

## **Teil I: Kurzbericht**

### **Vermeidung von klimarelevanten Prozessemissionen in der Industrie (KlimPro-Industrie)**

#### **Verbundprojekt KlimPro: Reduzierung der klimarelevanten Prozess-emissionen durch die verbesserte Auslegung von strukturierten Packungskolonnen (ReProvAP)**

Durchgeführt im Zeitraum 01.03.2021 bis 31.05.2024 von den geförderten Partnern

Technische Universität München, 01LJ2002A

ENVIMAC Engineering GmbH, 01LJ2002B

Ruhr-Universität Bochum, 01LJ2002C

RVT Process Equipment GmbH, 01LJ2002D

Technische Universität Berlin, 01LJ2002F

Technische Universität Braunschweig, 01LJ2002G

Universität Paderborn, 01LJ2002H

mit den assoziierten Partnern BASF SE, Evonik Operations GmbH, INEOS Phenol  
GmbH, Linde GmbH, Sulzer Chemtech AG

sowie einem Projektbeirat bestehend aus Bayer AG, Covestro AG, Julius Montz  
GmbH, Lanxess Deutschland GmbH, RASCHIG GmbH, YNCORIS GmbH & Co. KG.

Das Forschungsprojekt ReProvAP ist Teil der Fördermaßnahme KlimPro-Industrie, welche eine Vermeidung von klimarelevanten Prozessemissionen in der Industrie zum Ziel hat. Konkret wird in diesem Projekt die Reduzierung von klimarelevanten Prozessemissionen durch die verbesserte Auslegung von strukturierten Packungskolonnen für die Destillation untersucht. Dazu sollten in den einzelnen Projektbereichen (PB) vorhandene Betriebsdaten ausgewertet und experimentelle Messungen sowie Simulationen durchgeführt werden. Außerdem sollten neue Messzellen für die Destillation entwickelt werden, die sich an bereits durchgeführten Forschungsarbeiten zu miniaturisierten Versuchsanordnungen zur Untersuchung von Packungen für die Absorption orientieren. Abschließend sollten Modellierungsansätze für die Trennleistungsberechnung konzeptioniert werden.

Die mit allen Teilzielen auch einzeln zu erreichende Verbesserung der Auslegungssicherheit sollte den verstärkten Einsatz von druckverlustarmen Packungskolonnen bewirken, die insbesondere in hochgradig integrierten Gesamtprozessen in industriellen Anwendungen ein Schlüssel zur Effizienzsteigerung und damit zur Treibhausgasemissionsvermeidung sind.

Der Stand der Technik zu Beginn des Projekts war eine oft nicht genaue Vorhersagbarkeit der Stofftrennleistung von strukturierten Packungen, sodass hohe Sicherheitsaufschläge nötig waren. Bisherige Auslegungsmethoden in der Industrie basieren auf Angaben von Packungsherstellern, Erfahrungswerten und experimentellen Untersuchungen in Labor- sowie Pilotanlagen.

Im Rahmen des Projektes ReProvAP wurden daher in PB 1 bestehende Datensätze von Packungsherstellern und dem FRI (Fractionation Research Inc.) angefragt und ausgewertet. In PB 2 wurden experimentelle Untersuchungen zur Bestimmung von HETP-Werten in verschiedenen Kolonnendurchmessern von Labor- bis Pilotmaßstab durchgeführt. In PB 3 wurden verschiedene Modellierungsansätze verfolgt, um die Trennleistung einer strukturierten Packung zu bestimmen. In PB 4 wurden neuartige Messzellen für die Rektifikation entwickelt, die als Alternative zu Pilotanlagen verwendet werden sollen. In PB 5 wurden die vielen Ergebnisse der vorangegangenen Projektbereiche analysiert und zu möglichen Auslegungsmethodiken weiterentwickelt. In PB 6 wurde projektbegleitend eine Lebenszyklusbetrachtung (LCA) von unterschiedlichen Szenarien in der chemischen Industrie aufgestellt, wo eine verbessert ausgelegte strukturierte Packung zu CO<sub>2</sub>-Einsparungen beitragen konnte.

Im Wesentlichen konnte festgestellt werden, dass Trennleistungsmessungen aus unterschiedlichen Quellen oft nicht uneingeschränkt miteinander vergleichbar waren, da eine Standardisierung des Versuchsaufbaus, der Packungen, der Peripherie, der Messtechnik und des Versuchsablaufs nicht gegeben war. Oft gab es einschränkende Umstände, sodass eine komplette Vergleichbarkeit unmöglich ist. Daher wurden die Bemühungen zur Standardisierung dokumentiert und die untersuchten Einzelphänomene beschrieben.

Trennleistungsmessungen zeigten beispielsweise, dass thermische Randbedingungen der Kolonnenwand und die Konfiguration von Randabweisern signifikante Einflüsse auf die Trennleistung insbesondere im Miniplantmaßstab haben. Ein Vergleich von Packungen unterschiedlicher Hersteller und unterschiedlicher Ausführungsformen zeigte, dass auch Unterschiede im Randspalt, Material und Struktur der Packungsbleche Auswirkungen auf die experimentell bestimmte Trennleistung haben. Scale-Up-Untersuchungen mit Cyclohexan/*n*-Heptan und Ethanol/Wasser-Gemischen in verschiedenen Kolonnenmaßstäben (DN50 bis DN250) belegten zudem eine starke und Ethanol/Butanol eine geringe Maßstabsabhängigkeit

der Trennleistungsergebnisse. Die Messungen mit Ethanol/Wasser zeigten im Vergleich zu den organischen Gemischen ein verändertes Flut- und Trennverhalten aufgrund der physikalischen Eigenschaften des Wassers.

Ein weiteres wichtiges Ergebnis ist, dass mithilfe verschiedener Modellierungsansätze Trennleistungen erfolgreich vorhergesagt werden konnten. Dabei gibt es Modelle mit und ohne Auflösung der Geometrie. Neben dem Einfluss der verschiedenen Kolonnendimensionen und Betriebsparameter wurden auch der Einfluss des Konzentrationsbereichs und der Stoffdaten auf die Trennleistung in unterschiedlichen Modellen untersucht. Zusätzlich wurden Unterschiede zwischen den konventionellen Kolonnen und den Messzellen beleuchtet. Aus den Studien konnten prädiktive Übertragungsparameter für den Scale-Up abgeleitet werden. Die Weiterentwicklung dieser Modelle ist jedoch notwendig, um sie als zuverlässige Vorhersagewerkzeuge verwenden zu können.

Die Entwicklung der neuartigen Messzellen hat gezeigt, dass auch in rechteckigen Querschnitten eine vergleichbare Trennleistung gemessen werden kann wie in zylindrischen Pilotanlagen. Es wurde erfolgreich gezeigt, dass Trennleistungsmessungen und der spezifische Druckverlust innerhalb einer Messzelle bestehend aus zwei Packungsblechen unter destillativen Bedingungen für verschiedene Stoffsysteme übertragbar auf Laborkolonnen und Kolonnen im Pilot-Maßstab ist, wobei ein Übertragungsfaktor oder eine Methode notwendig ist.

Im Rahmen des Projekts wurden mehrere innovative Wege identifiziert, strukturierte Packungen auszulegen. Neben der Auslegung mithilfe von ressourcenschonenden Messzellen wurden Simulationen und datengetriebene Ansätze wie KI-Modelle oder Übertragungsgleichungen mit Anpassungsparametern entwickelt.

Basierend auf Fließbildsimulationen wurden in der LCA anhand spezifischer exemplarischer Fallbeispiele die potentiellen Einsparungen an CO<sub>2</sub>-Emissionen quantifiziert, welche durch eine verbesserte Auslegung von Packungskolonnen erreicht werden können. Dabei wurden Szenarien erarbeitet, anhand derer potenzielle Einsparung quantifiziert wurden: (1) reduzierter Druckverlust, (2) Realisierbarkeit von Packungskolonnen statt Bodenkolonnen und (3) der Einsatz von Brüdenkompression bei einem geringeren Druckverlust in der Kolonne. Zudem wurden Ansätze erarbeitet, mit dem Ziel die Einsparmaßnahmen überschlägig auf die gesamte chemische Industrie zu übertragen. Insgesamt ist jedoch zu beachten, dass die chemische Industrie sich durch eine Vielfältigkeit ihrer Prozesse auszeichnet und das Einsparpotential von Fall zu Fall betrachtet werden muss. Das tiefere Verständnis für die Prozesse innerhalb einer strukturierten Packung sowie deren Trennleistung an sich trägt jedoch zu einer nicht näher quantifizierbaren Risikosenkung bei der Auslegung bei, wodurch innovative Methoden bevorzugt zum Einsatz kommen können.

Nichtsdestotrotz konnte das Einsparpotential durch einen hypothetischen Revamp einer Bodenkolonne zu einer Packungskolonne in Kombination mit Brüdenkompression für einen speziellen Fall als sehr hoch festgestellt werden. So sind laut diesem Szenario Einsparungen von ca. 0,25 kg CO<sub>2</sub>/ kg Feed möglich, was für die Kolonne in der Studie eine absolute Einsparung von ca. 150000 t CO<sub>2</sub> bedeutete. Dieses Potential stellt nicht den Durchschnitt dar. Zur Bestimmung eines genaueren Mittelwertes müssten umfangreichere Einzelfallstudien mit der intensiven Unterstützung der Industrie durchgeführt werden.

## **Teil II: Sachbericht**

### **Vermeidung von klimarelevanten Prozessemissionen in der Industrie (KlimPro-Industrie)**

#### **Verbundprojekt KlimPro: Reduzierung der klimarelevanten Prozess-emissionen durch die verbesserte Auslegung von strukturierten Packungskolonnen (ReProvAP)**

Durchgeführt im Zeitraum 01.03.2021 bis 31.05.2024 von den geförderten Partnern

Technische Universität München, 01LJ2002A

ENVIMAC Engineering GmbH, 01LJ2002B

Ruhr-Universität Bochum, 01LJ2002C

RVT Process Equipment GmbH, 01LJ2002D

Technische Universität Berlin, 01LJ2002F

Technische Universität Braunschweig, 01LJ2002G

Universität Paderborn, 01LJ2002H

mit den assoziierten Partnern BASF SE, Evonik Operations GmbH, INEOS Phenol GmbH, Linde GmbH, Sulzer Chemtech AG

sowie einem Projektbeirat bestehend aus Bayer AG, Covestro AG, Julius Montz GmbH, Lanxess Deutschland GmbH, RASCHIG GmbH, YNCORIS GmbH & Co. KG.

## Inhalt

Einleitung .....	2
Teilprojekt 1 (TUM): Gesamtkoordination (administrativ) und Simulationen.....	6
Teilprojekt 2 (ENVIMAC): Gesamtkoordination (fachlich), Untersuchungen an Kolonnen und Messzellen und LCA .....	14
Teilprojekt 7 (RUB): Entwicklung von Messzellen.....	19
Teilprojekt 8 (RVT): Untersuchungen an Messzellen.....	26
Teilprojekt 11 (TUB): Entwicklung von Messzellen .....	32
Teilprojekt 12 (TU BS): Untersuchungen an Kolonnen und LCA.....	36
Teilprojekt 13 (UPB): Modellierung .....	51
Beiträge der assoziierten Partner .....	56
Erklärungen.....	64
Veröffentlichungen im Projektzeitraum .....	70
Literatur .....	75

## Einleitung

Der Endenergieverbrauch der chemischen Industrie in Deutschland betrug laut dem Verband der Chemischen Industrie e. V. (VCI) im Jahr 2018 740 Petajoule und hatte damit einen Anteil von 22,1 % am Energieeinsatz im verarbeitenden Gewerbe. Laut Klimaschutzplan 2050 soll Deutschland bis 2050 weitgehend treibhausgasneutral sein, bis 2030 ist eine Emissionsminderung von mindestens 55 % verglichen mit dem Basisjahr 1990 vorgesehen. Zur Erreichung dieser Klimaziele ist, neben der Umstellung auf eine regenerative Rohstoffbasis, die Steigerung der Effizienz der Produktionsprozesse unbedingt notwendig. Viele dieser Produktionsprozesse beinhalten energieintensive Verfahrensschritte wie Rektifikation/Destillation, Absorption und Desorption zur Fraktionierung, Trennung und Reinigung von Prozessströmen. Hierfür werden fast ausschließlich Stoffaustauschkolonnen eingesetzt. Nach Schätzungen verschiedener Autoren werden 3 %, oder sogar bis zu 10 %, des Weltprimärenergiebedarfs ebenso wie die daraus resultierenden CO<sub>2</sub>-Emissionen durch thermische Stofftrennungen verursacht.

Dieses Verbundprojekt führte, ganz dem Kernanliegen der Hightech-Strategie 2025 der Bundesregierung entsprechend, Wissen aus Forschung, in Form von innovativen Ansätzen in der Simulation und im Experimentellen, und Wissen aus der Industrie, in Form von langjähriger Erfahrung, Expertise und Marktkenntnis, zusammen und brachte sie zur Wirkung. Die Entwicklungen aus diesem Projekt werden die Prozessindustrie nachhaltig verändern, da eine neue, präzisere Auslegungsmethodik für strukturierte Packungen und Messzellentechnologie Energie- und Kostenersparnis bedeuten. So kann unter anderem die Grundstoffindustrie (beispielsweise Luftzerleger im Haber-Bosch-Verfahren zur Ammoniaksynthese) durch den Einsatz von effizienteren Packungskolonnen, anstatt konservativer Packungskolonnen oder Bodenkolonnen, mit einem niedrigeren Druckverlust innovative, treibhausgasreduzierte Prozesse und Verfahrenskombination entwickeln.

Es ist allerdings schwierig, allgemeine quantitative Aussagen zur erwartbaren Energieeinsparung zu treffen, da z. B. Prozesse in Chemieparcs individuell in einem Wärmeverbund integriert sind und die Erhöhung der Effizienz eines Prozesses sich damit gleich auf mehrere Prozesse auswirken kann (eventuell sogar mit einem Multiplikatoreffekt).

Die in diesem Projekt angestrebte Erhöhung der Auslegungsgenauigkeit von Packungskolonnen ermöglicht aber genau deren Einsatz in wärmeintegrierten Prozessverbänden in der chemischen, petrochemischen, pharmazeutischen, Raffinerie-, Gasverarbeitungs-, und Spezialchemie-Industrie und kann somit die Energieeffizienz des ganzen Verbundes positiv beeinflussen.

Die Ergebnisse dieses Verbundprojekts dienen somit auch dazu, insbesondere die beteiligten Industriepartner zu befähigen, das Potenzial und Risiko für eine Überführung in die wirtschaftliche Nutzung bewerten zu können. Um die Relevanz für die Industrie angemessen abzubilden, sind in diesem Projekt Forschungseinrichtungen, Packungshersteller, Anlagenbauer, Ingenieurdienstleister bis hin zu Anlagenbetreibern vertreten, s. Abb. 0.1. Die Einbeziehung von Akteuren entlang der gesamten Wertschöpfungskette der Prozessindustrie sowie von Anwendern und Betreibern von Produktionsanlagen aus unterschiedlichen Branchen sicherte die frühzeitige Beachtung der in diesen Branchen relevanten Anforderungen und Randbedingungen bei den Forschungsaktivitäten des Verbundes.

Durch eine begleitende, integrierte Lebenszyklusbetrachtung, die eine Betrachtung, u. a. der Treibhausgasemissionen, rund um Produktionsanlagen und strukturierte Packungen sowie des damit assoziierten Energieaufwands und der damit einhergehenden Wirtschaftlichkeit erlauben, wurde eine gesamtheitliche Nachhaltigkeitsbetrachtung durchgeführt.

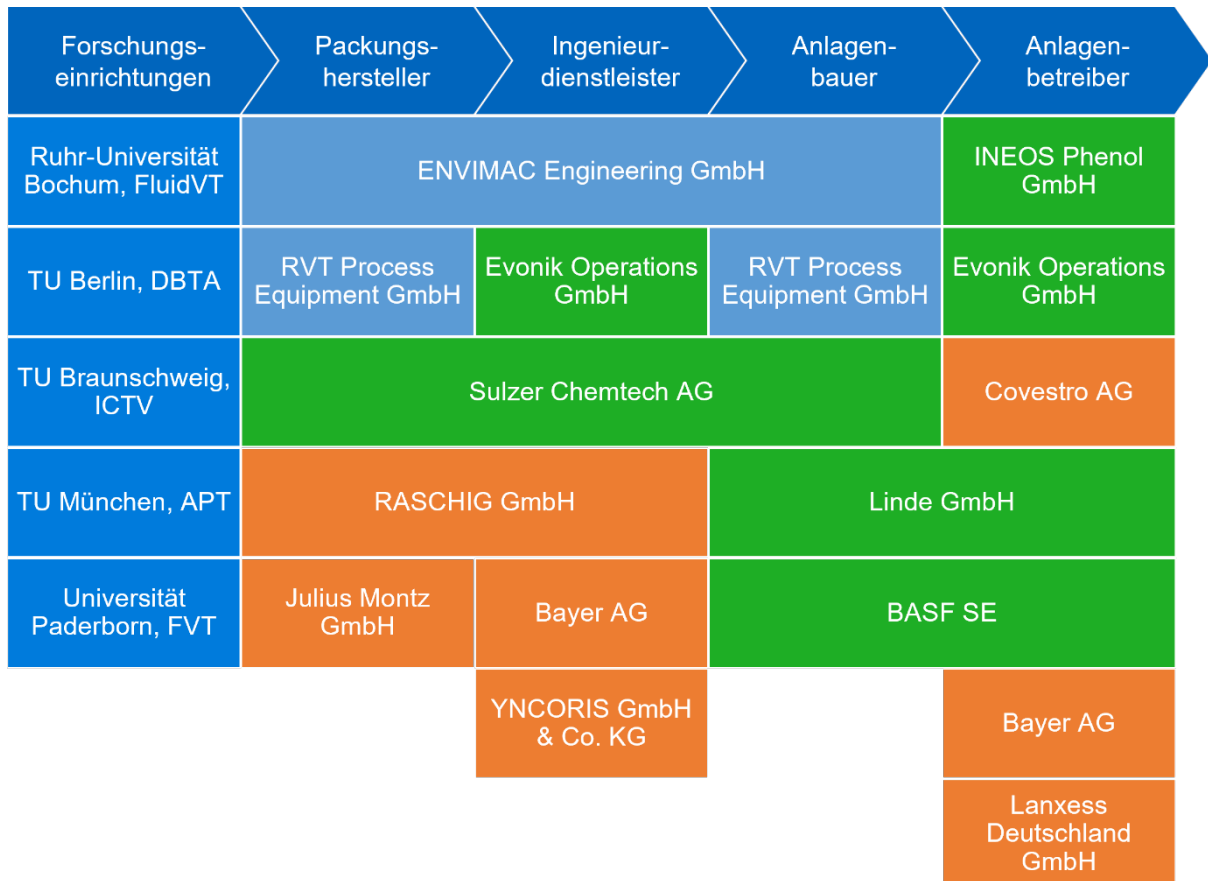


Abb. 0.1: Verbundpartner ReProvAP entlang Wertschöpfungskette. Blau: Forschungseinrichtungen, Hellblau: geförderte Partner, Grün: assoziierte Partner, Orange: Beirat

Das Forschungsprojekt ReProvAP strebte eine signifikante Reduktion der klimarelevanten Prozessemissionen der chemischen Industrie durch die verbesserte Auslegung von strukturierten Packungskolonnen an. Dies wurde durch Bündelung der Forschungsaktivitäten von Industrie und Universitäten auf verschiedenen Ebenen erreicht. Durch die Einbindung von Forschungseinrichtungen, Packungsherstellern, Ingenieurdienstleistern, Anlagenbauern und Betreibern der chemischen Industrie sollten alle relevanten Fragestellungen adressiert, die Erkenntnisse der einzelnen Partner ausgetauscht und gemeinsam ein tiefgründiges Verständnis der Stoffaustauschvorgänge in Packungen erzeugt werden. Als Ergebnis wurden neue Auslegungsmethodiken erarbeitet.

Zur Berechnung der notwendigen Packungshöhe von Stoffaustauschkolonnen wurde basierend auf

- der Auswertung vorhandener Betriebsdaten und experimenteller Untersuchungen,
- neu entwickelter Messzelle(n) und
- neu entwickelter Modellierungsansätze

neue, innovative Vorgehensweisen erarbeitet. Die neu zu entwickelten Methoden sollten im Idealfall experimentelle Untersuchungen mit dem jeweiligen spezifischen Stoffsystem ersetzen und direkt eine Übertragung von bekannten und gut charakterisierten Stoffsystemen auf neue, reale und stark nicht-ideale Stoffsysteme ermöglichen.

Die mit allen Teilzielen auch einzeln zu erreichende Verbesserung der Auslegungssicherheit erlaubt den Einsatz von Packungskolonnen in hochgradig integrierten Gesamtprozessen in industriellen Anwendungen. Dadurch werden Energieeffizienzmaßnahmen wie

Brüdenkompression, Wärmeintegration und Verringerung von Verdichterleistung erst ermöglicht, die bei einer Auslegung gemäß Stand der Technik zu unsicher wären und aufgrund des damit verbundenen Risikos nicht realisiert würden. Diese Maßnahmen können das Treibhauspotenzial chemischer Produktionsprozesse signifikant verringern.

Durch das Verbundprojekt ReProvAP wurde allgemein ein besseres Verständnis zum Stoffübergang in strukturierten Packungen erhalten. Durch das Mitwirken zahlreicher Projektpartner aus unterschiedlichen Bereichen entlang der Wertschöpfungskette der Prozessindustrie, mit viel Know-how, ist eine ganzheitliche Betrachtung der zu bearbeitenden Themen möglich gewesen. Das so generierte Wissen floss sowohl in die Industrie als auch in die Lehre bei der Ausbildung zukünftiger Ingenieure ein. Dadurch kann mittel- bis langfristig ein merklicher Einfluss auf den Einsatz und die Rolle von strukturierten Packungen in Deutschland genommen werden.

Die Struktur des Projektes mit den jeweiligen Projektbereichen (PB) ist in Abb. 0.2 dargestellt.



Abb. 0.2: Projektstruktur

An PB 1, dem Workshop zur Festlegung von Geometrien und Stoffsystemen und PB 5 beteiligten sich alle Partner. Die weitere Arbeitsteilung ist folgend dargestellt:

Die Technische Universität München beschäftigte sich neben der administrativen Koordination des Verbundprojekts und dem Kontakt mit Projektträger insbesondere mit CFD-Simulationen zur Erforschung der Fluidodynamik und des Stofftransports in strukturierten Packungen (PB 3). Die ENVIMAC Engineering GmbH übernahm die fachliche Koordination der PB 1, PB 2 und PB 5 und führte insbesondere experimentelle Versuche durch. Die Ruhr-Universität Bochum entwickelte eine Messzelle zur Bestimmung der Fluidodynamik und des Stofftransports von strukturierten Packungen bei der Rektifikation (PB 4). Die RVT Process Equipment GmbH brachte sich insbesondere durch Erarbeitung der Anforderungen des Versuchsprogramms und Bereitstellung von Packungslagen und Packungen für das Projekt (PB 2) sowie durch Mitarbeit und Unterstützung beim Design der Messzellen (PB 4) ein. Die Technische Universität Berlin beschäftigte sich mit dem Design, Aufbau und der Inbetriebnahme einer Messzelle zur Charakterisierung struktureller Packungen mit anschließendem Benchmark-Test (PB 4). Die Technische Universität Braunschweig führte experimentelle und theoretische Untersuchungen an Packungskolonnen mit DN50 und DN150 durch (PB 2) und untersuchte die ökologische Bewertung des Nutzens einer verbesserten Auslegung von Packungskolonnen (PB 6). Die

Universität Paderborn beschäftigte sich mit Modellierung und Simulation des Rektifikationsprozesses mit dem Ansatz der Hydrodynamischen Analogien und der Bestimmung von HETP-Werten aus Simulationsergebnissen (PB 3).

Unterstützt wurden die geförderten Partner durch die assoziierten Partner. Hier unterstützte die BASF SE insbesondere bei Entwicklung und des Baus der Messzellen (PB 4) und führte Miniplant-Experimente (DN50) durch (PB 2) und stellte Daten bereit. Die Evonik Operations GmbH beteiligte sich ebenfalls durch experimentelle Untersuchungen an Packungskolonnen (PB 2) und leistete Mitarbeit bei der Entwicklung der Auslegungsmethodik und Unterstützung der integrierten Lebenszyklusanalyse (PB 5). Die INEOS Phenol GmbH brachte sich durch Hilfestellung bei der Evaluierung von Ergebnissen sowie bei der Entwicklung der neuen Auslegungsmethodik ein (PB 5). Die Linde GmbH befasste sich mit der Weiterentwicklung der CFD-Simulationen zu Fluidodynamik und Stoffübergang in Packungskolonnen (PB 3). Die Sulzer Chemtech AG stellte Packungen für die experimentellen Untersuchungen zur Verfügung und führte ebenfalls eigene experimentelle Untersuchungen in einer Packungskolonne durch (PB 2).

Begleitet wurde das Forschungsprojekt durch einen Projektbeirat bestehend aus Bayer AG, Covestro AG, Julius Montz GmbH, Lanxess Deutschland GmbH, RASCHIG GmbH, YNCORIS GmbH & Co. KG. Dieser nahm ebenfalls an den Projekttreffen teil und gab wertvolles Feedback und Anregungen für die Projektarbeit.

Im Folgenden sind die Arbeiten der geförderten Partner dargestellt.

## Teilprojekt 1 (TUM): Gesamtkoordination (administrativ) und Simulationen

### Projektbereich 1: Datenanalyse

In Projektbereich 1 wurde eine Bestandsaufnahme des Stands der Technik hinsichtlich der Auslegung von Rektifikationskolonnen mit strukturierten Packungen angestrebt. Des Weiteren wurde eine Datenbasis aus bestehenden Trennleistungsmessdaten erstellt und um die experimentellen Ergebnisse aus den Projektbereichen 2 und 4 erweitert.

#### AP 1.1, Sammlung und Bereitstellung von experimentellen Daten und Betriebsdaten

Es wurden bilaterale Gespräche mit ausgewählten Partnern, die im Tagesgeschäft Rektifikationskolonnen auslegen, bezüglich deren Auslegungsprozess abgehalten. Dieser hat sich seit der Veröffentlichung von Eiden, et al. [1] in den letzten drei Jahrzehnten nicht signifikant verändert und folgt dem Schema in Abb. 1. Bisherige Auslegungsmethoden in der Industrie basieren auf Angaben von Packungsherstellern, Erfahrungswerten und experimentellen Untersuchungen in Labor- sowie Pilotanlagen.

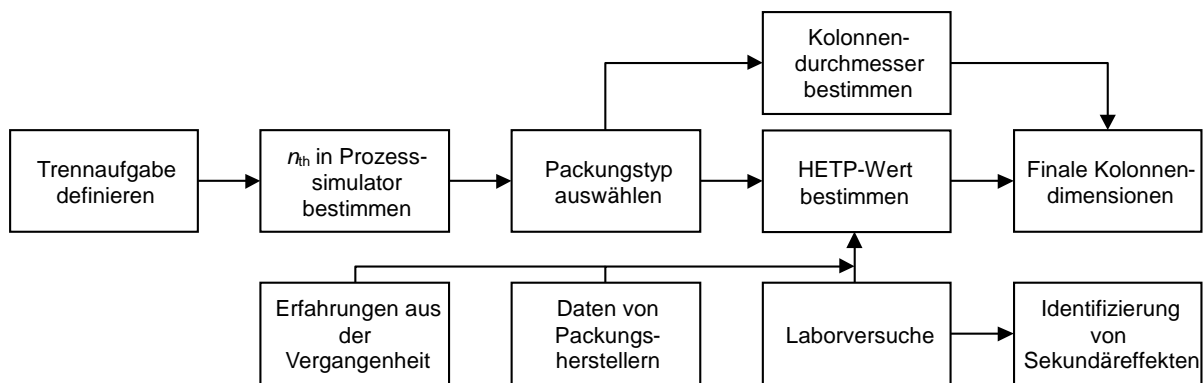


Abb. 1: Auslegung von Packungskolonnen nach Eiden et al. [1].

Das Kernproblem bei der Auslegung von Rektifikationskolonnen ist die Vorhersagbarkeit der Stofftrennleistung bei der Verwendung weitsiedender, hochviskoser oder wässriger Gemische. Dadurch werden oft hohe Sicherheitsaufschläge verwendet, die zu Überdimensionierungen von Packungskolonnen führen. Nicht zuletzt wurde auf Basis dieser Gespräche im Rahmen des Projekts entschieden, eine HETP-basierte Auslegungsmethodik anzustreben, um eine reibungslose Implementierung in bestehende Workflows der Industrie zu gewährleisten.

Eine Cloud-basierte Plattform mittels des Sync&Share-Systems des Münchner Leibniz-Rechenzentrums wurde für einen effizienten Datenaustausch unter den Projektpartnern eingerichtet. Diese hat das Projekt über seine gesamte Laufzeit begleitet und wird den Partnern auch über das Projektende hinaus zur Verfügung stehen. Auch im Nachgang sollen dort noch neue Veröffentlichungen, wie bspw. die zu erwartenden Dissertationen, hochgeladen und so allen Beteiligten zugänglich gemacht werden. Dies sichert zudem die Weiterverwertung der Ergebnisse in der Forschung und Industrie.

Auf Anfrage haben sich alle am Projekt beteiligten Packungshersteller dazu bereit erklärt, Trennleistungsmessdaten für nicht im Projekt vermessene Packungen zur Entwicklung der neuen Auslegungsmethodik zur Verfügung zu stellen. Dadurch entstand eine breite Datenbasis aus Trennleistungsmessdaten für unterschiedlichste Packungstypen und mehrere Referenzstoffgemische, welche im Projektverlauf um die Messdaten für andere Gemische der Projektbereiche 2 und 4 erweitert wurde. Zusätzlich konnte das „Fractionation Research Inc.“ (FRI), ein industriefinanziertes Forschungsinstitut für Trennleistungsmessungen aus den USA, als externer Unterstützer gewonnen werden. Daraufhin wurden durch das FRI Trennleistungsmessdaten für die Packung vom Typ Sulzer Mellapak™ 250.Y für diverse Stoffsysteme und Betriebsdrücke bereitgestellt, welche die Bestandsdaten des Projekts

sinnvoll ergänzen.

#### *AP 1.2, Sichtung, Zusammenstellung, Aufbereitung, Strukturierung und Analyse der Daten*

Die BASF hat allen Projektpartnern ein Excel-Tool zur Verfügung gestellt, welches intern bei der BASF zur Auswertung von Experimenten auf Basis des HETP-Konzepts genutzt wird. Dieses Excel-Tool wird nach Modifikationen und Ausbesserungen als Basis für die Auswertung der Projektergebnisse genutzt. Die einheitliche Ergebniserfassung und -aufbereitung soll später eine leichtere Stapelverarbeitung der Daten bei der Entwicklung einer neuen Auslegungsmethodik erleichtern.

Die TU Berlin hat das BASF-Excel-Tool zu einem Python-Tool weiterentwickelt, um eine skriptbasierte, automatisierte Auswertung zu ermöglichen. Das Python-Tool der TU Berlin wurde zur zentralen Auswertung aller Messergebnisse verwendet, um die Vergleichbarkeit der Ergebnisse zu maximieren und sicherzustellen. Auf der Projektcloud sind alle Messergebnisse des Projekts nach deren Auswertung durch das Python-Tool der TU Berlin hinterlegt. Eine große Excel-Datei, die alle ausgewerteten Ergebnisse und Rohdaten sammelt, ermöglicht es, Messreihen verschiedener Partner direkt miteinander zu vergleichen.

#### *AP 1.3, Festlegung der zu untersuchenden Test-Stoffsysteme und Geometrien*

Zu untersuchende Stoffsysteme und Geometrien wurden in den Gesamtprojekttreffen diskutiert und festgelegt. Das organische Stoffsystem Cyclohexan/*n*-Heptan wurde als Referenzstoffsystem gewählt. Hochviskosen Systemen wurden durch die Beteiligten eine niedrigere Priorität zugesprochen als weitsiedenden und wässrigen Systemen. Deshalb wurden letztere im Projektverlauf priorisiert und gründlicher hinsichtlich auftretender Effekte untersucht. Als wässrig-weitsiedendes Gemisch wurde Ethanol/Wasser festgelegt. Als weitsiedend-organisches System kam Ethanol/1-Butanol zum Einsatz. Daneben wurde eine einheitliche Gesamtpackungshöhe in den Labor- und Technikumskolonnen von 0.6 m festgelegt, sofern möglich.

Daneben erfolgten weitere Standardisierungsmaßnahmen im Zusammenhang mit den experimentellen Aufbauten. Die im Projekt gewonnenen Erkenntnisse werden in einer zukünftigen Publikation einer breiteren Öffentlichkeit zugänglich gemacht, um einen Transfer dieses gewonnenen Wissens in die Industrie und zukünftige Forschung zu erleichtern.

#### *AP 1.4, Ergänzung der Datenbasis*

Die Messkampagnen der Partner mit experimentellen Aufgaben wurden erfolgreich durchgeführt. Die Daten wurden zentral durch die TU Berlin ausgewertet und durch die TU München in einer großen Datei auf der Projektcloud zur Verfügung gestellt. Diese breite Datenbasis fungierte erfolgreich als Grundlage für die Entwicklung einer neuen Auslegungsmethodik auf Basis eines KI-Hybridmodells (s. PB 5).

### **Projektbereich 3: Modellierung und Simulation**

#### *AP 3.1, Datenbeschaffung*

Die in PB 1 beschafften Daten wurden ebenfalls zur Validierung der Simulationen genutzt. Auch empirische Modelle zur Vorhersage von Trennleistungen wurden zum Vergleich genutzt, s. AP 3.4. Die für die Simulation benötigten Stoffdaten wurden, soweit es geht, aus Parametern errechnet, die von der BASF zur Verfügung gestellt wurden. Da diese auch als Grundlage für die Auswertung der Experimente dienen, ist eine besonders gute Vergleichbarkeit zwischen Simulationen und Experimenten in ReProvAP gewährleistet worden. Fehlende Stoffdaten wurden mit geeigneten Modellen aus der Literatur berechnet. Es entstand ein automatisiertes Berechnungstool zur Berechnung von Stoffdaten, dass auch in

PB 5 bei der Entwicklung des KI-Hybridmodells genutzt wurde.

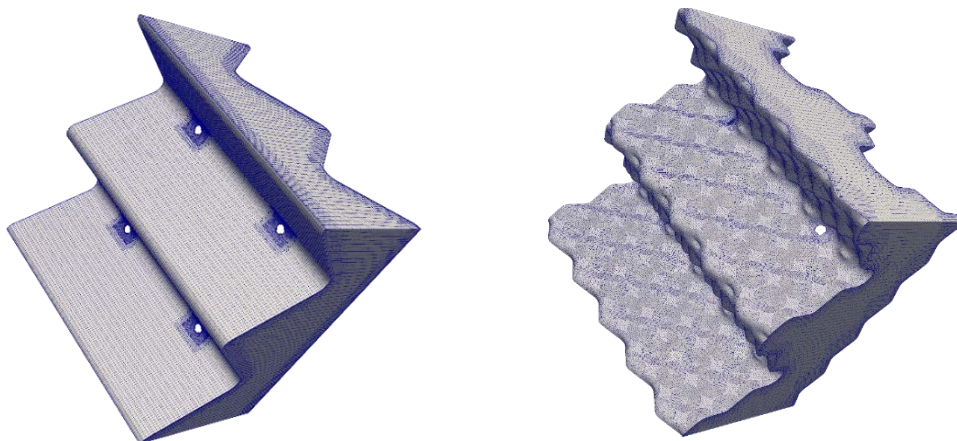
### *AP 3.2, Anpassung des CFD-Solvers*

Zu Beginn des Projektes liefen die CFD-Simulationen auf OpenFOAM 4. Im weiteren Verlauf des Projektes wurde der zugrunde liegende Solver erst auf OpenFOAM 6 und später auf OpenFOAM 8 umgezogen. Der Versionsumzug ermöglichte eine parallele Nutzung mehrerer Hochleistungsrechner des Leibniz-Rechenzentrums (LRZ). Dadurch konnten Wartezeiten verringert und Rechenzeitkontingente effizienter eingesetzt werden.

Des Weiteren wurden Verbesserungen bei der Steuerung der Fluidynamiksimulationen sowie dem PostProcessing durch eine Anpassung der Simulationsinfrastruktur erreicht.

