

# Experimentelle und theoretische Untersuchung des Wärmetransports in Zeolithschüttungen

Dipl.-Phys. Andreas Griesinger

1998

## Kurzfassung

Griesinger, A. C. :

### Experimentelle und theoretische Untersuchung des Wärmetransports in Zeolithschüttungen

Zeolithe bilden eine große Gruppe der anorganischen Verbindungen. Ihr Einsatzgebiet reicht von der chemischen Industrie bis zur Wärme- und Kältetechnik. Für viele Anwendungen ist die genaue Kenntnis des Wärmetransports in der Zeolithschüttung notwendig. Zur gleichzeitigen Bestimmung der effektiven Wärmeleitfähigkeit und der effektiven Temperaturleitfähigkeit von Zeolithschüttungen wurde ein Meßverfahren entwickelt. Das Verfahren basiert auf der transienten Heißdrahtmethode. Für die Messungen genügt ein Probevolumen von nur 13 ml.

Es wurde die effektive Wärmeleitfähigkeit und die effektive Temperaturleitfähigkeit von Schüttungen aus Zeolith CaA, KA, NaA, NaY und Zeolith Sodalith gemessen. Die Messungen wurden im Temperaturbereich von  $-60^{\circ}\text{C}$  bis  $+300^{\circ}\text{C}$  und im Druckbereich von 1 mbar bis 30 bar durchgeführt. Als Füllgase wurden Stickstoff, Wasserstoff, Argon und Helium verwendet. Abhängig vom Druck liegt die effektive Wärmeleitfähigkeit zwischen  $0,005 \text{ W/m K}$  und  $0,4 \text{ W/m K}$ , die effektive Temperaturleitfähigkeit nimmt Werte zwischen  $6,5 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$  und  $1,3 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$  an. Der Wärmetransport in der Zeolithschüttung wird hauptsächlich vom Druck, von der Partikelgröße sowie der Wärmeleitfähigkeit des Füllgases bestimmt. Die Temperatur hat dagegen nur einen geringen Einfluß. Zur Berechnung der effektiven Wärmeleitfähigkeit von Zeolithschüttungen wurde ein einfaches Modell entwickelt.

Der Wärmeübergang zwischen der Behälterwand und einer Zeolithschüttung wird durch den thermischen Kontaktkoeffizienten beschrieben. Zur Messung des thermischen Kontaktkoeffizienten wurde das Laserimpulsverfahren modifiziert. Der Vorteil dieses Meßverfahrens besteht darin, daß der Wärmestrom berührungslos mit einem Laser aufgeprägt und die Temperatur mit einem Pyrometer berührungslos gemessen wird. Messungen wurden im Druckbereich zwischen 1,5 mbar und 1 bar mit den Füllgasen Stickstoff, Wasserstoff und Argon bei  $90^{\circ}\text{C}$  durchgeführt. Für den thermischen Kontaktkoeffizienten zwischen einem lose aufliegenden Kupferplättchen und einer Schüttung aus Zeolith NaY wurden Werte zwischen  $3 \text{ W/m}^2 \text{ K}$  und  $423 \text{ W/m}^2 \text{ K}$  gemessen.

## Abstract

Griesinger, A. C. :

### Experimental and theoretical investigation of the heat transport in zeolite beds

Zeolites are a large group of inorganic compounds. Their extensive field of application ranges from chemical industry to heat- and refrigeration-technology. For many applications the knowledge of the exact heat transport in zeolite beds is necessary.

A measuring method was developed to measure the effective thermal conductivity and the effective thermal diffusivity of zeolite beds simultaneously. It is based on the transient hot-wire method. For the measurements a sample volume of only 13 ml is required.

Measurements of the effective thermal conductivity and effective thermal diffusivity of zeolite beds (zeolite CaA, KA, NaA, NaY and zeolite sodalite) were carried out. They covered the temperature range of  $-60^{\circ}\text{C} < \vartheta < 300^{\circ}\text{C}$  and the pressure range of  $1 \text{ mbar} < p < 30 \text{ bar}$ . Nitrogen, hydrogen, argon and helium were used as filling gases. The values of the effective thermal conductivity vary between  $0.005 \text{ W/m K}$  and  $0.4 \text{ W/m K}$ . The values of the effective thermal diffusivity are in the range from  $6.5 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$  to  $1.3 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ . The effective thermal conductivity and the effective thermal diffusivity of zeolite beds depend primarily on the pressure, the thermal conductivity of the filling gas and the particle size. The influence of temperature is comparatively small. A simple model was developed in order to calculate the effective thermal conductivity of the zeolite bed.

