



Robert Macher, BSc

# **Untersuchung der Trennung von Wasserstoff und leichten Kohlenwasserstoffen mittels Membranverfahren**

Masterarbeit

zur Erlangung des akademischen Grades  
Diplom-Ingenieur

Masterstudium Verfahrenstechnik

**Technische Universität Graz**

Betreuer:  
Dipl.-Ing. Martin Schmid  
Dipl.-Ing. Dr. techn. Thomas Wallek

Graz, April 2013

## **Danksagung**

An dieser Stelle möchte ich all jenen danken, die mir in den letzten Jahren und im Besonderen bei der Erstellung dieser Arbeit eine große Stütze und Hilfe waren. Zuallererst bedanke ich mich bei meinen Betreuern Dipl.-Ing. Martin Schmid und Dipl.-Ing. Dr. techn. Thomas Wallek, die stets ein offenes Ohr für meine Anliegen hatten und mich mit ihrem Fachwissen unterstützten. Durch zahlreiche Diskussionen mit ihnen war es mir immer wieder möglich, neue Aspekte meiner Arbeit zu erkennen und die richtigen Wege zu gehen.

Weiters möchte ich meinen Studienkollegen danken, die mir in den letzten Jahren sehr ans Herz gewachsen sind. Ich hoffe, dass wir weiterhin in Kontakt bleiben und noch die eine oder andere „Fachdiskussion“ führen können.

Der größte Dank gilt meiner Familie. Ich danke meinen Eltern, durch deren finanzielle Unterstützung mir das Studium erst ermöglicht wurde. Außerdem möchte ich mich bei meiner Freundin bedanken, die mich zu jeder Zeit unterstützt und motiviert hat, auch wenn meine Laune nicht immer die beste war.

VIELEN DANK!

## EIDESSTÄTLICHE ERKLÄRUNG

Ich erkläre an Eides statt, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst, andere als die angegebenen Quellen/Hilfsmittel nicht benutzt, und die den benutzten Quellen wörtlich und inhaltlich entnommenen Stellen als solche kenntlich gemacht habe.

Graz, am .....

.....  
(Unterschrift)

## STATUTORY DECLARATION

I declare that I have authored this thesis independently, that I have not used other than the declared sources / resources, and that I have explicitly marked all material which has been quoted either literally or by content from used sources.

.....  
date

.....  
(signature)

## **Abstract**

The separation of hydrogen and light hydrocarbons is a very important operation in the ethylene production. At the moment, cryogenic distillation, which is a very energy-intensive operation, is used for this process. Due to this, alternative separation techniques are currently being investigated, and this thesis focuses on the applicability of membrane separation.

From the literature review conducted, 10 membranes were found which are able to separate different mixtures of hydrogen, methane, ethane and ethylene. Additionally, three mathematical models for describing the separation process were identified. These models were developed from their basic equations as well as programmed in Matlab®. Subsequently these model equations and their calculation algorithms were validated using data from the literature. Regarding the results of the validation, all three models deliver very good results, but it is visible that model 3 best describes the membrane separation process.

Afterwards it was possible to simulate the aforementioned mixtures using the three models. The data parameters used were taken from the OMV ethylene plant. This thesis illustrates that certain membranes are able to reach optimal separation more successfully than others. It was possible to reach the required purities for hydrogen and ethylene, which were 85 and 98 %, respectively, however these concentrations displayed very poor permeate streams even with very large membrane areas. Another series of experiments showed that it is essential to find the right feed pressure. On the one hand, the results emphasized that a lower feed pressure coupled with the same pressure ratio as in the compared case results in a higher permeate concentration of the faster permeating component. On the other hand, a higher pressure ratio combined with the same feed pressure as in the compared case is advantageous only for low permeate streams.

## Kurzfassung

Die Trennung von Wasserstoff und leichten Kohlenwasserstoffen, in der vorliegenden Arbeit Methan, Ethan und Ethen, ist eine wichtige Operation in der Ethylenherzeugung. Derzeit wird diese Trennung mittels Tieftemperaturdestillation durchgeführt, was ein sehr energieintensiver Prozess ist. Daher wird im Zuge dieser Arbeit untersucht, inwieweit eine Trennung der Komponenten mittels Membranverfahren möglich ist.

Im Rahmen einer Literaturstudie wurden 10 Membranen gefunden, die eine Trennung von unterschiedlichen Mischungen aus Wasserstoff, Methan, Ethan und Ethen ermöglichen. Außerdem konnten drei mathematische Modelle gefunden werden, die danach aus den jeweiligen Grundgleichungen hergeleitet sowie in Matlab® programmiert wurden. Im Anschluss daran wurde anhand von Literaturdaten die Güte der Modellgleichungen und deren Berechnungsalgorithmen überprüft. Anhand der Daten aus der Validierung ist erkennbar, dass Modell drei die Membrantrennung am besten beschreibt. Allerdings ist anzumerken, dass auch die anderen beiden Modelle sehr gut mit den Daten aus der Literatur übereinstimmen.

Danach war es möglich, die Mischungen unter Verwendung der drei Modelle zu simulieren. Als Eingangsgrößen wurden dabei Parameter aus der Simulation der Ethylenanlage der OMV verwendet. Es konnte gezeigt werden, dass die Membranen zum Teil in der Lage sind, sehr gute Trennergebnisse zu erzielen. So war es möglich, sowohl Wasserstoff als auch Ethen in der geforderten Reinheit (85 bzw. 98 %) darzustellen. Allerdings wurden gute Trennergebnisse oft mit mäßigen Durchsätzen bei teilweise sehr großen Membranflächen bezahlt. Weiters wurde anhand einer Versuchsreihe erkannt, dass die Einstellung des Feeddruckes entscheidend für die Güte der Trennung ist. So zeigte sich, dass ein niedrigerer Feeddruck bei konstantem Druckverhältnis bessere Ergebnisse hinsichtlich der Permeatkonzentration bringt, wohingegen ein größeres Druckverhältnis bei konstantem Feeddruck nur bei geringen Permeatströmen ein Vorteil ist.

## Inhaltsverzeichnis

Abstract.....	I
Kurzfassung.....	II
Inhaltsverzeichnis .....	III
1 Einleitung .....	1
2 Aufgabenstellung.....	4
3 Grundlagen der Membrantrennung.....	6
3.1 Theoretische Grundlagen [3] .....	6
3.1.1 Triebkräfte und Widerstände bei Membrantrennverfahren.....	7
3.2 Einteilung der Membranverfahren .....	9
3.2.1 Dialyse.....	10
3.2.2 Elektrodialyse.....	11
3.2.3 Gaspermeation .....	12
3.2.4 Nanofiltration.....	13
3.2.5 Pervaporation .....	13
3.2.6 Umkehrosiose.....	14
3.2.7 Ultrafiltration .....	15
3.3 Modelle .....	16
3.3.1 Modell 1: aus “A nonideal model for analysis of gas separation permeators” von Fattah, Hamam, Al-Enezi, Ettoueny, Hughes .....	17
3.3.2 Modell 2: „Simulation of multicomponent gas separation in a hollow fiber membrane by orthogonal collocation - hydrogen recovery from refinery gases” von Kaldis, Kapantaidakis und Sakellaropoulos.....	21
3.3.3 Modell 3: „Corrections for analytical gas-permeation models for separation of binary gas mixtures using membrane modules” von Smith, Hall, Freeman und Rautenbach .....	31
3.3.4 Kompakte Darstellung der Gleichungen der einzelnen Modelle .....	38
4 Berechnung der Membrantrennung .....	41
4.1 Geeignete Membranen für die Trennaufgabe.....	41
4.1.1 ZIF-8 .....	43
4.1.2 ITQ-29/Polysulfone MMM .....	43
4.1.3 Nu-6(2) 4wt%(14,7wt%)/ Polysulfon Udel® MMM .....	44

4.1.4	PESf (BFLM) .....	45
4.1.5	PESf (BFHFMC) .....	46
4.1.6	SPEEK/SPEEK (HFMC) .....	46
4.1.7	MFI-type zeolite membrane supported by porous $\alpha$ -alumina disk.....	47
4.2	Algorithmusentwicklung .....	48
4.2.1	Modell 1 .....	48
4.2.2	Modell 2 .....	49
4.2.3	Modell 3 .....	51
4.3	Validierung .....	53
4.3.1	Validierung mittels einer Membrantrennung von zwei Komponenten ...	56
4.3.2	Validierung mittels einer Membrantrennung von vier Komponenten ....	68
4.4	Untersuchung der Gemische aus Wasserstoff, Methan, Ethan und Ethen .....	74
4.4.1	Trennung 1: Wasserstoff und Methan .....	76
4.4.2	Trennung 2: Wasserstoff und Ethan .....	83
4.4.3	Trennung 3: Ethan und Ethen .....	85
4.4.4	Trennung 4: Wasserstoff, Methan und Ethan .....	88
4.4.5	Trennung 5: Trennung von Wasserstoff, Methan, Ethan und Ethen .....	89
4.4.6	Einfluss der Änderung von Feeddruck oder Druckverhältnis auf das Trennergebnis.....	91
5	Zusammenfassung .....	95
6	Ausblick .....	97
7	Glossar .....	99
8	Literaturverzeichnis .....	101
9	Abkürzungsverzeichnis .....	104
	Abkürzungen .....	104
	Indizes .....	105
10	Abbildungsverzeichnis .....	106
11	Formelverzeichnis .....	108
12	Tabellenverzeichnis .....	111
13	Anhang .....	116
13.1	Validierung der Modelle.....	116

13.1.1	2 Komponenten .....	116
13.1.2	4 Komponenten .....	125
13.2	Ergebnisse der Simulationen der Membranen .....	134
13.2.1	Wasserstoff - Methan .....	134
13.2.2	Wasserstoff - Ethan.....	146
13.2.3	Ethan - Ethen.....	151
13.2.4	Wasserstoff – Methan – Ethan .....	154
13.2.5	Wasserstoff – Methan – Ethan- Ethen .....	156
13.3	Matlab®-Programme und Unterprogramme zur Simulation von Membrantrennungen.....	158
13.3.1	Modell 1 .....	158
13.3.2	Modell 2 .....	174
13.3.3	Modell 3 .....	180

## 1 Einleitung

In der chemischen Technologie haben Membranen einen wichtigen Platz eingenommen und werden in einer großen Bandbreite an Anwendungen verwendet. Dies liegt an der Haupteigenschaft der Membranen, der Fähigkeit die Permeationsrate einer bestimmten Komponente durch die Membran zu kontrollieren. Dies spielt zum Beispiel bei der kontrollierten Medikamentengabe eine große Rolle, wo es das Ziel ist, die Abgabe eines Medikaments in den Körper zu regulieren. Auch bei Trennaufgaben wird auf Membranen zurückgegriffen, um das Ziel, eine Komponente möglichst vollständig aus einem Gemisch zu trennen, möglichst energiesparend zu erreichen. [1] So ist es möglich, mithilfe von Membranen makroskopische Partikel ebenso abzutrennen wie Atome, was den wesentlichen Unterschied zur Filtration darstellt. [2] Eine Einteilung der druckgetriebenen Membranverfahren wurde in Abbildung 1-1 vorgenommen. Eine endgültige Unterscheidung zwischen Membrantrennung und Filtration fällt trotz der oben genannten Aussagen sehr schwer, da die Übergänge fließend und Gemeinsamkeiten zwischen allen Trennverfahren von der Umkehrosmose bis zur Filtration vorhanden sind.

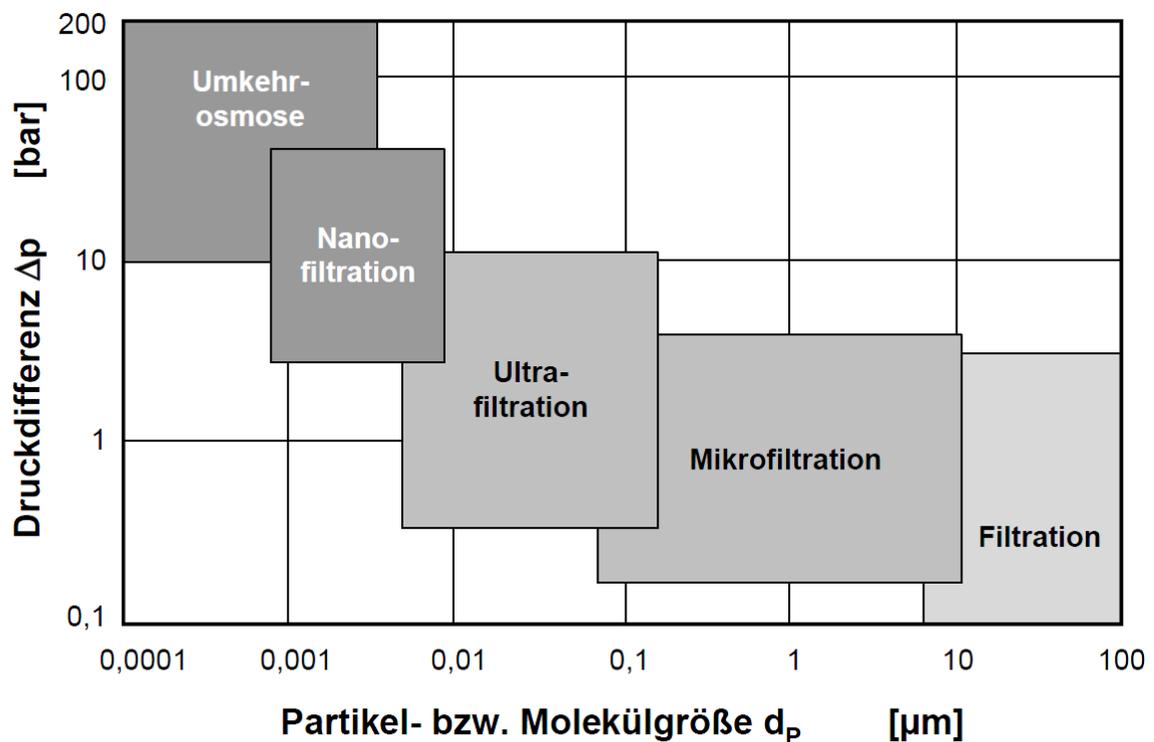


Abbildung 1-1: Einteilung der druckgetriebenen Membranverfahren [3]

Die historische Entwicklung der Membranen geht bis in die Mitte des 18. Jahrhunderts zurück. Bereits 1748 prägte Abbé Nolet das Wort „osmosis“ um die Permeation von Wasser durch ein Membran zu beschreiben. Im 19. und frühen 20. Jahrhundert gab es kein industrielles oder kommerzielles Anwendungsgebiet für Membranen, aber bereits zu dieser Zeit waren sie ein wichtiger Bestandteil der Ausrüstung von Laboratorien. So wurde zum Beispiel gegen Ende des 19. Jahrhunderts unter Verwendung des Konzeptes einer perfekt selektiven semipermeablen Membran die kinetische Gastheorie von Maxwell und anderen entwickelt. Als Membran wurde zu dieser Zeit alles verwendet, was verfügbar war, von Blasen von Schweinen, Rindern oder Fischen bis zu Därmen von Tieren. Später wurden kolloide Membranen bevorzugt, da es möglich war, diese reproduzierbar herzustellen. [1]

Die erste wichtige Anwendung der Membranen war das Testen von Trinkwasser im zweiten Weltkrieg, da die Trinkwasserversorgung für große Gemeinden in Deutschland und anderen Teilen Europas zusammengebrochen war. Aus diesem Grund waren Filter, die die Sicherheit des Wassers gewährleisteten, dringend notwendig. [1]

Bis 1960, als bereits alle Elemente der modernen Membrantechnik entwickelt waren, wurden Membranen nur in wenigen Laboratorien und kleinen, spezialisierten industriellen Anwendungen eingesetzt. Die Membrantrennung litt unter 4 Problemen, die eine weit verbreitete Verwendung in der Trenntechnik verhinderten. Membranen galten zum einen als zu unverlässlich, zum anderen als zu langsam, zu unselektiv und auch als zu teuer. Aber in den letzten 40 Jahren wurden diese Nachteile beseitigt und heutzutage sind Membran-basierte Trennprozesse gang und gäbe. [1]

Durch die Entwicklung des Loeb-Sourirajan-Prozesses war es möglich defektfreie, anisotrope Umkehrosmose-Membranen herzustellen, die zusätzlich einen hohen Durchsatz ermöglichten, was die Möglichkeit der industriellen Anwendbarkeit eröffnete. Die Membran besteht dabei aus einem sehr dünnen, selektiven Oberflächenfilm und einer viel dickeren aber auch deutlich permeableren mikroporösen Stützschrift, die die mechanische Festigkeit sicherstellt. [1]

Die Vorteile der Membrantrennung werden anhand der CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus einem Abluftstrom einer Verbrennung dargestellt. Ein großer Vorteil der Membrantrennung im Vergleich zur Absorption und zur kryogenen Abtrennung von CO<sub>2</sub> ist die Flexibilität hinsichtlich der Konzentration im Eingangsstrom. So ist es möglich einen Abgasstrom, der eine CO<sub>2</sub>-Konzentration von über 20 % enthält, gut zu trennen, auch wenn die Eingangskonzentration schwanken sollte. Allerdings ist die Flexibilität der Membrantrennung dahingehend eingeschränkt, dass geringere Konzentrationen als 20 % zu einer großen Reduktion der Triebkräfte führen. Diese Reduktion kann nur in gewissem Ausmaß durch Anpassung des Verhältnisses von Feed- zu Permeatdruck

ausgeglichen werden. Grundsätzlich kann aber gesagt werden, dass Veränderungen der Prozessparameter sofort Auswirkungen auf die Qualität des Abluftstromes haben. Dies ist bei der Absorption, die über mittelmäßige Einstellmöglichkeiten bezüglich der Feedkonzentration verfügt, da die Größe des Apparates mit dieser über die Absorbensmenge, die von der Konzentration von  $\text{CO}_2$  im Feed abhängt, zusammenhängt, anders. Es vergehen bei diesem Prozess einige Minuten bis sich die Änderung der Prozessparameter in den Ergebnissen manifestiert. Bei kryogenen Verfahren ist generell die Flexibilität hinsichtlich der Feedkonzentration sehr gering. Grund dafür ist der direkte Einfluss der Konzentration der niedrig siedenden Komponenten auf die Produktqualität. Weiters ist auch die Geschwindigkeit, mit der das System auf Änderungen reagiert, im Vergleich zur Membrantrennung und der Absorption, sehr gering. Ein weiterer großer Vorteil der Membrantrennung ist die Möglichkeit der Fahrweise bei stark reduziertem Feedstrom. So ist es möglich auf bis zu 10 % der Auslegungsmenge zu reduzieren ohne die Qualität von Abtrennung oder Produkt zu beeinträchtigen, indem der Feeddruck erniedrigt, der Permeatdruck erhöht oder Module vom System abgetrennt werden. Bei der Absorption ist eine Reduktion des Feedstromes von bis zu 30 % kein Problem für die Produktqualität und die Reinheit des Abluftstromes. Darunter kann zwar die Reinheit des  $\text{CO}_2$ -Stromes aufrechterhalten werden, die Abtrennung aus dem Abgasstrom kann aber nicht mehr im gleichen Ausmaß erfolgen. Bei kryogenen Trennprozessen hängt die Qualität der Ausgangsströme von der Art des Designs ab. Bei Einheiten mit Teilkondensation kann aber gesagt werden, dass ohne Qualitätseinbußen im  $\text{CO}_2$ -Strom und mit geringen Verschlechterungen beim Rückhalt von Kohlendioxid aus der Abluft Feedströme von 30-50 % vom Auslegungsfeed möglich sind. Ein weiterer Vorteil der Membrantrennung liegt sicherlich in der einfachen Erweiterung der Trennflächen. Während eine eventuelle Expansion sowohl bei der Absorption als auch bei der kryogenen Abtrennung von  $\text{CO}_2$  aus Luft in der Planungsphase berücksichtigt werden muss, was zu höheren Kosten in der Startphase des Projektes führt, ist es bei für einen bestimmten Durchsatz ausgelegten Membranmodulsystemen sehr einfach, zusätzliche Kapazität zu schaffen. Es muss nur ein zusätzliches Membranmodul, das vom Aufbau her identisch den bereits verwendeten ist, eingebaut werden. Der vielleicht größte Vorteil der Membrantrennung gegenüber anderen Trennoperationen liegt in der Energieeffizienz. Für die  $\text{CO}_2$ -Abtrennung mittels Absorption werden 4-6 MJ/kg $\text{CO}_2$  benötigt, bei kryogenen Verfahren sind 6-10 MJ/kg $\text{CO}_2$  notwendig. Dagegen wird bei Membran-Systemen eine Energiemenge in einem Bereich von 0,5-6 MJ/kg $\text{CO}_2$  benötigt, was über weite Bereiche weniger ist als für die beiden anderen Trennverfahren aufgewendet werden müsste. [4]

## 2 Aufgabenstellung

Ziel dieser Arbeit ist es, die Möglichkeit der Trennung von Wasserstoff und leichten Kohlenwasserstoffen mittels Membranverfahren zu untersuchen. Bisher wird diese Separation in der Petrochemie hauptsächlich mittels Tieftemperaturdestillation durchgeführt, was ein sehr energieintensiver Prozess ist. Am Beispiel der Ethylenanlage der OMV soll untersucht werden, inwieweit Membranverfahren geeignet sind, diese Trennung durchzuführen. Dabei sollen auch die geforderten Reinheiten berücksichtigt werden. So ist für Ethylen eine Reinheit von 98 vol% angegeben. Weiters soll Wasserstoff, der innerhalb der Anlage für Hydrierungsprozesse verwendet wird, mit einer Konzentration von mindestens 85 vol% verfügbar sein, um eventuelle Nebenreaktionen hintanzuhalten. Sowohl für den Methan- als auch für den Ethanstrom sind keine Reinheiten vorgegeben. Jedoch ist zu erwähnen, dass das erzeugte Methan für die Befeuerung der Spaltöfen verwendet wird und damit mit jeder Verunreinigung Produkt verloren geht. Das Ethan wird den Spaltöfen erneut zugeführt, was bedeutet, dass Kontaminationen in diesem Strom im Kreis geführt werden und damit eine Verringerung des Wirkungsgrades des Gesamtprozesses zur Folge haben.

Im ersten Schritt soll eine Literaturstudie durchgeführt werden, wobei allgemeines zum Thema Membrantrennung in Erfahrung gebracht werden soll. Ein Überblick darüber wird in Abschnitt 3.1 und 3.2 gegeben. Ein weiterer Punkt, der im Rahmen der Literaturstudie behandelt wird, ist es, Modelle zu finden, die die Berechnung der Membrantrennung ermöglichen. Die Herleitung der Gleichungen für die verschiedenen Modelle sowie die Annahmen und Besonderheiten sind in Abschnitt 3.3 dargestellt. Um zu überprüfen, inwieweit diese Modelle mit experimentellen Daten übereinstimmen, wird auch eine Validierung mit Werten aus der Literatur durchgeführt. Die Programme werden dazu in Matlab® programmiert. Die Validierung wird in Abschnitt 4.3 diskutiert.

Um eine Überprüfung zu ermöglichen, inwieweit es mit Membranverfahren möglich ist, eine Trennung von Wasserstoff, Methan, Ethan und Ethen durchzuführen, sollen Membranen gefunden werden, die für diese Trennoperation entwickelt wurden. Die Auswahl der Membranen und der Stoffsysteme, die mit diesen Membranen getrennt werden können, ist in Abschnitt 4.1 nachvollzogen. Die Berechnung der Trennung dieser Stoffsysteme mit den zugehörigen Membranen wird unter Verwendung der in Abschnitt 3.3 hergeleiteten und in Abschnitt 4.3 validierten Modelle mittels Simulationen in Matlab® durchgeführt. Die Ergebnisse der Berechnungen werden in Abschnitt 4.4 dargestellt und diskutiert. Um einen Einblick in den Einfluss des Feeddruckes auf die Trennergebnisse zu bekommen, wird eine Membran mit verringertem Feeddruck bei gleichbleibendem Druckverhältnis sowie bei

gleichbleibendem Feeddruck und erhöhtem Druckverhältnis berechnet. Die Ergebnisse dieser Simulationen werden in Abschnitt 4.4.6 dargestellt und diskutiert.

### 3 Grundlagen der Membrantrennung

#### 3.1 Theoretische Grundlagen [3]

Das Wort Membran kommt aus dem Lateinischen und bedeutet Häutchen oder Haut. Die Existenz von Leben ist ohne sie nicht vorstellbar, da die meisten tierischen, pflanzlichen und menschlichen Zellen von Membranen umgeben sind. Auch in der Technik werden immer öfter Trennungen mithilfe von Membranen durchgeführt. Ein flüssiger oder gasförmiger Feedstrom, der aus mindestens zwei zu trennenden Spezies besteht, wird einem Membranmodul zugeführt. Die Membran wird für jede Trennoperation so gewählt, dass sie für eine der Komponenten permeabel, für alle anderen jedoch im besten Fall undurchlässig oder zumindest schlechter zu durchqueren ist. In Abbildung 3-1 ist die Membrantrennung schematisch dargestellt. Im Retentat, auch Konzentrat genannt, ist dabei die schlechter permeierende Komponente angereichert, wohingegen im Permeat die schneller permeierende Komponente eine höhere Konzentration als im Feed aufweist.

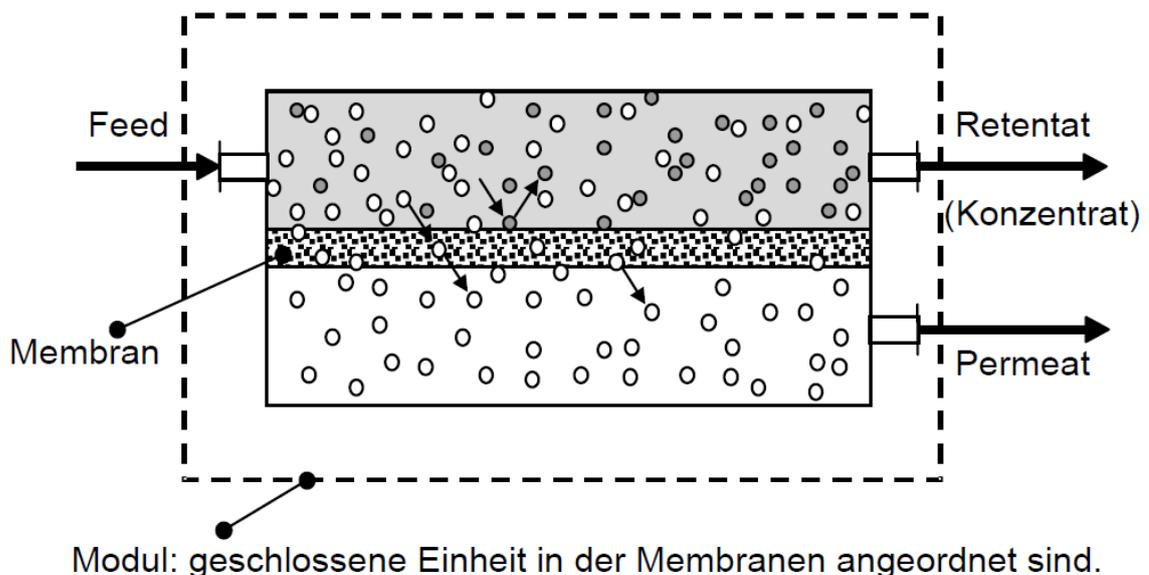


Abbildung 3-1: Membranmodul

Der Ausdruck Modul rührt daher, dass in technischen Anlagen meist mehrere gleiche Membraneinheiten miteinander verschaltet sind. Es gibt unterschiedlichste Typen von Membranmodulen. Zum Beispiel werden in Hohlfasermodulen (Abbildung 3-2), die zur Gruppe der Schlauchmembranen gehören, große Mengen an einzelnen Hohlfasern gleichzeitig durchströmt. Wickelmodule (Abbildung 3-3) bestehen aus spiralförmig aufgerollten Membranen und werden zu den Flachmembranen gezählt.

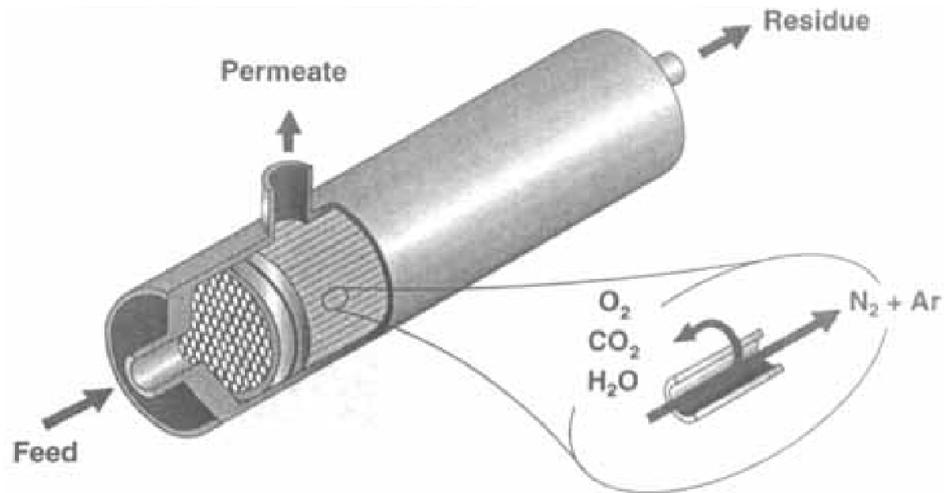


Abbildung 3-2: Beispiel eines Hohlfasermembranmoduls [5]

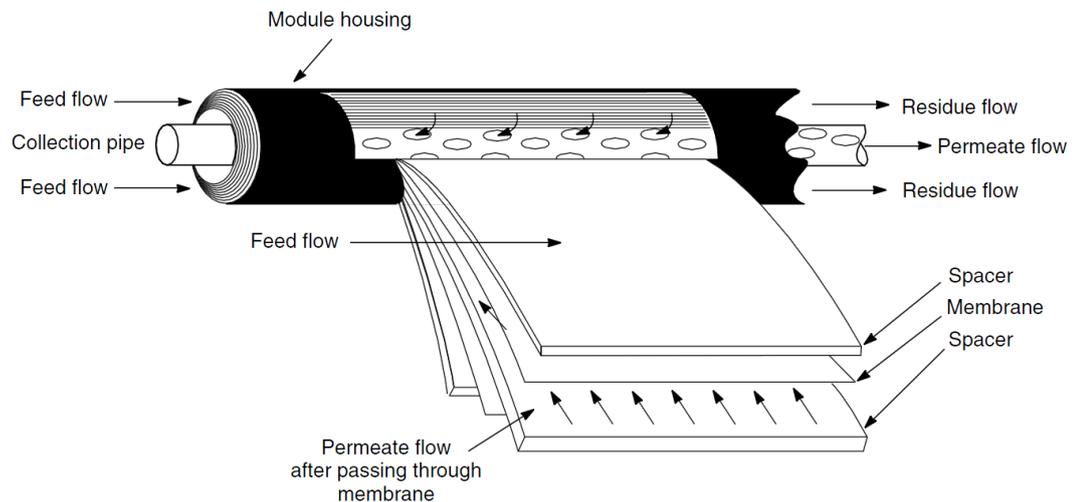


Abbildung 3-3: Beispiel für ein Wickelmodul [6]

#### 3.1.1 Triebkräfte und Widerstände bei Membrantrennverfahren

Ein wichtiger Punkt bei der Trennung mittels Membranen ist es herauszufinden, welche Triebkräfte für das Permeieren einer Komponente verantwortlich sind und welche Transportwiderstände den Übertritt einer Komponente in das Permeat erschweren. Zu den Triebkräften können zum einen die Druckdifferenz, zum anderen aber auch der Unterschied der Konzentration über die Membran oder ein elektrisches Feld, das normal zur Membran angelegt wird, gezählt werden. Allgemein und von der Art der Membrantrennung unabhängig ist festzuhalten, dass eine Differenz im chemischen Potential vorhanden sein muss, um den Übertritt einer Komponente über die Membran zu ermöglichen.

### 3. Grundlagen der Membrantrennung

Mögliche Transportwiderstände können Druckverluste in Feed und Permeat sein. Dies kann auch als Triebkraftverlust gesehen werden. Auch der Transportwiderstand der porösen Stützschrift sowie auch die Konzentrationspolarisation sind als Widerstände zu nennen. Dabei handelt es sich um eine Konzentrationserhöhung der schlechter permeierenden Komponente an der Oberfläche der Membran. Wenn auch die Temperatur eine Rolle in der Membrantrennung spielt, wie zum Beispiel bei der Pervaporation, können aber genauso Wärmetransportwiderstände einen Einfluss auf die Güte der Trennung haben. Welche Transportwiderstände bei der jeweiligen Trennaufgabe besonders zu beachten sind, ist stark davon abhängig, welche Triebkräfte wirken.

### 3.2 Einteilung der Membranverfahren

Es gibt verschiedene Möglichkeiten Membranen und Membranverfahren einzuteilen. Bei Membranen ist es möglich, sie nach der Größe der gerade noch durchgelassenen Moleküle und den verwendeten Einsatzstoffen sowie nach der Herkunft zu kategorisieren. So wird zum Beispiel ganz allgemein zwischen synthetischen und biologischen Membranen unterschieden. Synthetische Membranen werden von Menschen zur industriellen Nutzung erzeugt, wohingegen biologische Membranen in der Natur vorkommen. Eine genauere Einteilung ist in Abbildung 3-4 ersichtlich.

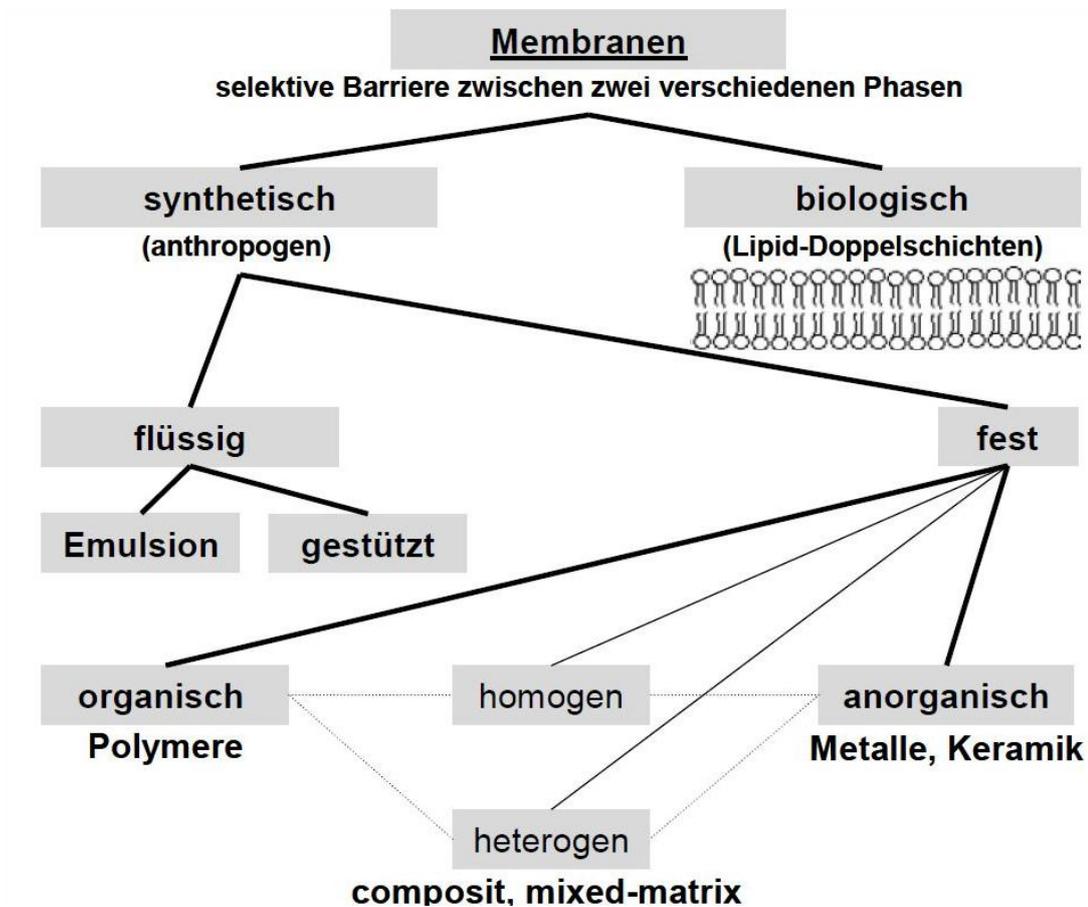


Abbildung 3-4: Einteilung von Membranen [3]

Zum einen lassen sich Membranverfahren ebenfalls nach der Größe der gerade noch permeierenden Komponenten einteilen. Zum anderen ist eine Unterteilung nach dem Trennprinzip und dem Aggregatzustand der berührenden Fluide möglich. Außerdem kann auch eine Einteilung nach den in Kapitel 3.1.1 definierten Triebkräften erfolgen. In Tabelle 3-1 sind die wichtigsten Membranverfahren aufgelistet und werden nachfolgend kurz erläutert.

Verfahren	Membrantyp	Phasen	Triebkraft	Anwendungsgebiet
<b>Dialyse</b>	Ionenaustauscher- bzw. symmetrische Porenmembran	flüssig- flüssig	Konzentrations- differenz	Künstliche Niere bzw. Säure- Recycling
<b>Elektrodialyse</b>	Ionogene Gruppen enthaltende symmetrische Lösungsdiffusions- membran (LDM)	flüssig- flüssig	Normal auf Membran stehendes elektrisches Feld	Ionenabtrennung aus wässrigen Lösungen
<b>Gaspermeation</b>	Asymmetrische LDM	gasförmig- gasförmig	Partialdruck- differenz	Stickstoffgewinnung aus Luft
<b>Nanofiltration</b>	Asymmetrische Poren-Membran	flüssig- flüssig	Druckdifferenz	Trennung von in wässrigen Lösungen gelösten Stoffen
<b>Pervaporation</b>	Asymmetrische LDM	flüssig- gasförmig	Absenkung Permeatdruck	Entfernung von Wasser aus organischen Lösungen
<b>Umkehrosmose</b>	Asymmetrische LDM	flüssig- flüssig	Druckdifferenz	Aufbereitung von wässrigen Systemen (Meerwasser- entsalzung)
<b>Ultrafiltration</b>	Asymmetrische Poren-Membran	flüssig- flüssig	Druckdifferenz	Abtrennung von Viren und Bakterien aus Wasser

Tabelle 3-1: Liste der wichtigsten Membranverfahren inklusive Membrantyp, Phasen, Triebkraft und Anwendungsgebiet [3], [1]

### 3.2.1 Dialyse

Bei diesem Trennverfahren werden ionenselektive Membranen eingesetzt, deren Stofftransport auf einer Konzentrationsdifferenz über die Membran basiert. Die bekannteste Anwendung der Dialyse ist die sogenannte Hämodialyse. Dabei wird die menschliche Niere heutzutage durch eine Dialysemaschine, die eine Hohlfasermembran verwendet, ersetzt. Die Fläche dieser Membran beträgt dabei 1-2 m<sup>2</sup>. Weltweit werden jährlich ca. 200 Millionen Dialysevorgänge durchgeführt. Durch den großen Bedarf an Membranen (eine Membran wird ein bis zwei Mal verwendet), wurden leistungsfähige Maschinen entwickelt, die es ermöglichen, mehrere hundert Fasern gleichzeitig zu spinnen. Dadurch ist ein Preis von ungefähr 15 US-\$ pro Membran möglich. [1]

### 3.2.2 Elektrodialyse

Elektrodialyse war 1952 die erste industrielle Membrananwendung, bei der Ionenaustauscher-Membranen verwendet wurden. Meist werden in Elektrodialyse-Systemen anionische und kationische Membranen so kombiniert, dass bis zu 100 Zellpaare entstehen. (siehe Abbildung 3-5) [1]

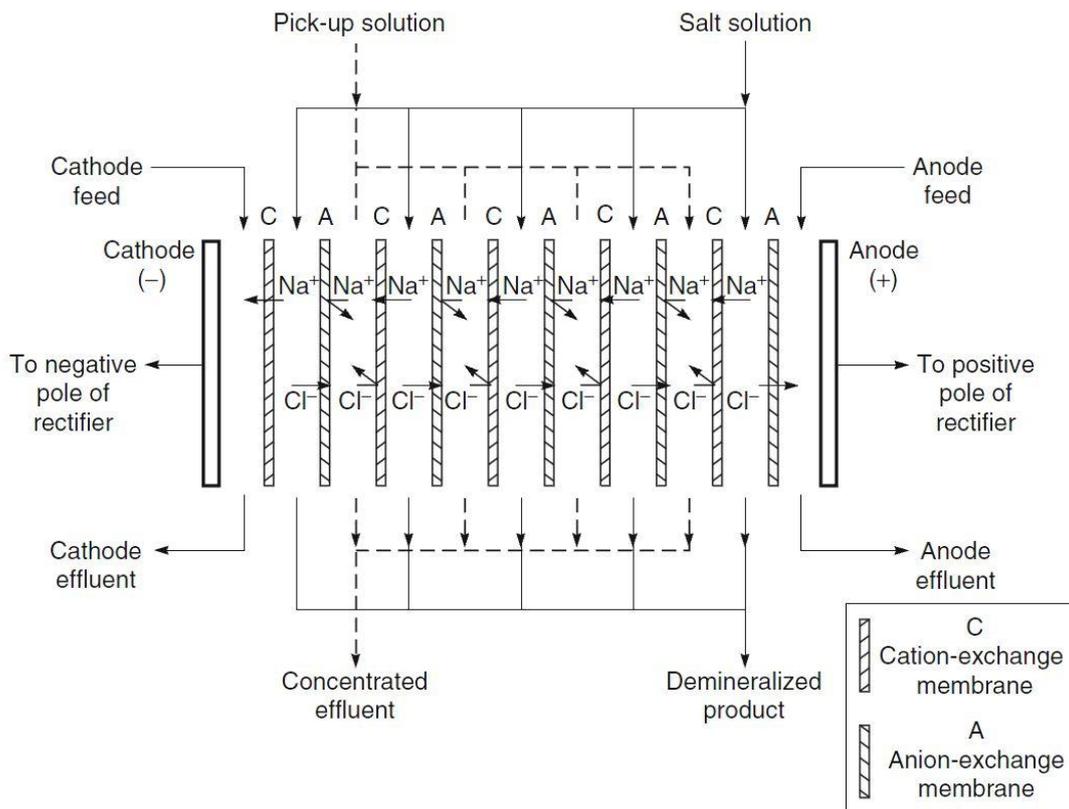


Abbildung 3-5: Schematische Darstellung eines Elektrodialysesystems [1]

Die Triebkraft rührt bei der Elektrodialyse aus einem elektrischen Feld her, das orthogonal auf die Membranen angelegt wird, wodurch die Kationen zur Kathode und die Anionen in Richtung Anode wandern. Durch den Einsatz von Membranen lassen sich wie in Abbildung 3-5 ersichtlich zwei Ströme erzeugen, wobei der eine reich an Ionen ist und der andere eine deutlich geringere Konzentration an Anionen und Kationen aufweist. [3] Die Hauptanwendungsgebiete der Elektrodialyse sind die Entsalzung von Brackwasser sowie die Salzgewinnung aus Meerwasser. Die zweite Anwendung wird vor allem in Japan eingesetzt, da dort keine anderen Salzquellen vorhanden sind. Dabei werden jährlich rund 1,2 Millionen Tonnen unter Verwendung von über 500.000 m<sup>2</sup> Membranfläche produziert. [1]

#### 3.2.3 Gaspermeation

Die Gaspermeation hat eine lange Tradition. Bereits Thomas Graham untersuchte die Permeation aller ihm bekannten Gase durch alle verfügbaren Membranen (1866). Allerdings führte dies nicht zu einem sofortigen industriellen Einsatz der Gaspermeation. Im Gegenteil, erst in den letzten 30 Jahren entwickelte sie sich zu einer wichtigen Anwendung der Membrantechnologie.