Zu Beginn des Projekts wurde als Einstieg eine bereits validierte glatte Packung der Firma Linde für den Einsatz in Luftzerlegern simuliert. [2-4]

Im Projektverlauf wurde die Simulation sukzessive angepasst, sodass nun die im Projekt vermessene Packung, inklusive deren Mikrostruktur, mit dem Referenzsystem aus ReProvAP simuliert werden kann. Aufgrund der deutlich veränderten geometrischen Eigenschaften und einer dadurch notwendigen Erhöhung der Auflösung des Rechengebiets (Mesh), sowie eines größeren periodischen Elements aufgrund der geringeren spezifischen, geometrischen Oberfläche, erforderte dies weitreichende Anpassungen des Rechengitters und der Simulationsinfrastruktur. Ein Vergleich der Rechengebiete für die im Projekt vermessene Packung ohne sowie mit Mikrostruktur ist in Abb. 2 gezeigt. [5-7]



*Abb. 2: Vergleich der Rechengebiete der im Projekt vermessenen Packung. Links ohne Mikrostruktur, rechts mit Mikrostruktur.*

Die Anpassung des Rechengitters erforderte zudem eine neue Validierung der Simulation, inklusive einer Meshunabhängigkeitsstudie. Ein Ergebnis dieser Studie ist in Abb. 3 gezeigt. Abb. 3 zeigt den Verlauf der spezifischen Phasengrenzfläche mit zunehmender Auflösung des Rechengebiets. Es ist zu erkennen, dass eine Meshunabhängigkeit für die glatte Packung bereits bei circa drei Millionen Zellen gegeben ist, wohingegen das Rechengebiet mit

Mikrostruktur ungefähr sechs Millionen Zellen erfordert.

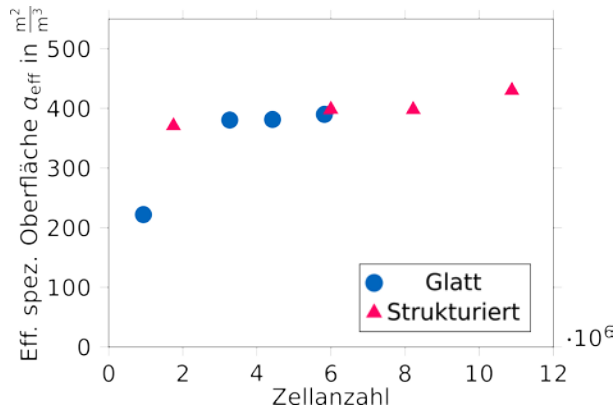


Abb. 3: Bestimmung der Meshunabhängigkeit anhand der sich ergebenden Phasengrenzfläche.

Außerdem wurden Kontaktwinkelmessungen durchgeführt und Kontaktwinkelmodelle in die Simulation implementiert und deren Effekte auf eine impulsgetriebene Strömung untersucht. Eine weitere Entwicklung ist die Einführung eines variablen Trennfaktors an der Phasengrenzfläche sowie die Möglichkeit die Gleichgewichtstemperatur zu bestimmen, ohne eine Energiebilanz zu lösen.

#### AP 3.4, Validierung der CFD-Simulationen und der HA-Modelle

Die Plausibilität der neu erzeugten Simulationsdaten wurde mit alten Ergebnissen geprüft sowie mit Korrelationen aus der Literatur verglichen. Jedoch ist die effektive Phasengrenzfläche kein experimentell zugänglicher Parameter und die in der Literatur publizierten Modelle dazu liefern teils stark unterschiedliche Ergebnisse. Dennoch erscheinen die Simulationsergebnisse realistisch und stimmen mit Erfahrungswerten der Industriepartner überein. Eine detailliertere Betrachtung der Ergebnisse findet sich im Abschnitt zu AP 3.5. Auch Trennleistungsergebnisse für Stickstoff/Sauerstoff in der alten Geometrie sowie für Cyclohexan/*n*-Heptan in der neuen Geometrie lieferten Werte, die mit Industrieerfahrungen bzw. Messwerten gut übereinstimmen.

#### AP 3.5, Sensitivitätsanalyse

Als Teil einer Sensitivitätsanalyse und für die Entwicklung einer Skalierungsgleichung als Grundlage einer verbesserten Auslegungsmethodik ([2-4], s. PB 5) wurde von der Besonderheit von Simulationen Gebrauch gemacht, Stoffparameter individuell variieren zu können. In der realen Welt der Experimente ist das in dieser Form nicht umsetzbar. Die Ergebnisse einer Parameterstudie zum Einfluss der Diffusionskoeffizienten auf die simulierte Trennleistung sind in Abb. 4 dargestellt.

In Abb. 4 ist der mit der CFD-Simulation vorhergesagte HETP-Wert über dem variierten Diffusionskoeffizient in der Gasphase (links) und in der Flüssigkeitsphase (rechts) dargestellt. Zum Vergleich wurden mit aus der Literatur bekannten Modellen von Bravo, Rocha und Fair (BRF, [8]), Billet und Schultes (BS, [9,10]) sowie Hanley und Chen (HC, [11,12]) berechnete HETP-Werte hinzugezogen. Die Diffusionskoeffizienten wurden dabei von ihrem jeweiligen Ausgangswert für das reale Stoffsystem um den Faktor 5 und 10 verringert und vergrößert. Die Ergebnisse der CFD-Simulationen zeigen eine gute qualitative Übereinstimmung mit den Daten der Literaturmodelle. Hinsichtlich der quantitativen Übereinstimmung liegen die Ergebnisse der CFD ebenfalls in einem plausiblen Bereich. In beiden Fällen zeigt sich, dass sich ein höherer Diffusionskoeffizient positiv auf die Trennleistung auswirkt. In der Gasphase ist dieser Effekt deutlich ausgeprägter. Dies ist zu erwarten, da der primäre Stofftransportwiderstand in der Rektifikation von der Gasphase ausgeht. Aus der doppelt-logarithmischen Darstellung lassen sich mit einem linearen Fit Exponenten für die Skalierungsgleichung (s. PB 5) ableiten.

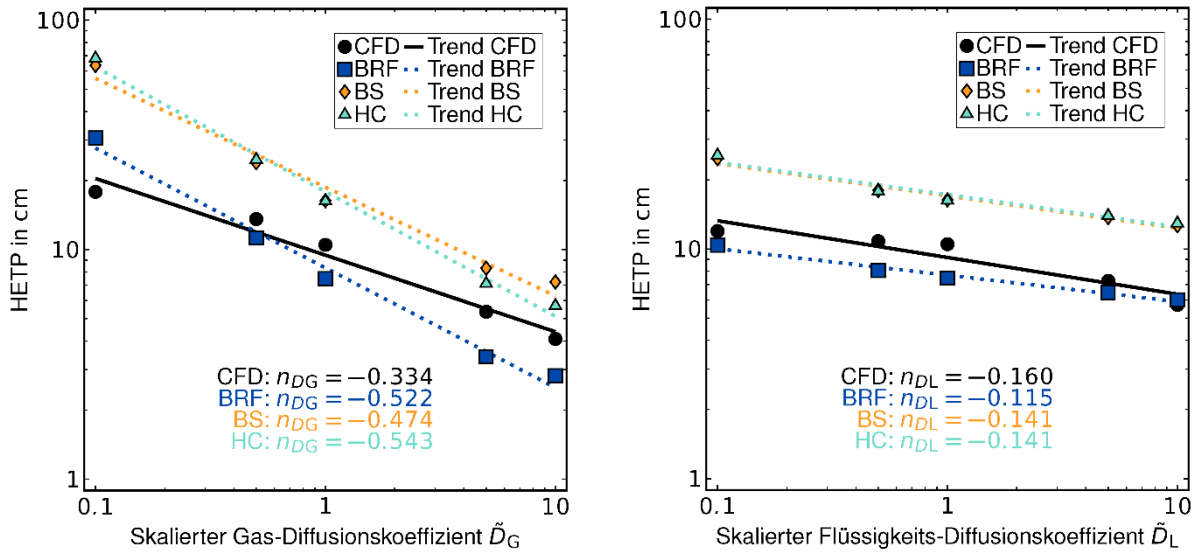


Abb. 4: Ergebnisse der Parameterstudie zum Einfluss der Diffusionskoeffizienten auf die Trennleistungsvorhersage.

### AP 3.6, Auswertung der Simulationsergebnisse

Anhand der Visualisierungen der Flüssigkeitsverteilung, Geschwindigkeitsfelder und Molanteilen konnten qualitative Rückschlüsse auf Trennleistungseinflüsse gezogen werden. Die simulierten HETP-Werte stimmen, wie oben bereits gezeigt, gut mit Modellen aus der Literatur und Erfahrungswerten der Industriepartner überein.

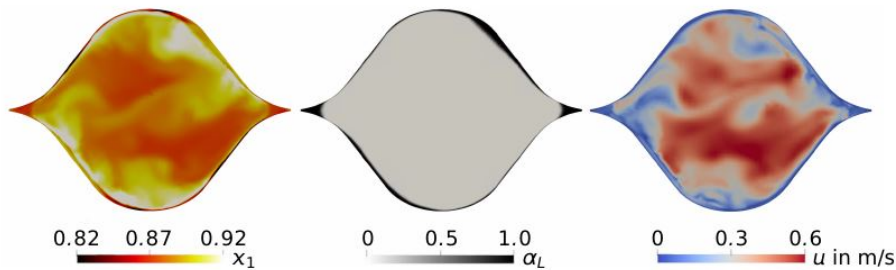


Abb. 5: Molanteile, Flüssigkeitsverteilung und Geschwindigkeitsfeld (links nach rechts) in einem Packungskanalquerschnitt.

Durch eine Betrachtung der Stromlinien wurden Strömungsverhältnisse in den sich kreuzenden Kanälen erkennbar.

Quantitative Auswertungen umfassten die Betrachtung der mittleren Gasbelastungen, Flüssigkeitsbelastungen, Trennleistungen, spezifische effektive Phasengrenzflächen und Stofftransportkoeffizienten.

### AP 3.7, Ergebnisverwertung für die verbesserte Auslegungsmethodik

Die Variation einzelner Stoffparameter lieferte Exponenten für die Skalierungsgleichung als Teil von PB 5. Details zu den Ergebnissen sind oben zu finden.

Durch die Weiterentwicklung des Simulationsaufbaus wurde ein wichtiger Schritt in Richtung prädiktive Simulation von Trennleistungen ohne Experimente getätigt. Ergebnisse befinden sich bereits im richtigen Wertebereich inmitten der experimentellen Werte für ausgewählte binäre Stoffsysteme.

## Projektbereich 5: Entwicklung einer neuen Methodik zur Auslegung

### AP 5.1, Identifikation der Abhängigkeiten von Betriebsparametern und HETP-Wert

Die Abhängigkeit des HETP-Werts von Betriebs- und Stoffparametern wurde eingehend untersucht. Bzgl. der Variation von Stoffdaten lieferten vor Allem die simulativen Ansätze Auskunft, da nur dort individuelle Parameter variiert werden konnten. Die Ergebnisse der CFD-Simulation werden im Abschnitt zu AP 3.5 näher diskutiert. Daraus leiteten sich Exponenten für eine neue Skalierungsgleichung in Potenzform ab und bietet eine mögliche Richtung für den Einsatz von Simulationsergebnissen zur indirekten Anwendung in einer Auslegungsmethodik. [2-4]

Im Rahmen eines KI-basierten Ansatzes wurden besonders relevante Einflussgrößen auf die HETP-Vorhersage des neuronalen Netzes untersucht. [13-15]

### AP 5.2, Entwicklung neuer und/oder Erweiterung bestehender Berechnungsansätze

Als Teil von ReProvAP wurde die Struktur einer neuartigen Skalierungsgleichung mit einem Potenzansatz entwickelt. Die untenstehende Gleichung erlaubt die systematische Übertragung von Trennleistungsmessungen mit einem Referenzsystem (RS) auf ein Testsystem (TS), häufig im industriellen Maßstab. [2-4]

$$\text{HETP}_{\text{TS}} = \text{HETP}_{\text{RS}} \cdot \tilde{\sigma}^{n_{\sigma}} \cdot \tilde{D}_{\text{L}}^{n_{\text{DL}}} \cdot \tilde{D}_{\text{G}}^{n_{\text{DG}}} \cdot \tilde{\varrho}_{\text{L}}^{n_{\varrho\text{L}}} \cdot \tilde{\varrho}_{\text{G}}^{n_{\varrho\text{G}}} \cdot \tilde{\eta}_{\text{L}}^{n_{\eta\text{L}}} \cdot \tilde{\eta}_{\text{G}}^{n_{\eta\text{G}}} \cdot \tilde{\alpha}^{n_{\alpha}} \cdot R_{\text{L,TS}}^{n_{\text{RL}}} \cdot \tilde{d}^{n_d} \cdot \tilde{a}_{\text{geo}}^{n_{\text{ageo}}}$$

Die mit einer Tilde indizierten Skalierungsfaktoren stellen das Verhältnis des jeweiligen Werts für Test- und Referenzsystem dar. Zur Bestimmung der zugehörigen Exponenten bedarf es einer Variation dieser Parameter mit einem prädiktiven Modell. Dazu können die Ergebnisse der CFD wie in AP 3.5 demonstriert herangezogen werden. [2-4]

Des Weiteren wurde ein Modell zur Vorhersage von HETP-Werten auf Basis eines neuronalen Netzwerks entwickelt. Um eine bessere Extrapolationsfähigkeit auf neue Stoffsysteme zu gewährleisten, wurde ein hybrider Modellierungsansatz gewählt, der die Vorteile eines empirisch-mechanistischen Modells mit denen eines neuronalen Netzwerks kombiniert. Als Grundlage dient ein an der Universität Delft entwickeltes Stofftransportmodell [16-21]. Für die Vorhersage von Trennleistungen nicht-idealer Stoffsysteme weisen Stofftransportmodelle Schwächen bei der Vorhersagegenauigkeit auf. Das neuronale Netzwerk wird dazu genutzt, einen empirischen Modellparameter vorherzusagen. Die gute Generalisierungsfähigkeit des Stofftransportmodells bleibt dadurch erhalten und gleichzeitig wird eine Verbesserung der Vorhersagegenauigkeit erzielt. [15]

Alternativ ist es mit den in PB 3 weiterentwickelten CFD-Simulationen möglich, ohne die Zuhilfenahme empirischer Zusammenhänge zuverlässige Vorhersagen für HETP-Werte zu treffen.

### AP 5.4, Validierung

Das KI-basierte Hybridmodell zeigt das gewünschte Verhalten und verbessert die Vorhersagegenauigkeit des Stofftransportmodells. Der für das Modell in PB 1 zusammengestellte Datensatz enthält Daten für diverse Strukturpackungen und sechs verschiedene Stoffsysteme: *iso*-*n*-Butan (*i/n*-C4), Cyclohexan/*n*-Heptan (C6/C7), *ortho*-/*para*-Xylol (*o/p*-Xylene), Chlorbenzol/Ethylbenzol (CB/EB), Ethanol/Butanol (EtOH/BuOH) sowie Ethanol/Wasser (EtOH/H<sub>2</sub>O). Elementar für ein gutes Ergebnis war die Verarbeitung der Daten, bevor diese zum Modelltraining genutzt wurden. Anhand diverser Kriterien wurden unplausible Datenpunkte, Datenpunkte außerhalb des üblichen Betriebsbereichs von Kolonnen, etc. herausgefiltert. Übrig blieben circa 1300 Datenpunkte, die ein breites Spektrum von Stoffsystemen, Packungen und Kolonnenbetriebspunkten abbilden. [13-15]

Für das Training des Modells wurden immer Datenpunkte zweier Stoffsysteme für die

anschließende Modellevaluation zurückgehalten. Das Modelltraining selbst hat also nur anhand der Datenpunkte für vier von sechs Stoffsystemen stattgefunden. In Abb. 6 ist ein Pareto-Plot zur Evaluierung des Modells gezeigt, bei dem das Modell mit *i/n*-C4, C6/C7, *o/p*-Xylene, sowie EtOH/H<sub>2</sub>O trainiert wurde. Das Modell wurde dann anhand von Daten für CB/EB und EtOH/BuOH validiert. [15]

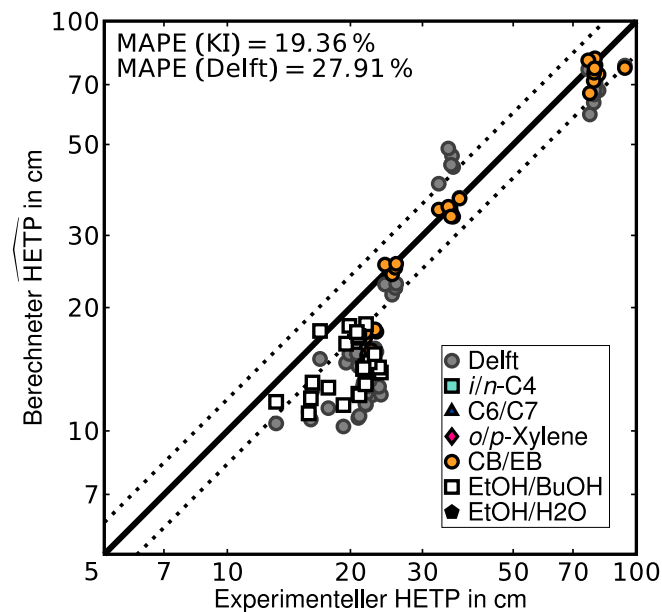


Abb. 6: Pareto-Plot zur Evaluierung des KI-Hybridmodells.

Aus Abb. 6 geht hervor, dass das KI-Hybridmodell eine signifikante Verbesserung der Genauigkeit im Vergleich zum reinen Stofftransportmodell bewirkt. Der mittlere relative Fehler (MAPE) Vergleich zum reinen Stofftransportmodell reduziert sich um gut ein Drittel auf unter 20 %. CB/EB ist, wie C6/C7 und *o/p*-Xylene, ein engsiedendes, ideal-organisches Stoffsystem. Daraus lässt sich folgern, dass das Modell in der Lage ist, sehr gut auf weitere Stoffsysteme zu extrapolieren, sofern ein vom Gemischverhalten vergleichbares Stoffsystem bereits im Trainingsdatensatz vorhanden ist. Im Falle von EtOH/BuOH existiert mit EtOH/H<sub>2</sub>O ein nur bedingt vergleichbares Stoffsystem im Trainingsdatensatz. Während EtOH/BuOH ein nicht-ideales, weitsiedend-organisches Stoffsystem ist, so weicht EtOH/H<sub>2</sub>O von dieser Beschreibung ab. Wasser beeinflusst das Benetzungsverhalten der Packung aufgrund seiner hohen Oberflächenspannung signifikant, wodurch sich eine von EtOH/BuOH abweichende Trennleistung ergibt. Dies wurde auch im Projekt experimentell bestätigt. Dennoch profitiert das KI-Hybridmodell von dieser bedingten Übertragbarkeit und ermöglicht eine Verbesserung der Vorhersagegenauigkeit. Für zukünftige Arbeiten wäre es wünschenswert, ein weiteres wässriges Stoffsystem (bspw. Wasser/Monoethylenglykol) zu vermessen. Dann könnte der Übertrag von einem wässrigen Stoffsystem auf das andere näher untersucht werden. Eine detaillierte Beschreibung und Untersuchung dieses und weiterer Ansätze wird im Rahmen einer Dissertation an der TU München erfolgen.

Aus Abb. 7 geht hervor, dass die HETP-Werte der CFD-Simulation in der richtigen Größenordnung liegen. Die Werte sind vergleichbar zu experimentellen Ergebnissen über den gesamten Bereich der Gasbelastung, jedoch ist der qualitative Verlauf noch nicht zu erkennen. Grund dafür ist, dass die simulierte Packung eine glatte Oberfläche hat und somit nicht komplett mit der vermessenen Packung gleichzusetzen ist. Es ist trotzdem zu erkennen, dass die prädiktive Vorhersage, und somit auch Auslegung von Packungskolonnen, mithilfe von CFD-Simulationen in naher Zukunft ein gangbarer Weg werden könnte.

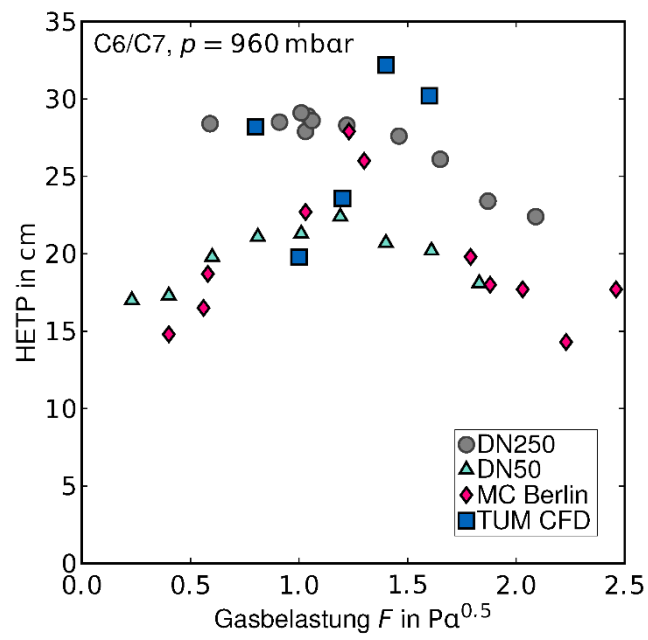


Abb. 7: Vergleich der CFD-Ergebnisse mit experimentellen Messungen der Projektpartner.

## Teilprojekt 2 (ENVIMAC): Gesamtkoordination (fachlich), Untersuchungen an Kolonnen und Messzellen und LCA

### Projektbereich 1: Datenanalyse

#### AP 1.3, Festlegung der zu untersuchenden Test-Stoffsysteme und Geometrien

Zu Beginn des Projektes wurden zunächst die möglichen Stoffsysteme analysiert und diskutiert. Für die ausgewählten Stoffsysteme wurden neben den Stoffeigenschaften noch Analysemethoden sowie arbeitssicherheitsspezifische Fragestellungen betrachtet.

### Projektbereich 2: Experimentelle Untersuchungen zur Trennleistung

#### AP 2.1, Festlegung der experimentellen Methodik

Für die Auswertung der Trennleistungsmessungen wurde vereinbart, ein BASF-Auswertetool zu verwenden. Hierdurch sollten Unterschiede in den Messergebnissen durch unterschiedliche Berechnungsverfahren vermieden werden. Diese traten bereits nach Präsentation der ersten Messungen mit dem System C6/C7 auf und konnten nach Diskussion eingeordnet und vermieden werden.

Die Analytik und die Gleichgewichte der Stoffsysteme Ethanol/1-Butanol, Ethanol/Wasser und Wasser/Monoethylenglykol wurden unter den Projektpartnern verglichen.

#### AP 2.2 Trennleistungsmessungen im Labor- und Technikumsmaßstab

Hieraus resultierte der Arbeitsplan gemäß Abb. 8 für ENVIMAC im PB2.

Gruppe A	Mellapak™ ähnliche 500.Y	
Gruppe B	RMP ähnliche 500.Y	ENVIMAC (DN50)
<b>ideal - organisch</b>	<b>C6/C7</b>	<b>X</b>
<b>Bethöhe [m]</b>		<b>0,46</b>
<b>Druck: 950 mbar</b>		✓
<b>Druck: 300 mbar</b>		✓
<b>Bethöhe [m]</b>		<b>1,5</b>
<b>Druck: 950 mbar</b>		✓
<b>Druck: 300 mbar</b>		✓
<b>weitsiedend - wässrig</b>	<b>EtOH / Wasser</b>	<b>X</b>
<b>Bethöhe [m]</b>		<b>0,46</b>
<b>Druck: 950 mbar</b>		✓
<b>Druck: 300 mbar</b>		✓
<b>weitsiedend - wässrig</b>	<b>Wasser / MEG</b>	<b>X</b>
<b>Bethöhe [m]</b>		<b>0,46</b>
<b>Druck: 950 mbar</b>		
<b>Druck: 300 mbar</b>		
<b>weitsiedend - organisch</b>	<b>Ethanol / 1-Butanol</b>	<b>X</b>
<b>Bethöhe [m]</b>		<b>0,46</b>
<b>Druck: 950 mbar</b>		✓
<b>Druck: 300 mbar</b>		✓

Abb. 8: Arbeitsplan für die experimentellen Arbeiten bei ENVIMAC in PB2.

Beim Gesamtprojekttreffen in Braunschweig 2022 wurde die Laborpackung DN50 durch die Lieferanten vorgestellt. Hierbei wurde darauf hingewiesen, dass, je nach Orientierung in der Kolonne, freie Kanäle entstehen können, die einen negativen Einfluss auf Hydraulik und

Trennleistung, insbesondere in kleinen Kolonnen, haben können. Daher wurden zunächst Druckverlustmessungen sowie Trennleistungsmessungen durchgeführt, die zeigten, dass die Unterschiede zwischen der 45° und 90° Packungsdrehung im Rahmen der Messgenauigkeit liegen.

Bei den weiteren Versuchen mit dem System C6/C7 wurden Trennwirkungen mit unterschiedlichen Packungshöhen vermessen, um den Einfluss der Packungshöhe auf die Trennleistung zu bestimmen. Die Ergebnisse wurden auf dem Gesamtprojekttreffen in Paderborn 2022 vorgestellt und sind in Abb. 9 dargestellt.

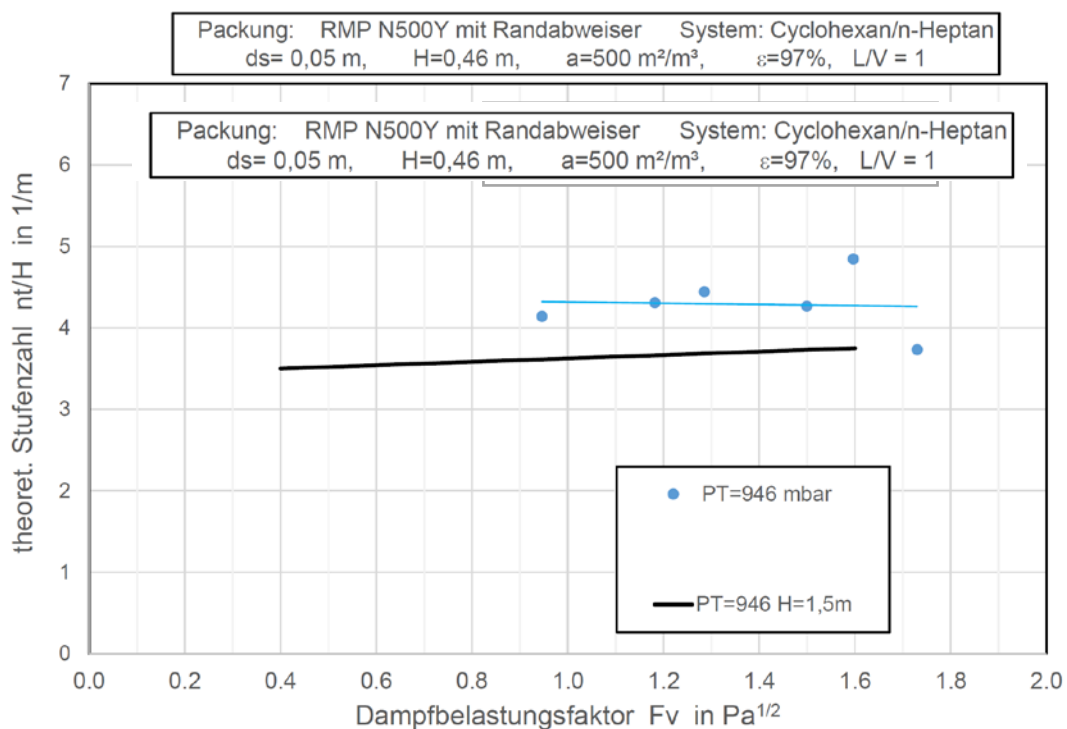


Abb. 9: Die Trennleistung der Packung RMP N500Y als Funktion des Dampfbelastungsfaktor mit dem System C6/C7 für unterschiedliche Packungshöhen  $H=0,46$  und  $1,5$  m.

Die Trennleistung bei größerer Packungshöhe ist etwas geringer, weil sich offenbar mit zunehmender Packungshöhe eine ungünstigere Phasenverteilung einstellt.

Bei den ersten Messungen mit dem System C6/C7 zeigte sich ebenfalls, dass erst eine Rohrbegleitheizung zur Reduktion der Wärmeverluste an der Kolonnenwand zu reproduzierbaren Ergebnissen führt.

Ein Vergleich der Trennleistung bei unterschiedlichem Betriebsdruck (300 und 950 mbara) ergab Vorteile bezüglich des höheren Druckes, weil dort die spezifische Flüssigkeitsbelastung bei vergleichbarer Gasbelastung höher ist.

Ähnliche Abhängigkeiten konnten auch mit dem System Ethanol/1-Butanol festgestellt werden. Allerdings zeigten die Trennleistung dort bei einem Druck von 300 mbara eine stärkere Abhängigkeit von der Gasbelastung, s. Abb. 10.

Die Ergebnisse der Messungen mit dem System Ethanol/Wasser zeigen eine deutlich stärkere Abhängigkeit der Trennleistung von der Dampfbelastung. Die HETP-Werte variieren hierbei im Bereich zwischen 0,1 und 0,3 m, was offensichtlich durch die starke Veränderung der Stoffwerte von Flüssigkeit und Dampf zwischen dem Kopf und dem Sumpf der Kolonne zu begründen ist.

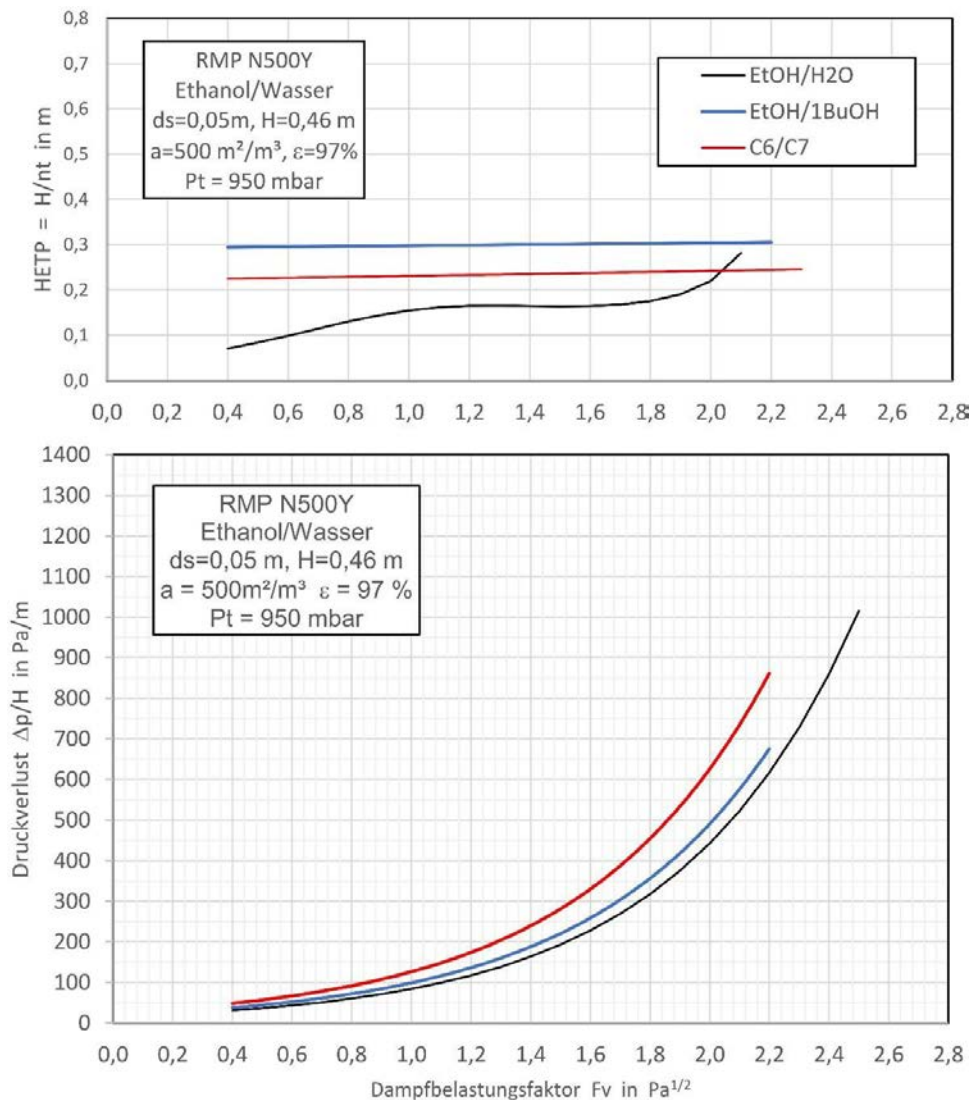


Abb. 10: Die Trennleistung und der Druckverlust der RMP N500Y als Funktion des Dampfbelastungsfaktors für unterschiedlichen Testsysteme bei einem Druck von 950 mbar.

Ein Vergleich der Ergebnisse mit unterschiedlichem Druck zeigt, wie zuvor beim System C6/C7, Vorteile bei höherem Druck.

Ein Vergleich der Trennleistung mit drei unterschiedlichen Stoffsystemen bei gleicher Packungshöhe und gleichem Druck zeigt deutliche kleinere HETP-Werte mit dem System Ethanol/Wasser. Die Trennleistung der beiden anderen rein organischen Systeme ist im Vergleich niedriger.

Deutlicher wird die Abhängigkeit der Trennleistung vom Dampfbelastungsfaktor des Systems Ethanol/Wasser bei einem größeren Vakuum von 300 mbara in Abb. 11. Bei geringerem Betriebsdruck wird die relative Flüchtigkeit des Systems Ethanol/Wasser größer in der Form, dass selbst bei einer kleinen Packungshöhe im unteren Teil der Kolonne überwiegend Wasser und kaum noch Ethanol vorhanden ist. Entsprechend der Konzentrationen ändern sich die Stoffwerte über die Kolonnenhöhe.

Die Druckverluste stimmen, abgesehen von Messungenauigkeiten, weitgehend überein. Insbesondere für Stoffsysteme mit starker Änderung der Gleichgewichtslage über die Konzentration (wässrige Systeme) eignet sich ein Auswertungsverfahren nach dem HTU-NTU-Konzept, wobei der Konzentrationsbereich in Teilintervalle unterteilt wird. Dies ist exemplarisch für die Auswertung eines Messpunktes mit dem System C6/C7 in Abb. 12 dargestellt.

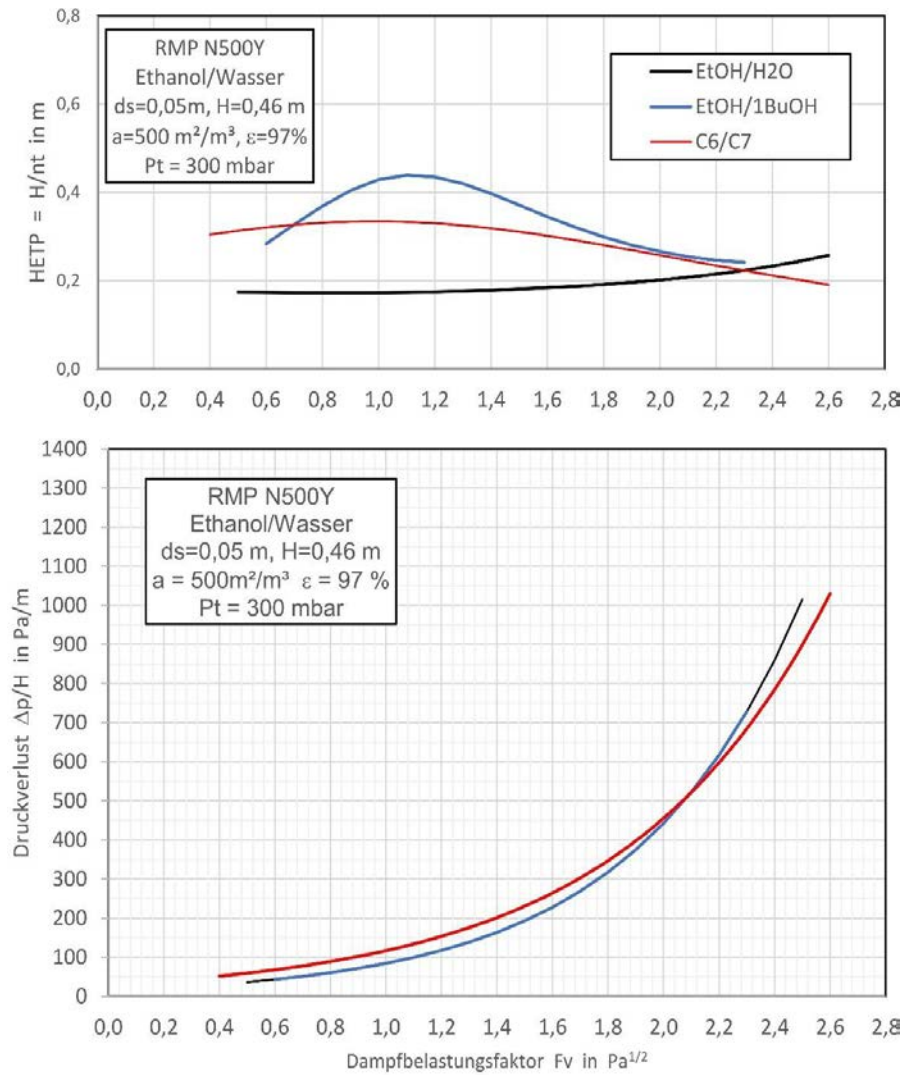
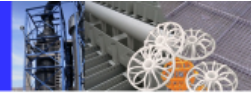


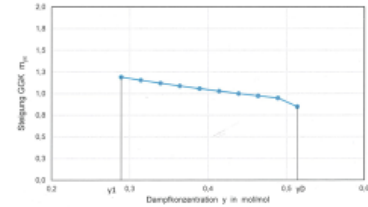
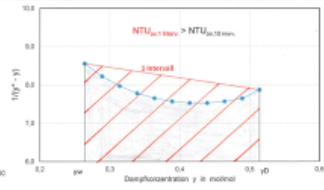
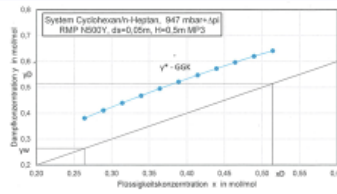
Abb. 11: Die Trennleistung und der Druckverlust der RMP N500Y als Funktion des Dampfbelastungsfaktors für unterschiedlichen Testsysteme bei einem Druck von 300 mbar.

