



Doctoral Thesis

## **Kinetik und Massstabsvergrößerung bei der kontinuierlichen Massenkristallisation von Kaliumalaun**

**Author(s):**

Hungerbühler, Konrad

**Publication Date:**

1978

**Permanent Link:**

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-000161233> →

**Rights / License:**

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

**Diss ETH 6293**

**KINETIK UND MASSSTABSVERGROESSERUNG BEI DER KONTINUIERLICHEN  
MASSENKRISTALLISATION VON KALIUMALAUN**

---

**A B H A N D L U N G**

zur Erlangung des Titels eines

**DOKTORS DER TECHNISCHEN WISSENSCHAFTEN**

der

**EIDGENOESSISCHEN TECHNISCHEN HOCHSCHULE ZUERICH**

vorgelegt von

**Hungerbühler, Konrad**

**Dipl. Chem.-Ing. ETH**

geboren am 11. November 1952

von Zürich ZH und Romanshorn TG

Angenommen auf Antrag von:

**Prof. Dr. J.R. Bourne, Referent**

**Prof. Dr. D.W.T. Rippin, Korreferent**

1978

## ZUSAMMENFASSUNG

Die vorliegende Arbeit behandelt die kontinuierliche Massenkristallisation von Kaliumalaun in einer speziell entwickelten und eingehend charakterisierten Rührkesselanordnung (die eine ideale Durchmischung gewährleistet). Die Kühlkristallisationsversuche wurden in zwei geometrisch ähnlichen Kristallisatoren von 1.67 l- bzw. 42 l Inhalt durchgeführt, wodurch neben dem Studium der Kristallisationskinetik auch der Einfluss der Massstabsvergrößerung untersucht werden konnte.

Im ersten Teil der Arbeit galt es, eine Rührkesselanordnung zu entwickeln, die bei einer guten Durchmischung des Kesselinhaltes eine klassifikationsfreie Produktentnahme erlaubt. Ein Leitrohrührkessel mit konstantem Stömungsquerschnitt (profiliertes Boden), 16 Stromstörern und achsialförderndem Propellerrührer vermochte zusammen mit einer intermittierenden Produktentnahme obigen Anforderungen in guter Weise zu genügen. Auswaschversuche mit Glaskugeln und Auflösungsversuche mit Kaliumalaunkristallen zeigten für den 1.67 l- und den 42 l Kristallisator, dass bei mässiger Rührintensität ( $\epsilon_{1.67 \text{ l Kessel}} = 0.3 \text{ W/kg Lösung}$ , bzw.  $\epsilon_{42 \text{ l Kessel}} = 0.1 \text{ W/kg Lösung}$ ; entspricht in beiden Kesseln einer konstanten Rührerumfangsgeschwindigkeit von 1.5 m/s) sowohl eine gute Durchmischung mit klassifikationsfreier Produktentnahme, als auch ein mit konventionellen Rührkesselanordnungen vergleichbarer Stofftransportkoeffizient erreicht werden konnte.

Für die Auswertung der anschliessend durchgeführten kontinuierlichen Massenkristallisationsversuche

(entsprechende Versuche im 1.67 l bzw. 42 l Kristallisator wurden bei konstanter Rührerumfangsgeschwindigkeit durchgeführt) mit Kaliumalaun als Modellsubstanz wurden zwei Wachstumsmodelle benützt (grössenabhängiges Wachstum, Wachstumsdispersion). Obwohl beide Modelle den experimentellen Daten in gleich guter Weise zu genügen vermochten, wurde für eine eingehendere Behandlung nur das grössenabhängige Wachstumsmodell verwendet.

Die gemessenen Keimbildungsraten zeigen eine deutliche Abhängigkeit von Uebersättigung, Rührerdrehzahl und Rührkesselmasstab, wogegen die gemessenen Gesamtwachstums-Geschwindigkeiten ( $\frac{dL}{dt}$ ) einzig eine signifikante Abhängigkeit von der Uebersättigung aufweisen. Eine qualitative Gegenüberstellung der Kristallisationsprodukte in den beiden Masstäben (bei gleichen Betriebsbedingungen, einschliesslich mittlerer Verweilzeit und Rührerumfangsgeschwindigkeit) zeigt, dass als Folge der deutlich geringeren Keimbildungsräte im 42 l Kristallisator die Suspensionsdichte und der Variationskoeffizient kleiner, die mittlere Korngrösse jedoch grösser als im 1.67 l Kristallisator ist.

Eine Identifikation der unabhängigen Bestimmungsgleichungen im Hinblick auf eine Nachberechnung der Korngrössenverteilung zeigt, dass wie beim grössenunabhängigen Wachstum auch das in den Kristallisationsexperimenten der vorliegenden Arbeit gemessene grössenabhängige Kristallwachstum durch ein Wachstumsmodell mit nur einem Parameter beschrieben werden kann.\*

---

\*Da bei grössenunabhängigem, wie bei grössenabhängigem Kristallwachstum die Korngrössenverteilung durch die gleichen Betriebsparameter eindeutig bestimmt ist, lässt sich ein grössenabhängiges Wachstumsmodell mit mehr als einem unabhängigen Modellparameter ohnehin aufgrund der Anzahl Freiheitsgrade schlecht vertreten.

Die mit einem iterativen Berechnungsprogramm bestimmten Korngrössenverteilungen (Nachberechnung) zeigen eine gute Uebereinstimmung mit den entsprechenden gemessenen Werten. Mit obigem Berechnungsprogramm konnte schliesslich gezeigt werden, dass für eine konstante Suspensionsdichte und Uebersättigung bei der Massstabsvergrösserung die Verweilzeit etwas verlängert werden muss, wodurch gegenüber dem kleineren Massstab gleichzeitig ein geringerer Anteil an feinen Kristallen erhalten wird.

## ABSTRACT

Nucleation, crystal growth and the influence of scale have been studied in agitated mixed suspension, mixed product removal, cooling crystallizers.

Two geometrically similar draft tube crystallizers (volume: 1.67 l and 42 l) with contoured base and propeller were characterised with respect to particle classification (by wash-out experiments using glass beads) and particle-fluid mass transfer (by dissolution of potash alum crystals). A well mixed suspension can be reached at lower agitation rates in the contoured base vessel than in a conventional tank (turbine agitated with flat bottom). Experiments at two scales showed that constant tip speed is a good scale-up rule for ideal mixing of a suspension as well as for a constant mass transfer coefficient.

Crystallization experiments with potash alum in the 1.67 l and 42 l tanks established, that nucleation is strongly dependent on supersaturation, stirrer speed and scale, whereas with crystal growth only supersaturation and crystal size are significant. At the same operating conditions (feed concentration, crystallization temperature, residence time and propeller tip speed) the suspension density and the coefficient of variation decrease, while the mean crystal size and supersaturation increase on scaling up. (These changes are associated with a lower specific nucleation rate in the 42 l crystallizer). Mass- and population balance together with the measured kinetics allowed recalculation of the crystal size distributions. Finally, it was possible to show that, for scaling up at constant tip speed and constant supersaturation and suspension density, the mean residence time

needs to be increased. This further implies that, with increasing scale a smaller proportion of fine crystals can be obtained.