Die erste wichtige Anwendung der Gastrennung mittels Membranen war die Trennung von  $U^{235}F_6$  von  $U^{238}F_6$  zwischen 1943 und 1945 im Rahmen des Manhattan-Project. Dafür wurden mikroporöse Metallmembranen verwendet. In den 1940ern und 1950ern legten verschiedene Wissenschaftler (Barrer, van Amerongen, Stern, Meares) die Grundlage der modernen Theorien der Gaspermeation. Das Lösungsdiffusionsmodell wurde in diesem Zeitraum entwickelt und ist bis heute das Modell der Wahl zur Beschreibung der Transportprozesse von Gasen durch Membranen. Durch die Weiterentwicklung der Umkehrosmose in den späten 1960ern und frühen 1970ern wurde auch die Basis für die moderne Gastrennung mittels Membranen gelegt. So wurden zu dieser Zeit asymmetrische High-Flux-Membranen und Membranmodule mit großer Oberfläche entwickelt. Die erste kommerzielle Anwendung der Gaspermeation war die Wasserstoff-abtrennende Membran von Monsanto, Prism<sup>®</sup>, die 1980 in Betrieb ging. In der Mitte der 1980er wurden von mehreren Firmen Membranen zur Auftrennung in Erdgas enthaltenem  $CO_2$  und Methan entwickelt. Ungefähr zur selben Zeit ging das erste System industriellen Ausmaßes zur Stickstoffgewinnung aus Luft in Betrieb. Weitere Anwendungen der Gaspermeation sind in der Luft- und Erdgastrocknung sowie auch in der Abtrennung von organischen Dämpfen aus Gasströmen zu sehen. [1]

Die Triebkraft wird durch eine Partialdruckdifferenz über die Membran aufgeprägt. Es ist einerseits möglich den Feed mit erhöhtem Druck zuzuführen als auch den permeatseitigen Druck zu verringern. [3]

#### 3.2.4 Nanofiltration

Namensgeber für dieses Verfahren ist die charakteristische Porengröße des Materials. Die Bestimmung dieser Membraneigenschaft ist mikroskopisch nicht mehr möglich, daher wird die charakteristische Porengröße über die Molmasse der gerade noch zurückgehaltenen Komponenten definiert. Dabei entspricht eine Molekülgröße von einem Nanometer einer Molmasse von etwa 200 g/mol. Es werden hauptsächlich asymmetrische, geladene Membranen verwendet, die aus organischen Polymeren hergestellt werden. [2]

Als Triebkraft wirkt bei der Nanofiltration hauptsächlich ein Druckunterschied über die Membran, wobei der Arbeitsbereich zwischen 5 und 40 bar liegt. Anwendung findet die Nanofiltration im Wesentlichen in der Abtrennung von Stoffen, die in wässrigen Lösungen vorliegen. [2]

#### 3.2.5 Pervaporation

Die Pervaporation ist ein spezielles Membranverfahren, in welchem ein Phasenwechsel der permeierenden Komponenten vorgenommen wird. Daher ist zusätzlich zum Stofftransport auch der Wärmetransport zu betrachten und die Verdampfungsenthalpie in die Energiebilanz mit einzubeziehen. [3]

Die Herkunft der Pervaporation kann bis ins 19. Jahrhundert zurückverfolgt werden, allerdings wurde das Wort selbst erst 1917 durch Kober erstmals verwendet. In den 1950ern wurde dieser Prozess zum ersten Mal systematisch von Binning und seinen Mitarbeitern untersucht. Das Ziel war eine Trennung von organischen Mischungen. Trotz einiger Patente wurde dieses Verfahren nie kommerziell genutzt, da die Membrantechnologie zu dieser Zeit die notwendigen Membranen und Module nicht produzieren konnte. In den folgenden Jahren wurden immer wieder Studien durchgeführt, allerdings machte es der technische Fortschritt erst in den 1980ern möglich, auch wirtschaftlich rentable Pervaporationsprozesse durchzuführen. In den letzten 10 Jahren entwickelte sich mit der Entwässerung von Bioethanol, der als Treibstoff verwendet wird, eine deutlich größere Anwendungsmöglichkeit für die Pervaporation. Die Produktionsmenge dieses Treibstoffes betrug 2010 ca. 87 Millionen m<sup>3</sup>. Bei allen bestehenden Anlagen wird derzeit eine Kombination aus Destillation und Molekularsieb verwendet, um das Gemisch Ethanol-Wasser zu trennen. Allerdings werden allein in den USA über 500 neue Anlagen benötigt, um die Ziele des Biotreibstoffprogramms bis 2022 zu erreichen. [1]

Meist wird die notwendige Triebkraft durch ein permeatseitiges Vakuum erzeugt. Wenn das Permeat nicht weiter genutzt werden soll, kann auch ein Trägergas (Sweepgas) verwendet werden. Es ist auch möglich, das Permeat gemeinsam mit dem Trägergas in einem nachfolgenden Schritt zu verarbeiten. Unabhängig von der Prozessführung muss der Partialdruck der permeierenden Komponente kleiner als der Satttdampfdruck dieses Bestandteils der Mischung sein, um eine Verdampfung der Permeanden zu ermöglichen. [3]

#### 3.2.6 Umkehrosmose

Die Fähigkeit von Membranen, kleine gelöste Stoffe von Wasser zu trennen ist schon seit langer Zeit bekannt. Bereits 1850 führten Pfeffer, Traube und andere Versuche durch, um osmotische Phänomene mit keramischen Membranen zu beobachten. 1931 wurde die Umkehrosmose als Prozess zur Wasserentsalzung patentiert und der Name eingeführt. Ein Meilenstein in der Entwicklung der Umkehrosmose war die erste Meerwasser-Entsalzungsanlage in Saudi Arabien. Dabei wurde zum ersten Mal eine Verbundmembran kommerziell eingesetzt, die 1975 entwickelt und mithilfe der Grenzflächenpolymerisation produziert wurde. Diese Membranen haben einen extrem großen Salzurückhalt und zusätzlich einen sehr guten Wasserfluss durch die Membran. Durch die ständige Verbesserung der Leistung der Membranen und Weiterentwicklung des Prozessdesigns konnten die Kosten der Meerwasserentsalzung auf unter  $\$0,5/\text{m}^3$  gedrückt werden. Die Energiekosten wurden von  $6,1\text{kWh}/\text{m}^3$  der ersten Anlage in Saudi Arabien auf  $2\text{-}3\text{ kWh}/\text{m}^3$  verringert. Dadurch ist es möglich, dass ca. 1 % der weltweiten Trinkwasserversorgung, das sind ungefähr 10 Millionen  $\text{m}^3/\text{Tag}$ , mittels Umkehrosmose produziert werden kann. [1]

Das Hauptanwendungsgebiet der Umkehrosmose ist allen voran die Meerwasserentsalzung, aber auch die Herstellung von reinstem Wasser sowie die Aufbereitung von im Prozess anfallenden Wässern zählen zu den Aufgabengebieten. [2]

Als Triebkraft wirkt bei der Umkehrosmose die Druckdifferenz zwischen Permeat- und Feedphase abzüglich der Differenz der osmotischen Drücke in Permeat und Feed. Die osmotische Druckdifferenz muss überwunden werden, um überhaupt ein Permeat zu erhalten. Der Lösemittelfluss findet damit entgegen dem Konzentrationsgefälle statt. Der Betriebsbereich liegt meist zwischen 20 und 80 bar, wobei die technische Grenze etwa bei 200 bar angesiedelt ist. [2]

#### 3.2.7 Ultrafiltration

Bei der Ultrafiltration werden feinporöse Membranen verwendet, um Wasser und kleine gelöste Substanzen von Makromolekülen und Kolloiden zu trennen. Der durchschnittliche Porendurchmesser umfasst einen Bereich von 10 bis 1.000 Å. Die erste synthetische Ultrafiltrationsmembran wurde Anfang des 20. Jahrhunderts produziert. Obwohl Ultrafiltration in Studien weit verbreitet war, fand sie bis in die 1960er keine industrielle Anwendung. Erst die Entwicklung der asymmetrischen Zellulose-Acetat-Membran von Loeb und Sourirajan 1963, die eine Umkehrosmose-Membran mit hohem Durchsatz entwickeln wollten, brachte andere Wissenschaftler (Michaels und Amicon) auf die Idee, es ihnen gleich zu tun. Allerdings beschränkten sie sich nicht auf die Umkehrosmose, sondern fanden Materialien für Membranen, die noch immer in der Produktion von Ultrafiltrationsmembranen verwendet werden. 1969 wurde die erste industrielle Ultrafiltrationsanlage in Betrieb genommen. Aufgrund der überzeugenden Wirtschaftlichkeit des Prozesses wurden in den folgenden Jahren viele ähnliche Prozesse entwickelt, sodass in den 1990ern die Industrie auf soliden wirtschaftlichen Beinen stand. Das größte Problem der Ultrafiltration war allerdings nicht gelöst. So neigten die Membranen nach wie vor zu Fouling, was auch durch unterschiedlichste Anpassungen im Prozess nicht gänzlich behoben werden konnte und regelmäßige Membranreinigung notwendig machte. Zwischen 1988 und 1995 wurde eine neue Entwicklung eingeführt, um Fouling besser beherrschen zu können, die sogenannte „constant flux operation“. Dabei wurde eine Pumpe eingesetzt, die einen konstanten Fluss erzeugt und den Druck für diesen Fluss variiert. Mit der Zeit, wenn die Membran durch Fouling an Permeabilität verliert, muss der Unterdruck für konstanten Fluss erhöht werden. Wenn ein bestimmter Grenzdruck erreicht wird, wird die Membraneinheit außer Betrieb genommen und gereinigt. Weiterentwicklungen dieser Technik in den 90ern führten zur weitverbreiteten Anwendung der Ultrafiltration/Mikrofiltration in der Reinigung von Wasser von Viren und Bakterien. [1]

Die Triebkraft der Ultrafiltration ist eine transmembrane Druckdifferenz zwischen 0,5 und 10 bar. Die Abscheideleistung wird aufgrund des Prinzips der einfachen porösen Filter erreicht. Ein Kolloid, Bakterium oder Virus, das größer als die Porenweite der Membran ist, kann nicht ins Permeat übertreten, sondern wird vollständig mit dem Retentat ausgetragen. [3]

### 3.3 Modelle

Im folgenden Kapitel werden die Modelle, mit welchen die Membrantrennung simuliert werden soll, erklärt. Es wird darauf eingegangen, welche Annahmen getroffen werden, welche Faktoren einen Einfluss auf die Trennleistung der Membran haben, sowie die Herleitung der verwendeten Gleichungen vorgenommen.

Zuvor wird aber noch ganz allgemein auf die Berechnung einer Membrantrennung eingegangen.

Um eine Membrantrennung vollständig zu beschreiben, ist es im Falle eines Zweistoffgemisches notwendig, 6 Unbekannte zu bestimmen. Diese sind in Abbildung 3-6 ersichtlich und stellen Eingangsströme,  $F_\alpha$ , und Ausgangsströme, Retentatstrom  $F_\omega$  und Permeatstrom  $V_\omega$ , dar oder sind Konzentrationen, wie die Eingangskonzentration  $x_{1\alpha}$ , die Retentatkonzentration  $x_{1\omega}$  sowie die Permeatkonzentration  $y_{1\omega}$  von Komponente 1. Vier dieser Unbekannten müssen im Vorhinein bekannt sein, um eine Beschreibung zu ermöglichen. Diese erfolgt dann gemäß der Gesamt- und Komponentenbilanz um das gesamte Membranmodul. Die Bilanzgrenze ist in Abbildung 3-6 als strichlierte Linie eingezeichnet. Sind nun zum Beispiel der Feed- und der Retentatstrom definiert, also sowohl Menge als auch Konzentration bekannt, können mittels Formel 3-1 und Formel 3-2 die Permeatmenge  $V_\omega$  und die Permeatkonzentration  $y_{1\omega}$  bestimmt werden.

$$F_\alpha = F_\omega + V_\omega$$

Formel 3-1: Gesamtbilanz um das Membranmodul

$$F_\alpha * x_{1\alpha} = F_\omega * x_{1\omega} + V_\omega * y_{1\omega}$$

Formel 3-2: Komponentenbilanz um das Membranmodul

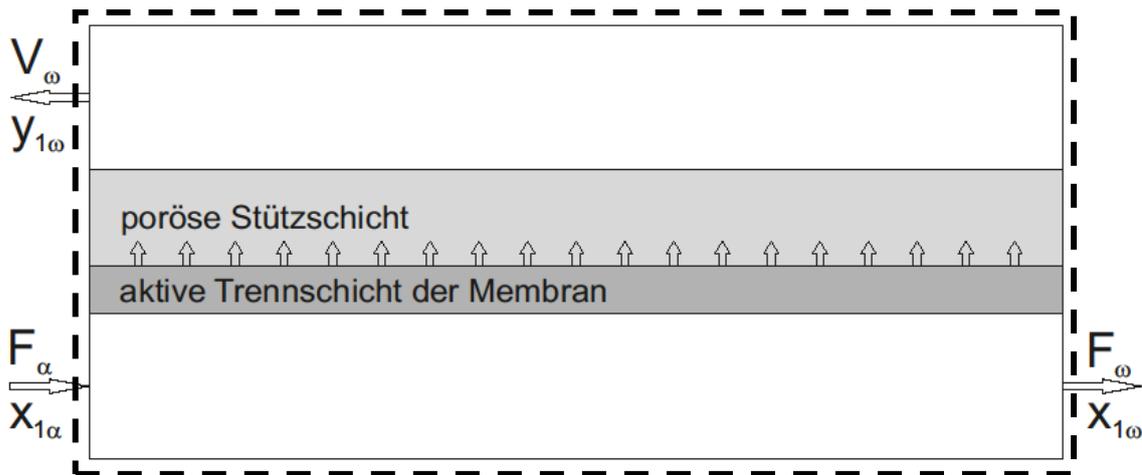


Abbildung 3-6: Gesamtbilanz um Membranmodul

Sollten allerdings nur zwei dieser Unbekannten gegeben sein, wie es in der Trenntechnik üblich ist, ist es notwendig, den Vorgang im Membranmodul zu beschreiben. In den meisten Fällen wird die Aufgabe sein, einen Feedstrom mit einer gewissen Konzentration an Komponente 1 entweder von diesem Bestandteil zu befreien oder diese Komponente in möglichst reiner Form zu gewinnen. Um diese Trennoperation berechnen zu können, wurden verschiedene Modelle entwickelt. Drei davon wurden in der vorliegenden Arbeit ausgewählt, validiert und schließlich dazu eingesetzt, Membrantrennungen zu simulieren. Die Herleitung der Modellgleichungen sowie die getroffenen Annahmen werden in den kommenden Abschnitten 3.3.1 bis 3.3.3 besprochen.

### 3.3.1 Modell 1: aus "A nonideal model for analysis of gas separation permeators" von Fattah, Hamam, Al-Enezi, Ettoueny, Hughes

Dieses Modell geht von der Annahme aus, dass die Konzentration im Bulk des Permeats keinen Einfluss auf die Trennung hat. Weiters wird angenommen, dass die Druckverläufe in Feed und Permeat nicht nachvollziehbar sind und daher werden diese Drücke konstant gewählt. Auch die Verläufe der Permeanzen der zu trennenden Komponenten sollen sich über die Membranlänge nicht verändern, allerdings wird erwähnt, dass die Verläufe, die konzentrationsabhängig sind, berücksichtigt werden können. Als letzte Annahme wird ideales Lösungsverhalten angenommen. [7]

### 3. Grundlagen der Membrantrennung

Als Ausgangspunkt für die Herleitung dieses Modells soll der Fluss über die Membran dienen. (Formel 3-3). Dabei ist  $N_1$  der auf die Membranfläche bezogene Fluss,  $R_1$  die Permeanz,  $f_{11}$  die Fugazität von Komponente 1 in der Feed- und  $f_{12}$  jene in der Permeatphase. Die erste Zahl im Index, in diesem Fall 1, steht für die Komponente, der zweite Eintrag im Index bezeichnet die Phase, wobei 1 für die Feed- und 2 für die Permeatphase steht.

$$N_1 = R_1 * (f_{11} - f_{12})$$

Formel 3-3: Darstellung des Flusses von Komponente 1 über die Membran [7]

Für die Fugazität wird nun der Gesamtdruck der jeweiligen Phase, wobei Phase 1 die Feedphase und Phase 2 die Permeatphase darstellen, multipliziert mit dem Molanteil von Komponente 1 in der jeweiligen Phase eingesetzt. Dies ist in Formel 3-4 dargestellt.

$$N_1 = R_1 * (P_1 * x_1 - P_2 * y_1)$$

Formel 3-4: Fluss der Komponente 1 in Abhängigkeit von Molanteil und Druck in der jeweiligen Phase [7]

Da Formel 3-4 das Realgasverhalten nicht beschreibt, soll mithilfe des Fugazitätskoeffizienten auch dieses abgebildet werden. In Formel 3-5 wird der Fluss von Komponente 1 über die Membran in Abhängigkeit von Druck und Molanteil in der jeweiligen Phase sowie die Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase dargestellt.

$$N_1 = R_1 * (\varphi_{11} * P_1 * x_1 - \varphi_{12} * P_2 * y_1)$$

Formel 3-5: Fluss der Komponente 1 über die Membran unter Einbeziehung der Nichtidealität [7]

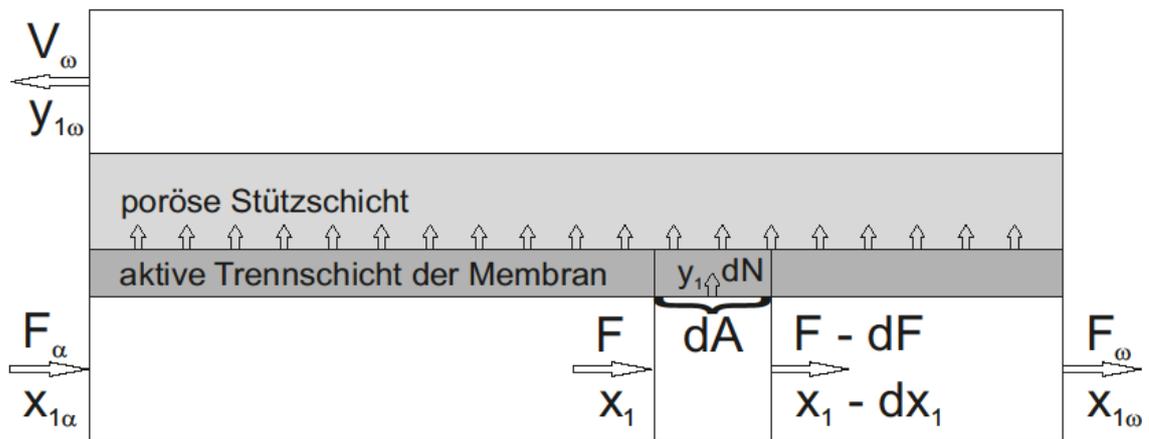


Abbildung 3-7: Schematische Darstellung des Trennprozesses

Differenziell angeschrieben wird aus dem Fluss  $N_1$  der in Formel 3-6 ersichtliche Ausdruck und mit Formel 3-5 ergibt sich Formel 3-7. Dies kann anhand von Abbildung 3-7 nachvollzogen werden. Dabei stellt  $F_\alpha$  den Feed,  $x_{1\alpha}$  die Konzentration von Komponente 1,  $F$  den aktuellen Eintrittsstrom in das zu bilanzierende differenzielle Element des Membranmoduls,  $x_1$  die Eintrittskonzentration von Komponente 1,  $F_\omega$  den Retentatstrom,  $x_{1\omega}$  die Konzentration von Komponente 1 im Retentat,  $dN$  den differenziellen Strom über die Membran im differenziellen Element,  $y_1$  die Konzentration von Komponente 1 in  $dN$  sowie  $V_\omega$  den gesamten Permeatstrom und  $y_{1\omega}$  die Permeatkonzentration von Komponente 1 dar. Die Ausdrücke  $dF$  und  $dx_1$  stehen für die Änderung des Feedstromes, respektive die Konzentrationsänderung auf der Feedseite über das differenzielle Flächenelement.

$$N_1 = y_1 * \frac{dN}{dA}$$

Formel 3-6: Differenzieller Fluss über die Membran [7]

$$y_1 * \frac{dN}{dA} = R_1 * (\varphi_{11} * P_1 * x_1 - \varphi_{12} * P_2 * y_1)$$

Formel 3-7: Differenzieller Strom über die Membran in Abhängigkeit von den Molanteilen, Drücken und Fugazitätskoeffizienten der jeweiligen Phase [7]

### 3. Grundlagen der Membrantrennung

Formel 3-7 ist die erste Gleichung die zur Beschreibung der Membrantrennung verwendet wird. Die zweite Gleichung ergibt sich durch Division von Formel 3-7 für Komponente 1 durch jene für Komponente 2. (Formel 3-8)

$$\frac{y_1}{y_2} = \frac{R_1 * (\varphi_{11} * P_1 * x_1 - \varphi_{12} * P_2 * y_1)}{R_2 * (\varphi_{21} * P_1 * x_2 - \varphi_{22} * P_2 * y_2)}$$

Formel 3-8: Zweite Gleichung zur Beschreibung der Membrantrennung [7]

Formel 3-7 und Formel 3-8 ermöglichen auch eine Beschreibung der Trennung von Mehrstoffgemischen, wobei Formel 3-7 für Komponente 1 angeschrieben wird und für die Komponenten 2 bis n Formel 3-8 adaptiert wird. Dies ist in Formel 3-9 dargestellt.

$$\frac{y_1}{y_i} = \frac{R_1 * (\varphi_{11} * P_1 * x_1 - \varphi_{12} * P_2 * y_1)}{R_i * (\varphi_{i1} * P_1 * x_i - \varphi_{i2} * P_2 * y_i)}$$

Formel 3-9: Zweite Gleichung zur Beschreibung der Membrantrennung für n Komponenten (i von 2 bis n)

#### **3.3.2 Modell 2: „Simulation of multicomponent gas separation in a hollow fiber membrane by orthogonal collocation - hydrogen recovery from refinery gases“ von Kaldis, Kapantaidakis und Sakellaropoulos**

Modell 2 basiert auf einem bestehenden Algorithmus zur Berechnung der Trennung von gasförmigen Mehrstoffgemischen mittels Hohlfasermembranen. Dieser wurde 1986 von Pan unter dem Titel „Gas Separation by High-Flux, Asymmetric Hollow-Fiber Membrane“ veröffentlicht. [8] Um das in der vorliegenden Arbeit verwendete Modell zu verstehen, wird die letztgenannte Quelle als Basis herangezogen und auch die darin enthaltenen Gleichungen hergeleitet. Auf Basis derer wird im Anschluss das Gleichungssystem hergeleitet, das sowohl bei Sakellaropoulos et al. als auch in der vorliegenden Arbeit verwendet wurde. [9]

Zuerst soll aber noch auf die Annahmen eingegangen werden, die bei der Berechnung mit Modell 2 getroffen werden. Für die poröse Stützschiicht der Membran wird angenommen, dass der Widerstand für den Gasstrom vernachlässigbar ist. Gleiches gilt auch für die Diffusion innerhalb der Poren, da diese im Vergleich zum großen Permeatstrom sehr gering ist. Weiters soll der Druckverlust auf der Feedseite vernachlässigt und jener der Permeatseite mittels Hagen-Poiseuille beschrieben werden (siehe Formel 3-32). Eine weitere vernachlässigbare Größe stellt die Deformation der Fasern unter Druck dar. Die Permeabilitäten der Membranen hängen mittels einer Arrhenius-Gleichung von der Temperatur, nicht aber von Druck und Konzentration ab. Für die Viskositäten der Gase wird angenommen, dass sie sich linear mit der Konzentration ändern. Die wichtigste der Annahmen besagt, dass die Konzentration im gesamten Permeatstrom gleich sein soll, also dass Rückdiffusion vernachlässigt werden kann. Lediglich innerhalb der aktiven Trennschiicht wird ein Konzentrationsgefälle angenommen. Dies ist für sehr dünne aktive Schichten und hochporöse Stützschiichten eine zulässige Annahme. Ansonsten würde die Vorgabe, dass die Summe aller Konzentrationen in jedem Punkt 1 beträgt, zu hochgradig nichtlinearen Gleichungen führen. Mit der genannten Vereinfachung ergibt sich, dass die Konzentration im Bulk des Permeats gleich jener in der porösen Stützschiicht ist. [9]

Formel 3-10 zeigt den Zusammenhang zwischen der Änderung von Feed und Feedkonzentration der Komponente mit der Konzentration von Komponente  $i$  und der Änderung des Feedstromes  $dF$ , was betragsmäßig dem Strom über die Membran im betrachteten differenziellen Flächenelement entspricht, allerdings ein umgekehrtes Vorzeichen aufweist. Dies ist sofort ersichtlich, wenn man eine Gesamtbilanz um das differenzielle Flächenelement des Membranmoduls legt, das in Abbildung 3-8 mit einer strichlierten Linie gekennzeichnet ist. Es ist dabei aus Übersichtlichkeitsgründen eine Flachmembran dargestellt, die Ergebnisse der Bilanz sind aber auch für Hohlfasermembranen gültig. Die Bilanz ist in Formel 3-11 dargestellt.

### 3. Grundlagen der Membrantrennung

$$\frac{d(F * x_i)}{dA} = y_i * \frac{dF}{dA}$$

Formel 3-10: Zusammenhang Änderung von Feedstrom und Feedkonzentration mit der Permeatkonzentration

$$F = \left( F + \frac{dF}{dA} \right) + \frac{dN}{dA}$$

Formel 3-11: Gesamtbilanz um differenzielles Flächenelement der Membran

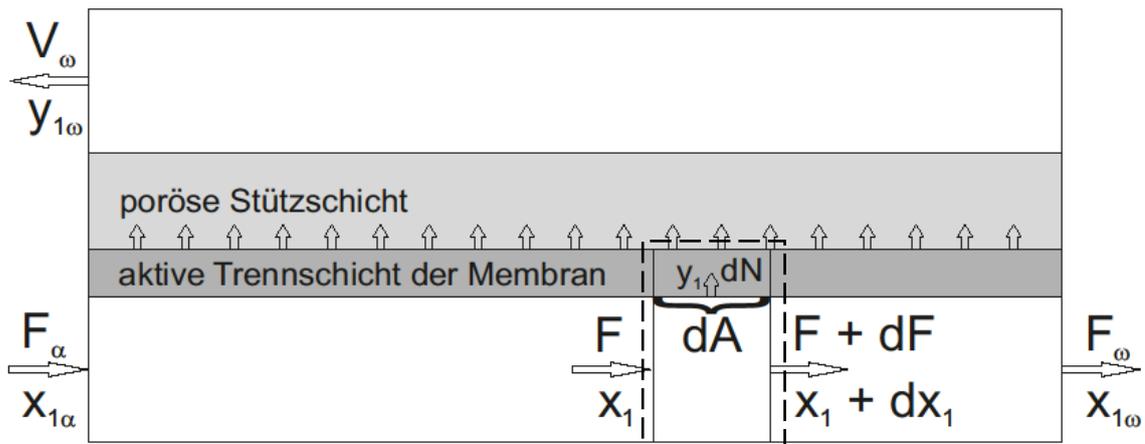


Abbildung 3-8: Darstellung des differenziellen Bilanzgebietes um die Membran

Die nächste wichtige Formel erhält man, indem die Änderung des Feedstromes im differenziellen Flächenelement mit dem Fluss über die Membran kombiniert wird. Die Herleitung des Flusses wurde schon im Rahmen der Umformungen zu Modell 1 in Abschnitt 3.3.1 durchgeführt, daher wird an dieser Stelle darauf verzichtet. Es besteht nur ein Unterschied im Vorzeichen des  $dF$  in der Bilanz. Fattah et al. nehmen an, dass  $dF$  positiv ist, also dem Permeatstrom im jeweiligen Flächenelement entspricht, wodurch  $dF$  gleich  $dN$  ist. Im Gegensatz dazu wird von Pan, in weiterer Folge auch von Sakellaropoulos et al. angenommen, dass  $dF$  negativ ist, also die Änderung von  $F$  entlang der Membran beschreibt. Dieser Unterschied ist anhand von Abbildung 3-7 und Abbildung 3-8 ersichtlich und ist die Erklärung für das negative Vorzeichen in Formel 3-12.

$$\frac{d(F * x_i)}{dz} = -\pi * D_o * N_F * \left( \frac{Q_i}{d} \right) * (P_1 * x_i - P_2 * y_i)$$

Formel 3-12: Änderung von Feedstrom und Konzentration von Komponenten i über differenzielles Flächenelement

### 3. Grundlagen der Membrantrennung

In Modell 2 ist die Bezugsgröße nicht die Membranfläche sondern die Länge. Daher stehen auf der rechten Seite von Formel 3-12 die Konstanten  $\pi$ ,  $D_o$  und  $N_F$ . Durch Division durch diese drei Werte erhält man auf der linken Seite die differenzielle Membranfläche im Nenner.  $Q_i/d$  ist die Permeabilität durch die Dicke der Membran, also nichts anderes als die Permeanz. Außerdem ist ersichtlich, dass die Nichtidealität der Gasphase im Gegensatz zu Modell 1 nicht berücksichtigt wird.

Durch Zusammenfassen und Dimensionslosmachen ergibt sich daraus Formel 3-13.

$$y_i * \frac{d\bar{F}}{dS} = -\alpha_{ij} * (x_i - \gamma * y_i)$$

Formel 3-13: Dimensionslose Darstellung der Änderung des Feedstromes multipliziert mit der Konzentration der Komponente i im übertretenden Strom

Später wird noch eine Umformung dieser Gleichung benötigt, aus diesem Grund muss noch durch  $y_i$  dividiert werden.

$$\frac{d\bar{F}}{dS} = \frac{-\alpha_{ij} * (x_i - \gamma * y_i)}{y_i}$$

Formel 3-14: Umformung von Formel 3-13

Bei diesen beiden und den folgenden Formeln steht  $\bar{F}$  für den Feed, der in das differenzielle Flächenelement eintritt  $F$ , dividiert durch den Strom, der in das Membranmodul strömt  $F_\alpha$ . Die Permselectivität, also die Permeabilität der Komponente i dividiert durch jene der Komponente 1, wird mit  $\alpha_{ij}$  ersetzt, wobei die Komponente „j“ die am langsamsten permeierende Komponente ist, und für das Druckverhältnis  $P_2/P_1$  wird  $\gamma$  eingesetzt.  $S$  stellt eine dimensionslose Membranfläche dar und wird wie in Formel 3-15 gezeigt berechnet.

### 3. Grundlagen der Membrantrennung

$$S = \frac{z * \pi * D_o * N_F * P_1 * \left(\frac{Q_j}{d}\right)}{F_\alpha}$$

Formel 3-15: Dimensionslose Membranfläche

Wird in Formel 3-13 Formel 3-10 eingesetzt und durch  $\alpha_{ij}$  dividiert, erhält man Formel 3-16.

$$\frac{d(\bar{F} * x_i)}{\alpha_{ij} * dS} = -(x_i - \gamma * y_i)$$

Formel 3-16: Formel 3-10 in Formel 3-13 eingesetzt

Durch Bilden der Summe von Formel 3-16 über alle Komponenten ergibt sich

$$\sum_{i=1}^n \frac{d(\bar{F} * x_i)}{\alpha_{ij} * dS} = \sum_{i=1}^n -(x_i - \gamma * y_i)$$

Formel 3-17: Summe von Formel 3-16 über alle Komponenten

Die Summe der  $x_i$  ist bekanntlich 1, daher lässt sich Formel 3-17 auch wie in Formel 3-18 anschreiben.

$$\sum_{i=1}^n \frac{d(\bar{F} * x_i)}{\alpha_{ij} * dS} = -\left(1 - \gamma * \sum_{i=1}^n y_i\right)$$

Formel 3-18: andere Schreibweise für Formel 3-17

Die Summe der  $y_i$  ergibt sich ebenfalls zu 1, wodurch Formel 3-18 zu Formel 3-19 wird.

$$\sum_{i=1}^n \frac{d(\bar{F} * x_i)}{\alpha_{ij} * dS} = -(1 - \gamma)$$

Formel 3-19: weitere Vereinfachung von Formel 3-17

Durch Einsetzen von Formel 3-10 in Formel 3-19 ergibt sich Formel 3-20.

$$\sum_{i=1}^n \frac{y_i}{\alpha_{ij}} * \frac{d\bar{F}}{dS} = -(1 - \gamma)$$

Formel 3-20: Umformung von Formel 3-19

Und nach Division durch die Summe der  $y_i$  durch  $\alpha_{i1}$

$$\frac{d\bar{F}}{dS} = \frac{-(1 - \gamma)}{y_o}$$

Formel 3-21: Definition für differentiellen, genormten Strom

In Formel 3-22 wird  $y_o$  definiert.

$$y_o = \sum_{i=1}^n \frac{y_i}{\alpha_{ij}}$$

Formel 3-22: Definition von  $y_o$

Mit Formel 3-14 und Formel 3-21 gibt es nun zwei Definitionen für  $d\bar{F}/dS$  die in Formel 3-23 zusammengefasst werden. In weiterer Folge wird von Formel 3-23 rechts beziehungsweise links gesprochen.

### 3. Grundlagen der Membrantrennung

$$\frac{d\bar{F}}{dS} = \frac{-\alpha_{ij} * (x_i - \gamma * y_i)}{y_i} = \frac{-(1 - \gamma)}{y_o}$$

Formel 3-23: Zusammenfassung von Formel 3-14 und Formel 3-21

Aus der rechten Seite von Formel 3-23 lässt sich eine Gleichung für  $y_i$  erhalten.

$$\alpha_{ij} * \gamma * y_i - \alpha_{ij} * x_i = \frac{-(1 - \gamma)}{y_o} * y_i$$

Formel 3-24: rechte Seite von Formel 3-23 mit  $y_i$  multipliziert

Durch Multiplikation mit  $y_o$  und Trennung von  $y_i$  und  $x_i$  erhält man Formel 3-25.

$$y_i = \frac{\alpha_{ij} * x_i * y_o}{\alpha_{ij} * \gamma * y_o + 1 - \gamma}$$

Formel 3-25: Definition von  $y_i$

Wie am Anfang dieses Abschnitts bereits festgestellt wurde, geht man bei diesem Modell von der Annahme aus, dass der Druckverlauf auf der Permeatseite, die sich hier in der Hohlfaser befindet, durch eine Hagen-Poiseuille-Gleichung beschreiben lässt. Diese wird in Lim et al. [10] ausführlich beschrieben, weshalb an dieser Stelle darauf verzichtet wird. Lediglich die letzten Umformungen, um die Gleichung aus Pan [8] zu erhalten, werden hier durchgeführt. Als zusätzliche Annahme, um die Beschreibung nach Hagen-Poiseuille zu ermöglichen, muss angenommen werden, dass die Permeatmenge  $V$  über ein differenzielles Flächenelement konstant bleibt. Dies ist für kleine Ströme über die Membran zulässig.

$$\frac{dP_2}{dz} = \frac{-128 * R * T * \mu * V}{\pi * D_i^4 * N_F * P_2}$$

Formel 3-26: Hagen-Poiseuille-Gleichung für nichtpermeable Wände eines Rohres [10]

### 3. Grundlagen der Membrantrennung

Da der Permeatstrom als konstant angenommen wird, kann die rechte Seite von Formel 3-26 zu einer Konstanten  $\kappa$  zusammengefasst werden. Dies wird nur aus Übersichtlichkeitsgründen durchgeführt, da diese Parameter auf die weitere Beschreibung keinen Einfluss haben.

$$\kappa = \frac{-128 * R * T * \mu * V}{\pi * D_i^4 * N_F}$$

Formel 3-27: Zusammenfassung der Konstanten

Nach Variablentrennung in Formel 3-26 erhält man Formel 3-28.

$$P_2 * dP_2 = \kappa * dz$$

Formel 3-28: Formel 3-26 nach Variablentrennung und Einsetzen von  $\kappa$

Diese wird nun integriert. Dadurch erhält man Formel 3-29.

$$\frac{P_2^2}{2} = \kappa * z + C_1$$

Formel 3-29: Ergebnis der unbestimmten Integration von Formel 3-28

Dies ist eine Darstellung des Druckverlaufs über die Länge der Hohlfaser. Durch differenzielle Variation von  $z$  erhält man eine neue Differenzialgleichung. Dieser Vorgang ist in Formel 3-30 dargestellt.

$$\frac{P_{2,2}^2}{2} - \frac{P_{2,1}^2}{2} = \kappa * (z_2 - z_1) + C_1 - C_1$$

Formel 3-30: Variation von  $z$

### 3. Grundlagen der Membrantrennung

Durch Annäherung von  $z_2$  an  $z_1$  erfolgt auch eine Annäherung von  $P_{2,2}^2$  an  $P_{2,1}^2$ . Daraus folgt ein sehr kleiner Unterschied bei unendlich kleinem Unterschied zwischen  $z_1$   $z_2$ , der letztlich in Differenzialen endet. (siehe Formel 3-31)

$$dP_2^2 = 2 * \kappa * dz$$

Formel 3-31: Differenziale nach differenzieller Variation von z

Durch Division durch dz und Einsetzen von Formel 3-27 ergibt sich Formel 3-32.

$$\frac{dP_2^2}{dz} = \frac{-256 * R * T * \mu * V}{\pi * D_i^4 * N_F}$$

Formel 3-32: Permeatseitiger Druckverlust mittels Hagen-Poiseuille-Gleichung beschrieben

Bis hier wurden ausschließlich Formeln aus Pan [8] hergeleitet. Im folgenden Teil werden die in Sakellaropoulos et al. [9] verwendeten Gleichungen, die auch in der vorliegenden Arbeit zur Beschreibung der Membrantrennung verwendet wurden, aus diesen herausgearbeitet.

Aus der linken Seite von Formel 3-23 und Formel 3-10 lässt sich durch Anwendung der Produktregel (Formel 3-34) und dem erneuten Einsetzen der linken Seite von Formel 3-23 (Formel 3-35) die erste Formel von Sakellaropoulos et al. bestimmen, die den Konzentrationsverlauf im Feed über die dimensionslose Fläche beschreibt (Formel 3-36).

$$\frac{d(\bar{F} * x_i)}{dS} = -\alpha_{ij} * (x_i - \gamma * y_i)$$

Formel 3-33: Formel 3-10 in die linke Seite von Formel 3-23 eingesetzt

$$\bar{F} * \frac{dx_i}{dS} + x_i * \frac{d\bar{F}}{dS} = -\alpha_{ij} * (x_i - \gamma * y_i)$$

Formel 3-34: Anwendung der Produktregel auf Formel 3-33

$$\bar{F} * \frac{dx_i}{dS} - \frac{x_i * \alpha_{ij}}{y_i} * (x_i - \gamma * y_i) = -\alpha_{ij} * (x_i - \gamma * y_i)$$

Formel 3-35: Linke Seite von Formel 3-23 in Formel 3-34 eingesetzt

Durch Addition des 2. Terms der linken Seite zur rechten Seite und Herausheben des Terms  $\alpha_{ij} * (x_i - \gamma * y_i)$ , sowie der Division durch  $\bar{F}$  ergibt sich Formel 3-36. Diese wird für alle n Komponenten von 1 bis n-1 angewandt.

$$\frac{dx_i}{dS} = \frac{\alpha_{ij}}{\bar{F}} * (x_i - \gamma * y_i) * \left( \frac{x_i}{y_i} - 1 \right)$$

Formel 3-36: Differenzialgleichung zur Beschreibung des Konzentrationsverlaufs im Feed über die dimensionslose Fläche

Die Konzentration der n-ten Komponente ergibt sich daraus, dass die Summe der  $x_i$  1 ist.

$$\sum_{i=1}^n x_i = 1$$

Formel 3-37: Summe der  $x_i$

Die dritte Formel im Gleichungssystem von Sakellaropoulos et al. entspricht Formel 3-25 und wird daher nicht noch einmal angeführt. Diese wird wieder für n-1 Komponenten angewandt und die Konzentration der n-ten Komponente in der aktiven Schicht wird auch diesmal über die Summe aller Konzentrationen berechnet.

$$\sum_{i=1}^n y_i = 1$$

Formel 3-38: Summe der  $y_i$

Formel 3-21 und Formel 3-22 werden auch bei Sakellaropoulos et al. verwendet und stellt die fünfte und sechste Gleichung des Gleichungssystems dar.

Die letzte Gleichung des Gleichungssystems erhält man, indem man Formel 3-32 dimensionslos macht.

$$\frac{d\gamma^2}{dS} * \frac{\pi * D_o * N_F}{F_\alpha} * \left(\frac{Q_j}{d}\right) * P_1^3 = \frac{-256 * R * T * \mu * V}{\pi * D_i^4 * N_F}$$

Formel 3-39: dimensionslos gemachte Formel 3-32

Um eine übersichtliche Darstellung des Verlaufs des Druckverhältnisses über die dimensionslose Membranfläche  $S$  zu erhalten, werden die Konstanten auf die rechte Seite gebracht.

$$\frac{d\gamma^2}{dS} = \frac{-256 * R * T * \mu * V}{\frac{\pi^2 * D_o * D_i^4 * N_F^2 * P_1^3}{F_\alpha} * \left(\frac{Q_j}{d}\right)}$$

Formel 3-40: alle Konstanten auf die rechte Seite

Nun wird auch der Strom des Permeats  $V$ , der auf der rechten Seite der Gleichung steht und in Richtung der positiven Zählrichtung der dimensionslosen Membranfläche positiv gezählt wird, auf den Eingangsstrom  $F_\alpha$  normiert und die in Konstante  $K$  zusammengefasst.  $K$  ist in Formel 3-42 ersichtlich. Der Ausdruck  $\mu$  steht dabei für die dynamische Viskosität des permeatseitigen Gasstromes und  $\mu_n$  für jene der am wenigsten permeablen Komponente  $n$ .

$$\frac{d\gamma^2}{dS} = -K * \frac{\mu}{\mu_n} * \bar{V}$$

Formel 3-41: Zusammenfassung der Konstanten und Dimensionslosmachen des Permeatstroms

$$K = \frac{256 * R * T * \mu_n * F_\alpha^2}{\pi^2 * D_o * D_i^4 * N_F^2 * P_1^3 * \left(\frac{Q_j}{d}\right)}$$

Formel 3-42: Definition der Konstanten  $K$

#### **3.3.3 Modell 3: „Corrections for analytical gas-permeation models for separation of binary gas mixtures using membrane modules“ von Smith, Hall, Freeman und Rautenbach**

Wie der Name des Artikels, auf dem Modell 3 basiert, sagt, handelt es sich um die Korrektur einer zuvor von Rautenbach und Dahm [11] verfassten Arbeit, die Fehler enthielt. [12] In weiterer Folge werden die vereinfachenden Annahmen aufgelistet und die Herleitung des Gleichungssystems, das auf jenem in [12] beruht, vorgenommen.

Die erste Vereinfachung ist die Annahme eines Steady-state. Es wird also die An- und Abfahrphase nicht berücksichtigt. Weiters wird ein vernachlässigbarer Druckverlust im Membranmodul angenommen, also sind die Drücke sowohl auf der Feed- als auch auf der Permeatseite konstant. Für die Feedseite wird weiters angenommen, dass eine Pfropfenströmung vorherrscht, also axiale Rückvermischung vernachlässigt werden kann. Die Permeatseite andererseits soll komplett durchmischt sein, was eine konstante Konzentration im gesamten Permeat bedeutet. Außerdem gilt für die Permeabilitäten und Permselectivitäten, dass keine Abhängigkeit von Konzentration, Druck oder Temperatur vorhanden ist, sie also über das gesamte Modul konstant sind.

Im folgenden Abschnitt wird das Modell 3 für zwei Komponenten hergeleitet, danach wird auch darauf eingegangen, wie die Herleitung dieses Modells für 4 Komponenten durchgeführt wird, die nicht in der Literatur zu finden ist.

3.3.3.1 Herleitung des Modells 3 für 2 Komponenten

In Abbildung 3-9 ist das Membranmodul dargestellt. Durch eine Gesamtbilanz um das differenzielle Bilanzgebiet, das umrahmt ist, ergibt sich Formel 3-43. Der Fluss  $N$  wurde dabei wie in Modell 1 mit dem Strom über die differenzielle Membranfläche  $dN/dA$  gleichgesetzt.

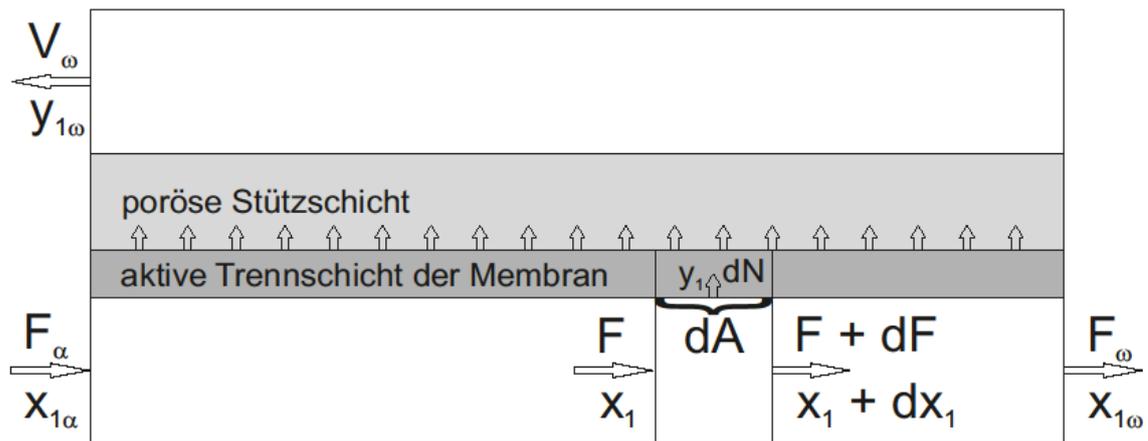


Abbildung 3-9: Darstellung des differenziellen Bilanzgebietes um die Membran

$$\frac{dF}{dA} = - \frac{dN}{dA}$$

Formel 3-43: Zusammenhang von Änderung des Feedstromes und Fluss über die Membran

Der Fluss über ein differenzielles Flächenelement der Membran ist in Formel 3-44 dargestellt. Dabei handelt es sich um eine Addition von Formel 3-4, welche einmal für Komponente 1 und einmal für Komponente 2 berechnet wurde. Da diese schon für Modell 1 hergeleitet wurde, wird an dieser Stelle darauf verzichtet.

$$N = R_1 * (P_1 * x_1 - P_2 * y_1) + R_2 * (P_1 * (1 - x_1) - P_2 * (1 - y_1))$$

Formel 3-44: Gesamter Fluss über ein differenzielles Flächenelement der Membran

Die Kombination von Formel 3-43 und Formel 3-44 ergibt eine Differenzialgleichung für die Änderung des Feed über die Membranfläche. (Formel 3-45)

$$\frac{dF}{dA} = -R_1 * (P_1 * x_1 - P_2 * y_1) + R_2 * (P_1 * (1 - x_1) - P_2 * (1 - y_1))$$

Formel 3-45: Differenzialgleichung für die Änderung des Feed über die Membranfläche

Formel 3-45 wird in weiterer Folge dimensionslos gemacht und vereinfacht. Diese Schritte sind von Formel 3-46 bis Formel 3-52 dokumentiert.

