

Bericht zur Max-Buchner-Forschungsarbeit
„Modellbasiertes Rapid-Prototyping von Festbettreaktor-Pellets“
(MBFSt-Kennziffer: 3725)

Prof. Dr.-Ing. Gregor D. Wehinger
Institut für Chemische und Elektrochemische Verfahrenstechnik
Technische Universität Clausthal, 38678 Clausthal-Zellerfeld

1. Aufgabenstellung und Zielsetzung

Der Festbettreaktor (FBR) ist der am häufigsten verwendete Reaktortyp der chemischen und Prozess-Industrie (CPI). Befüllt werden FBRs meist mit keramischen Füllkörpern, sogenannten Pellets, die als Festbett-Katalysatoren eine zentrale Funktion besitzen. Ein ideales Pellet verfügt über eine große spezifische Oberfläche und erzeugt im Bett einen kleinen Druckverlust. Zudem beeinflusst die Pelletform maßgeblich den radialen Wärmetransport und die lokal auftretenden Geschwindigkeiten. Folglich gibt es eine Vielzahl von FBR-Pelletformen, z.B. Kugeln, Zylinder, Hohlzylinder auch mit Stegen, etc. Der Zusammenhang zwischen Formgebung und FBR-Performance ist jedoch hochkomplex und erfordert einen großen Entwicklungsaufwand [1]. Um diese Entwicklung zu beschleunigen, können FBR-Bettstrukturen synthetisch erzeugt [2] und Transportphänomene mit Hilfe von numerischer Strömungsmechanik (CFD-Simulationen) berechnet werden [3]. So FBR-Kenngrößen in einem frühen Entwicklungsstadium bewertet und die Pelletform iterativ zur Verbesserung der Zielgrößen angepasst werden.

Zur Validierung dieser detaillierten FBR-Modelle sollen zukünftig Pelletformen mit Hilfe von 3D-Druckern hergestellt und damit generierte FBRs experimentell untersucht werden. Rapid Prototyping (RP) beschreibt die schnelle Herstellung von z.B. Funktionsprototypen durch additive Fertigungsverfahren (3D-Druckern) ausgehend von Konstruktionsdaten (CAD). Das Ziel dieser Forschungsarbeit besteht darin, geeignete additive Fertigungsverfahren zur Modellvalidierung zu identifizieren und das Potential des methodischen Ansatzes herauszuarbeiten. Dabei sollte im Rahmen des Projektes eine der wichtigsten Fragen, ob experimentelle Ergebnisse mit Festbetten aus Funktionsprototypen-Pellets (Rapid Prototyping) in der Entwicklung neuer Pelletformen zur Absicherung von FBR-Zielen genutzt werden können, geklärt werden. Der hier vorgestellte Ansatz kombiniert partikel-aufgelöste CFD-Simulationen, 3D-gedruckte RP-Pellets und experimentelle Validierung.

2. Durchgeführter Arbeitsplan

Für die Bewertung des methodischen Ansatzes wurden zu Beginn des Projektes industrielle keramische Füllkörper und damit generierte Festbetten experimentell untersucht. Auf Basis dieser Ergebnisse wurden potentiell geeignete 3D-Druckverfahren und Werkstoffe identifiziert. Für die schnelle und kostengünstige Herstellung von RP-Pellets und experimentelle Untersuchungen ohne Wärmeeintrag und chemische Reaktion, haben wir zwei verbreitete 3D-Druck-Prozesse in die nähere Auswahl genommen. Einen Ultimaker 3 (Fa. Ultimaker) der Prozesskategorie „Werkstoffextrusion“ (auch als FDM-Verfahren bekannt) für die Herstellung von Pellets aus PLA-Material. Und einen Formlabs 2 (Fa. Formlabs) der Prozesskategorie „wannenbasierte Photopolymerisation“, welcher auch als Stereolithographie-Verfahren (SLA) bekannt ist. Neben diesen Kunststoff-Pellets können in einem zweistufigen Herstellungsprozess, aus einer Kunstharz-Keramik-Matrix 3D-gedruckte Grünlinge in einem anschließenden Sinterprozess, Keramik-Pellets hergestellt werden.