### AP 2.6 Stoffsystemübertragung

Die Umbaumaßnahmen an der DN50 Versuchsanlage, insbesondere beim Übergang zu den wässrigen Systemen mit größerer erforderlicher Kühlleistung, hatten zu einer Verzögerung geführt, sodass die Messungen mit dem System Wasser/Monoethylenglykol im Projektzeit nicht mehr realisiert werden konnten.



- Auswertung der Versuchsreihen mit HTU-NTU-Konzept
- Vergleich mit Trennleistung von BASF-Auswerte-Tool
- $y_1^*$  berechnet mit NRTL-Parameter (BASF)
- Betriebslinie totaler Rücklauf:  $L/V=1$
- Bestimmung F-Faktor:
  - $u_G$  ermittelt aus:
    - Volumenstrom des Kondensats
    - Energiebilanz des Kondensators



$$\left(\frac{n_t}{H}\right)_{BASF} = f(F_V)$$

$$\left(\frac{n_t}{H}\right)_{Envimac} = \frac{1}{HTU_{OV}} \frac{\lambda - 1}{\ln(\lambda)}; \lambda = \frac{m}{L/V}$$

Abb. 12: Auswertung mit dem HTU-NTU-Konzept.

## **Teilprojekt 7 (RUB): Entwicklung von Messzellen**

### **Projektbereich 1: Datenanalyse**

#### *AP 1.3, Festlegung der zu untersuchenden Test-Stoffsysteme und Geometrien*

Die Stoffsysteme wurden in aufeinanderfolgenden Projekttreffen von den experimentell arbeitenden Projektpartnern diskutiert. Die Ruhr-Universität Bochum hat innerhalb der Entscheidungsphase die möglichen Gemische u. a. hinsichtlich des sicherheitstechnischen und binären Verhaltens geprüft. Als sinnvolles Benchmark-Stoffsystem ergab sich das Gemisch Cyclohexan/*n*-Heptan (C6/C7) [22]. Des Weiteren wurden in bilateralen Gesprächen die nicht-idealen Stoffsysteme wie folgt festgelegt:

- Weitsiedend-wässrig: Ethanol/Wasser
- Weitsiedend-organisch: Ethanol/1-Butanol

Für das Benchmark-Stoffsystem wurden weiterhin Betriebsdrücke von 300 mbara und 960 mbara sowie F-Faktoren von 0,5 bis 1,5 Pa<sup>0.5</sup> festgelegt.

Hinsichtlich des Designs der Messzelle galt es, die Dimension und weitere wichtige Anforderungen in Zusammenarbeit mit der TU Berlin und allen interessierten Projektpartnern aus der Industrie zu definieren. Zentral war die Bestimmung der Maße des Packungselementes, welche mit 100 x 100 mm und zwei Packungsblechen festgelegt wurde. Die Packung ist ähnlich zur Mellapak<sup>TM</sup> 500.Y der Firma Sulzer Chemtech AG. Weitere Anforderungen, darunter eine Variationsmöglichkeit der Packungshöhe und ein möglicher Druckbereich von 100 mbara bis 4 bara, wurden abgestimmt und werden bei der genauen Umsetzung der Messzellenkonstruktion (s. PB 4) berücksichtigt. Somit wurde Meilenstein 1 erreicht.

#### *AP 1.4, Ergänzung der Datenbasis um neue experimentelle Daten*

Die erzielten Messergebnisse mit der neu entwickelten Messzelle wurden über die projektinterne Cloud geteilt und ergänzten somit im Rahmen des AP 1.4 die Datenbasis um experimentelle Daten.

### **Projektbereich 4: Entwicklung von Messzellen mit niedrigem Hold-Up zur Parameterbestimmung**

Der Fokus am Lehrstuhl für Fluidverfahrenstechnik lag mit der Entwicklung einer innovativen Messzelle auf der Bearbeitung des Projektbereiches 4.

#### *AP 4.1, Design und Konstruktion der Messzellen*

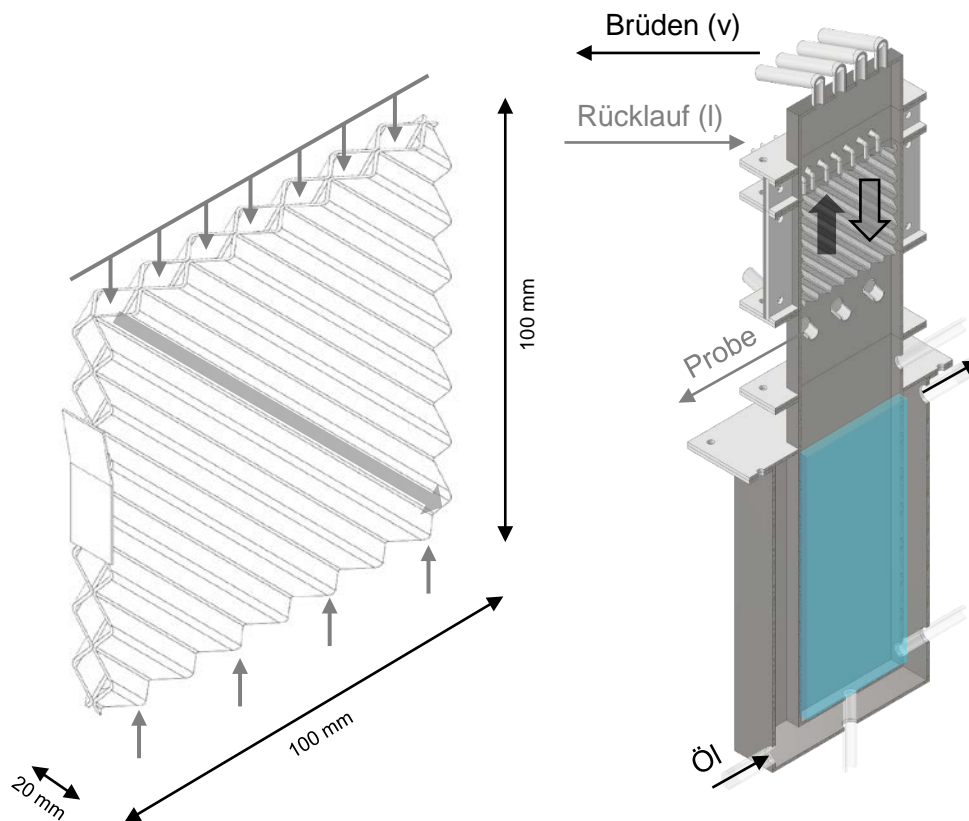


Abb. 13: Funktionsprinzip der Messzelle: links das Packungselement, rechts der Schnitt der gesamten Messzelle.

Arbeitspaket 4.1 umfasse zunächst das Design und die Konstruktion der Messzelle. Auf Basis der in AP 1.3 festgelegten Stoffsysteme und Anforderungen wurde die Messzelle konstruiert. Die Erkenntnisse der bereits bestehenden absorptiven Messzelle [23] an der RUB wurden dabei als Unterstützung herangezogen. Das Ziel ist die Abbildung des Kernbereichs einer Kolonne, welche repräsentativ im kleinen Maßstab mit rechteckigem Querschnitt konstruiert wird. Der Flüssigkeitsverteiler besteht aus einer Tropfstelle je Packungskanal, wodurch eine anpassbare und zunächst maximale Flüssigkeitsverteilung erreicht werden soll. Es werden zwei Packungsbleche mit einem Randspalt von 3 mm und Randabweisern als zentrale Trenneinheit bestimmt. Die Fläche von 100 x 100 mm wird beidseitig zur Messzellenwand hin abgedichtet, um Wandinflüsse zu minimieren. In Abb. 13 wird der trennwirksame Bereich (links) dargestellt. Die Breite von 100 mm ergibt eine äquivalente freie Strömungsfläche zu einer DN30-Kolonne. Durch eine Höhe von 100 mm kann ein vollständig durchlaufender Packungs-kanal dargestellt werden.

Die Funktion der Messzelle wird anhand von Abb. 13 rechts verdeutlicht. Der gesamte Aufbau besteht aus Edelstahl, sodass ein Betrieb bei Unter- und Überdruck für beliebige Stoffsysteme möglich ist. Der Sumpf besteht aus einem doppelwandigen Behälter, in dem ca. 600 ml Gemisch durch ein Thermalöl erhitzt werden. Die abgeleiteten Brüden werden vollständig durch einen Plattenwärmeübertrager kondensiert und in einen Vorlagenbehälter geleitet. Hierbei wird durch eine Füllstandsmessung der vollständige Rücklauf eingestellt. Für die Kopfprobe besteht eine Beprobung des Ausgangsstroms des Behälters. Eine Rücklaufpumpe führt das Gemisch durch ein Doppelrohr, mit dem eine Vorwärmung nahe Kopftemperatur ermöglicht wird, zum Flüssigkeitsverteiler. Aus der Packung tropfende Flüssigphase kann durch eingebaute Lanzen flexibel beprobet werden. Die gesamte Messzelle ist ab dem Sumpf mit Begleitheizungen ausgestattet, um Wärmeverluste zu vermeiden. Neben der fluiddynamischen Betrachtung durch den gemessenen Differenzdruck über die Packung ist die Bestimmung der Trenneffizienz durch die Probenahme am Sumpf und Kopf sowie die Messung von Druck und Temperatur an relevanten Stellen möglich. Besonders

charakteristisch für diese Messzelle ist der kleine Aufbau. Es wird lediglich eine Vorlage von 1,3 Litern benötigt. Eine weitere Besonderheit ist die flexible Konstruktion. Dadurch sind Untersuchungen hinsichtlich lokaler Probenahmen an drei unterschiedlichen Stellen, einer Variation der Packungshöhe und Anzahl an Packungselementen und Manipulationen des Flüssigkeitsverteilers möglich.

#### AP 4.2, Bau/Adaption Messzellen

Ziel des AP 4.2 ist die Fertigung der Messzelle und der Aufbau der Versuchsanordnung. Die Messzelle wurde nach Fertigstellung des detaillierten Designs in die interne Fertigung gegeben. Außerdem wurde ein detailliertes R&I-Fließbild der Messzelle fertiggestellt, auf Grundlage dessen die Bestellung des Equipments und der Messtechnik durchgeführt wurde. Der Aufbau der gesamten Anlage fand in den Laborräumen in einem Stehabzug statt. Nach einer Dichtigkeitsprüfung der Einzelkomponenten und der gesamten Versuchsanlage konnte eine erste Wasserfahrt der Anlage zur Funktionsprüfung durchgeführt werden, wodurch Meilenstein 4 erreicht wurde.

#### AP 4.3, Inbetriebnahme Messzellen/Basischarakterisierung Benchmark

Aufbauend auf der Inbetriebnahme der einzelnen Komponenten wie dem Flüssigkeitsverteiler, folgte in AP 4.3 die Inbetriebnahme der Anlage im Verbund mit dem Benchmark-System C6/C7. Sämtliche Mess- und Regelungsstellen wurden im Betrieb geprüft und eingestellt. Die Durchführung der Versuche wurde fortlaufend optimiert, sodass ein sicherer und stabiler Betrieb der Anlage möglich ist. Daraufhin startete die Basischarakterisierung anhand der Druckverluste und Trennleistung. Der trockene Druckverlust bildet dabei einen typischen linearen Anstieg über die Gasbelastung in doppelt logarithmischer Abbildung (vgl. Abb. 14). Der Gesamtdruckverlust verläuft bis zu einem F-Faktor von ca.  $1,8 \text{ Pa}^{0,5}$  parallel zum trockenen Druckverlust und ist im Vergleich dazu leicht erhöht. Ein Stauen wird bei  $1,8 \text{ Pa}^{0,5}$  erwartet, wobei der Druckverlustanstieg steiler ausfällt als typischerweise beschrieben [24]. Fluten könnte aufgrund einer erhöhten Schwersiederkonzentration im Vorlagebehälter bereits ab  $1,9 \text{ Pa}^{0,5}$  erzielt werden. Der weitere Anstieg des Gesamtdruckverlustes ist ebenfalls entgegen der Erwartung linear. Dieses Verhalten können wir in der absorptiven Messzelle an unserem Lehrstuhl ebenfalls erkennen, sodass das Verhalten auf die kleine Geometrie der Messzelle zurückzuführen ist.

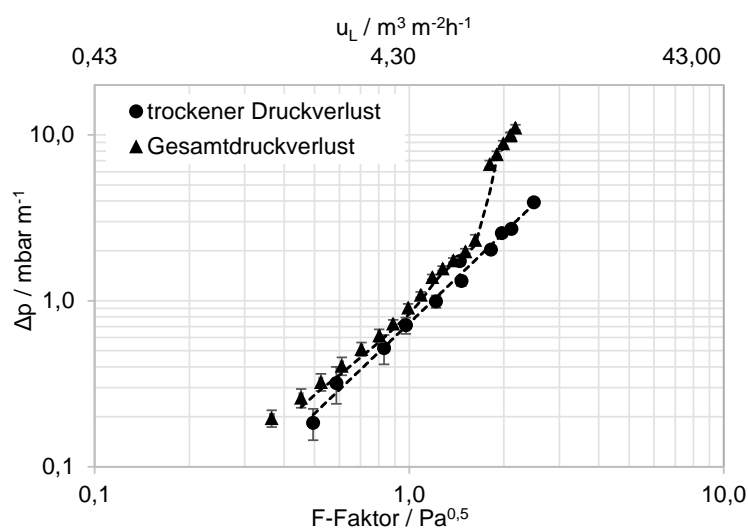


Abb. 14: Trockener Druckverlust und Gesamtdruckverlust in Abhängigkeit der Gasbelastung.

Hinsichtlich einer Einordnung können die Ergebnisse der anderen Projektpartner herangezogen werden (vgl. Abb. 15). Dabei wird auf den Einsatz des gleichen Packungstypens geachtet. Hinsichtlich der absoluten Werte und der Steigung der Trendlinie,

lässt sich festhalten, dass mit der Messzelle gleiche trockene Druckverluste wie in den runden Kolonnen von der BASF SE und der Sulzer Chemtech AG zu messen sind.

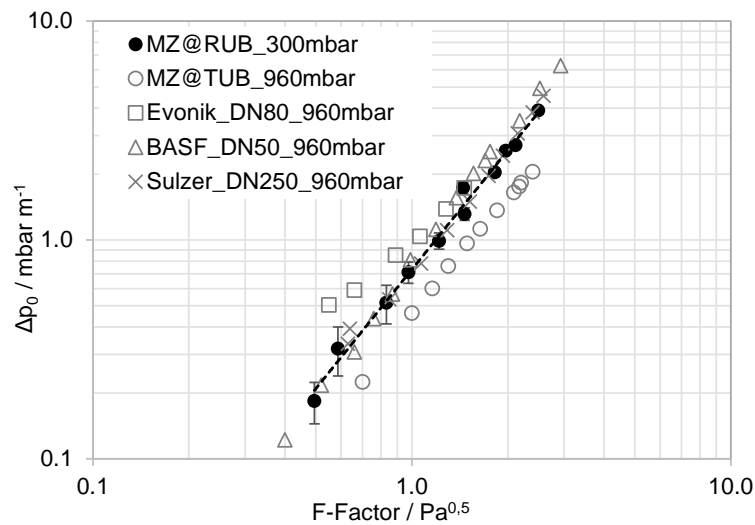


Abb. 15: Trockener Druckverlust im Vergleich zu anderen Versuchsaufbauten aus [25].

Bezüglich der Trennleistung ergaben sich zunächst ca. um die Hälfte reduzierte HETP-Werte im Vergleich zu den Packungsherstellereangaben [26]. Abb. 16 zeigt einen durchschnittlichen HETP-Wert von 0,09 m für die Messzelle und im Gegensatz dazu einen typischen mittleren HETP-Wert von 0,23 m. Dabei ist die Trennleistung unabhängig von der Probenahmestelle und der Gasbelastung.

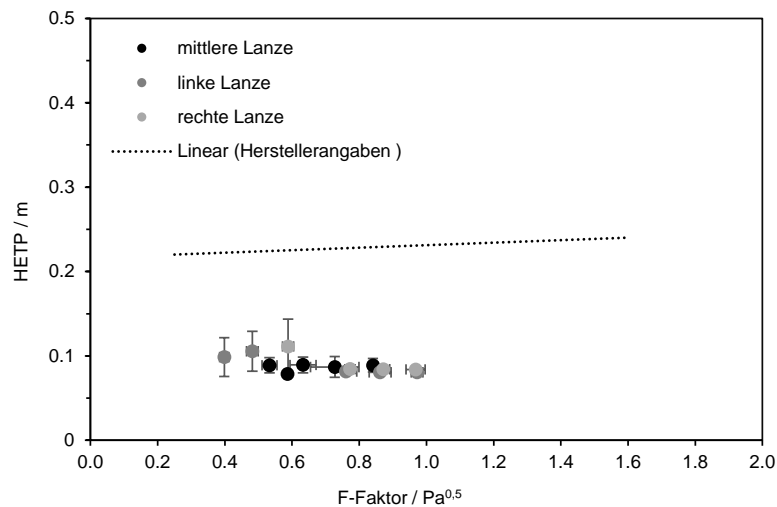


Abb. 16: HETP-Wert erstes Setup in Abhängigkeit der Gasbelastung.

Damit ergab sich die Notwendigkeit, diese Unterschiede weiter zu untersuchen und Erklärungsansätze zu formulieren. Zunächst sollen dafür apparatespezifische Einflüsse untersucht werden. Daher wurden Umbaumaßnahmen durchgeführt, welche die Sumpfprobenahme betreffen. Aus einer lokalen Probenahmestelle wurde eine integrale Entnahme ermöglicht und der Abstand zwischen Sumpf und Lanzen wurde vergrößert (vgl. Abb. 17).

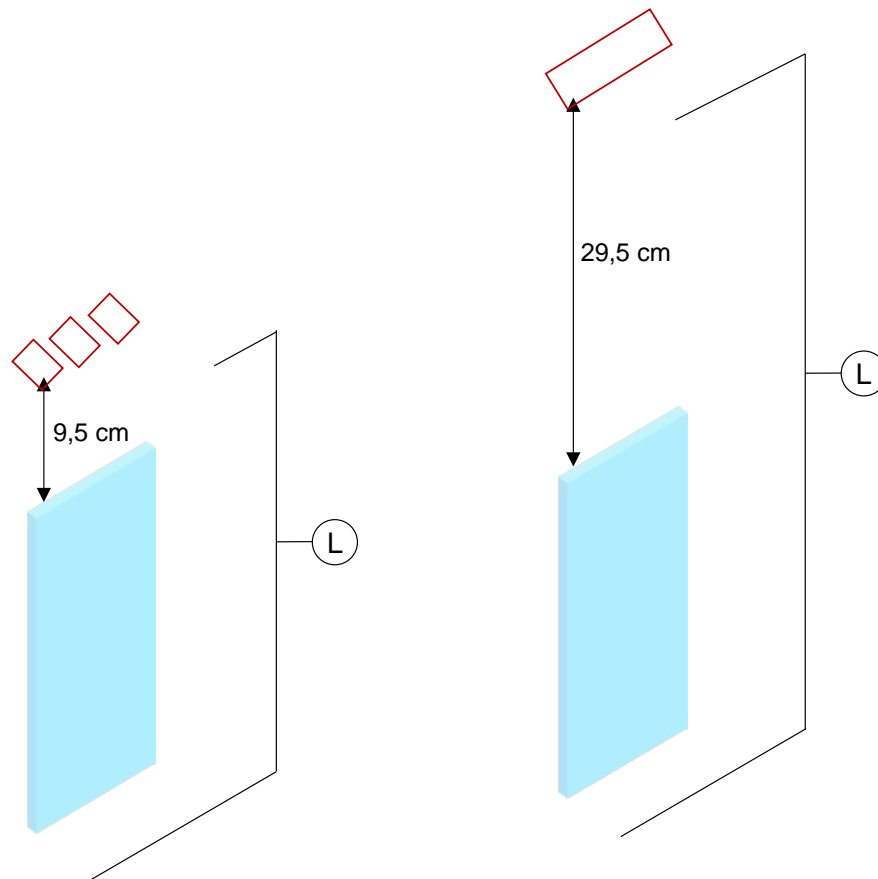


Abb. 17: Erstes Setup (links) und optimiertes Setup (rechts).

Abb. 18 zeigt den Einfluss der Probenahmestelle, der bei dem erweiterten Aufbau deutlich sichtbar ist.

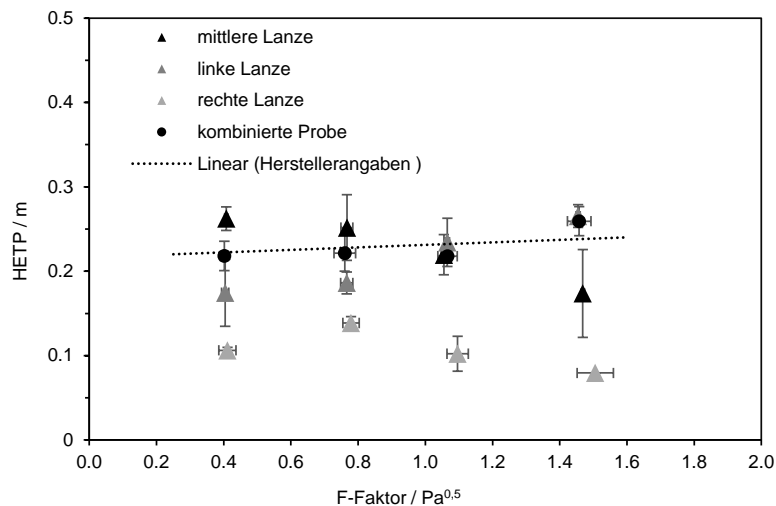


Abb. 18: HETP-Wert optimiertes Setup in Abhängigkeit der Gasbelastung.

Mit einem Mittelwert von ca. 0,11 m ist die Trennleistung in dem rechten Bereich am höchsten. Aufgrund der unterschiedlichen Flüssigkeitsverteilung über den Querschnitt am Packungsaustritt werden die Lanzen mit einer unterschiedlichen Menge an flüssiger Phase gefüllt. Während der Probenahmezeit wurde festgestellt, dass die rechte Lanze den geringsten Flüssigkeitsstrom erhält. Dies könnte auf eine hohe Verweilzeit in der Packung für diese

Volumenelemente hinweisen, was zu einer lokal höheren Trennleistung führt. Vorversuche mit Wasser zeigen lokal unterschiedliches Abtropfverhalten und unterschiedliche Flüssigkeitsmengen unterhalb der Packung. Die von jeder Lanze aufgefangene Flüssigkeitsmenge ist daher nahezu beliebig. Es wird eine weitere Probenahmemethode benötigt, die den gesamten Querschnitt abdeckt, so dass ein Vergleich und eine Einordnung dieser Messzelle im Vergleich zu anderen Versuchsständen möglich sind. Dazu werden im ersten Schritt die drei Lanzen zusammengeführt und eine kombinierte Probe entnommen. Die kombinierte Methode liegt in guter Übereinstimmung mit den Herstellerangaben [26].

Somit kann festgehalten werden, dass ein ausreichender Abstand zwischen siedender Flüssigkeit und Probenahmestelle im miniaturisierten Aufbau mit internem Verdampfer realisiert werden muss. Zudem ist eine integrale Probenahme sinnvoll. Zuletzt soll die Messzelle im Vergleich zu den anderen im Projekt erzielten Ergebnisse gesetzt werden. Es ist zu erkennen, dass die Messzelle mit einem Mittelwert von 0,22 m eine ähnliche Trennleistung aufweist im Vergleich zu den anderen Institutionen. Die geringste Abweichung hat die Messzelle zu der runden DN80-Kolonne von Evonik Operations GmbH, die im Mittel auch einen HETP-Wert von 0,22 m aufweist.

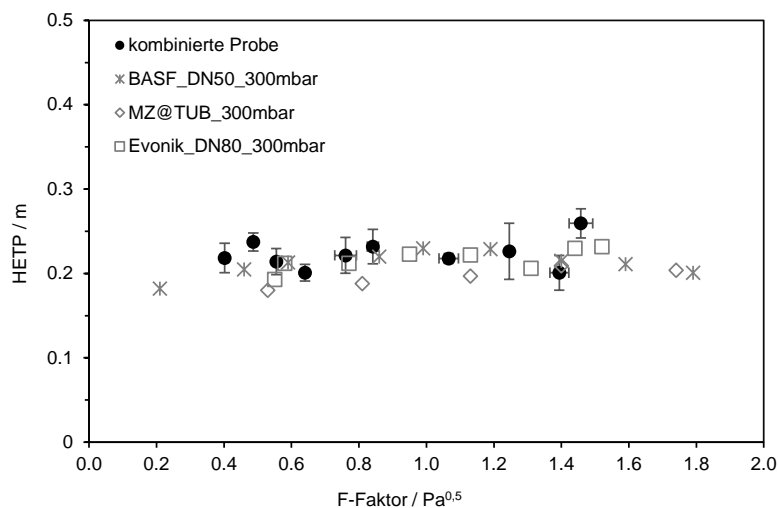


Abb. 19: HETP-Wert der Messzelle im Vergleich.

#### AP 4.4, Redesign Messzellen für andere Stoffgemische

Das AP 4.4 wurde während des Designs der Messzelle bearbeitet und kritische Bauteile für den Einsatz anderer Stoffgemische entsprechend flexibel gestaltet. Die flexible Gestaltung des Sumpfes und des Doppelmantels ermöglicht einen Austausch für höhere Verdampferleistungen. Besonders für das weitsiedende Stoffsystem Ethanol/Wasser erweist sich eine kurze und zugleich variable Packungshöhe als sinnvoll. Somit können verschiedene Konzentrationsbereiche vermessen werden. Diese Eigenschaften weist die Messzelle u. a. auf. Meilenstein 5 konnte somit erfüllt werden.

#### AP 4.5, Charakterisierung Destillation

Aufgrund der neuen Erkenntnisse, die sich aus den ersten Messungen mit Testgemisch an der Messzelle ergaben, wurden innerhalb der Laufzeit des Projektes zunächst Messungen mit dem definierten Testgemisch fokussiert. Somit wurde die Messzelle zunächst vollständig kalibriert und Optimierungsansätze für die Messung von Trennleistungen im miniaturisierten Maßstab erarbeitet. Weiterhin wurden Zusammenhänge und Einflüsse auf die Trennleistung bezüglich der Probenahmestelle untersucht. Eine Vermessung realer Stoffgemische laut AP 4.5 wird zunächst nicht als sinnvoll erachtet, wobei die Möglichkeit durch den Aufbau der Messzelle jederzeit gegeben ist und in der Zukunft ein wichtiger Meilenstein ist.

#### *AP 4.6, Übergabe Design/Messzelle an Industrie*

Erst nach der vollständigen Kalibrierung der Messzelle und der Vermessung realer Stoffsysteme in Anlehnung an industrierelevante Stoffsysteme ist eine Übergabe der Messzelle bzw. des genauen Designs an die Industrie zielführend.

### **Projektbereich 5: Entwicklung einer neuen Methodik zur Auslegung**

#### *AP 5.3, Entwicklung einer messzellenbasierter Auslegungsmethodik*

Bezüglich einer messzellenbasierten Auslegungsmethodik wurden theoretische Strategien entwickelt und vorgestellt. Als Grundlage wurde dazu die konventionelle Herangehensweise nach Eiden et al. [1] herangezogen, die für die Bestimmung der Höhe einer Betriebskolonne sowohl Informationen der Laborkolonne als auch Messungen einer Referenzkolonne beinhaltet. Ein langfristiges Ziel der Messzelle wäre ein Ersatz der Labor- und Referenzkolonnen. Die dafür notwendige Kalibrierung der Messzelle wurde in PB 4 bearbeitet. Die Messung stoffspezifischer und apparatespezifischer Einflüsse sind dahingehend noch zu untersuchen. Daher ist eine finale Auslegungsmethodik an dieser Stelle noch nicht zu definieren und validieren, womit Meilenstein 8 teilweise erreicht ist.

Durch den Austausch der Ergebnisse mit der Universität Paderborn konnte das HA-Modell auf die Messzelle angepasst werden. Durch eine Änderung der benetzten Fläche war eine Berechnung der gemessenen Trennleistungen möglich. Die Kombination der Simulation und der Experimente kann in Zukunft für die Einflussuntersuchung auf die Trennleistung genutzt werden. Diese Ergebnisse fließen direkt in eine messzellenbasierte Auslegung ein. Meilenstein 7 ist somit teilweise erreicht.

## Teilprojekt 8 (RVT): Untersuchungen an Messzellen

### Projektbereich 1: Datenanalyse

#### AP 1.3, Festlegung der zu untersuchenden Test-Stoffsysteme und Geometrien

Bei den im ersten Projektjahr 2021 durchgeführten Workshops (28.05 und 17.06); dem Gesamtprojekttreffen (28 bis 29.09) sowie weiteren Online-Meetings wurde über die vorhandene Datenbasis zu Trennleistungsmessungen von strukturierten Packungen in Bezug auf PB 1 diskutiert. Das ideal-organische, binäre Stoffsystem Cyclohexan/*n*-Heptan (C6/C7) wurde als Referenzstoffsystem zur Validierung der Messungen in den Messzellen und Laborkolonnen identifiziert, da bei diesem System die meisten Messdaten vorliegen (z. B. SRP und FRI). Als viskos-organisches System wurde 2-methyl-2-butanol und 2-methyl-1-propanol (MB/MP) festgelegt. Als wässrig weitsiedend wurden die binären Stoffgemische aus Wasser und (Mono-)Ethylenglykol (H<sub>2</sub>O/MEG) sowie Ethanol und Wasser (EtOH/H<sub>2</sub>O) festgelegt. Anschließend wurde als weitsiedend organisches Gemisch das System Ethanol und 1-Butanol (EtOH/BuOH) definiert.

Weiterhin wurden die experimentellen Randbedingungen für die Messzellen sowie die Anforderungen an die durchzuführenden Untersuchungen an den Labor- und Technikumskolonnen wie Messzellen definiert und festgehalten. Analytik- und Versuchsmethodik sowie Betriebsbedingungen wurden ebenfalls in Abstimmung aller Projektbeteiligten festgelegt.

Als Packungstyp für die Messzellen und Laborkolonnen wurde eine konventionelle strukturierte Packung des Typs 500.Y mit 500 m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup> spezifischer Oberfläche und 45° Neigungswinkel der Kanäle, deessiniert und nicht gelocht festgelegt, um auch bei den sehr kurzen Bettlängen in der Miniatur-Messzelle für alle Systeme ausreichend große Konzentrationsänderungen, unter Berücksichtigung des Gleichgewichtes sowie Grenzen der Analytik, zu erreichen. Für die Messzellen wurde Sulzer als Hersteller der Packung gewählt. Für die Messungen im Labor- (Kol. ID ≤ 100 mm) und Technikumsmaßstab (Kol. ID ≥ 150 mm) bei den verschiedenen experimentell tätigen Partnern wurden zwei sogenannte Experimentatoren-Gruppen A & B mit jeweils dem gleichen Packungslieferant gebildet. Es wurden Sulzer (S500.Y, Gruppe A) und RVT Process Equipment (R500.Y, Gruppe B) für die Fertigung und Lieferung der 500.Y-Packungslagen ausgewählt (s. Abb. 20).

		Messzelle		Labormaßstab			Technikumsmaßstab		
Gruppe A	S500.Y	TU Berlin	RU Bochum		BASF (DN50)		EVONIK (DN80)		SULZER (DN250)
Gruppe B	R500.Y		evtl. RU Bochum	TU BS (DN50)		ENVIMAC (DN50)		TU BS (DN150)	

Abb. 20: Experimentatoren-Gruppen.

Bei den im 3. Projektjahr 2023 stattgefundenen Gesamtprojekttreffen in Berlin (10. bis 11.05.2023) und Bochum (29. bis 30.11.2023) sowie mehreren Online-Meetings hat RVT bei der Bewertung der zahlreichen experimentellen Ergebnisse aus den verschiedenen Experimentatoren-Gruppen, insbesondere denen aus Gruppe B, ausgestattet mit der von RVT Process Equipment hergestellten Packung R500.Y, aktiv mitgewirkt und unterstützt.

#### AP 1.4, Ergänzung der Datenbasis um neue experimentelle Daten

Wie in der Gesamtprojektbeschreibung vorgesehen, wurden die in PB 2, PB 4 und PB 5 neu erzeugten experimentellen Daten verarbeitet und in die Datenbasis aufgenommen. Die gewonnenen Messwerte mit dem Benchmark-System Cyclohexan/*n*-Heptan (C6/C7) wurden mit Daten aus der Literatur sowie mit Ergebnissen der Projektpartner aus PB 2 verglichen. Weiterhin wurden die Randbedingungen für die Messungen der wässrig-weitsiedenden Gemische H<sub>2</sub>O/MEG und EtOH/H<sub>2</sub>O sowie das weitsiedend-organische Gemisch EtOH/BuOH zusammen mit den anderen Projektpartner definiert und festgelegt.

## Projektbereich 4: Entwicklung von Messzellen mit niedrigem Hold-Up zur Parameterbestimmung

### AP 4.1, Design und Konstruktion der Messzellen

Im Rahmen der Bereitstellung der geordneten Packung des Typs 500.Y für die Laborkolonnen von Sulzer und RVT wurde im Q1 2022 über die konkrete geometrische Ausführung der Packung bezüglich des Nenndurchmessers (inkl. Fertigungstoleranz) bzw. Randspaltes zwischen Packung und Kolonneninnenwand sowie Anzahl, Typ und Material des Randabweisers diskutiert und eine einheitliche Festlegung für beide Hersteller getroffen, die signifikante Unterschiede zwischen den Packungen so weit wie möglich minimieren soll. Die Höhe der Packungslage wurde auch auf der Basis der Diskussionen und Erkenntnisse aus Erfahrungen der Partner sowie der Literatur je nach Kolonnendurchmesser unterschiedlich festgelegt. Für die Kolonnen mit  $ID \leq 100$  mm sollten in Bezug auf die Standardhöhe des Packungsbleches einer konventionellen 500.Y Packung von ca. 200 mm (wie in den Miniatur-Messzellen vorgesehen/verbaut) auf ca. 100 mm halbiert werden. Für größere Kolonnen sollte die Packung mit der Standardlagenhöhe von ca. 200 mm gefertigt werden. Wie in den Miniatur-Messzellen, wurde ein Randspalt für alle Labor- und Technikumskolonnen von 3 mm gewählt. Zwei Randabweiser pro Lage mit unterschiedlicher Breite, ca. 30 mm für die halbe Lagen sowie ca. 50 mm für die Standardlagen, wurden festgelegt (s. Abb. 21).