Zuerst werden  $P_1$  und  $R_1$  herausgehoben und sowohl  $\gamma$  als auch  $\alpha_{21}$  eingeführt. Die Variable  $\gamma$  steht dabei für das Druckverhältnis  $P_2/P_1$  und  $\alpha_{21}$  für die Permselectivität  $R_2/R_1$ .

$$\frac{dF}{dA} = -P_1 * R_1 * ((x_1 - \gamma * y_1) + \alpha_{21} * ((1 - x_1) - \gamma * (1 - y_1)))$$

Formel 3-46:  $P_1$  und  $R_1$  herausgehoben

Im Anschluss daran wird  $dF/dA$  dimensionslos gemacht und zu  $d\bar{F}/d\bar{z}$  umgeformt.  $\bar{F}$  ist dabei der auf den Eingangsfeed bezogene momentane Feed und  $\bar{z}$  die auf die Modullänge bezogene Laufvariable. Um die Umformung durchzuführen, muss die linke Seite von Formel 3-46 mit  $F_\alpha/A_{mem}$  erweitert werden. Dabei wird die Differenzialgleichung dahingehend verändert, dass die Änderung des Feed nun auf die Länge der Membran bezogen wird. Die Herleitung dieses Teil erfolgt mithilfe von Formel 3-48 bis Formel 3-50.

$$\frac{F_\alpha}{A_{mem}} * \frac{d\bar{F}}{d\bar{z}} = -P_1 * R_1 * ((x_1 - \gamma * y_1) + \alpha_{21} * ((1 - x_1) - \gamma * (1 - y_1)))$$

Formel 3-47: Dimensionslose Darstellung des Flusses über die Membranlänge

$$\bar{z} = \frac{z}{L}$$

Formel 3-48: Dimensionslose Darstellung der Laufvariable z

### 3. Grundlagen der Membrantrennung

$$dA = dz * B$$

Formel 3-49: Differenzielles Flächenelement in Abhängigkeit der Laufvariable z dargestellt

$$dA = d\bar{z} * B * L$$

Formel 3-50: Zusammenfassung von Formel 3-48 und Formel 3-49

Nun müssen noch  $A_{mem}$  und  $F_\alpha$  auf die rechte Seite gebracht werden. Außerdem werden die Konstanten in einer Konstante  $K$  zusammengefasst (siehe Formel 3-52). Die erste Gleichung des Gleichungssystems ist damit hergeleitet und in Formel 3-51 dargestellt.

$$\frac{d\bar{F}}{d\bar{z}} = -K * \left( (x_1 - \gamma * y_1) + \alpha_{21} * ((1 - x_1) - \gamma * (1 - y_1)) \right)$$

Formel 3-51: Dimensionslose Darstellung des Flusses über die differenzielle Membranlänge nach Zusammenfassung der Konstanten

$$K = \frac{A_{mem} * P_1 * R_1}{F_\alpha}$$

Formel 3-52: Zusammenfassung aller Konstanten

Nun soll die zweite wichtige Gleichung des Gleichungssystems von Modell 3 hergeleitet werden. Ausgangsbasis dafür ist die Komponentenbilanz um ein differenzielles Flächenelement der Membran (Formel 3-53).

$$F * x_1 = \left( F + \frac{dF}{dA} \right) * \left( x_1 + \frac{dx_1}{dA} \right) + \frac{dN}{dA} * y_1$$

Formel 3-53: Komponentenbilanz um differenzielles Flächenelement der Membran

Nach Ausmultiplizieren, Kürzen und Umformungen ergibt sich Formel 3-54.

$$-F * \frac{dx_1}{dA} = x_1 * \frac{dF}{dA} + \frac{dN}{dA} * y_1$$

Formel 3-54: Vereinfachte Form von Formel 3-53

Durch Einsetzen von Formel 3-46 und Formel 3-55 ergibt sich nach Dimensionslosmachen der linken Seite Formel 3-56.

$$\frac{dN}{dA} * y_1 = P_1 * R_1 * (x_1 - \gamma * y_1)$$

Formel 3-55: differentieller Fluss von Komponente 1 über die Membran

$$-\bar{F} * \frac{dx_1}{d\bar{z}} = \frac{A}{F_\alpha} * \left[ -x_1 * P_1 * R_1 * \left( (x_1 - \gamma * y_1) + \alpha_{21} * \left( (1 - x_1) - \gamma * (1 - y_1) \right) \right) + P_1 * R_1 * (x_1 - \gamma * y_1) \right]$$

Formel 3-56: Einsetzen von Formel 3-46 und Formel 3-55 in Formel 3-54

Durch Herausheben von  $P_1 * R_1$  lässt sich Konstante  $K$  erneut einführen. Dies ist in Formel 3-57 dargestellt. Durch Zusammenfassen des ersten Terms auf der rechten Seite mit dem letzten ergibt sich die zweite Differenzialgleichung von Modell 3. (Formel 3-58)

$$\bar{F} * \frac{dx_1}{d\bar{z}} = -K * \left[ -x_1 * \left( (x_1 - \gamma * y_1) + \alpha_{21} * \left( (1 - x_1) - \gamma * (1 - y_1) \right) \right) + (x_1 - \gamma * y_1) \right]$$

Formel 3-57: Zusammenfassung der Konstanten zu  $K$

$$\bar{F} * \frac{dx_1}{d\bar{z}} = -K * \left[ (1 - x_1) * (x_1 - \gamma * y_1) - \alpha_{21} * \left( (1 - x_1) - \gamma * (1 - y_1) \right) \right]$$

Formel 3-58: Zweite Differenzialgleichung von Modell 3

#### 3.3.3.2 Herleitung des Modells 3 für 4 Komponenten:

In Formel 3-41 wurde bereits der Zusammenhang zwischen der Änderung des Feedstromes und dem Fluss über die Membran dargestellt und in Formel 3-43 für zwei Komponenten ausformuliert. Dies soll nun auch für 4 Komponenten durchgeführt werden und ist in Formel 3-59 ersichtlich.

$$\frac{dF}{dA} = -(R_1 * (P_1 * x_1 - P_2 * y_1) + R_2 * (P_1 * x_2 - P_2 * y_2) + R_3 * (P_1 * x_3 - P_2 * y_3) + R_4 * (P_1 * x_4 - P_2 * y_4))$$

Formel 3-59: Änderung des Feed über ein differenzielles Flächenelement der Membran

Wie für zwei Komponenten wird auch hier die Gleichung dimensionslos gemacht und vereinfacht. Die Umformungen werden analog zu jenen für zwei Komponenten gezeigt durchgeführt und daher hier nicht mehr angeführt. In Formel 3-60 ist das Endergebnis und damit die erste Gleichung des Gleichungssystems dargestellt.

$$\frac{d\bar{F}}{d\bar{z}} = -K * ((x_1 - \gamma * y_1) + \alpha_{21} * (x_2 - \gamma * y_2) + \alpha_{31} * (x_3 - \gamma * y_3) + \alpha_{41} * (x_4 - \gamma * y_4))$$

Formel 3-60: Dimensionslose Darstellung der Änderung des Feedstromes über ein differenzielles Längenelement der Membran nach Zusammenfassung der Konstanten für 4 Komponenten

Um drei weitere Differenzialgleichungen für das System zu erhalten, wird wie für zwei Komponenten eine Komponentenbilanz um das differenzielle Flächenelement durchgeführt, diesmal aber nicht nur für 1 Komponente, sondern für n-1 (Formel 3-61). Die Bezeichnung  $n$  stellt dabei die Gesamtanzahl der Komponenten dar.

$$F * x_i = \left(F + \frac{dF}{dA}\right) * \left(x_i + \frac{dx_i}{dA}\right) + \frac{dN}{dA} * y_i$$

Formel 3-61: Komponentenbilanz um differenzielles Flächenelement der Membran für Komponente i

Wie für zwei Komponenten wird auch hier ausmultipliziert, gekürzt und umgeformt um schließlich Formel 3-62 zu erhalten.

### 3. Grundlagen der Membrantrennung

$$-F * \frac{dx_i}{dA} = x_i * \frac{dF}{dA} + \frac{dN}{dA} * y_i$$

Formel 3-62: Vereinfachte Form von Formel 3-61

Der letzte Term in Formel 3-62 entspricht dem differentiellen Fluss von Komponente i über die Membranfläche und ist in Formel 3-63 dargestellt.  $dF/dA$  wurde bereits in Formel 3-59 beschrieben. Formel 3-64 stellt die Zusammenfassung der drei davor genannten Gleichungen dar.

$$\frac{dN}{dA} * y_i = P_1 * R_i * (x_i - \gamma * y_i)$$

Formel 3-63: differentieller Fluss von Komponente i über die Membran

$$\begin{aligned} -F * \frac{dx_i}{dA} = x_i * & \left( -(R_1 * (P_1 * x_1 - P_2 * y_1) + R_2 * (P_1 * x_2 - P_2 * y_2) \right. \\ & \left. + R_3 * (P_1 * x_3 - P_2 * y_3) + R_4 * (P_1 * x_4 - P_2 * y_4)) \right) \\ & + P_1 * R_i * (x_i - \gamma * y_i) \end{aligned}$$

Formel 3-64: Formel 3-59 und Formel 3-63 in Formel 3-62 eingefügt

Nach Dimensionslosmachen und Zusammenfassen ergibt sich für Komponente 1

$$\begin{aligned} \bar{F} * \frac{dx_1}{d\bar{z}} = -K * & \left[ (1 - x_1) * (x_1 - \gamma * y_1) \right. \\ & \left. - x_1 (\alpha_{21} * (x_2 - \gamma * y_2) + \alpha_{31} * (x_3 - \gamma * y_3) + \alpha_{41} * (x_4 - \gamma * y_4)) \right] \end{aligned}$$

Formel 3-65: Formel 3-64 umgeformt, zusammengefasst und dimensionslos gemacht für Komponente 1

Für Komponente i sieht Formel 3-65 etwas anders aus, da es nicht möglich ist, so viel zusammen zu fassen.

$$\bar{F} * \frac{dx_i}{d\bar{z}} = -K * x_i((x_1 - \gamma * y_1) + \alpha_{21} * (x_2 - \gamma * y_2) + \alpha_{31} * (x_3 - \gamma * y_2) + \alpha_{41} * (x_4 - \gamma * y_4)) + \frac{A_{mem} * P_1 * R_i}{F_\alpha} * (x_i - \gamma * y_i)$$

Formel 3-66: Formel 3-64 umgeformt, zusammengefasst und dimensionslos gemacht für Komponente i

Mit Formel 3-59, sowie Formel 3-65 für Komponente 1 und Formel 3-66 für die Komponenten 2 bis n-1 ist es nun möglich, mit Modell 3 auch ein Gemisch aus mehr als zwei Komponenten zu beschreiben.

### 3.3.4 Kompakte Darstellung der Gleichungen der einzelnen Modelle

Bevor im nächsten Kapitel auf die Berechnung mit den nun vorgestellten Modellen und Gleichungssystemen eingegangen wird, erfolgt an dieser Stelle eine Zusammenfassung der Gleichungen. Die einzelnen Programme zur Berechnung der Membrantrennung mittels Matlab® sind im Anhang in Abschnitt 13.3 enthalten.

#### 3.3.4.1 Modell 1

<b>Gleichung 1</b>
$y_1 * \frac{dN}{dA} = R_1 * (\varphi_{11} * P_1 * x_1 - \varphi_{12} * P_2 * y_1)$
<b>Gleichungen 2</b>
$\frac{y_1}{y_i} = \frac{R_1 * (\varphi_{11} * P_1 * x_1 - \varphi_{12} * P_2 * y_1)}{R_i * (\varphi_{i1} * P_1 * x_i - \varphi_{i2} * P_2 * y_i)}$

Tabelle 3-2: Gleichungssystem für Modell 1

Gleichung 2 wird dabei für alle Komponenten von 2 bis n angeschrieben. Zusätzlich werden noch die Gesamt- und Komponentenbilanz für n-1 Komponenten um das differenzielle Flächenelement sowie die Summe der  $x_i$  und  $y_i$  gleich 1 benötigt, um eine vollständige Beschreibung zu ermöglichen.

## 3.3.4.2 Modell 2

<b>Gleichung 1</b>	<b>Gleichung 2</b>
$\frac{dx_i}{dS} = \frac{\alpha_{ij}}{\bar{F}} * (x_i - \gamma * y_i) * \left(\frac{x_i}{y_i} - 1\right)$	$\sum_{i=1}^n x_i = 1$
<b>Gleichung 3</b>	<b>Gleichung 4</b>
$y_i = \frac{\alpha_{ij} * x_i * y_o}{\alpha_{ij} * \gamma * y_o + 1 - \gamma}$	$\sum_{i=1}^n y_i = 1$
<b>Gleichung 5</b>	<b>Gleichung 6</b>
$\frac{d\bar{F}}{dS} = \frac{-(1 - \gamma)}{y_o}$	$y_o = \sum_{i=1}^n \frac{y_i}{\alpha_{ij}}$
<b>Gleichung 7</b>	
$\frac{d\gamma^2}{dS} = \frac{-256 * R * T * \mu * V}{\frac{\pi^2 * D_o * D_i^4 * N_F^2 * P_1^3}{F_\alpha} * \left(\frac{Q_1}{d}\right)}$	

Tabelle 3-3: Gleichungssystem für Modell 2

Die Gleichungen 1 und 3 des Gleichungssystems von Modell 2 werden für die Komponenten 1 bis n-1 verwendet. Die Konzentrationen der letzten Komponente ergeben sich aus den Gleichungen 2 oder 4. Um die beiden Ströme aus dem differentiellen Flächenelement berechnen zu können, muss zusätzlich zu den oben genannten Gleichungen die Gesamtbilanz um das differentielle Flächenelement angeschrieben werden.

## 3.3.4.3 Modell 3

Bei Modell 3 muss ein Unterschied zwischen den Gleichungssystemen für 2 und Mehrkomponenten gemacht werden. Daher wird in Tabelle 3-4 jenes für 2 Komponenten dargestellt und in Tabelle 3-5 jenes zur Beschreibung der Trennung von Mehrkomponentensystemen.

<b>Gleichung 1</b>
$\frac{d\bar{F}}{d\bar{z}} = -K * ((x_1 - \gamma * y_1) + \alpha_{21} * ((1 - x_1) - \gamma * (1 - y_1)))$
<b>Gleichung 2</b>
$\bar{F} * \frac{dx_1}{d\bar{z}} = -K * [(1 - x_1) * (x_1 - \gamma * y_1) - \alpha_{21} * ((1 - x_1) - \gamma * (1 - y_1))]$

Tabelle 3-4: Gleichungssystem für Modell 3 für 2 Komponenten

<b>Gleichung 1</b>
$\frac{d\bar{F}}{d\bar{z}} = -K * ((x_1 - \gamma * y_1) + \alpha_{21} * (x_2 - \gamma * y_2) + \alpha_{31} * (x_3 - \gamma * y_3) + \alpha_{41} * (x_4 - \gamma * y_4))$
<b>Gleichung 2</b>
$\bar{F} * \frac{dx_1}{d\bar{z}} = -K * [(1 - x_1) * (x_1 - \gamma * y_1) - x_1(\alpha_{21} * (x_2 - \gamma * y_2) + \alpha_{31} * (x_3 - \gamma * y_3) + \alpha_{41} * (x_4 - \gamma * y_4))]$
<b>Gleichung 3</b>
$\bar{F} * \frac{dx_i}{d\bar{z}} = -K * x_i((x_1 - \gamma * y_1) + \alpha_{21} * (x_2 - \gamma * y_2) + \alpha_{31} * (x_3 - \gamma * y_3) + \alpha_{41} * (x_4 - \gamma * y_4)) + \frac{A_{mem} * P_1 * R_i}{F_a} * (x_i - \gamma * y_i)$

Tabelle 3-5: Gleichungssystem für Modell 3 zur Beschreibung von Mehrstoffgemischen

Wie bei Modell 1 ist es auch bei Modell 3 zusätzlich notwendig, eine Gesamtbilanz sowie n-1 Komponentenbilanzen zu erstellen und die Summe der  $x_i$  und  $y_i$  1 zu setzen.

## 4 Berechnung der Membrantrennung

### 4.1 Geeignete Membranen für die Trennaufgabe

In diesem Abschnitt werden die ausgewählten Membranen dargestellt. Dabei ist zu erwähnen, dass ausschließlich Membranen gefunden wurden, die für eine Trennung mittels Gaspermeation geeignet sind. Dies liegt am Aufwand, der notwendig wäre, um die zu trennenden Komponenten, Wasserstoff, Methan, Ethan und Ethen zu verflüssigen, um eine Flüssigpermeation zu realisieren. Um dies zu verdeutlichen, sind die Siedepunkte dieser Stoffe bei atmosphärischen Bedingungen in Tabelle 4-1 dargestellt.

Stoff	Siedetemperatur [°C]
Wasserstoff	-252,77
Methan	-161,49
Ethan	-88,60
Ethen	-103,73

Tabelle 4-1: Siedetemperaturen der zu trennenden Spezies bei atmosphärischen Bedingungen ( $P = 1,01325 \text{ bar}$ ) [13]

Im Zuge der Literaturrecherche wurde eine Vielzahl von Membranen gefunden. Allerdings war es nur bei einigen wenigen möglich, die Daten so zu verarbeiten, dass auch eine mathematische Beschreibung der Trennung möglich wurde. Dies lag daran, dass oft nicht ausreichend Parameter, die zur Berechnung notwendig sind, vorhanden waren. Jene Membranen, die eine Simulation des Trennvorganges ermöglichten, sowie die jeweils zugehörigen Stoffsysteme und die Art der Membran sind in Tabelle 4-2 abgebildet. Außerdem sind die Permeanzen sowie die jeweilige Quelle angegeben. In der Literatur zu Membran 2 sind die Unsicherheiten der Permeabilität der Selektivität und der Dicke der Membran angegeben. Aus diesem Grund wurde im Vorfeld ein Bereich für die Permeanz berechnet. Dieser ist ebenfalls in Tabelle 4-2 dargestellt. Das erste Wertepaar zeigt jene Trennung mit der größten Selektivität und Permeanz von Wasserstoff, das zweite jene mit der geringsten Selektivität und Permeanz. Bei Membranen 3 und 4 wurden nur die unterstrichenen Permeanzen berechnet, da bei den anderen eine schlechtere Trennleistung erwartet wird. Die Abweichungen der Messwerte der Permeanzen von Membran 6 sind ebenfalls in der Literatur zu finden. Hier wurden wie bei Membran 2 die beste und die schlechteste Trennung simuliert. Die Permeanzen von Membran 6c wurden aus den Reinstoffpermeanzen abgeschätzt, da für dieses ternäre Gemisch keine Daten vorhanden waren. Aus diesem Grund ist auch die Differenz zwischen bester Selektivität und bester Permeanz zu den unselektivsten und langsamsten Permeanzen sehr groß. (ca. Faktor 2)

Nummer der Membran	Name der Membran	Art der Membran	Permeanz H <sub>2</sub> [mol/m <sup>2</sup> s Pa]	Permeanz CH <sub>4</sub> [mol/m <sup>2</sup> s Pa]	Permeanz C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> [mol/m <sup>2</sup> s Pa]	Permeanz C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> [mol/m <sup>2</sup> s Pa]	Quelle
1	ZIF-8	FM	1,33*10 <sup>-7</sup>	8,3*10 <sup>-9</sup>			[14]
2	ITQ-29/Polysulfone MMM <sup>1</sup>	FM	1,29*10 <sup>-10</sup> 4,05*10 <sup>-11</sup>	9,08*10 <sup>-13</sup> 3,43*10 <sup>-13</sup>			[15]
3	Polysulfone Udel® <sup>2</sup>	FM	4,19*10 <sup>-10</sup> 4,42*10 <sup>-10</sup> 4,72*10 <sup>-10</sup>	2,37*10 <sup>-11</sup> 3,05*10 <sup>-11</sup> 3,63*10 <sup>-11</sup>			[16]
4	Nu-6(2) 4wt%/ Polysulfone Udel® MMM <sup>3</sup>	FM	1,36*10 <sup>-10</sup> 1,44*10 <sup>-10</sup> 1,47*10 <sup>-10</sup>	1,87*10 <sup>-12</sup> 1,20*10 <sup>-12</sup> 8,91*10 <sup>-13</sup>			[16]
5	Nu-6(2) 14,7wt%/ Polysulfone Udel® MMM	FM	6,97*10 <sup>-11</sup>	1,75*10 <sup>-13</sup>			[16]
6a	ZIF-8 <sup>1</sup>	HFM	(1,39±0,67)*10 <sup>-6</sup>	(1,3±0,08)*10 <sup>-7</sup>			[17]
6b	ZIF-8 <sup>1</sup>	HFM	(1,21±0,72)*10 <sup>-6</sup>		(1,2±0,06)*10 <sup>-7</sup>		[17]
7	PESf (BFLM)	FM mit flüssigem Carrier			3,58*10 <sup>-11</sup>	3,94*10 <sup>-8</sup>	[18]
8	PESf (BFHFMC)	HFM mit flüssigem Carrier			2,93*10 <sup>-10</sup>	1,1*10 <sup>-7</sup>	[19]
9	SPEEK/SPEEK (HFMC)	HFM mit flüssigem Carrier			1,22*10 <sup>-13</sup>	3,3*10 <sup>-10</sup>	[20]
6c	ZIF-8	HFM	20,02*10 <sup>-7</sup> 10,01*10 <sup>-7</sup>	0,78*10 <sup>-7</sup> 1,56*10 <sup>-7</sup>	0,585*10 <sup>-7</sup> 1,17*10 <sup>-7</sup>		[17]
10	MFI-type zeolite membrane supported by porous α-alumina disk	FM	0	4,6*10 <sup>-9</sup>	1,5*10 <sup>-8</sup>	2,45*10 <sup>-8</sup>	[21]

Tabelle 4-2: Liste der Membranen, die für Simulationen der Trennung herangezogen wurden

<sup>1</sup> Es wurden Abweichungen für die Permeabilität von H<sub>2</sub>, die Selektivität sowie die Dicke der Membran angegeben. Die dargestellten Werte stellen das Maximum und das Minimum dar

<sup>2</sup> Die Permeanzen wurden bei verschiedenen Feeddrücken, von oben nach unten 310, 428 und 538 kPa bestimmt, der Permeatdruck wurde bei 101,3 kPa belassen

<sup>3</sup> Die Permeanzen wurden bei verschiedenen Feeddrücken, von oben nach unten 298, 424 und 538 kPa bestimmt, der Permeatdruck wurde bei 101,3 kPa belassen

In Tabelle 4-2 steht FM für Flachmembran und HFM für Hohlfasermembran. Im folgenden Abschnitt werden die einzelnen Membrantypen näher erklärt.

### 4.1.1 ZIF-8

ZIF steht für „Zeolitic Imidazolate Framework“, was eine Untergruppe der sogenannten MOFs, „Metal Organic Frameworks“, ist. Dabei handelt es sich um mikroporöse Hybridmembranen aus anorganischem und organischem Material. Die chemische Formel für ZIF-8 ist  $\text{Zn}(\text{mim})_2$ , wobei „mim“ für 2-Methylimidazolate steht. Durch den geringen Porendurchmesser (ca. 3,4 Å) und die gute thermische und chemische Stabilität wird dieses Material in Membranen eingesetzt, um Wasserstoff von anderen Stoffen zu trennen. [22] In Abbildung 4-1 ist der schematische Aufbau um eine Pore in einer ZIF-8-Membran dargestellt.-

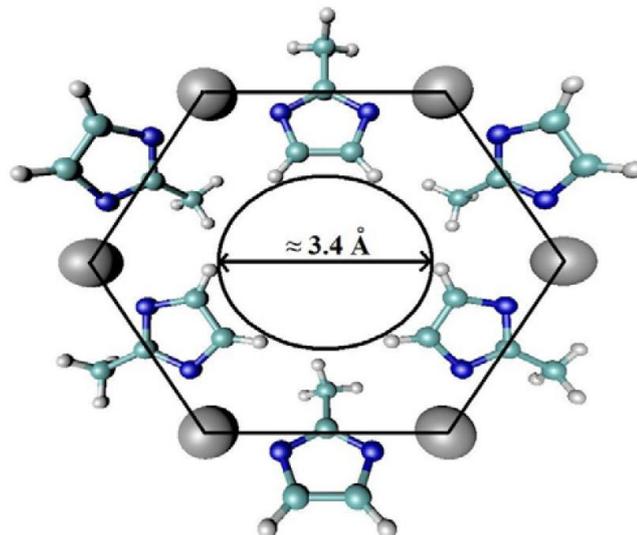


Abbildung 4-1: Schematische Darstellung einer Pore in ZIF-8 [14]

### 4.1.2 ITQ-29/Polysulfone MMM

Hierbei handelt es sich, wie die Abkürzung „MMM“ sagt, um eine „Mixed Matrix Membrane“. Das heißt, dass in eine Polymer-Matrix kleine kristalline Partikel homogen verteilt werden. Diese Partikel können drei Auswirkungen auf die Membranleistung haben. Zum einen können sie als Molekularsieb wirken, zum anderen die Polymerstruktur so stören, dass es zu einer erhöhten Permeabilität kommt oder auch als Barriere verwendet werden, um die Permeabilität herabzusetzen. Im konkreten Fall wird als Polymer Polysulfon, auch unter den Handelsnamen Udel® bekannt, eingesetzt.

ITQ-29 ist die Bezeichnung für einen Zeolith A, der frei von Aluminium ist. Dies hat den Effekt, dass sich die Porengröße aufgrund der kürzeren Bindungslänge Si-O (1,61 Å) im Vergleich zur durchschnittlichen bei Si-O und Al-O (1,68 Å) etwas verringert und daher die Selektivität zwischen Wasserstoff und anderen Stoffen erhöht wird. [23] Der Unterschied ist in Abbildung 4-2 dargestellt.

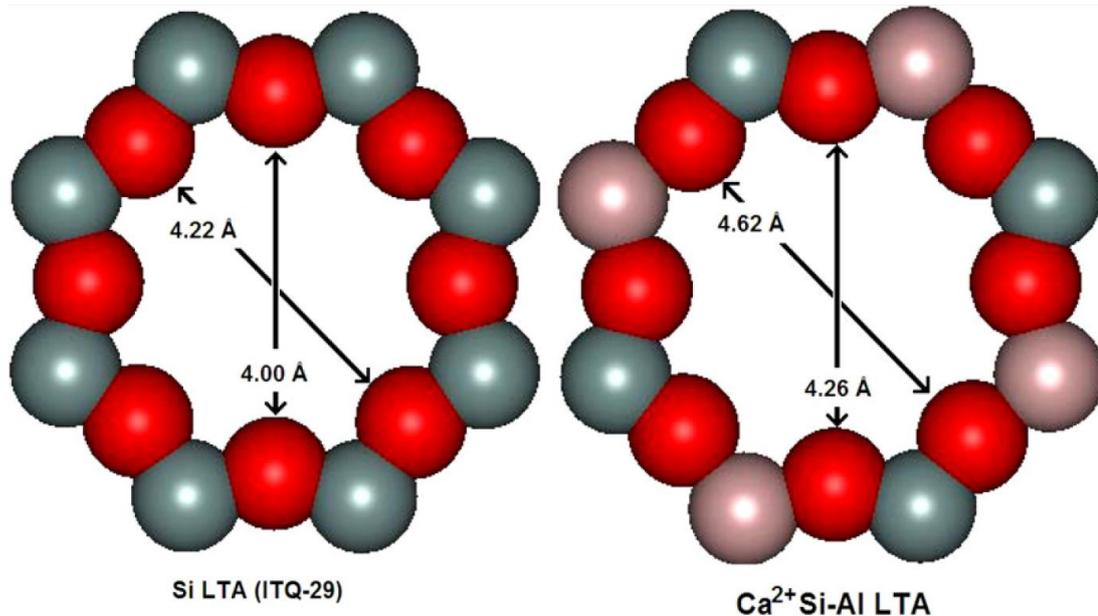


Abbildung 4-2: Unterschied zwischen Aluminium freiem ITQ-29 (links) und LTA (rechts) [23]

### 4.1.3 Nu-6(2) 4wt%(14,7wt%)/ Polysulfon Udel® MMM

Diese Membran ist eine MMM, bestehend aus Udel® und Nu-6(2), einem Zeolith mit Netzwerkstruktur. Diese ist anhand von Abbildung 4-3 ersichtlich. Der größte runde Durchmesser dieses Stoffes beträgt 4,16 Å, wodurch er sich hervorragend zur Abtrennung von Wasserstoff, der einen kinetischen Durchmesser von 2,89 Å aufweist, von anderen Komponenten wie Methan, das einen kinetischen Durchmesser von 3,8 Å hat, eignet. [16] Durch die Porengröße, die im Maximum größer ist als der kinetische Durchmesser von Methan, ist eine vollständige Trennung nicht möglich. Allerdings wird durch Zugabe dieses Zeoliths zu Udel® die Selektivität deutlich erhöht. (siehe Tabelle 4-2)



Abbildung 4-3: Netzwerkaufbau von Nu-6(2) [24]

### 4.1.4 PESf (BFLM)

Das Prinzip dieser Membran beruht auf dem FTM, „facilitated transport mechanism“. Im konkreten Fall wird dabei eine Trägerlösung in den Feedstrom injiziert, die einen Komplex mit Ethen bildet und so in der Lage ist, dieses selektiv aus der Mischung abzutrennen. Dabei ist nicht nur die Diffusion durch die Membran für den Permeatstrom verantwortlich, es wird auch Konvektion der Trägerlösung angenommen. Daher ergibt sich der Name der Methode zu BFLM, „Bulk Flowing Liquid Membrane“. [25]

In den mathematischen Modellen, die in dieser Arbeit verwendet werden, wird diese Konvektion nicht direkt berücksichtigt, geht aber über die größere Permeanz indirekt in die Berechnung ein.

Das Membranmaterial ist PESf, was eine Abkürzung für Poly(Ether Sulfon) ist. Die Struktur ist in Abbildung 4-4 dargestellt.

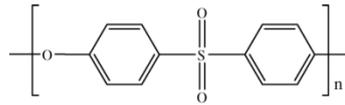


Abbildung 4-4: Poly(Ether Sulfon) [26]

### 4.1.5 PESf (BFHFCM)

Auch hier wird Poly(Ether Sulfon) als Membran verwendet. Allerdings wird diese als Hohlfaser ausgeführt, was die Abkürzung BFHFCM, „Bulk Flowing Hollow Fiber Membrane Contactor“ erklärt. [25] Das Prinzip ist ansonsten in Abschnitt 4.1.4 erklärt.

### 4.1.6 SPEEK/SPEEK (HFMC)

Die Bezeichnung SPEEK steht für das Membranmaterial „Sulfoniertes Poly(Ether Ether Keton)“. [25] Die Struktur ist in Abbildung 4-5 dargestellt.

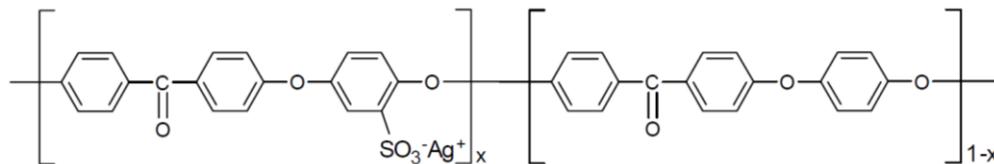


Abbildung 4-5: Darstellung von sulfoniertem Poly (Ether Ether Keton) [20]

Durch die Bezeichnung HFMC wird festgelegt, dass es sich bei diesem System um einen Hohlfaser-Membran-Kontaktor (engl. Contactor) handelt. Dieser ist dabei so ausgelegt, dass in einem Absorber das Ethen aus der Mischung abgetrennt und im Desorber von Absorbens separiert wird. Dies ist schematisch in Abbildung 4-6 dargestellt. In der vorliegenden Arbeit wird dieses Trennschema vereinfacht und angenommen, dass es sich um ein Membranmodul handelt, durch dessen Membran das Ethen besser permeiert.

## 4. Berechnung der Membrantrennung

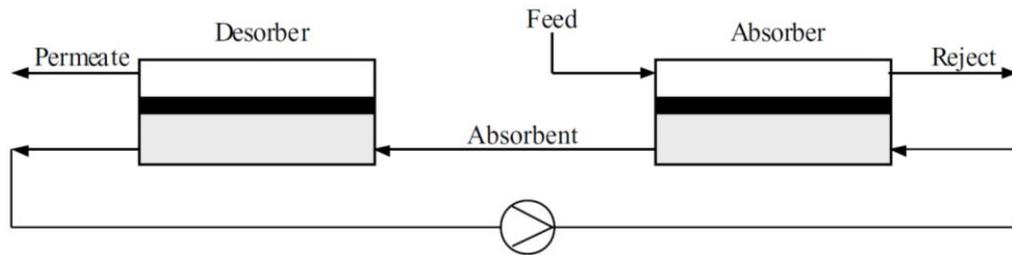


Abbildung 4-6: Schematische Darstellung des Absorber-Desorber-Systems zur Abtrennung von Ethen [20]

### 4.1.7 MFI-type zeolite membrane supported by porous $\alpha$ -alumina disk

Wie der Name schon sagt, handelt es sich bei dieser Membran um eine MMM, die aus einem Zeolith und einer porösen Stützschiicht aus  $\alpha$ -Aluminiumoxid besteht.

MFI steht für eine Gruppe von Zeolithen, die nach einer bestimmten Struktur, jener des Mordenit, aufgebaut sind. Die Abkürzung bedeutet „Mordenite Framework Inverted“. Es wird in der Literatur die genaue Bezeichnung des Zeoliths nicht genannt, daher ist an dieser Stelle keine genauere Beschreibung der Membran möglich.

## 4.2 Algorithmusentwicklung

In diesem Abschnitt werden die in Kapitel 3.3 hergeleiteten Modelle so umgeformt, dass eine Berechnung durchgeführt werden kann. Dies ist notwendig, da eine exakte, analytische Lösung der Systeme aus Differenzialgleichungen nicht möglich ist. Aus diesem Grund werden in jedem Modell die Differenzialquotienten durch Differenzenquotienten ersetzt. Nachfolgend werden die Gleichungssysteme, wie sie in den Modellen verwendet werden, dargestellt.

### 4.2.1 Modell 1

Durch Einführung des Differenzenquotienten ergibt sich Formel 4-1 aus Formel 3-7.

$$y_1(i) * \frac{(N(i) - N(i - 1))}{(A(i) - A(i - 1))} = R_1 * (\varphi_{11} * P_1 * x_1(i - 1) - \varphi_{12} * P_2 * y_1(i))$$

Formel 4-1: Formel 3-7 Differenzialquotienten in Differenzenquotienten umgeformt

Allgemein gilt, dass  $(i-1)$  für einen im Schritt zuvor berechneten Wert steht, wohingegen der Zeitpunkt  $(i)$  berechnet werden soll. Der Ausdruck  $N(i)-N(i-1)$  steht dabei für jenen Strom der gerade über das differenzielle Flächenelement der Membran fließt. Durch Einsetzen der Gesamtbilanz um dieses ergibt sich Formel 4-2.

$$y_1(i) * \frac{(F(i - 1) - F(i))}{(A(i) - A(i - 1))} = R_1 * (\varphi_{11} * P_1 * x_1(i - 1) - \varphi_{12} * P_2 * y_1(i))$$

Formel 4-2: Einsetzen der Gesamtbilanz in Formel 4-1

Analog zu Formel 4-1 ergibt sich Formel 4-3 durch Diskretisierung von Formel 3-8.

$$\frac{y_1(i)}{y_2(i)} = \frac{R_1 * (\varphi_{11} * P_1 * x_1(i - 1) - \varphi_{12} * P_2 * y_1(i))}{R_2 * (\varphi_{21} * P_1 * x_2(i - 1) - \varphi_{22} * P_2 * y_2(i))}$$

Formel 4-3: Formel 3-8 für die Berechnung indiziert

## 4. Berechnung der Membrantrennung

Für die Zweikomponentenberechnung wird zusätzlich zu den Formeln Formel 4-2 und Formel 4-3 noch eine Gesamt- und Komponentenbilanz um das differenzielle Flächenelement, sowie je eine Gleichung für die Summe der  $x_i$  und die Summe der  $y_i$  benötigt.

Zur Berechnung eines Mehrkomponentengemisches ist es noch notwendig, Formel 3-9 zu adaptieren.

$$\frac{y_j(i)}{y_1(i)} = \frac{R_j * (\varphi_{j1} * P_1 * x_j(i-1) - \varphi_{j2} * P_2 * y_j(i))}{R_1 * (\varphi_{11} * P_1 * x_1(i-1) - \varphi_{12} * P_2 * y_1(i))}$$

Formel 4-4: Formel 3-9 für Berechnung von n Komponenten (j von 2 bis n) indiziert

Außerdem muss für n-1 Komponenten eine Komponentenbilanz aufgestellt werden und sowie eine Gesamtbilanz um das differenzielle Flächenelement erfolgen. Wie für zwei Komponenten ist es auch für Gemische von mehreren Komponenten notwendig, die Summe der  $x_i$  und die Summe der  $y_i$  gleich eins zu setzen. Die Berechnungsfiles dieses Modells für Matlab® sind in Abschnitt 13.3.1 sowohl für die Beschreibung von zwei als auch für vier Komponentenmischungen mit Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase oder ohne Berücksichtigung von Nichtidealitäten enthalten.

### 4.2.2 Modell 2

Auch bei Modell 2 muss der Differenzenquotient im Gleichungssystem eingeführt werden und die Formeln an die Indizierung angepasst werden.

Die umgeformten Gleichungen sind nachfolgend dargestellt.

$$\frac{(x_j(i) - x_j(i-1))}{(S(i) - S(i-1))} = \frac{\alpha_{j1}}{\bar{F}(i-1)} * (x_j(i-1) - \gamma(i) * y_j(i)) * \left( \frac{x_j(i-1)}{y_j(i-1)} - 1 \right)$$

Formel 4-5: 1. Gleichung von Modell 2 (j von 1 bis n-1)

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

$$y_j(i) = \frac{\alpha_{j1} * x_j(i-1) * y_o(i)}{\alpha_{j1} * \gamma(i) * y_o(i) + 1 - \gamma(i)}$$

Formel 4-6: 2. Gleichung von Modell 2 (j von 1 bis n-1)

$$\frac{(\bar{F}(i) - \bar{F}(i-1))}{(S(i) - S(i-1))} = \frac{-(1 - \gamma(i))}{y_o(i)}$$

Formel 4-7: 3. Gleichung von Modell 2 zur Beschreibung des Stromes auf der Feedseite der Membran

$$\frac{(\gamma(i)^2 - \gamma(i-1)^2)}{(S(i) - S(i-1))} = -K * \frac{\mu(i-1)}{\mu_n} * \bar{V}(i-1)$$

Formel 4-8: 4. Gleichung von Modell 2 zur Beschreibung des permeatseitigen Druckverlustes

$$y_o(i) = \sum_{i=1}^n \frac{y_i(i)}{\alpha_{i1}}$$

Formel 4-9: 5. Gleichung von Modell 2 zur Berechnung von  $y_o$

Zur vollständigen Beschreibung des differenziellen Elements bei Modell 2 sind noch die Summe der  $x_i$  und  $y_i$  gleich 1 und die Gesamtbilanz um das differenzielle Flächenelement zu erstellen. Das Matlab®-File zur Berechnung der Membrantrennung unter Verwendung von Modell 2 ist im Anhang in Abschnitt 13.3.2 dargestellt.

### 4.2.3 Modell 3

Wie bei Modell 1 und Modell 2 sind auch in Modell 3 Anpassungen des Gleichungssystems notwendig, um eine Lösung zu ermöglichen. Es wird wieder der Differenzenquotient eingeführt

Für eine Trennoperation von zwei Komponenten sieht das Gleichungssystem wie im Folgenden dargestellt aus.

$$\frac{(\bar{F}(i) - \bar{F}(i-1))}{(\bar{z}(i) - \bar{z}(i-1))} = -K * \left( (x_1(i-1) - \gamma * y_1(i)) + \alpha_{21} * \left( (1 - x_1(i-1)) - \gamma * (1 - y_1(i)) \right) \right)$$

Formel 4-10: Darstellung der Änderung des Flusses auf der Feedseite der Membran

$$\begin{aligned} \bar{F}(i-1) * \frac{(x_1(i) - x_1(i-1))}{(\bar{z}(i) - \bar{z}(i-1))} \\ = -K \\ * \left[ (1 - x_1(i-1)) * (x_1(i-1) - \gamma * y_1(i)) - \alpha_{21} \right. \\ \left. * \left( (1 - x_1(i-1)) - \gamma * (1 - y_1(i)) \right) \right] \end{aligned}$$

Formel 4-11: Darstellung der Änderung der Konzentration auf der Feedseite der Membran

Weiters ist es notwendig, eine Gesamt- Komponentenbilanz um das differenzielle Flächenelement der Membran zu legen und in jedem Schritt die Summe der  $x_i$  und  $y_i$  gleich 1 zu berechnen.

Für 4 Komponenten ist ebenfalls der Differenzenquotient einzuführen. Die umgeformten Gleichungen sind nachfolgend abgebildet.

$$\begin{aligned} \frac{(\bar{F}(i) - \bar{F}(i-1))}{(\bar{z}(i) - \bar{z}(i-1))} \\ = -K \\ * \left( (x_1(i-1) - \gamma * y_1(i)) + \alpha_{21} * (x_2(i-1) - \gamma * y_2(i)) + \alpha_{31} \right. \\ \left. * (x_3(i-1) - \gamma * y_3(i)) + \alpha_{41} * (x_4(i-1) - \gamma * y_4(i)) \right) \end{aligned}$$

Formel 4-12: Darstellung der Änderung des Flusses auf der Feedseite der Membran für vier Komponenten

$$\begin{aligned}
\bar{F}(i-1) * \frac{(x_1(i) - x_1(i-1))}{(\bar{z}(i) - \bar{z}(i-1))} \\
= -K \\
* \left[ (1 - x_1(i-1)) * (x_1(i-1) - \gamma * y_1(i)) \right. \\
- x_1 \left( \alpha_{21} * (x_2(i-1) - \gamma * y_2(i)) + \alpha_{31} * (x_3(i-1) - \gamma * y_2(i)) \right. \\
\left. \left. + \alpha_{41} * (x_4(i-1) - \gamma * y_4(i)) \right) \right]
\end{aligned}$$

Formel 4-13: Darstellung der Änderung der Konzentration von Komponente 1 auf der Feedseite der Membran

$$\begin{aligned}
\bar{F}(i-1) * \frac{(x_j(i) - x_j(i-1))}{(\bar{z}(i) - \bar{z}(i-1))} \\
= -K \\
* x_j(i-1) \left( (x_1(i-1) - \gamma * y_1(i)) + \alpha_{21} * (x_2(i-1) - \gamma * y_2(i)) \right. \\
+ \alpha_{31} * (x_3(i-1) - \gamma * y_3(i)) + \alpha_{41} * (x_4(i-1) - \gamma * y_4(i)) \left. \right) \\
+ \frac{A_{mem} * P_1 * R_j}{F_\alpha} * (x_j(i-1) - \gamma * y_j(i))
\end{aligned}$$

Formel 4-14: Darstellung der Änderung der Konzentration von Komponente j auf der Feedseite der Membran, wobei j von 2 bis n-1

Wie für zwei Komponenten ist es auch bei der Beschreibung von Mehrkomponentengemischen notwendig, eine Gesamt- und Komponentenbilanz, durchgeführt für n-1 Komponenten, um das differenzielle Flächenelement der Membran zu legen. Außerdem ist in jedem Schritt die Summe der  $x_i$  und  $y_i$  gleich 1 zu berechnen, um die Konzentration der n-ten Komponente zu bestimmen.

Nach der Berechnung aller differenziellen Flächenelemente erhält man die Retentatkonzentrationen und die Menge an Retentat. Mithilfe dieser Werte, den Eingangskonzentrationen sowie dem Feedstrom ist es möglich, mittels einer integralen Mengen- und Komponentenbilanz über das gesamte Membranmodul die Permeatkonzentrationen und die Größe des Permeatstroms zu berechnen und damit die Berechnung des Moduls abzuschließen. Die Matlab®-Files zur Modellierung der Trennung von zwei und vier Komponentengemischen sind ebenfalls im Anhang enthalten, siehe dazu Abschnitt 13.3.3.

### 4.3 Validierung

In diesem Kapitel wird die Validierung der mathematischen Modelle vorgenommen. Es werden allerdings nicht alle vorhandenen Daten präsentiert, sondern nur exemplarisch einige wenige besprochen. Grund dafür ist, dass die Ergebnisse der anderen Validierungen sehr ähnlich ausfallen. Die nicht präsentierten Simulationsergebnisse sind im Anhang von Abschnitt 13.1 zu finden. Es wird mit der Validierung der Modelle für 2 Komponenten begonnen und danach auf jene der drei Modelle bei der Beschreibung von Mehrstoffgemischen, im aktuellen Fall für 4 Komponenten, eingegangen.

Zur Diskretisierung der Differenzialgleichungen sei an dieser Stelle noch erwähnt, dass eine Überprüfung der Anzahl der Teilschritte durchgeführt wurde. So wurden verschiedene Teilschritte ausgewählt, die Fehler analysiert und für die Beschreibung weitere Beschreibung der Membrantrennung eine Schrittzahl festgelegt. Die Ergebnisse aller Vergleiche fielen ähnlich aus, daher soll nur auf zwei Trennungen eingegangen werden.

In beiden Fällen wurde verglichen, inwieweit sich die Güte der Beschreibung verändert, wenn die Anzahl der Teilschritte von 10 über 100 und 200 auf 400 Teilschritte erhöht wird. In Abbildung 4-7 ist ersichtlich, dass die Beschreibung eines vier Komponentengemisches mit nur 10 Teilschritten weit von einer endgültigen Lösung entfernt ist. Zudem ist erkennbar, dass sich bei gleichem Feedstrom mit einer Beschreibung mit nur 10 Teilschritten eine völlig andere Konzentration im Permeat ergibt. Dagegen ist bei 100 - 400 Schritten ersichtlich, dass die Konzentration von Wasserstoff im Permeat einem Grenzwert zustrebt, da keine Änderung des Fehlers mehr ersichtlich ist. Dies ist auch für zwei Komponenten der Fall. Auch hier ist die Veränderung des Fehlers ab 100 Teilschritten zu vernachlässigen. Dies ist in Tabelle 4-3 ersichtlich, wo die durchschnittliche Abweichung aus Permeat- und Retentat-konzentration sowie des Stagecut bei unterschiedlicher Anzahl der Teilschritte dargestellt ist. Weiters ist erkennbar, dass die Fehler bei 10 Teilschritten im Vergleich zu jenen von 100, 200 oder 400 Teilschritten stark schwanken. Im ersten Fall ist der Fehler ungefähr im Bereich von jenem der anderen drei Schrittzahlen, im zweiten ist der Fehler doppelt so groß, und im vierten Fall ist der Fehler in etwa halb so groß. Daher sollte von einer Verwendung von nur 10 Teilschritten zur Beschreibung von Membrantrennungen mit diesen drei Modellen abgesehen werden. Da die Ergebnisse mit 100, 200 und 400 Teilschritten sehr nahe beieinander liegen, wird aufgrund der deutlich kürzeren Rechenzeit die weitere Berechnung mit 100 Teilschritten durchgeführt. Diese beträgt abhängig vom gewählten Modell für die Beschreibung von 2 Komponentengemischen mit 100 Teilschritten zwischen ungefähr 30 und 70 Sekunden, wobei Modell 1 ohne Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase und

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

Modell 3 die schnelleren Zeiten erreichen als Modell 1 mit Berücksichtigung der Nichtidealität. Bei 400 Teilschritten und einem 2 Komponentengemisch wird eine Rechenzeit von 2 Minuten 10 Sekunden benötigt, um mit der idealen Berechnung von Modell 1 ein Ergebnis zu erhalten. Modell 3 erfordert eine Berechnungsdauer von etwa 2 Minuten 20 Sekunden für die Simulation des Trennprozesses und die reale Betrachtung der Trennung mit Modell 1 ungefähr 6 Minuten.

Für die Beschreibung von 4 Komponentengemischen wird bei 100 Teilschritten eine Zeit zwischen 3 und 21 Minuten benötigt, wobei die ideale Berechnung von Modell 1 die schnellste ist und die Simulation mit Modell 2 am längsten dauert. Modell 3 liegt mit einer Berechnungsdauer von ungefähr 10 Minuten zwischen den beiden anderen Modellen. Die Berechnung von 400 Teilschritten dauert zwischen 11 Minuten mit Modell 3 und 1 Stunde 25 Minuten mit Modell 2. Unter Verwendung von Modell 1 ohne Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase werden ungefähr 13 Minuten benötigt, um 400 Teilschritte zu simulieren.

