abb. 5 führen wir auf die Einflüsse der Apparatewände zurück. Die Gleichung (26) als wärmetechnisches Analogon zum Stofftransport dürfte, wenn überhaupt, nur in einer Kolonne mit sehr großem d_t gelten, wo die axiale Wandleitung völlig ohne Einfluß ist.

Votruba [6] und Yagi [7] haben in Glaskolonnen mit Vakuummantel Schüttungen aus Glas- und Metallkugeln sowie Kunststoff, Sand und Kalksteinteilchen unterschiedlicher Geometrie und Größe eingefüllt. Luft wurde mit Raumtemperatur am unteren Ende der Schüttung eingeführt und die in den freien Raum am

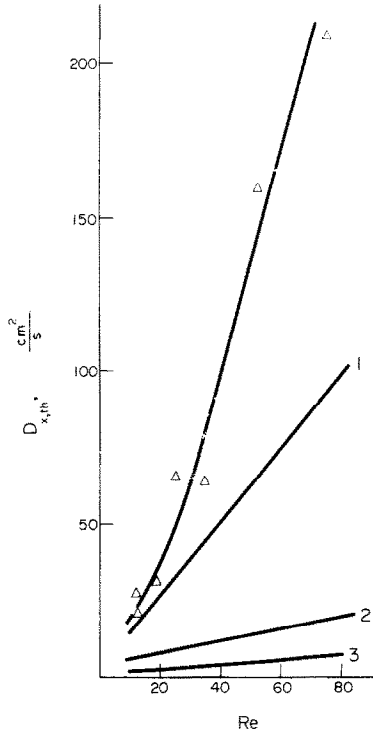


ABB. 5. Vergleich von $D_{x,th}$ -Korrelationen in Apparaten mit verschiedenen Wänden; Δ , Meßpunkte bei Kaltgaseinleitung; 1, Berechnung nach Votruba [2]; 2, Berechnung nach Yagi [3]; 3, Berechnung nach Gleichung (26).

Ausgang der Schüttung austretende Luft mit einer Infrarotlampe erhitzt. Die Auswertung erfolgte nach den gleichen Grundlagen wie bei unseren Kaltgasmessungen. Nach unseren Vorstellungen sind ihre Ergebnisse zumindest z.T. durch Wärmeleitung in der Wand des Vakuummantels beeinflusst, worauf sie in ihrer Diskussion nicht eingegangen sind. Unsere Meßergebnisse im Normalwandreaktor aus Stahl zeigen logischerweise die höchsten axialen Leitzahlen.

Betrachtet man in der Wärmebilanz die Wandleitung als einen Transportmechanismus parallel zur Leitung in der Schüttschicht, so schreibt man statt Gleichung (32)

$$-\frac{\phi \lambda_w}{(\rho c_p)_g} \cdot \frac{\partial^2 T_w}{\partial x^2} - D_{x,B} \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + w \frac{\partial T}{\partial x} = 0. \quad (34)$$

Nimmt man an, daß

$$\frac{\partial^2 T_w}{\partial x^2} = \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} \quad (34a)$$

ist, dann ist die Wärmeleitung in der Wand

$$D_{x,w} = \frac{\lambda_w}{(\rho c_p)_g} \quad (35)$$

anteilmäßig addierbar zur Leitung in der Schüttung, also

$$D_{x,th} = D_{x,B} + D_{x,w} \phi. \quad (36)$$

Mit den Werten für den Normalwandreaktor beträgt die Größe von $D_{x,w} \phi = 110 \text{ cm}^2/\text{s}$. Obwohl dieser Wert in der Größenordnung der gemessenen axialen Leitzahlen liegt, sind die $D_{x,th}$ teils höher teils niedriger. Es kann angenommen werden, daß bei niedrigen linearen Strömungsgeschwindigkeiten der Wärmeübergang zur Wand die Leitung in der Wand dämpft, so daß die effektiven Meßwerte niedriger sind, während bei höheren Geschwindigkeiten die axiale Leitzahl über den Wert $110 \text{ cm}^2/\text{s}$ steigt, weil die Temperaturgradienten in der Wand steiler sind als in der Schüttung. Somit erhält man eine qualitative Erklärung für den mit Kaltgaseinleitung beobachteten Verlauf in Abb. 5.