Zur Beantwortung der Frage, ob sich RP-Pellets aus den Werkstoffen PLA, „Formlabs Grey“ und „Formlabs Ceramic“ bei der FBR-Generierung ähnlich wie die formgleichen industriellen Referenz-Pellets verhalten und sich als Modell eignen, wurden diese 3D-gedruckt und experimentell mit den Referenz-Pellets verglichen. Dazu wurden die Referenz-Pellets vermessen und nachkonstruiert. Anschließend wurden die Hohlzylinder-Pellets mit den Maßen $d_a = 8$ mm, $d_i = 5$ mm und $h = 6$ mm aus den Werkstoffen PLA, „Formlabs Grey“ und „Formlabs Ceramic“ hergestellt und jeweils Festbetten in gläsernen Standzylindern erstellt, siehe Abbildung 1.



Abbildung 1: In einem Glaszylinder hergestellte Festbetten gleicher Pelletanzahl aus a) Referenz-Pellets und (formgleichen) Rapid Prototyping-Pellets aus b1) Keramik (Formlabs Ceramic) und b2) Kunstharz (Formlabs Grey).

Für den weiteren experimentellen Vergleich wurde ein Teststand zur Druckverlustmessung aufgebaut. Mit diesem Teststand können Druckverluste für unterschiedliche Volumenströme an Stickstoff über eine 50 cm hohe Bettschüttung in einem 1 Zoll Glasrohr bestimmt werden. Um zudem Informationen z.B. zur radialen Porosität und Orientierung einzelner Pellets in der Schüttung zu erhalten, wurde eine optische Methode zur 3D-Digitalisierung von FBRs entwickelt (vgl. Abb. 2). Hierbei wird das FBR zunächst optisch erfasst (HandyScan 3D, Creafom) (a) und anschließend auf Basis der digitalen Punktwolke (b) in ein CAD-Modell (c) überführt. Das physische FBR kann anschließend mit Hilfe der digitalen Kopie analysiert (d) und für CFD-Simulationen (e) genutzt werden [4, 5]. Neben den experimentellen Untersuchungen wurden für den vorgestellten Ansatz zudem formgleiche synthetische FBRs generiert und mit den physisch hergestellten FBRs verglichen [6].

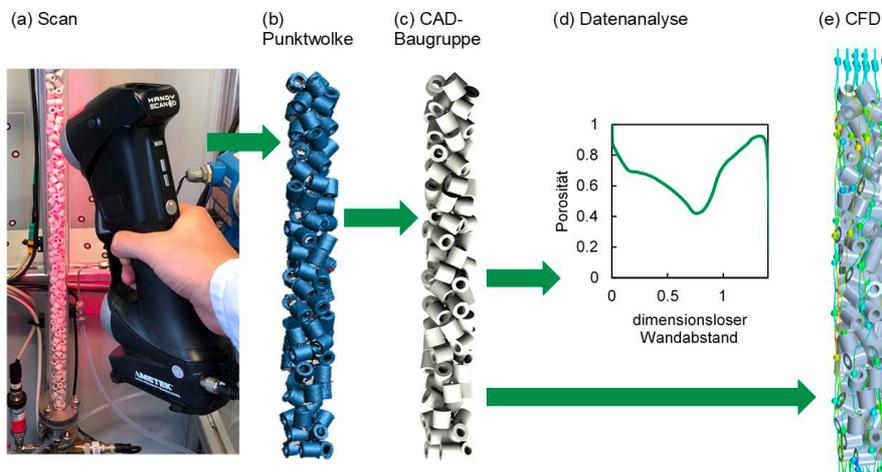


Abbildung 2: Workflow der optischen Methode zur 3D-Digitalisierung von FBRs mit Hilfe eines optischen 3D-Scanners und Reverse Engineering inkl. Analyse und Geometrie-Input für CFD-Simulationen [4].

3. Ergebnisse

Neben den werkstoffbedingten Unterschieden hinsichtlich Dichte und Stoßzahl können die 3D-gedruckten Pellets die Form- und Maßtoleranzen der pelletierten Industriepellets nur eingeschränkt einhalten, siehe Tabelle 1.

Tabelle 1: Durchmesser, Höhe, Dichte und Stoßzahl von Referenz-Pellet und Pellets aus "Formlabs Grey" und „Formlabs Ceramic“.