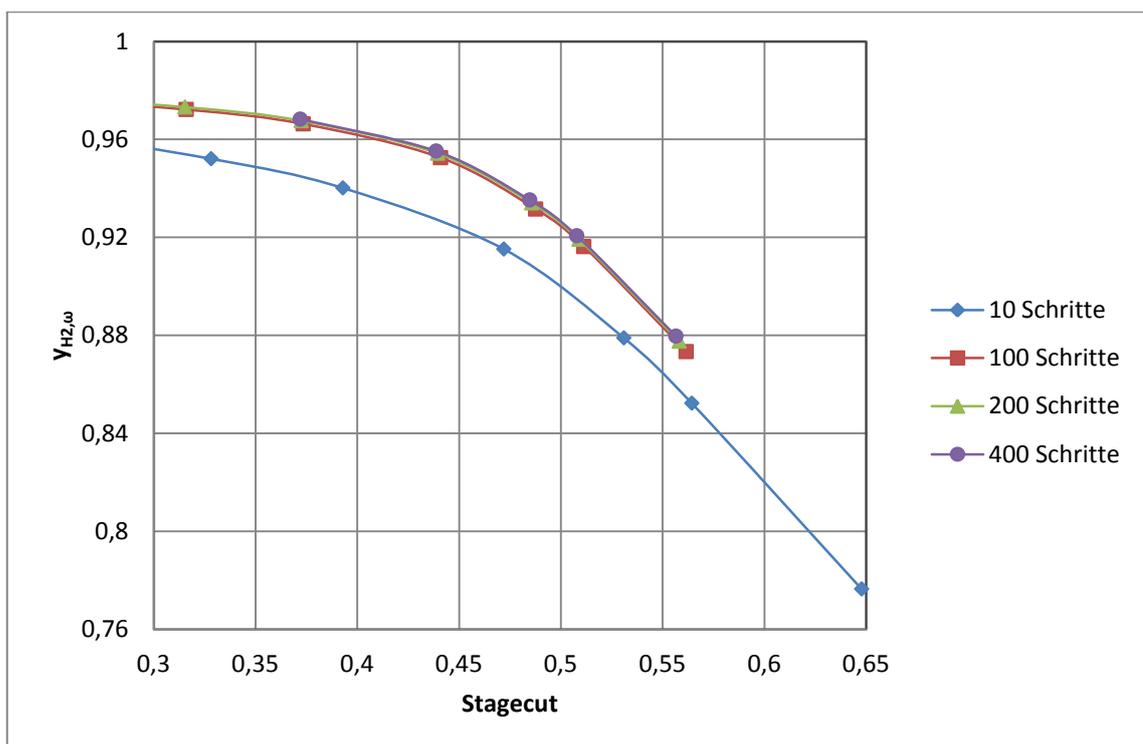


Abbildung 4-7: Verlauf der Perematkonzentration von Wasserstoff bei der Beschreibung eines 4-Stoffgemisches mit Modell 2

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

Feed <b>*10<sup>-4</sup> [mol/s]</b>	Durchschnittliche Abweichung von $y_{\omega,CO_2}$ , $x_{\omega,CO_2}$ und des Stagecut von den Literaturwerten in %			
	Teilschritte 10	Teilschritte 100	Teilschritte 200	Teilschritte 400
<b>25,05</b>	0,65	0,69	0,69	0,69
<b>5,1</b>	0,51	0,23	0,24	0,25
<b>2,61</b>	1,16	0,17	0,13	0,12
<b>7,33</b>	0,23	0,50	0,53	0,55
<b>2,97</b>	1,45	0,10	0,09	0,09
<b>1,98</b>	2,93	0,89	0,79	0,74
<b>23,26</b>	0,21	0,36	0,38	0,39
<b>6,34</b>	2,47	0,42	0,32	0,27
<b>2,72</b>	5,65	1,57	1,38	1,29

Tabelle 4-3: Durchschnittliche Abweichung [%] bei der Beschreibung der Trennung einer zwei Komponentenmischung mittels CPI-Membran mit Modell 3

### 4.3.1 Validierung mittels einer Membrantrennung von zwei Komponenten

Für die Validierung der Modelle für zwei Komponenten wurde ein Paper von Shahsavand et al. verwendet. [27] Darin sind für verschiedene Feedströme und Konzentrationen die Permeanzen der Komponenten angegeben. Weiters finden sich darin Permeat- und Retentatkonzentrationen und es werden Angaben über den Stagecut beim jeweiligen Feedstrom gemacht. Das zu trennende Gemisch besteht aus Kohlendioxid und Methan und es sind für zwei Membranen Daten enthalten. Zum einen eine CPI-Membran und zum anderen eine PPO-Membran. CPI steht für Cardo-type Polyimide und PPO bedeutet Poly-Phenylene Oxide, die Strukturformel der PPO-Membran ist in Abbildung 4-8 dargestellt. CPI beschreibt den Membrantyp nicht näher, sondern ist der Überbegriff für eine Gruppe von Membranen. Beide Membranen sind als Hohlfasermembran ausgeführt. In Tabelle 4-4 werden die Membranparameter der Membranen dargestellt.

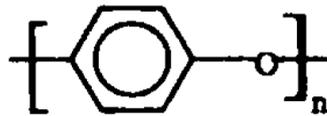


Abbildung 4-8: Strukturformel von Poly-Phenylene Oxid [28]

Membran	Durchmesser der Hohlfaser		Spezifikationen des Moduls	
	Innendurchmesser [ $\mu\text{m}$ ]	Außendurchmesser [ $\mu\text{m}$ ]	Anzahl der Fasern	Membranfläche [ $\text{cm}^2$ ]
<b>CPI</b>	370	500	135	416
<b>PPO</b>	370	520	10	49

Tabelle 4-4: Membranparameter der zur Validierung von Gemischen aus 2 Komponenten verwendeten Membranen [27]

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

In Tabelle 4-5 werden die zur Validierung verwendeten Daten der CPI-Membran abgebildet.

$x_{\text{CO}_2, \text{Feed}}$	Feedstrom $F_\alpha$ $\cdot 10^{-4}$ [mol/s]	$R_{\text{CO}_2}$ [GPU] <sup>4</sup>	$R_{\text{CH}_4}$ [GPU]	Stagecut [%]	$y_{\omega, \text{CO}_2}$	$x_{\omega, \text{CO}_2}$
5,0	25,1	60,1	2,11	1,1	0,29	0,05
5,0	5,1	47,7	2,02	5,0	0,25	0,04
5,0	2,6	39,9	2,04	9,5	0,22	0,03
10,0	7,3	59,3	2,16	5,3	0,48	0,08
10,0	3,0	48,8	2,11	11,3	0,41	0,06
10,0	2,0	42,2	2,04	15,3	0,37	0,05
24,6	23,3	81,0	2,18	5,4	0,85	0,21
24,6	6,3	80,0	2,24	15,3	0,80	0,15
24,6	2,7	64,3	2,21	24,5	0,71	0,09

Tabelle 4-5: Validierungsdaten der CPI-Membran

Die bei der Validierung mit der PPO-Membran verwendeten Daten werden in Tabelle 4-6 dargestellt.

$x_{\text{CO}_2, \text{Feed}}$	Feedstrom $F_\alpha$ $\cdot 10^{-4}$ [mol/s]	$R_{\text{CO}_2}$ [GPU]	$R_{\text{CH}_4}$ [GPU]	Stagecut [%]	$y_{\omega, \text{CO}_2}$	$x_{\omega, \text{CO}_2}$
5,0	15,0	120,37	11,98	1,1	0,21	0,05
5,0	3,6	110,30	12,04	4,5	0,19	0,04
5,0	1,8	103,6	12,05	9,2	0,17	0,04
10,0	4,0	116,1	12,21	5,0	0,36	0,09
10,0	1,9	108,5	12,21	10,2	0,33	0,07
10,0	1,3	103,9	11,94	14,1	0,31	0,07
24,6	7,5	136,4	12,83	5,1	0,68	0,22
24,6	2,3	128,6	12,69	15,0	0,64	0,18
24,6	1,3	127,5	12,83	23,3	0,60	0,14

Tabelle 4-6: Validierungsdaten der PPO-Membran

Der Feeddruck war in allen Fällen 100 Psig, so wie auch der Retentatdruck. Als Permeatdruck wurde atmosphärischer Druck (14,69 Psi) angelegt und die Permeationsversuche wurden bei 22,5 °C durchgeführt.

<sup>4</sup> 1 GPU =  $10^{-6}$  cm<sup>3</sup>(STP)/cm<sup>2</sup> s cmHg

## 4. Berechnung der Membrantrennung

Die Validierung erfolgt durch Berechnung der relativen Abweichung vom jeweiligen Literaturwert. In Formel 4-15 ist dies für die Permeatkonzentration dargestellt, gilt aber in gleicher Form für die Retentatkonzentration und den Stagecut. Der Index L steht dabei für den Literaturwert, Index B für jenen Wert, der aus der Berechnung stammt. Anzumerken ist, dass diese Validierung nur für die Modelle 1 und 3 durchgeführt wird, da Modell 2 für die Beschreibung der Trennung von zwei Komponenten ungeeignet ist.

$$\text{Abweichung [\%]} = \frac{|y_{\omega,L} - y_{\omega,B}|}{y_{\omega,L}} * 100$$

Formel 4-15: Berechnung der Abweichung der Permeatkonzentration vom Literaturwert

### 4.3.1.1 Einflussfaktoren auf die Trennung

Bevor die Validierung ausgewertet wird, soll noch anhand der Daten in Tabelle 4-5 und Tabelle 4-6 auf die Komplexität der Beschreibung der Membrantrennung hingewiesen werden. Es ist erkennbar, dass sowohl der Feedstrom als auch die Feedkonzentration großen Einfluss auf die Trennung haben, da die Permeanz, in diesem Fall von Kohlendioxid, stark verändert wird. Um eine genaue Aussage über die tatsächliche Größenordnung des Einflusses treffen zu können, sind weitere Studien zu diesem Thema notwendig. In dieser Arbeit wird aus Mangel an Information auf eine Berücksichtigung des Einflusses dieser beiden Größen sowie des Drucks verzichtet. Auch die Änderung dieser Größe hat Einfluss auf die Permeanz, was in Tabelle 4-2 anhand der Membranen 4 und 5 ersichtlich ist.

## 4.3.1.2 Modell 1 für 2 Komponenten

Bei diesem Modell bestehen zwei Möglichkeiten der Berechnung der Membrantrennung. Zum einen wurde in Modell 1 ideales Gasverhalten angenommen, also die Fugazitätskoeffizienten gleich 1 gesetzt. Zum anderen wurde auch eine Betrachtung der Nichtidealität vorgenommen, indem die Fugazitätskoeffizienten mit Hilfe der Zustandsgleichung nach Peng-Robinson berechnet wurden. [29]

Es wird zuerst auf die Beschreibung der Membrantrennung eingegangen, die die Nichtidealität nicht berücksichtigt.

Wie in Tabelle 4-7 dargestellt, ist die Beschreibung der Trennung unter Verwendung der CPI-Membran mit Modell 1 ohne Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase sehr genau. Der durchschnittliche Fehler schwankt zwischen 0,08 und 1,47 %, wobei die Permeatkonzentration im Vergleich zur Retentatkonzentration und zum Stagecut eine geringere Schwankungsbreite von nur 0,37 % aufweist. Der Fehler der Retentatkonzentration variiert zwischen 0,05 und 2,64 %, wobei der größte Teil der Fehler (7 von 9 Werten) unter 0,5 % liegt. Der Stagecut weist eine Schwankungsbreite des Fehlers von 0,01 bis 1,58 % auf, wobei auch hier 6 von 9 Berechnungen einen Fehler von unter 1 % erreichen.

Feed *10 <sup>-4</sup> [mol/s]	Abweichungen [%]			
	Y <sub>w,CO2</sub>	X <sub>w,CO2</sub>	Stagecut	Durchschnitt
25,05	0,41	0,11	1,54	0,68
5,1	0,20	0,17	0,29	0,22
2,61	0,24	0,22	0,09	0,18
7,33	0,26	0,21	1,04	0,50
2,97	0,08	0,16	<u>0,01</u>	<u>0,08</u>
1,98	<u>0,41</u>	1,56	0,73	0,90
23,26	0,04	<u>0,05</u>	0,97	0,35
6,34	<u>0,03</u>	0,33	0,71	0,36
2,72	0,18	<u>2,64</u>	<u>1,58</u>	<u>1,47</u>

Tabelle 4-7: Abweichungen von den Literaturwerten unter Verwendung von Modell 1 OHNE Berücksichtigung der Realität der Gasphase (CPI-Membran)

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

Über die Beschreibung der PPO-Membran mit Modell 1 ohne Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase lässt sich ähnliches sagen wie bei der Beschreibung der CPI-Membran. Die Beschreibung der Permeatkonzentration ist wieder am genauesten. Die Beschreibung von Retentatkonzentration und Stagecut ist etwas genauer als jene der CPI-Membran. Insgesamt sind die Durchschnittsabweichungen etwas geringer als bei der 1. Membran.

Feed *10 <sup>-4</sup> [mol/s]	Abweichungen [%]			
	Y <sub>w,CO2</sub>	X <sub>w,CO2</sub>	Stagecut	Durchschnitt
15	0,35	0,08	1,18	0,54
3,61	<u>0,71</u>	0,18	1,13	0,67
1,75	0,34	0,13	0,19	0,22
4,02	0,21	<u>0,01</u>	0,72	0,31
1,89	<u>0,05</u>	0,09	0,83	0,32
1,31	0,17	0,45	0,64	0,42
7,46	0,10	0,03	<u>0,03</u>	<u>0,05</u>
2,25	0,20	0,27	0,11	0,19
1,33	0,39	<u>1,65</u>	<u>1,25</u>	<u>1,10</u>

Tabelle 4-8: Abweichungen von den Literaturwerten unter Verwendung von Modell 1 OHNE Berücksichtigung der Realität der Gasphase (PPO-Membran)

Allgemein lässt sich damit über die Beschreibung von Zweikomponentengemischen mit Modell 1 ohne Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase sagen, dass die Fehler sehr gering sind und eine gute Beschreibung möglich ist. Grund für die Schwankungen der Fehler könnten Messungenauigkeiten sein.

Anhand von Tabelle 4-9 und Tabelle 4-10 wird nun die Analyse der Genauigkeit der Berechnung mit Modell 1 unter Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase durchgeführt.

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

Die Beschreibung der Trennung eines Gemisches aus den 2 Komponenten Kohlendioxid und Methan mittels CPI-Membran mit Modell 1 und der Berechnung der Fugazitätskoeffizienten liefert im Mittel sehr gute Ergebnisse. Allerdings erreichen sie keine ganz so gute Übereinstimmung mit den Literaturwerten, wie die Beschreibung ohne Fugazitätskoeffizienten. Der Fehler bei der Permeatkonzentration liegt zwischen 0,32 und 3,02 %, jener der Retentatkonzentration zwischen 0,46 und 3,41 % und jener des Stagecuts zwischen 1,12 und 6,17 %. Wie auch bei Modell 1 ohne Berücksichtigung des Fugazitätskoeffizienten ist die Abweichung der Permeatkonzentration von den Literaturwerten etwas geringer als die der anderen beiden betrachteten Größen.

Feed *10 <sup>-4</sup> [mol/s]	Abweichungen [%]			
	y <sub>w,CO2</sub>	x <sub>w,CO2</sub>	Stagecut	Durchschnitt
<b>25,05</b>	<u>3,02</u>	<u>0,46</u>	1,58	1,68
<b>5,1</b>	2,33	1,66	2,47	2,15
<b>2,61</b>	1,42	2,47	2,59	2,16
<b>7,33</b>	2,00	1,78	4,63	<u>2,80</u>
<b>2,97</b>	1,32	3,11	2,97	2,47
<b>1,98</b>	0,52	2,77	1,95	1,75
<b>23,26</b>	0,62	1,07	<u>6,17</u>	2,62
<b>6,34</b>	0,44	3,22	3,16	2,27
<b>2,72</b>	<u>0,32</u>	<u>3,41</u>	<u>1,12</u>	<u>1,62</u>

Tabelle 4-9: Abweichungen von den Literaturwerten unter Verwendung von Modell 1 MIT Berücksichtigung der Realität der Gasphase (CPI-Membran)

Die Analyse der Abweichungen von den Literaturwerten der PPO-Membran für Modell 1 mit Berechnung der Fugazitätskoeffizienten liefert ein ähnliches Ergebnis wie ohne Berechnung der Fugazitätskoeffizienten. Wieder ist die Beschreibung insgesamt etwas besser als bei der CPI-Membran. Diesmal liegen die Abweichungen von Permeat- und Retentatkonzentration fast genau im selben Bereich (0,13-2,71 % bzw. 0,29-2,11 %), jene der Permeatkonzentration von Kohlendioxid streut etwas mehr.

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

Feed *10 <sup>-4</sup> [mol/s]	Abweichungen [%]			
	$y_{\omega,CO_2}$	$x_{\omega,CO_2}$	Stagecut	Durchschnitt
15	<u>2,71</u>	<u>0,29</u>	1,49	1,50
3,61	1,40	0,66	<u>1,42</u>	<u>1,16</u>
1,75	1,42	1,59	2,22	1,74
4,02	1,98	0,88	2,31	1,72
1,89	1,53	1,71	1,98	1,74
1,31	1,09	<u>2,11</u>	2,01	1,74
7,46	1,10	0,58	<u>4,08</u>	1,92
2,25	0,59	1,82	3,42	<u>1,94</u>
1,33	<u>0,13</u>	2,06	1,82	1,33

Tabelle 4-10: Abweichungen von den Literaturwerten unter Verwendung von Modell 1 MIT Berücksichtigung der Realität der Gasphase (PPO-Membran)

Zusammenfassend lässt sich auch über die Beschreibung unter Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase über Fugazitätskoeffizienten sagen, dass die Trennung genau beschrieben wird. Warum die Abweichung von den Literaturwerten durchwegs größer als ohne Berücksichtigung der Fugazitätskoeffizienten ist, lässt sich an dieser Stelle nicht beantworten. Es ist aus den Ergebnissen kein Hinweis ersichtlich, wo die geringfügig höheren Abweichungen ihre Ursache haben könnten.

## 4.3.1.3 Modell 3 für 2 Komponenten

Die Validierung dieses Modells erfolgte nach demselben Schema wie jene von Modell 1. Es wurden die experimentellen Daten der zwei Membranen aus Shamsavand et al. (Tabelle 4-5 und Tabelle 4-6) mit diesem Modell überprüft und die Abweichungen zu den Messwerten aus der Literatur in Tabelle 4-11 und Tabelle 4-12 zusammengefasst.

Zuerst soll wieder die Trennung mittels CPI-Membran besprochen werden. Dabei ist ersichtlich, dass die Abweichungen von den Literaturwerten im Durchschnitt ganz leicht über jenen mit Modell 1 ohne Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase liegen. Dies liegt an der Art der Herleitung. Es wurden, wie in Abschnitt 3.3 gezeigt, alle drei Modelle aus den gleichen Grundgleichungen hergeleitet. Modell 1 und 3 finden mit wenigen Umformungen das Auslangen, wodurch es logisch erscheint, dass ähnliche Ergebnisse berechnet werden, wenn die Fugazitätskoeffizienten nicht berücksichtigt werden. Die Abweichung in der Permeatkonzentration von Kohlendioxid schwankt zwischen 0,07 und 0,41 %, jene der Retentatkonzentration zwischen 0,05 und 2,62 %. Beim Stagecut werden Genauigkeiten bei der Beschreibung der Validierungsquelle von 0,02 bis 1,76 % erreicht. Diese und alle weiteren für die Validierung relevanten Daten sind in Tabelle 4-11 dargestellt.

Feed *10 <sup>-4</sup> [mol/s]	Abweichungen [%]			
	y <sub>w,CO2</sub>	x <sub>w,CO2</sub>	Stagecut	Durchschnitt
<b>25,05</b>	<u>0,41</u>	0,11	1,54	0,69
<b>5,1</b>	0,22	0,17	0,30	0,23
<b>2,61</b>	0,21	0,21	0,07	0,17
<b>7,33</b>	0,28	0,21	1,02	0,50
<b>2,97</b>	0,12	0,15	<u>0,02</u>	<u>0,10</u>
<b>1,98</b>	0,35	1,54	0,77	0,89
<b>23,26</b>	<u>0,07</u>	<u>0,05</u>	0,95	0,36
<b>6,34</b>	0,13	0,31	0,82	0,42
<b>2,72</b>	0,34	<u>2,62</u>	<u>1,76</u>	<u>1,57</u>

Tabelle 4-11: Abweichungen von den Literaturwerten unter Verwendung von Modell 3 (CPI-Membran)

Die Abweichungen zu den Literaturdaten der PPO-Membran zeigen wieder ein fast identes Bild zu Modell 1. Die Abweichungen sind für jeden Feed sehr ähnlich. Der Stagecut wird mit Modell 3 in geringstem Ausmaß schlechter beschrieben als mit Modell 1. Sowohl die Permeat- als auch die Retentatkonzentration lassen keine Aussage zu, welches Modell genauer ist. Die Abweichung der Permeatkonzentration

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

bei Beschreibung mit Modell 3 bewegt sich in einem Bereich von 0,09 bis 0,69 %, jene der Retentatkonzentration im Bereich 0,01 bis 1,58 % und die Abweichungen bei der Simulation des Stagecut erstrecken sich von 0,04 bis 1,33 %. In Tabelle 4-12 sind die Abweichungen dieser drei Werte von den jeweiligen Literaturdaten sowie der Durchschnitt aller Abweichungen aufgelistet.

Feed *10 <sup>-4</sup> [mol/s]	Abweichungen [%]			
	y <sub>w,CO2</sub>	x <sub>w,CO2</sub>	Stagecut	Durchschnitt
15	0,35	0,08	1,18	0,54
3,61	<u>0,69</u>	0,18	1,13	0,67
1,75	0,30	0,11	0,20	0,21
4,02	0,23	<u>0,01</u>	0,73	0,32
1,89	<u>0,09</u>	0,08	0,84	0,34
1,31	0,12	0,42	0,67	0,40
7,46	0,13	0,03	<u>0,04</u>	<u>0,06</u>
2,25	0,12	0,24	0,15	0,17
1,33	0,27	<u>1,58</u>	<u>1,33</u>	<u>1,06</u>

Tabelle 4-12: Abweichungen von den Literaturwerten unter Verwendung von Modell 3 (PPO-Membran)

##### 4.3.1.4 Vergleich von Modell 1 und 3

In diesem Abschnitt soll ein Vergleich zwischen den beiden gezeigten Modellen durchgeführt werden. Dies wird anhand der Normalverteilung der Abweichungen der berechneten Werte von y<sub>w,CO2</sub>, x<sub>w,CO2</sub> sowie des Stagecut zu den Daten aus der Literatur durchgeführt. Diese sind in Abbildung 4-9 bis Abbildung 4-14 sowohl für die CPI- als auch die PPO-Membran dargestellt. Auffällig ist, dass wie oben erwähnt der mittlere Fehler von Modell 1 unter Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase größer ist als jener von Modell 3 und auch von Modell 1 ohne Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase. Außerdem ist die Streuung deutlich größer. Zwischen der idealen Berechnung mit Modell 1 und Modell 3 besteht kaum Unterschied. Sowohl der Mittelwert der Fehler als auch die Streuung ist in allen betrachteten Fällen in etwa gleich groß. Für beide Modelle und die zwei Modellvariation von Modell 1 gilt, dass die Beschreibung CPI-Membran gegenüber jener der PPO-Membran mit geringeren Abweichungen sowie einer kleineren Streuung der Fehler durchführbar ist.

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

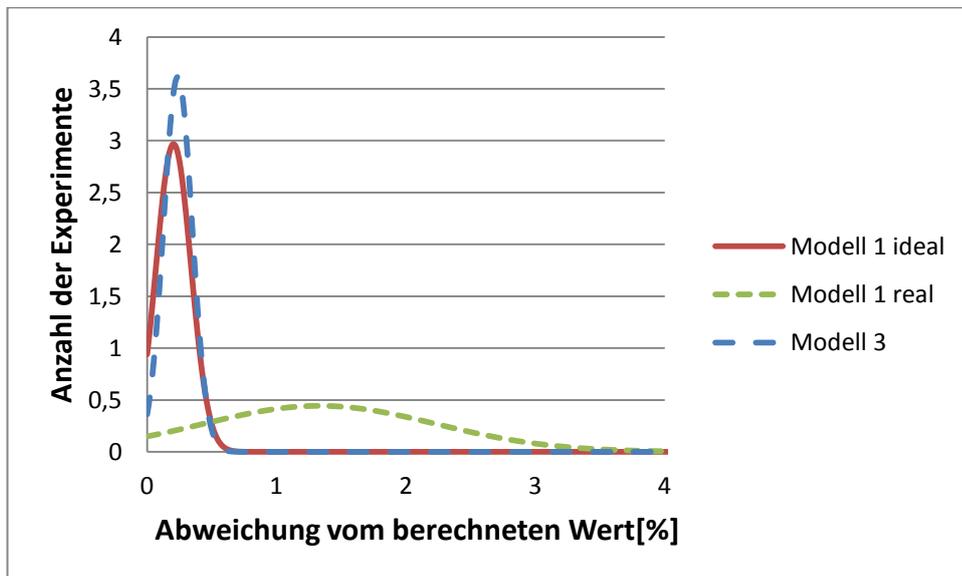


Abbildung 4-9: Normalverteilung der Abweichungen der Fehler von  $y_{w,CO_2}$  (CPI-Membran)

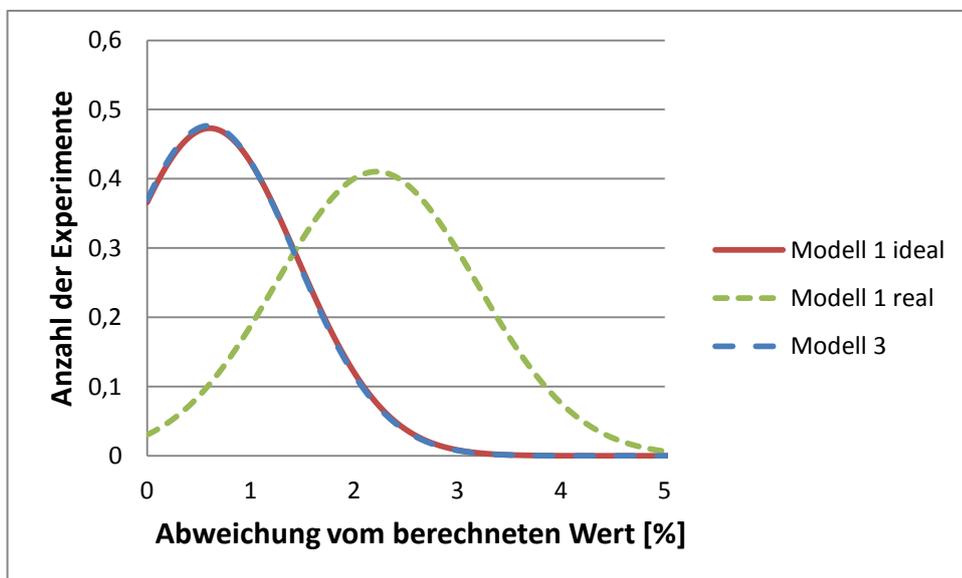


Abbildung 4-10: Normalverteilung der Abweichungen der Fehler von  $x_{w,CO_2}$  (CPI-Membran)

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

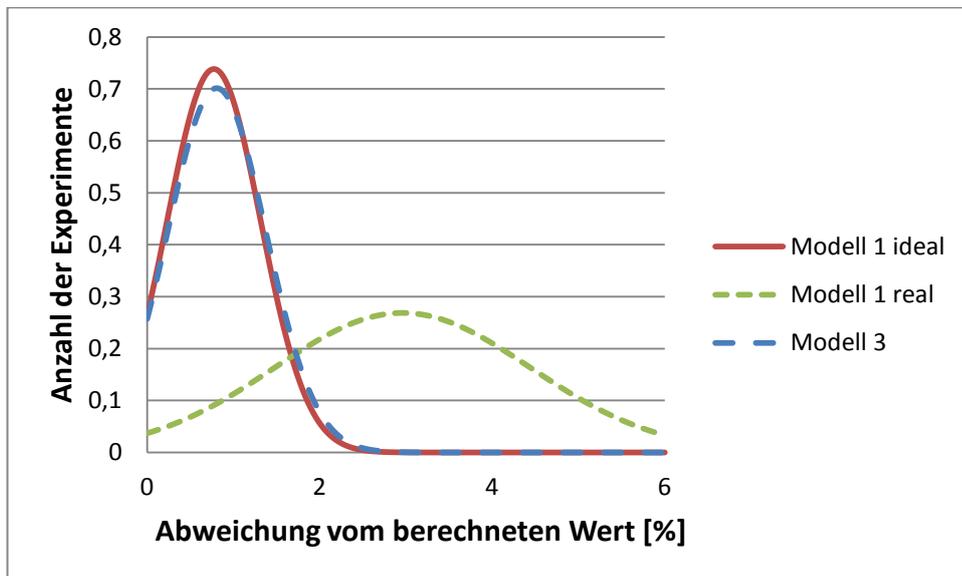


Abbildung 4-11: Normalverteilung der Abweichungen der Fehler vom Literaturwert des Stagecut (CPI-Membran)

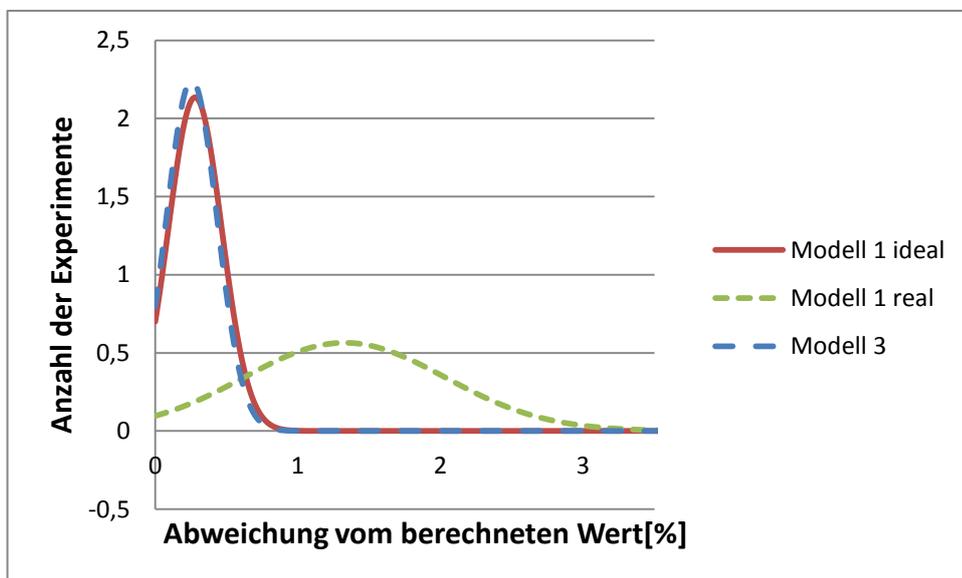


Abbildung 4-12: Normalverteilung der Abweichungen der Fehler von  $y_{\omega,CO_2}$  (PPO-Membran)

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

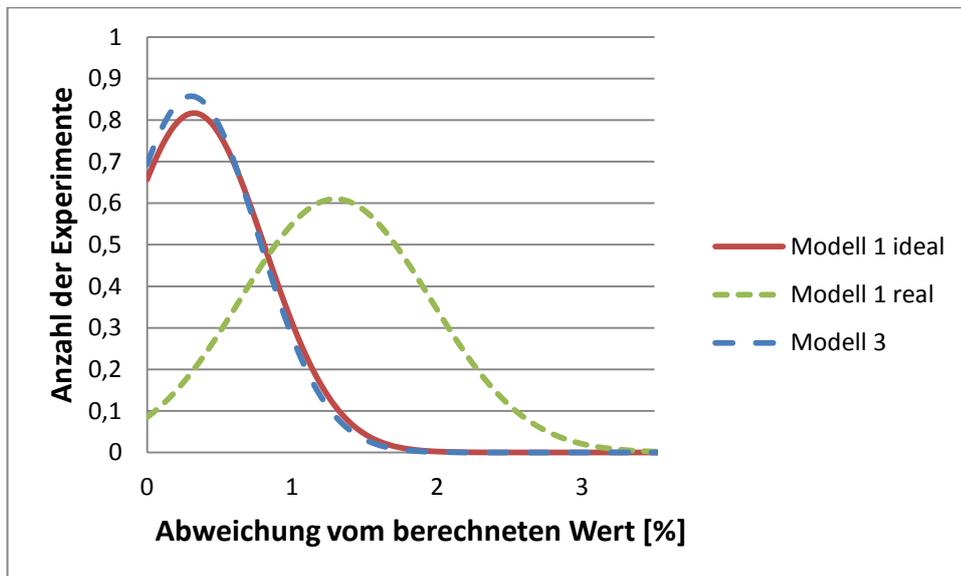


Abbildung 4-13: Normalverteilung der Abweichungen der Fehler von  $x_{w,CO_2}$  (PPO-Membran)

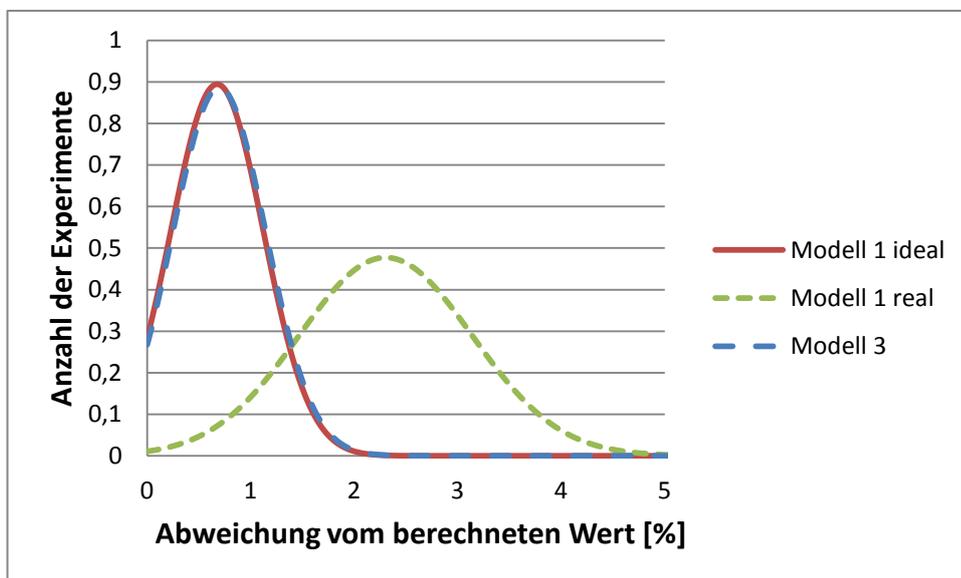


Abbildung 4-14: Normalverteilung der Abweichungen der Fehler vom Literaturwert des Stagecut (PPO-Membran)

### 4.3.2 Validierung mittels einer Membrantrennung von vier Komponenten

Die Validierung der 3 Modelle für 4 Komponenten muss grafisch erfolgen, da keine tabellierten experimentellen Daten verfügbar sind, sondern nur grafische Verläufe der Permeatkonzentrationen über den Stagecut. Als Quelle zur Überprüfung der Plausibilität der mathematischen Modelle wurde jene Quelle gewählt, auf welcher Modell 2 basiert. Bei Pan [8] wird ein Gemisch aus Wasserstoff, Stickstoff, Methan und Argon im Labormaßstab getrennt. Als Membran wird dabei eine asymmetrische Zellulose-Acetat-Membran verwendet, die als Hohlfaser ausgeführt ist. Die genauen Prozess- und Membranparameter sind in Tabelle 4-13 und Tabelle 4-14 aufgelistet.

Anzahl der Fasern	$D_i$ [ $\mu\text{m}$ ]	$D_o$ [ $\mu\text{m}$ ]	Aktive Länge [cm]	Temperatur [K]	Feeddruck [kPa]	Permeatdruck [kPa]
20	80	200	15	298	6.964	1.123

Tabelle 4-13: Membranparameter sowie Temperatur und Feed- sowie Permeatdruck [8]

	$\text{H}_2$	$\text{N}_2$	$\text{CH}_4$	Ar
Konzentration im Feed [mol %]	51,78	24,69	19,57	3,96
Permeanz * $10^{-10}$ [mol/s $\text{m}^2$ Pa]	284	2,95	2,84	7,7

Tabelle 4-14: Konzentration und Permeanzen der Komponenten [8]

Da unter Verwendung von Abbildung 4-7 bereits gezeigt wurde, dass eine Beschreibung mit 100 Teilschritten am Sinnvollsten erscheint, werden für die Validierung in den Grafiken nur noch die Ergebnisse dieser Berechnungen gezeigt. Um die Qualität der Beschreibung mit den einzelnen Modellen zu überprüfen, war es notwendig, verschiedene Feedmengen anzunehmen. Grund dafür ist, dass wie schon erwähnt keine Angaben zur Größe des Feeds gemacht werden, sondern in der Quelle nur Verläufe der Konzentrationen über den Stagecut vorhanden sind. Die Feedmenge und der zugehörige Stagecut werden am Ende der Validierung dargestellt und besprochen. (siehe Tabelle 4-15)

## 4.3.2.1 Modell 1 für 4 Komponenten

Wie bei der Validierung von Modell 1 für 2 Komponenten, wird auch bei 4 Komponenten zwischen der idealen Berechnung und jener unter Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase unterschieden. Wie in Abschnitt 4.3.1.2 wird wieder mit der Validierung der idealen Berechnung begonnen.

Wie anhand von Abbildung 4-15 ersichtlich ist, ist die Übereinstimmung von Modell 1, ohne Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase mit dem Modell, das Pan [8] entwickelt hat und im Diagramm mit einer schwarzen Linie gekennzeichnet ist, sehr gut. Die roten Punkte zeigen dabei die mit Modell 1 berechneten Wertepaare aus Stagecut und Permeatkonzentration von Wasserstoff. Die schwarzen Punkte im Diagramm bezeichnen experimentelle Werte aus Gegenstromexperimenten, Kreise kennzeichnen solche aus Gleichstromexperimenten. Man erkennt, dass im niedrigeren Stagecutbereich auch die Übereinstimmung mit den experimentellen Werten sehr groß ist, während bei größer werdendem Stagecut auch die Abweichung zunimmt.

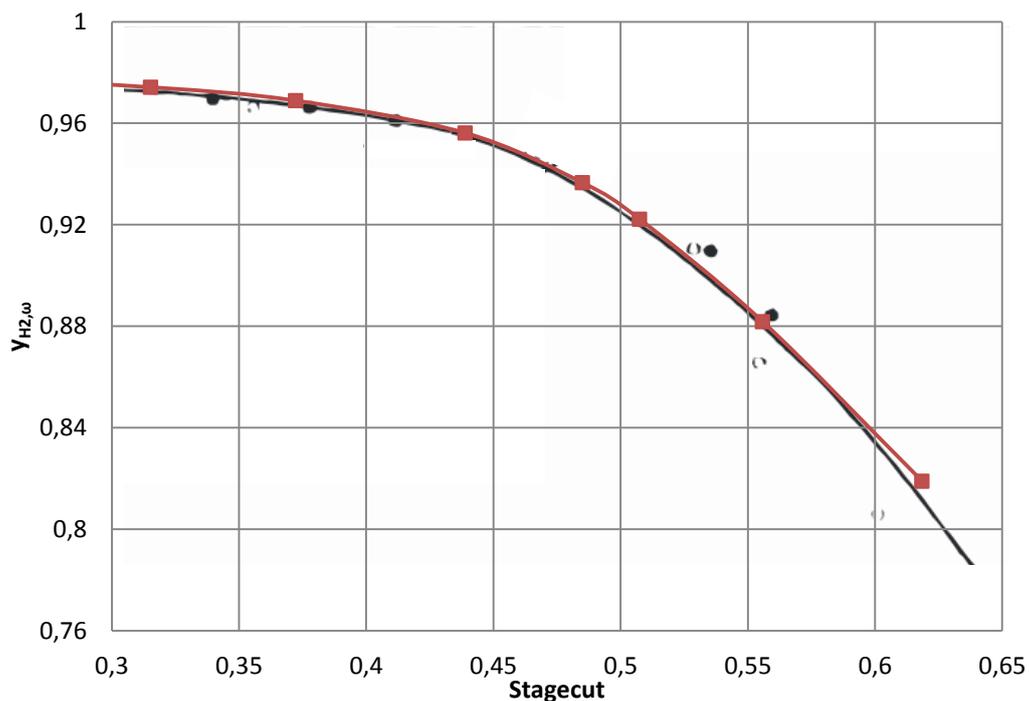


Abbildung 4-15: Verlauf der Konzentration von  $H_2$  im Permeat über den Stagecut im Vergleich zu jenem in der Quelle [8] berechnet mit Modell 1 OHNE Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase

Auf die Darstellung der anderen Verläufe, konkret die Konzentrationen der restlichen Komponenten sowie der Recovery von Wasserstoff wird an dieser Stelle sowie bei der Beschreibung von Modell 2 und 3 verzichtet, da diese ähnlich sind und dadurch keine neuen Erkenntnisse gewonnen werden können. Sie sind im Anhang im Abschnitt 13.1.2 dargestellt.

Modell 1 mit Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase liefert keine Ergebnisse, da die Berechnung der Fugazitätskoeffizienten empfindlich auf zu große Konzentrationen als Eingabeparameter reagiert. Dies bedarf einer weiteren Analyse in nachfolgenden Arbeiten, was aber noch im Ausblick in Abschnitt 6 diskutiert wird.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die ideale Berechnung der Membrantrennung nach Modell 1 vor allem im niedrigeren Stagecut-Bereich sehr gute Übereinstimmungen mit den experimentellen Daten liefert und erst bei größeren (ab ca. 50 % Stagecut) die Abweichung von diesen größer wird.

### 4.3.2.2 Modell 2 für 4 Komponenten

Anhand von Abbildung 4-16 ist ersichtlich, dass die Beschreibung der Permeatkonzentration von Wasserstoff mit Modell 2 gut durchführbar ist. Allerdings stimmt die Kurve nicht in gleichem Ausmaß mit jener von Pan [8] überein, wie die Kurve von Modell 1 mit idealer Berechnung. Trotzdem ist über den gesamten Bereich eine gute Übereinstimmung vorhanden, die mit größerem Stagecut allerdings etwas abnimmt. Die Darstellung ist wie in Abbildung 4-15, die roten Punkte stehen für die Ergebnisse der Berechnung in dieser Arbeit, die schwarze Linie wurde von Pan berechnet. Die schwarzen Punkte stehen für die experimentellen Ergebnisse, die im Gegenstrom gemessen wurden, und die Kreise kennzeichnen solche aus Gleichstromexperimenten.

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

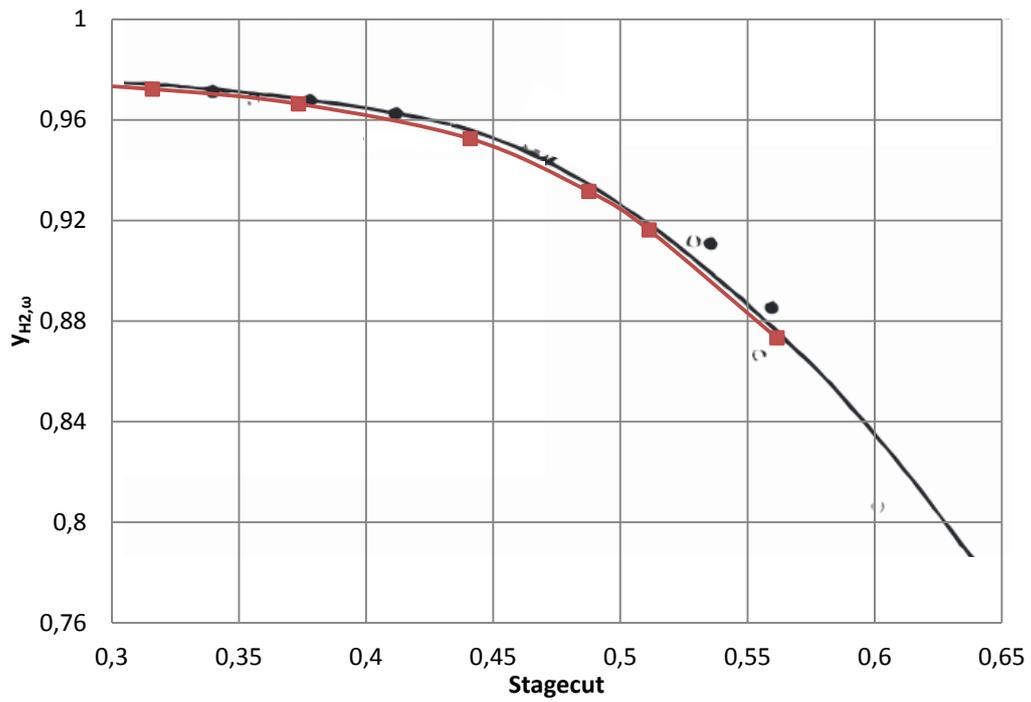


Abbildung 4-16: Verlauf der Konzentration von H<sub>2</sub> im Permeat über den Stagecut im Vergleich zu jenem in der Quelle [8] berechnet mit Modell 2

## 4.3.2.3 Modell 3 für 4 Komponenten

Modell 3 liefert sehr gute Ergebnisse, was die Übereinstimmung des Verlaufes der Permeatkonzentration von Wasserstoff über den Stagecut mit jenem des Modells von Pan betrifft. Die Güte der Übereinstimmung liegt sogar über jener von Modell 1 ohne Berücksichtigung der Nichtidealität in der Gasphase. Wie dieses kommt auch Modell 3 bei geringen Stagecuts sehr genau an die experimentellen Werte aus der Literatur heran. Bei größeren Stagecuts nimmt die Güte der Beschreibung der Trennung etwas ab. Die Darstellung ist wie in Abbildung 4-15, die roten Punkte stehen ebenfalls für die Ergebnisse der Berechnung in dieser Arbeit und die schwarze Linie wurde wieder von Pan [8] berechnet. Die schwarzen Punkte stellen abermals die experimentellen Ergebnisse dar, die im Gegenstrom gemessen wurden, und die Kreise kennzeichnen solche aus Gleichstromexperimenten.