Auswertung der instationären Messungen

Eine weitere Bestätigung ergibt sich aus einer Auswertung der dynamischen Versuche des Abschnitts (A). In die Gleichung (22) haben wir die Wärmeübergangszahl zur Schüttung nach Gleichung (31) und die zur Wand nach Gleichung (25) eingesetzt und die axiale Leitzahl $D_{x,th}$ aus dem zweiten Moment errechnet. Die auf diese Art bestimmten $D_{x,th}$ -Werte für den Normalwandreaktor sind in Abb. 6 eingetragen. Sie stimmen

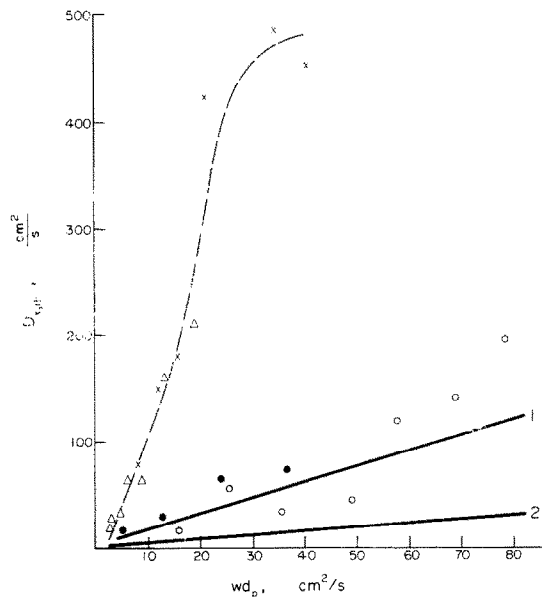


ABB. 6. Ergebnis der Auswertung dynamischer Versuche: Δ , Versuchspunkte wie in Bild 3; \times , L 5784/N₂, Normalwand; \circ , L 6301/N₂, Dünnwand; \bullet , Stahl/N₂, Dünnwand; 1, Berechnung nach Votruba [2]; 2, Berechnung nach Gleichung (26).

innerhalb des gemeinsamen wd_p -Bereichs mit $D_{x,th}$ der Kaltgasmessungen überraschend gut überein. Gleichermaßen haben wir verfahren mit den Meßreihen im Dünnwandreaktor mit Katalysator bzw. Stahl und Stickstoff. Die Meßpunkte aus diesen Reihen liegen prinzipiell niedriger als die im Normalwandreaktor und befinden sich somit in Übereinstimmung mit unseren Ausführungen über die Bedeutung der Wand für den axialen Wärmetransport. Die Ergebnisse im

Dünnwandreaktor stimmen überdies in etwa mit der Korrelation von Votruba überein, wobei auch der Streubereich nicht größer als dort ist.

Die Äquivalenz beider Methoden geht auch aus dem Folgenden hervor. In Gleichung (9) vom Teil I setzen wir $D_{x,B}$ anstelle von $D_{x,th}$ ein und schreiben statt Gleichung (11)

$$D_{x,w} \frac{\partial^2 T_w}{\partial X^2} + k_{w,th} a_w (T - T_w) = K_w \frac{\partial T_w}{\partial t} \quad (11a)$$

Wir erhalten anstelle von Gleichung (22)

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

Beide Dispersionskoeffizienten addieren sich im instationären Fall wie in Gleichung (36) für den stationären Fall.

Ein weiterer Vergleich läßt sich mit den Ergebnissen von Gunn und De Souza [8] ziehen, die periodische Veränderungen der Temperatur am Eingang einer mit Luft durchströmten Schütttschicht aufgegeben haben. Als Festkörper setzten sie Kugeln aus Glas, Stahl und Blei ein. Die Apparatewand bestand aus Tufnol, ein Werkstoff von niedriger thermischer Leitfähigkeit. Ihre Ergebnisse korrelierten sie in der Form Pe über Re ; sie lagen in dem von uns schraffiert dargestellten Streubereich in Abb. 7. Unsere Pe -Zahlen im Dün-

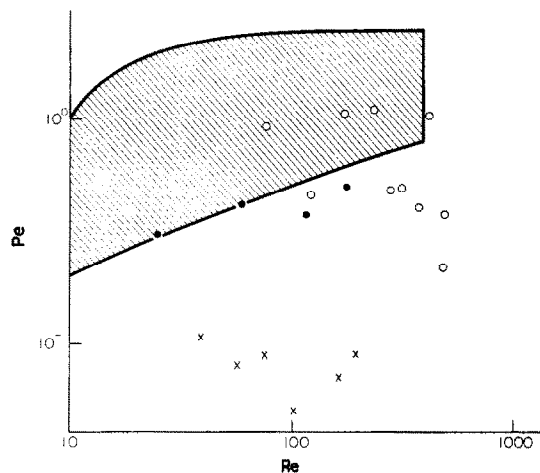


ABB. 7. Darstellung der gemessenen Pe -Zahlen; Streubereich nach Gunn, de Souza [4]: x, L 5784/N₂, Normalwand; o, L 6301/N₂, Dünnwand; •, Stahl/N₂, Dünnwand.

wandreaktor sind vergleichbar mit den Werten von Gunn und De Souza, dagegen sind die Pe -Zahlen im Normalwandreaktor eine Zehnerpotenz niedriger.