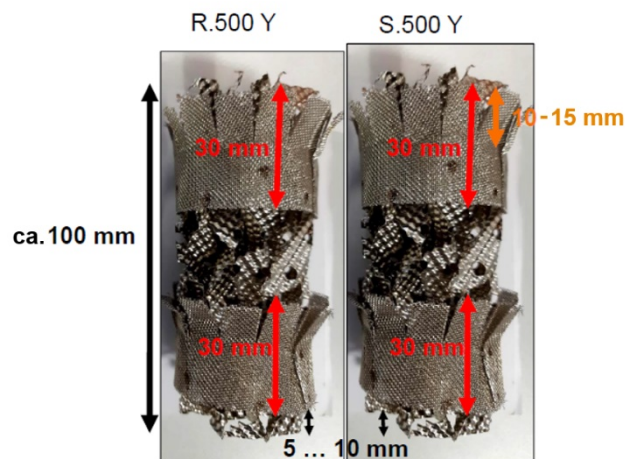


Abb. 21: Festgelegte vereinheitlichte Ausführung halber Packungslagen am Beispiel einer OD 42 mm Lage.

RVT wurde für die Fertigung der Packung für die Experimentatoren Gruppe B, bestehend aus TU BS (Kol. Innendurchmesser 50 und Kol. ID 150 mm) und ENVIMAC (Kol. ID 51 mm), gewählt.

Bei der Vorbereitung der Fertigung der 500.Y Packung bei RVT mit 44 mm Nenndurchmesser für die 50 mm Innendurchmesser Kolonne wurde festgestellt, dass konstruktiv sieben Bleche notwendig sind. Der Abgleich mit der Vorplanung von Sulzer für die S500.Y und den gleichen Kolonnendurchmesser (BASF-Laborkolonne ID 50 mm) zeigte lediglich sechs Bleche. Als Grund für diese Abweichung wurde die minimal unterschiedliche Standardwellenhöhe beider Hersteller (6,0 mm bei RVT und 6,5 mm bei Sulzer) ausgemacht. Um die gleiche Plattenanzahl und Wellenhöhe wie in den Messzellen zu erreichen, wurde deshalb bei RVT die Fertigung angepasst, um die Bleche mit derselben Wellenhöhe von 6,5 mm zu fertigen. Dadurch wurde die exakte Anzahl an Platten mit identischen Längen innerhalb des angestrebten Packungsdurchmessers erreicht (s. Abb. 22).

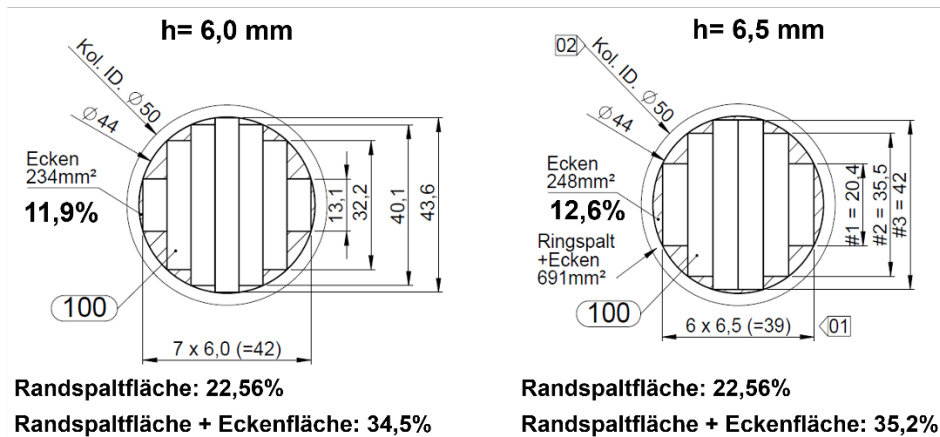


Abb. 22: Draufsicht einer OD 44 mm Packungslage mit 6,0 mm (7 Bleche) und 6,5 mm (6 Bleche) Wellen/3-Eck-Höhe für eine Kol.ID 50 mm (3 mm Randspalt) und daraus abgeleitete Randspaltflächen.

Wie Abb. 22 zeigt, nimmt die sogenannte Randspaltfläche (Fläche zwischen dem idealen Kreis, der die Packungslage bildet und dem Kolonneninnendurchmesser) bei den Laborkolonnen einen signifikanten Anteil der gesamten Querschnittsfläche ein. Zusätzlich geht durch das fertigungsbedingt senkrechte Sägen/Abtrennen der Packungsbleche weitere Kolonnen-Querschnittsfläche „verloren“. Da bei diesen kleinen Dimensionen trotz eines um 90° verdreht angeordneten Einbaus der halben Lagen deutliche Bypass-Kanäle erkannt wurden, wurde eine um 45° gedrehte Einbauanordnung der Lagen festgelegt.

Durch die vereinbarten Maßnahmen sind die gefertigte 500.Y Packungen beider Hersteller, makroskopisch betrachtet, hinsichtlich der Wellen-Geometrie, auch „Primär“-/Makrostruktur genannt, nahezu baugleich. Lediglich bei der sogenannten Sekundär-/Mikrostruktur, also der Oberflächen-Dessinierung/Prägung und der Dichte und Tiefe der in das Blech eingepprägten Vertiefungen, sind kleine Unterschiede zwischen den Packungen beider Hersteller zu erwarten. Dennoch wird deren Einfluss auch aufgrund der Ähnlichkeit deren wichtigster Merkmale, wie ausreichend hohe Dichte der Vertiefungen (St./mm<sup>2</sup>) sowie deren Tiefe im Blech (Pseudodicke  $t \approx$  ca. 1 mm), als für nicht signifikant für die Trennleistungsergebnisse in den Messapparaturen eingestuft. Um dies nachweisen zu können, wurde im Projekttreffen in Braunschweig festgelegt, dass auch Vergleichsmessungen von R500.Y und S500.Y an einem Standort durchgeführt werden sollen.

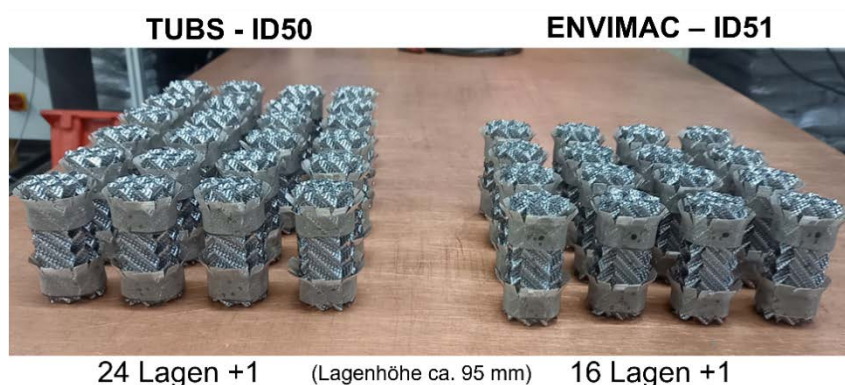


Abb. 23: Gefertigte R500.Y Lagen für die ID 50 und ID 51 mm Laborkolonnen der TU BS und ENVIMAC.

Die Erhöhung der Wellenhöhe bei der R500.Y Packung von RVT von 6,0 auf 6,5 mm führte allerdings wie erwartet zu einer minimalen „Schrumpfung“ des Bleches bzw. der Lagenhöhe auf ca. 190 mm bei den ganzen und ca. 95 mm bei den halben Lagen. Um trotzdem die etwa gleiche gewünschte Gesamtpackungshöhe zu liefern, wurde für jeden Partner eine zusätzliche Lage gefertigt. Insgesamt wurden 25 halbe Lagen für die ID 50 mm Labor- und 15 ganze Lagen für die ID 150 mm Technikums-Kolonnen an die TU BS sowie 17 Lagen für die ID 51 mm

Laborkolonnen der ENVIMAC geliefert (s. Abb. 23 und Abb. 24). Neben der Maßprüfung aller Lagen wurde bei RVT Process Equipment jeweils ein Kolonnen-Dummy gebaut, um den Einbau aller Lagen im Vorab zu überprüfen und eine reibungslose Installation bei den experimentellen Partnern sicherzustellen.

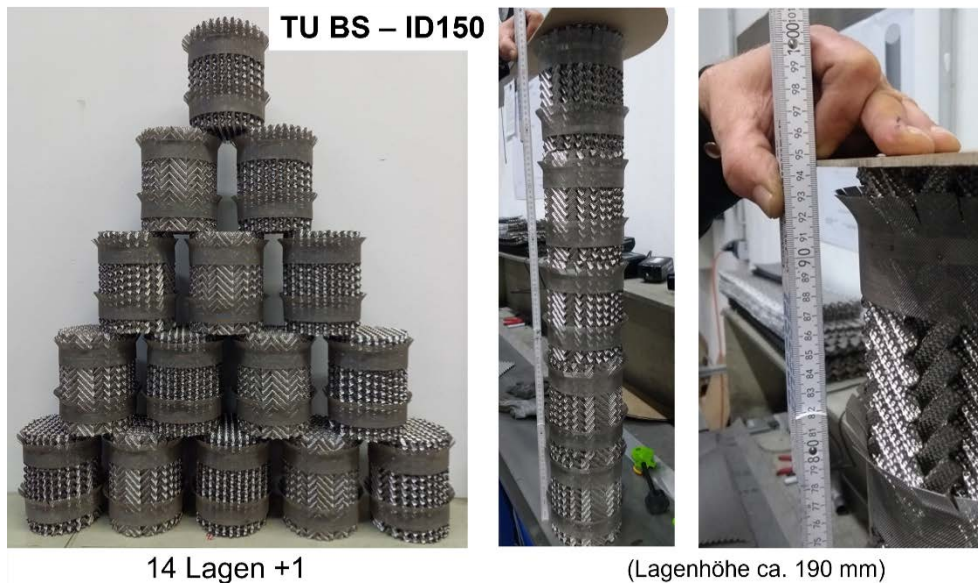


Abb. 24: Gefertigte R500Y Lagen für die ID150 mm Technikumskolonnen der TU BS.

#### AP 4.4, Redesign Messzellen für andere Stoffgemische

Grundvoraussetzung für das Redesign der Messzellen auf andere Stoffgemische ist zunächst die Validierung der Destillationsmessungen mit dem Benchmark-System C6/C7 in den Messzellen der RUB und TUB sowie in den Labormaßstab- und Technikumskolonnen der jeweiligen Projektpartner. Dabei wurden zunächst signifikante Unterschiede in der gemessenen Trennleistung festgestellt: 20 % bis 50 % höhere HETP-Werte der R500.Y Packung in der DN50-Laborkolonnen und DN150-Technikumskolonnen an der TU Braunschweig im Vergleich zu den mit der S500.Y-Packung ausgestatteten Labor- bzw. Technikumsanlagen (Experimentatoren-Gruppe A: BASF und Evonik) insbesondere, aber auch gegenüber der gemessenen Trennleistung der R500.Y in der Laborkolonnen von ENVIMAC. In der Technikumsanlage DN250 der Fa. Sulzer wurde allerdings für die S500.Y auch ein gut übereinstimmendes, ca. 50 % höheres HETP-Niveau gemessen (s. Abb. 25).

Um die Ursachen für diese Abweichung zu identifizieren, wurden an der TU BS umfangreiche Untersuchungen und Analysen durchgeführt. Dabei wurden sowohl Unterschiede in den Anlagen selbst wie z. B. Kolonnenmanteltemperierung, Unterkühlung des Rücklaufs sowie Probenahme-Stellen als auch in der eingebauten Packung wie z. B. die Gewebearbeit und Geometrie der Randabweiser festgestellt.

Es wurde deshalb der Einfluss der Manteltemperatur auf die Fluidodynamik sowie Trennleistung im Labormaßstab (DN50) systematisch untersucht. Dabei wurde herausgefunden, dass bei großen Temperaturdifferenzen zwischen Kolonneninnenraum- und Wandtemperatur die Trennleistung stark verändert wird. Durch Kondensation an der Kolonnenwand verändern sich die kolonneninternen Ströme (L/V), was zu einer Steigerung der Trennleistung aufgrund höherer Benetzung an der Kolonnenwand sowie auch der Packung führt.

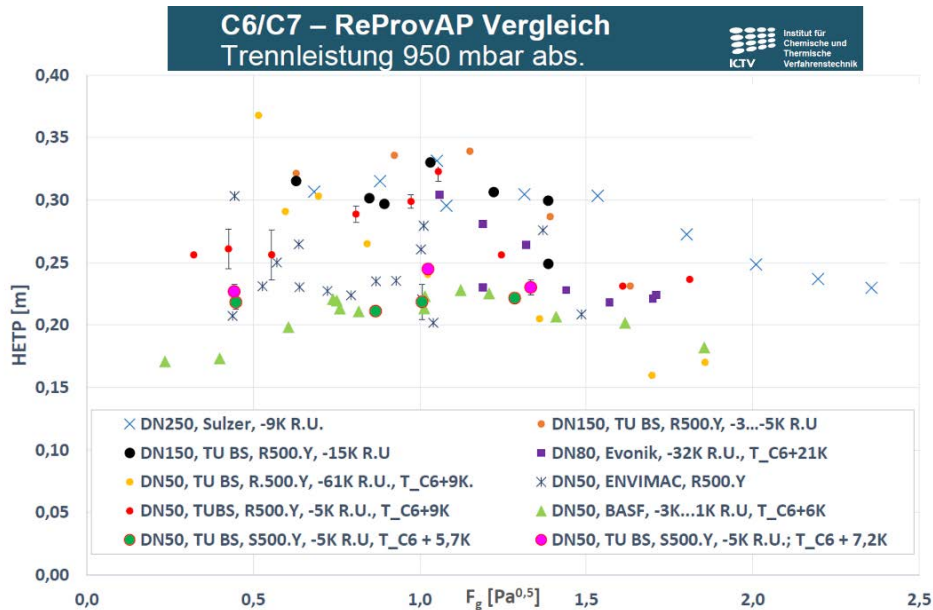


Abb. 25: Vergleich Trennleistungs-Messergebnisse von R500.Y und S500.Y in Labor- und Technikumskolonnen mit dem System C6/C7 bei  $p=950$  mbara.

Die Technikumskolonne DN150 wurde im Austausch mit RVT und den anderen Projektpartnern systematisch optimiert. Zu den entscheidenden Verbesserungsmaßnahmen zählen der Umbau der Kondensatausschleusung, das Rücklaufunterkühlungsniveau, die Probenausschleusung mit Stickstoff sowie den Einsatz eines neuen Flüssigkeitsrücklaufverteiler-Designs mit einer (2x höheren) Tropfstellendichte von  $656 \text{ St/m}^2$ . Da die R500.Y Packung danach immer noch signifikant höhere HETP-Werte aufwies, wurde als nächstes der Fokus auf die Packung gelegt.

Die verbauten Packungen wurden bezüglich der spezifischen Oberfläche verglichen und ins Verhältnis zu der Fläche der Randabweiser und Kolonneninnenwände gesetzt (s. Abb. 26). Die in den kleinen Laborkolonnen DN50 verbauten R500.Y und S500.Y haben, aufgrund der nahezu identischen Makrogeometrie (Wellenabmessungen sowie Anzahl und Länge der einzelnen Bleche) vom Bauteil-Blech her betrachtet, eine identische spezifische Oberfläche (ca.  $323 \text{ m}^2/\text{m}^3$ ). Auch die spezifische Kolonnenwandfläche ist vergleichbar (ca.  $74$  bzw.  $80 \text{ m}^2/\text{m}^3$ ).

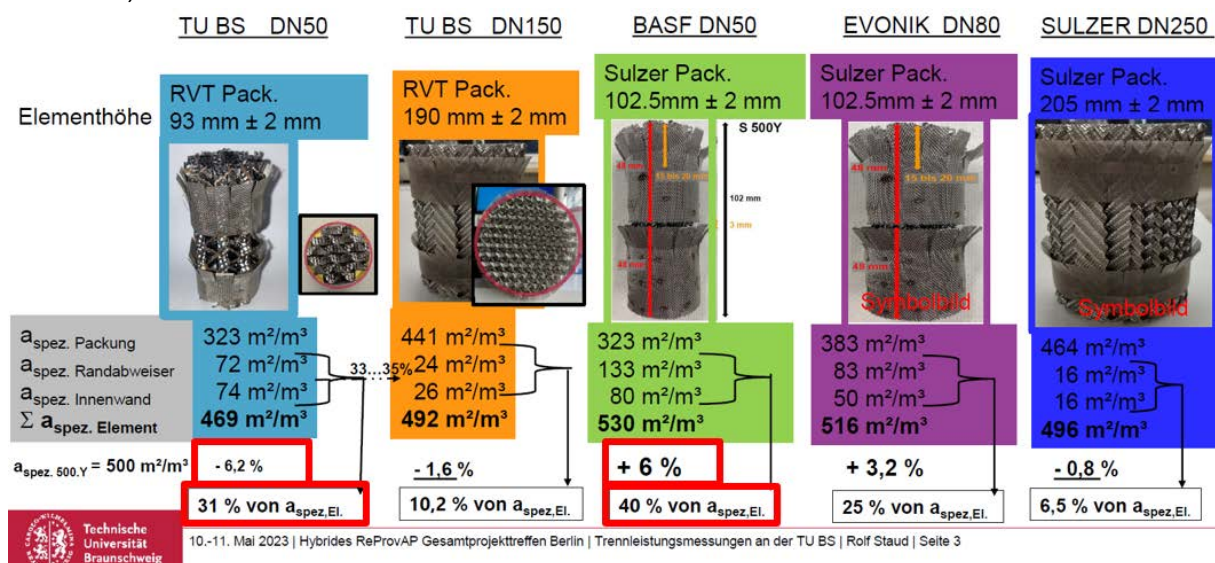


Abb. 26: Übersicht der verbauten R500.Y- und S500.Y-Packungen und deren berechneten spezifischen Oberflächen.

Wesentliche Unterschiede ergeben sich allerdings bei den verbauten Randabweisern. Bei der

S500.Y ummantelt der Randabweiser den vollen Umfang der Packungslage, während bei der R500.Y der Randabweiser weniger als die Hälfte der Packung ummantelt. Daraus abgeleitet ergibt sich bei der S500.Y eine doppelt so hohe spezifische Randabweiser-Oberfläche (ca.  $133 \text{ m}^2/\text{m}^3$ ). Dies führt in der kleinen Laborkolonnen DN50 zu einer insgesamt ca. 15 % höheren spezifischen Oberfläche der S500.Y gegenüber der R500.Y. Zusätzlich ist die Gewebeart unterschiedlich. Das in der S500.Y verbaute Drahtgewebe ist bei nahezu identischem Drahtdurchmesser mehr als doppelt so dicht gewoben wie das der R500.Y. Nach unserer Einschätzung führt dieser Unterschied zusätzlich zu einer deutlichen Verbesserung der effektiven Benetzung des Randabweisers und somit auch zu einer Erhöhung der damit verbundenen Trennleistung, die die nun festgestellten/vorliegenden HETP-Unterschiede gut erklären lassen.

Um diese Frage endgültig zu klären, wurde beim Projekttreffen in Berlin beschlossen, in der Laborkolonnen DN50 der TU BS die S500.Y-Packung einzubauen und mit dem Benchmark-System C6/C7 bei 950 mbara destillativ zu charakterisieren. Die gemessenen HETP-Werte sind allgemein, wie angesichts der oben dargelegten Unterschiede erwartet, in der Anlage etwas niedriger.

Nach den validierten Destillationsmessungen mit dem Benchmark-System C6/C7 in den Messzellen der RUB und TUB sowie den Labor- und Technikumskolonnen der weiteren Projektpartner zur Basischarakterisierung, hat RVT schließlich bei der Bewertung der Ergebnisse und einem Redesign der Messzellen für die im ersten Projektjahr festgelegten, nicht-idealen wässrigen und weitsiedenden Systeme  $\text{H}_2\text{O}/\text{MEG}$  und  $\text{EtOH}/\text{H}_2\text{O}$  sowie das weitsiedend-organische Gemisch  $\text{EtOH}/\text{BuOH}$  unter Berücksichtigung der spezifischen Eigenschaften dieser Systeme sowie der Erfahrungen aus der industriellen Praxis, mitgearbeitet und unterstützt.

#### *AP 4.6, Übergabe Design/Messzelle an Industrie*

Nach erfolgreichem Betrieb der Messzellen an den Standorten RUB und TUB, wurde das gewonnene technische Know-how für die Entwicklung von Messzellen mit RVT sowie allen weiteren industriellen Projektpartner geteilt, sodass die entwickelten und gebauten Messzellen nun auf Leihbasis für die Charakterisierung stark nicht-idealer Stoffsysteme mit industrieller Relevanz zur Verfügung gestellt werden können.

### **Projektbereich 5: Entwicklung einer neuen Methodik zur Auslegung**

#### *AP 5.2, Entwicklung neuer und/oder Erweiterung bestehender Berechnungsansätze*

Von RVT Process Equipment wurden alle vorliegenden Trennleistungsmessdaten mit dem organischen Referenzstoffsystem Cyclohexan/*n*-Heptan zu allen getesteten Metallpackungen in der Pilotanlage ID450 mm des Separations Research Program (SRP, Uni Texas, USA) sowie in der Industriemaßstabskolonnen ID 1220 mm der Fractionation Research Inc. (FRI, Stillwater, OK, USA) an die TU München für die Modellierung der HETP-Werte sowie zur Ausweitung der Datenbasis zur Verfügung gestellt.

Daraus wurde von der TUM ein Datensatz für Trennleistungsmessungen mit den organischen binären Systemen C6/C7, *i/n*-Butan, *o/p*-Xylol und CB/EB sowie das weitsiedende organische Gemisch  $\text{EtOH}/\text{BuOH}$  und das weitsiedende wässrige System  $\text{EtOH}/\text{H}_2\text{O}$  zusammengestellt. Das ursprünglich komplexe, auf künstlichen neuronalen Netzwerken beruhende Modell war Gegenstand intensiver Diskussionen zwischen den industriellen Projektpartnern und den Vertretern der TUM. Im Laufe der Optimierung wurde auf Vorschlag der Industriepartner und RVT das Delft-Modell als Referenz herangezogen, was zum Test der Extrapolationsfähigkeit verwendet wurde. Des Weiteren wurde die Modellreduktion, in welcher mehrere Einflussparameter zum Abbau der Komplexität nicht mehr berücksichtigt wurden, durch RVT und die weiteren Industriepartner kritisch hinterfragt. Auch auf Basis dieser Diskussionen im Projekttreffen entstand als optimales Endergebnis ein hybrides Modell aus KI und Delft-Modell.

## **Teilprojekt 11 (TUB): Entwicklung von Messzellen**

Im Rahmen des Verbundprojektes ReProvAP hat die Technische Universität Berlin (TUB) das Teilprojekt 11 bearbeitet und hauptsächlich zu PB 1 Datenanalyse, PB 4 Entwicklung von Messzellen und PB 5 Entwicklung einer neuen Auslegungsmethodik beigetragen.

### **Projektbereich 1: Datenanalyse**

#### *AP 1.3, Festlegung der zu untersuchenden Test-Stoffsysteme und Geometrien*

Zur Prüfung, was auf dem Bereich der Messzellenentwicklung im Rahmen der Packungscharakterisierung bereits veröffentlicht wurde, wurde im Rahmen der Arbeitspakete (AP) 1.1 bis 1.3 eine ausführliche Literaturrecherche bzgl. eines sinnvollen Messzellendesigns und der zu untersuchenden Stoffsysteme durchgeführt und in verschiedenen Workshops mit den Projektpartnern diskutiert.

Aus Erfahrung bereits entwickelter und realisierter Messzellen an der TUB und nach Sichtung relevanter Literatur wurde eine sinnvolle Strömungskanalbreite für die Messzelle in mehreren Workshops mit den Projektpartnern diskutiert und festgelegt. Im Rahmen dieser Workshops wurde die Strömungskanalbreite auf 400 mm festgelegt, um einerseits Randeffekte zu reduzieren und andererseits den Versuchsaufbau möglichst klein zu halten. Des Weiteren wurde festgelegt, dass die Messzelle aus zwei unperforierten Packungsblechen bestehen soll, um einen idealen Ausschnitt einer Kolonne mit der Messzelle darstellen zu können. Die Strömungskanalhöhe wurde auf die Standardhöhe einer Packungslage von ca. 200 mm festgelegt. Als geeignete Packungsgeometrie für den „Proof of Concept“ wurde die sehr weit verbreitete Sulzer Mellapak™ 500.Y identifiziert. Diese stellt einen guten Kompromiss zwischen industrierelevanter Packung und ausreichend hoher spezifischer Oberfläche dar, um in Laborkolonnen untersucht werden zu können. Als infrage kommende Benchmark-Stoffsysteme wurden Chlorbenzol/Ethylbenzol (CB/EB), Methanol/Ethanol (MeOH/EtOH) und Cyclohexan/*n*-Heptan (C6/C7) identifiziert. Aufgrund des kurzen Strömungskanals der Messzelle und der breiten Datenbasis wurde sich letztendlich für C6/C7 als Vergleichsstoffsystem zwischen den Kolonnen innerhalb des Projektes und der Messzelle entschieden. Weitere Designparameter der Messzelle, welche im Rahmen der AP 1.1 bis 1.3 festgelegt wurden, sind die modulare Bauweise der Messzelle, bestehend aus einem Kopf-, Packungs- und Sumpfteil, wobei letzterer komplett vom Verdampfer getrennt ausgeführt sein sollte. Außerdem sollte der Messzellenaufbau einen Gesamtholdup von 5 bis 6 Litern nicht überschreiten und ein Gasbelastungsbereich von 0,5 bis 2 Pa<sup>0,5</sup>, mit Berücksichtigung weiterer z. B. auch wässriger Stoffsysteme, realisiert werden. Zudem sollten Drücke von 100 bis 4000 mbara in der Messzelle realisiert werden können.

Der Flüssigkeitsverteiler wurde als Überlaufwehr ausgelegt, damit die Flüssigkeit von beiden Seiten möglichst als ideale Filmströmung in den oberen Packungsteil einfließt. Damit sollte eine möglichst ideale Benetzung direkt am Anfang des Packungsbleches realisiert werden. Das Messzellendesign ist in Abb. 27 dargestellt.

### **Projektbereich 4: Entwicklung von Messzellen mit niedrigem Hold-Up zur Parameterbestimmung**

#### *AP 4.1, Design und Konstruktion der Messzellen*

Nachdem die Designparameter der Messzelle festgelegt wurden, wurde im Rahmen von AP 4.1 der Versuchsaufbau ausgelegt und alle relevanten Komponenten beschafft.

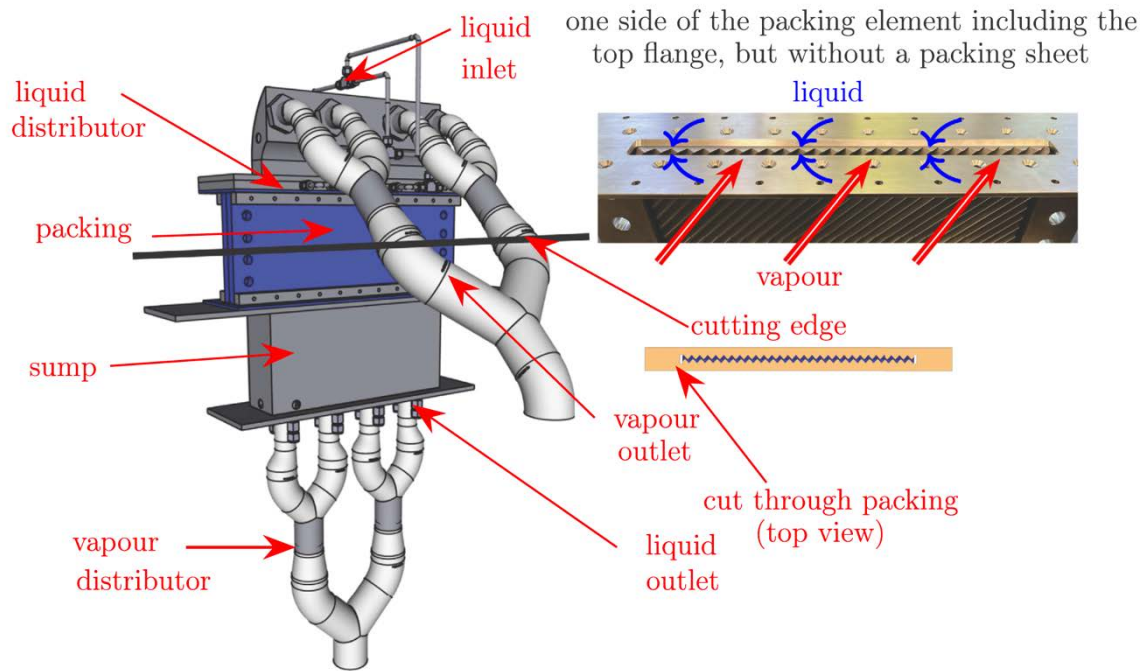


Abb. 27: links: 3D Design der Messzelle aus [1]; rechts: Flüssigkeitseinlass in trennaktiven Teil der Messzelle.

#### AP 4.2, Bau/Adaption Messzellen

Anschließend konnte gemäß AP 4.2 die Messzelle aufgebaut und im Rahmen von Projekttreffen vorgestellt werden.

#### AP 4.3, Inbetriebnahme Messzellen/Basischarakterisierung Benchmark

Nachfolgend wurde die Messzelle gemäß AP 4.3 in Betrieb genommen und die Basischarakterisierung mithilfe des Benchmark-Systems vorgenommen. Dafür wurde zunächst ein Dichtigkeitstest durchgeführt und anschließend die Funktion aller Bauteile mithilfe einer Wasserfahrt geprüft. Anschließend wurde die Anlage mit Aceton gereinigt, um etwaige Wasserrückstände zu entfernen. Um die Trennleistungsversuche auswerten zu können, wurde zunächst für das Stoffsystem C6/C7 eine geeignete Methode für den am Fachgebiet vorhandenen Gaschromatographen (GC) entwickelt und getestet. Als Betriebsbedingungen wurde für alle Trennleistungsmessungen festgelegt, dass jeweils eine Messreihe bei 300 mbara und 960 mbara durchgeführt werden sollte. Außerdem sollten alle Trennleistungsmessungen bei totalem Rücklauf erfolgen.

Zur einheitlichen Auswertung der Ergebnisse wurde eine geeignete computergestützte Methode mithilfe eines Gleichgewichtsmodells und dem HETP-Wert als Vergleichsgröße entwickelt. Dieses wird bei Bedarf über Git-Lab bereitgestellt und stand allen Partner zur Verfügung bzw. bei der Auswertung wurden die Partner durch die TUB unterstützt.

Nach Abschluss der Inbetriebnahme wurde für C6/C7 sowohl der trockene Druckverlust als auch die Trennleistung zusammen mit dem berieselten Druckverlust charakterisiert und mit den Ergebnissen aus den Labor- und Technikumskolonnen verglichen [25].

#### AP 4.4, Redesign Messzellen für andere Stoffgemische

Da die Messzelle variabel ausgelegt wurde und bei der Auslegung bereits ein breiter Betriebsbereich berücksichtigt wurde, mussten keine Anpassungen am Versuchsaufbau, wie in AP 4.4 vorgesehen, durchgeführt werden. Somit konnten die zusätzlich im Rahmen eines Projektworkshops ausgewählten Stoffsysteme Wasser/Ethanol und Ethanol/1-Butanol ohne große Umbauten bezüglich der Trennleistung charakterisiert werden.

#### *AP 4.5, Charakterisierung Destillation*

Die Charakterisierung der Destillation gemäß AP 4.5 erfolgte mit den oben genannten Stoffsystemen, für welche ebenfalls eine geeignete GC-Analytik entwickelt wurde. Um zu prüfen, wie sich die Messzelle bei einem eng siedenden Stoffsystemen verhält, wurden zusätzlich zu den abgestimmten Stoffsystemen noch Untersuchungen mit dem System Chlorbenzol/Ethylbenzol durchgeführt.

Außerdem wurden in Kooperation mit Sulzer Chemtech Charakterisierungsmessungen für das Stoffsystem Chlorbenzol/Ethylbenzol im Technikum in Winterthur mit der DN250-Kolonne durchgeführt, wodurch die Übertragbarkeit ebenfalls weiter gestärkt wird.

Anstelle der im Antrag beschriebenen Breitenvariation des Strömungskanals der Messzelle wurde im Rahmen eines Projekttreffens gemeinsam beschlossen, eine Packung mit deutlich geringerer spezifischer Oberfläche zu untersuchen, was den künftigen Transfer der Ergebnisse in die industrielle Praxis weiter stärkt. Der Wechsel auf eine Packung mit geringerer spezifischer Oberfläche wurde erst durch die guten Erfahrungen mit den Messungen in der Messzelle als realisierbar eingestuft. Es wurde eine nicht perforierte Version der Mellapak™ 250.Y von Sulzer Chemtech ausgewählt, welche in der industriellen Anwendung weit verbreitet ist. Für diese wurden Messungen mit den Stoffsystemen C6/C7 und CB/EB bei den oben erwähnten Drücken durchgeführt.

#### *AP 4.6, Übergabe Design/Messzelle an Industrie*

Eine Übergabe an die Industrie gemäß AP 4.6 erfolgt indirekt durch die Bereitstellung des Messzellendesigns und der damit einhergehenden Ermöglichung, bei Bedarf eine Messzelle im eigenen Technikum aufzubauen. Eine ausführliche Vorstellung der Messzelle und Diskussion der Ergebnisse ist in Pöschmann et al. [25] und Pöschmann et al. [27] gegeben. Bei Bedarf fand ebenfalls eine intensive Vorstellung und Diskussion der Ergebnisse und des Designs mit einzelnen Projektpartnern statt.

### **Projektbereich 5: Entwicklung einer neuen Methodik zur Auslegung**

#### *AP 5.3, Entwicklung einer messzellenbasierter Auslegungsmethodik*

Nach der Bewertung der Trennleistungsversuche wurde eine erste Auslegungsmethode basierend auf den experimentellen Daten der Messzellen entwickelt und beispielhaft an den experimentellen Daten für das Stoffsystem CB/EB der Messzelle und der DN250-Kolonne vorgestellt [27].

Dafür wurde ein Nichtgleichgewichtsmodell mithilfe der MERSHQ-Systematik aufgestellt, in welchem kein prädiktives Modell zur Berechnung des Stoffübergangskoeffizienten bzw. der Phasengrenzfläche implementiert wurde. Da die Messzelle als optimal benetzt angesehen werden kann, wurde als Phasengrenzfläche die spezifische Oberfläche der Packung angenommen. Somit konnte mit Vorgabe der experimentell ermittelten Größen der Leichtsiederkonzentration oberhalb und unterhalb der Packung, dem Kopfdruck, dem Differenzdruck über die Packungshöhe, dem Rücklaufmassenstrom und der Temperatur des Rücklaufes die sich ergebenden Stofftransportkoeffizienten in Abhängigkeit des F-Faktors ermittelt werden. Über die F-Faktor-Abhängigkeit wurde dann eine Übertragung auf die DN250-Kolonne durchgeführt und die Trennleistung mithilfe der so ermittelten Stofftransportkoeffizienten und ebenfalls einem Nichtgleichgewichtsmodell berechnet. Ein Vergleich mit dem in der Literatur häufig verwendeten, prädiktiven Delft-Modell zur Berechnung der Stofftransportkoeffizienten ergab, dass der Messzellenansatz eine gleichwertig gute Vorhersage der Trennleistung erzielt wie das Delft-Modell.

Da die Annahme der vollständig benetzten Packung in der Kolonne nicht gerechtfertigt ist, wurde ein Parameter im Modell eingefügt, welcher für jeden einzelnen Punkt die Phasengrenzfläche korrigiert, um die experimentell ermittelte Trennleistung genau vorherzusagen. Dieser Parameter wurde für jeden einzelnen Messpunkt mithilfe einer Optimierung identifiziert und ergab sich im Mittel für beide Drücke zu 0.68. Somit stehen nur

68 % der Packungsoberfläche für den Stofftransport zur Verfügung (wobei weitere Unsicherheiten etc. in diesem Wert inkludiert sind). Anschließend wurde die Trennleistung der Kolonne mithilfe des Modells und dieser mittleren reduzierten Phasengrenzfläche erneut berechnet, was zu einer signifikanten Verbesserung der Vorhersage führte. Eine ausführliche Diskussion und Beschreibung des Vorgehens ist in Pöschmann et al. [27] geben. Der spezifische Druckverlust innerhalb der DN250-Kolonne konnte direkt (im Rahmen der Messgenauigkeit) durch die Messungen in der Messzelle abgebildet werden und ein Übertragungsmodell war somit nicht notwendig.