Pellet-Bezeichnung	Pellet-Außendurchmesser d_a [mm]	Pellet-Innendurchmesser d_i [mm]	Pellet-Höhe h [mm]	Dichte ρ [g/cm ³]	Stoßzahl k [-]
Referenz-Pellet	8	5	6	2,60	0,41
Formlabs Ceramic	8	5	5,6	1,59	0,48
Formlabs Grey	8	4,5	5,5	1,10	0,53

Zur Eignungsüberprüfung der RP-Pellets wurden zunächst FBRs aus Referenz-Pellets in gläsernen Standzylindern hergestellt. Die Referenz- und anschließend auch die RP-Pellets wurden dazu einzeln und auch mit einem Trichter als Befüllungshilfe hergestellt. Zur Eignungsprüfung der Referenz-Modelle wurde für jede Schüttung der Lückengrad bestimmt. Die FBR-Höhe wird dazu mit Hilfe von Fotos, die aus einer definierten Entfernung und Orientierung zum FBR aufgenommen werden, bestimmt. Schüttungsversuche mit jeweils 160 Pellets aus Referenz- und RP-Pellets zeigen unter Berücksichtigung der Abmessungsabweichungen geringe Abweichungen im Lückengrad ϵ (vgl. Tabelle 2).

Versuche mit aus PLA hergestellten Pellets (Maße $d_a = 9$ mm, $d_i = 5$ mm und $h = 9$ mm) zeigen trotz einer ausgeprägten orthotropen Oberflächenbeschaffenheit ähnliche Lückengradabweichungen zu gleich großen Referenz-Pellets. Die Oberflächenbeschaffenheit ist auf die schichtbauweise Herstellung und prozessbedingt höheren Schichtdicke im Werkstoffextrusionsverfahren zurückzuführen.

Tabelle 2: Gemittelte Ergebnisse des Lückengrades von jeweils fünf Einzelversuchen mit je 160 Pellets und Festbettgenerierung mit Einzel- und Trichterbefüllungsstrategie in Standzylinder mit einem Innendurchmesser von $D_i = 36$ mm und einer Höhe $H = 280$ mm.

	Befüllungsstrategie			
	Einzelbefüllung		Trichterbefüllung	
	ϵ	Abweichung zu Referenzmodell [%]	ϵ	Abweichung zu Referenzmodell [%]
Referenz-Pellet	0,414	-	0,419	-
Formlabs Ceramic	0,437	+5,59	0,439	+4,96
Formlabs Grey	0,391	-5,47	0,394	-5,87

4. Fazit

Die ersten explorativen Arbeiten zeigen, dass 3D-gedruckte Pellets generell für experimentelle Untersuchungen und Absicherung von CFD-Simulationsmodellen genutzt werden können. Um das Potential des methodischen Ansatzes weiter auszuschöpfen, muss die Fertigungsprozesskette verbessert (Maßhaltigkeit, Qualität) und der Einfluss der 3D-gedruckten Oberflächen mit größeren Versuchsreihen weiter untersucht werden. Zur Verbesserung der RP-Modell-Pellets können die Prozessparameter angepasst werden. Neben Druckverlustmessungen, können 3D-gedruckte Pellets aus Keramik (SLA-Verfahren) zukünftig z.B. für die Untersuchung von Wärmetransport und chemischen Reaktionen genutzt werden. Um Experimente mit komplexen 3D-gedruckten Pellets zukünftig verbessert für Simulationen nutzen zu können, soll die vielversprechende Methode zur 3D-Digitalisierung von FBR weiterentwickelt werden.

5. Literatur

- [1] Sie, S. T., & Krishna, R. (1998). Process development and scale up: II. Catalyst design strategy. *Reviews in Chemical Engineering*, 14(3), 159-202.
- [2] Wehinger, G. D., Eppinger, T., & Kraume, M. (2015). Evaluating Catalytic Fixed-Bed Reactors for Dry Reforming of Methane with Detailed CFD. *Chemie Ingenieur Technik*, 87(6), 734-745.
- [3] Jurtz, N., Kraume, M., & Wehinger, G. D. (2018). Advances in fixed-bed reactor modeling using particle-resolved computational fluid dynamics (CFD). *Reviews in Chemical Engineering*.
- [4] Scherf, S. C., Lohrengel, A. & Wehinger, G. D. & (2020). An optical method for the validation of synthetic fixed-bed structures and CFD simulation input using machine learning. *Poster auf der 10. ProcessNet-Jahrestagung und 34. DECHEMA-Jahrestagung der Biotechnologen 2020*
- [5] Creaform3D, *3D-Digitalisierung in der chemischen und Prozess-Industrie*, <https://www.creaform3d.com/blog/de/3d-digitalisierung-in-der-chemischen-und-prozess-industrie/>
- [6] Fleischlen, S., & Wehinger, G. D. (2019). Synthetic packed-bed generation for CFD simulations: Blender vs. STAR-CCM+. *ChemEngineering*, 3(2), 52.