Bestimmung eines Wirkungsgrades der Wärmeleitung

Nachdem diese Ergebnisse die Schlußfolgerung erhärten, daß der Wärmetransport zur Schüttung in Versuchsreaktoren durch axiale Wärmeleitung, vor allem durch die Reaktorwand, verschlechtert wird, soll das Ausmaß dieses Effektes gezeigt werden. Würde

man bei der Aufstellung der Wärmebilanz die Wandeffekte sowie die axiale Wärmeleitung ganz vernachlässigen, so würde man anstelle der Gleichungen (9) und (10) die Gleichungen

$$w \frac{\partial T}{\partial x} + k_{eff,th} a_s m (T - T_s) + \frac{\partial T}{\partial t} = 0 \quad (37)$$

$$k_{eff,th} a_s (T - T_s) = K_{eff} \frac{\partial T_s}{\partial t}$$

ansetzen. Ein Vergleich der ersten beiden Momente der Gleichung (37) mit denen der Gleichung (9) führt zum Ergebnis, daß

$$k_{eff,th} = \frac{(mK_s + \phi K_w)^2}{a_s m \left[\frac{D_{x,th}}{w^2} (1 + mK_s + \phi K_w)^2 + \frac{mK_s^2}{k_{s,th} a_s} + \frac{\phi K_w^2}{k_{w,th} a_w} \right]} \quad (38)$$

ist.

Wenn wir $D_{x,th}$ für den Dünnwandreaktor nach Votruba bestimmen, und dazu die Gleichungen (25), (31) und (38) verwenden, erhalten wir in Abb. 3 die

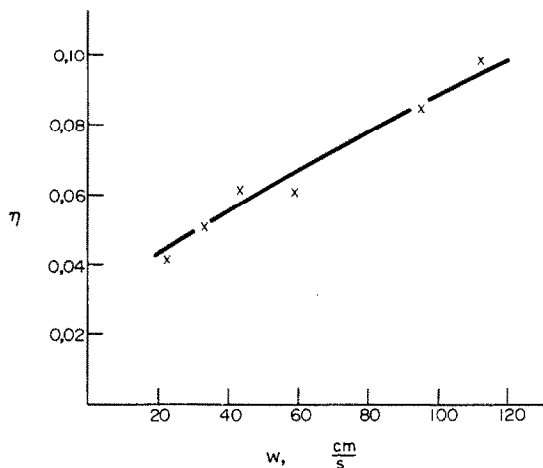


ABB. 8. Wirkungsgrade der Wärmeübergangszahlen in der Schütttschicht.

Kurve 2. So wie die axialen Leitzahlen des Dünnwandreaktors mit der Beziehung von Votruba in Abb. 6 übereinstimmen, so gibt die Kurve 2 in Abb. 3 eine gute Wiedergabe der im Dünnwandreaktor gemessenen Wärmeübergangszahlen bzw. j_h -Faktoren.

Wir haben außerdem mittels Gleichung (38) unter Verwendung der gemessenen axialen Leitzahlen für den Normalwandreaktor (Abb. 6) sowie der Wärmeübergangszahlen nach Gleichungen (25) und (31) effektive Wärmeübergangszahlen für verschiedene Strömungsgeschwindigkeiten berechnet. Das Verhältnis der Wärmeübergangszahlen nach Gleichung (38) zu denen nach Gleichung (31) kann man als Wirkungsgrad definieren:

$$\eta = \frac{k_{eff,th}}{k_{s,th}}$$

Dieser Wirkungsgrad ist in Abhängigkeit von der linearen Geschwindigkeit in Abb. 8 dargestellt. Unter

dem Einfluß der Wärmeübertragung zur Wand und der axialen Wärmeleitung in Schüttung und Wand geht die durch Gleichung (38) definierte effektive Wärmeübergangszahl für eine Kugel in der Schüttung auf nur 4 bis 10% des Wertes für eine Einzelkugel zurück. Diese Darstellung gilt quantitativ nur für unseren Normalwandreaktor unter den gewählten Versuchsbedingungen. Man erkennt, daß eine steigende Tendenz mit zunehmender Strömungsgeschwindigkeit vorliegt. Es ist zu erwarten, daß der Wirkungsgrad mit größerem Durchmesser bzw. größerer Apparatelänge ansteigt, weil Wandeinflüsse sowie Störungen am Ein- und Ausgang relativ zurückgehen.