Die Modellergebnisse im Vergleich zu den Experimentaldaten für die DN250-Kolonne mit der unperforierten Mellapak™ 500.Y bei 960 mbara und 300 mbara und dem Stoffsystem CB/EB mit dem durchschnittlichen Korrekturfaktor für die Phasengrenzfläche von 0.68 sind in Abb. 28 aufgeführt.

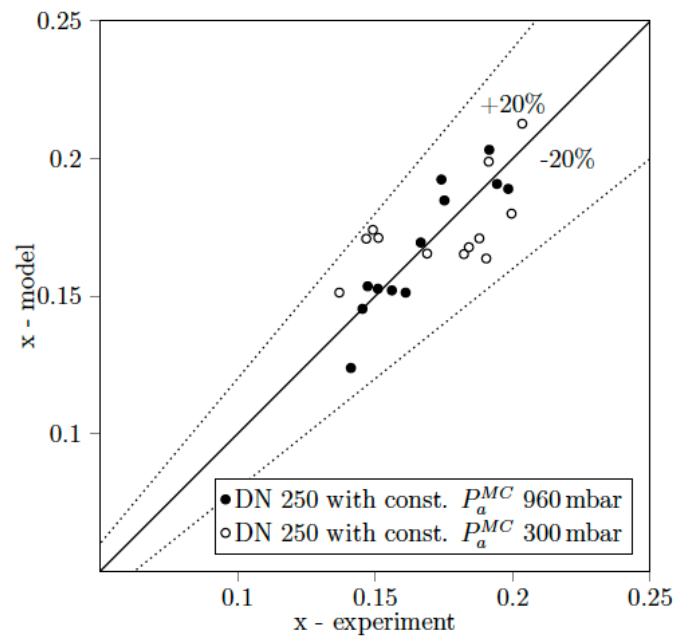


Abb. 28: Parity-Plot korrigiertes Modell aus [27].

Dieser Messzellen-basierte Ansatz zur Vorhersage der Trennleistung und zur Identifizierung des Druckverlustes von Kolonnen ist vielversprechend und sollte weiter untersucht und validiert werden, da zurzeit nur Vergleichsdaten für einen Packungstyp mit dem idealen Stoffsystem CB/EB zur Verfügung stehen.

## **Teilprojekt 12 (TU BS): Untersuchungen an Kolonnen und LCA**

### **Projektbereich 1: Datenanalyse**

#### *AP 1.1, Sammlung und Bereitstellung von experimentellen Daten und Betriebsdaten*

Es wurden Ergebnisse zu Trennleistungsmessungen mit viskosen Gemischen für den Workshop AP 1.2 aufbereitet und den Koordinatoren von PB 1 sowie PB 3 zur Verfügung gestellt.

#### *AP 1.3, Festlegung der zu untersuchenden Test-Stoffsysteme und Geometrien*

Die Test-Stoffsysteme Cyclohexan/*n*-Heptan (C6/C7) als ideales, engsiedendes Gemisch, Ethanol/Butanol (EtOH/BuOH) als ideales weitsiedendes Gemisch und Ethanol/Wasser (EtOH/H<sub>2</sub>O) als nicht-ideales wässriges Gemisch wurden festgelegt. Diese Gemische wurden erfolgreich nach festgelegten Auswahlkriterien wie Siedepunktdifferenz, Trennfaktoren, Viskositäten, Gefährdungspotential, Handhabbarkeit wie z. B. Flüchtigkeit und Geruchsintensität, Korrosivität, Azeotropie, Datenverfügbarkeit und Preis ausgewählt.

Anschließend wurden die Geometrien der verschiedenen Rektifikationsanlagen der Partner gesammelt und gegenübergestellt, woraufhin die experimentellen Partner in zwei Gruppen A und B (s. Tab. 1: Versuchsmatrix zur Übersicht der durchgeführten Versuchsreihen nach Experimentalgruppen, Stoffgemischen, Kolonnenmaßstab, Packungsbetthöhe und Packungstyp.) mit jeweils einem Packungstyp, entweder RMP-N-ähnlich (RVT Process Equipment GmbH) oder Mellapak<sup>TM</sup>-ähnlich (Sulzer Chemtech AG), eingeteilt wurden.

### **Projektbereich 2: Experimentelle Untersuchungen zur Trennleistung**

#### *AP 2.1, Festlegung der experimentellen Methodik*

Es wurde festgelegt, den Packungstyp (500.Y) mit Randabweisern aus Gewebematerial partnerübergreifend einzusetzen. Die Betriebs- sowie Prozessdaten aller experimentellen Partner wurden gesammelt und verteilt, um die Übertragbarkeit der Trennleistungsmessungsergebnisse sicherzustellen. Um keine zusätzliche trennwirksame Oberfläche außerhalb des Packungsbetts zu generieren und zu vermessen, wurde sich darauf verständigt, die Rücklaufunterkühlung zu minimieren und die Temperatur des eintretenden Rücklaufstroms zu dokumentieren. Angepasste Stromführungen und Probenahmestellen ober- und unterhalb der Packung wurden für die Trennleistungsmessungen diskutiert und vereinbart. Eine maximale Messunsicherheit von  $10^{-3} \text{ mol}_i / \text{mol}_{\text{ges}}$  wurde definiert. Weiterhin wurde die Kalibrierung der Proben zur Bestimmung der Probenzusammensetzung sowie einem Austausch von Proben zur Validierung der Analytik festgelegt.

#### *AP 2.2, Trennleistungsmessungen im Labor- und Technikumsmaßstab*

Zwei Rektifikationskolonnen (DN50 und DN150) wurden nach den in AP 2.1 abgestimmten Spezifikationen umgebaut, um die Vergleichbarkeit der Trennleistungsmessungen sicherzustellen und den Meilenstein M2 zu erfüllen. Als Voraussetzung für die Vergleichbarkeit wurden mithilfe von Kalibrierkurven, basierend auf Dichte- und Brechungsindexmessungen, Methoden zur Analytik entwickelt und u. a. mit Proben von Partnern aus dem PB 3 validiert.

Um die Skalierbarkeit der Ergebnisse zu gewährleisten, wurden folgende Einflussfaktoren auf die Trennleistung untersucht: thermische Randbedingungen der Kolonnenwand (Überhitzung und Unterkühlung), Rücklaufunterkühlung und Konfiguration der Randabweiser. Zusätzlich wurde ein Packungsvergleich durchgeführt: in derselben DN50-Kolonne an der TU BS wurden die „RMP-N-ähnliche“ R500.Y sowie die „Mellapak<sup>TM</sup>-ähnliche“ S500.Y Packung vermessen.

Tab. 1: Versuchsmatrix zur Übersicht der durchgeführten Versuchsreihen nach Experimentalgruppen, Stoffgemischen, Kolonnenmaßstab, Packungsbetthöhe und Packungstyp.

		Messzelle		Miniplantmaßstab				Technikum- /Pilotmaßstab	
Gruppe A	Mellapak™ - ähnliche 500.Y	TU Berlin	RU Bochum	TU BS C6/C7 (DN50)	BASF (DN50)	EVONIK (DN80)	SULZER (DN250)		
	Gruppe B			TU BS (DN50)			TU BS (DN150)		
ideal - organisch		X	X	X	X	X	X	X	
950 mbar Betthöhe [m]	C6/C7	0,2	0,1	0,563	0,46; 1.5	0,612	0,615	0,61	
300 mbar Betthöhe [m]		0,2	0,1	0,563	0,46; 1.5	0,612	0,615	0,61	
weitsiedend - wässrig	EtOH / Wasser	X		X	X	X	X	X	
950 mbar Betthöhe [m]		0,2		0,563	0,46	0,408	0,615	0,57	
300 mbar Betthöhe [m]		0,2		0,563	0,46	0,408	0,615	0.19; 0.57	
weitsiedend - organisch	Ethanol / 1- Butanol	X		X	X	X	X	X	
950 mbar Betthöhe [m]		0,2		0,563	0,46	0,61	0,615	0,57	
300 mbar Betthöhe [m]		0,2		0,563	0,46	0,61	0,615	0,57	

### Packungsvergleich

Dieser Packungsvergleich sollte einen direkten quantitativen Vergleich des apparativen

Einflusses einer Kolonne inkl. Messaufbauten auf die Trennleistungsergebnisse bei den Partnern ermöglichen. Zuvor war unklar, ob Unterschiede in den gemessenen Trennleistungen auf die unterschiedlichen Packungstypen oder auf Differenzen im Kolonnenaufbau inkl. Peripherie zurückzuführen sind.

Abb. 31 zeigt, dass die an der TU BS erzielten Trennleistungen für die S500.Y vergleichbar sind mit den bei der BASF erhaltenen Ergebnissen. Dies zeigt, dass die Unterschiede in den gemessenen Trennleistungen nicht auf den Kolonnenaufbau, sondern auf die geometrischen Unterschiede zwischen den Packungstypen zurückzuführen sind. Diese Erkenntnisse tragen wesentlich zur Validierung der Vergleichbarkeit der Ergebnisse in unterschiedlichen Maßstäben zu anderen Partnern bei und stellen einen großen Nutzen für das Projektkonsortium und darüber hinaus dar.

### Thermische Randbedingungen der Kolonnenwand

Der Einfluss einer Abweichung vom adiabatischen zu einem diabatischen Zustand (überhitzte oder unterkühlte Kolonnenwand) wurde über die gezielte Einstellung der Kolonnenwandtemperatur erfasst. Als quantitatives Maß für die Abweichung von adiabatischen Bedingungen wird die Differenz zwischen der Wandtemperatur  $T_{\text{wall}}$  und der Temperatur bei adiabaten Bedingungen verwendet:  $\Delta T_{\text{wall-ad}} = T_{\text{wall}} - T_{\text{adiabat}}$ .

Um den Einfluss der Wandtemperatur auf die Trennleistung unabhängig von der Gasbelastung zu betrachten, wurde der arithmetisch gemittelte F-Faktor im Bereich von 0,5 bis 0,63  $\text{Pa}^{0,5}$  konstant gehalten. Abweichungen von der Adiabasie können auch durch unterschiedliche kalorische Zustände des Rücklaufs verursacht sein. Um dies gezielt zu untersuchen wurde die Rücklaufunterkühlung auf -5 K und -55 K im Vergleich zur Kolonnenkopftemperatur eingestellt. Die Ergebnisse zeigen eine abnehmende Trennleistung bei steigender Wandtemperatur, siehe Abb. 29, wobei die höhere Rücklaufunterkühlung zu einer durchschnittlichen Abnahme der Trennleistung um 5 % führt, jedoch ohne signifikanten Unterschied ( $p = 0,989$ ). Die thermische Randbedingung an der Kolonnenwand beeinflusst die Trennleistung bis zu 19 %. Eine unterkühlte Kolonnenwand führt zur partiellen Kondensation und zu einem höheren Benetzungsgrad der Kolonnenwand, welche die Trennleistung um bis zu 12 % erhöht. Eine überhitzte Kolonnenwand führt zu einem geringeren Benetzungsgrad und eine Reduzierung der Trennleistung um bis zu 7 %.

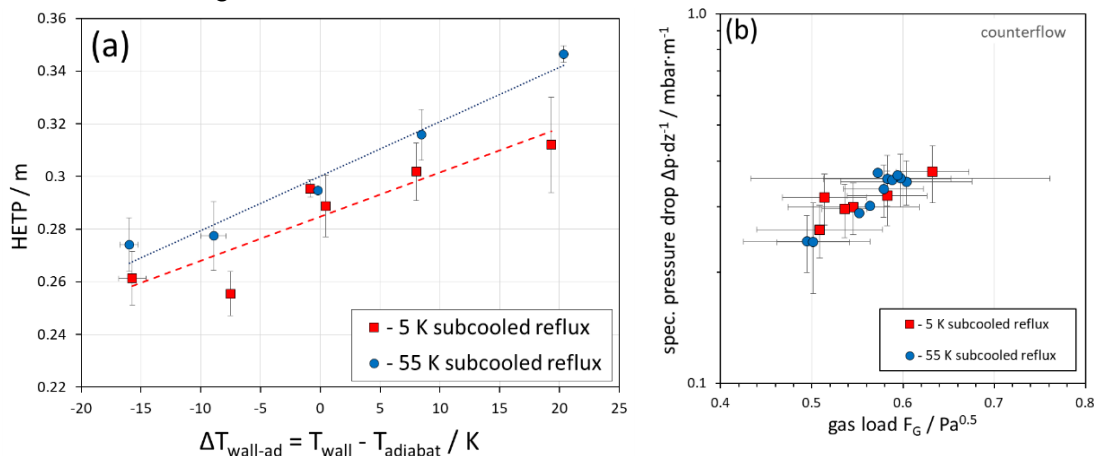


Abb. 29: Trennleistung in Abhängigkeit von der thermischen Randbedingung der Kolonnenwand (a) und Druckabfall bei Gas- und Flüssigkeitsgegenstrom als Funktion des Gasbelastungsfaktors  $F_G$  (b) für zwei Rücklaufunterkühlungen.

Der höhere Benetzungsgrad der inneren Kolonnenwandoberfläche, welche für eine Kolonne DN50 16 % der Gesamtoberfläche darstellt, ist auf an der Wand abfließendes Kondensat zurückzuführen. Daher war es angemessen, im Rahmen des Projekts zusätzliche Anstrengungen zu unternehmen, um diese Wandströmung zu quantifizieren. Das Wandkondensat führt zu einer zusätzlichen Erhöhung der Trennleistung, da die hochsiedende Komponente zu höheren Anteilen kondensiert wird als die niedrigsiedende Komponente. Bei einer gegenüber der Kernströmung in der Kolonne überhitzten Wand fällt dieser Wand-

kondensatstrom signifikant geringer aus, was eine Verringerung der effektiven Trennfläche und damit eine Reduzierung der Trennleistung zur Folge hat. Diese Ergebnisse zum Einfluss der thermischen Randbedingung sind Inhalt einer eingereichten Veröffentlichung.

### Randabweiser

Im Rahmen der Untersuchungen zur Randabweiserkonfiguration wurden die Unterschiede in der Trennleistung zwischen der R500.Y und S500.Y-Packung betrachtet. Im ersten Schritt wurde der Randabweiseranteil der R500.Y um 50 % erhöht. Dabei wurde dasselbe Höhenverhältnis von Randabweiser (RAW) zu Packungselement (pa.el) wie bei der S500.Y untersucht (s. Abb. 30). Im zweiten Untersuchungsschritt wurde der Sulzer-Randabweiser, mit ebenfalls gleichem Höhen- und Zungenlängenverhältnis, an die R500.Y-Packung montiert, um den Einfluss des Randabweisers zu isolieren. Die verbleibenden Unterschiede liegen im Randspalt, im Material und der Mikrostruktur des Packungsblechs.

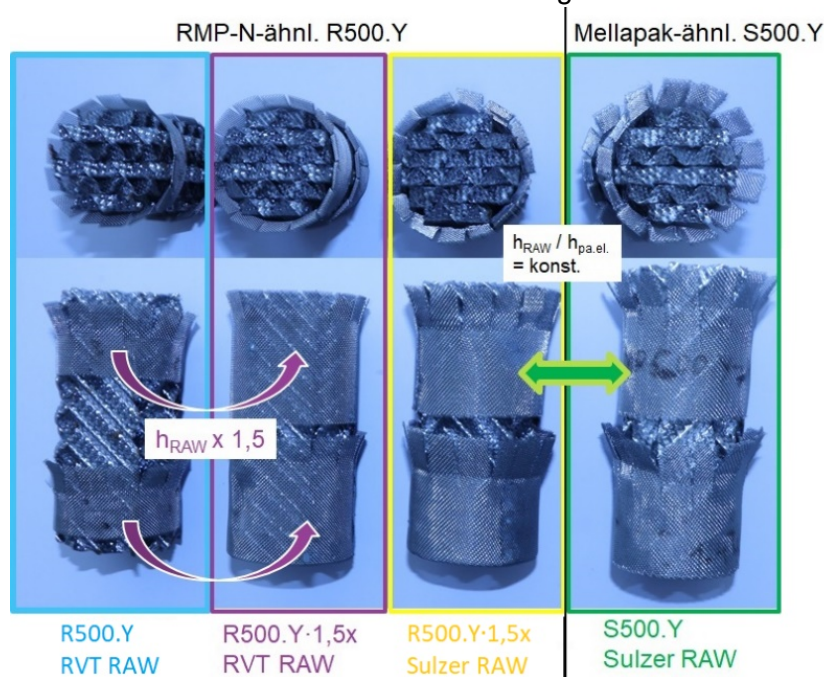


Abb. 30: Fotografien der Packungen bei Variation der Randabweiserkonfiguration (TU BS, DN50).

Die Ergebnisse zeigen, dass die Sulzer-Randabweiser die Flüssigkeit weniger effizient von der Wand zurück in die Packung führen. Das führte über den Gasbelastungsbereich gemittelt zu 18 % höheren HETP-Werten. Die Kombination aus dem R500.Y-Packungsblech und den ineffektiveren Sulzer-Randabweisern (Abb. 30 - gelbe Packungskonfiguration) resultierte in der geringsten Trennleistung.

Die HETP-Werte der R500.Y-Packung mit den 1,5-fach höheren Randabweisern (gelb) gegenüber der Original-R500.Y-Packung (cyan-blau) liegen deutlich über den anderen Messwerten. Bei einer linearen Auftragung des Druckverlustdiagramms wird deutlich, dass die RVT-Randabweiser mit 1,5-facher Höhe (violette Vierecke) höhere Druckverluste verursachen als die ursprünglich kürzeren RVT-Randabweiser (cyan-blaue Vierecke). Die R500.Y-Packung mit dem Sulzer-Randabweiser (1,5-facher Anteil - gelb) weisen unter Gegenstrom (counterflow) leicht niedrigere Druckverluste als die RVT-Packung mit RVT-Randabweisern mit demselben 1,5-facher Anteil (violett) auf. Dies stützt die visuelle Beobachtung, dass die 30 % kürzeren Zungen der RVT-Randabweiser den Randspalt effektiver verschließen und den Gastrom blockieren als die 4 bis 5 mm längeren Zungen der Sulzer-Randabweiser.

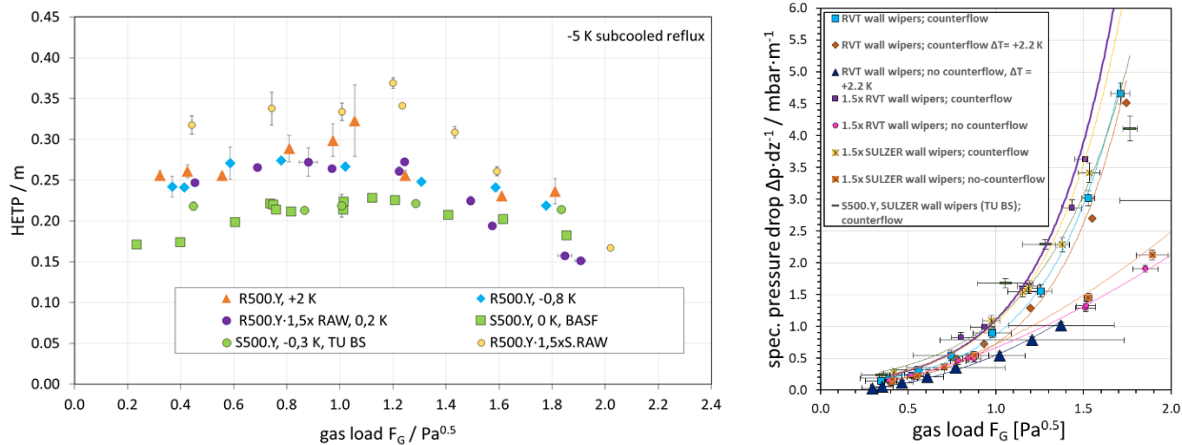


Abb. 31: Trennleistung (links) und Druckverlust (rechts) bei unterschiedlichen Randabweiserkonfiguration von R500.Y und S500.Y-Packungen.

Des Weiteren verursachten die Sulzer-Randabweiser aufgrund ihrer dichteren Gewebestruktur höhere Druckverluste. Dies wird bei trockenen Druckverlustmessungen (no-counterflow) deutlich, bei denen die Datenpunkte der Sulzer-Randabweiser (orange) über denen der RVT-Randabweiser (pink) liegen. Die Trennleistungsergebnisse (Abb. 31 – links) belegen, dass die Sulzer-Packungen trotz der weniger effektiven Randabweiser eine höhere Trennleistung erzielen als die RVT-Packungen mit effektiveren Randabweisern. Dies legt nahe, dass die Trennleistungsunterschiede hauptsächlich auf den Randspalt, das Material, die Porosität und die Mikrostruktur des Packungsblechs zurückzuführen sind. Diese Ergebnisse zum Einfluss der Randabweiser werden in der geplanten Veröffentlichung detailliert beschrieben.

#### AP 2.4, Datenaggregation

Die Datenaggregation für die Stoffgemische erfolgte durch die Sammlung umfangreicher physikalischer Stoffdaten und Phasengleichgewichte aus der Stoffdatenbank der BASF, des Prozesssimulationsprogramms Chemcad sowie wissenschaftlicher Literatur. Diese Daten dienten als Grundlage für die Diskussionen während der Experimentatortreffen zur Auswahl der Gemische. Darüber hinaus wurden Ergebnisse zu Trennleistungsmessungen, Stoffdaten sowie Modellparameter und Berechnungen aus der wissenschaftlichen Literatur aggregiert, um sie mit dem PB 1 zu teilen und abzustimmen.

Die Sammlung und Verifikation der berechneten Ergebnisse basierend auf dem BASF-Excel-Tool und dem TUB-Python-Tool wurde durch ein TU BS-Python-Tool unterstützt.

#### AP 2.5, Maßstabsübertragung

Die Untersuchungen in DN50- und DN150-Kolonnen mit dem Packungstyp R500.Y an der TU Braunschweig und bei ENVIMAC (DN50) sowie die Untersuchungen mit dem Packungstyp S500.Y über die Kolonnenskalen DN50, DN80 und DN250 führten zu fundierten Erkenntnissen über die Skalierbarkeit.

Im Vergleich zu den DN50-Ergebnissen nahm die Trennleistung im DN150-Maßstab im Mittel um 15 % und maximal um 23 % ab. Bei der Packung S500.Y verringerte sich bei einer Maßstabsvergrößerung von DN50 auf DN250 das Verhältnis  $A_{wall} \cdot V_{col}^{-1}$  um 64 m<sup>-1</sup> und die Trennleistung im Mittel um 25 % und maximal bis zu 29 %. Daher ist bei der Maßstabsübertragung vom Miniplant- auf den Pilotmaßstab mit dem Standardgemisch C6/C7 und bei EtOH/Wasser ein Maßstabsübertragungsfaktor von ca. 1,3 anzuwenden.

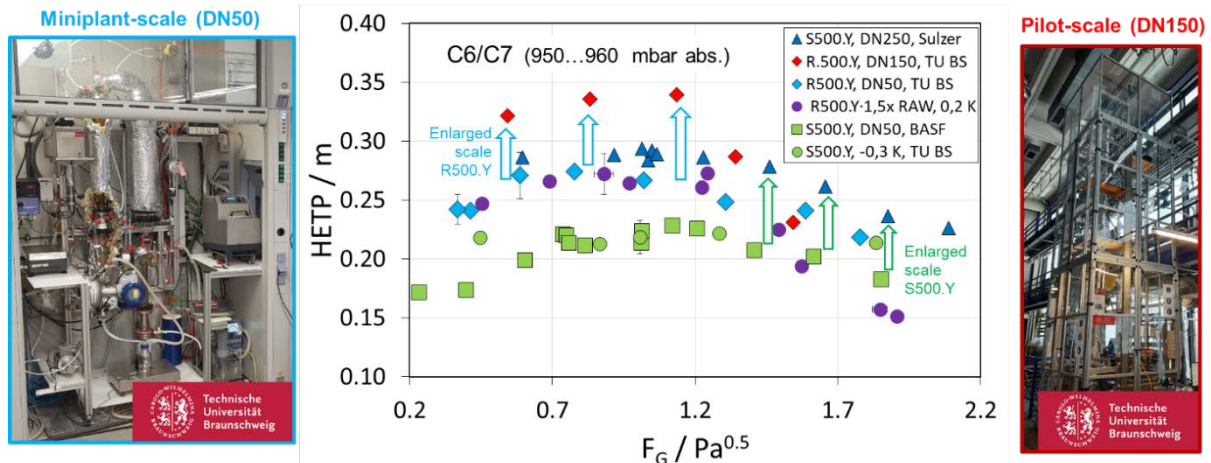


Abb. 32: Skalenabhängige Trennleistungsergebnisse mit C6/C7 im Projekt.

Neben dem C6/C7-Stoffgemisch ergab sich auch für das EtOH/H<sub>2</sub>O-Gemisch bei 950 bis 960 mbara starke und für EtOH/BuOH geringe maßstabsbedingte Trennleistungsergebnisse. Geringere Wandeffekte führen fast immer zu geringeren Trennleistungen, siehe Abb. 34. Dies deutet auf Rand- und Kolonnenwandeffekte hin [28].

Die Trennleistungsergebnisse für das Gemisch Ethanol/Butanol liegen im DN50-Maßstab in der gleichen Größenordnung wie im DN150-Maßstab. Im Gegensatz zum organisch-siedenden C6/C7-Gemisch reicht beim organisch weitsiedenden Gemisch Ethanol/Butanol ein geringer Übertragungsfaktor von 1,05 für eine Maßstabsübertragung von DN50 auf DN150 aus.

#### AP 2.6, Stoffsystemübertragung

Die experimentellen Ergebnisse des Projekts (Abb. 33) zeigen, dass Trennleistungen bei allen drei vermessenen Stoffsystemen von dem Kolonnenmaßstab abhängen.

Diese Erkenntnis ist für industrielle und akademische Partner entscheidend, da sie zeigt, dass die direkte Übertragung von Messergebnissen in den Pilotmaßstab von den spezifischen Stoffeigenschaften abhängt, was für die Skalierung der Trennleistung in Kolonnen relevant ist. Messungen mit dem EtOH/H<sub>2</sub>O-Gemisch zeigten im Vergleich der DN50 und DN150 Ergebnisse an der TU Braunschweig ebenfalls eine Maßstabsabhängigkeit. Die größten Unterschiede mit ca. 30 % zwischen den Trennleistungen der Packungen R500.Y und S500.Y wurden für das Gemisch EtOH/BuOH ermittelt, siehe Abb. 33 oben rechts.

Für die Abhängigkeit der Trennleistungen bei 950 mbara von der Maßstabs-vergrößerung und den Stoffsystemen ist in Abb. 34, ausgehend vom Miniplant-Maßstab DN50, die Abnahme der gemittelten Trennleistung ( $\Delta$ HETP) und des Verhältnisses von Kolonnenwand zu Kolonnenvolumen  $\Delta A_{\text{wall}} \cdot V_{\text{col}}^{-1}$  aufgetragen.

Aufgrund der Mittelung der HETP-Werte über den gesamten Beladungsbereich ergeben sich relativ hohe Standardabweichungen von 10 % bis 18 %. Für das Standardgemisch C6/C7 ist zu erkennen, dass mit zunehmendem Kolonnenmaßstab die Abnahme der Trennleistung zunimmt. Dagegen führte eine Vergrößerung des Kolonnenmaßstabes bei dem Gemisch EtOH/BuOH zu einer geringen ( $\leq 5$  %) und insbesondere bei EtOH/H<sub>2</sub>O zu einer stark verringerten Trennleistungsabnahme von  $\leq 29$  %. Beispielsweise sinkt bei der Maßstabs-vergrößerung von DN50 auf DN150  $A_{\text{wall}} \cdot V_{\text{col}}^{-1}$  um 54 m<sup>-1</sup> und die Trennleistung für das Gemisch EtOH/H<sub>2</sub>O im Mittel um 17%, bei 300 mbara sogar um bis zu 33 %.

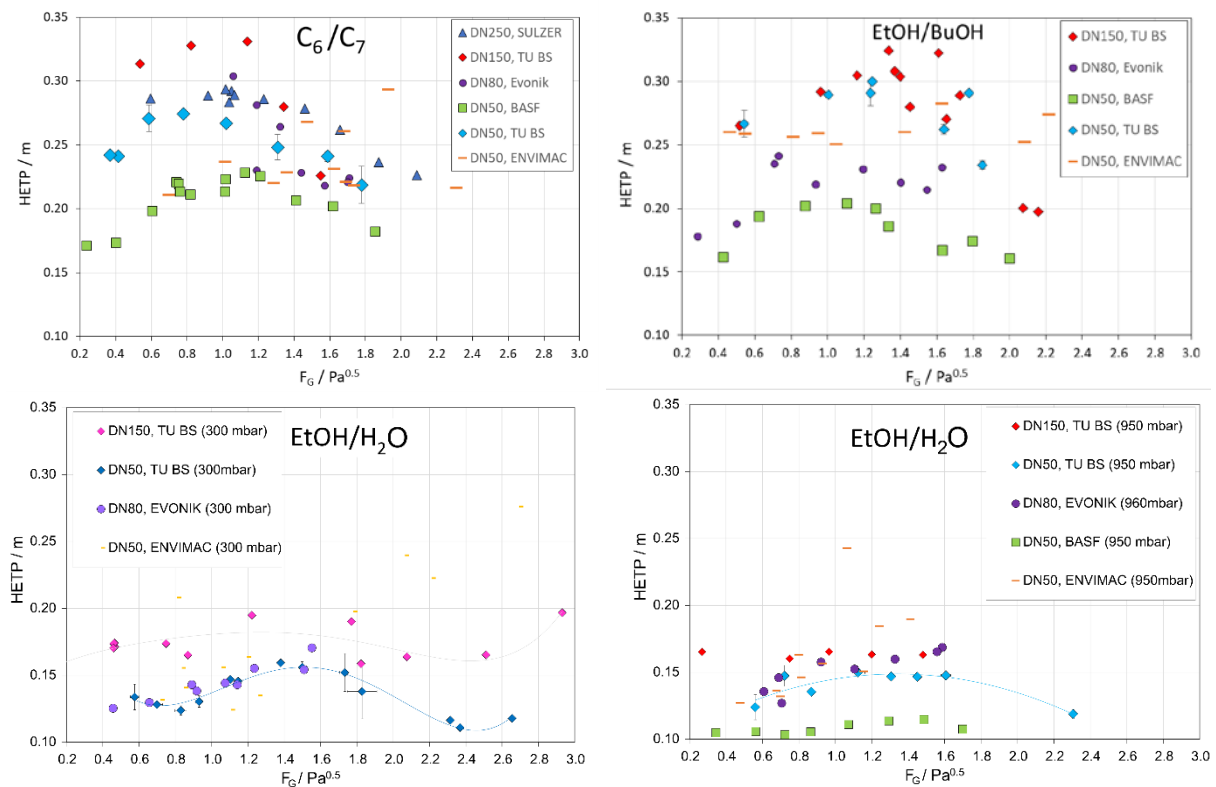


Abb. 33: Im Projekt gemessene stoffsystemabhängige Trennleistungen bei 950 bis 960 mbara von C6/C7 (oben links), Ethanol/Butanol (oben rechts), Ethanol/Wasser (unten links) und bei 300 mbara von Ethanol/Wasser (unten rechts) basierend auf Auswertungen mit dem BASF-Excel-Tool und dem Python-Tool der TUB.

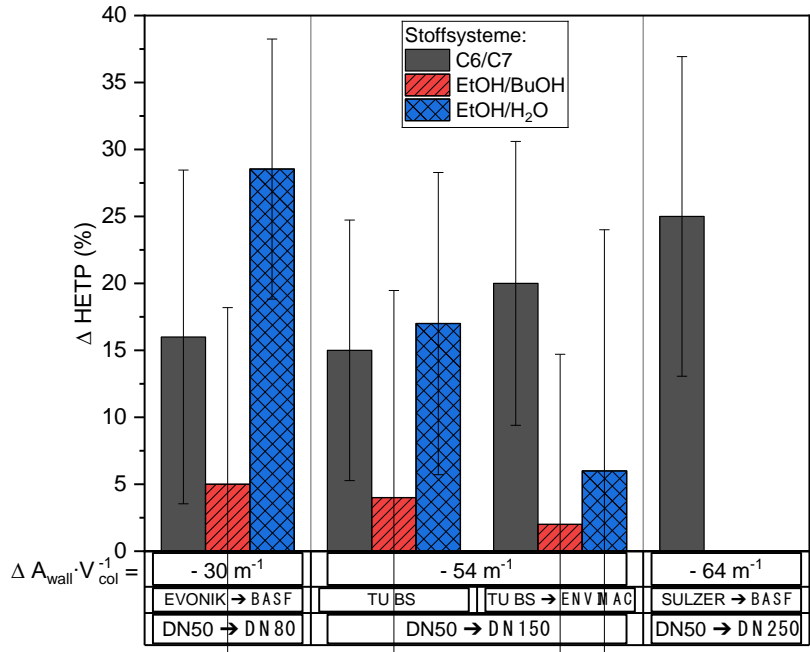


Abb. 34: Zunahme der gemittelten HETP-Werte ( $\Delta HETP$ ) für verschiedene Stoffgemische in Abhängigkeit von der Vergrößerung des Verhältnisses von Kolonnenwand zu Kolonnenvolumen ( $\Delta A_{wall} \cdot V_{col}^{-1}$ ) bei Vergrößerung des Kolonnenmaßstabs. Bei Vergrößerung des Kolonnenmaßstabs ausgehend von DN50 nimmt  $\Delta A_{wall} \cdot V_{col}^{-1}$  ab.

Das Stoffsystem EtOH/H<sub>2</sub>O wies die höchsten Trennleistungen der drei untersuchten  
42

Gemische auf. Aufgrund der Nicht-Idealität dieses wässrigen Stoffsystems zeigten diese Messungen bei besonders hohen und geringen Gasbelastungen Anomalien im Vergleich zu den beiden organischen Gemischen C6/C7 und EtOH/BuOH auf. Diese waren:

1. Das Flutverhalten von EtOH/H<sub>2</sub>O ist durch eine Besonderheit gekennzeichnet: Ab dem Überschreiten des Flutpunkts flutet die Flüssigkeit die Kolonne nicht von unten nach oben, sondern das Fluten tritt zuerst im oberen Packungselement auf. Infolgedessen kann der Flüssigkeitsstrom stationär aus dem oberen Packungselement gegen den aufsteigenden Gasstrom ablaufen, wodurch Trennleistungsmessungen am und oberhalb des Flutpunkts möglich sind. Dies ist bei den organischen Stoffsystemen im Flutbereich nicht möglich. Dieses Phänomen lässt sich durch das Verhältnis der Stoffeigenschaften von Kopf- und Sumpfprodukt erklären. Dieses führt dazu, dass der F-Faktor am Kopf größer ist als derjenige im Sumpf der Kolonne. Das Verhältnis der Gasbelastungsfaktoren an Kopf und Sumpf kann über die Verdampfungsenthalpien und Gasdichten gemäß Gl. (1) approximiert werden:

$$\frac{F_{G,Kopf}}{F_{G,Sumpf}} \sim \frac{h_{v,Sumpf}}{h_{v,Kopf}} \cdot \sqrt{\frac{\rho_{G,Sumpf}}{\rho_{G,Kopf}}} \quad (1)$$

Infolge der Stoffeigenschaften von Wasser und Ethanol wurden Werte von  $1 < F_{G,Kopf}/F_{G,Sumpf} < 1,4$  ermittelt. Dies bedeutet, dass der F-Faktor im Kopf größer ist als unterhalb der Packung und damit das Fluten am Kopf einsetzt. Für die untersuchten organischen Gemische C6/C7 und EtOH/BuOH gilt hingegen, dass das Gasbelastungsverhältnis  $< 1$  ist und damit das Fluten am unteren Packungsende beginnt.

2. Die Entnetzung und daraus folgend die Reduzierung der effektiven Stoffaustauschoberfläche, konnte lediglich bei den geringsten Gasbelastungen und einem Druck von 300 mbara bei DN50-Ergebnissen an der TU BS anhand der abnehmenden Trennleistung beobachtet werden, siehe Abb. 33, unten rechts. Dieser beschriebene Effekt lässt sich mit dem von Ehlers und Fieg [29] beschriebenen und übereinstimmenden Trennleistungsverlauf begründen.

## Projektbereich 6: Integrierte Lebenszyklusbetrachtungen

In dem Projektbereich 6 wurden die potenzielle CO<sub>2</sub>-Emissionsreduktion quantifiziert, welche aufgrund einer Verbesserung der Auslegungsmethodik erreicht werden können.