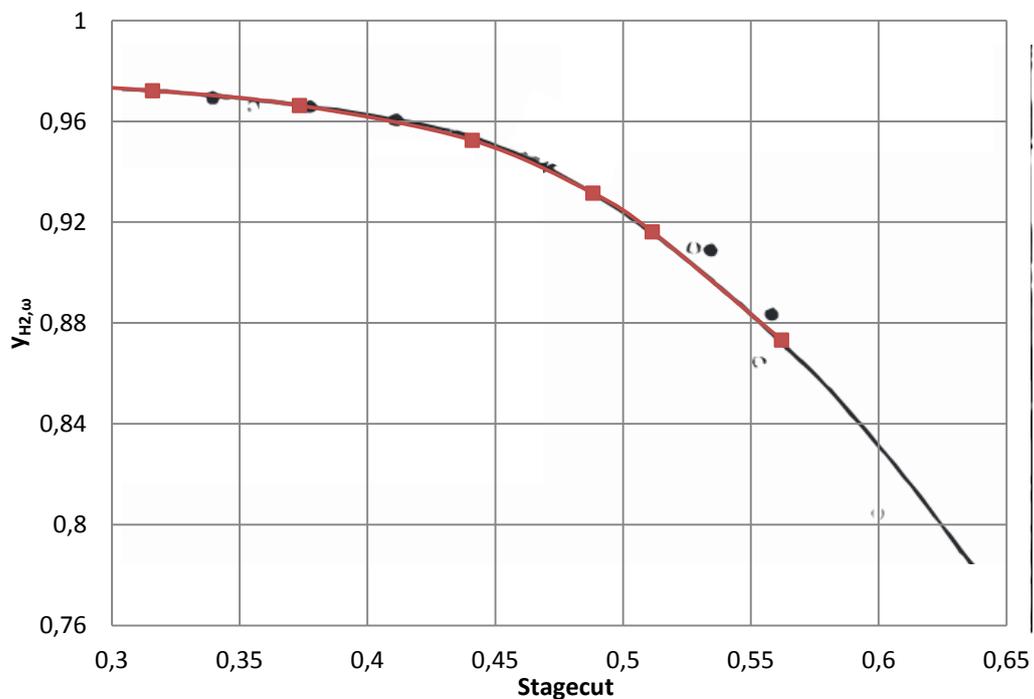


Abbildung 4-17: Verlauf der Konzentration von  $H_2$  im Permeat über den Stagecut im Vergleich zu jenem in der Quelle [8] berechnet mit Modell 3

Als Fazit kann nach der Validierung mittels grafischen Vergleichs der Modelle und Modellvarianten festgehalten werden, dass alle Modelle sehr gut geeignet sind, die Trennung von Mehrkomponentenmischungen zu beschreiben.

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

In Tabelle 4-15 ist nun eine Auflistung der Stagecuts, die bei den jeweiligen Feedströmen berechnet wurden, dargestellt. Aufgrund des sehr geringen Feedstromes, der für größere Stagecuts notwendig ist, konnte für 0,00003 mol/s nur Modell 1 die Berechnung der Trennung durchführen. Auffällig ist, dass die Übereinstimmung zwischen den Modellen zunimmt, je größer der Feedstrom wird. So ist beim zweiten Feed, 0,00005 mol/s, eine Differenz von ungefähr 1 % Stagecut oder 1,1 % relativer Abweichung vorhanden, wohingegen bei einem Feed von 0,01 mol/s die Stagecuts der 3 Modelle übereinstimmen. Dazu ist allerdings anzumerken, dass der Stagecut nur noch ungefähr 1,4 % beträgt, was nur noch 2,5 % des ursprünglichen Stagecuts ausmacht.

<b>Feed [mol/s]</b>	<b>Stagecut Modell 1 <math>\varphi=1</math></b>	<b>Stagecut Modell 2</b>	<b>Stagecut Modell 3</b>
0,00003	0,6184		
0,00005	0,5557	0,5616	0,5620
0,00008	0,5074	0,5113	0,5114
0,0001	0,4849	0,4876	0,4882
0,00015	0,4388	0,4409	0,4410
0,00023	0,3722	0,3734	0,3734
0,00031	0,3152	0,3159	0,3159
0,0005	0,2243	0,2242	0,2245
0,001	0,1242	0,1241	0,1242
0,005	0,0267	0,0267	0,0267
0,01	0,0135	0,0135	0,0135

Tabelle 4-15: Feed und zugehöriger Stagecut des jeweiligen Modells

#### 4.4 Untersuchung der Gemische aus Wasserstoff, Methan, Ethan und Ethen

Um zu zeigen, inwieweit Membrantrennverfahren für die Trennung von Wasserstoff und leichten Kohlenwasserstoffen eingesetzt werden können, wurden die in Abschnitt 4.1 vorgestellten Membranen verwendet, um verschiedene Ströme mit den Feedparametern der Ethylenanlage zu trennen. Da sehr wenige passende Membranen zur Verfügung standen, wurden einige Beispielmischungen berechnet. Diese setzten sich aus den einzelnen Molenströmen der Komponenten aus der Anlage zusammen (siehe Tabelle 4-16). Die Prozessparameter sind in Tabelle 4-17 dargestellt.

Komponente	Molenstrom [kmol/h]
H <sub>2</sub>	1.164,98
CH <sub>4</sub>	1.971,3
C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	467,62
C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>	2.166,63

Tabelle 4-16: Molenströme der Komponenten in der Anlage

Die Berechnung wurde, soweit möglich, mit allen Modellen durchgeführt. Da Modell 3 in der Validierung die etwas genaueren Resultate liefert (siehe Abschnitt 4.3) wurden in der vorliegenden Arbeit nur diese Ergebnisse betrachtet. Jene von Modell 1 und 2 sind im Anhang in Abschnitt 13.2 zu finden. Die Membranflächen wurden so gewählt, dass nach Möglichkeit die geforderte Konzentration (siehe Abschnitt 2) erreicht wird und falls diese übertroffen wird, so lange erhöht, bis die Permeatkonzentration nicht mehr die geforderte Reinheit erreicht. Abgebrochen wird die Berechnung, wenn die Konzentration nicht oder nicht mehr erreicht wird oder die Membranfläche so groß wird, dass auch ohne wirtschaftliche Betrachtung, alleine aus dem Platzbedarf heraus, eine Membrantrennung nicht zum Einsatz kommen wird.

Zu den Permeanzen der Membranen ist noch anzumerken, dass diese meist bei äquimolarer Mischung und geringem Feeddruck ermittelt wurden. Zusätzlich ist das Verhältnis von Feed zu Membranfläche nicht immer bekannt. Diese Faktoren nehmen Einfluss auf die Permeanzen, wie anhand von Tabelle 4-2 sowie Tabelle 4-5 und Tabelle 4-6 ersichtlich ist. Eine Eingrenzung der Abweichungen ist aufgrund der geringen Anzahl an Literaturdaten nicht möglich.

Nummer der Trennung	Feeddruck [bar]	Permeatdruck [bar]	Druckverhältnis $P_1/P_2$ [-]	Temperatur [°C]	Molenstrom [kmol/h]	Konzentration $H_2$ [mol %]	Konzentration $CH_4$ [mol %]	Konzentration $C_2H_6$ [mol %]	Konzentration $C_2H_4$ [mol %]
1	32,53	13,012	2,5	-39,05	3.136,28	37,15	62,85		
2	32,53	13,012	2,5	-39,05	1.629,6	71,36		28,64	
3	32,53	13,012	2,5	-39,05	2.634,25			17,75	82,25
4	32,53	13,012	2,5	-39,05	3.603,9	32,326	54,699	12,975	
5	32,53	13,012	2,5	-39,05	5.770,53	20,19	34,16	8,1	37,55

Tabelle 4-17: Prozessparameter

Außerdem wurde bei der Trennung von Wasserstoff und Ethan das Druckverhältnis bzw. der Feeddruck verändert, um diese Einflüsse auf die Trennung beobachten zu können. (siehe Abschnitt 4.4.6)

Nummer der Trennung	Feeddruck [bar]	Permeatdruck [bar]	Druckverhältnis $P_1/P_2$ [-]	Temperatur [°C]	Molenstrom [kmol/h]	Konzentration $H_2$ [mol %]	Konzentration $C_2H_6$ [mol %]
2	32,53	13,012	2,5	-39,05	1.629,6	0,7136	0,2864
2a	32,53	8,1325	4	-39,05	1.629,6	0,7136	0,2864
2b	20	8	2,5	-39,05	1.629,6	0,7136	0,2864

Tabelle 4-18: Variation von Feeddruck und Druckverhältnis

#### 4.4.1 Trennung 1: Wasserstoff und Methan

Für diese Trennung wurden wie bereits in Tabelle 4-2 dargestellt, 6 Membranen gefunden. Die Ergebnisse der Simulation mit Modell 3 sind in Tabelle 4-19 bis Tabelle 4-26 zu sehen. Die restlichen Ergebnisse sind im Anhang unter Abschnitt 13.2.1 zu finden. Bei den Membranen 2 und 6 wurde ein Bereich für die Permeanzen angegeben, wovon die obere und untere Grenze simuliert wurden. In den nachfolgenden Abschnitten werden die Ergebnisse der einzelnen Membranen diskutiert. In Abschnitt 4.4.1.7 sind die Ergebnisse dieser Membrantrennungen zusammengefasst. Außerdem wird diskutiert, inwieweit eine Membrantrennung mit den vorliegenden Membranen eine Alternative zur Tieftemperaturdestillation sein kann.

##### 4.4.1.1 Membran 1

Bei Membran 1 fällt auf, dass die Permeatkonzentration von Wasserstoff auch bei geringen Stagecuts relativ niedrig ist. Dies rührt von der geringen Selektivität her, die nur einen Wert von ca. 16 aufweist. Allerdings ist es mit dieser Membran schon bei ungefähr 20.000 m<sup>2</sup> möglich, 90 % des Wasserstoffes aus dem Feedstrom zu entfernen, was im Vergleich zu den anderen Membranen ein guter Wert ist. Dennoch ist die Anreicherung von Wasserstoff mit einem Faktor von 1,33 bei 20.000 m<sup>2</sup> keine gute Ausgangsbasis für weitere Prozessschritte, da die Konzentration bei dieser Membranfläche nur 49,29 mol % beträgt. Die gesammelten Ergebnisse von Modell 3 sind in Tabelle 4-19 dargestellt.

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Recovery H <sub>2</sub> [%]
<b>50</b>	72,00	0,29	1,94	37,05	0,55
<b>100</b>	71,94	0,57	1,94	36,95	1,11
<b>500</b>	71,41	2,81	1,92	36,16	5,41
<b>1.000</b>	70,75	5,53	1,90	35,18	10,53
<b>2.000</b>	69,44	10,67	1,87	33,29	19,95
<b>5.000</b>	65,61	24,21	1,77	28,06	42,76
<b>10.000</b>	59,63	42,33	1,61	20,65	67,94
<b>20.000</b>	49,29	69,50	1,33	9,48	92,22

Tabelle 4-19: Ergebnisse der Simulation von Membran 1 mit Modell 3

## 4.4.1.2 Membran 2

Für Membran 2 wurden aufgrund der großen Abweichungen in der Literatur (siehe Tabelle 4-2) 2 Simulationen durchgeführt. Bei beiden werden ausreichend große Konzentrationen von Wasserstoff im Permeat festgestellt, was auf die Selektivität von 118 zurückzuführen ist. Der größte Nachteil dieser Membran ist aber der sehr geringe Durchsatz. Selbst bei einer Membranfläche von 3.000.000 m<sup>2</sup> wird nur ein Stagecut zwischen 1,5 und 3,9 % erreicht und nur 3,4 bis 8,8 % des Wasserstoffs aus dem Feed gelangen auch ins Permeat. Zum Vergleich sei hier erwähnt, dass die Packungsdichte bei Wickelmodulen, die wie Membran 2 zu den Flachmembranen gezählt werden, bei maximal 1.000 m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup> liegt [3]. Der Unterschied der beiden Simulationen, vor allem bei Stagecut und Recovery, ist mit der Differenz der Permeanzen begründet. Diese unterscheiden sich ca. um den Faktor 3. Aus diesem Blickwinkel ist der Unterschied in der Trennung nicht so groß. Vor allem die Permeat- und Retentatkonzentrationen unterscheiden sich nicht im gleichen Ausmaß. Die Ergebnisse von Modell 3 für diese Membran zur Trennung von Wasserstoff und Methan sind in Tabelle 4-20 und Tabelle 4-21 dargestellt.

<b>A<sub>mem</sub> [m<sup>2</sup>]</b>	<b>y<sub>ω,H2</sub> [mol %]</b>	<b>Stagecut [%]</b>	<b>Anreicherung H<sub>2</sub></b>	<b>x<sub>ω,H2</sub> [mol %]</b>	<b>Recovery H<sub>2</sub> [%]</b>
<b>2.000</b>	86,435	0,003	2,327	37,149	0,007
<b>5.000</b>	86,433	0,007	2,327	37,146	0,017
<b>10.000</b>	86,430	0,014	2,327	37,143	0,033
<b>20.000</b>	86,424	0,029	2,326	37,136	0,067
<b>50.000</b>	86,407	0,072	2,326	37,115	0,167
<b>100.000</b>	86,378	0,143	2,325	37,080	0,332
<b>120.000</b>	86,367	0,171	2,325	37,065	0,399
<b>150.000</b>	86,350	0,214	2,324	37,044	0,497
<b>180.000</b>	86,332	0,257	2,324	37,024	0,596
<b>200.000</b>	86,321	0,285	2,324	37,010	0,662
<b>250.000</b>	86,292	0,355	2,323	36,975	0,825
<b>300.000</b>	86,264	0,426	2,322	36,940	0,988
<b>500.000</b>	86,151	0,704	2,319	36,803	1,632
<b>1.000.000</b>	85,871	1,381	2,311	36,468	3,193
<b>1.500.000</b>	85,596	2,035	2,304	36,144	4,688
<b>2.000.000</b>	85,327	2,666	2,297	35,830	6,124
<b>2.500.000</b>	85,063	3,277	2,290	35,527	7,503
<b>3.000.000</b>	84,803	3,869	2,283	35,232	8,831

Tabelle 4-20: Ergebnisse der Simulation von Membran 2 mit Modell 3, bessere Selektivität und Permeanz

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Recovery H <sub>2</sub> [%]
<b>2.000</b>	85,654	0,001	2,306	37,150	0,002
<b>5.000</b>	85,654	0,003	2,306	37,149	0,006
<b>10.000</b>	85,653	0,005	2,306	37,148	0,012
<b>20.000</b>	85,651	0,010	2,306	37,145	0,024
<b>50.000</b>	85,645	0,025	2,305	37,138	0,059
<b>100.000</b>	85,635	0,051	2,305	37,125	0,117
<b>120.000</b>	85,631	0,061	2,305	37,120	0,141
<b>150.000</b>	85,625	0,076	2,305	37,113	0,176
<b>180.000</b>	85,619	0,092	2,305	37,106	0,211
<b>200.000</b>	85,615	0,102	2,305	37,101	0,234
<b>250.000</b>	85,606	0,127	2,304	37,088	0,293
<b>300.000</b>	85,596	0,152	2,304	37,076	0,351
<b>500.000</b>	85,556	0,253	2,303	37,027	0,583
<b>1.000.000</b>	85,459	0,503	2,300	36,906	1,158
<b>1.500.000</b>	85,362	0,751	2,298	36,785	1,725
<b>2.000.000</b>	85,265	0,995	2,295	36,667	2,283
<b>2.500.000</b>	85,169	1,236	2,293	36,549	2,833
<b>3.000.000</b>	85,074	1,474	2,290	36,433	3,376

Tabelle 4-21: Ergebnisse der Simulation von Membran 2 mit Modell 3, schlechtere Selektivität und Permeanz

## 4.4.1.3 Membran 3

Bei Membran 3 fällt wie bei Membran 1 die geringe Konzentration von Wasserstoff im Permeat auf. Zusätzlich ist auch bei einer Membranfläche von 100.000 m<sup>2</sup> lediglich ein Stagecut von 2,3 % möglich. Daraus ergibt sich, dass nur 4,3 % des Wasserstoffs im Feed ins Permeat übergehen, was zur Folge hat, dass sich die Retentatkonzentration im Vergleich zur Feedkonzentration (37,15 mol %) kaum ändert. Alles in allem ist diese Membran nicht geeignet, das Stoffsystem Wasserstoff-Methan in einer ausreichenden Qualität und Quantität zu trennen. Die Ergebnisse der Simulation dieser Membran sind in Tabelle 4-22 dargestellt

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Recovery H <sub>2</sub> [%]
<b>500</b>	70,025	0,011	1,885	37,146	0,022
<b>1.000</b>	70,023	0,023	1,885	37,142	0,043
<b>2.000</b>	70,018	0,046	1,885	37,135	0,087
<b>5.000</b>	70,003	0,115	1,884	37,112	0,217
<b>10.000</b>	69,979	0,230	1,884	37,074	0,433
<b>20.000</b>	69,930	0,459	1,882	36,999	0,864
<b>50.000</b>	69,782	1,143	1,878	36,773	2,147
<b>100.000</b>	69,537	2,271	1,872	36,397	4,252

Tabelle 4-22: Ergebnisse der Simulation von Membran 3 mit Modell 3

## 4.4.1.4 Membran 4

Membran 4 liefert sehr gute Konzentrationen von Wasserstoff im Permeat. Dies kann auf die große Selektivität (165) zurückgeführt werden. Allerdings ist der Stagecut mit 3,9 % bei einer Membranfläche von 3.000.000 m<sup>2</sup> nicht zufriedenstellend. Damit kann man auch hier festhalten, dass ein Einsatz dieser Membran bei großen industriellen Anwendungen zur Trennung von Wasserstoff und Methan nahezu auszuschließen ist. Die genauen Ergebnisse der Simulationen mit unterschiedlichen Membranflächen sind in Tabelle 4-23 ersichtlich.

<b>A<sub>mem</sub> [m<sup>2</sup>]</b>	<b>Y<sub>w,H2</sub> [mol %]</b>	<b>Stagecut [%]</b>	<b>Anreicherung H<sub>2</sub></b>	<b>X<sub>w,H2</sub> [mol %]</b>	<b>Recovery H<sub>2</sub> [%]</b>
<b>500</b>	87,018	0,001	2,342	37,150	0,002
<b>1.000</b>	87,018	0,001	2,342	37,149	0,003
<b>2.000</b>	87,017	0,003	2,342	37,149	0,007
<b>5.000</b>	87,015	0,007	2,342	37,146	0,017
<b>10.000</b>	87,012	0,015	2,342	37,143	0,035
<b>20.000</b>	87,006	0,030	2,342	37,135	0,069
<b>50.000</b>	86,988	0,074	2,342	37,113	0,173
<b>60.000</b>	86,982	0,088	2,341	37,106	0,207
<b>80.000</b>	86,970	0,118	2,341	37,091	0,276
<b>100.000</b>	86,957	0,147	2,341	37,077	0,344
<b>120.000</b>	86,945	0,176	2,340	37,062	0,413
<b>150.000</b>	86,927	0,220	2,340	37,040	0,515
<b>200.000</b>	86,897	0,293	2,339	37,004	0,685
<b>250.000</b>	86,867	0,365	2,338	36,968	0,854
<b>500.000</b>	86,716	0,723	2,334	36,789	1,688
<b>1.000.000</b>	86,421	1,416	2,326	36,442	3,294
<b>1.500.000</b>	86,132	2,082	2,319	36,108	4,828
<b>2.000.000</b>	85,850	2,724	2,311	35,786	6,295
<b>2.500.000</b>	85,573	3,343	2,303	35,475	7,700
<b>3.000.000</b>	85,302	3,941	2,296	35,174	9,049

Tabelle 4-23: Ergebnisse der Simulation von Membran 4 mit Modell 3

## 4.4.1.5 Membran 5

Die Ergebnisse von Membran 5, dargestellt in Tabelle 4-24 zeigen ähnlichen Charakter wie jene der Membranen 2 und 4. Die Konzentration von Wasserstoff im Permeat ist mit 89,7 % bei 1.000 m<sup>2</sup> recht hoch. Allerdings ist der Stagecut aufgrund der extrem niedrigen Permeanz ( $R_{H_2} = 7 \cdot 10^{-11}$  mol/m<sup>2</sup> s Pa) kein signifikanter Permeatstrom vorhanden. Dieser stellt sich erst bei sehr großen Flächen der Membran ein. Trotzdem ist auch bei einer Fläche von 50.000.000 m<sup>2</sup> der Stagecut mit 11,7 % noch sehr gering. Auch die Recovery ist bei dieser Membranfläche mit 26 % nicht zufriedenstellend. Aus diesem Grund ist auch Membran 5 nicht für die Trennung von Wasserstoff und Methan im großtechnischen Betrieb geeignet.

<b>A<sub>mem</sub> [m<sup>2</sup>]</b>	<b>Y<sub>ω,H<sub>2</sub></sub> [mol %]</b>	<b>Stagecut [%]</b>	<b>Anreicherung H<sub>2</sub></b>	<b>X<sub>ω,H<sub>2</sub></sub> [mol %]</b>	<b>Recovery H<sub>2</sub> [%]</b>
1.000	89,674	0,000	2,414	37,150	0,001
2.000	89,674	0,001	2,414	37,150	0,002
5.000	89,673	0,002	2,414	37,149	0,004
10.000	89,672	0,004	2,414	37,148	0,009
20.000	89,671	0,007	2,414	37,146	0,018
30.000	89,669	0,011	2,414	37,144	0,027
50.000	89,665	0,019	2,414	37,140	0,045
80.000	89,660	0,030	2,413	37,134	0,072
100.000	89,656	0,037	2,413	37,131	0,090
120.000	89,652	0,045	2,413	37,127	0,107
150.000	89,647	0,056	2,413	37,121	0,134
3.000.000	89,148	1,063	2,400	36,592	2,550
5.000.000	88,815	1,720	2,391	36,246	4,112
8.000.000	88,338	2,643	2,378	35,761	6,284
10.000.000	88,034	3,222	2,370	35,456	7,634
12.000.000	87,740	3,776	2,362	35,165	8,918
15.000.000	87,315	4,566	2,350	34,750	10,732
25.000.000	86,018	6,922	2,315	33,516	16,028
50.000.000	83,320	11,652	2,243	31,061	26,132

Tabelle 4-24: Ergebnisse der Simulation von Membran 5 mit Modell 3

## 4.4.1.6 Membran 6a

Die letzte Membran, die zur Trennung von Wasserstoff und Methan verwendet wurde, weist Ähnlichkeiten zu Membran 1 auf. Grund dafür ist, dass es sich um dasselbe Material, ZIF-8 handelt. Membran 6 ist lediglich als Hohlfasern ausgeführt. Darum ergeben sich wie bei Membran 1 auch der Stagecut bei vergleichsweise geringen Membranflächen (2.000 m<sup>2</sup>) schon zu 89 % sowie die Recovery von Wasserstoff schon zu nahezu 100 % (siehe Tabelle 4-25 und Tabelle 4-26). Allerdings ist die Permeatkonzentration von Wasserstoff zu gering, um den Permeatstrom direkt in die Hydrierungsreaktoren zu schicken, dazu wäre eine Konzentration von mindestens 85 % notwendig. Im Vergleich der besseren Selektivität und Permeanz mit den für die Trennung schlechteren Werten ist ersichtlich, dass hinsichtlich der Permeat- und Retentatkonzentration sowie der Anreicherung von Wasserstoff für erstere Parameterwahl die besseren Ergebnisse vorliegen. Anhand eines Vergleiches des Stagecut kann man erkennen, dass im Falle der schlechteren Trennung deutlich mehr Methan in die Permeatphase gelangt, wodurch der Stagecut erhöht wird.

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	$X_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Recovery H <sub>2</sub> [%]
<b>1</b>	69,145	0,075	1,861	37,126	0,139
<b>10</b>	69,007	0,743	1,858	36,911	1,381
<b>50</b>	68,390	3,661	1,841	35,963	6,740
<b>100</b>	67,618	7,189	1,820	34,790	13,084
<b>500</b>	61,472	31,365	1,655	26,035	51,900
<b>1.000</b>	54,186	54,493	1,459	16,750	79,482
<b>2.000</b>	41,495	88,680	1,117	3,115	99,051

Tabelle 4-25: Ergebnisse der Simulation von Membran 6a mit Modell 3, bessere Selektivität und Permeanz

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	$X_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Recovery H <sub>2</sub> [%]
<b>1</b>	66,813	0,077	1,798	37,127	0,138
<b>10</b>	66,683	0,768	1,795	36,922	1,378
<b>50</b>	66,102	3,790	1,779	36,009	6,745
<b>100</b>	65,371	7,463	1,760	34,874	13,133
<b>500</b>	59,441	33,131	1,600	26,105	53,011
<b>1.000</b>	52,139	58,215	1,403	16,268	81,702
<b>2.000</b>	38,890	95,387	1,047	1,180	99,853

Tabelle 4-26: Ergebnisse der Simulation von Membran 6a mit Modell 3, schlechtere Selektivität und Permeanz

### 4.4.1.7 Zusammenfassung der Trennung von Wasserstoff und Methan

Aus unterschiedlichen Gründen sind alle simulierten Membranen für eine alleinige Verwendung zur Darstellung von reinem Wasserstoff für die Hydrierungsreaktionen ungeeignet. Die Membranen 1, 3 und 6 weisen zu geringe Konzentrationen auf und die Membranen 2, 4 und 5 erreichen zwar die geforderten 85 %, aufgrund der zu geringen Permeation sind allerdings sehr große Membranflächen notwendig. Daher ist ausschließlich Membran 6 als Vorstufe für eine weitere Trennstufe denkbar, da hier bei relativ geringen Membranflächen akzeptable Konzentrationen erzielbar sind. Problem dieser Membran könnte die geringe Recovery sein, die bei einer Anreicherung um den Faktor 1,6 bei ca. 53 % liegt.

### 4.4.2 Trennung 2: Wasserstoff und Ethan

Zur Trennung von Wasserstoff und Ethan wurde nur eine Membran gefunden, die Membran 6a bei der Trennung von Wasserstoff und Methan entspricht.

Die Ergebnisse sind allerdings bei dieser Trennoperation deutlich anders. Zwar ist auch hier der Stagecut bzw. die Recovery recht hoch, die Konzentration von Wasserstoff im Permeat ist aber deutlich höher und entspricht auch bei größeren Stagecuts den Anforderungen. Gleichzeitig ist die notwendige Membranfläche sehr gering. Dies gilt für die Simulation der besseren Selektivitäts- und Permeanzwerte ebenso wie für die schlechteren. Darum kann eine Trennung von Wasserstoff und Ethan mit dieser Membran zur Darstellung des Einsatzstromes von Wasserstoff in die Hydrierung dienen. Falls dies wirtschaftlich interessant ist, könnte in einem zweiten Schritt der Großteil des restlichen Wasserstoffs vom Ethan getrennt werden.

Zu den Ergebnissen ist allerdings anzumerken, dass Wasserstoff bereits im Feed mit einer Konzentration von 71 % vorliegt. Daher ergibt sich eine größere Konzentration im Permeat und erklärt die relativ geringe Anreicherung. Die gesammelten Ergebnisse von Modell 3 sind in Tabelle 4-27 für die bessere Trennung und in Tabelle 4-28 für die schlechteren Parameter dargestellt. Jene der anderen Modelle sind im Anhang unter Abschnitt 13.2.2 zu finden

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	93,463	3,312	1,310	70,603	4,338
50	92,856	15,997	1,301	67,266	20,816
100	91,951	30,449	1,289	62,346	39,234
200	89,545	53,937	1,255	50,066	67,682
300	86,333	70,100	1,210	36,256	84,809
400	82,622	80,889	1,158	23,693	93,655
500	78,768	88,674	1,104	13,359	97,880

Tabelle 4-27: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit Modell 3, bessere Selektivität und Permeanz

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	92,254	3,026	1,293	70,708	3,912
50	91,666	14,721	1,285	67,855	18,910
100	90,805	28,326	1,272	63,675	36,044
200	88,571	51,559	1,241	53,041	63,994
300	85,553	68,915	1,199	39,896	82,621
400	81,880	81,066	1,147	26,318	93,017
500	77,881	89,766	1,091	14,161	97,969

Tabelle 4-28: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit Modell 3, schlechtere Selektivität und Permeanz

#### 4.4.3 Trennung 3: Ethan und Ethen

Für die Trennung des Gemisches Ethan-Ethen wurden drei Membranen gefunden, auf deren Trennleistung, berechnet mit Modell 3 in den folgenden Abschnitten näher eingegangen wird. Die Ergebnisse der anderen Modelle sind im Anhang unter Abschnitt 13.2.3 zu finden.

##### 4.4.3.1 Membran 7

Membran 7 liefert ausgezeichnete Ergebnisse, was die Konzentration betrifft. Allerdings ist erst bei größeren Membranflächen ab 15.000 m<sup>2</sup> ein Stagecut bzw. eine Recovery von Ethen erreichbar, die einen Einsatz in der Referenzanlage ermöglichen. Da allerdings auch der Energieaufwand für die destillative Trennung aufgrund der Ähnlichkeit der Stoffe sehr groß ist, könnte eine Membrantrennung mit Membran 7 durchaus eine gute Alternative sein. Wie bei der Trennung von Wasserstoff und Ethan ist aber relativierend zu erwähnen, dass die Konzentration von Ethen im Feed bereits ca. 82 % beträgt. Damit lässt sich wieder die relativ geringe Anreicherung, die wie die anderen Ergebnisse in Tabelle 4-29 aufgelistet sind, erklären. Aufgrund der Selektivität von 1100 lässt sich aber gut abschätzen, dass auch eine Trennung dieser beiden Komponenten bei niedrigeren Konzentrationen von Ethen zu guten Ergebnissen führen würde.

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{C}_2\text{H}_4}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>	$x_{\omega, \text{C}_2\text{H}_4}$ [mol %]	Recovery C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> [%]
100	99,960	0,739	1,215	82,118	0,899
200	99,959	1,477	1,215	81,985	1,795
500	99,954	3,674	1,215	81,575	4,465
1.000	99,946	7,289	1,215	80,859	8,857
2.000	99,928	14,325	1,215	79,294	17,404
5.000	99,860	33,586	1,214	73,345	40,777
10.000	99,701	57,198	1,212	58,930	69,333
15.000	99,531	68,017	1,210	45,499	82,308
20.000	99,365	71,084	1,208	40,176	85,876
50.000	98,333	75,132	1,196	33,661	89,823
100.000	96,611	78,810	1,175	28,837	92,571

Tabelle 4-29: Ergebnisse der Simulation von Membran 7 mit Modell 3

## 4.4.3.2 Membran 8

Auch Membran 8 liefert, wie in Tabelle 4-30 ersichtlich, bei etwas größeren Membranflächen gute Trennergebnisse. So wird bei 10.000 m<sup>2</sup> die geforderte Reinheit von Ethylen im Permeat von 98 % gerade noch erreicht. Bei noch größeren Flächen ist die Konzentration zu gering. Allerdings ist auch die Menge an Ethen, das vom Feed- in den Permeatstrom übergeht, mit 89 % bei 10.000 m<sup>2</sup> eine gute Voraussetzung für den Einsatz in industriellen Anlagen.

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{C}_2\text{H}_4}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>	$x_{\omega, \text{C}_2\text{H}_4}$ [mol %]	Recovery C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> [%]
<b>100</b>	99,883	2,062	1,214	81,879	2,504
<b>200</b>	99,878	4,106	1,214	81,495	4,985
<b>500</b>	99,860	10,123	1,214	80,267	12,290
<b>1.000</b>	99,826	19,733	1,214	77,929	23,950
<b>2.000</b>	99,742	37,041	1,213	71,959	44,918
<b>5.000</b>	99,356	67,070	1,208	47,409	81,019
<b>10.000</b>	98,583	74,322	1,199	34,976	89,081
<b>15.000</b>	97,805	76,773	1,189	30,837	91,292
<b>20.000</b>	97,040	78,608	1,180	27,901	92,743
<b>50.000</b>	92,621	86,354	1,126	16,624	97,242
<b>100.000</b>	84,866	96,806	1,032	2,952	99,885

Tabelle 4-30: Ergebnisse der Simulation von Membran 8 mit Modell 3

## 4.4.3.3 Membran 9

Im Vergleich zu den Membranen 7 und 8 fällt auf, dass die Konzentration von Ethen im Permeat über alle Membranflächen auf sehr hohem Niveau (>99,9 %) nahezu konstant ist. Allerdings ist in Tabelle 4-31 anhand des Stagecut und der Recovery von Ethen auch ersichtlich, dass lediglich ein sehr geringer Strom über die Membran tritt. Das ist auch der Grund, warum die Retentatkonzentration sich im Vergleich zur Feedkonzentration nicht stark ändert. Aus diesen Gründen ist eine Verwendung dieser Membran in der industriellen Trennung von Ethan und Ethen nicht zu empfehlen.

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

<b>A<sub>mem</sub> [m<sup>2</sup>]</b>	<b>Y<sub>ω,C<sub>2</sub>H<sub>4</sub></sub> [mol %]</b>	<b>Stagecut [%]</b>	<b>Anreicherung C<sub>2</sub>H<sub>4</sub></b>	<b>X<sub>ω,C<sub>2</sub>H<sub>4</sub></sub> [mol %]</b>	<b>Recovery C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> [%]</b>
<b>100</b>	99,984	0,006	1,216	82,249	0,008
<b>200</b>	99,984	0,012	1,216	82,248	0,015
<b>500</b>	99,984	0,031	1,216	82,245	0,038
<b>1.000</b>	99,984	0,062	1,216	82,239	0,075
<b>2.000</b>	99,984	0,124	1,216	82,228	0,151
<b>5.000</b>	99,984	0,310	1,216	82,195	0,377
<b>10.000</b>	99,983	0,619	1,216	82,140	0,753
<b>15.000</b>	99,983	0,928	1,216	82,084	1,128
<b>20.000</b>	99,982	1,237	1,216	82,028	1,503
<b>50.000</b>	99,978	3,080	1,216	81,687	3,744
<b>100.000</b>	99,972	6,118	1,215	81,095	7,437

Tabelle 4-31: Ergebnisse der Simulation von Membran 9 mit Modell 3

#### 4.4.3.4 Zusammenfassung der Trennung von Ethan und Ethen

Die Membranen 7 und 8 liefern sehr gute Ergebnisse bei Simulation mit den Daten aus der Ethylenanlage. Jedoch ist bei einem tatsächlichen Einsatz vorher abzuklären, inwieweit die tatsächliche Trennleistung von der simulierten abweicht, da Trennverfahren mit flüssigem Carrier möglicherweise anderen Trennprinzipien folgen und demnach anders beschrieben werden müssten. Für Membran 9 gilt, dass nach Simulation mit Modell 3 ein Einsatz in der Industrie aufgrund des geringen Durchsatzes nicht möglich scheint.

#### 4.4.4 Trennung 4: Wasserstoff, Methan und Ethan

Diese Trennung wurde ebenfalls mit Membran 6 durchgeführt. Wie in Abschnitt 4.1 beschrieben mussten im Vorfeld die Permeanzen abgeschätzt werden, da für eine Trennung des ternären Gemisches aus Wasserstoff, Methan und Ethan keine Daten vorhanden waren. Darum wurde aus den Reinstoffpermeanzen und den Permeanzen bei Trennung von Wasserstoff und Methan sowie Wasserstoff und Ethan und den Abweichungen in der Literatur abgeschätzt, in welchem Bereich die Permeanzen liegen. Die in der Modellierung verwendeten Daten sind in Tabelle 4-2 dargestellt.

Das Trennergebnis zeigt, dass zwar eine Anreicherung von Wasserstoff im Permeat stattfindet, allerdings nicht in dem Maße, dass ein Einsatz dieser Membran für die Trennung des ternären Gemisches im industriellen Maßstab geeignet erscheint. Der Bereich der Konzentration von Wasserstoff im Permeat ist aufgrund der Unsicherheiten sehr groß, wodurch eine Analyse noch zusätzlich erschwert wird. Auch beim Stagecut und bei der Recovery ist eine große Schwankungsbreite zwischen den beiden Simulationen ersichtlich (siehe Tabelle 4-32 und Tabelle 4-33).

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$y_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
100	67,960	26,981	4,183	30,770	55,909	2,102	8,794
200	66,697	28,027	8,083	29,303	57,044	2,063	16,678
500	63,146	30,960	18,453	25,352	60,071	1,953	36,047
1.000	57,897	35,262	32,700	19,901	64,143	1,791	58,568
2.000	49,207	42,278	54,983	11,707	69,870	1,522	83,697

Tabelle 4-32: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 3, beste Kombination aus Selektivität und Permeanz

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$y_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
100	55,650	37,222	5,491	30,971	55,715	1,722	9,454
200	54,716	37,977	10,820	29,610	56,728	1,693	18,314
500	51,863	40,270	25,873	25,507	59,735	1,604	41,510
1000	47,000	44,129	48,161	18,693	64,519	1,454	70,024
2000	37,234	51,556	84,433	5,704	71,744	1,152	97,253

Tabelle 4-33: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 3, schlechteste Kombination aus Selektivität und Permeanz

### 4.4.5 Trennung 5: Trennung von Wasserstoff, Methan, Ethan und Ethen

Wie in Tabelle 4-2 ersichtlich, konnte auch eine Membran zur Trennung des 4 Stoffgemisches Wasserstoff, Methan, Ethan und Ethen gefunden werden. Zur Berechnung dieser Trennung wurde die Permeanz von Wasserstoff nicht auf 0 gesetzt sondern 3 Zehnerpotenzen kleiner gewählt als die der anderen Komponenten, da eine Berechnung ansonsten nicht möglich gewesen wäre. Aus den Ergebnissen der Permeatkonzentrationen, die für Modell 3 in Tabelle 4-34 sowie für die anderen Modelle im Anhang unter Abschnitt 13.2.5 zu finden sind, geht hervor, dass der Fehler sehr gering ist, da die Konzentration von Wasserstoff im Permeat immer deutlich kleiner 1 % ist.

Zu den Ergebnissen der Simulation lässt sich sagen, dass eine Anreicherung von Ethan und Ethen im Permeat erfolgt. Allerdings nimmt dieser Effekt mit zunehmender Membranfläche zusehends ab, wobei die Anreicherung von Ethen stärker zurückgeht als jene von Ethan. Insgesamt kann man sagen, dass diese Membran eine gute Möglichkeit darstellt, um Wasserstoff aus dem Gemisch abzutrennen. Zusätzlich erfolgt eine Anreicherung von Wasserstoff im Retentat, was für weitere Membranen, durch welche Wasserstoff bevorzugt permeiert, eine gute Grundlage ist.

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	$y_{\omega, \text{C}_2\text{H}_6}$ [mol %]	$y_{\omega, \text{C}_2\text{H}_4}$ [mol %]	Stage- cut [%]	An- reicherung CH <sub>4</sub>	An- reicherung C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	An- reicherung C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>	$x_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{C}_2\text{H}_6}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{C}_2\text{H}_4}$ [mol %]	Re- covery CH <sub>4</sub> [%]	Re- covery C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> [%]	Re- covery C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> [%]
<b>100</b>	24,512	11,491	63,993	0,093	0,718	1,419	1,704	34,169	8,097	37,525	0,067	0,132	0,158
<b>200</b>	24,523	11,491	63,981	0,185	0,718	1,419	1,704	34,178	8,094	37,501	0,133	0,263	0,316
<b>500</b>	24,557	11,491	63,947	0,463	0,719	1,419	1,703	34,205	8,084	37,427	0,333	0,657	0,789
<b>1.000</b>	24,613	11,491	63,889	0,924	0,721	1,419	1,701	34,249	8,068	37,304	0,666	1,311	1,572
<b>2.000</b>	24,726	11,492	63,774	1,839	0,724	1,419	1,698	34,337	8,036	37,059	1,331	2,610	3,124
<b>5.000</b>	25,066	11,492	63,428	4,535	0,734	1,419	1,689	34,592	7,939	36,321	3,328	6,434	7,660
<b>10.000</b>	25,638	11,489	62,849	8,858	0,751	1,418	1,674	34,988	7,771	35,091	6,648	12,564	14,826
<b>30.000</b>	27,955	11,441	60,534	24,068	0,818	1,412	1,612	36,127	7,041	30,265	19,696	33,996	38,800
<b>50.000</b>	30,214	11,343	58,324	36,118	0,884	1,400	1,553	36,391	6,267	25,805	31,945	50,577	56,099
<b>80.000</b>	33,194	11,141	55,466	49,044	0,972	1,375	1,477	35,090	5,173	20,306	47,657	67,457	72,445
<b>100.000</b>	34,770	11,003	53,978	54,871	1,018	1,358	1,437	33,419	4,571	17,576	55,850	74,535	78,876
<b>120.000</b>	35,981	10,882	52,839	58,989	1,053	1,343	1,407	31,541	4,099	15,559	62,133	79,249	83,007

Tabelle 4-34: Ergebnisse der Simulation von Membran 10 mit Modell 3

### 4.4.6 Einfluss der Änderung von Feeddruck oder Druckverhältnis auf das Trennergebnis

In diesem Abschnitt wird auf den Einfluss von Feeddruck und Druckverhältnis auf das Trennergebnis eingegangen. Dazu wurden die in Tabelle 4-18 dargestellten Prozessparameter eingestellt und Membran 6b mit diesen simuliert.

#### 4.4.6.1 Trennung mit größerem Druckverhältnis

Wird ein größeres Druckverhältnis eingestellt, erhöhen sich Recovery und Stagecut im Vergleich zu den Ausgangswerten. Dies ist durch das größere treibende Druckgefälle erklärbar. Die Permeatkonzentration von Wasserstoff ist bei kleineren Membranflächen für das größere Druckverhältnis etwas größer, dieser Effekt kehrt sich allerdings bei einer Fläche von etwa 200 m<sup>2</sup> um. Der Grund dafür ist, dass zu diesem Zeitpunkt bereits der größte Teil des Wasserstoffs aus dem Feed in das Permeat gedrückt wurde und darum nun ein erhöhter Ethanstrom über die Membran tritt. Dies geht sogar so weit, dass ab 300 m<sup>2</sup> die Permeatkonzentration von Wasserstoff im Falle des größeren Druckverhältnisses und der größeren Permeanzen und Selektivitäten niedriger liegt als jene im Standardfall unter Verwendung der kleineren Permeanzen und Selektivitäten. Die gesammelten Ergebnisse des größeren Druckverhältnisses sind in Tabelle 4-35 für die größere Selektivität und Permeanz von Wasserstoff und in Tabelle 4-36 für die niedrigeren Werte dargestellt.

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	94,975	4,565	1,331	70,230	6,075
50	94,276	21,868	1,321	64,946	28,891
100	93,119	40,895	1,305	56,304	53,365
200	89,488	67,748	1,254	33,281	84,958
300	84,370	81,460	1,182	14,200	96,311
400	79,001	89,772	1,107	4,290	99,385
500	73,962	96,464	1,036	0,371	99,982

Tabelle 4-35: Membran 6b, Prozessparameter 2a, bessere Selektivität und Permeanz, berechnet mit Modell 3

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	93,934	4,126	1,316	70,388	5,432
50	93,242	19,935	1,307	65,912	26,047
100	92,136	37,827	1,291	58,720	48,840
200	88,771	65,372	1,244	38,490	81,323
300	83,760	81,289	1,174	17,488	95,414
400	78,131	90,756	1,095	4,885	99,367
500	72,741	98,097	1,019	0,140	99,996

Tabelle 4-36: Membran 6b, Prozessparameter 2a, schlechtere Selektivität und Permeanz, berechnet mit Modell 3

##### 4.4.6.2 Trennung mit geringerem Feeddruck

Die Ergebnisse dieser Simulation zeigen, dass eine Erniedrigung des Feeddruckes bei Beibehaltung des Druckverhältnisses über den gesamten simulierten Bereich bessere Werte für das Permeat erzielt als bei ursprünglichem Feeddruck. Die Konzentrationen von Wasserstoff im Permeat weichen bei größer werdender Membranfläche immer weiter zu größeren Werten von jenen des Referenzfalles ab. Auch die Anreicherung ist leicht verbessert. Auffällig ist jedoch, dass die Menge an Wasserstoff, die vom Feed ins Permeat übertritt, im Vergleich zum Referenzfall deutlich reduziert ist. Allerdings gleicht sich dies mit zunehmender Membranfläche immer mehr aus, so ist etwa bei einer Membranfläche von 10 m<sup>2</sup> noch eine Verringerung der Recovery um fast 40 % bezogen auf den Referenzfall festzustellen wohingegen die Verminderung bei 500 m<sup>2</sup> nur noch ungefähr 13 % beträgt. Durch den geringeren Strom über die Membran ergibt sich auch eine erhöhte Konzentration von Wasserstoff im Retentat. Die Ergebnisse bei einer Simulation mit einer geringeren Permeanz von Wasserstoff und verringerter Selektivität ergibt eine leicht verringerte Permeatkonzentration von Wasserstoff. Außerdem sind der Stagecut, die Anreicherung sowie die Recovery von

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

Wasserstoff leicht reduziert. Die Retentatkonzentration dagegen weist höhere Werte auf. Die detaillierten Ergebnisse sind in Tabelle 4-37 für die größere Permeanz und Selektivität und in Tabelle 4-38 für die geringeren Werte dargestellt.

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	93,516	2,043	1,310	70,898	2,677
50	93,160	10,006	1,305	68,936	13,062
100	92,664	19,461	1,299	66,212	25,271
200	91,472	36,507	1,282	59,796	46,796
300	89,976	50,784	1,261	52,151	64,032
400	88,158	62,195	1,235	43,724	76,836
500	86,070	71,051	1,206	35,257	85,697

Tabelle 4-37: Membran 6b, Prozessparameter 2b, bessere Selektivität und Permeanz, berechnet mit Modell 3

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	92,307	1,865	1,294	70,962	2,412
50	91,959	9,174	1,289	69,279	11,823
100	91,481	17,950	1,282	66,958	23,011
200	90,357	34,155	1,266	61,506	43,247
300	88,969	48,324	1,247	54,893	60,249
400	87,282	60,260	1,223	47,217	73,705
500	85,299	69,974	1,195	38,874	83,643

Tabelle 4-38: Membran 6b, Prozessparameter 2b, schlechtere Selektivität und Permeanz, berechnet mit Modell 3

In Abbildung 4-18 ist ein Vergleich zwischen den 3 Prozessvarianten für die Trennung von Wasserstoff und Ethan mit Membran 6b hinsichtlich der Permeatkonzentration dargestellt. Zur Erstellung wurden in allen Fällen die besseren Permeationsdaten verwendet. Wie oben beschrieben ist bei geringeren Membranflächen das größere Druckverhältnis von Vorteil, je größer aber der Stagecut oder die Anreicherung und damit die Fläche sein muss, desto mehr wird deutlich, dass ein geringerer Feeddruck bei gleichem Druckverhältnis Vorteile bringt.