The heat transfer between the wall of the container and a zeolite bed depends on the thermal contact conductance. For measurements of the thermal contact conductance the laser flash method was modified. The advantage of this method is that the probe is heated by a laser without contact and the temperature is measured by a pyrometer without contact. Measurements were carried out in the pressure range of  $1.5 \text{ mbar} < p < 1 \text{ bar}$  at  $\vartheta = 90^{\circ}\text{C}$ . Nitrogen, hydrogen and argon were used as filling gases. The thermal contact conductance between a copper plate lying on the zeolite powder (NaY) and the zeolite powder varies between  $3 \text{ W/m}^2\text{K}$  and  $423 \text{ W/m}^2\text{K}$ .

# Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung	5
Formelzeichen	9
1 Einleitung	13
2 Zeolithe	15
3 Literaturüberblick	20
3.1 Effektive Wärmeleitfähigkeit	22
3.2 Effektive Temperaturleitfähigkeit	24
3.3 Thermischer Kontaktkoeffizient	24
4 Die Heißdrahtmethode zur Bestimmung der Wärme- und Temperaturleitfähigkeit	25
4.1 Die transiente Heißdrahtmethode	25
4.1.1 Meßprinzip	25
4.1.2 Meßverfahren	26
4.1.3 Beschreibung des Meßaufbaus	29
4.1.4 Meßgenauigkeit	31
4.2 Die periodische Heißdrahtmethode	32
4.2.1 Meßprinzip	33
4.2.2 Meßverfahren	33
4.2.3 Beschreibung des Meßaufbaus	39
4.2.4 Meßgenauigkeit	41
4.2.4.1 Fehler durch die Näherung $K_0(z) \approx -\ln(z) + \ln(2) - \nu$	41
4.2.4.2 Meßfehler durch Meßgeräte	42
4.2.4.3 Meßfehler aufgrund der endlichen Länge und des endlichen Durchmessers des Platindrahtes	47
4.2.4.4 Zusammenfassung der Meßfehler	52
4.2.4.5 Experimentelle Untersuchung der Meßgenauigkeit	53

<b>5</b>	<b>Meßergebnisse der effektiven Wärme- und Temperaturleitfähigkeit von Zeolithschüttungen</b>	<b>58</b>
5.1	Versuchsstoffe . . . . .	58
5.2	Einfluß des Zeoliths . . . . .	59
5.3	Einfluß des Füllgases . . . . .	60
5.4	Einfluß der Temperatur . . . . .	63
5.5	Einfluß des Wassergehalts . . . . .	65
5.5.1	Einfluß des Wassergehalts auf die volumetrische Wärmekapazität . . . . .	68
5.6	Erhöhung der effektiven Wärmeleitfähigkeit durch Additive . . . . .	71
5.7	Einfluß der Zyklenzahl bei der Wasserstoffadsorption . . . . .	75
5.8	Berechnung der effektiven Wärmeleitfähigkeit . . . . .	77
5.9	Vergleich der Modellrechnungen mit den Meßergebnissen . . . . .	81
<b>6</b>	<b>Thermischer Kontaktkoeffizient zwischen einer Zeolithschüttung und einem Kupferplättchen</b>	<b>87</b>
6.1	Meßprinzip . . . . .	87
6.2	Umsetzung des Meßverfahrens . . . . .	88
6.3	Beschreibung des Meßaufbaus . . . . .	92
6.4	Druckzelle . . . . .	94
6.5	Meßergebnisse . . . . .	97
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>99</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>100</b>
<b>A</b>	<b>Herleitung des Temperaturverlaufs bei der periodischen Heißdrahtmethode</b>	<b>108</b>
<b>B</b>	<b>Messungen mit dem Lock-In-Verstärker</b>	<b>110</b>
<b>C</b>	<b>Berechnung des Hohlraumanteils von Pulvermischungen</b>	<b>113</b>
<b>D</b>	<b>Herleitung des Temperaturverlaufs in einer zweischichtigen Probe nach Pulsanregung</b>	<b>114</b>