### AP 6.1, Definition des Untersuchungsrahmens

Zu Beginn des Projektes wurde in Abstimmung mit den Partnern zunächst der Untersuchungsrahmen für die Bewertung und die Quantifizierung der potenziellen Einsparung an CO<sub>2</sub>-Emissionen durch eine verbesserte Auslegung von Packungskolonnen definiert. Als Basis dienten dazu einzelne exemplarische Prozesse.

Hinsichtlich der Beispielprozesse wurden in Abstimmung mit den Partnern zwei mögliche Perspektiven diskutiert und ausgearbeitet, siehe Abb. 35: (1) Die Realisierung des Einsatzes von Packungskolonnen statt Bodenkolonnen und (2) die Reduzierung der Kolonnenhöhe (siehe Abb. 35). Daraus konnten Wirkungsketten abgeleitet werden, die im AP 6.3 abgebildet wurden, um so den Einfluss verschiedener Effekte auf die potenziellen Umweltwirkungen zu quantifizieren.

Methodisch wurde der Ansatz einer attributional LCA (aLCA) festgelegt. Bei der Datenerhebung wurden sowohl Daten aus Simulationen als auch generische Daten einer LCA-Datenbank verwendet. Für die Untersuchungen wurde die funktionelle Einheit „Betrieb einer Kolonne über den Lebensweg“ definiert. Der Lebensweg einer Kolonne umfasst dabei die Ressourcengewinnung, die Materialveredelung, Apparatebau, Anlagenbau, Produktionsbetrieb, Anlagenrückbau, Entsorgung und Recycling/Verwertung.



Im Rahmen des projektbegleitenden Vorhabens KlimPro sollten die durch das Fördervorhaben zu erzielenden potenziellen Einsparungen an CO<sub>2</sub>-Emissionen quantifiziert werden. Die Betrachtung eines einzelnen Prozesses ist dafür jedoch nicht ausreichend. Trennkolonnen sind als Querschnittstechnologie zu verstehen, welche für eine Vielzahl von Prozessen verwendet werden. Um eine adäquate Aussage über die zu erzielenden Einsparungen an CO<sub>2</sub>-Emissionen in Deutschland treffen zu können, bedarf es einer Skalierung auf die gesamte Industrie, hier fokussiert auf die nationale chemische Industrie. Aus diesem Grund wurde über das Projektziel hinaus zusätzlich die Frage behandelt, wie eine solche Skalierung durchgeführt werden kann. Aufgrund des Fokus von KlimPro auf die Wirkungskategorie Klimaänderung, wird sich auch in diesem Projekt auf diese Wirkungskategorie beschränkt.

### AP 6.2, Datenerhebung

Eine verbesserte Auslegung erlaubt die Reduktion von Sicherheitszuschlägen. Daraus folgt ein reduzierter Bedarf an Stahl für den Bau der Kolonne sowie der Einbauten und damit eine Reduktion der mit der Fertigung einhergehenden potenziellen Treibhausgasemission. In Tab. 2 sind recherchierte Literaturangaben, ergänzt durch Kalkulationen, zu dem ökologischen Einfluss der Apparate bezogen auf das chemische Produkt gegenübergestellt.

Tab. 2: Potenzielle Auswirkungen im Umweltproblemfeld Klimaänderung von Apparaten nach verschiedenen Literaturquellen, Bewertungsmodell EF 3.0.

	<b>Ecoinvent 3.8 cutoff</b>	<b>Cunha et al. (2020) [30]</b>	<b>Grundemann, L. (2013) [31]</b>	<b>Paschetag, M. (2020) [32]</b>
Branche + Anlagentyp	Chemie, Mono- Produktanlage		Spezialchemie, Mehrproduktanlag e (µ-Maßstab)	Spezialchemie, Mehrzweckanlage
Anteil am GWP des Produkts	0,5 % (Acrylsäure)	0,0002 % (Acrylsäure)	10 % (Farbstoffe)	8 % (Flüssigkristall)

Der in Tab. 2 angeführte Datensatz „chemical factory construction, Rest-of-World (RoW)“ aus der ecoinvent Datenbank bezieht sich auf ein Kilogramm chemische Fabrik, weshalb hier ein Bezug zu einer einzelnen Kolonne nicht möglich ist. Der ökologische Einfluss der Apparate kann vor allem in der Spezialchemie einen signifikanten Anteil an den potenziellen CO<sub>2</sub>-Emissionen haben.

Die relativen CO<sub>2</sub>-Emissionen liegen zwischen 0,0002 % und 0,5 % bezogen auf die mit dem Betrieb einhergehenden sowie aus den Vorketten der Edukte resultieren CO<sub>2</sub>-Emissionen. Die Daten von Ecoinvent und Cunha et al. beziehen sich auf den Datensatz „acrylic acid production, RER“.

Eine Produktionsanlage kann, wie in Tab. 2 zu sehen, auch bis zu 10 % der potenziellen ökologischen Auswirkungen eines Prozesses in der Wirkungskategorie Klimaänderung (Global Warming) ausmachen.

Nach Cunha et al. [30] liegen die spezifischen potenziellen ökologischen Aufwendungen zur Bereitstellung einer Kolonne bei 1112 kg CO<sub>2</sub>-Äq. bei einer Kapazität von 15 L/h. Um den gesamten Lebenszyklus zu berücksichtigen, wird dieser Wert ergänzt um eine materialbezogene Instandhaltung. So werden potenzielle ökologische Auswirkungen, die aus der Instandhaltung und Wartung resultieren ebenfalls in die Betrachtungen eingebunden. Mit den in [32] angegebenen Instandhaltungsaufwendungen ergibt sich so für eine Lebensdauer von 30 Jahren in Summe ein potenzieller ökologischer Impact von 4447 kg CO<sub>2</sub>-Äq. pro Kolonne. Näheres zum Typ, Stoffsystem und den Systemgrenzen kann der Veröffentlichung entnommen werden.

Das Projekt ReProvAP adressiert aber vor allem Mono-Produktanlagen, bei welchen der Anteil der Apparate und des Equipments an den gesamtökologischen potenziellen Aufwendungen bezogen auf die Lebensdauer der Produktionsanlage in der chemischen Industrie gering ist. Dies liegt vor allem darin begründet, dass die Anlage mit hohen Durchsätzen betrieben wird,

der langen Lebensdauer der Anlage und dem vorrangig verbauten Material „Stahl“, welches im Vergleich zu Materialien wie Hastelloy oder Chromstahl, wie sie häufig in Anlagen der Spezialchemie anzutreffen sind, einen deutlich niedrigeren ökologischen Impact verursacht. Da der absolute Betrag der Differenz des ökologischen Einflusses aufgrund einer Verkleinerung der Kolonne noch geringer ausfällt, wird diese als ein zu vernachlässigbarer Effekt angesehen. Daher wurde die oben genannte Perspektive (1) im Rahmen des Projektes nicht weiterverfolgt. Die Ergebnisse in Tab. 2 zeigen, dass der wesentliche Anteil an den potenziellen CO<sub>2</sub>-Emissionen einer Kolonne ihr Betrieb ist. Aus diesem Grund fokussiert sich das Projekt auf diesen Lebenszyklusabschnitt. Der Aufwand der Datenerhebung für die anderen Lebenszyklusabschnitte stand in keinem Verhältnis zum erwarteten Anteil der damit verbundenen potenziellen Umweltwirkungen in der Wirkungskategorie „Klimaänderung“ und wird daher im Folgenden vernachlässigt.

Für die Datenerhebung werden Fließbildsimulationen verwendet, um den Bedarf an elektrischen Strom und Dampf für den Betrieb einer Kolonne zu berechnen. Die bilanziellen Ströme an Edukten und Produkten werden als konstant angenommen, da eine Kolonne für gewöhnlich feste Grenzwerte und Vorgaben hinsichtlich des Durchsatzes und der Zusammensetzung hat. Der binäre Feedstrom liegt in einem Verhältnis von 0,5 kg<sub>A</sub>/kg<sub>ges</sub> vor. Da bei den Trennkolonnen keine Reaktion stattfindet, ist somit keine Veränderung in den Molenströmen zu erwarten. Für das Ziel des Projektbereichs, die CO<sub>2</sub>-Einsparungen zu quantifizieren, ist der ökologische Einfluss der Edukte und Produkte somit irrelevant und wird aus der Betrachtung ausgeschlossen.

Als Hintergrunddatenbank wird die LCA-Datenbank ecoinvent, Version 3.8 cutoff, verwendet. Zum Berechnen der zukünftigen Entwicklungen werden mit dem Python-Tool PRemise Zukunftsprojektionen des ökologischen Einflusses der Stromerzeugung basierend auf dem Integrated Assessment Model (IAM) IMAGE verwendet.

### *AP 6.3, Modellierung der Basismodelle*

Es wurden Basismodelle zur Abschätzung des ökologischen Einflusses einer verbesserten Auslegungsmethodik mit ChemCAD erstellt. Hierbei wurde zunächst das auch in den experimentellen Arbeiten untersuchte Stoffsystem C6/C7 betrachtet. Diese Untersuchungen wurden ergänzt durch ein zusätzliches Szenario für das Stoffsystem Styrol/Ethylbenzol, da dieses ein großindustriell realisiertes typisches Beispiel ist, um durch Packungskolonnen den Energiebedarf zu senken.

Für die Szenarien wurde exemplarisch ein Feed-Massenstrom von 10 kg/h mit einer Zusammensetzung von 0,5 mol<sub>C6</sub>/mol<sub>ges</sub> angenommen. Es wird eine gleichgewichtsstufenbasierte Kolonne verwendet, bei der die Zugabe auf dem mittleren Boden erfolgt. Der Druckverlust in der Kolonne mit Böden beträgt 10 mbar/theoretische Stufe und bei Packungen 0,2 mbar/theoretische Stufe. Im Folgenden sind die einzelnen Szenarien kurz beschrieben.

#### Szenario 1 „Überdimensioniert ausgelegte Packungskolonne“

In diesem Basisszenario wird eine Kolonne mit hohen Sicherheitszuschlägen bei einem Druckverlust von 20 mbar/Stufe betrachtet. Hierfür wurde mittels einer Parameterstudie die optimale Stufenanzahl bestimmt. Produktzusammensetzung, Kopfdruck und Druckverlust pro Stufe sind dabei konstant gehalten. Von diesem Punkt ausgehend, wird für das Basisszenario eine Überdimensionierung der Stufen von 20 % angenommen. In Abb. 36 ist ein Optimum bei 45 Stufen zu entnehmen. Die für das Szenario ausgelegte Kolonne hat damit  $1,2 \cdot 45 = 54$  theoretische Stufen.

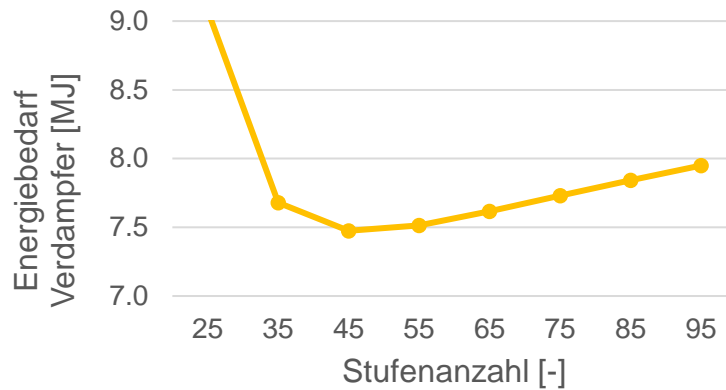


Abb. 36: Energiebedarf der Kolonne in Abhängigkeit der Stufenanzahl.

### Szenario 2 „Brüdenkompression mit geringerem Druckverlust durch kleinere Kolonne“

In diesem Szenario wird eine überdimensionierte Kolonne betrachtet, für die eine Brüdenkompression realisiert wird. Diese hat 40 Stufen und entspricht dem Fließbild in Abb. 37. Durch eine verbesserte Auslegung wird die Stufenanzahl auf 30 reduziert, wodurch sich der Druckverlust vermindert, ein kleineres Druckverhältnis am Verdichter vorliegt und weniger elektrische Energie benötigt wird.

### Szenario 3 „Revamp Bodenkolonne“

Dieses Szenario betrachtet eine Bodenkolonne. Diese hat einen Druckverlust von 10 mbar/Stufe. Durch eine verbesserte Auslegung wird die Realisierung einer Packungskolonne möglich, was den Druckverlust auf 0,2 mbar/Stufe reduziert.

### Szenario 4 „Brüdenkompression mit geringerem Druckverlust durch kleinere Kolonne und Realisierung von Packungskolonnen statt Bodenkolonne“

Szenario 4 ist eine Kombination aus den Szenarien 2 und 3. Hierfür wird das Stoffsystem Styrol/Ethylbenzol verwendet. Das Fließbild ist in Abb. 38 dargestellt.

#### *AP 6.4, Bewertung des IST-Zustandes*

Grundsätzlich wird in allen IST-Zuständen der Szenarien eine Rektifikationskolonne betrachtet, in welcher C6/C7 bzw. Styrol/Ethylbenzol voneinander getrennt werden. Dabei werden die in Abb. 39 dargestellten Systemgrenzen verwendet.

Die grauen Blöcke werden in den Untersuchungen nicht betrachtet. Wie in den vorangegangenen Abschnitten erläutert, liegt das an den sehr geringen Anteilen der Aufwendungen für die Apparateherstellung an den gesamten Aufwendungen und an der gleichzeitig schlechten Datenverfügbarkeit. Hilfsstoffe werden nicht eingesetzt und direkte Prozessemissionen nicht erwartet. Da die Mengen der eingesetzten Edukte bei den untersuchten Szenarien verschiedener Trennkolonnen (vgl. AP 6.2) gleichbleiben, werden diese in der Untersuchung zunächst nicht betrachtet. Anstelle dessen wurde sich auf den mit dem Betrieb der Kolonnen zur C6/C7-Trennung verbundenen Dampfbedarf sowie den Bedarf an elektrischem Strom für den Verdichter beschränkt.

Folgende Datensätze wurden aus ecoinvent verwendet:

- Dampf: steam production, as energy carrier, in chemical industry | RER |
- Elektrischer Strom: market for electricity, medium voltage | DE |

### AP 6.5, Definition der zu untersuchenden alternativen Lösungsoptionen (Fallstudien)

Die in AP 6.3 beschriebenen Szenarien dienen als Referenzszenarien und bilden den IST-Zustand ab. Dieser IST-Zustand spiegelt die Referenz ohne verbesserte Auslegung wider und variiert in Abhängigkeit vom Untersuchungsgegenstand. Die aus den Referenzszenarien resultierenden Untersuchungsszenarien sind in Tab. 3 gegenübergestellt.

Tab. 3: Gegenüberstellung der betrachteten Szenarien und der dazugehörigen Referenzszenarien.

Referenzszenario (IST-Zustand)	Untersuchungsszenario
1. Überdimensioniert ausgelegte Packungskolonne	Kleinere Kolonne
2. Brüdenkompression mit geringerem Druckverlust durch kleinere Kolonne	Geringerer Druckverlust Brüdenkompression
3. Bodenkolonne	Revamp Bodenkolonne
4. Bodenkolonne ohne Brüdenkompression	Packungskolonne mit Brüdenkompression

Die Grundlagen zu den betrachteten Untersuchungsszenarien sind nachfolgend dargestellt:

1. Kleinere Kolonne: Durch eine verbesserte Auslegungsmethodik können Sicherheitszuschläge reduziert und dadurch eine besser angepasste, kleinere Kolonne gebaut werden.

2. Geringerer Druckverlust Brüdenkompression: Durch eine kleinere Kolonne werden Druckverluste in der Kolonne reduziert, wodurch bei der mechanischen Brüdenkompression ein geringeres Druckverhältnis am Verdichter und damit weniger elektrische Energie benötigt wird.

3. Revamp Bodenkolonnen durch Packungskolonne: Durch eine verbesserte Auslegung können die Böden einer bestehenden Kolonne durch Packungen ersetzt werden. Hieraus ergibt sich eine höhere Trennleistung und ein geringerer Druckverlust, was eine Durchsatzsteigerung oder ein geringeres Rücklaufverhältnis und damit einhergehend einen geringeren Energiebedarf am Verdampfer zur Folge haben kann.

4. Revamp Bodenkolonnen durch Packungskolonne mit Brüdenkompression: Die bessere Auslegungsmethodik ermöglicht die Verwendung von Packungskolonnen anstelle von Bodenkolonnen. Zusätzlich lässt sich durch den geringeren Druckverlust eine Brüdenkompression realisieren, die für Bodenkolonnen nicht wirtschaftlich gewesen wäre.

### AP 6.6, Modellierung und Bewertung der Fallstudien

Die Fallstudien bzw. die daraus resultierenden CO<sub>2</sub>-Einsparungen wurden durch eine Parametervariation relevanter Prozessparameter mittels Simulate365 durchgeführt. Zu den Parametern gehörten je nach Szenario: Druckverlust, Anzahl der Stufen, Kopfdruck oder unterschiedliche Topologien, wie z. B. bei der mechanischen Brüdenkompression.

Tab. 4 zeigt die spezifischen Einsparpotentiale bezogen auf ein kg Feed sowie die absoluten CO<sub>2</sub>-Einsparungen für eine Lebensdauer von 30 Jahren und eine Produktion von 20 kt/a einer Kolonne für die vier Szenarien.

Die Ergebnisse zeigen die potenziellen CO<sub>2</sub>-Einsparungen verschiedener Szenarien auf, welche aus einer verbesserten Auslegung von Packungskolonnen resultieren könnten. Besonders hoch sind diese bei Szenario 4, welches aber auch eine Kombination der anderen Szenarien darstellt. Szenario 2 hat die geringsten Einsparungen. Hierbei ist darauf zu achten, dass dies lediglich auf den verringerten Druckverlust zurückzuführen ist und nicht auf die Technologie der Brüdenkompression selbst. Hierdurch steigt zwar bei einer kleineren Kolonne ebenfalls das Rücklaufverhältnis und damit auch die notwendige Kompressorleistung, insgesamt ist der Betriebszustand aber günstiger hinsichtlich der daraus resultierenden CO<sub>2</sub>-Emissionen.

Die Bewertung der Fallstudien zeigt, dass eine Reduktion von CO<sub>2</sub>-Emissionen simulativ quantifiziert werden kann. Die Einsparungen sind jedoch in den meisten Fällen nur gering und sie werden letztlich durch die überlegene Technologie, d. h. Packungen vs. Böden bzw. mit

Tab. 4: Spezifische und absolute CO<sub>2</sub>-Einsparungen der betrachteten Szenarien.

Nr.	Szenario	Spezifische CO <sub>2</sub> -Einsparung [kg CO <sub>2</sub> -Äq. / kg Feed]	Absolute CO <sub>2</sub> -Einsparung [t CO <sub>2</sub> -Äq.]
1	Kleinere Kolonne	0,004	2.400
2	Geringerer Druckverlust Brüdenkompression	0,0006	360
3	Revamp Bodenkolonne	0,06	36.000
4	Packungskolonne mit Brüdenkompression	0,25	150.000

vs. ohne Brüdenkompression, erzielt. In welchen konkreten Fällen eine verbesserte Auslegung zu einer Realisierung führen würde oder geführt hat, konnte nicht identifiziert werden. Eine Quantifizierung dieses Effekts bedarf umfangreicher statistischer Daten. Daten dieser Art liegen in den verschiedenen Unternehmen mutmaßlich vor, unterliegen jedoch der Geheimhaltung und konnten nicht für das Projekt bereitgestellt werden.

Außerdem bedeuten Einsparungen durch eine kleinere Kolonne für gewöhnlich auch ein steigendes Rücklaufverhältnis, womit wiederum eine Steigerung des Energiebedarfs im Sumpf einhergeht. Dieser gegenläufige Effekt überlagert Einsparungen aufgrund kleinerer Kolonnen in den meisten Fällen, eine Überdimensionierung ist aus ökologischer Sicht also teilweise vorteilhaft.

Die weiterführende Literaturrecherche zu der Frage, wie sich die Einsparpotentiale einer Kolonne als Querschnittstechnologie auf die gesamte Industrie skalieren lassen, ist aufgrund fehlender präziser Daten nicht belastbar möglich. Die Gründe hierfür sind vielschichtig:

1. Fehlende Kenntnis über die Anzahl der Kolonnen sowie deren Energiebedarfe. Es existieren zwar Zahlen hierzu in der Literatur, deren Größenordnung nach Expertenmeinungen auch stimmen müsste. Ihre Herkunft ist jedoch teilweise unbekannt oder sie stützen sich auf Umfragen aus den 80er Jahren in den USA. Demnach wären z. B. Kolonnen für ca. 43 % des Energiebedarfs der chemischen Industrie verantwortlich [33]; die Primärquelle hierfür stammt jedoch aus dem Jahr 1981 [34] und ist in Deutschland nicht verfügbar.

2. Veraltete und unvollständige Datenlage. Fundierte, belastbare Daten sind kaum zu finden. Die chemische Industrie ist nach dem Prinzip des Verbundstandortes durch eine komplexe Verschaltung verschiedener Prozesse geprägt. Die Kraftwerke sind zusätzlich mit der öffentlichen Versorgung verwoben. Eine Zuordnung von energiebezogenen CO<sub>2</sub>-Emissionen auf einzelne Apparate oder auch nur Apparatetypen wird dadurch nur schwer möglich. Selbst in der nationalen Inventarisierung von CO<sub>2</sub>-Emissionen nach dem Kyoto-Protokoll wird auf eine spezifische Erfassung der energiebedingten CO<sub>2</sub>-Emissionen für die chemische Industrie verzichtet [35].

3. Nicht eindeutig zu ziehende Grenze zwischen der öffentlichen Versorgung und der einzelnen Industriesektoren.

4. Datenerhebung und Veröffentlichung, da i. d. R. die Prozesse einer Geheimhaltung unterliegenden.

Dass eine bessere Nutzung von Energie oder Exergie in Kolonnen zu einer Reduktion von CO<sub>2</sub>-Emissionen führt, ist im Projektkonsortium unumstritten. In einem Bericht der Energiebehörde der USA wird geschätzt, dass 8 % Einsparungen aller destillierten Produkte hinsichtlich des Energiebedarfs möglich wären, würden deren Prozesse durch Forschung und Entwicklung zum praktisch möglichen Minimum transformiert [36]. Doch auch diese Studie fußt dabei auf Ergebnissen einzelner prozessspezifischer Studien, welche auf die Verfahren der größten Chemikalienproduktionen übertragen werden, obwohl sich diese Einsparpotentiale nicht zwingend für alle Prozesse gleichermaßen realisieren lassen. Die Quantifizierung von Einsparpotentialen muss daher stets individuell für den einzelnen Prozess erfolgen.

## **Teilprojekt 13 (UPB): Modellierung**

### **Projektbereich 1: Datenanalyse**

#### *AP 1.1, Sammlung und Bereitstellung von experimentellen Daten und Betriebsdaten*

Über den Projektzeitraum wurden Betriebsdaten, experimentelle Daten sowie die Auswertungen über die Projekt-Cloud von den Experimentatoren bereitgestellt oder auf den Projekttreffen präsentiert. Ergänzend wurden regelmäßig unter den Projektpartnern Literaturdaten ausgetauscht. So können z. B. aus der verfügbaren Literatur [37, 38] und Publikationen aus abgeschlossenen Projekten [39, 40] wichtige Geometriedaten entnommen werden. Anhand dieser Literaturdaten konnten Änderungen am Modell zeitnah bewertet werden, da entweder das Stoffsystem [39] oder die Strukturpackung [41] bereits erfolgreich untersucht wurden. Insbesondere [40, 42] dienten in Absprachen mit den Projektpartnern als grundlegende Quellen für die Daten der festgelegten Testgeometrie und wurden in bilateralen Gesprächen mit den beteiligten Packungsherstellern durch fehlende Informationen ergänzt.

#### *AP 1.3, Festlegung der zu untersuchenden Test-Stoffsysteme und Geometrien*

Im Rahmen eines Workshops (17.06.2021) wurde festgelegt, die etablierten organischen Stoffsysteme Chlorbenzol/Ethylbenzol (CB/EB) und Cyclohexan/*n*-Heptan (C6/C7) mit idealem Trennverhalten zu untersuchen. Da in den Messzellen geringe Konzentrationsdifferenzen erzielt werden, steht zu Beginn das weitersiedende System C6/C7 im Fokus, um den Einfluss der Analytik zu reduzieren. Für den Bereich der weitsiedend-wässrigen Systeme wurden zwei mögliche Gemische vereinbart: Ethanol/Wasser (EtOH/H<sub>2</sub>O) und Wasser/Monoethylenglycol (H<sub>2</sub>O/MEG). Die Kategorie der weitsiedend-organischen Systeme soll anhand des Test-Stoffsystems Ethanol/1-Butanol (EtOH/BuOH) untersucht werden. In der Klasse der hochviskosen Gemische soll das System 2-Methyl-2-butanol/2-Methyl-1-propanol (MB/MP) untersucht werden.

Weitere Systeme der einzelnen Stoffklassen, insbesondere mit erhöhten Sicherheitsanforderungen, wurden im Laufe des Projektes ausgeschlossen. Im Laufe des Projektes wurde der Fokus der simulativen Arbeit auf die Beschreibung der Unterschiede zwischen experimentellen Daten innerhalb einer Stoffklasse und stoffklassenübergreifend gelegt.

Für die Test-Geometrie wurden nicht perforierte Standardpackungen mit zwei unterschiedlichen Neigungswinkeln und spezifischen Oberflächen der Firma Sulzer Chemtech AG (Mellapak<sup>TM</sup> 500.X/Y und Mellapak<sup>TM</sup> 350.X/Y) vorgeschlagen. Im Verlauf des Projektes wurde zugunsten der Herstellervielfalt eine Reduktion der untersuchten Packungstypen beschlossen, sodass zwei Packungen mit einer spezifischen geometrischen Oberfläche von 500 m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup> und einem Neigungswinkel von 45° der Firma Sulzer Chemtech AG und RVT Process Equipment GmbH untersucht wurden.

### **Projektbereich 3: Modellierung und Simulation**

#### *AP 3.1, Datenbeschaffung*

Aufgrund der vielfältigen Stoffauswahl stehen einheitliche und belastbare Stoffdaten im Vordergrund. Bereits genutzte Korrelationen zur Berechnung der Stoffdaten wurden zu Beginn des Bearbeitungszeitraums um fehlende Parameter der potenziellen Stoffsysteme aus Literaturquellen ergänzt. Für die Berechnung des Phasengleichgewichts, insbesondere der nicht idealen Systeme, werden die Aktivitätskoeffizienten durch die UNIFAC-Methode berechnet. Die gute Datenlage hinsichtlich der UNIFAC-Parameter ermöglicht die Verwendung vielfältiger Stoffsysteme.

Im Projektverlauf wurden angepasste Parametersätze für DIPPR-Gleichungen, die Antoine-Gleichung sowie das NRTL-Modell für die ausgewählten Stoffsysteme durch die BASF zur Verfügung gestellt und fortlaufend verwendet. Für die ausgewählten Test-Geometrien stehen hinsichtlich der relevanten Geometrieparameter ausreichend Literaturdaten zur Verfügung

oder konnten in bilateralen Gesprächen mit den Packungsherstellern ergänzt werden. RVT lieferte darüber hinaus eine Blechprobe der angefertigten Packung sowie technische Zeichnungen der Mikrostruktur.

Die Bestimmung der effektiven Phasengrenzfläche und damit der Benetzungseigenschaften aus den CFD-Simulationen für alle relevanten Test-Geometrien war aufgrund fehlender Geometriedaten nicht möglich. Zusätzlich sind bei den betrachteten Skalen (DN50 bis max. DN250) Randeffekte und insbesondere die Benetzung der Wand nicht zu vernachlässigen. Diese Informationen fehlen in den CFD-Ergebnissen aus AP 3.4 aufgrund des repräsentativen Ausschnitts aus der Packungsmitte, wohingegen empirische Korrelationen durch integrale Messungen angepasst werden und diese Informationen enthalten. In Absprache mit den Projektpartnern wird für organische Systeme die Korrelation für die effektive spezifische Phasengrenzfläche nach dem Delft-Modell [17] und für wässrige Systeme die Korrelation von Tsai [43] verwendet.

### AP 3.3, Aufstellung geeigneter HA-Modelle

Die geplante Erweiterung des HA-Modells zur Anwendung für die Rektifikation mit endlichem Rücklauf wurde abgeschlossen. Das Modell wurde um einen externen Feed, Abzüge am Kopf und Sumpf sowie um die Kopplung der internen Ströme durch ideale Peripherie erweitert. Das Modell wurde für ein 3-Komponenten-System Methanol/Ethanol/Wasser anhand von Literaturdaten validiert und im Projektzeitraum veröffentlicht [44].

Da die Trennleistungsmessungen im unendlichen Rücklauf stattfinden, wurde das Modell für den unendlichen Rücklauf um die ideale Peripherie erweitert, sodass eine Kopplung der internen Ströme auch hier möglich ist. Durch die im Projekt vereinbarte Bettmittenkonzentration von 0,5 mol% Leichtsieder ist keine Angabe der Sumpf- oder Kopfkonzentration für eine prädiktive Vorhersage der Trennleistung nötig. Alternativ können entweder die Konzentration im Sumpf oder im Kopf für eine Trennleistungssimulation vorgegeben werden. Des Weiteren wurde die grundlegende Analogie der Fluidodynamik um Erkenntnisse aus vergangenen Arbeiten erweitert, insbesondere für hochviskose Systeme ist die mögliche Ausbildung von sog. „Zwickelflüssigkeit“ an den Kontaktstellen der Packungslagen zu berücksichtigen [45]. Die Berechnungsroutinen für die Stoffdaten sowie das Phasengleichgewicht wurden mit den bereitgestellten Parametersätzen aus AP 3.1 angepasst.

Zur Modellierung der turbulenten Gasphase im HA-Modell wurden für die vereinbarten Geometrien CFD-Simulationen zur Bestimmung der turbulenten Viskosität durchgeführt. Wie in vorherigen Arbeiten [44] wurden einphasige Strömungssimulationen an einem repräsentativen Element (Abb. 40, links) unter Variation der Reynoldszahl durchgeführt, um den Turbulenzparameter unter Berücksichtigung der Strömungsgeschwindigkeiten und Stoffeigenschaften zu ermitteln.

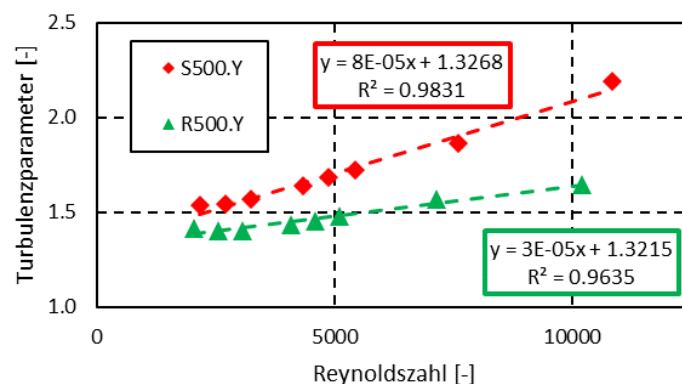
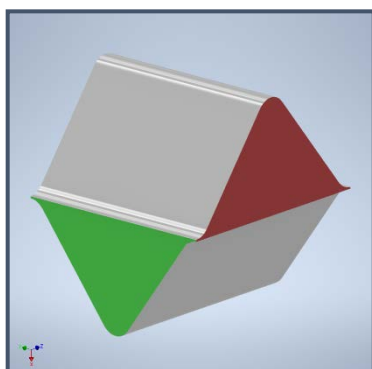


Abb. 40: Exemplarische Darstellung eines repräsentativen Packungsausschnitts (links). Darstellung des ermittelten Turbulenzparameters aus den CFD-Simulationen in Abhängigkeit der Reynoldszahl (rechts).

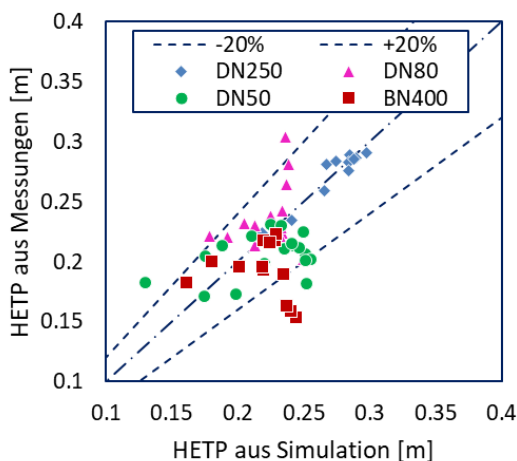
Das HA-Modell ist ursprünglich für die Betrachtung industrieller Anlagen entwickelt worden;

hierbei ist der Einfluss des Oberflächen-zu-Volumen-Verhältnisses vernachlässigbar klein. Dies war für die betrachteten Skalen nicht möglich, weshalb das Modell um einen Randspalt zwischen Packungsbett und Kolonnenwand erweitert wurde. Für das Packungsbett und den Randspalt wird jeweils ein physikalisches Modell erstellt und gelöst, wobei die Umlenkung der Gasphase an der Kolonnenwand beide Modellbereiche miteinander verbindet. Diese Modellerweiterung wurde im Rahmen eines Vortrags auf zwei Fachtagungen vorgestellt [46,47].

Ebenfalls wurde ein Modell für die im PB 4 entwickelten Messzellen aufgestellt. Die grundlegende hydrodynamische Analogie konnte beibehalten werden. Aufgrund des rechteckigen Querschnitts mussten die Berechnung der Fluidbelastung sowie die Berechnung der Modellparameter angepasst werden. Insbesondere die Berechnung der Modellkanäle und der freien Mischungslängen der Gasphase mussten angepasst werden. Dabei haben alle Modellparameter weiterhin einen direkten Bezug zur realen Geometrie.

#### AP 3.4, Validierung der CFD-Simulationen und der HA-Modelle

Die Validierung des HA-Modells für den endlichen Rücklauf kann der Publikation [44] entnommen werden.



	Mittelwert für Ergebnisse bei unterschiedlichen F-Faktoren			
	DN50	DN80	DN250	BN400
HETP Messungen	0,205 m	0,236 m	0,272 m	0,193 m
HETP Simulation	0,221 m	0,224 m	0,272 m	0,218 m
Relative Abw.	14,85 %	9,34 %	2,31 %	8,48 %

Abb. 41: Paritätsdiagramm für DN50, DN80 und DN250 sowie die Messzelle mit der Nennbreite BN400 (links). Mittelwerte der Messungen und Simulationen aus dem Paritätsdiagramm (rechts).

Die Erweiterung des HA-Modells für den unendlichen Rücklauf hat bei kleinen Nenndurchmessern zu einer maximalen Verbesserung der relativen Abweichung um 5 % geführt. Insgesamt liegen die Ergebnisse innerhalb des 20 %-Vertrauensintervalls (Abb. 41), und die mittlere relative Abweichung nimmt mit steigendem Nenndurchmesser ab.

#### AP 3.5, Sensitivitätsanalyse

Aus den Vorarbeiten zu AP 5.1 wurden Einflussgrößen für den HETP-Wert definiert und eine Umrechnungsformel von einem Referenzsystem auf ein Testsystem vorgeschlagen. Der Quotient der HETP-Werte wird mit dem Produkt der Quotienten aller Einflussgrößen, bezogen auf das Testsystem und das Referenzsystem, gleichgesetzt und mit einem Exponenten versehen. Die Exponenten dieser Gleichung müssen in einer Simulationsstudie bestimmt werden [3]. Neben dem Einfluss der Stoffdaten werden mit der HA-Methode die Einflüsse verschiedener Packungstypen und unterschiedlicher Kolonnendimensionen untersucht.

#### AP 3.6, Auswertung der Simulationsergebnisse

Durch die erfolgreiche Erweiterung des Modells um den Randspalt der Kolonne können die spezifischen geometrischen Oberflächen der gesamten Kolonne sinnvoll abgebildet werden und zeigen den erwarteten Trend bei steigenden Nenndurchmessern. Hieraus resultiert, dass eine hydraulische Unabhängigkeit vom Nenndurchmesser ermittelt werden kann und diese für den HETP-Wert erkennbar ist. Für den betrachteten Packungstyp können Wandeffekte bereits ab DN250 vernachlässigt werden. Derselbe Trend kann für die Nennbreite (BN) gezeigt werden (Abb. 42).