#### 4. Berechnung der Membrantrennung

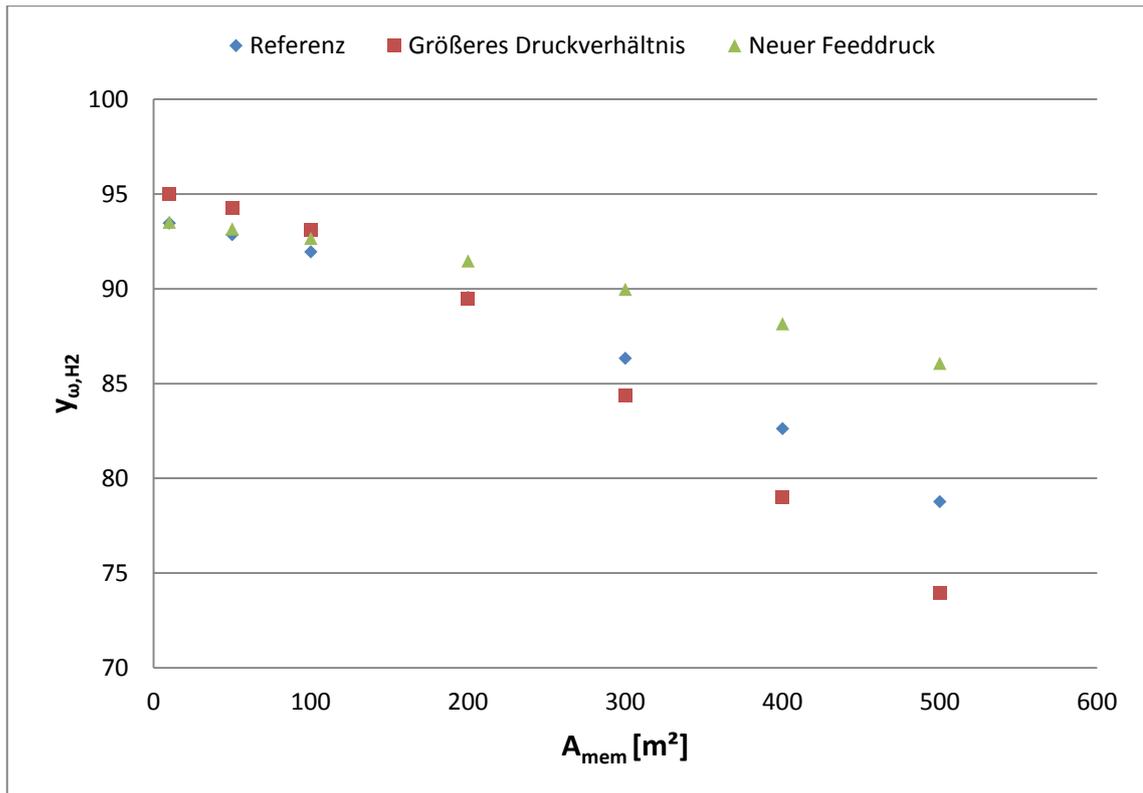


Abbildung 4-18: Vergleich der 3 Prozessvarianten

## 5 Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit war es, die Möglichkeit der Trennung von Wasserstoff und leichten Kohlenwasserstoffen mittels Membranverfahren zu untersuchen. Dazu wurde im ersten Schritt eine Literaturstudie durchgeführt. Im Rahmen dieser Literaturstudie wurden Modelle gefunden, die die Beschreibung der Trennung mittels Membranverfahren ermöglichten. Diese Modelle wurden unter Berücksichtigung der Annahmen, die jeweils getroffen wurden, aus ihren Grundgleichungen abgeleitet. In weiterer Folge wurden Matlab®-Files für diese Modelle erstellt, um eine Simulation der Modelle durchführen zu können.

Um zu überprüfen, wie gut die gefundenen Modelle experimentelle Daten beschreiben können, wurde eine Validierung mit Literaturdaten durchgeführt. Dabei wurde gezeigt, dass alle drei Modelle gute Übereinstimmung mit Daten aus der Literatur aufweisen. So konnten mit Modell 1, das die Nichtidealität der Gasphase berücksichtigt, bei der Beschreibung einer Mischung aus zwei Komponenten eine durchschnittliche Abweichungen zwischen 1,16 bis 2,8 % erreicht werden. Modell 3 erreichte diese experimentellen Daten sogar mit einer Genauigkeit von bis zu 0,1 % durchschnittlicher Abweichung. Auch für die Beschreibung von Gemischen aus vier Komponenten wurde eine Validierung durchgeführt. Aufgrund der Tatsache, dass dafür nur Grafiken zur Verfügung standen, konnte die Genauigkeit lediglich qualitativ überprüft werden. Dies ergab, dass wie oben erwähnt, alle drei Modelle sehr gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten aufweisen.

Im Zuge der Literaturstudie wurden auch einige Membranen gefunden, die eine Beschreibung der Trennung von Wasserstoff und leichten Kohlenwasserstoffen ermöglichen. Es wurden insgesamt 10 Membranen für 5 Kombinationen aus Wasserstoff, Methan, Ethan und Ethen gefunden. Um zu überprüfen, inwieweit ein industrieller Einsatz der Membranen möglich ist, wurden die Eingangsströme in die Membran dem zu trennenden Strom in der Ethylenanlage der OMV angepasst. Dazu wurden Druck, Temperatur sowie die Molenströme von Wasserstoff, Methan, Ethan und Ethen, wie sie in der Anlage vorherrschen, verwendet. Die Trennung dieser Mischungen fiel sehr unterschiedlich aus. So war es einerseits möglich, bei einer Membranfläche von 20.000 m<sup>2</sup> Ethen von Ethan mit einer Reinheit von über 99 mol % abzutrennen, und dabei über 85 % des im Feedstrom enthaltenen Ethen ins Permeat überzuführen. Andererseits wurde für die Trennung von Wasserstoff und Methan eine Membran berechnet, die bei einer Fläche von 25.000.000 m<sup>2</sup> eine Reinheit von Wasserstoff im Permeat von 86 mol % erreichte, gleichzeitig aber nur 16 % des im Feed enthaltenen Wasserstoffs auch in dieses gelangten.

Abschließend wurde die Drucksensibilität der Trennung anhand der Variation von Feeddruck sowie des Druckverhältnisses von Feed- zu Permeatdruck exemplarisch für eine Membran durchgeführt. Dazu wurde bei gleichem konstantem Druckverhältnis der Feeddruck von 32,53 bar auf 20 bar reduziert. Außerdem wurde bei gleichem Feeddruck das Druckverhältnis von 2,5 auf 4 erhöht. Die Ergebnisse zeigten, dass mit niedrigerem Feeddruck die Permeatkonzentration der schneller permeierenden Komponente größer wird. Bei erhöhtem Druckverhältnis konnte mit zunehmender Membranfläche beobachtet werden, dass die Permeatkonzentration unter die Werte mit dem Ausgangsdruckverhältnis sank.

## 6 Ausblick

Diese Arbeit ist als Grundlage für weitere Arbeiten auf dem Gebiet der Trennung von Wasserstoff und leichten Kohlenwasserstoffen mittels Membranverfahren zu sehen. Es sind noch weitere Arbeiten notwendig, um das Potential der Membrantrennung in diesem Bereich voll erkennen und ausschöpfen zu können.

Anknüpfend an diese Arbeit wäre es notwendig, den Berechnungsalgorithmus für die Beschreibung der Mischungen stabiler zu machen. Besonders die Beschreibung von Mehrstoffgemischen unter Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase mit Modell 1 weist Optimierungspotential auf, da der Algorithmus in einzelnen Fällen keine Ergebnisse erzielte. Vor allem bei hohen Konzentrationen ist es derzeit nicht möglich, eine Membrantrennung mit Fugazitätskoeffizienten zu beschreiben. Auch für Modell 2 gilt es eine Verbesserung der Stabilität zu erreichen, da die Beschreibung von drei Komponenten-Gemischen oftmals als problematisch erwies.

Weitere wichtige Schritte wären, die verschiedenen Einflüsse auf die Trennung im Allgemeinen sowie auf die Permeanzen im Speziellen zu untersuchen. Wie in der Arbeit gezeigt, hat die Variation des Feeddruckes bzw. des Druckverhältnisses große Auswirkungen auf die Trennung. Anhand der Literaturdaten, die in dieser Arbeit zusammengestellt wurden, ist ersichtlich, dass der Druck auch Einfluss auf die Permeanz an sich hat, was viele Möglichkeiten eröffnet, aber auch Probleme mit sich bringt. Selbiges gilt auch für das Verhältnis von Feedstrom zu Membranfläche. Auch hier ist anhand der Literatur erkennbar, dass ein Einfluss besteht. Die vorhandenen Daten waren allerdings nicht aussagekräftig genug, um diesen Einfluss zu quantifizieren. Die Daten aus der Literatur zeigen auch, dass die Konzentration Einfluss auf die Permeanzen der einzelnen Komponenten hat. Dies macht die Beschreibung ungleich komplizierter, da in jedem Teilschritt die Permeanz neu berechnet werden muss. Um diese Einflussfaktoren in die Berechnung der Membrantrennung einbeziehen zu können, ist es notwendig, weitere Messdaten einzubinden und diese gegebenenfalls auch in Laborexperimenten zu ermitteln.

Auch eine Validierung der Ergebnisse der Membrantrennung mittels Membranen mit flüssigem Carrier, die bei der Trennung von Ethen und Ethan eingesetzt wurden, durch Vergleich mit experimentellen Daten wäre wichtig, um zu verifizieren, dass diese Art der Trennung tatsächlich so überzeugende Ergebnisse bringt wie in dieser Arbeit gezeigt wurde.

Außerdem ist, wie in dieser Arbeit ersichtlich, die Menge der für diese Trennung verwendbaren Membranen sehr überschaubar. Auch hier wäre es sinnvoll, die Literaturstudie zu vertiefen oder im Rahmen von Industrieprojekten neue Membranen

zu entwickeln, die auf die Trennung von Wasserstoff, Methan, Ethan und Ethen zugeschnitten sind.

## 7 Glossar

**Anreicherung:** Verhältnis von Permeatkonzentration  $y_{\omega,i}$  zu Feedkonzentration  $x_{\alpha,i}$ .

**Permeabilität:** So werden Werte bezeichnet, die ein Maß für die Geschwindigkeit einer Komponente durch die Membran darstellen. Die Einheit kann äußert unterschiedlich gewählt sein (siehe Formel 7-1).

$$[Q_i] = \frac{\text{Menge an } i \text{ (Volumen, Masse, Stoffmenge)}}{\text{Längeneinheit} * \text{Zeit} * \text{Druck}}$$

Formel 7-1: Darstellung der Permeabilität der Komponente i

**Intrinsische Permeabilität:** In manchen Fällen Bezeichnung für jene Permeabilitäten, die in [Barrer]<sup>5</sup> angegeben sind. Dies ist aber nur ein Spezialfall der Permeabilität, die in Formel 7-1 dargestellt wird.

**Permeanz:** Wichtiger Vergleichswert zwischen verschiedenen Membranen. Dabei wird die Permeabilität auf die Dicke der Membran bezogen.

**Permeat:** Das Permeat bezeichnet jenen Strom, der nach Übertritt durch die Membran aus dem Membranmodul abgezogen wird.

**Permeation:** Vorgang des Übertretens einer Komponente über die Membran

**Permeationsrate:** Geschwindigkeit, mit der die Permeation einer Komponente stattfindet

**Pervaporation:** Ein Membrantrennverfahren, bei dem der Feed dem Membranmodul flüssig zugeführt wird und über die Membran verdampft. Das Permeat ist daher dampfförmig.

**Recovery:** Als Recovery wird jener Anteil einer Komponente am Feed bezeichnet, der ins Permeat übertritt.

$$\text{Recovery}_i = \frac{V_{\omega} * y_{\omega,i}}{F_{\alpha} * x_{\alpha,i}} * 100 [\%]$$

Formel 7-2: Definition der Recovery

---

<sup>5</sup> 1 Barrer =  $10^{-10} \text{ cm}^3_{\text{N}} \text{ cm}/(\text{cm}^2 \text{ s cmHg}) = 7,6 \cdot 10^{-18} \text{ m}^3_{\text{N}} \text{ m}/(\text{m}^2 \text{ s Pa})$

**Retentat:** Dies bezeichnet jenen Strom, der nicht durch die Membran tritt und aus dem Membranmodul austritt.

**Selektivität  $\alpha$ :** Diese bezeichnet die Fähigkeit einer Membran, zwei Komponenten voneinander zu trennen. Der Zusammenhang zwischen der Selektivität und den Permeanzen ist in Formel 7-3 dargestellt.

$$\alpha_{ij} = \frac{R_i}{R_j}$$

Formel 7-3: Beispiel für die Darstellung der Selektivität über die Permeanzen

**Stagecut:** Bezeichnet den Anteil des Permeatstroms am Feed

$$Stagecut = \frac{V_{\omega}}{F_{\alpha}} * 100 [\%]$$

Formel 7-4: Definition des Stagecut

## 8 Literaturverzeichnis

- [1] Baker RW. Membrane technology and applications. 3rd ed. Chichester: Wiley; 2012.
- [2] Kraume M. Transportvorgänge in der Verfahrenstechnik Grundlagen und apparative Umsetzungen. 2012.
- [3] Rautenbach R, Melin T. Membranverfahren : Grundlagen der Modul- und Anlagenauslegung. 3. Auflage ed. Berlin [u.a.]: Springer; 2007.
- [4] Brunetti A, Scura F, Barbieri G, Drioli E. Membrane technologies for CO<sub>2</sub> separation. J Membr Sci 2010 9/1;359(1–2):115-125.
- [5] Coker DT, Freeman BD, Fleming GK. Modeling multicomponent gas separation using hollow-fiber membrane contactors. AIChE J 1998;44(6):1289-1302.
- [6] Baker RW, Updated by Staff. Membrane Technology. Kirk-Othmer Encyclopedia of Chemical Technology: John Wiley & Sons, Inc.; 2005.
- [7] Fattah KA, Hamam SM, Al-Enezi G, Ettoueny HM, Hughes R. A nonideal model for analysis of gas separation permeators. J Membr Sci 1992 1/15;65(3):247-257.
- [8] Pan CY. Gas Separation by High-Flux, Asymmetric Hollow-Fiber Membrane. AIChE J 1986;32(12):2020-2027.
- [9] Kaldis SP, Kapantaidakis GC, Sakellariopoulos GP. Simulation of multicomponent gas separation in a hollow fiber membrane by orthogonal collocation — hydrogen recovery from refinery gases. J Membr Sci 2000 7/10;173(1):61-71.
- [10] Lim SP, Tan X, Li K. Gas/vapour separation using membranes:: Effect of pressure drop in lumen of hollow fibres. Chemical Engineering Science 2000 4/7;55(14):2641-2652.
- [11] Rautenbach R, Dahm W. Simplified calculation of gas-permeation hollow-fiber modules for the separation of binary mixtures. J Membr Sci 1986 9/15;28(3):319-327.

- [12] Smith SW, Hall CK, Freeman BD, Rautenbach R. Corrections for analytical gas-permeation models for separation of binary gas mixtures using membrane modules. *J Membr Sci* 1996 9/18;118(2):289-294.
- [13] Poling BE, Prausnitz JM, O'Connell JP. *Properties of Gases and Liquids* (5th Edition). 2001.
- [14] Hertäg L, Bux H, Caro J, Chmelik C, Remsungnen T, Knauth M, et al. Diffusion of CH<sub>4</sub> and H<sub>2</sub> in ZIF-8. *J Membr Sci* 2011 7/15;377(1–2):36-41.
- [15] Casado-Coterillo C, Soto J, T. Jimaré M, Valencia S, Corma A, Téllez C, et al. Preparation and characterization of ITQ-29/polysulfone mixed-matrix membranes for gas separation: Effect of zeolite composition and crystal size. *Chemical Engineering Science* 2012 5/7;73(0):116-122.
- [16] Gorgojo P, Uriel S, Téllez C, Coronas J. Development of mixed matrix membranes based on zeolite Nu-6(2) for gas separation. *Microporous and Mesoporous Materials* 2008 10/1;115(1–2):85-92.
- [17] Pan Y, Wang B, Lai Z. Synthesis of ceramic hollow fiber supported zeolitic imidazolate framework-8 (ZIF-8) membranes with high hydrogen permeability. *J Membr Sci* 2012 12/1;421–422(0):292-298.
- [18] Teramoto M, Takeuchi N, Maki T, Matsuyama H. Ethylene/ethane separation by facilitated transport membrane accompanied by permeation of aqueous silver nitrate solution. *Separation and Purification Technology* 2002 8;28(2):117-124.
- [19] Teramoto M, Shimizu S, Matsuyama H, Matsumiya N. Ethylene/ethane separation and concentration by hollow fiber facilitated transport membrane module with permeation of silver nitrate solution. *Separation and Purification Technology* 2005 7;44(1):19-29.
- [20] Nymeijer K, Visser T, Assen R, Wessling M. Super selective membranes in gas–liquid membrane contactors for olefin/paraffin separation. *J Membr Sci* 2004 3/15;232(1–2):107-114.
- [21] Dong J, Lin YS, Liu W. Multicomponent hydrogen/hydrocarbon separation by MFI-type zeolite membranes. *AIChE J* 2000;46(10):1957-1966.

- [22] Bux H, Liang F, Li Y, Cravillon J, Wiebcke M, Caro J. Zeolitic Imidazolate Framework Membrane with Molecular Sieving Properties by Microwave-Assisted Solvothermal Synthesis. *J Am Chem Soc* 2009 11/11; 2013/03;131(44):16000-16001.
- [23] Hedin N, DeMartin GJ, Strohmaier KG, Reyes SC. PFG NMR self-diffusion of propylene in ITQ-29, CaA and NaCaA: Window size and cation effects. *Microporous and Mesoporous Materials* 2007 1/5;98(1–3):182-188.
- [24] Baerlocher C, McCusker LB. Database of zeolite structures. 2007; Available at: <http://www.iza-structure.org/databases/>, 2013.
- [25] Faiz R, Li K. Olefin/paraffin separation using membrane based facilitated transport/chemical absorption techniques. *Chemical Engineering Science* 2012 5/7;73(0):261-284.
- [26] Wang Y, Wang T, Su Y, Peng F, Wu H, Jiang Z. Protein-adsorption-resistance and permeation property of polyethersulfone and soybean phosphatidylcholine blend ultrafiltration membranes. *J Membr Sci* 2006 2/15;270(1–2):108-114.
- [27] Shahsavand A, Chenar MP. Neural networks modeling of hollow fiber membrane processes. *J Membr Sci* 2007 7/5;297(1–2):59-73.
- [28] Aguilar-Vega M, Paul DR. Gas transport properties of polyphenylene ethers. *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics* 1993;31(11):1577-1589.
- [29] Peng D, Robinson DB. Two and three phase equilibrium calculations for systems containing water. *The Canadian Journal of Chemical Engineering* 1976;54(5):595-599.

## 9 Abkürzungsverzeichnis

### Abkürzungen

Formelzeichen	Beschreibung	Einheit
$\alpha_{ij}$	Selektivität $R_i/R_j$	[-]
$\gamma$	Druckverhältnis $P_2/P_1$	[-]
$\varphi$	Fugazitätskoeffizient	[-]
$\kappa$	Konstante in Druckherleitung	[N/m <sup>5</sup> ]
$\mu$	dynamische Viskosität	[Pa s]
$A$	Flächenvariable der Membran	[m <sup>2</sup> ]
$A_{\text{mem}}$	Gesamtfläche der Membran	[m <sup>2</sup> ]
$B$	Breite der Membran	[m]
$C_1$	Integrationskonstante	[Pa <sup>2</sup> ]
$d$	Durchmesser/Dicke der Membran	[m]
$D$	Durchmesser der Hohlfaser	[m]
$f$	Fugazität	[bar]; [kPa]
$F$	Strom auf der Feedseite des Membranmoduls	[mol/s] oder [m <sup>3</sup> /s]
$\bar{F}$	lokaler Strom auf der Feedseite auf den Feedstrom bezogen	[-]
$K$	Konstante	[-]
$N$	Strom über die Membran	[mol/s] oder [m <sup>3</sup> /s]
$N_F$	Anzahl der Hohlfasern im Modul	[-]
$P$	Druck	[bar]; [Pa]; [kPa]
$Q_i$	Permeabilität der Komponente $i$	[mol/s m Pa]; [m <sup>3</sup> /day m kPa]; [mol/s m bar]
$R_i$	Permeanz der Komponente $i$	[mol/s m <sup>2</sup> Pa]; [m <sup>3</sup> /day m <sup>2</sup> kPa]; [mol/s m <sup>2</sup> bar]
$R$	(ohne Index) allgemeine Gaskonstante	[J/mol K]
$S$	dimensionslose Membranfläche	[-]
$T$	Temperatur	[K]
$V$	Permeatstrom	[mol/s] oder [m <sup>3</sup> /s]
$\bar{V}$	lokaler Permeatstrom auf den Feedstrom bezogen	[-]
$x$	Molanteil auf der Feedseite des Membranmoduls	[mol/mol]
$y$	Molanteil auf der Permeatseite des Membranmoduls	[mol/mol]
$y_o$	Summe der Verhältnisse der Molanteile im Permeat zur Selektivität $\alpha_{ij}$	[-]
$z$	Längenvariable	[m]
$\bar{z}$	auf die Modullänge bezogene Längenvariable $z$	[-]

## Indizes

---

<b>1, 2, 3, 4</b>	Nummer der Komponente in der Trennung
<b>1</b>	1 für feedseitig
<b>2</b>	2 für permeatseitig
<b><math>\alpha</math></b>	Eintritt in das Membranmodul
<b><math>\omega</math></b>	Austritt aus dem Membranmodul
<b>B</b>	berechneter Wert
<b>i</b>	Eigenschaft der Komponente i Innen-
<b>k</b>	kritisch
<b>L</b>	Literaturwert
<b>o</b>	Außen-
<b>P</b>	Partikel/Permeat

---

## 10 Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1-1: Einteilung der druckgetriebenen Membranverfahren [3] .....	1
Abbildung 3-1: Membranmodul .....	6
Abbildung 3-2: Beispiel eines Hohlfaser-Membranmoduls [5] .....	7
Abbildung 3-3: Beispiel für ein Wickelmodul [6] .....	7
Abbildung 3-4: Einteilung von Membranen [3] .....	9
Abbildung 3-5: Schematische Darstellung eines Elektrodialysesystems [1] .....	11
Abbildung 3-6: Gesamtbilanz um Membranmodul .....	17
Abbildung 3-7: Schematische Darstellung des Trennprozesses .....	19
Abbildung 3-8: Darstellung des differentiellen Bilanzgebietes um die Membran .....	22
Abbildung 3-9: Darstellung des differentiellen Bilanzgebietes um die Membran .....	32
Abbildung 4-1: Schematische Darstellung einer Pore in ZIF-8 [14] .....	43
Abbildung 4-2: Unterschied zwischen Aluminium freiem ITQ-29 (links) und LTA (rechts) [23] .....	44
Abbildung 4-3: Netzwerkaufbau von Nu-6(2) [24] .....	45
Abbildung 4-4: Poly(Ether Sulfon) [26] .....	46
Abbildung 4-5: Darstellung von sulfoniertem Poly (Ether Ether Keton) [20] .....	46
Abbildung 4-6: Schematische Darstellung des Absorber Desorber Systems zur Abtrennung von Ethen [20] .....	47
Abbildung 4-7: Verlauf der Perematkonzentration von Wasserstoff bei der Beschreibung eines 4-Stoffgemisches mit Modell 2 .....	54
Abbildung 4-8: Strukturformel von Poly-Phenylene Oxid [28] .....	56
Abbildung 4-9: Normalverteilung der Abweichungen der Fehler von $y_{\omega,CO_2}$ (CPI-Membran) .....	65
Abbildung 4-10: Normalverteilung der Abweichungen der Fehler von $x_{\omega,CO_2}$ (CPI-Membran) .....	65
Abbildung 4-11: Normalverteilung der Abweichungen der Fehler vom Literaturwert des Stagecut (CPI-Membran) .....	66
Abbildung 4-12: Normalverteilung der Abweichungen der Fehler von $y_{\omega,CO_2}$ (PPO-Membran) .....	66
Abbildung 4-13: Normalverteilung der Abweichungen der Fehler von $x_{\omega,CO_2}$ (PPO-Membran) .....	67
Abbildung 4-14: Normalverteilung der Abweichungen der Fehler vom Literaturwert des Stagecut (PPO-Membran) .....	67
Abbildung 4-15: Verlauf der Konzentration von $H_2$ im Permeat über den Stagecut im Vergleich zu jenem in der Quelle [8] berechnet mit Modell 1 OHNE Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase .....	69
Abbildung 4-16: Verlauf der Konzentration von $H_2$ im Permeat über den Stagecut im Vergleich zu jenem in der Quelle [8] berechnet mit Modell 2 .....	71

Abbildung 4-17: Verlauf der Konzentration von H <sub>2</sub> im Permeat über den Stagecut im Vergleich zu jenem in der Quelle [8] berechnet mit Modell 3 .....	72
Abbildung 4-18: Vergleich der 3 Prozessvarianten.....	94
Abbildung 13-1: Permeatkonzentration von Wasserstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 1 ideal .....	125
Abbildung 13-2: Permeatkonzentration von Stickstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 1 ideal .....	125
Abbildung 13-3: Permeatkonzentration von Methan über den Stagecut berechnet mit Modell 1 ideal .....	126
Abbildung 13-4: Permeatkonzentration von Argon über den Stagecut berechnet mit Modell 1 ideal .....	126
Abbildung 13-5: Recovery von Wasserstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 1 ideal.....	127
Abbildung 13-6: Permeatkonzentration von Wasserstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 2.....	128
Abbildung 13-7: Permeatkonzentration von Stickstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 2 .....	128
Abbildung 13-8: Permeatkonzentration von Methan über den Stagecut berechnet mit Modell 2 .....	129
Abbildung 13-9: Permeatkonzentration von Argon über den Stagecut berechnet mit Modell 2 .....	129
Abbildung 13-10: Recovery von Wasserstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 2 .....	130
Abbildung 13-11: Permeatkonzentration von Wasserstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 3.....	131
Abbildung 13-12: Permeatkonzentration von Stickstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 3.....	131
Abbildung 13-13: Permeatkonzentration von Methan über den Stagecut berechnet mit Modell 3 .....	132
Abbildung 13-14: Permeatkonzentration von Argon über den Stagecut berechnet mit Modell 3 .....	132
Abbildung 13-15: Recovery von Wasserstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 3 .....	133

## 11 Formelverzeichnis

Formel 3-1: Gesamtbilanz um das Membranmodul.....	16
Formel 3-2: Komponentenbilanz um das Membranmodul .....	16
Formel 3-3: Darstellung des Flusses von Komponente 1 über die Membran [7].....	18
Formel 3-4: Fluss der Komponente 1 in Abhängigkeit von Molanteil und Druck in der jeweiligen Phase [7] .....	18
Formel 3-5: Fluss der Komponente 1 über die Membran unter Einbeziehung der Nichtidealität [7] .....	18
Formel 3-6: Differenzieller Fluss über die Membran [7] .....	19
Formel 3-7: Differenzieller Strom über die Membran in Abhängigkeit von den Molanteilen, Drücken und Fugazitätskoeffizienten der jeweiligen Phase [7].....	19
Formel 3-8: Zweite Gleichung zur Beschreibung der Membrantrennung [7] .....	20
Formel 3-9: Zweite Gleichung zur Beschreibung der Membrantrennung für n Komponenten (i von 2 bis n).....	20
Formel 3-10:Zusammenhang Änderung von Feedstrom und Feedkonzentration mit der Permeatkonzentration.....	22
Formel 3-11: Gesamtbilanz um differenzielles Flächenelement der Membran .....	22
Formel 3-12: Änderung von Feedstrom und Konzentration von Komponenten i über differenzielles Flächenelement.....	22
Formel 3-13: Dimensionslose Darstellung der Änderung des Feedstromes multipliziert mit der Konzentration der Komponente i im übertretenden Strom.....	23
Formel 3-14: Umformung von Formel 3-13.....	23
Formel 3-15: Dimensionslose Membranfläche .....	24
Formel 3-16: Formel 3-10 in Formel 3-13 eingesetzt .....	24
Formel 3-17: Summe von Formel 3-16 über alle Komponenten.....	24
Formel 3-18: andere Schreibweise für Formel 3-17 .....	24
Formel 3-19: weitere Vereinfachung von Formel 3-17 .....	25
Formel 3-20: Umformung von Formel 3-19.....	25
Formel 3-21: Definition für differenziellen, genormten Strom .....	25
Formel 3-22: Definition von $y_o$ .....	25
Formel 3-23: Zusammenfassung von Formel 3-14 und Formel 3-21 .....	26
Formel 3-24: rechte Seite von Formel 3-23 mit $y_i$ multipliziert.....	26
Formel 3-25: Definition von $y_i$ .....	26
Formel 3-26: Hagen-Poiseuille-Gleichung für nichtpermeable Wände eines Rohres [10] .....	26
Formel 3-27: Zusammenfassung der Konstanten.....	27
Formel 3-28: Formel 3-26 nach Variablentrennung und Einsetzen von $\kappa$ .....	27
Formel 3-29: Ergebnis der unbestimmten Integration von Formel 3-28 .....	27
Formel 3-30: Variation von z.....	27

Formel 3-31: Differenziale nach differenzieller Variation von $z$ .....	28
Formel 3-32: Permeatseitiger Druckverlust mittels Hagen-Poiseuille-Gleichung beschrieben .....	28
Formel 3-33: Formel 3-10 in die linke Seite von Formel 3-23 eingesetzt.....	28
Formel 3-34: Anwendung der Produktregel auf Formel 3-33 .....	28
Formel 3-35: Linke Seite von Formel 3-23 in Formel 3-34 eingesetzt.....	29
Formel 3-36: Differenzialgleichung zur Beschreibung des Konzentrationsverlaufs im Feed über die dimensionslose Fläche.....	29
Formel 3-37: Summe der $x_i$ .....	29
Formel 3-38: Summe der $y_i$ .....	29
Formel 3-39: dimensionslos gemachte Formel 3-32 .....	30
Formel 3-40: alle Konstanten auf die rechte Seite .....	30
Formel 3-41: Zusammenfassung der Konstanten und Dimensionslosmachen des Permeatstroms .....	30
Formel 3-42: Definition der Konstanten $K$ .....	30
Formel 3-43: Zusammenhang von Änderung des Feedstromes und Fluss über die Membran .....	32
Formel 3-44: Gesamter Fluss über ein differenzielles Flächenelement der Membran .	32
Formel 3-45: Differenzialgleichung für die Änderung des Feed über die Membranfläche .....	33
Formel 3-46: $P_1$ und $R1$ herausgehoben.....	33
Formel 3-47: Dimensionslose Darstellung des Flusses über die Membranlänge.....	33
Formel 3-48: Dimensionslose Darstellung der Laufvariable $z$ .....	33
Formel 3-49: Differenzielles Flächenelement in Abhängigkeit der Laufvariable $z$ dargestellt .....	34
Formel 3-50: Zusammenfassung von Formel 3-48 und Formel 3-49 .....	34
Formel 3-51: Dimensionslose Darstellung des Flusses über die differenzielle Membranlänge nach Zusammenfassung der Konstanten.....	34
Formel 3-52: Zusammenfassung aller Konstanten .....	34
Formel 3-53: Komponentenbilanz um differenzielles Flächenelement der Membran..	34
Formel 3-54: Vereinfachte Form von Formel 3-53 .....	35
Formel 3-55: differenzieller Fluss von Komponente 1 über die Membran .....	35
Formel 3-56: Einsetzen von Formel 3-46 und Formel 3-55 in Formel 3-54.....	35
Formel 3-57: Zusammenfassung der Konstanten zu $K$ .....	35
Formel 3-58: Zweite Differenzialgleichung von Modell 3.....	35
Formel 3-59: Änderung des Feed über ein differenzielles Flächenelement der Membran .....	36
Formel 3-60: Dimensionslose Darstellung der Änderung des Feedstromes über ein differenzielles Längenelement der Membran nach Zusammenfassung der Konstanten für 4 Komponenten.....	36

Formel 3-61: Komponentenbilanz um differenzielles Flächenelement der Membran für Komponente i .....	36
Formel 3-62: Vereinfachte Form von Formel 3-61 .....	37
Formel 3-63: differentieller Fluss von Komponente i über die Membran .....	37
Formel 3-64: Formel 3-59 und Formel 3-63 in Formel 3-62 eingefügt.....	37
Formel 3-65: Formel 3-64 umgeformt, zusammengefasst und dimensionslos gemacht für Komponente 1.....	37
Formel 3-66: Formel 3-64 umgeformt, zusammengefasst und dimensionslos gemacht für Komponente i.....	38
Formel 4-1: Formel 3-7 Differenzialquotienten in Differenzenquotienten umgeformt	48
Formel 4-2: Einsetzen der Gesamtbilanz in Formel 4-1 .....	48
Formel 4-3: Formel 3-8 für die Berechnung indiziert .....	48
Formel 4-4: Formel 3-9 für Berechnung von n Komponenten (j von 2 bis n) indiziert ..	49
Formel 4-5: 1. Gleichung von Modell 2 (j von 1 bis n-1 ).....	49
Formel 4-6: 2. Gleichung von Modell 2 (j von 1 bis n-1 ).....	50
Formel 4-7: 3. Gleichung von Modell 2 zur Beschreibung des Stromes auf der Feedseite der Membran.....	50
Formel 4-8: 4. Gleichung von Modell 2 zur Beschreibung des permeatseitigen Druckverlustes .....	50
Formel 4-9: 5. Gleichung von Modell 2 zur Berechnung von $y_o$ .....	50
Formel 4-10: Darstellung der Änderung des Flusses auf der Feedseite der Membran .	51
Formel 4-11: Darstellung der Änderung der Konzentration auf der Feedseite der Membran .....	51
Formel 4-12: Darstellung der Änderung des Flusses auf der Feedseite der Membran für vier Komponenten .....	51
Formel 4-13: Darstellung der Änderung der Konzentration von Komponente 1 auf der Feedseite der Membran .....	52
Formel 4-14: Darstellung der Änderung der Konzentration von Komponente j auf der Feedseite der Membran, wobei j von 2 bis n-1.....	52
Formel 4-15: Berechnung der Abweichung der Permeatkonzentration vom Literaturwert.....	58
Formel 7-1: Darstellung der Permeabilität der Komponente i.....	99
Formel 7-2: Definition der Recovery .....	99
Formel 7-3: Beispiel für die Darstellung der Selektivität über die Permeanzen .....	100
Formel 7-4: Definition des Stagecut .....	100

## 12 Tabellenverzeichnis

Tabelle 3-1: Liste der wichtigsten Membranverfahren inklusive Membrantyp, Phasen, Triebkraft und Anwendungsgebiet [3], [1] .....	10
Tabelle 3-2: Gleichungssystem für Modell 1 .....	38
Tabelle 3-3: Gleichungssystem für Modell 2 .....	39
Tabelle 3-4: Gleichungssystem für Modell 3 für 2 Komponenten.....	40
Tabelle 3-5: Gleichungssystem für Modell 3 zur Beschreibung von Mehrstoffgemischen .....	40
Tabelle 4-1: Siedetemperaturen der zu trennenden Spezies bei atmosphärischen Bedingungen (P = 1,01325 bar) [13] .....	41
Tabelle 4-2: Liste der Membranen, die für Simulationen der Trennung herangezogen wurden.....	42
Tabelle 4-3: Durchschnittliche Abweichung [%] bei der Beschreibung der Trennung einer zwei Komponentenmischung mittels CPI-Membran mit Modell 3.....	55
Tabelle 4-4: Membranparameter der zur Validierung von Gemischen aus 2 Komponenten verwendeten Membranen [27] .....	56
Tabelle 4-5: Validierungsdaten der CPI-Membran .....	57
Tabelle 4-6: Validierungsdaten der PPO-Membran.....	57
Tabelle 4-7: Abweichungen von den Literaturwerten unter Verwendung von Modell 1 OHNE Berücksichtigung der Realität der Gasphase (CPI-Membran).....	59
Tabelle 4-8: Abweichungen von den Literaturwerten unter Verwendung von Modell 1 OHNE Berücksichtigung der Realität der Gasphase (PPO-Membran) .....	60
Tabelle 4-9: Abweichungen von den Literaturwerten unter Verwendung von Modell 1 MIT Berücksichtigung der Realität der Gasphase (CPI-Membran).....	61
Tabelle 4-10: Abweichungen von den Literaturwerten unter Verwendung von Modell 1 MIT Berücksichtigung der Realität der Gasphase (PPO-Membran) .....	62
Tabelle 4-11: Abweichungen von den Literaturwerten unter Verwendung von Modell 3 (CPI-Membran) .....	63
Tabelle 4-12: Abweichungen von den Literaturwerten unter Verwendung von Modell 3 (PPO-Membran).....	64
Tabelle 4-13: Membranparameter sowie Temperatur und Feed- sowie Permeatdruck [8].....	68
Tabelle 4-14: Konzentration und Permeanzen der Komponenten [8] .....	68
Tabelle 4-15: Feed und zugehöriger Stagecut des jeweiligen Modells .....	73
Tabelle 4-16: Molenströme der Komponenten in der Anlage .....	74
Tabelle 4-17: Prozessparameter .....	75
Tabelle 4-18: Variation von Feeddruck und Druckverhältnis .....	75
Tabelle 4-19: Ergebnisse der Simulation von Membran 1 mit Modell 3.....	76

Tabelle 4-20: Ergebnisse der Simulation von Membran 2 mit Modell 3, bessere Selektivität und Permeanz .....	77
Tabelle 4-21: Ergebnisse der Simulation von Membran 2 mit Modell 3, schlechtere Selektivität und Permeanz .....	78
Tabelle 4-22: Ergebnisse der Simulation von Membran 3 mit Modell 3 .....	79
Tabelle 4-23: Ergebnisse der Simulation von Membran 4 mit Modell 3 .....	80
Tabelle 4-24: Ergebnisse der Simulation von Membran 5 mit Modell 3 .....	81
Tabelle 4-25: Ergebnisse der Simulation von Membran 6a mit Modell 3, bessere Selektivität und Permeanz .....	82
Tabelle 4-26: Ergebnisse der Simulation von Membran 6a mit Modell 3, schlechtere Selektivität und Permeanz .....	82
Tabelle 4-27: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit Modell 3, bessere Selektivität und Permeanz .....	84
Tabelle 4-28: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit Modell 3, schlechtere Selektivität und Permeanz .....	84
Tabelle 4-29: Ergebnisse der Simulation von Membran 7 mit Modell 3 .....	85
Tabelle 4-30: Ergebnisse der Simulation von Membran 8 mit Modell 3 .....	86
Tabelle 4-31: Ergebnisse der Simulation von Membran 9 mit Modell 3 .....	87
Tabelle 4-32: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 3, beste Kombination aus Selektivität und Permeanz .....	88
Tabelle 4-33: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 3, schlechteste Kombination aus Selektivität und Permeanz .....	88
Tabelle 4-34: Ergebnisse der Simulation von Membran 10 mit Modell 3 .....	90
Tabelle 4-35: Membran 6b, Prozessparameter 2a, bessere Selektivität und Permeanz, berechnet mit Modell 3 .....	92
Tabelle 4-36: Membran 6b, Prozessparameter 2a, schlechtere Selektivität und Permeanz, berechnet mit Modell 3 .....	92
Tabelle 4-37: Membran 6b, Prozessparameter 2b, bessere Selektivität und Permeanz, berechnet mit Modell 3 .....	93
Tabelle 4-38: Membran 6b, Prozessparameter 2b, schlechtere Selektivität und Permeanz, berechnet mit Modell 3 .....	93
Tabelle 13-1: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 1 ideal und 100 Teilschritten .....	116
Tabelle 13-2: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 1 ideal und 200 Teilschritten .....	116
Tabelle 13-3: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 1 ideal und 400 Teilschritten .....	117
Tabelle 13-4: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 1 ideal und 100 Teilschritten .....	117

Tabelle 13-5: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 1 ideal und 200 Teilschritten .....	118
Tabelle 13-6: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 1 ideal und 400 Teilschritten .....	118
Tabelle 13-7: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 1 real und 100 Teilschritten .....	119
Tabelle 13-8: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 1 real und 200 Teilschritten .....	119
Tabelle 13-9: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 1 real und 400 Teilschritten .....	120
Tabelle 13-10: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 1 real und 100 Teilschritten .....	120
Tabelle 13-11: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 1 real und 200 Teilschritten .....	121
Tabelle 13-12: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 1 real und 400 Teilschritten .....	121
Tabelle 13-13: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 3 und 100 Teilschritten .....	122
Tabelle 13-14: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 3 und 200 Teilschritten .....	122
Tabelle 13-15: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 3 und 400 Teilschritten .....	123
Tabelle 13-16: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 3 und 100 Teilschritten .....	123
Tabelle 13-17: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 3 und 200 Teilschritten .....	124
Tabelle 13-18: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 3 und 400 Teilschritten .....	124
Tabelle 13-19: Ergebnisse der Simulation von Membran 1 mit Modell 1 ideal .....	134
Tabelle 13-20: Ergebnisse der Simulation von Membran 1 mit Modell 1 real.....	134
Tabelle 13-21: Ergebnisse der Simulation von Membran 1 mit Modell 3.....	134
Tabelle 13-22: Ergebnisse der Simulation von Membran 2 mit Modell 1 ideal (bessere Trennung).....	135
Tabelle 13-23: Ergebnisse der Simulation von Membran 2 mit Modell 1 real (bessere Trennung).....	136
Tabelle 13-24: Ergebnisse der Simulation von Membran 2 mit Modell 3 (bessere Trennung).....	136
Tabelle 13-25: Ergebnisse der Simulation von Membran 2 mit Modell 1 ideal (schlechtere Trennung).....	137

Tabelle 13-26: Ergebnisse der Simulation von Membran 2 mit Modell 1 real (schlechtere Trennung).....	138
Tabelle 13-27: Ergebnisse der Simulation von Membran 2 mit Modell 3 (schlechtere Trennung).....	138
Tabelle 13-28: Ergebnisse der Simulation von Membran 3 mit Modell 1 ideal .....	139
Tabelle 13-29: Ergebnisse der Simulation von Membran 3 mit Modell 1 real.....	139
Tabelle 13-30: Ergebnisse der Simulation von Membran 3 mit Modell 3.....	139
Tabelle 13-31: Ergebnisse der Simulation von Membran 4 mit Modell 1 ideal .....	140
Tabelle 13-32: Ergebnisse der Simulation von Membran 4 mit Modell 1 real.....	140
Tabelle 13-33: Ergebnisse der Simulation von Membran 4 mit Modell 3.....	141
Tabelle 13-34: Ergebnisse der Simulation von Membran 5 mit Modell 1 ideal .....	142
Tabelle 13-35: Ergebnisse der Simulation von Membran 5 mit Modell 3.....	143
Tabelle 13-36: Ergebnisse der Simulation von Membran 6a mit Modell 1 ideal (bessere Trennung).....	144
Tabelle 13-37: Ergebnisse der Simulation von Membran 6a mit Modell 1 real (bessere Trennung).....	144
Tabelle 13-38: Ergebnisse der Simulation von Membran 6a mit Modell 3 (bessere Trennung).....	144
Tabelle 13-39: Ergebnisse der Simulation von Membran 6a mit Modell 1 ideal (schlechtere Trennung).....	145
Tabelle 13-40: Ergebnisse der Simulation von Membran 6a mit Modell 1 real (schlechtere Trennung).....	145
Tabelle 13-41: Ergebnisse der Simulation von Membran 6a mit Modell 3 (schlechtere Trennung).....	145
Tabelle 13-42: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit Modell 1 ideal (bessere Trennung).....	146
Tabelle 13-43: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit Modell 3 (bessere Trennung).....	146
Tabelle 13-44: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit Modell 1 ideal (schlechtere Trennung).....	147
Tabelle 13-45: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit Modell 3 (schlechtere Trennung).....	147
Tabelle 13-46: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Druckverhältnis unter Verwendung von Modell 1 ideal (bessere Trennung) .....	147
Tabelle 13-47: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Druckverhältnis unter Verwendung von Modell 3 (bessere Trennung) .....	148
Tabelle 13-48: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Druckverhältnis unter Verwendung von Modell 1 ideal (schlechtere Trennung) .....	148
Tabelle 13-49: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Druckverhältnis unter Verwendung von Modell 3 (schlechtere Trennung) .....	148

Tabelle 13-50: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Feeddruck unter Verwendung von Modell 1 ideal (bessere Trennung) ..... 149

Tabelle 13-51: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Feeddruck unter Verwendung von Modell 1 real (bessere Trennung) ..... 149

Tabelle 13-52: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Feeddruck unter Verwendung von Modell 3 (bessere Trennung) ..... 149

Tabelle 13-53: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Feeddruck unter Verwendung von Modell 1 ideal (schlechtere Trennung) ..... 150

Tabelle 13-54: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Feeddruck unter Verwendung von Modell 1 real (schlechtere Trennung) ..... 150

Tabelle 13-55: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Feeddruck unter Verwendung von Modell 3 (schlechtere Trennung) ..... 150

Tabelle 13-56: Ergebnisse der Simulation von Membran 7 mit Modell 1 ideal ..... 151

Tabelle 13-57: Ergebnisse der Simulation von Membran 7 mit Modell 3 ..... 151

Tabelle 13-58: Ergebnisse der Simulation von Membran 8 mit Modell 1 ideal ..... 152

Tabelle 13-59: Ergebnisse der Simulation von Membran 8 mit Modell 3 ..... 152

Tabelle 13-60: Ergebnisse der Simulation von Membran 9 mit Modell 1 ideal ..... 153

Tabelle 13-61: Ergebnisse der Simulation von Membran 9 mit Modell 3 ..... 153

Tabelle 13-62: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 1 ideal (bessere Trennung) ..... 154

Tabelle 13-63: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 1 real (bessere Trennung) ..... 154

Tabelle 13-64: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 2 (bessere Trennung) ..... 154

Tabelle 13-65: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 3 (bessere Trennung) ..... 155

Tabelle 13-66: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 1 ideal (schlechtere Trennung) ..... 155

Tabelle 13-67: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 1 real (schlechtere Trennung) ..... 155

Tabelle 13-68: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 3 (schlechtere Trennung) ..... 155

Tabelle 13-69: Ergebnisse der Simulation von Membran 10 mit Modell 1 ideal ..... 156

Tabelle 13-70: Ergebnisse der Simulation von Membran 10 mit Modell 3 ..... 157

## 13 Anhang

### 13.1 Validierung der Modelle

#### 13.1.1 2 Komponenten

##### 13.1.1.1 Modell 1 OHNE Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 100 Teilschritte			Abweichungen 100 Teilschritte [%]			
	$y_{CO_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{CO_2,\omega}$ [mol %]	$y_{CO_2,\omega}$	$x_{CO_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
25,05	28,57	1,12	4,73	0,41	0,11	1,54	0,68
5,1	25,21	5,01	3,93	0,20	0,17	0,29	0,22
2,61	22,04	9,49	3,21	0,24	0,22	0,09	0,18
7,33	47,78	5,24	7,91	0,26	0,21	1,04	0,50
2,97	41,40	11,30	6,00	0,08	0,16	0,01	0,08
1,98	37,61	15,41	4,97	0,41	1,56	0,73	0,90
23,26	85,47	5,35	21,16	0,04	0,05	0,97	0,35
6,34	80,22	15,41	14,47	0,03	0,33	0,71	0,36
2,72	71,09	24,89	9,20	0,18	2,64	1,58	1,47

Tabelle 13-1: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 1 ideal und 100 Teilschritten

