



Doctoral Thesis

Bestimmung intrapartikulärer Gasdiffusionskoeffizienten

Author(s):

New, Marc Emile Victor

Publication Date:

1979

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-000202436> →

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 Nr. 6512

BESTIMMUNG INTRAPARTIKULAERER
GASDIFFUSIONSKOEFFIZIENTEN

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

MARC EMILE VICTOR NEW

Dipl. Chem. Ing. ETH

geboren am 11. März 1952

luxemburgischer Staatsangehöriger

Angenommen auf Antrag von

Prof. Dr. W. Richarz, Referent

Prof. Dr. N. Ibl, Korreferent

1979

KURZFASSUNG

Effektive Gasdiffusionskoeffizienten in mehreren porösen Materialien wurden mit Hilfe der folgenden Messmethoden bestimmt: Pulschromatographie in gaschromatographischen Festbettanordnungen mit unterschiedlichen Verhältnissen des Kolonnendurchmessers zum Partikeldurchmesser, stationäre Gegendiffusionsmessungen in Diffusionszellen, sowie Pulschromatographie an einzelnen Laborpresslingen. Spezielles Gewicht lag auf der Untersuchung der statistischen Aussagekraft der jeweiligen Werte, sowie auf der Uebertragbarkeit der Messergebnisse an Laborpresslingen auf handelsübliche Festkörperpartikeln.

In klassisch gepackten gaschromatographischen Festbetten konnten intrapartikuläre Stofftransportwiderstände nicht von externen Stoffübergangseinflüssen und axialen Dispersionseinflüssen getrennt werden. Aussagekräftige effektive Diffusionskoeffizienten wurden nur in einem sehr engen Bereich von Partikeldurchmessern erhalten (Partikel-Strang Anordnung). Der Einfluss verschiedener Modellvorstellungen bezüglich des axialen Dispersionsmechanismus, sowie bezüglich der Berechnung externer Stoffübergangskoeffizienten auf den numerischen Wert des effektiven Diffusionskoeffizienten wird diskutiert.

Messungen an einzelnen Laborpresslingen ergaben statistisch signifikantere Werte für den effektiven Diffusionskoeffizienten. Diese Messmethode wird deshalb für routinemässige Bestimmungen dieses Koeffizienten empfohlen. Die geringste relative Abweichung wurde in stationären Gegendiffusionsversuchen erhalten. Im Vergleich dazu lieferten pulschromatographische Messungen keine zusätzlichen Informationen in Bezug auf das Diffusionsverhalten der Presslinge. Es wurde eine ausgeprägte Abhängigkeit des effektiven Diffusionskoeffizienten von der Presslingporosität beobachtet. Axiale Anisotropieerscheinungen in Laborpresslingen wurden nicht festgestellt. Zweifel bleiben bestehen in Bezug auf die Auswirkung der genau festgelegten Stofftransportrichtung auf den numerischen Wert des effektiven Diffusionskoeffizienten in Laborpresslingen. Verschiedene Porenmodelle werden im Zusammenhang mit den Messergebnissen an einzelnen Presslingen diskutiert.

Unter Berücksichtigung der wichtigsten Unsicherheitsfaktoren wurden in handelsüblichen Partikeln gleiche effektive Diffusionskoeffizienten wie in Laborpresslingen der entsprechenden Porosität erhalten. Die Genauigkeit der Messergebnisse übertraf die Voraussagekraft üblicher Porenmodelle nicht.

SUMMARY

Effective gaseous diffusion coefficients in several porous materials were measured by means of the following measuring techniques: pulse-response experiments in packed beds with varying ratios of column to particle diameters, stationary counterdiffusion measurements in diffusion cells and pulse-response experiments on single pellets. Special stress was laid on the analysis of the statistical significance of the various results and on the transferability of diffusion cell results of laboratory pressed pellets to commercial pellets.

The intraparticle mass transfer resistances were masked by external resistances and axial dispersion effects in packed beds of small particles. Accurate effective diffusion coefficients were only obtained in a very restricted range of particle diameters (single-pellet-string-reactor). The influence of different models for the computation of axial dispersion coefficients and external mass transfer coefficients on the numerical value of the effective diffusion coefficient is discussed.

Measurements on single pellets yielded statistically more accurate values of the effective diffusion coefficient. The relative variance of experimental results was smallest with the steady state flow method. There was no marked difference between steady state and unsteady state diffusion coefficients. Effective diffusion coefficients were found to be strongly dependent on the pellet porosity. Axial anisotropy effects could not be detected in laboratory pressed pellets. Some doubts remain concerning the influence of the well pronounced direction of mass transfer on the effective diffusion coefficient in laboratory pressed pellets. Some porous models are discussed in connection with single pellet results.

Considering the main sources of uncertainty identical effective diffusion coefficients were obtained in commercial pellets and in laboratory pressed pellets with the corresponding porosity. The accuracy of experimental results did not exceed the accuracy of usual porous model predictions.