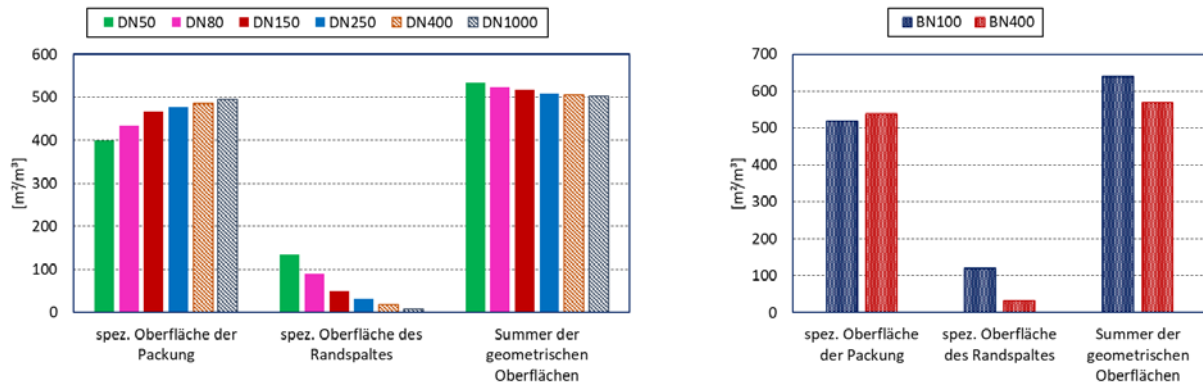


Abb. 42: Darstellung der gesamten sowie einzelnen spezifischen geometrischen Oberflächen der Packung und zusätzlicher Oberflächen im Randspalt (Wand- und Randabweiserflächen) für unterschiedliche Dimensionen in konventionelle Kolonnen (links) und Messzellen (rechts).

Die prädiktiven Simulationen zeigen für den totalen Rücklauf mit vollständiger Kopplung der Ströme bei steigenden Fluidbelastungen einen Anstieg im HETP-Wert, der sich einem asymptotischen Verlauf annähert. Dadurch wird die Trennleistung bei sehr geringen Belastungen leicht überschätzt und in der Nähe des Staupunktes unterschätzt. Im Mittel eliminieren sich die Abweichungen, sodass für weite Belastungsbereiche eine gute Übereinstimmung gewährleistet ist.

Ebenfalls konnte durch die Variation der Mittenkonzentration eine nicht zu vernachlässigende Konzentrationsabhängigkeit des HETP-Wertes bereits für das ideal-engsiedende System C6/C7 gezeigt werden. Diese Abhängigkeit nimmt mit steigendem Trennfaktor, z. B: für EtOH/BuOH, deutlich zu (Abb. 43). Im Allgemeinen werden HETP-Werte nur über den F-Faktor angegeben. Diese Ergebnisse legen jedoch nahe, dass eine zusätzliche Angabe zum Konzentrationsbereich, z. B. die Triebkraft, eine sinnvolle Ergänzung wäre.

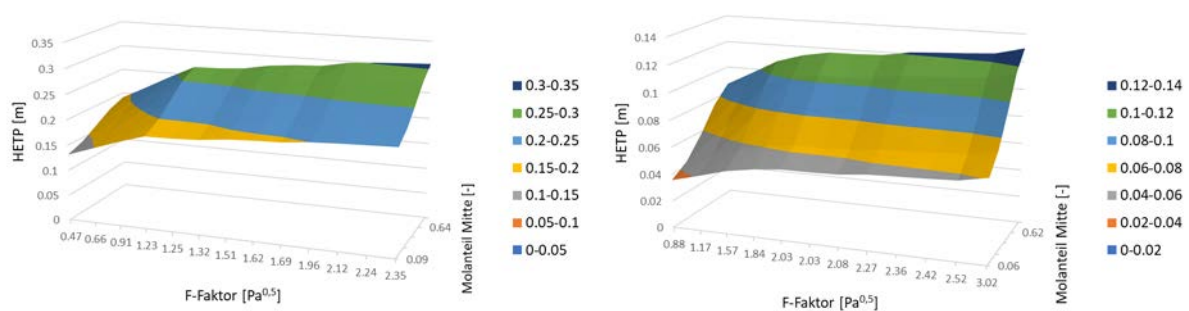


Abb. 43: Darstellung der HETP-Werte bei steigender Gasbelastung sowie unterschiedlichen Konzentrationsbereichen, durch die Vorgabe der Mittenkonzentration für ein engsiedendes System C6/C7 (links) und ein weitsiedendes System EtOH/BuOH (rechts).

### AP 3.7, Ergebnisverwertung für die verbesserte Auslegungsmethodik

Aus den Simulationsstudien zur Variation der Modellparameter  $z_G$  und  $z_L$  aus AP 3.5 wurden Exponenten für einen Skalierungsansatz für den Scale-Up von einer Referenzgeometrie (RG) auf eine Testgeometrie (TG) und einen Übertragungsansatz von einer Referenzpackung (RP) auf eine Testpackung (TP) bestimmt (Abb. 44).

$$HETP_{TG} = HETP_{RG} \cdot \left( \frac{z_G^{TG}}{z_G^{RG}} \right)^n \quad (1)$$

$$HETP_{TP} = HETP_{RP} \cdot \left( \frac{z_L^{TP}}{z_L^{PG}} \right)^n \quad (2)$$

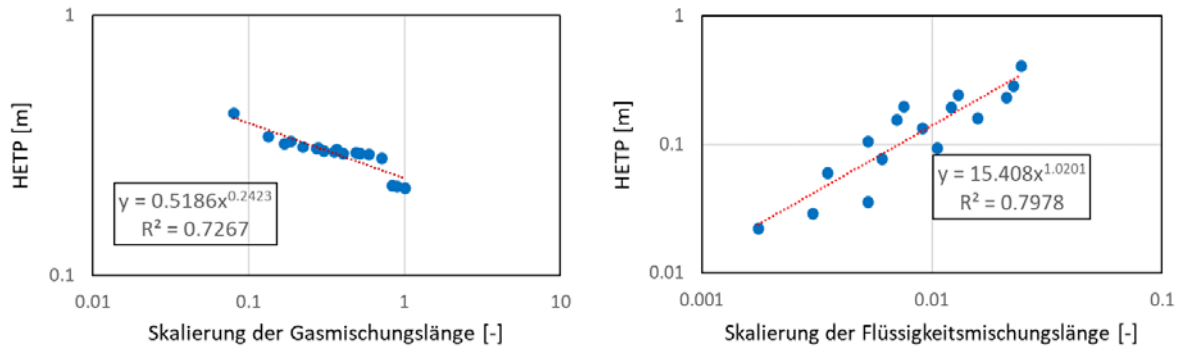


Abb. 44: Doppeltlogarithmische Darstellung der HETP-Werte unter Variation der Gasmischungslänge (links) und der Mischungslänge der Flüssigkeit (rechts).

## Projektbereich 5: Entwicklung einer neuen Methodik zur Auslegung

### AP 5.1, Identifikation der Abhängigkeiten von Betriebsparametern und HETP-Wert

Neben den erwarteten Einflüssen der Stoffdaten legt die Auswertung der Simulationsstudien nahe, dass sich die Modellparameter der hydrodynamischen Analogie für den Scale-Up und die Übertragbarkeit auf weitere Packungstypen eignen. Insbesondere die freien Mischungslängen der Gas- und Flüssigkeitsphase haben einen direkten Bezug zur untersuchten Packungsgeometrie bzw. Kolonnendimension und können mit bekannten Abmessungen berechnet werden. Die Modellparameter vereinen mehrere vorgeschlagene Einflussgrößen der Skalierungsgleichung und führen somit zu einer Reduktion der enthaltenen Skalierungsfaktoren. Eine Herleitung der dieser beiden Parameter kann der Literatur entnommen werden [45].

### AP 5.2, Entwicklung neuer und/oder Erweiterung bestehender Berechnungsansätze

Analog zum bekannten Scale-Up-Schema nach Eiden et al. [1] können prädiktiv bestimmte Übertragungsfaktoren aus den Simulationsstudien verwendet werden. So kann z. B. auf Basis der Experimente im Labormaßstab DN50, unter Berücksichtigung des ermittelten hydraulisch unabhängigen Durchmessers DN250, mit der Skalierungsgleichung Gl. (1) eine gute Übereinstimmung mit publizierten Messungen im Industriemaßstab DN1000 erzielt werden [48]. Die relative Abweichung des berechneten HETP-Werts lag für dieses Beispiel bei 7,5 %, wobei die im Industriemaßstab verwendete Packung eine konventionelle Sulzer Mellapak™ 500.Y war. Anhand der experimentellen Ergebnisse der Messzelle BN400 können gute Abschätzungen der HETP-Werte für Packungen mit geringeren spezifischen geometrischen Oberflächen mit Gl. (2) erzielt werden. Die HETP-Werte der Testpackungen wurden ebenfalls der Literatur entnommen [48]. Für die spezifischen geometrischen Oberflächen von 125, 250 und 350  $m^2/m^3$  lagen die relativen Abweichungen innerhalb eines 10 %-Vertrauensintervalls. Die Übertragung auf ein anderes Stoffsystem kann mit den CFD-Ergebnissen nach Xia et al. [3] erfolgen.

## Beiträge der assoziierten Partner

### BASF SE

BASF unterstützte das Verbundprojekt mit vielfältigen Aktivitäten und engagierte sich in fünf von sechs Projektbereichen. Die Schwerpunkte lagen in den Bereichen PB 1: Festlegung Stoffsysteme und Geometrien, PB 2: Experimentelle Untersuchungen und PB 4: Entwicklung von Messzellen. BASF nahm an allen mehrtägigen Präsenzworkshops und allen virtuellen Arbeitsgruppentreffen mit mindestens einem Experten teil (Details siehe Zwischenberichte).

#### PB 1: Festlegung Stoffsysteme und Geometrien

BASF unterstützte bei der Festlegung der in PB 2 und PB 4 zu vermessenden Stoffsysteme und bei der Auswahl geeigneter Packungsstrukturen, wobei Destillationserfahrungen aus Miniplant- und Industriemaßstab einfließen (AP 1.3).

#### PB 2: Experimentelle Untersuchungen

Im Rahmen von AP 2.1 stellte BASF für drei der definierten Systeme (Cyclohexan/n-Hexan; Ethanol/Wasser; Ethanol/1-Butanol) validierte Stoffdaten bereit. Darüber hinaus wurde ein Excel-basiertes Tool zur Auswertung von Trennleistungsmessungen zur Verfügung gestellt, dessen Code die Grundlage für die spätere allgemeine Auswerterroutine der TUB darstellte.

Innerhalb von AP 2.2 wurden Trennleistungsmessungen im Miniplant-Maßstab (DN50) mit den in AP 1.3 zugewiesenen Stoffsystemen Cyclohexan/n-Heptan (C6/C7); Ethanol/Wasser (EtOH/H<sub>2</sub>O); Ethanol/1-Butanol (EtOH/ButOH) mit der Packung S500.Y (Fa. Sulzer) durchgeführt.

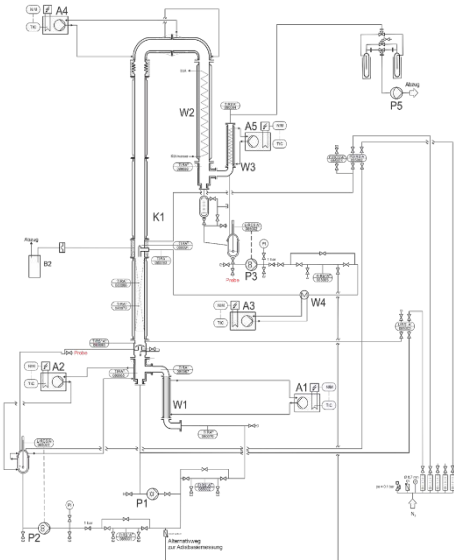


Abb. 1: Fließbild der Versuchskolonnen.



Abb. 2: Versuchsaufbau.



Abb. 3: Packungselement S500Y mit Ansicht eines Lagenbleches.

Die Untersuchungen zur Bestimmung des HETP-Wertes wurden unter unendlichem Rücklauf bei 300 und 950 mbara Kopfdruck durchgeführt. Exemplarisch werden im Folgenden die Ergebnisse für 950 mbara dargestellt:

Abb. 4: HETP-Wert unterschiedlicher Stoffsystem bei 950 mbara.

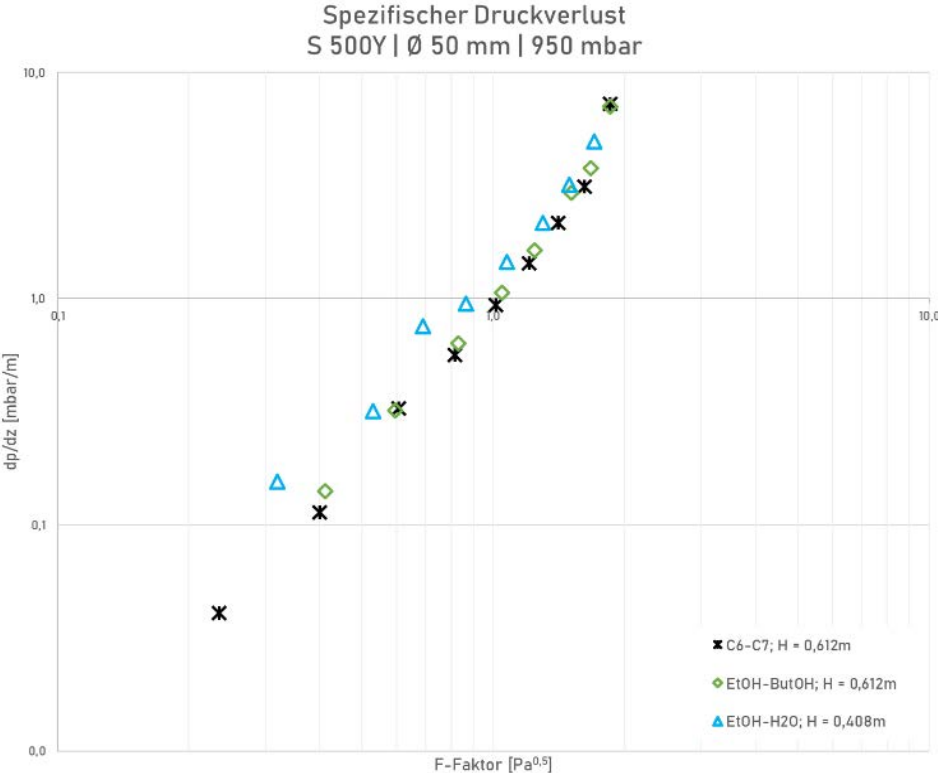


Abb. 5: Spezifischer Druckverlust unterschiedlicher Stoffsystem bei 950 mbara.

Darüber hinaus wurden Stichversuche zum Einfluss der Rücklauf­temperatur und der Schutzheizungseinstellungen auf den HETP-Wert durchgeführt und intensiv mit allen Projektpartnern diskutiert.

Alle Versuchsergebnisse wurden den Partnern zur Verfügung gestellt und in die zentrale Datenbasis aufgenommen (AP 1.4), womit sie für weitergehende Auswertungen und für die Entwicklung einer neuen oder verbesserten Auslegungsmethodik für Packungskolonnen (AP 5.1 bis 5.3) zur Verfügung stehen.

#### **PB 4: Entwicklung von Messzellen**

BASF unterstützte bei Konzeption und Design der Messzellen, brachte Erfahrungen und Anforderungen aus industrieller Sicht ein und stellte für Fragen kompetente Ansprechpartner zur Verfügung (AP 4.1).

Der Bau der Messzellen, sowie die Beschaffung von erforderlichem Equipment wurden durch direkte Finanzierung unterstützt (Details siehe Zwischenberichte) (AP 4.2).

Der ursprünglich angestrebte Transfer einer Messzelle nach Ludwigshafen und die Untersuchung weiterer stark nicht-idealer Stoffsysteme mit besonderer Industrierelevanz konnten aus zeitlichen Gründen innerhalb der Projektlaufzeit nicht durchgeführt werden (AP 4.6).

## **Evonik Operations GmbH**

Evonik hat sich maßgeblich an der Konkretisierung der Projekt-Zielstellungen beteiligt und aktiv innerhalb des Konsortiums eingebracht. Evonik partizipierte aktiv an sämtlichen Projekt-treffen, den Experimentatortreffen und auch an mehreren Austauschrunden Online und vor Ort. Des Weiteren wurde bei Evonik der Doktorandentag organisiert und durchgeführt, der zum intensiven Austausch mit aller am Projekt beteiligten Doktoranden sowie die Besichtigung des experimentellen Aufbaus bei Evonik ermöglichte. Veröffentlichungen der Projektergebnisse auf Konferenzen und peer-reviewed Journals wurden von Evonik unterstützt und Input sowie Feedback gegeben. Weiter wurden GC-Analytikmethoden innerhalb des Konsortiums geteilt.

### **PB 1: Analyse Betriebsdaten und Literaturdaten; Festlegung Stoffsysteme**

Erfahrungen aus Versuchsdaten aus dem Betrieb wurden dem Konsortium bereitgestellt und gemeinsam diskutiert (AP 1.1 und AP 1.2), dies beinhalten unter anderem die Eignung von Stoffsystemen und der Verwendung passender Strukturpackungen (AP1.3). Neu generierte experimentelle Daten wurden dem Konsortium für die Erweiterung der Datenbasis zur Verfügung gestellt (AP 1.4)

### **PB 2: Experimentelle Untersuchungen zur Trennleistung**

Seitens Evonik wurde ein experimenteller Teststand mit einem Nenndurchmesser DN80 und einer effektiven Packungshöhe von 612 mm aufgebaut. Die innerhalb des Konsortiums ausgewählten Packungen wurden im Teststand untersucht. Einerseits wurden trockene Druckverlustmessungen mit Stickstoff und mit Eigendampf der entsprechenden Stoffsysteme durchgeführt. Andererseits wurden die Trennleistungen der von RVT bereitgestellten Packung bei den beiden Drücken 960 mbara und 300 mbara für die Stoffsysteme C6/C7, EtOH/ButOH, EtOH/Wasser bestimmt (AP 2.2). Bei der Versuchsdurchführung wurde sich an die gemeinsam festgelegt experimentelle Methodik gehalten, welche innerhalb des Konsortiums erarbeitet wurde und bei den Erfahrungen seitens Evonik eingeflossen sind (AP 2.1). Industrielle Erfahrungen hinsichtlich der Maßstabsübertragung (AP 2.5) und der Stoffsystemübertragung (AP 2.6) wurden im Konsortium geteilt sowie Input bei der Aggregation der Daten gegeben (AP 2.4).

### **PB 5: Entwicklung einer neuen Auslegungsmethodik**

Im Rahmen der Entwicklung einer neuen Auslegungsmethodik zum Scale-Up von Destillationskolonnen konnte im Rahmen des Projektes wichtige Erkenntnisse und Regeln (AP 5.2) gewonnen beziehungsweise formuliert werden, die innerhalb des Konsortiums erarbeitet und gemeinsam diskutiert wurden. Hierzu gehört auch die anfängliche Identifikation relevanter Abhängigkeiten von Betriebsparametern auf den HETP-Wert (AP 5.1). Input für einen erweiterten Berechnungsansatz mittels der neu entwickelten Messzellenkonzepte wurde seitens Evonik eingebracht (AP 5.2). Die Validierung der entwickelten Erkenntnisse und Regeln werden von Evonik unterstützt (AP 5.4). Eine konkrete Auslegungsmethodik konnte jedoch innerhalb des Projektes nicht formuliert werden und somit auch nicht adäquat validiert werden.

### **PB 6: Integrierte Lebenszyklusbetrachtungen**

Die Quantifizierung des CO<sub>2</sub>- und Energie-Einsparungspotential durch die Entwicklung einer erfolgreichen Auslegungsmethodik für Packungskolonnen wurde seitens Evonik durch industrielle Erfahrungen und Daten und relevanter Fallbeispiele unterstützt und mitbewertet (AP 6.1, AP 6.2, AP 6.5 und AP 6.6).

## **INEOS Phenol GmbH**

### **PB 1: Analyse Betriebsdaten und Literaturdaten; Festlegung Stoffsysteme**

AP 1.1 bis AP 1.4

Im Projektbereich 1 wurde seitens INEOS Phenol evaluiert, welche Stoffsysteme aus den zur Verfügung stehenden Prozessanlagen für die anschließenden Projektphasen, insbesondere der experimentellen Arbeiten, in den Versuchsanlagen der verschiedenen Projektpartner verwendet werden könnten. In der Diskussion mit den beteiligten Projektpartnern erwies sich letztendlich keines der bei INEOS Phenol eingesetzten Stoffsysteme als geeignet, um die aufgestellten Kriterien (u. a. Gefahrstoff, Trennfaktor, Siedepunktdifferenz) zu erfüllen.

Aufgrund der in Projektbereich 1 definierten Stoffsysteme konnten für den weiteren Projektverlauf dementsprechend keine Betriebsdaten von INEOS Phenol zur Verfügung gestellt werden, welche zu dem Projekterfolg hätten beitragen können.

Der abgeschätzte Aufwand für die Zusammenstellung, Aufbereitung und Analyse der Betriebsdaten sowie Aufwendungen zur Vorbereitung, Probenanalyse und Auswertung von Betriebsversuchen ist entsprechend nur in begrenztem Umfang abgerufen worden.

### **PB 5: Entwicklung einer neuen Auslegungsmethodik**

AP 5.1 bis AP 5.4

Im Projektbereich 5 wurde insbesondere durch die Teilnahme an den halbjährlichen Projekttreffen ein Beitrag zu der Entwicklung einer neuen Auslegungsmethodik geleistet.

Daneben wurde in bilateralen Meetings an der konzeptionellen Entwicklung der Messzellen mitgewirkt.

## **Linde GmbH**

### **PB 1: Analyse Betriebsdaten und Literaturdaten; Festlegung Stoffsysteme**

Linde lieferte Beiträge zu den Diskussionen über die Festlegung der Stoffsysteme und der Analyse von Betriebsdaten und Literaturdaten im Rahmen der Gesamtprojekttreffen in München (09/2021, 2 Personen), Braunschweig (05/2022, 1 Person), Paderborn (11/2022, 1 Person), Berlin (05/2023, 2 Personen), Bochum (11/2023, 2 Personen) und Nürnberg (05/2024, 2 Personen).

### **PB 3: Modellierung und Simulation von Strömungs- und Transportprozessen in strukturierten Packungen**

Linde lieferte Beiträge zu den Diskussionen über die Modellierung und Simulation von Strömungs- und Transportprozessen in strukturierten Packungen im Rahmen der Gesamtprojekttreffen in München (09/2021, 2 Personen), Braunschweig (05/2022, 1 Person), Paderborn (11/2022, 1 Person), Berlin (05/2023, 2 Personen), Bochum (11/2023, 2 Personen) und Nürnberg (05/2024, 2 Personen).

Im Rahmen der Gesamtprojekttreffen in Braunschweig, Paderborn, Berlin, Bochum und Nürnberg präsentierte Linde den Fortschritt der Entwicklung eines CFD-Lösers, mit welchem die Fluidodynamik und der Stofftransport in realen Kolonnen modelliert werden kann (AP 3.2). Der Hauptaspekt besteht dabei, den Einfluss folgender Effekte auf den Stoffaustausch quantitativ, zumindest aber relativ, vorhersagen zu können.

- Toleranzen in der Packungsfertigung
- Toleranzen beim Packungseinbau (z. B. lokale Bypässe im Bett aufgrund Packungsstöße sowie Randspalt)
- Einfluss der Randabweiser
- Schiefstand der Kolonne
- Einfluss des Verteilers.

Der CFD-Löser basiert auf dem OpenFOAM® Löser multiPhaseEulerFoam. In dem Ansatz wird die Strömung entlang gegenüberliegenden Packungsblechen getrennt betrachtet [49]. Es ergeben sich dadurch sechs Pseudo-Phasen, jeweils eine linksläufige und eine rechtsläufige (zwei Festkörper/Packungsbleche, zwei Flüssigkeiten, zwei Gase). In den Bereichen außerhalb der Packung (Randspalt, Packungsstöße, sowie Verteilerbereich) wird eine geeignete numerische Methodik verwendet, so dass die beiden Flüssigkeits- und die beiden Gas-Pseudo-Phasen jeweils durch eine Flüssigkeit- und Gas-Spezies beschrieben werden. Für die Interaktion zwischen Flüssigkeit und Gas in einem Kanal, sowie den Pseudo-Phasen in den gegenüberliegenden Kanälen wurden geeignete Sub-Modelle hergeleitet. Besonderes Augenmerk wurde daraufgelegt, dass die Strömung quer und entlang zur Kanalrichtung korrekt beschrieben werden können sowie dem Austausch zwischen den Pseudo-Phasen in den gegenüberliegenden Kanälen. Außerdem wurden weitere Sub-Modelle z. B. zur Beschreibung der Phasengrenzfläche hergeleitet. Das Modell ist so aufgesetzt, dass keine generellen Bedingungen an die Zellgröße des Rechengitters gestellt werden müssen und entsprechend keine detaillierte Auflösung der Packungsbleche oder Kreuzungspunkte notwendig ist. Dies ist erforderlich, um ganze Kolonnen mit Packungen hoher Oberfläche simulieren zu können.

Parallel zu der Entwicklung sind experimentelle Arbeiten bei Linde durchgeführt worden, um Parameter der einzelnen Sub-Modelle fitten zu können und eine Datenbasis für eine Validierung des CFD-Lösers zu generieren (AP 3.1). Diese experimentellen Arbeiten umfassten einen Prüfstand zur Gas-Tracer-Messung, um die Gas-Dispersion in einzelnen Packungslagen für verschiedene Packungstypen messen zu können. Dieser Prüfstand wurde

darüber hinaus verwendet, um die Anisotropie der Widerstände zwischen Gas und Packung sowie den Gesamtdruckverlust einer Packung mittels Vergleiches der Ergebnisse zwischen Simulation und Messung zu validieren. Überdies wurde ein Tomographie-Messstand genutzt, um die Flüssigkeits-Dispersion und Anisotropie der Widerstände zwischen Flüssigkeit und Packung messen und vergleichen zu können.

Die experimentellen Daten sind mit dem neu entwickelten Tool nachgerechnet worden und die Ergebnisse verglichen sowie eingehend diskutiert worden (AP 3.4).

#### **PB 5: Entwicklung einer neuen Auslegungsmethodik**

Linde lieferte Beiträge zu den Diskussionen über die Entwicklung einer neuen Auslegungsmethodik zur Vorausberechnung der Stofftrennleistung strukturierter Packungen im Rahmen der Gesamtprojekttreffen in München (09/2021, 2 Personen), Braunschweig (05/2022, 1 Person), Paderborn (11/2022, 1 Person), Berlin (05/2023, 2 Personen), Bochum (11/2023, 2 Personen) und Nürnberg (05/2024, 2 Personen).

## **SULZER CHEMTECH AG**

Im Rahmen des Verbundprojektes ReProvAP hat SULZER CHEMTECH das Teilprojekt 10 bearbeitet und im Rahmen dessen strukturierte Packungen (S500.Y) für Messzellen und Versuchskolonnen bei verschiedenen Projektpartnern produziert und geliefert.

### **PB 1: Analyse Betriebsdaten und Literaturdaten; Festlegung Stoffsysteme**

### **PB 2: Experimentelle Untersuchungen zur Trennleistung**

### **PB 4: Entwicklung von Messzellen**

### **PB 5: Entwicklung einer neuen Auslegungsmethodik**

In PB 2 wurde die S500.Y in der Sulzer eigenen Versuchskolonne mit einem Innendurchmesser von 250 mm vermessen. Die Trennleistungsmessungen wurden gemäß der Vorarbeiten in PB 1 mit C6/C7 in einem 1 m hohen Packungsbett durchgeführt. Für die Trennleistungsmessungen wurden verschiedene Proben entlang der Kolonne – auch in der Mitte des Packungsbetts – gezogen. Für die Analytik wurde eine eigene GC-Methode aufgesetzt. Alle Proben wurden parallel auch bei den Projektpartnern der TU Braunschweig sowie der TU Berlin analysiert: die Resultate der Sulzer-Methode wurden von beiden Projektpartnern vollumfänglich bestätigt (Zuarbeit für PB 4).

Das C6/C7 Gemisch wurde mit zwei verschiedenen Konzentrationsbereichen (75 mol% und 50 mol% Leichtsiederanteil in der Packungsmitte) vermessen. Die unterschiedlich gemessenen Trennleistungen spiegeln die Erwartungen wider.

Zusätzlich wurden trockene Druckabfälle vermessen. Sämtliche Ergebnisse entsprechen den Erwartungen und sind vergleichbar mit vergangenen Messungen vom FRI (Fractionation Research Inc., Stillwater, OK) bzw. den Berechnungen mit SulCol (Sulzers hydraulisches Auslegungsprogramm) – PB 5.

In einer zweiten Messkampagne zu PB 2 wurden Messungen mit dem Stoffsystem Chlorbenzol/Ethylbenzol (CB/EB) in einem höheren Packungsbett in der 250 mm Innendurchmesser Kolonne zusammen mit dem Projektpartner der TU Berlin durchgeführt. Die Rektifikationsmessungen erfolgten bei Umgebungsdruck sowie im Vakuum. Zusätzlich wurde die Temperatur direkt im Flüssigkeitsverteiler gemessen, um die Rücklaufunterkühlung abzuschätzen.

Die Messergebnisse der S500.Y ergaben eine etwas niedrigere Effizienz als für eine handelsübliche Mellapak<sup>TM</sup> Packung. Die Ursache für die reduzierte Effizienz wurde in der fehlenden Lochung identifiziert. Die Unterkühlung des Rücklaufes wurde mit wenigen Kelvin Differenz im Vergleich zur Kopftemperatur bestimmt und wird gemäß PB 1 als nicht kritisch angesehen.

## Erklärungen

Während der Durchführung des Vorhabens ist den Zuwendungsempfängern kein nennenswerter Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen bekannt geworden.

### Technische Universität München

Die Technische Universität München hat Projektkosten in Höhe der ursprünglichen Planung ausgegeben. Der größte Teil der Förderung wurde für Personalkosten aufgewendet, gefolgt von Reisekosten für In- und Auslandsreisen. Eine detaillierte Auflistung der Kosten, sowie etwaiger Mehr- und Minderausgaben, befindet sich im Verwendungsnachweis und im Erfolgskontrollbericht der Technischen Universität München.

Für die Bearbeitung der Aufgabenstellung des Projektes war die Anstellung von wissenschaftlichen Mitarbeitern notwendig, da vor allem der Arbeitsplan im Projektbereich 3 für die Technische Universität München sehr umfangreich war. Die tiefgehende Überarbeitung der Stoffübergangs-simulationen waren für das Projekt auch in diesem Umfang angemessen und notwendig und hätten ohne eine Förderung nicht durchgeführt werden können. Weiters wurden mit der Förderung Teilnahmen auf nationalen (z. B. Jahrestreffen der ProcessNet-Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik) und internationalen wissenschaftlichen Konferenzen (z. B. 12th International Conference on Distillation & Absorption (D&A), AIChE Annual Meeting 2023) ermöglicht, bei denen der Projektfortschritt vorgestellt und diskutiert werden konnte. Durch den Austausch mit nationalen und internationalen Expertinnen und Experten konnten wertvolle Impulse gewonnen werden, die maßgeblich zur erfolgreichen Projektbearbeitung beigetragen haben.

Die wissenschaftlichen Ergebnisse fließen bereits in der Lehre an der Technischen Universität München ein, z. B. in Module der Master-Studiengänge Chemieingenieurwesen und Energie- und Prozesstechnik.

Die Projektergebnisse wurden bereits teilweise in Zeitschriftenartikeln veröffentlicht, weiterhin sind zwei Dissertationen zu den Projektinhalten in Arbeit. Aspekte der Weiterentwicklung der Simulationen werden auch für weitere Forschungsprojekte adaptiert.

Aufbauend auf den erzielten wissenschaftlichen Ergebnissen sind Anschlussvorhaben geplant. Es wurde bereits eine Skizze für ein Folgeprojekt mit einer ähnlichen Konsortiumszusammensetzung und einem ähnlichen Projektumfang eingereicht.

### ENVIMAC Engineering GmbH

ENVIMAC Engineering GmbH hat Projektkosten in Höhe der ursprünglichen Planung ausgegeben, dabei entfiel der überwiegende Teil, entsprechend der Planung, auf Personalkosten. Am Projekt beteiligt waren insbesondere hochqualifizierte Ingenieure aus dem Bereich Verfahrenstechnik und Maschinenbau. Einen weiteren Schwerpunkt bildeten die Materialkosten, hier wurden Mittel aufgewendet für Ersatz- und Verschleißteile der eingesetzten Versuchsanlage sowie für laufende Betriebsmittel wie Chemikalien. Die Reisekosten sind dagegen durch sparsamen Mitteleinsatz geringer ausgefallen als geplant. Dafür waren durch Preissteigerungen die Materialkosten etwas höher als ursprünglich geplant. Die Gesamtkosten des Vorhabens wurden jedoch nicht überschritten. Weitere Kosten sind nicht angefallen. Eine detaillierte Auflistung der Kosten, befindet sich im Verwendungsnachweis und im Erfolgskontrollbericht.

Das für die Bearbeitung der Aufgabenstellung des Projektes eingesetzte Personal verfügte teils über mehr als 40 Jahre Erfahrung auf dem Gebiet der Stofftrennung in

Packungskolonnen, daneben wurden auch Nachwuchingenieure im Projekt eingesetzt, die auf diese Weise wertvolle Erfahrung auf dem bearbeiteten Gebiet sammeln konnten. Zur Durchführung war der Personaleinsatz angemessen und notwendig. Aufgrund der Komplexität des Vorhabens hätten das Vorhaben ohne eine Förderung nicht durchgeführt werden können. Der Einsatz der Materialien wie Chemikalien für die Stofftrennversuche, Verbrauchsmittel für die Versuchsanlage und Analytik erfolgte unter üblichen ökonomischen Gesichtspunkten und war daher ebenfalls angemessen. Es wurden nur notwendige Mittel eingesetzt.

Hauptziele des Teilprojektes ENVIMAC im Rahmen von ReProvAP waren die Durchführung von Stofftrennversuchen im Labormaßstab, sowie die technische Koordination des Projektes, dazu gehört unter anderem die Literaturrecherche, Auswertung von Messungen, Beratung und Diskussion mit den Projektpartnern. Durch die Tätigkeiten im Projekt wurden die Stofftrenneigenschaften von verschiedenen Stoffsystemen experimentell in mehreren Skalen untersucht, und Unterschiede mit unterschiedlichen Strategien ausgewertet. Ziel war dabei die Erklärung der Unterschiede und die Ableitung der Folgen daraus für die Auslegung von industriellen Stofftrennapparaten. Kennzeichen des Industriemaßstabes ist eine Übertragbarkeit der Ergebnisse auf reale Prozesse. Für dieses Scale-up lieferte das Projekt bereits wertvolle Hinweise. Insofern liefert RePRovAP einen Beitrag zu folgenden förderpolitischen Zielen im Bereich Energieforschung:

-innovative Produkte und Dienstleistungen zur Ressourceneffizienz:

Durch die verbesserte Auslegung von Stofftrennapparaten kann Energie zum Betrieb der Anlagen eingespart werden. Der Energieaufwand zum Betrieb von Kolonnen, insbesondere Rektifikationskolonnen wird beeinflusst durch den Druckverlust und die Trennleistung. Der Energieeintrag durch Dampf oder elektrische Energie ist bei optimal ausgelegten Kolonnen geringer, dadurch werden Ressourcen eingespart.

- Stärkung der heimischen Wirtschaft

Durch die Projektergebnisse wird die Wettbewerbsfähigkeit von ENVIMAC als produzierendes KMU gestärkt. Die Auslegung und der Bau von Kolonnen zur Stofftrennung gehört zu den wichtigsten Tätigkeitsbereichen von ENVIMAC im Bereich der Ingenieurdienstleistung sowie des Anlagenbaus. Durch den Erkenntnisgewinn aus dem Projekt verfügt ENVIMAC über neuartige Erkenntnisse, die direkt in die tägliche Arbeit der Kolonnenauslegung einfließen. Die Ergebnisse sichern bereits gewonnenes Know-how ab und erweitern es signifikant, sodass Kunden effizienter ausgelegte Apparate bzw. Anlagen angeboten werden können. Insofern liefert das Projekt einen Beitrag zur Stabilisierung des Unternehmens, Sicherung von Umsätzen und dadurch Arbeitsplätzen, sowohl im produzierenden als auch im hochqualifizierten Bereich.