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 200 Teilschritte			Abweichungen 200 Teilschritte [%]			
	$y_{CO_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{CO_2,\omega}$ [mol %]	$y_{CO_2,\omega}$	$x_{CO_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
25,05	28,57	1,12	4,73	0,42	0,11	1,53	0,69
5,1	25,19	5,01	3,93	0,25	0,19	0,27	0,24
2,61	22,02	9,49	3,22	0,16	0,15	0,11	0,14
7,33	47,76	5,24	7,91	0,29	0,23	1,08	0,53
2,97	41,37	11,29	6,01	0,15	0,06	0,06	0,09
1,98	37,58	15,40	4,98	0,32	1,39	0,68	0,80
23,26	85,46	5,34	21,16	0,05	0,06	1,02	0,38
6,34	80,20	15,39	14,48	0,06	0,21	0,61	0,29
2,72	71,05	24,86	9,23	0,23	2,29	1,47	1,33

Tabelle 13-2: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 1 ideal und 200 Teilschritten

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 400 Teilschritte			Abweichungen 400 Teilschritte [%]			
	$y_{CO_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{CO_2,\omega}$ [mol %]	$y_{CO_2,\omega}$	$x_{CO_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
<b>25,05</b>	28,57	1,12	4,85	<u>0,42</u>	0,11	<u>1,53</u>	0,69
<b>5,1</b>	25,19	5,01	4,37	0,27	0,20	0,27	0,25
<b>2,61</b>	22,01	9,49	3,91	0,13	0,12	0,12	0,12
<b>7,33</b>	47,75	5,24	8,76	0,31	0,24	1,09	0,55
<b>2,97</b>	41,36	11,29	7,49	0,18	<u>0,01</u>	<u>0,08</u>	<u>0,09</u>
<b>1,98</b>	37,56	15,40	6,75	0,28	1,30	0,66	0,75
<b>23,26</b>	85,45	5,34	22,61	<u>0,05</u>	0,06	1,04	0,39
<b>6,34</b>	80,19	15,38	18,14	0,07	0,15	0,55	0,26
<b>2,72</b>	71,03	24,85	13,86	0,25	<u>2,11</u>	1,41	<u>1,26</u>

Tabelle 13-3: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 1 ideal und 400 Teilschritten

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 100 Teilschritte			Abweichungen 100 Teilschritte [%]			
	$y_{CO_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{CO_2,\omega}$ [mol %]	$y_{CO_2,\omega}$	$x_{CO_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
<b>15</b>	20,90	1,11	4,82	0,35	0,08	1,18	0,54
<b>3,61</b>	19,19	4,55	4,32	<u>0,71</u>	0,18	1,13	0,67
<b>1,75</b>	17,53	9,22	3,73	0,34	0,13	0,19	0,22
<b>4,02</b>	35,51	5,04	8,65	0,21	<u>0,01</u>	0,72	0,31
<b>1,89</b>	32,61	10,28	7,41	<u>0,05</u>	0,09	0,83	0,32
<b>1,31</b>	30,89	14,19	6,55	0,17	0,45	0,64	0,42
<b>7,46</b>	68,28	5,10	22,25	0,10	0,03	<u>0,03</u>	<u>0,05</u>
<b>2,25</b>	63,81	15,02	17,67	0,20	0,27	0,11	0,19
<b>1,33</b>	59,76	23,59	13,75	0,39	<u>1,65</u>	<u>1,25</u>	<u>1,10</u>

Tabelle 13-4: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 1 ideal und 100 Teilschritten

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 200 Teilschritte			Abweichungen 200 Teilschritte [%]			
	$y_{\text{CO}_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{\text{CO}_2,\omega}$ [mol %]	$y_{\text{CO}_2,\omega}$	$x_{\text{CO}_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
15	20,90	1,11	4,82	0,36	0,08	1,18	0,54
3,61	19,18	4,55	4,32	<u>0,68</u>	0,18	1,12	0,66
1,75	17,52	9,22	3,73	0,28	0,10	0,18	0,19
4,02	35,50	5,04	8,65	0,23	<u>0,02</u>	<u>0,00</u>	0,32
1,89	32,59	10,28	7,41	<u>0,10</u>	0,06	0,81	0,32
1,31	30,87	14,19	6,55	0,11	0,38	0,62	0,37
7,46	68,28	5,10	22,25	0,11	0,02	0,01	<u>0,05</u>
2,25	63,78	15,01	17,68	0,16	0,23	0,06	0,15
1,33	59,72	23,58	13,76	0,34	<u>1,52</u>	<u>1,19</u>	<u>1,02</u>

Tabelle 13-5: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 1 ideal und 200 Teilschritten

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 400 Teilschritte			Abweichungen 400 Teilschritte [%]			
	$y_{\text{CO}_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{\text{CO}_2,\omega}$ [mol %]	$y_{\text{CO}_2,\omega}$	$x_{\text{CO}_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
15	20,90	1,11	4,82	0,36	0,08	<u>1,18</u>	0,54
3,61	19,18	4,55	4,32	<u>0,66</u>	0,17	1,12	0,65
1,75	17,52	9,22	3,73	0,25	0,08	0,18	0,17
4,02	35,49	5,04	8,65	0,25	<u>0,02</u>	<u>0,00</u>	0,32
1,89	32,58	10,28	7,41	0,12	0,04	0,80	0,32
1,31	30,86	14,19	6,55	<u>0,07</u>	0,35	0,61	0,34
7,46	68,27	5,10	22,25	0,12	0,02	0,00	<u>0,05</u>
2,25	63,77	15,01	17,68	0,15	0,21	0,04	0,13
1,33	59,71	23,57	13,77	0,31	<u>1,45</u>	1,16	<u>0,97</u>

Tabelle 13-6: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 1 ideal und 400 Teilschritten

## 13.1.1.2 Modell 1 MIT Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 100 Teilschritte			Abweichungen 100 Teilschritte [%]			
	$y_{CO_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{CO_2,\omega}$ [mol %]	$y_{CO_2,\omega}$	$x_{CO_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
<b>25,05</b>	27,82	1,08	4,75	<u>3,02</u>	<u>0,46</u>	1,58	1,68
<b>5,1</b>	24,67	4,88	3,99	2,33	1,66	2,47	2,15
<b>2,61</b>	21,67	9,25	3,30	1,42	2,47	2,59	2,16
<b>7,33</b>	46,94	5,05	8,03	2,00	1,78	4,63	<u>2,80</u>
<b>2,97</b>	40,89	10,96	6,20	1,32	3,11	2,97	2,47
<b>1,98</b>	37,26	15,00	5,19	0,52	2,77	1,95	1,75
<b>23,26</b>	84,97	5,07	21,38	0,62	1,07	<u>6,17</u>	2,62
<b>6,34</b>	79,89	14,82	14,98	0,44	3,22	3,16	2,27
<b>2,72</b>	70,99	24,23	9,77	<u>0,32</u>	<u>3,41</u>	<u>1,12</u>	<u>1,62</u>

Tabelle 13-7: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 1 real und 100 Teilschritten

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 200 Teilschritte			Abweichungen 200 Teilschritte [%]			
	$y_{CO_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{CO_2,\omega}$ [mol %]	$y_{CO_2,\omega}$	$x_{CO_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
<b>25,05</b>	27,82	1,08	4,75	<u>3,05</u>	<u>0,46</u>	1,60	<u>1,70</u>
<b>5,1</b>	24,65	4,88	3,99	2,39	1,68	2,50	2,19
<b>2,61</b>	21,66	9,25	3,30	1,50	2,54	2,62	2,22
<b>7,33</b>	46,92	5,05	8,04	2,04	1,81	4,68	<u>2,84</u>
<b>2,97</b>	40,85	10,96	6,20	1,39	3,22	3,03	2,55
<b>1,98</b>	37,23	14,99	5,20	0,61	2,96	2,01	1,86
<b>23,26</b>	84,96	5,06	21,38	0,63	1,08	<u>6,24</u>	2,65
<b>6,34</b>	79,87	14,80	15,00	0,47	3,34	3,28	2,36
<b>2,72</b>	70,95	24,20	9,80	<u>0,37</u>	<u>3,78</u>	<u>1,24</u>	1,79

Tabelle 13-8: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 1 real und 200 Teilschritten

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 400 Teilschritte			Abweichungen 400 Teilschritte [%]			
	$y_{CO_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{CO_2,\omega}$ [mol %]	$y_{CO_2,\omega}$	$x_{CO_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
<b>25,05</b>	27,81	1,08	4,86	<u>3,06</u>	<u>0,46</u>	1,61	<u>1,71</u>
<b>5,1</b>	24,65	4,87	4,41	2,42	1,69	2,51	2,21
<b>2,61</b>	21,65	9,25	3,97	1,54	2,58	2,64	2,25
<b>7,33</b>	46,91	5,05	8,84	2,07	1,83	4,70	<u>2,86</u>
<b>2,97</b>	40,84	10,95	7,64	1,43	3,27	3,06	2,59
<b>1,98</b>	37,21	14,99	6,92	0,65	3,05	2,04	1,91
<b>23,26</b>	84,96	5,06	22,74	0,64	1,09	<u>6,27</u>	2,67
<b>6,34</b>	79,86	14,79	18,52	0,48	3,40	3,33	2,41
<b>2,72</b>	70,93	24,18	14,38	<u>0,39</u>	<u>3,96</u>	<u>1,30</u>	1,88

Tabelle 13-9: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 1 real und 400 Teilschritten

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 100 Teilschritte			Abweichungen 100 Teilschritte [%]			
	$y_{CO_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{CO_2,\omega}$ [mol %]	$y_{CO_2,\omega}$	$x_{CO_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
<b>15</b>	20,40	1,08	4,83	<u>2,71</u>	<u>0,29</u>	1,49	1,50
<b>3,61</b>	18,78	4,44	4,36	1,40	0,66	<u>1,42</u>	<u>1,16</u>
<b>1,75</b>	17,23	9,00	3,79	1,42	1,59	2,22	1,74
<b>4,02</b>	34,88	4,88	8,72	1,98	0,88	2,31	1,72
<b>1,89</b>	32,12	10,00	7,54	1,53	1,71	1,98	1,74
<b>1,31</b>	30,50	13,82	6,71	1,09	<u>2,11</u>	2,01	1,74
<b>7,46</b>	67,60	4,89	22,39	1,10	0,58	<u>4,08</u>	1,92
<b>2,25</b>	63,31	14,49	18,04	0,59	1,82	3,42	<u>1,94</u>
<b>1,33</b>	59,45	22,88	14,26	<u>0,13</u>	2,06	1,82	1,33

Tabelle 13-10: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 1 real und 100 Teilschritten

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 200 Teilschritte			Abweichungen 200 Teilschritte [%]			
	$y_{CO_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{CO_2,\omega}$ [mol %]	$y_{CO_2,\omega}$	$x_{CO_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
15	20,40	1,08	4,83	<u>2,73</u>	<u>0,29</u>	1,50	1,51
3,61	18,78	4,44	4,36	1,44	0,67	1,44	<u>1,18</u>
1,75	17,22	8,99	3,79	1,48	1,62	2,24	1,78
4,02	34,86	4,88	8,72	2,02	0,89	<u>0,00</u>	1,75
1,89	32,10	10,00	7,55	1,59	1,75	2,01	1,78
1,31	30,48	13,81	6,72	1,15	2,18	2,05	1,79
7,46	67,59	4,89	22,39	1,11	0,59	<u>4,12</u>	1,94
2,25	63,28	14,48	18,05	0,63	1,87	3,48	<u>1,99</u>
1,33	59,41	22,86	14,28	<u>0,18</u>	<u>2,20</u>	1,89	1,42

Tabelle 13-11: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 1 real und 200 Teilschritten

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 400 Teilschritte			Abweichungen 400 Teilschritte [%]			
	$y_{CO_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{CO_2,\omega}$ [mol %]	$y_{CO_2,\omega}$	$x_{CO_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
15	20,40	1,08	4,83	<u>2,74</u>	<u>0,29</u>	1,51	1,52
3,61	18,77	4,43	4,36	1,46	0,68	1,45	<u>1,19</u>
1,75	17,21	8,99	3,79	1,51	1,64	2,25	1,80
4,02	34,86	4,88	8,72	2,03	0,90	<u>0,00</u>	1,76
1,89	32,10	9,99	7,55	1,61	1,77	2,02	1,80
1,31	30,47	13,81	6,72	1,19	2,22	2,07	1,82
7,46	67,59	4,89	22,39	1,12	0,59	<u>4,14</u>	1,95
2,25	63,27	14,47	18,06	0,64	1,89	3,51	<u>2,02</u>
1,33	59,40	22,85	14,29	<u>0,21</u>	<u>2,27</u>	1,93	1,47

Tabelle 13-12: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 1 real und 400 Teilschritten

## 13.1.1.3 Modell 3

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 100 Teilschritte			Abweichungen 100 Teilschritte [%]			
	$Y_{CO_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$X_{CO_2,\omega}$ [mol %]	$Y_{CO_2,\omega}$	$X_{CO_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
<b>25,05</b>	28,57	1,12	4,73	<u>0,41</u>	0,11	1,54	0,69
<b>5,1</b>	25,20	5,01	3,93	0,22	0,17	0,30	0,23
<b>2,61</b>	22,03	9,49	3,21	0,21	0,21	0,07	0,17
<b>7,33</b>	47,77	5,25	7,91	0,28	0,21	1,02	0,50
<b>2,97</b>	41,38	11,30	6,00	0,12	0,15	<u>0,02</u>	<u>0,10</u>
<b>1,98</b>	37,59	15,42	4,97	0,35	1,54	0,77	0,89
<b>23,26</b>	85,44	5,35	21,16	<u>0,07</u>	<u>0,05</u>	0,95	0,36
<b>6,34</b>	80,14	15,43	14,47	0,13	0,31	0,82	0,42
<b>2,72</b>	70,97	24,93	9,20	0,34	<u>2,62</u>	<u>1,76</u>	<u>1,57</u>

Tabelle 13-13: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 3 und 100 Teilschritten

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 200 Teilschritte			Abweichungen 200 Teilschritte [%]			
	$Y_{CO_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$X_{CO_2,\omega}$ [mol %]	$Y_{CO_2,\omega}$	$X_{CO_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
<b>25,05</b>	28,57	1,12	4,73	<u>0,42</u>	0,11	1,53	0,69
<b>5,1</b>	25,19	5,01	3,93	0,26	0,19	0,28	0,24
<b>2,61</b>	22,02	9,49	3,22	0,15	0,15	0,10	0,13
<b>7,33</b>	47,75	5,24	7,91	0,30	0,23	1,07	0,53
<b>2,97</b>	41,36	11,30	6,01	0,17	<u>0,05</u>	<u>0,04</u>	<u>0,09</u>
<b>1,98</b>	37,57	15,41	4,98	0,30	1,38	0,70	0,79
<b>23,26</b>	85,44	5,35	21,16	<u>0,06</u>	0,06	1,01	0,38
<b>6,34</b>	80,16	15,40	14,49	0,11	0,20	0,66	0,32
<b>2,72</b>	71,00	24,88	9,23	0,31	<u>2,28</u>	<u>1,56</u>	<u>1,38</u>

Tabelle 13-14: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 3 und 200 Teilschritten

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 400 Teilschritte			Abweichungen 400 Teilschritte [%]			
	$y_{CO_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{CO_2,\omega}$ [mol %]	$y_{CO_2,\omega}$	$x_{CO_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
<b>25,05</b>	28,57	1,12	4,73	<u>0,43</u>	0,11	<u>1,53</u>	0,69
<b>5,1</b>	25,19	5,01	3,93	0,28	0,20	0,27	0,25
<b>2,61</b>	22,01	9,49	3,22	0,12	0,12	0,11	0,12
<b>7,33</b>	47,75	5,24	7,91	0,32	0,24	1,09	0,55
<b>2,97</b>	41,35	11,29	6,01	0,19	<u>0,01</u>	<u>0,07</u>	<u>0,09</u>
<b>1,98</b>	37,56	15,40	4,98	0,27	1,30	0,67	0,74
<b>23,26</b>	85,45	5,34	21,16	<u>0,06</u>	0,06	1,04	0,39
<b>6,34</b>	80,17	15,39	14,49	0,10	0,15	0,58	0,27
<b>2,72</b>	71,01	24,86	9,25	0,29	<u>2,11</u>	1,46	<u>1,29</u>

Tabelle 13-15: Ergebnisse der Simulation der CPI-Membran mit Modell 3 und 400 Teilschritten

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 100 Teilschritte			Abweichungen 100 Teilschritte [%]			
	$y_{CO_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{CO_2,\omega}$ [mol %]	$y_{CO_2,\omega}$	$x_{CO_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
<b>15</b>	20,90	1,11	4,82	0,35	0,08	1,18	0,54
<b>3,61</b>	19,18	4,55	4,32	<u>0,69</u>	0,18	1,13	0,67
<b>1,75</b>	17,53	9,22	3,73	0,30	0,11	0,20	0,21
<b>4,02</b>	35,50	5,04	8,65	0,23	<u>0,01</u>	0,73	0,32
<b>1,89</b>	32,59	10,29	7,41	<u>0,09</u>	0,08	0,84	0,34
<b>1,31</b>	30,87	14,19	6,55	0,12	0,42	0,67	0,40
<b>7,46</b>	68,27	5,10	22,25	0,13	0,03	<u>0,04</u>	<u>0,06</u>
<b>2,25</b>	63,76	15,02	17,68	0,12	0,24	0,15	0,17
<b>1,33</b>	59,68	23,61	13,76	0,27	<u>1,58</u>	<u>1,33</u>	<u>1,06</u>

Tabelle 13-16: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 3 und 100 Teilschritten

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 200 Teilschritte			Abweichungen 200 Teilschritte [%]			
	$y_{CO_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{CO_2,\omega}$ [mol %]	$y_{CO_2,\omega}$	$x_{CO_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
15	20,90	1,11	4,82	0,36	0,08	1,18	0,54
3,61	19,18	4,55	4,32	<u>0,67</u>	0,17	1,12	0,66
1,75	17,52	9,22	3,73	0,26	0,09	0,19	0,18
4,02	35,49	5,04	9,87	0,24	<u>0,02</u>	<u>0,00</u>	0,33
1,89	32,58	10,28	7,41	0,12	0,05	0,81	0,33
1,31	30,86	14,19	6,55	<u>0,08</u>	0,37	0,63	0,36
7,46	68,27	5,10	22,25	0,12	0,02	0,02	<u>0,05</u>
2,25	63,76	15,01	17,68	0,12	0,21	0,08	0,14
1,33	59,69	23,59	13,77	0,28	<u>1,48</u>	<u>1,23</u>	<u>1,00</u>

Tabelle 13-17: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 3 und 200 Teilschritten

Feed $10^{-4}$ [mol/s]	Berechnete Werte 400 Teilschritte			Abweichungen 400 Teilschritte [%]			
	$y_{CO_2,\omega}$ [mol %]	Stagecut [%]	$x_{CO_2,\omega}$ [mol %]	$y_{CO_2,\omega}$	$x_{CO_2,\omega}$	Stagecut	Durchschnitt
15	20,90	1,11	4,82	0,36	0,08	1,18	0,54
3,61	19,18	4,55	4,32	<u>0,66</u>	0,17	1,12	0,65
1,75	17,52	9,22	3,73	0,25	0,08	0,18	0,17
4,02	35,49	5,04	8,65	0,25	0,02	<u>0,00</u>	0,33
1,89	32,58	10,28	7,41	0,13	0,04	0,80	0,32
1,31	30,86	14,19	6,55	<u>0,06</u>	0,34	0,61	0,34
7,46	68,27	5,10	22,25	0,12	<u>0,02</u>	0,00	<u>0,05</u>
2,25	63,76	15,01	17,69	0,13	0,20	0,05	0,12
1,33	59,69	23,57	13,78	0,28	<u>1,43</u>	<u>1,18</u>	<u>0,96</u>

Tabelle 13-18: Ergebnisse der Simulation der PPO-Membran mit Modell 3 und 400 Teilschritten

### 13.1.2 4 Komponenten

#### 13.1.2.1 Modell 1 OHNE Berücksichtigung der Nichtidealität der Gasphase

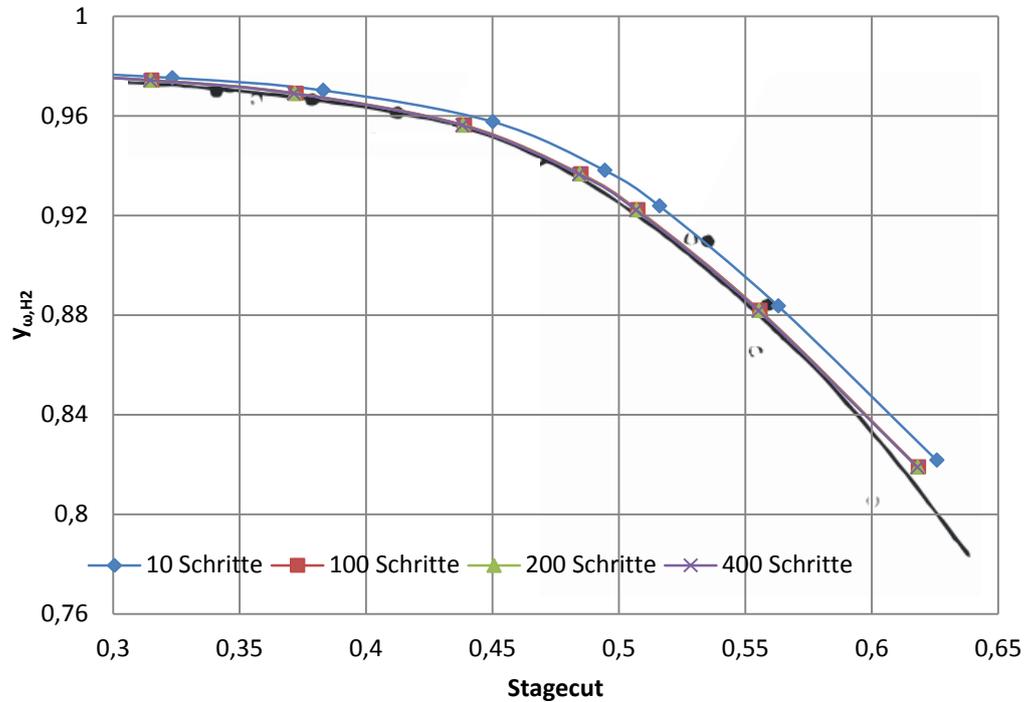


Abbildung 13-1: Permeatkonzentration von Wasserstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 1 ideal

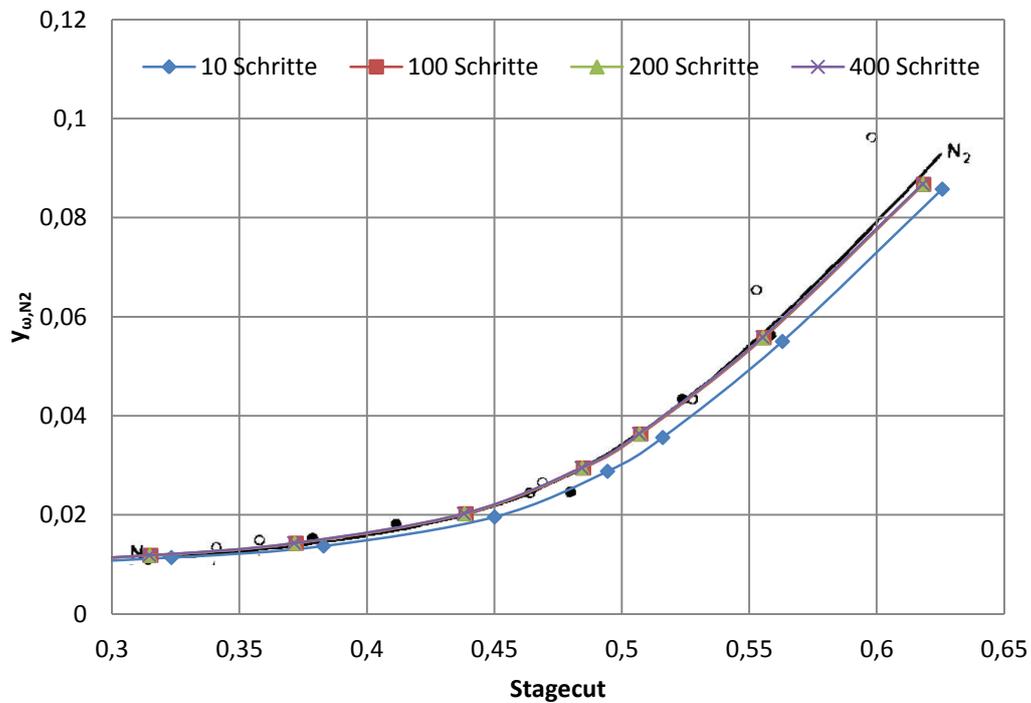


Abbildung 13-2: Permeatkonzentration von Stickstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 1 ideal

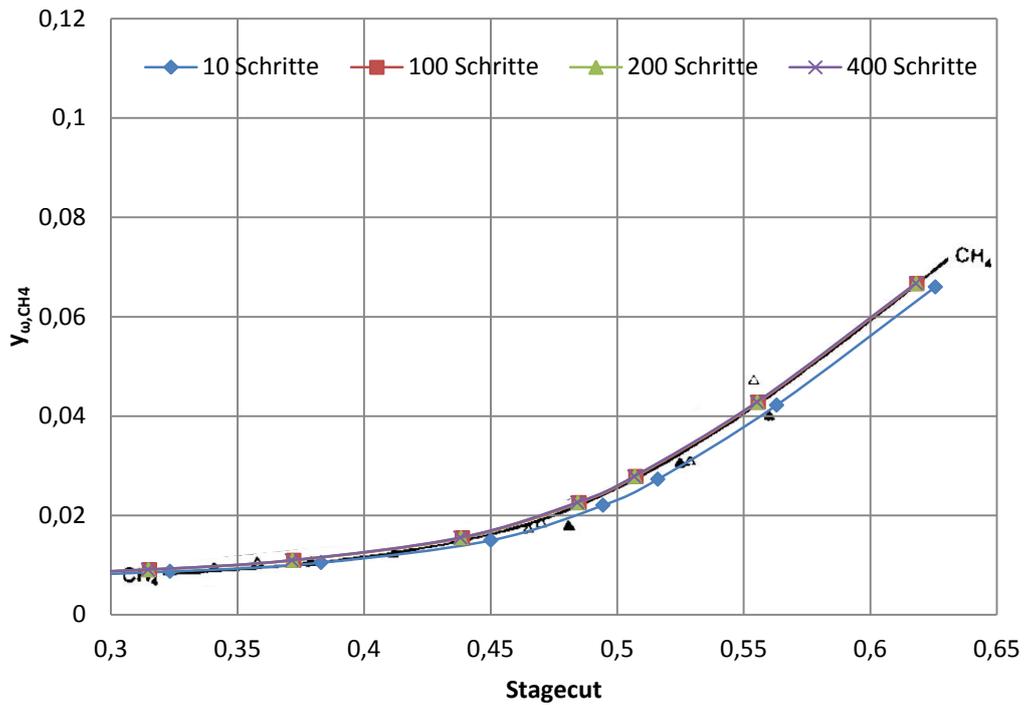


Abbildung 13-3: Permeatkonzentration von Methan über den Stagecut berechnet mit Modell 1 ideal

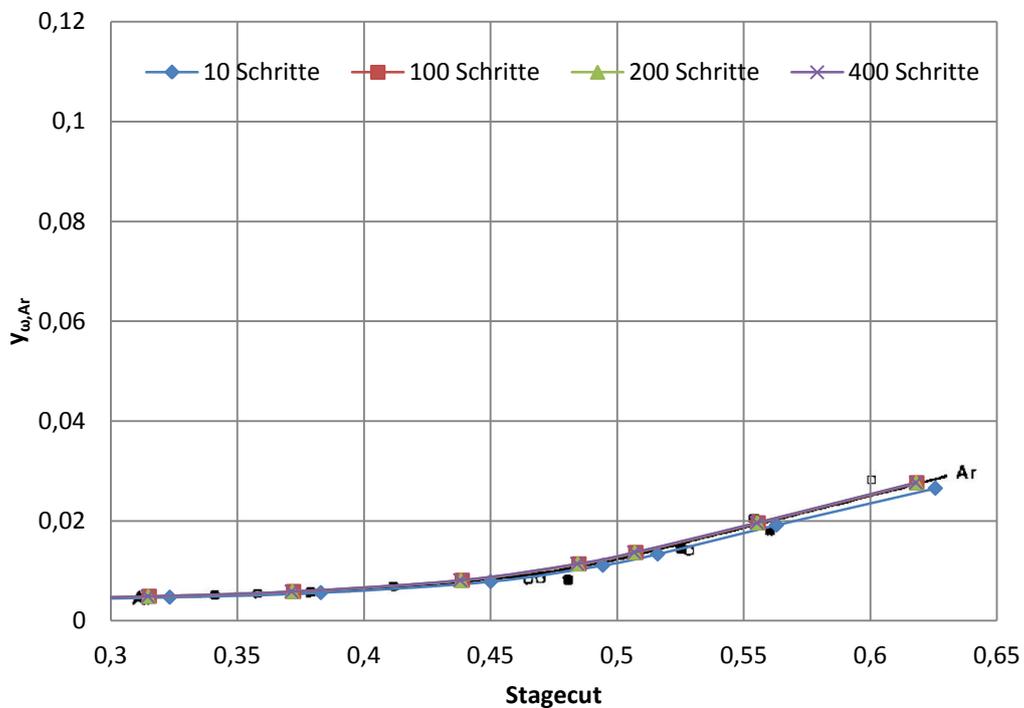


Abbildung 13-4: Permeatkonzentration von Argon über den Stagecut berechnet mit Modell 1 ideal

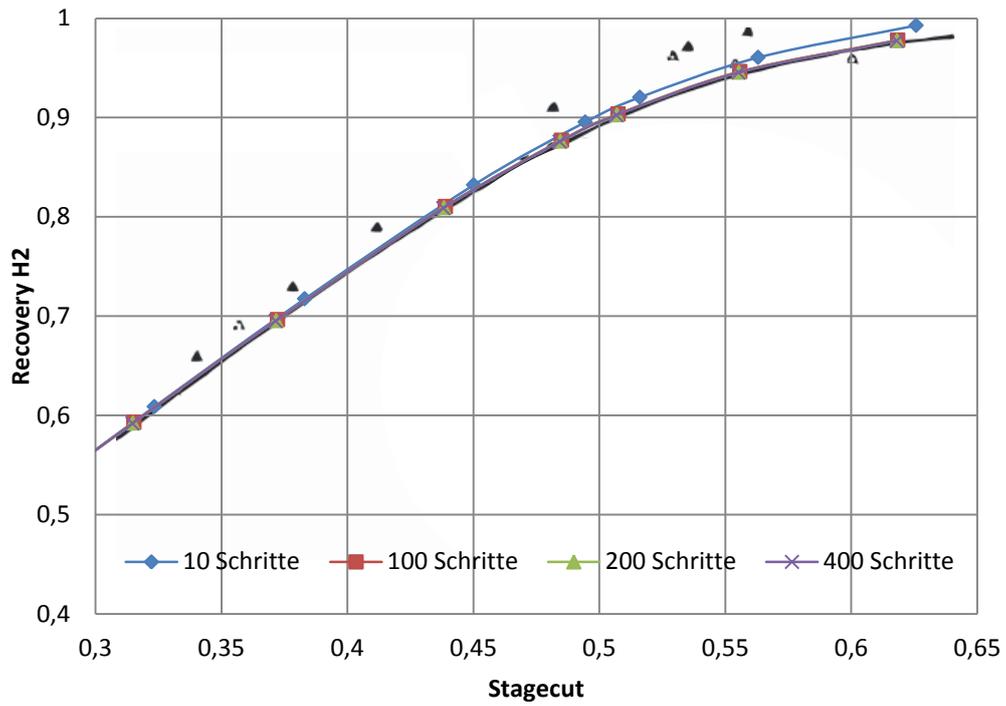


Abbildung 13-5: Recovery von Wasserstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 1 ideal

## 13.1.2.2 Modell 2

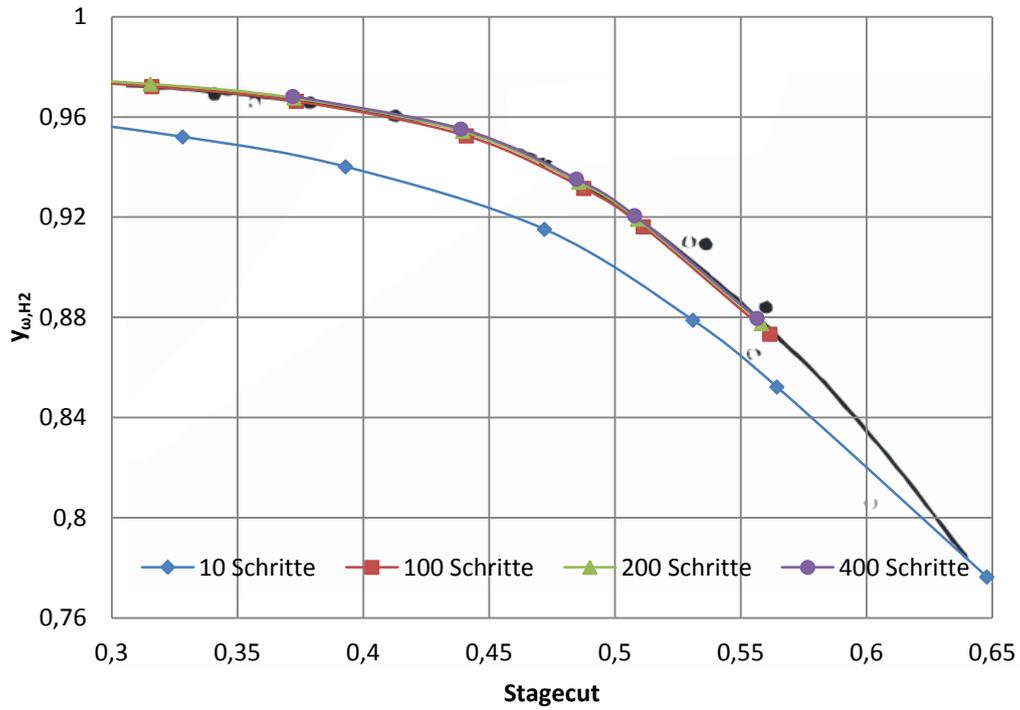


Abbildung 13-6: Permeatkonzentration von Wasserstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 2

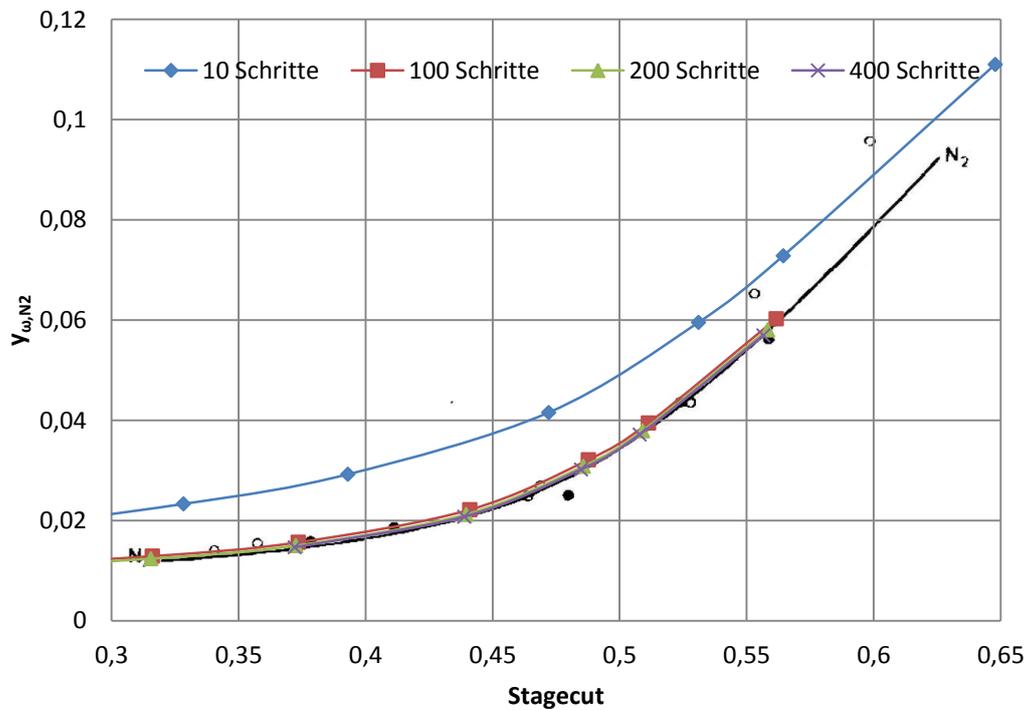


Abbildung 13-7: Permeatkonzentration von Stickstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 2

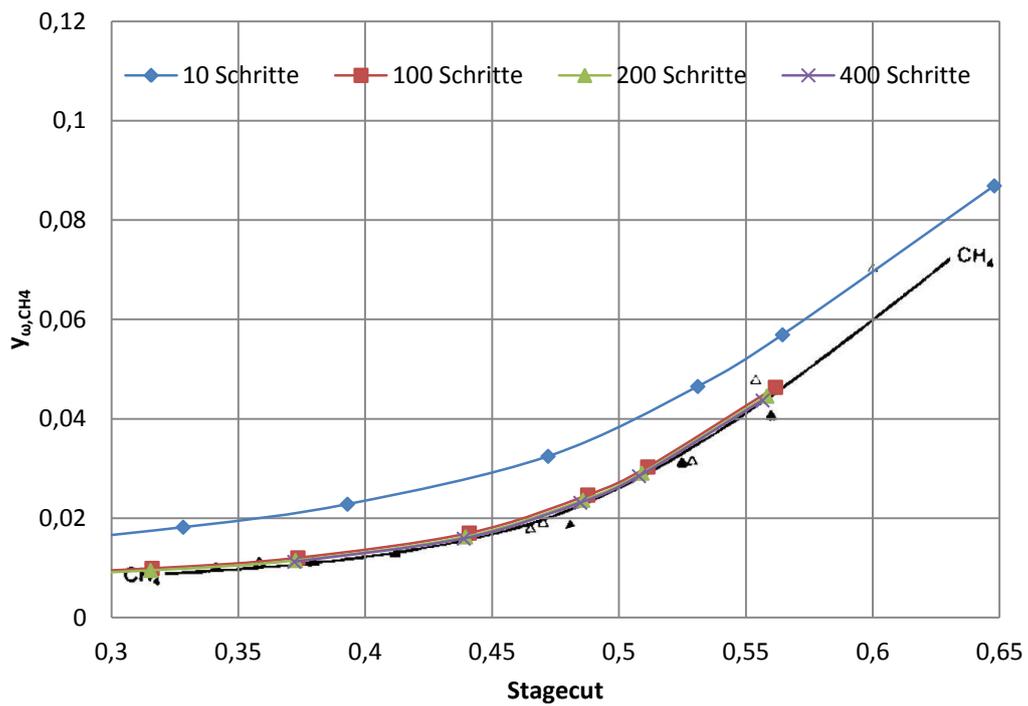


Abbildung 13-8: Permeatkonzentration von Methan über den Stagecut berechnet mit Modell 2

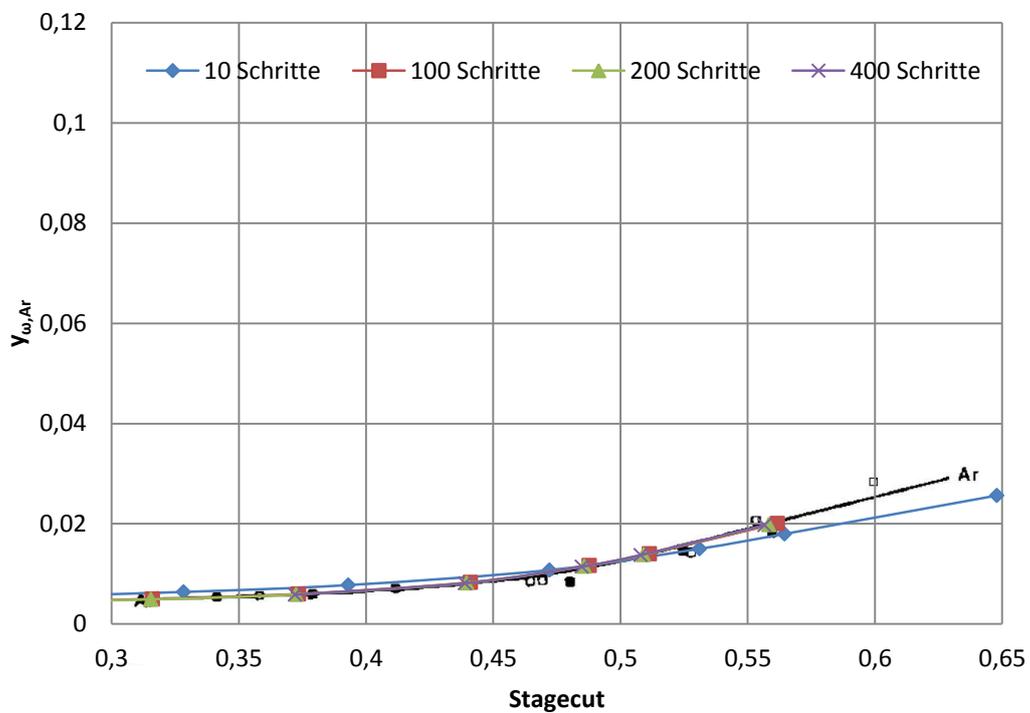


Abbildung 13-9: Permeatkonzentration von Argon über den Stagecut berechnet mit Modell 2

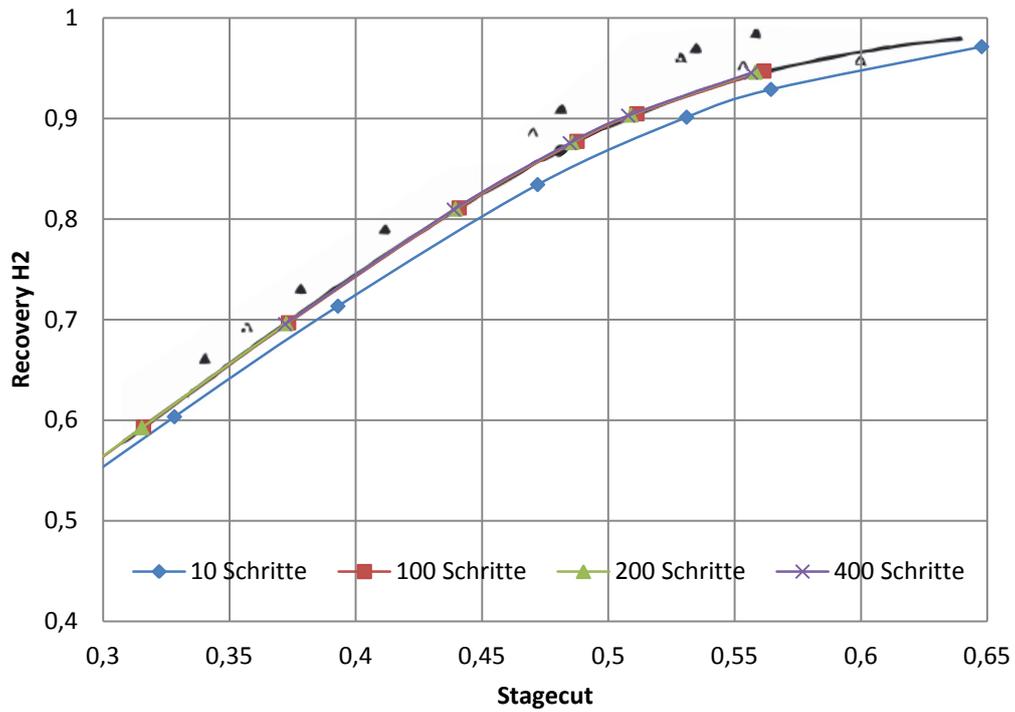


Abbildung 13-10: Recovery von Wasserstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 2

## 13.1.2.3 Modell 3

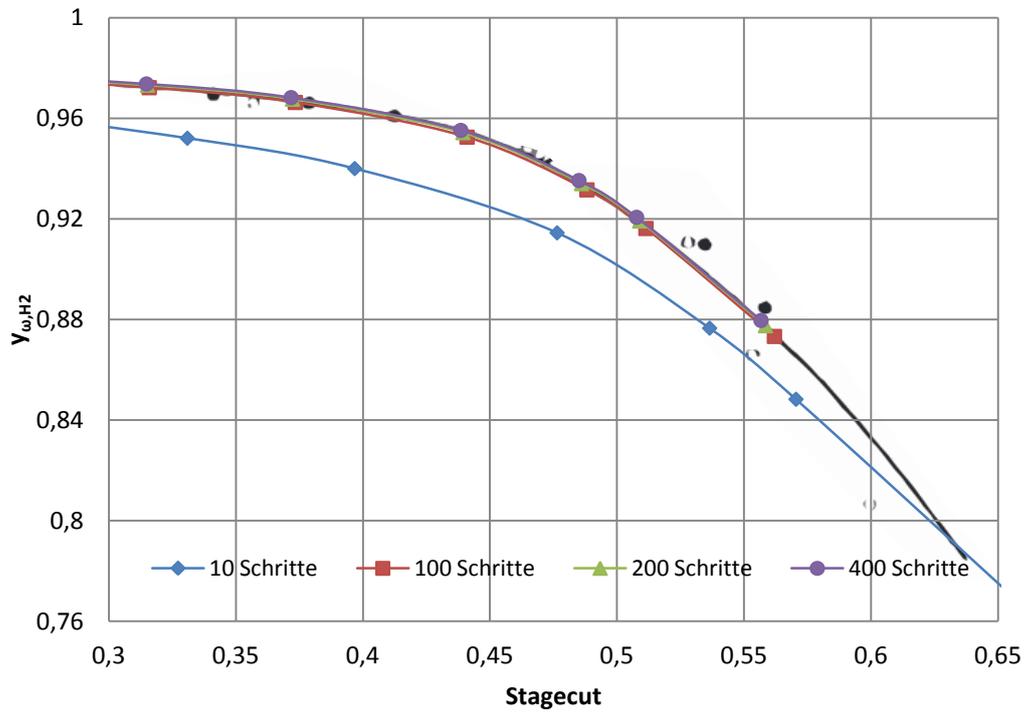


Abbildung 13-11: Permeatkonzentration von Wasserstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 3