SCHLUSSFOLGERUNG

Im Teil II haben wir gezeigt, daß axiale Wärmeleitungseffekte zu einer wesentlichen Verringerung der effektiven Wärmeübertragung in einer Schüttschicht im Versuchsmaßstab führen können. Die Ergebnisse solcher Versuche dürfen daher nicht als typisch für das Verhalten größerer Einheiten angesehen werden. Andererseits darf auch nicht angenommen werden, daß wärmetechnische Messungen in großen Apparaten bzw. an Einzelteilchen für die Auswertung von Ergeb-

nissen im Versuchsmaßstab benutzt werden können. Diese Erkenntnisse müssen bei der Maßstabsübertragung berücksichtigt werden.

LITERATUR

1. D. Gelbin, K.-H. Radeke, W. Stein und H.-J. Wolff, Stoff- und Wärmetransport in Schüttschichten—I, *Int. J. Heat Mass Transfer* **19**(1), 9–14 (1976).
2. K.-P. Roethe, A. Roethe, B. Rosahl und D. Gelbin, Vergleichende Untersuchungen einer Modellreaktion in verschiedenen Versuchsreaktoren, *Chemie-Ingr-Tech.* **42**, 805–812 (1970).
3. H. M. Gawlik, K.-H. Radeke und D. Gelbin, Schnellmethode zur Bestimmung der spezifischen Wärme von Festkörpern, *Chem. Tech., Berl.* **28**, 228–231 (1976).
4. R. B. Bird, W. E. Stewart und E. N. Lightfoot, *Transport Phenomena*. Wiley, New York (1965).
5. 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).
6. J. Votruba, V. Hlaváček und M. Marek, Packed bed axial thermal conductivity, *Chem. Engng Sci.* **27**, 1845–1851 (1972).
7. S. Yagi, D. Kunii und N. Wakao, Studies on axial effective thermal conductivities in packed beds, *A.I.Ch.E. JI* **6**(4), 543–546 (1960).
8. D. J. Gunn und J. F. C. de Souza, Heat transfer and axial dispersion in packed beds, *Chem. Engng Sci.* **29**, 1363–1371 (1974).

HEAT AND MASS TRANSFER IN PACKED BEDS—II. HEAT TRANSFER AND AXIAL THERMAL CONDUCTIVITY

Abstract—Using dynamic techniques, heat-transfer effects are measured in two tubes of different wall thickness. The tubes are packed with porous catalyst particles or steel balls. Evaluating the first moments shows that for technical purposes the method can be used to determine the specific heat of the packing. The results of the second moments indicate that the effective heat transfer to the packing is strongly reduced by thermal dispersion. Axial thermal dispersion in a packed bed is then measured using stationary and instationary methods in two tubes of different wall thickness, and results are compared with the literature. The influence of thermal conductivity in the reactor wall on total axial heat conductivity is analysed. The reduction in overall heat transfer due to axial heat conductivity is correlated in the form of an effectiveness factor.

TRANSFERT DE CHALEUR ET DE MASSE DANS UN REACTEUR A LIT FIXE

Résumé—On mesure à l'aide de techniques dynamiques les effets du transfert thermique dans deux tubes d'épaisseurs différentes. Les tubes sont remplis de particules de catalyseur poreux ou de billes d'acier. Les mesures montrent tout d'abord que la méthode peut être utilisée à des fins techniques pour déterminer la chaleur spécifique du lit. Les résultats indiquent que le transfert effectif de chaleur au lit de particules est fortement réduit par la dispersion thermique. La dispersion thermique axiale dans un lit fixe est alors mesurée à l'aide de méthodes stationnaires ou instationnaires dans deux tubes d'épaisseurs différentes, les résultats étant comparés aux données existantes. On analyse l'influence de la conductivité thermique de la paroi du réacteur sur la conductivité thermique axiale totale. La réduction du transfert de chaleur global due à la conductivité axiale est prise en compte par un facteur d'efficacité.

ТЕПЛО- И МАССОПЕРЕНОС В СЫПУЧИХ СЛОЯХ — II. ТЕПЛОПЕРЕНОС И ОСЕВАЯ ТЕПЛОПРОВОДНОСТЬ

Аннотация — С помощью динамических измерительных методов исследуется теплоперенос в двух трубах с разной толщиной стенки. Сыпучий слой состоит из пористых катализаторов или из стальных шариков. Оценка первого момента показывает, что в инженерных целях можно использовать метод определения удельной теплоемкости сыпучего материала. Оценка результатов второго момента позволяет предполагать, что эффективный перенос тепла в сыпучий слой значительно снижается за счет эффекта дисперсии. Затем определялась осевая теплопроводность сыпучего слоя методом стационарной и нестационарной теплопроводности в двух трубах с разной толщиной стенки и сравнивалась с имеющимися в литературе данными. Учитывался вклад теплопроводности стенки реактора в общую осевую теплопроводность. Уменьшение общего теплопереноса за счет осевой теплопроводности представлено в виде коэффициента эффективности.