Die Teilnahme am Projekt sowie die gewonnene Expertise werden auf der Internetpräsenz von ENVIMAC und mit anderen Werbemaßnahmen vorgestellt. Im Zuge der anhaltenden Bestrebungen, Prozesse effizienter zu gestalten, werden auch von Kunden verstärkt angefragte Anlagenlösungen nach Effizienzkriterien bewertet, daher wird die verbesserte Auslegung zu effizienteren Prozessen führen und damit zu attraktiveren Lösungsangeboten von ENVIMAC. Auch werden die gewonnenen Erkenntnisse fließen in die hauseigene Auslegungssoftware von ENVIMAC ein, die Ergebnisse sind daher unmittelbar für Mitarbeiter von ENVIMAC zugänglich.

Das Projekt RePRovAP ist abgeschlossen. Allerdings ergeben sich während des Projektes weitere Fragestellungen, die in einem Anschlussvorhaben bearbeitet werden können.

Es wurde bereits eine Skizze für ein Folgeprojekt mit einer ähnlichen Konsortiumszusammensetzung und einem ähnlichen Projektumfang eingereicht, ENVIMAC beteiligt sich an diesem Anschlussvorhaben.

## Ruhr-Universität Bochum

Die Ruhr-Universität Bochum hat Projektkosten in Höhe der ursprünglichen Planung ausgegeben. Der größte Teil der Förderung wurde für Personalkosten aufgewendet, gefolgt von allgemeinen Verwaltungsausgaben und Investitionen. Eine detaillierte Auflistung der Kosten, sowie etwaiger Mehr- und Minderausgaben, befindet sich im Verwendungsnachweis und im Erfolgskontrollbericht der Ruhr- Universität Bochum.

Für die Bearbeitung der Aufgabenstellung des Projektes war die Anstellung eines wissenschaftlichen Mitarbeiters, phasenweise auch eines zweiten und die Beschäftigung einer wissenschaftlichen Hilfskraft notwendig, da gerade der Aufbau einer neuen Messzelle sehr umfangreich war. Die detaillierten Vorversuche und Charakterisierung der Messzelle waren für das Projekt auch in diesem Umfang angemessen und notwendig und hätten ohne eine Förderung nicht durchgeführt werden können. Weiters wurden mit der Förderung Teilnahmen auf nationalen (z. B. Jahrestreffen der ProcessNet-Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik) und internationalen wissenschaftlichen Konferenzen (z. B. 12th International Conference on Distillation & Absorption (D&A)) ermöglicht, bei denen der Projektfortschritt vorgestellt und diskutiert werden konnte. Durch den Austausch mit nationalen und internationalen Expertinnen und Experten konnten wertvolle Impulse gewonnen werden, die maßgeblich zur erfolgreichen Projektbearbeitung beigetragen haben.

Das Beispiel der Messzelle als miniaturisierter und innovativer Versuchsaufbau für den Informationsgewinn wird bereits in der Lehre an der Ruhr-Universität Bochum diskutiert, z. B. im Master-Modul Verfahrensentwicklung und Anlagenplanung.

Die Projektergebnisse wurden bereits teilweise in Tagungsbänden veröffentlicht, weiterhin befindet sich ein Zeitungsartikel im Einreichungsprozess und es ist eine Dissertation zu den Projekthinhalten in Arbeit.

Aufbauend auf den erzielten wissenschaftlichen Ergebnissen sind Anschlussvorhaben geplant. Es wurde bereits eine Skizze für ein Folgeprojekt mit einer ähnlichen Konsortiumszusammensetzung und einem ähnlichen Projektumfang eingereicht.

## RVT Process Equipment GmbH

Die bei RVT Process Equipment entstandenen Projektkosten liegen innerhalb des ursprünglich geplanten Budgets. Der größte Teil der Förderung wurde für Personalkosten aufgewendet. In Zusammenarbeit mit allen Projektbeteiligten hat RVT aktiv mitgewirkt bei der Auswertung des aktuellen Stands der Technik bzw. bei der Analyse der verfügbaren Messdaten (PB1), bei der Festlegung der in PB2 und PB4 zu vermessenden Stoffsysteme und bei der Definition von Anforderungen an die zu entwickelnden Messzellen sowie bei der Entwicklung einer verbesserten Auslegungsmethodik für Packungskolonnen. Weiterhin wurde ein nennenswerter Anteil der Förderung für die Herstellung der bereitgestellten strukturierten Packungen im Labor- und Pilotmaßstab für die Projektpartner ENVIMAC (DN50) und TUBS (DN50 & DN150) aufgewendet. Ein kleinerer Teil der Förderung wurde für Reisekosten im Rahmen des zweimal jährlich stattfindenden Projekttreffen aufgewendet.

Für die fachliche Mitwirkung im Projekt wurden zwei promovierte Ingenieure ausgewählt, die eine hohe Fachexpertise im Bereich der strukturierten Packungen und der Auslegung von Packungskolonnen mitbringen. Mithilfe dieser Expertise und der Flexibilität in der Herstellung strukturierter Packungen am Standort Deutschland, konnte RVT nach Abstimmung der geometrischen Ausführung der Packungen, die notwendigen Mengen an strukturierter Packungen gemäß den Abmessungen der Kolonnen im vereinbarten Zeitplan passend genau geliefert werden. RVT hat zudem aktiv bei der Analyse und Bewertung der umfangreichen Messdaten mit unterschiedlichen Anlagenkonfigurationen unterstützt,

insbesondere bei den Partnern, bei denen RVT-Packungen verbaut wurden. Weiterhin konnte durch die Mitwirkung von RVT eine breite experimentelle Datenbasis zur Trennleistung von verschiedenen strukturierten metallischen Packungen im Standard-Referenzsystem im Labor- (SRP, DN450) und Industriemaßstab (FRI, DN1220), zur Integration und Erweiterung der Datenbasis, zur Nutzung in der simulativen Arbeiten sowie bei der Entwicklung der Auslegungsmethodik zur Verfügung gestellt werden.

Durch die Ergebnisse aus dem Projekt konnte RVT ein vertieftes Verständnis für die Auslegung von Trennaufgaben mit Strukturpackungen gewonnen werden.

Für neue/nicht vollständig vermessene Stoffsysteme bietet die entwickelte Messzelle zusammen mit der entwickelten Auslegungsmethodik, die Möglichkeit, einfacher Aussagen über die Trenneffizienz zu erhalten und damit Anfragen schneller in Auslegungen umzusetzen. Auch können dann evtl. Kolonnenauslegungen erstellt werden, die bisher für RVT nicht zugänglich waren.

Weiterhin führen die gewonnenen Ansätze und Trennergebnisse unter Anwendung der entwickelten Messzellen zu einer wesentlich erhöhten Auslegungssicherheit von Packungskolonnen mit signifikant weniger zeitlichem und finanziellem Aufwand als in den bisherigen Labor- und Technikums-Kolonnen, wodurch Sicherheitszuschläge im „scale-up“ und dadurch indirekt Investitionen und Betriebskosten sowie die damit verbundenen klimarelevanten Prozessemissionen reduziert werden. Dies versetzt RVT kurz- und mittelfristig in die Lage, energie- und ressourcenschonendere sowie ökonomisch wettbewerbsfähigere trenntechnische Auslegungen anbieten zu können.

Daneben werden die Ergebnisse und Ideen mittelfristig auch in die Entwicklung neuer Packungsstrukturen einfließen, mit denen sich Prozesse (energie-) effizienter gestalten lassen.

Die Ergebnisse aus dem Projekt werden vertrieblich in Kundengesprächen, Veröffentlichungen und Vorträgen verwertet. Ein Konsortiumspaper ist in Zusammenarbeit mit allen Projektbeteiligten bereits erschienen. Die Anwendung der neuen Ansätze und Berechnungsmethoden zur Auslegung von energieoptimierten Packungskolonnen werden in den RVT-Prozessen implementiert, so dass kommerzieller Erfolg bereits kurz- und mittelfristig zu erwarten ist. Die Anwendung der Messzelle zur Absicherung der Auslegung für neue, unbekannte stark nicht-idealisierte Systeme wird gegebenenfalls im Betracht gezogen. Aufbauend auf den erzielten wissenschaftlichen Ergebnissen sind Anschlussvorhaben geplant. Es wurde bereits eine Skizze für ein Folgeprojekt mit einer ähnlichen Konsortiums-Zusammensetzung und einem ähnlichen Projektumfang eingereicht.

## Technische Universität Berlin

Die Technische Universität Berlin hat Projektkosten in Höhe der ursprünglichen Planung ausgegeben. Der größte Teil der Förderung wurde für Personalkosten aufgewendet, gefolgt von Investitionskosten für den Bau der Messzelle. Eine detaillierte Auflistung der Kosten, sowie etwaiger Mehr- und Minderausgaben, befindet sich im Verwendungsnachweis und im Erfolgskontrollbericht der Technischen Universität Berlin.

Für die Bearbeitung der Aufgabenstellung des Projektes war die Anstellung von wissenschaftlichen Mitarbeitern notwendig, da vor allem der Arbeitsplan im Projektbereich 5 für die Technische Universität Berlin von entsprechender Komplexität war. Das Design, die Konstruktion und der Betrieb der neuen Messzelle hätten ohne eine Förderung nicht durchgeführt werden können. Darüber hinaus wurden mit der Förderung Teilnahmen auf nationalen (z. B. Jahrestreffen der ProcessNet-Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik) und internationalen wissenschaftlichen Konferenzen (AIChE Annual Meeting 2023) ermöglicht, bei

denen der Projektfortschritt vorgestellt und diskutiert werden konnte. Durch den Austausch mit nationalen und internationalen Expertinnen und Experten konnten wertvolle Impulse gewonnen werden, die maßgeblich zur erfolgreichen Projektbearbeitung beigetragen haben. Die Projektergebnisse wurden bereits teilweise in Zeitschriftenartikeln veröffentlicht, weiterhin ist eine Promotion zu den Projektinhalten in Arbeit. Aspekte der Weiterentwicklung der Messzelle werden auch für weitere Forschungsprojekte adaptiert.

Aufbauend auf den erzielten wissenschaftlichen Ergebnissen sind Anschlussvorhaben geplant. Es wurde bereits eine Skizze für ein Folgeprojekt mit einer ähnlichen Konsortiumszusammensetzung und einem ähnlichen Projektumfang eingereicht.

## Technische Universität Braunschweig

Die TU Braunschweig hat Projektkosten in Höhe der ursprünglichen Planung ausgegeben. Der größte Teil der Förderung wurde für Personalkosten aufgewendet, gefolgt von Sachmitteln für die experimentellen Untersuchungen und Reisekosten für In- und Auslandsreisen. Eine detaillierte Auflistung der Kosten, sowie etwaiger Mehr- und Minderausgaben, befindet sich im Verwendungsnachweis und im Erfolgskontrollbericht der TU Braunschweig.

Wie in der eingehenden Darstellung der Forschungsarbeiten ausgeführt waren die für die Bearbeitung eingesetzten personellen und sächlichen Aufwendungen notwendig und angemessen für die Erreichung der Projektziele. Die Arbeiten im PB1 erforderten insbesondere den Einsatz einer komplexen Versuchsanlage. Nur durch Einsatz dieser Versuchsanlage konnten die Trennleistungsmessungen und die Methodenentwicklung experimentell im größeren Maßstab untersucht und die Daten für eine verbesserte Auslegungsmethodik von Packungskolonnen gewonnen werden.

Im PB 6 mussten für die Abschätzung der Einsparpotentiale Prozessmodelle und Simulationen von verschiedenen Beispielprozessen erstellt werden. Dazu wurden umfangreiche Literaturrecherchen und Gespräche mit verschiedenen Industriepartnern, u.a. in Form von Workshops, durchgeführt.

Aufgrund von Verzögerungen im Projektfortschritt wurde die Bearbeitungszeit kostenneutral verlängert. Dadurch konnten die angestrebten Projektziele vollumfänglich erreicht werden. Die Ergebnisse des Projekts ReProvAP eröffnen zahlreiche Anwendungsmöglichkeiten in der Wissenschaft und Industrie, besonders durch Fortschritte in der Standardisierung von Trennmethoden und der präzisen Messung von Trennleistungen für nicht-ideale Gemische. Die gesammelten Daten bilden eine wertvolle Grundlage für spätere Forschungsarbeiten und die Auswahl geeigneter Testsysteme. Zudem dient die Datenbasis als Referenz für zukünftige Kooperationen mit akademischen und industriellen Partnern.

Das Projekt förderte den wissenschaftlichen Nachwuchs an der TU Braunschweig durch studentische und Promotionsarbeiten. Erkenntnisse wurden auf Konferenzen präsentiert und in Publikationen veröffentlicht. Für die TUBS ergeben sich aus dem Projekt sowohl anwendungsorientierte als auch grundlegende Forschungsfragen, z. B. zur Fluidodynamik und Tropfenbildung durch Perforationen. Diese Forschung könnte zu einer signifikanten Steigerung der Trennleistung und zur Reduktion von CO<sub>2</sub>-Emissionen beitragen.

Die im Projekt entwickelten und aufgebauten Anlagen und deren Dokumentation ermöglichen eine langfristige Nutzung. Zukünftige Forschungsfelder könnten die Optimierung von Destillationsprozessen in Kooperation mit Industriepartnern umfassen, insbesondere zur Implementierung in konkrete Produktionsinfrastrukturen. Es wurde bereits eine Skizze für ein Folgeprojekt mit einer ähnlichen Konsortiumszusammensetzung und einem ähnlichen Projektumfang eingereicht.

## Universität Paderborn

Die Universität Paderborn hat Projektkosten in Höhe der ursprünglichen Planung ausgegeben. Der größte Teil der Förderung wurde für Personalkosten aufgewendet, gefolgt von Reisekosten für Projekttreffen und Konferenzteilnahmen. Eine detaillierte Auflistung der Kosten sowie etwaiger Mehr- und Minderausgaben befindet sich im Verwendungsnachweis und im Erfolgskontrollbericht der Universität Paderborn.

Für die Bearbeitung der Aufgabenstellung des Projekts war die Anstellung eines wissenschaftlichen Mitarbeiters notwendig. Die Erweiterung des Modellierungsansatzes zum direkten Vergleich unterschiedlicher und insbesondere kleinskaliger Trennapparate war für das Projekt in diesem Umfang angemessen und notwendig und hätte ohne eine Förderung nicht durchgeführt werden können. Weiterhin wurden mit der Förderung Teilnahmen an nationalen (z. B. Jahrestreffen der ProcessNet-Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik) wissenschaftlichen Konferenzen ermöglicht, bei denen der Projektfortschritt vorgestellt und diskutiert werden konnte. Durch den Austausch mit Expertinnen und Experten aus industrieller und akademischer Forschung konnten wertvolle Impulse gewonnen werden, die maßgeblich zur erfolgreichen Projektbearbeitung beigetragen haben.

Die im Rahmen dieses Vorhabens erzielten Ergebnisse werden an der Universität Paderborn im Zuge der Reakkreditierung der Studiengänge Maschinenbau, Chemieingenieurwesen und Wirtschaftsingenieurwesen in das Mastercurriculum integriert. Dies ist beispielsweise in den Modulen „Simulationsgestützte Auslegung von Trennapparaten“ geplant.

Eine Veröffentlichung der Projektergebnisse in einem Zeitschriftenartikel befindet sich aktuell in Arbeit; weiterhin fließen die Projektinhalte in eine Dissertation ein. Aspekte der Weiterentwicklung des Modellierungsansatzes werden für weitere Forschungsprojekte adaptiert. Aufbauend auf den erzielten wissenschaftlichen Ergebnissen sind Anschlussvorhaben geplant.

## Veröffentlichungen im Projektzeitraum

### Technische Universität München

#### *Publikationen:*

Xia, M.; Neumann, M.; Rehfeldt, S.; Klein, H.: Improving design and scale-up of columns with structured *packings by means of CFD*. Chemical Engineering Research and Design 193, 2023, S. 54-64. <https://doi.org/10.1016/j.cherd.2023.03.019>.

Ein gemeinsames Verbundpaper zur Standardisierung von Trennleistungsmessung unter Federführung der TU München befindet sich derzeit in Vorbereitung. Je eine Dissertation als Monografie zum Thema KI-Ansätze zur Trennleistungsvorhersage und CFD-Simulationen in strukturierten Packungen befinden sich in Arbeit und werden noch veröffentlicht.

#### *Konferenzbeiträge:*

Rehfeldt, S.: *ReProvAP – Reduction of climate-relevant process emissions by an improved design of structured packing columns*. AIChE Pulse, 2021

Neumann, M.; Xia, M.; Rehfeldt, S.; Klein, H.: *Auslegung und Scale-up von Kolonnen mit strukturierten Packungen mit Hilfe von CFD*. Jahrestreffen der ProcessNet-Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Hochdruckverfahrenstechnik, 2022.

Xia, M.; Neumann, M.; Rehfeldt, S.; Klein, H.: *Improving Design and Scale-up of Columns with Structured Packings by Means of CFD*. 12th international conference on Distillation & Absorption (D&A), 2022.

Rehfeldt, S.: *ReProvAP – Reduzierung der klimarelevanten Prozessemissionen durch die verbesserte Auslegung von strukturierten Packungskolonnen*. KlimPro Statuskonferenz, 2023

Xia, M.; Rehfeldt, S.; Klein, H.: *Numerische Simulation der Fluidodynamik und des Stofftransports einer Zweiphasenströmung in strukturierten Packungen*. Jahrestreffen der DECHEMA-Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Adsorption, 2023.

Neumann, M.; Rehfeldt, S.; Klein, H.: *Improving Design and Scale-up of Columns with Structured Packings Using Artificial Intelligence*. 14th European Congress of Chemical Engineering and 7th European Congress of Applied Biotechnology, 2023.

Xia, M.; Rehfeldt, S.; Klein, H.: *Numerical Simulation of Fluid Dynamics and Mass Transfer of a Two-phase Flow in Structured Packings*. 14th European Congress of Chemical Engineering and 7th European Congress of Applied Biotechnology, 2023.

Neumann, M.; Rehfeldt, S.; Klein, H.: *Improving Design and Scale-up of Columns with Structured Packings Using Artificial Intelligence*. AIChE Annual Meeting, 2023.

Xia, M.; Rehfeldt, S.; Klein, H.: *Numerical Simulation of Fluid Dynamics and Mass Transfer of a Two-phase Flow in Structured Packings*. AIChE Annual Meeting, 2023.

Neumann, M.; Xia, M.; Rehfeldt, S.; Klein, H.: *ReProvAP in Retrospective: Improving the Design Process of Distillation Columns with Structured Packings*. AIChE Annual Meeting, 2024.

Xia, M.; Rehfeldt, S.; Klein, H.: *Looking Inside Structured Packings: Numerical Investigations of Distillation Using OpenFOAM*. AIChE Annual Meeting, 2024.

## Ruhr-Universität Bochum

### *Publikationen:*

Geplant sind eine Veröffentlichung und eine Dissertation.

### *Konferenzbeiträge:*

Merkel, A. et al.: *Ein neuer experimenteller Ansatz zur Bestimmung von HETP-Werten strukturierter Packungen mithilfe geometrisch variabler Miniaturmesszellen*. Jahrestreffen der ProcessNet-Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Hochdruckverfahrenstechnik, 2022.

Merkel, A. et al.: *A new experimental approach to determine HETP values of structure packings using a miniaturized measuring cell*. Jahrestreffen der ProcessNet und DECHEMA-BioTechNet, 2022.

Merkel, A. et al.: *Experimental studies on the fluid dynamics of a miniaturized measuring cell for an improved design procedure of distillation columns*. 12th international conference on Distillation & Absorption (D&A), 2022.

Merkel, A. et al.: *Charakterisierung einer Miniaturmesszelle für die genauere Bestimmung von HETP-Werten strukturierter Packungen*. Jahrestreffen der ProcessNet-Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Adsorption, 2023.

Merkel, A. et al.: *Charakterisierung einer miniaturisierten Destillationsmesszelle mit einem Standardstoffsystem*. Jahrestreffen „Prozess-, Apparate- und Anlagentechnik“, 2023.

Merkel, A.; Grünewald M.: *Charakterisierung einer Miniaturmesszelle für die Bestimmung von HETP-Werten strukturierter Packungen*. Jahrestreffen der DECHEMA/VDI-Fachgruppe Fluidverfahrenstechnik, 2024.

## Technische Universität Berlin

### Publikationen:

R. Pöschmann, J. Paschold, S. Mueller, L.-S. Harding, N. Lachmann, C. Hiller, I. Ausner, A. Gäbler, M. Illner, G. Brösigke, J.-U. Repke (2023): *Will laboratory and pilot plant columns soon become superfluous? – a concept for the determination of structured packing characteristics in a measuring cell under distillation conditions*. Separation and Purification Technology 325 124617. doi.org/10.1016/j.seppur.2023.124617.

R. Pöschmann, P. Goerdten, I. Ausner, A. Gäbler, G. Brösigke, J.-U. Repke (2025): *Measuring cells as a potential tool for the design and retrofit of columns with structured packings*. Separation and Purification Technology 353 128011. doi.org/10.1016/j.seppur.2024.128011.

### Konferenzbeiträge:

Merkel, A. et al.: *Ein neuer experimenteller Ansatz zur Bestimmung von HETP-Werten strukturierter Packungen mithilfe geometrisch variabler Miniaturmesszellen*. Jahrestreffen der ProcessNet-Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Hochdruckverfahrenstechnik, 2022.

Pöschmann et al.: *Labor- und Technikumskolonnen bald überflüssig?* Jahrestreffen der DECHEMA-Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Adsorption, 2023.

Pöschmann et al.: *Will laboratory and pilot plant columns soon be superfluous?* AIChE Annual Meeting, 2023.

Pöschmann, R., Brösigke, G., Ausner, I., Gäbler, A., Repke, J.-U.: *Eine Messzelle als Designwerkzeug für Destillationskolonnen mit strukturierten Packungen*. Jahrestreffen der DECHEMA-Fachgruppe Fluidverfahrenstechnik, 2024.

Ehlert, T., Pöschmann, R., Müller, S., Paschold, J., Brösigke, G., Repke, J.-U., Riese, J., Kenig, E.: *Modellierung kleinskaliger Trennapparate mit Strukturpackungen und der Scale-Up mit dem Ansatz der hydrodynamischen Analogien*. Jahrestreffen der DECHEMA-Fachgruppe Fluidverfahrenstechnik, 2024.

Brösigke et al.: *Measuring Cells as a Design Tool for Columns with Structured Packings*. AIChE Spring Meeting, 2024.

Weiterhin wurden die Arbeiten in Form eines Artikels bei der AIChE Separation Division für den PhD Award 2024 vorgeschlagen und der Projektbearbeiter erhält für seine Arbeiten den Separation Division Jose Bravo GSRA Award 2024, was u. a. für die weltweite Wahrnehmung dieser Arbeiten zu werten ist.

## Technische Universität Braunschweig

### Publikationen:

R. Staud, K. Schröder, K. Mesarek, J. Schröder, R. Herbst, K. Jasch, S. Scholl (2024): *Impact of Thermal Column Wall Conditions and Subcooled Reflux on Separation Performance in Miniplant Distillation Columns*. Separation and Purification Technology. <https://dx.doi.org/10.2139/ssrn.4939755>.

Diese in AP 2.5 und AP 2.6 beschriebenen Ergebnisse zum Maßstabs- und Stoffsystemtransfer sind Gegenstand geplanter Veröffentlichungen in Form einer Dissertation (Cuvillier Verlag, Göttingen).

### Konferenzbeiträge:

R. Staud; J. Schröder; X. Zhang; K. Jasch; S. Scholl: *Experimentelle Analyse von Einflüssen bei der Durchführung standardisierter Trennleistungsmessungen an strukturierten Packungen im Labor- und Technikumsmaßstab*. Jahrestreffen der DECHEMA-Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Adsorption, 2023.

Staud, R., Schröder, K., Klinke, T., Schröder, J., Jasch, K., Scholl, S.: *Measurement of separation performances of structured packings with ideal and non-ideal mixtures using distillation plants in DN50 and DN150 scale*. 14th European Congress of Chemical Engineering and 7th European Congress of Applied Biotechnology.

## Universität Paderborn

### *Publikationen:*

Die dargestellten Ergebnisse sind Gegenstand einer geplanten Dissertation.

### *Konferenzbeiträge:*

T. Ehlert, N. Lutters, E.Y. Kenig: *Modellierung des Randspalts in Strukturpackungskolonnen mit dem Ansatz der hydrodynamischen Analogien*. Jahrestreffen der DECHEMA-Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Adsorption, 2023.

Ehlert, T., Pöschmann, R., Müller, S., Paschold, J., Brösigke, G., Repke, J.-U., Riese, J., Kenig, E.: *Modellierung kleinskaliger Trennapparate mit Strukturpackungen und der Scale-Up mit dem Ansatz der hydrodynamischen Analogien*. Jahrestreffen der DECHEMA-Fachgruppe Fluidverfahrenstechnik, 2024.

## Literatur

- [1] U. Eiden, R. Kaiser, G. Schuch, D. Wolf (1995): *Scale-up von Destillationskolonnen*. Chemie Ingenieur Technik, 67: 269-279. <https://doi.org/10.1002/cite.330670303>.
- [2] M. Neumann, M. Xia, S. Rehfeldt, H. Klein: *Auslegung und Scale-up von Kolonnen mit strukturierten Packungen mit Hilfe von CFD*. Jahrestreffen der ProcessNet-Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Hochdruckverfahrenstechnik, 2022.
- [3] M. Xia, M. Neumann, S. Rehfeldt, H. Klein (2023): *Improving design and scale-up of columns with structured packings by means of CFD*. Chemical Engineering Research and Design, 193: 54-64. doi:10.1016/j.cherd.2023.03.019.
- [4] M. Xia, M. Neumann, S. Rehfeldt, H. Klein: *Improving Design and Scale-up of Columns with Structured Packings by Means of CFD*. 12th international conference on Distillation & Absorption (D&A), 2022.
- [5] M. Xia, S. Rehfeldt, H. Klein: *Numerische Simulation der Fluidodynamik und des Stofftransports einer Zweiphasenströmung in strukturierten Packungen*. Jahrestreffen der DECHEMA-Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Adsorption, 2023.
- [6] M. Xia, S. Rehfeldt, H. Klein: *Numerical Simulation of Fluid Dynamics and Mass Transfer of a Two-phase Flow in Structured Packings*. 14th European Congress of Chemical Engineering and 7th European Congress of Applied Biotechnology, 2023.
- [7] M. Xia, S. Rehfeldt, H. Klein: *Numerical Simulation of Fluid Dynamics and Mass Transfer of a Two-phase Flow in Structured Packings*. AIChE Annual Meeting, 2023.
- [8] J. A. Rocha, J. L. Bravo, J. R. Fair (1996): *Distillation Columns Containing Structured Packings: A Comprehensive Model for Their Performance: 2. Mass-Transfer Model*. Industrial & Engineering Chemistry Research, 35: 1660-1667. doi:10.1021/ie940406i.
- [9] R. Billet, M. Schultes (1993): *Predicting Mass Transfer in Packed Columns*. Chemical Engineering & Technology, 16: 1-9.
- [10] R. Billet, M. Schultes (1999): *Prediction of Mass Transfer Columns with Dumped and Arranged Packings*. Chemical Engineering Research & Design, 77: 498-504. doi:10.1205/026387699526520.
- [11] B. Hanley, C.-C. Chen (2012): *New Mass-Transfer Correlations for Packed Towers*. AIChE Journal, 58 (1): 132-152. doi:10.1002/aic.12574.
- [12] B. Hanley (2014): *Letter to the Editor*, AIChE Journal, 60 (5): 1953. doi:10.1002/aic.14437.
- [13] M. Neumann, S. Rehfeldt, H. Klein: *Improving Design and Scale-up of Columns with Structured Packings Using Artificial Intelligence*. 14th European Congress of Chemical Engineering and 7th European Congress of Applied Biotechnology, 2023.
- [14] M. Neumann, S. Rehfeldt, H. Klein: *Improving Design and Scale-up of Columns with Structured Packings Using Artificial Intelligence*. AIChE Annual Meeting, 2023.
- [15] M. Neumann, M. Xia, S. Rehfeldt, H. Klein: *ReProvAP in Retrospective: Improving the Design Process of Distillation Columns with Structured Packings*. AICHEMA, 2024.
- [16] Z. Olujic, A. B. Kamerbeek, J. de Graauw (1999): *A Corrugation Geometry Based Model for Efficiency of Structured Distillation Packing*. Chemical Engineering and Processing, 38: 683-695. doi:10.1016/S0255-2701(99)00068-9.

- [17] Z. Olujic, M. Behrens, L. Colli, A. Paglianti (2004): *Predicting the efficiency of corrugated sheet structured packings with large specific surface area*. Chemical and Biochemical Engineering Quarterly, 18 (2): 89–96.
- [18] Z. Olujic, M. Behrens, L. Spiegel (2007): *Experimental Characterization and Modeling of the Performance of a Large-Specific-Area High-Capacity Structured Packing*. Industrial & Engineering Chemistry Research, 46 (3): 883-893. doi:10.1021/ie051146f.
- [19] Z. Olujic, T. Rietfort, H. Jansen, B. Kaibel, E. Zich, G. Frey, G. Ruffert, T. Zielke (2012): *Experimental Characterization and Modeling of High Performance Structured Packings*. Industrial & Engineering Chemistry Research, 51 (11): 4414-4423. doi:10.1021/ie202585t.
- [20] Z. Olujic, B. Kaibel, H. Jansen, T. Rietfort, E. Zich (2013): *Fractionation Research Inc. Test Data and Modeling of a High-Performance Structured Packing*. Industrial & Engineering Chemistry Research, 52 (13): 4888-4894. doi:10.1021/ie302715x.
- [21] Z. Olujic, A. F. Seibert (2014): *Predicting the Liquid Phase Mass Transfer Resistance of Structured Packings*. Chemical and Biochemical Engineering Quarterly, 28 (4): 409-424. doi:10.15255/CABEQ.2014.19344.
- [22] U. Onken, W. Arlt (1990): Recommended text mixtures for distillation columns, 2. ed.; The Institution of Chemical Engineers: Rugby. ISBN 9780852952481.
- [23] M. Hapke (2023): *Entwicklung einer Miniaturmesszelle zur zeit- und kosteneffizienten Charakterisierung der Fluidodynamik in strukturierten Packungen*. Dissertation, Ruhr-Universität Bochum.
- [24] R. Goedecke (Ed.) (2006): *Fluidverfahrenstechnik: Geschichte, Methodik, Praxis, Technik*. Wiley-VCH Verlag GmbH, Weinheim.
- [25] R. Pöschmann, J. Paschold, S. Mueller, L.-S. Harding, N. Lachmann, C. Hiller, I. Ausner, A. Gäbler, M. Illner, G. Brösigke, J.-U. Repke (2023): *Will laboratory and pilot plant columns soon become superfluous? – a concept for the determination of structured packing characteristics in a measuring cell under distillation conditions*. Separation and Purification Technology 325 124617. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2023.124617>.
- [26] Sulzer Chemtech AG.: *Structured Packings for Distillation, Absorption and Reactive Distillation*. [https://www.sulzer.com/-/media/files/products/separation-technology/distillation-and-absorption/brochures/structured\\_packings.ashx](https://www.sulzer.com/-/media/files/products/separation-technology/distillation-and-absorption/brochures/structured_packings.ashx) (aufgerufen am 03.09.2024).
- [27] R. Pöschmann, P. Goerdten, I. Ausner, A. Gäbler, G. Brösigke, J.-U. Repke (2025): *Measuring cells as a potential tool for the design and retrofit of columns with structured packings*. Separation and Purification Technology 353 128011. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2024.128011>.
- [28] L. Deibele, R. Dohrn (2006): *Miniplant-Technik: in der Prozessindustrie*; Wiley-VCH. ISBN 978-3-527-30739-5.
- [29] C. Ehlers, G. Fieg (2014): *Experimental validation of a flexible modeling approach for distillation columns with packings*. AIChE Journal 60, 3833-3847. <https://doi.org/10.1002/aic.14560>
- [30] C. B. Cunha, M. Brondani, F. D. Mayer, P. P. Lopes, R. Hoffmann (2020): *Low-cost small-scale distillation column: assessment of polymeric materials on its economic, chemical, mechanical, and environmental performance*. Clean Technologies and Environmental Policy 22, 1547-1563.
- [31] L. Grundemann (2013): *Zur Umstellung von chargenweise betriebenen Mehrproduktanlagen auf kontinuierliche Kampagnenfertigung*. Dissertation, Technische Universität Braunschweig.

- [32] M. Paschetag (2020): *Ökologische Bewertung von Verfahren in Mehrzweckanlagen der Prozessindustrie*. Dissertation, Technische Universität Braunschweig.
- [33] J. Humphrey, A. Seibert, R. Koort (1991): *Separation technologies - advantages and priorities. Final report*. US Department of Energy.
- [34] T. W. Mix, J. Dweck, M. Weinberg, R. C. Armstrong (1981): *Energy conservation in distillation. Final report*.
- [35] Umweltbundesamt (2023): *Berichterstattung unter der Klimarahmenkonvention der Vereinten Nationen und dem Kyoto-Protokoll 2023*. Umweltbundesamt.
- [36] J. Cresko, D. Shenoy, H. Lindell, R. Sabouni (2015): *Innovating Clean Energy Technologies in Advanced Manufacturing*. Quadrennial Technology Review.
- [37] G.Q. Wang, X.G. Yuan, Z.L. Tang, J.B. Chen, K.T. Yu (2005): *A Shortcut Method for Estimating the HETP of Structured Packing Distillation Columns at Elevated Pressure*. Chemical Engineering Technology 7, pp. 767-772.
- [38] B. Sun, L. He, B.T. Liu, F. Gu, C.J. Liu (2013): *A new multi-scale model based on CFD and macroscopic calculation for corrugated structured packing column*. AIChE Journal 59, pp. 3119-3130.
- [39] T. Wolf, C. Bradtmöller, S. Scholl, E.Y. Kenig (2014): *Hydrodynamic-analogy-based modeling approach for distillative separation of organic systems with elevated viscosity*. Chem. Eng. Technol. 37, pp. 2065–2072.
- [40] C. Bradtmöller, S. Scholl (2015): *Geometry and viscosity effects on separation efficiency in distillation*. Chemical Engineering Research and Design 99, pp. 75-86.
- [41] Z. Olujic, A.F. Seibert, J.R. Fair (2000): *Influence of corrugation geometry on the performance of structured packings: an experimental study*. Chemical Engineering and Processing 39, pp. 335–342.
- [42] R. Bertling, M. Hack, I. Ausner, B. Horschitz, M. Wehrli, E.Y. Kenig (2023): *Simulation of liquid flow in structured packings using CFD-methods*. Chemical Engineering Science 269, 118405.
- [43] R. E. Tsai, A.F. Seibert, R.B. Eldridge, G.T. Rochelle (2011): *A dimensionless model for predicting the mass-transfer area of structured packing*. AIChE J., 57. pp. 1173-1184.
- [44] L. Bolenz, T. Ehlert, C. Dechert, R. Bertling, E.Y. Kenig (2021): *Modelling of a continuous distillation process with finite reflux ratio using the hydrodynamic analogy approach*. Chem. Eng. Res. Des. 172 pp. 99–108.
- [45] L. Bolenz (2022): *Untersuchung der Rektifikation viskoser Gemische in Packungskolonnen basierend auf tomographischen Messmethoden*. Dissertation, Universität Paderborn, Deutschland.
- [46] T. Ehlert, N. Lutters, E.Y. Kenig: *Modellierung des Randspalts in Strukturpackungskolonnen mit dem Ansatz der hydrodynamischen Analogien*. Jahrestreffen der ProcessNet-Fachgruppen Fluidverfahrenstechnik und Adsorption, Frankfurt am Main, 2023.
- [47] T. Ehlert, R. Pöschmann, S. Müller, J. Paschold, G. Brösigke, J.-U. Repke, J. Riese, E.Y. Kenig: *Modellierung kleinskaliger Trennapparate mit Strukturpackungen und der Scale-up mit dem Ansatz der hydrodynamischen Analogien*. Jahrestreffen der Fachgruppe Fluidverfahrenstechnik, Bochum, 2024.
- [48] L. Spiegel, W. Meier (1994): *Performance characteristics of various types of MELLAPAK packings (productivity, pressure differential, and deficiency)*. Chem. Petro. Eng. 30. pp. 118-125.

[49] B. Mahr, D. Mewes (2008): *Two-Phase Flow in Structured Packings: Modeling and Calculation on a Macroscopic Scale*, AIChE Vol 54 No 3.