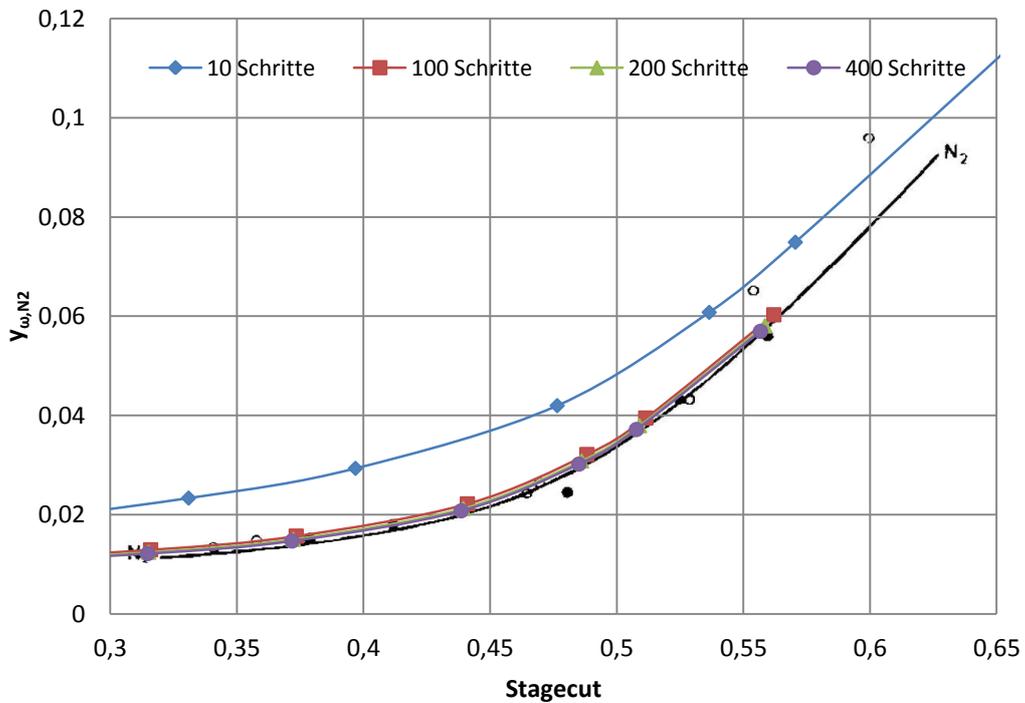


Abbildung 13-12: Permeatkonzentration von Stickstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 3

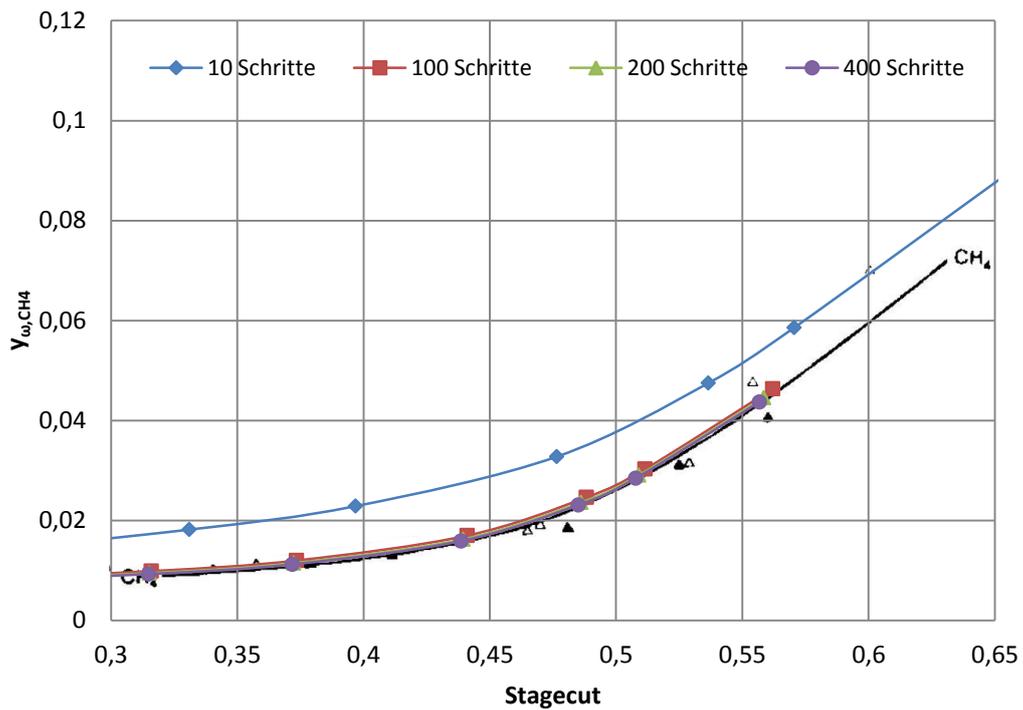


Abbildung 13-13: Permeatkonzentration von Methan über den Stagecut berechnet mit Modell 3

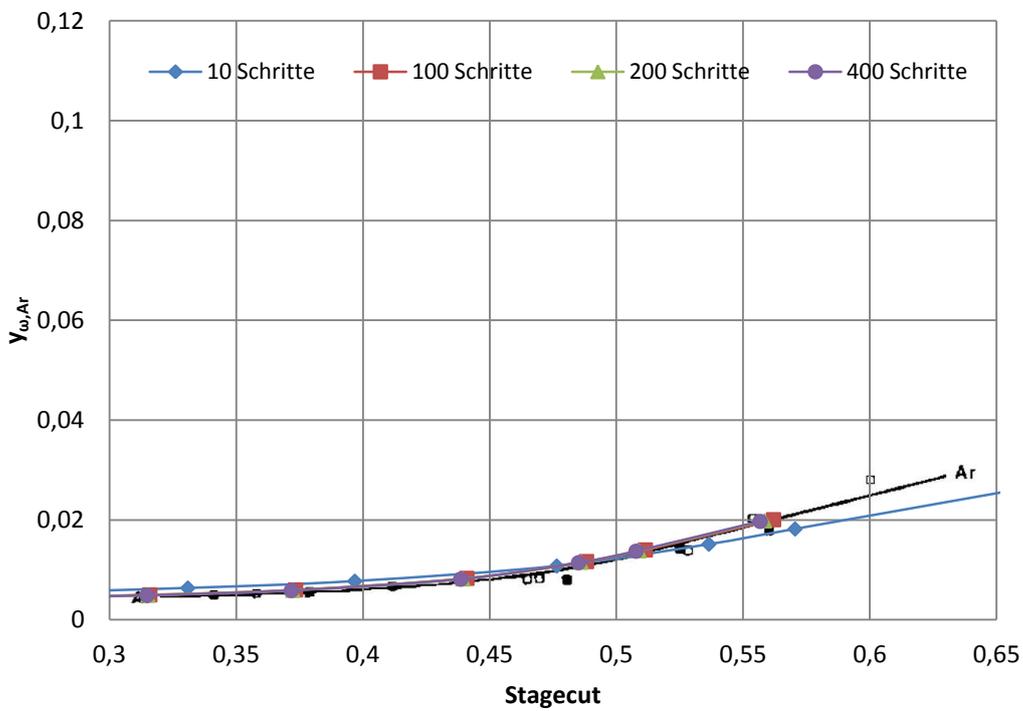


Abbildung 13-14: Permeatkonzentration von Argon über den Stagecut berechnet mit Modell 3

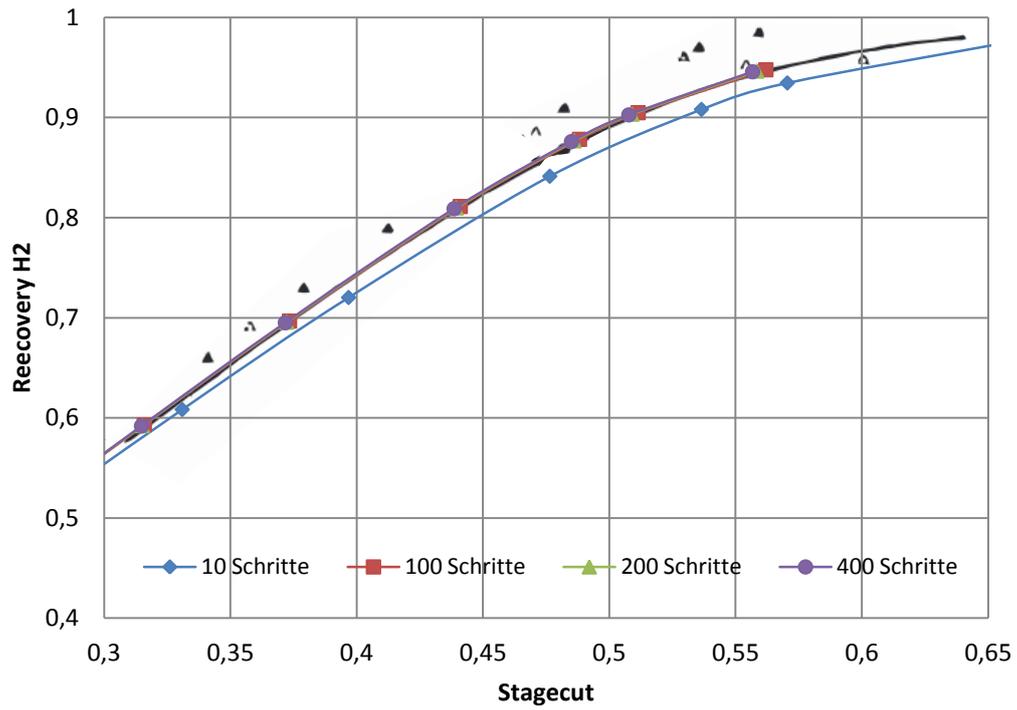


Abbildung 13-15: Recovery von Wasserstoff über den Stagecut berechnet mit Modell 3

## 13.2 Ergebnisse der Simulationen der Membranen

### 13.2.1 Wasserstoff - Methan

#### 13.2.1.1 Membran 1

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$X_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
50	72,00	37,05	0,29	1,94	0,55
100	71,94	36,95	0,57	1,94	1,11
500	71,42	36,16	2,81	1,92	5,41
1.000	70,76	35,18	5,53	1,90	10,52
2.000	69,46	33,29	10,66	1,87	19,94
5.000	65,64	28,06	24,18	1,77	42,73
10.000	59,70	20,66	42,24	1,61	67,87
20.000	49,40	9,53	69,28	1,33	92,12

Tabelle 13-19: Ergebnisse der Simulation von Membran 1 mit Modell 1 ideal

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$X_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
100	75,17	36,93	0,57	2,02	1,15
500	74,63	36,08	2,78	2,01	5,59
1.000	73,97	35,03	5,44	1,99	10,83
2.000	72,65	33,02	10,43	1,96	20,39
5.000	68,79	27,58	23,23	1,85	43,01
10.000	62,84	20,25	39,68	1,69	67,12
20.000	52,84	10,00	63,37	1,42	90,14

Tabelle 13-20: Ergebnisse der Simulation von Membran 1 mit Modell 1 real

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$X_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
50	72,00	37,05	0,29	1,94	0,55
100	71,94	36,95	0,57	1,94	1,11
500	71,41	36,16	2,81	1,92	5,41
1.000	70,75	35,18	5,53	1,90	10,53
2.000	69,44	33,29	10,67	1,87	19,95
5.000	65,61	28,06	24,21	1,77	42,76
10.000	59,63	20,65	42,33	1,61	67,94
20.000	49,29	9,48	69,50	1,33	92,22

Tabelle 13-21: Ergebnisse der Simulation von Membran 1 mit Modell 3

## 13.2.1.2 Membran 2

## 13.2.1.2.1 Ergebnisse der Simulation der besseren Trennung

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$X_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
<b>2.000</b>	86,435	37,149	0,003	2,327	0,007
<b>5.000</b>	86,433	37,146	0,007	2,327	0,017
<b>10.000</b>	86,430	37,143	0,014	2,327	0,033
<b>20.000</b>	86,424	37,136	0,029	2,326	0,067
<b>50.000</b>	86,407	37,115	0,072	2,326	0,167
<b>100.000</b>	86,379	37,080	0,143	2,325	0,332
<b>120.000</b>	86,367	37,065	0,171	2,325	0,399
<b>150.000</b>	86,350	37,044	0,214	2,324	0,497
<b>180.000</b>	86,333	37,024	0,257	2,324	0,596
<b>200.000</b>	86,322	37,010	0,285	2,324	0,662
<b>250.000</b>	86,293	36,975	0,355	2,323	0,825
<b>300.000</b>	86,265	36,940	0,426	2,322	0,988
<b>500.000</b>	86,152	36,803	0,704	2,319	1,632
<b>1.000.000</b>	85,873	36,468	1,381	2,312	3,192
<b>1.500.000</b>	85,600	36,144	2,034	2,304	4,686
<b>2.000.000</b>	85,332	35,831	2,665	2,297	6,120
<b>2.500.000</b>	85,069	35,528	3,275	2,290	7,499
<b>3.000.000</b>	84,810	35,233	3,866	2,283	8,825

Tabelle 13-22: Ergebnisse der Simulation von Membran 2 mit Modell 1 ideal (bessere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
2.000	89,412	37,148	0,003	2,407	0,008
5.000	89,410	37,146	0,008	2,407	0,020
10.000	89,407	37,142	0,016	2,407	0,039
20.000	89,402	37,133	0,032	2,407	0,078
50.000	89,384	37,108	0,081	2,406	0,195
100.000	89,354	37,066	0,162	2,405	0,389
120.000	89,342	37,049	0,194	2,405	0,466
150.000	89,325	37,024	0,242	2,404	0,581
180.000	89,307	36,999	0,290	2,404	0,696
200.000	89,295	36,982	0,321	2,404	0,773
250.000	89,266	36,940	0,401	2,403	0,963
300.000	89,236	36,899	0,480	2,402	1,152
500.000	89,119	36,736	0,791	2,399	1,898
1.000.000	88,831	36,340	1,543	2,391	3,689
1.500.000	88,548	35,962	2,259	2,384	5,385
2.000.000	88,271	35,599	2,944	2,376	6,995
2.500.000	87,999	35,252	3,599	2,369	8,525
3.000.000	87,732	34,917	4,228	2,362	9,985

Tabelle 13-23: Ergebnisse der Simulation von Membran 2 mit Modell 1 real (bessere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
2.000	86,435	37,149	0,003	2,327	0,007
5.000	86,433	37,146	0,007	2,327	0,017
10.000	86,430	37,143	0,014	2,327	0,033
20.000	86,424	37,136	0,029	2,326	0,067
50.000	86,407	37,115	0,072	2,326	0,167
100.000	86,378	37,080	0,143	2,325	0,332
120.000	86,367	37,065	0,171	2,325	0,399
150.000	86,350	37,044	0,214	2,324	0,497
180.000	86,332	37,024	0,257	2,324	0,596
200.000	86,321	37,010	0,285	2,324	0,662
250.000	86,292	36,975	0,355	2,323	0,825
300.000	86,264	36,940	0,426	2,322	0,988
500.000	86,151	36,803	0,704	2,319	1,632
1.000.000	85,871	36,468	1,381	2,311	3,193
1.500.000	85,596	36,144	2,035	2,304	4,688
2.000.000	85,327	35,830	2,666	2,297	6,124
2.500.000	85,063	35,527	3,277	2,290	7,503
3.000.000	84,803	35,232	3,869	2,283	8,831

Tabelle 13-24: Ergebnisse der Simulation von Membran 2 mit Modell 3 (bessere Trennung)

## 13.2.1.2.2 Ergebnisse der Simulation der schlechteren Trennung

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
2.000	85,654	37,150	0,001	2,306	0,002
5.000	85,654	37,149	0,003	2,306	0,006
10.000	85,653	37,148	0,005	2,306	0,012
20.000	85,651	37,145	0,010	2,306	0,024
50.000	85,645	37,138	0,025	2,305	0,059
100.000	85,635	37,125	0,051	2,305	0,117
120.000	85,631	37,120	0,061	2,305	0,141
150.000	85,625	37,113	0,076	2,305	0,176
180.000	85,619	37,106	0,092	2,305	0,211
200.000	85,616	37,101	0,102	2,305	0,234
250.000	85,606	37,088	0,127	2,304	0,293
300.000	85,596	37,076	0,152	2,304	0,351
500.000	85,557	37,027	0,253	2,303	0,583
1.000.000	85,460	36,906	0,503	2,300	1,158
1.500.000	85,363	36,785	0,750	2,298	1,724
2.000.000	85,267	36,667	0,994	2,295	2,282
2.500.000	85,171	36,549	1,235	2,293	2,832
3.000.000	85,076	36,433	1,474	2,290	3,375

Tabelle 13-25: Ergebnisse der Simulation von Membran 2 mit Modell 1 ideal (schlechtere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
2.000	88,628	37,149	0,001	2,386	0,003
5.000	88,627	37,149	0,003	2,386	0,007
10.000	88,626	37,147	0,006	2,386	0,014
20.000	88,624	37,144	0,011	2,386	0,027
50.000	88,618	37,135	0,028	2,385	0,068
100.000	88,608	37,121	0,057	2,385	0,135
120.000	88,604	37,115	0,068	2,385	0,162
150.000	88,598	37,106	0,085	2,385	0,203
180.000	88,592	37,098	0,102	2,385	0,243
200.000	88,588	37,092	0,113	2,385	0,270
250.000	88,578	37,077	0,141	2,384	0,337
300.000	88,568	37,063	0,169	2,384	0,404
500.000	88,528	37,005	0,282	2,383	0,671
1.000.000	88,428	36,862	0,558	2,380	1,329
1.500.000	88,328	36,721	0,831	2,378	1,975
2.000.000	88,230	36,582	1,099	2,375	2,610
2.500.000	88,131	36,446	1,363	2,372	3,233
3.000.000	88,034	36,311	1,623	2,370	3,845

Tabelle 13-26: Ergebnisse der Simulation von Membran 2 mit Modell 1 real (schlechtere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
2.000	85,654	37,150	0,001	2,306	0,002
5.000	85,654	37,149	0,003	2,306	0,006
10.000	85,653	37,148	0,005	2,306	0,012
20.000	85,651	37,145	0,010	2,306	0,024
50.000	85,645	37,138	0,025	2,305	0,059
100.000	85,635	37,125	0,051	2,305	0,117
120.000	85,631	37,120	0,061	2,305	0,141
150.000	85,625	37,113	0,076	2,305	0,176
180.000	85,619	37,106	0,092	2,305	0,211
200.000	85,615	37,101	0,102	2,305	0,234
250.000	85,606	37,088	0,127	2,304	0,293
300.000	85,596	37,076	0,152	2,304	0,351
500.000	85,556	37,027	0,253	2,303	0,583
1.000.000	85,459	36,906	0,503	2,300	1,158
1.500.000	85,362	36,785	0,751	2,298	1,725
2.000.000	85,265	36,667	0,995	2,295	2,283
2.500.000	85,169	36,549	1,236	2,293	2,833
3.000.000	85,074	36,433	1,474	2,290	3,376

Tabelle 13-27: Ergebnisse der Simulation von Membran 2 mit Modell 3 (schlechtere Trennung)

## 13.2.1.3 Membran 3

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
1.000	70,023	37,142	0,023	1,885	0,043
2.000	70,018	37,135	0,046	1,885	0,087
5.000	70,003	37,112	0,115	1,884	0,217
10.000	69,979	37,074	0,230	1,884	0,433
20.000	69,930	36,999	0,459	1,882	0,864
50.000	69,784	36,773	1,143	1,878	2,147
100.000	69,541	36,397	2,271	1,872	4,251

Tabelle 13-28: Ergebnisse der Simulation von Membran 3 mit Modell 1 ideal

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
1.000	73,30	37,14	0,02	1,97	0,04
2.000	73,30	37,13	0,05	1,97	0,09
5.000	73,28	37,11	0,11	1,97	0,22
10.000	73,26	37,07	0,23	1,97	0,45
20.000	73,21	36,99	0,45	1,97	0,89

Tabelle 13-29: Ergebnisse der Simulation von Membran 3 mit Modell 1 real

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
500	70,025	37,146	0,011	1,885	0,022
1.000	70,023	37,142	0,023	1,885	0,043
2.000	70,018	37,135	0,046	1,885	0,087
5.000	70,003	37,112	0,115	1,884	0,217
10.000	69,979	37,074	0,230	1,884	0,433
20.000	69,930	36,999	0,459	1,882	0,864
50.000	69,782	36,773	1,143	1,878	2,147

Tabelle 13-30: Ergebnisse der Simulation von Membran 3 mit Modell 3

## 13.2.1.4 Membran 4

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$X_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
500	87,018	37,150	0,001	2,342	0,002
1.000	87,018	37,149	0,001	2,342	0,003
2.000	87,017	37,149	0,003	2,342	0,007
5.000	87,015	37,146	0,007	2,342	0,017
10.000	87,012	37,143	0,015	2,342	0,035
20.000	87,006	37,135	0,030	2,342	0,069
50.000	86,988	37,113	0,074	2,342	0,173
60.000	86,982	37,106	0,088	2,341	0,207
80.000	86,970	37,091	0,118	2,341	0,276
100.000	86,958	37,077	0,147	2,341	0,344
120.000	86,946	37,062	0,176	2,340	0,413
150.000	86,927	37,040	0,220	2,340	0,515
200.000	86,897	37,004	0,293	2,339	0,685
250.000	86,867	36,968	0,365	2,338	0,854
500.000	86,718	36,789	0,723	2,334	1,687
1.000.000	86,424	36,442	1,416	2,326	3,293
1.500.000	86,136	36,109	2,081	2,319	4,826
2.000.000	85,854	35,787	2,722	2,311	6,291
2.500.000	85,579	35,476	3,340	2,304	7,695
3.000.000	85,309	35,176	3,938	2,296	9,042

Tabelle 13-31: Ergebnisse der Simulation von Membran 4 mit Modell 1 ideal

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$X_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
500.000	89,690	36,714	0,823	2,414	1,987
1.000.000	89,384	36,301	1,600	2,406	3,850
1.500.000	89,084	35,908	2,336	2,398	5,603
2.000.000	88,791	35,533	3,036	2,390	7,257
2.500.000	88,505	35,175	3,704	2,382	8,824
3.000.000	88,225	34,832	4,342	2,375	10,311

Tabelle 13-32: Ergebnisse der Simulation von Membran 4 mit Modell 1 real

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
500	87,018	37,150	0,001	2,342	0,002
1.000	87,018	37,149	0,001	2,342	0,003
2.000	87,017	37,149	0,003	2,342	0,007
5.000	87,015	37,146	0,007	2,342	0,017
10.000	87,012	37,143	0,015	2,342	0,035
20.000	87,006	37,135	0,030	2,342	0,069
50.000	86,988	37,113	0,074	2,342	0,173
60.000	86,982	37,106	0,088	2,341	0,207
80.000	86,970	37,091	0,118	2,341	0,276
100.000	86,957	37,077	0,147	2,341	0,344
120.000	86,945	37,062	0,176	2,340	0,413
150.000	86,927	37,040	0,220	2,340	0,515
200.000	86,897	37,004	0,293	2,339	0,685
250.000	86,867	36,968	0,365	2,338	0,854
500.000	86,716	36,789	0,723	2,334	1,688
1.000.000	86,421	36,442	1,416	2,326	3,294
1.500.000	86,132	36,108	2,082	2,319	4,828
2.000.000	85,850	35,786	2,724	2,311	6,295
2.500.000	85,573	35,475	3,343	2,303	7,700
3.000.000	85,302	35,174	3,941	2,296	9,049

Tabelle 13-33: Ergebnisse der Simulation von Membran 4 mit Modell 3

## 13.2.1.5 Membran 5

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
1.000	89,674	37,150	0,000	2,414	0,001
2.000	89,674	37,150	0,001	2,414	0,002
5.000	89,673	37,149	0,002	2,414	0,004
10.000	89,672	37,148	0,004	2,414	0,009
20.000	89,671	37,146	0,007	2,414	0,018
30.000	89,669	37,144	0,011	2,414	0,027
50.000	89,665	37,140	0,019	2,414	0,045
80.000	89,660	37,134	0,030	2,413	0,072
100.000	89,656	37,131	0,037	2,413	0,090
120.000	89,652	37,127	0,045	2,413	0,107
150.000	89,647	37,121	0,056	2,413	0,134
3.000.000	89,150	36,592	1,062	2,400	2,549
5.000.000	88,818	36,246	1,719	2,391	4,109
8.000.000	88,343	35,762	2,640	2,378	6,279
10.000.000	88,039	35,458	3,219	2,370	7,627
12.000.000	87,746	35,167	3,772	2,362	8,908
15.000.000	87,323	34,753	4,560	2,351	10,719
25.000.000	86,031	33,522	6,910	2,316	16,002
50.000.000	83,344	31,075	11,623	2,243	26,076

Tabelle 13-34: Ergebnisse der Simulation von Membran 5 mit Modell 1 ideal

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
1.000	89,674	37,150	0,000	2,414	0,001
2.000	89,674	37,150	0,001	2,414	0,002
5.000	89,673	37,149	0,002	2,414	0,004
10.000	89,672	37,148	0,004	2,414	0,009
20.000	89,671	37,146	0,007	2,414	0,018
30.000	89,669	37,144	0,011	2,414	0,027
50.000	89,665	37,140	0,019	2,414	0,045
80.000	89,660	37,134	0,030	2,413	0,072
100.000	89,656	37,131	0,037	2,413	0,090
120.000	89,652	37,127	0,045	2,413	0,107
150.000	89,647	37,121	0,056	2,413	0,134
3.000.000	89,148	36,592	1,063	2,400	2,550
5.000.000	88,815	36,246	1,720	2,391	4,112
8.000.000	88,338	35,761	2,643	2,378	6,284
10.000.000	88,034	35,456	3,222	2,370	7,634
12.000.000	87,740	35,165	3,776	2,362	8,918
15.000.000	87,315	34,750	4,566	2,350	10,732
25.000.000	86,018	33,516	6,922	2,315	16,028
50.000.000	83,320	31,061	11,652	2,243	26,132

Tabelle 13-35: Ergebnisse der Simulation von Membran 5 mit Modell 3

## 13.2.1.6 Membran 6a

## 13.2.1.6.1 Ergebnisse der Simulation der besseren Trennung:

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
1	72,443	37,124	0,073	1,950	0,143
10	72,303	36,892	0,729	1,946	1,418
50	71,679	35,869	3,577	1,929	6,902
100	70,896	34,611	6,996	1,908	13,352
500	64,683	25,517	29,701	1,741	51,714
1.000	57,467	16,540	50,358	1,547	77,899
2.000	45,410	4,675	79,722	1,222	97,449

Tabelle 13-36: Ergebnisse der Simulation von Membran 6a mit Modell 1 ideal (bessere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
1	69,145	37,126	0,075	1,861	0,139
10	69,008	36,911	0,743	1,858	1,381
50	68,396	35,963	3,661	1,841	6,740
100	67,629	34,790	7,186	1,820	13,082
500	61,518	26,037	31,321	1,656	51,865
1.000	54,263	16,767	54,361	1,461	79,402
2.000	41,622	3,184	88,365	1,120	99,003

Tabelle 13-37: Ergebnisse der Simulation von Membran 6a mit Modell 1 real (bessere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
1	69,145	37,126	0,075	1,861	0,139
10	69,007	36,911	0,743	1,858	1,381
50	68,390	35,963	3,661	1,841	6,740
100	67,618	34,790	7,189	1,820	13,084
500	61,472	26,035	31,365	1,655	51,900
1.000	54,186	16,750	54,493	1,459	79,482
2.000	41,495	3,115	88,680	1,117	99,051

Tabelle 13-38: Ergebnisse der Simulation von Membran 6a mit Modell 3 (bessere Trennung)

## 13.2.1.6.2 Ergebnisse der Simulation der schlechteren Trennung:

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
<b>1</b>	66,814	37,127	0,077	1,798	0,138
<b>10</b>	66,684	36,922	0,768	1,795	1,378
<b>50</b>	66,108	36,009	3,790	1,779	6,744
<b>100</b>	65,382	34,874	7,461	1,760	13,131
<b>500</b>	59,486	26,104	33,089	1,601	52,983
<b>1.000</b>	52,214	16,278	58,080	1,406	81,632
<b>2.000</b>	39,018	1,254	95,054	1,050	99,833

Tabelle 13-39: Ergebnisse der Simulation von Membran 6a mit Modell 1 ideal (schlechtere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
<b>1</b>	70,165	37,125	0,075	1,889	0,142
<b>10</b>	70,032	36,903	0,747	1,885	1,408
<b>50</b>	69,441	35,917	3,677	1,869	6,873
<b>100</b>	68,696	34,697	7,215	1,849	13,342
<b>500</b>	62,670	25,561	31,230	1,687	52,683
<b>1.000</b>	55,415	16,068	53,580	1,492	79,923
<b>2.000</b>	42,920	3,269	85,447	1,155	98,719

Tabelle 13-40: Ergebnisse der Simulation von Membran 6a mit Modell 1 real (schlechtere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
<b>1</b>	66,813	37,127	0,077	1,798	0,138
<b>10</b>	66,683	36,922	0,768	1,795	1,378
<b>50</b>	66,102	36,009	3,790	1,779	6,745
<b>100</b>	65,371	34,874	7,463	1,760	13,133
<b>500</b>	59,441	26,105	33,131	1,600	53,011
<b>1.000</b>	52,139	16,268	58,215	1,403	81,702
<b>2.000</b>	38,890	1,180	95,387	1,047	99,853

Tabelle 13-41: Ergebnisse der Simulation von Membran 6a mit Modell 3 (schlechtere Trennung)

### 13.2.2 Wasserstoff - Ethan

#### 13.2.2.1 Membran 6b

##### 13.2.2.1.1 Ergebnisse der Simulation der besseren Trennung

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	93,469	70,603	3,312	1,310	4,338
50	92,890	67,262	15,991	1,302	20,815
100	92,023	62,328	30,417	1,290	39,224
200	89,697	50,021	53,783	1,257	67,604
300	86,562	36,275	69,770	1,213	84,633
400	82,923	23,884	80,414	1,162	93,445
500	79,141	13,755	88,100	1,109	97,706

Tabelle 13-42: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit Modell 1 ideal (bessere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	93,463	70,603	3,312	1,310	4,338
50	92,856	67,266	15,997	1,301	20,816
100	91,951	62,346	30,449	1,289	39,234
200	89,545	50,066	53,937	1,255	67,682
300	86,333	36,256	70,100	1,210	84,809
400	82,622	23,693	80,889	1,158	93,655
500	78,768	13,359	88,674	1,104	97,880

Tabelle 13-43: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit Modell 3 (bessere Trennung)

## 13.2.2.1.2 Ergebnisse der Simulation der schlechteren Trennung

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	92,260	70,708	3,026	1,293	3,912
50	91,694	67,851	14,717	1,285	18,910
100	90,865	63,660	28,303	1,273	36,039
200	88,699	52,990	51,444	1,243	63,943
300	85,749	39,864	68,640	1,202	82,482
400	82,146	26,442	80,637	1,151	92,825
500	78,218	14,535	89,231	1,096	97,807

Tabelle 13-44: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit Modell 1 ideal (schlechtere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	92,254	70,708	3,026	1,293	3,912
50	91,666	67,855	14,721	1,285	18,910
100	90,805	63,675	28,326	1,272	36,044
200	88,571	53,041	51,559	1,241	63,994
300	85,553	39,896	68,915	1,199	82,621
400	81,880	26,318	81,066	1,147	93,017
500	77,881	14,161	89,766	1,091	97,969

Tabelle 13-45: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit Modell 3 (schlechtere Trennung)

## 13.2.2.1.3 Ergebnisse der besseren Trennung mit einem Feeddruck von 32,53 und einem Permeatdruck von 8,1325 bar (Druckverhältnis 4)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	94,985	70,230	4,564	1,331	6,076
50	94,334	64,933	21,859	1,322	28,897
100	93,249	56,246	40,845	1,307	53,374
200	89,770	33,175	67,471	1,258	84,878
300	84,771	14,324	80,963	1,188	96,179
400	79,498	4,546	89,142	1,114	99,308
500	74,531	0,526	95,715	1,044	99,968

Tabelle 13-46: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Druckverhältnis unter Verwendung von Modell 1 ideal (bessere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	94,975	70,230	4,565	1,331	6,075
50	94,276	64,946	21,868	1,321	28,891
100	93,119	56,304	40,895	1,305	53,365
200	89,488	33,281	67,748	1,254	84,958
300	84,370	14,200	81,460	1,182	96,311
400	79,001	4,290	89,772	1,107	99,385
500	73,962	0,371	96,464	1,036	99,982

Tabelle 13-47: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Druckverhältnis unter Verwendung von Modell 3 (bessere Trennung)

#### 13.2.2.1.4 Ergebnisse der schlechteren Trennung mit einem Feeddruck von 32,53 und einem Permeatdruck von 8,1325 bar (Druckverhältnis 4)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	93,943	70,388	4,126	1,316	5,432
50	93,291	65,902	19,929	1,307	26,053
100	92,244	58,673	37,792	1,293	48,851
200	89,011	38,348	65,160	1,247	81,277
300	84,113	17,534	80,846	1,179	95,294
400	78,576	5,135	90,175	1,101	99,293
500	73,252	0,259	97,408	1,027	99,991

Tabelle 13-48: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Druckverhältnis unter Verwendung von Modell 1 ideal (schlechtere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	93,934	70,388	4,126	1,316	5,432
50	93,242	65,912	19,935	1,307	26,047
100	92,136	58,720	37,827	1,291	48,840
200	88,771	38,490	65,372	1,244	81,323
300	83,760	17,488	81,289	1,174	95,414
400	78,131	4,885	90,756	1,095	99,367
500	72,741	0,140	98,097	1,019	99,996

Tabelle 13-49: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Druckverhältnis unter Verwendung von Modell 3 (schlechtere Trennung)

13.2.2.1.5 Ergebnisse der besseren Trennung mit einem Feeddruck von 20 und einem Permeatdruck von 8 bar (Druckverhältnis 2,5)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	93,520	70,898	2,043	1,311	2,677
50	93,181	68,935	10,003	1,306	13,062
100	92,706	66,206	19,450	1,299	25,269
200	91,563	59,770	36,456	1,283	46,777
300	90,115	52,107	50,655	1,263	63,968
400	88,346	43,691	61,961	1,238	76,710
500	86,304	35,286	70,708	1,209	85,515

Tabelle 13-50: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Feeddruck unter Verwendung von Modell 1 ideal (bessere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	94,766	70,861	2,088	1,328	2,773
50	94,495	68,726	10,222	1,324	13,536
100	94,116	65,722	19,855	1,319	26,187
200	93,194	58,492	37,081	1,306	48,426
300	92,014	49,713	51,173	1,289	65,984
400	90,559	40,131	61,927	1,269	78,589
500	88,887	31,020	69,712	1,246	86,834

Tabelle 13-51: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Feeddruck unter Verwendung von Modell 1 real (bessere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	93,516	70,898	2,043	1,310	2,677
50	93,160	68,936	10,006	1,305	13,062
100	92,664	66,212	19,461	1,299	25,271
200	91,472	59,796	36,507	1,282	46,796
300	89,976	52,151	50,784	1,261	64,032
400	88,158	43,724	62,195	1,235	76,836
500	86,070	35,257	71,051	1,206	85,697

Tabelle 13-52: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Feeddruck unter Verwendung von Modell 3 (bessere Trennung)

13.2.2.1.6 Ergebnisse der schlechteren Trennung mit einem Feeddruck von 20 und einem Permeatdruck von 8 bar (Druckverhältnis 2,5)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	92,310	70,962	1,865	1,294	2,412
50	91,976	69,278	9,173	1,289	11,823
100	91,517	66,953	17,943	1,282	23,011
200	90,432	61,483	34,118	1,267	43,236
300	89,086	54,847	48,228	1,248	60,209
400	87,442	47,160	60,076	1,225	73,615
500	85,501	38,849	69,688	1,198	83,498

Tabelle 13-53: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Feeddruck unter Verwendung von Modell 1 ideal (schlechtere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	93,751	70,927	1,897	1,314	2,492
50	93,480	69,086	9,323	1,310	12,212
100	93,106	66,517	18,213	1,305	23,763
200	92,219	60,373	34,501	1,292	44,585
300	91,107	52,785	48,470	1,277	61,883
400	89,738	43,992	59,825	1,258	75,233
500	88,126	34,797	68,561	1,235	84,669

Tabelle 13-54: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Feeddruck unter Verwendung von Modell 1 real (schlechtere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
10	92,307	70,962	1,865	1,294	2,412
50	91,959	69,279	9,174	1,289	11,823
100	91,481	66,958	17,950	1,282	23,011
200	90,357	61,506	34,155	1,266	43,247
300	88,969	54,893	48,324	1,247	60,249
400	87,282	47,217	60,260	1,223	73,705
500	85,299	38,874	69,974	1,195	83,643

Tabelle 13-55: Ergebnisse der Simulation von Membran 6b mit neuem Feeddruck unter Verwendung von Modell 3 (schlechtere Trennung)

## 13.2.3 Ethan - Ethen

## 13.2.3.1 Membran7

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
100	99,962	82,118	0,739	1,215	0,899
200	99,961	81,985	1,477	1,215	1,795
500	99,961	81,574	3,674	1,215	4,465
1.000	99,960	80,858	7,288	1,215	8,857
2.000	99,957	79,290	14,320	1,215	17,403
5.000	99,948	73,317	33,543	1,215	40,761
10.000	99,923	58,871	56,949	1,215	69,186
15.000	99,879	45,612	67,515	1,214	81,986
20.000	99,820	40,328	70,467	1,214	85,519
50.000	99,443	33,952	73,748	1,209	89,163
100.000	98,834	29,585	76,051	1,202	91,386
500.000	94,450	14,592	84,723	1,148	97,290

Tabelle 13-56: Ergebnisse der Simulation von Membran 7 mit Modell 1 ideal

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
100	99,960	82,118	0,739	1,215	0,899
200	99,959	81,985	1,477	1,215	1,795
500	99,954	81,575	3,674	1,215	4,465
1.000	99,946	80,859	7,289	1,215	8,857
2.000	99,928	79,294	14,325	1,215	17,404
5.000	99,860	73,345	33,586	1,214	40,777
10.000	99,701	58,930	57,198	1,212	69,333
15.000	99,531	45,499	68,017	1,210	82,308
20.000	99,365	40,176	71,084	1,208	85,876
50.000	98,333	33,661	75,132	1,196	89,823
100.000	96,611	28,837	78,810	1,175	92,571

Tabelle 13-57: Ergebnisse der Simulation von Membran 7 mit Modell 3

## 13.2.3.2 Membran 8

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
100	99,887	81,879	2,062	1,214	2,504
200	99,885	81,495	4,105	1,214	4,985
500	99,880	80,265	10,121	1,214	12,290
1.000	99,870	77,921	19,723	1,214	23,948
2.000	99,843	71,924	36,985	1,214	44,896
5.000	99,679	47,485	66,608	1,212	80,722
10.000	99,201	35,213	73,509	1,206	88,659
15.000	98,713	31,205	75,614	1,200	90,748
20.000	98,234	28,430	77,101	1,194	92,085
50.000	95,532	18,588	82,739	1,161	96,099
100.000	91,439	9,635	88,767	1,112	98,684

Tabelle 13-58: Ergebnisse der Simulation von Membran 8 mit Modell 1 ideal

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
100	99,883	81,879	2,062	1,214	2,504
200	99,878	81,495	4,106	1,214	4,985
500	99,860	80,267	10,123	1,214	12,290
1.000	99,826	77,929	19,733	1,214	23,950
2.000	99,742	71,959	37,041	1,213	44,918
5.000	99,356	47,409	67,070	1,208	81,019
10.000	98,583	34,976	74,322	1,199	89,081
15.000	97,805	30,837	76,773	1,189	91,292
20.000	97,040	27,901	78,608	1,180	92,743
50.000	92,621	16,624	86,354	1,126	97,242
100.000	84,866	2,952	96,806	1,032	99,885

Tabelle 13-59: Ergebnisse der Simulation von Membran 8 mit Modell 3

## 13.2.3.3 Membran 9

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
100	99,984	82,249	0,006	1,216	0,008
200	99,984	82,248	0,012	1,216	0,015
500	99,984	82,245	0,031	1,216	0,038
1.000	99,984	82,239	0,062	1,216	0,075
2.000	99,984	82,228	0,124	1,216	0,151
5.000	99,984	82,195	0,310	1,216	0,377
10.000	99,984	82,140	0,619	1,216	0,753
15.000	99,984	82,084	0,928	1,216	1,128
20.000	99,984	82,028	1,237	1,216	1,503
50.000	99,984	81,686	3,080	1,216	3,744
100.000	99,984	81,094	6,118	1,216	7,437

Tabelle 13-60: Ergebnisse der Simulation von Membran 9 mit Modell 1 ideal

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
100	99,984	82,249	0,006	1,216	0,008
200	99,984	82,248	0,012	1,216	0,015
500	99,984	82,245	0,031	1,216	0,038
1.000	99,984	82,239	0,062	1,216	0,075
2.000	99,984	82,228	0,124	1,216	0,151
5.000	99,984	82,195	0,310	1,216	0,377
10.000	99,983	82,140	0,619	1,216	0,753
15.000	99,983	82,084	0,928	1,216	1,128
20.000	99,982	82,028	1,237	1,216	1,503
50.000	99,978	81,687	3,080	1,216	3,744
100.000	99,972	81,095	6,118	1,215	7,437

Tabelle 13-61: Ergebnisse der Simulation von Membran 9 mit Modell 3

### 13.2.4 Wasserstoff – Methan – Ethan

#### 13.2.4.1 Membran 6c

##### 13.2.4.1.1 Ergebnisse der Simulation der besseren Trennung

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$Y_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
100	67,965	26,978	4,182	30,771	55,909	2,102	8,792
200	66,708	28,021	8,079	29,304	57,044	2,064	16,671
500	63,169	30,944	18,431	25,357	60,067	1,954	36,017
1.000	57,939	35,234	32,639	19,916	64,130	1,792	58,500
2.000	49,281	42,230	54,833	11,743	69,836	1,524	83,593

Tabelle 13-62: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 1 ideal (bessere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$Y_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
100	72,889	23,603	30,568	56,047	4,155	2,255	9,368
200	71,561	24,749	28,942	57,282	7,941	2,214	17,579
500	67,864	27,931	24,713	60,433	17,642	2,099	37,037
1.000	62,516	32,503	19,211	64,341	30,285	1,934	58,568
2.000	53,958	39,712	11,565	69,083	48,973	1,669	81,744
5.000	37,305	52,739	0,980	67,041	86,294	1,154	99,585

Tabelle 13-63: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 1 real (bessere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$Y_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$x_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
100	67,950	26,990	30,771	55,908	4,182	2,102	8,790
200	66,679	28,043	29,307	57,042	8,079	2,063	16,665
500	63,109	30,990	25,368	60,058	18,437	1,952	35,993
1.000	57,846	35,303	19,946	64,108	32,664	1,789	58,451
2.000	49,159	42,316	11,809	69,793	54,932	1,521	83,536

Tabelle 13-64: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 2 (bessere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$Y_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	$X_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$X_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
100	67,960	26,981	30,770	55,909	4,183	2,102	8,794
200	66,697	28,027	29,303	57,044	8,083	2,063	16,678
500	63,146	30,960	25,352	60,071	18,453	1,953	36,047
1.000	57,897	35,262	19,901	64,143	32,700	1,791	58,568
2.000	49,207	42,278	11,707	69,870	54,983	1,522	83,697

Tabelle 13-65: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 3 (bessere Trennung)

## 13.2.4.1.2 Ergebnisse der Simulation der schlechteren Trennung

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$Y_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	$X_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$X_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
100	55,656	37,218	30,971	55,715	5,491	1,722	9,454
200	54,727	37,969	29,609	56,728	10,817	1,693	18,313
500	51,889	40,253	25,504	59,737	25,856	1,605	41,503
1.000	47,046	44,102	18,686	64,519	48,097	1,455	69,998
2.000	37,311	51,517	5,720	71,684	84,220	1,154	97,208

Tabelle 13-66: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 1 ideal (schlechtere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$Y_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	$X_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$X_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
100	60,655	34,116	30,789	55,816	5,148	1,876	9,659
200	59,655	34,961	29,261	56,913	10,085	1,302	18,610
500	56,617	37,513	24,775	60,041	23,714	1,751	41,535
1.000	51,552	41,715	17,806	64,505	43,027	1,595	68,618
2.000	42,078	49,259	6,658	69,017	72,468	1,302	94,329

Tabelle 13-67: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 1 real (schlechtere Trennung)

$A_{\text{mem}}$ [m <sup>2</sup> ]	$Y_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$Y_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	$X_{\omega, \text{H}_2}$ [mol %]	$X_{\omega, \text{CH}_4}$ [mol %]	Stagecut [%]	Anreicherung H <sub>2</sub>	Recovery H <sub>2</sub> [%]
100	55,650	37,222	30,971	55,715	5,491	1,722	9,454
200	54,716	37,977	29,610	56,728	10,820	1,693	18,314
500	51,863	40,270	25,507	59,735	25,873	1,604	41,510
1.000	47,000	44,129	18,693	64,519	48,161	1,454	70,024
2.000	37,234	51,556	5,704	71,744	84,433	1,152	97,253

Tabelle 13-68: Ergebnisse der Simulation von Membran 6c mit Modell 3 (schlechtere Trennung)

## 13.2.5 Wasserstoff – Methan – Ethan- Ethen

## 13.2.5.1 Membran 10

$A_{\text{mem}}$	$Y_{\omega, \text{CH}_4}$	$Y_{\omega, \text{C}_2\text{H}_6}$	$Y_{\omega, \text{C}_2\text{H}_4}$	$X_{\omega, \text{CH}_4}$	$X_{\omega, \text{C}_2\text{H}_6}$	$X_{\omega, \text{C}_2\text{H}_4}$	SC	Anreicherung CH <sub>4</sub>	Anr. C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	Anr. C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>	Recovery CH <sub>4</sub>	Rec. C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	Rec. C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>
[m <sup>2</sup> ]	[mol %]						[%]	-	-	-	[%]	[%]	[%]
<b>100</b>	24,512	11,491	63,993	34,169	8,097	37,525	0,093	0,718	1,419	1,704	0,067	0,132	0,158
<b>200</b>	24,523	11,491	63,982	34,178	8,094	37,501	0,185	0,718	1,419	1,704	0,133	0,263	0,316
<b>500</b>	24,557	11,491	63,948	34,205	8,084	37,427	0,463	0,719	1,419	1,703	0,333	0,657	0,789
<b>1.000</b>	24,613	11,492	63,891	34,249	8,068	37,304	0,924	0,721	1,419	1,701	0,666	1,311	1,572
<b>2.000</b>	24,726	11,492	63,777	34,337	8,036	37,059	1,839	0,724	1,419	1,698	1,331	2,609	3,124
<b>5.000</b>	25,066	11,493	63,436	36,368	6,265	25,811	4,534	0,734	1,419	1,689	3,327	6,433	7,659
<b>10.000</b>	25,640	11,492	62,864	34,988	7,771	35,091	8,854	0,751	1,419	1,674	6,646	12,562	14,823
<b>30.000</b>	27,965	11,451	60,578	36,120	7,040	30,264	24,035	0,819	1,414	1,613	19,676	33,977	38,774
<b>50.000</b>	30,238	11,358	58,396	36,368	6,265	25,811	36,026	0,885	1,402	1,555	31,890	50,517	56,025
<b>80.000</b>	33,241	11,165	55,584	35,037	5,175	20,340	48,831	0,973	1,378	1,480	47,518	67,308	72,283
<b>100.000</b>	34,829	11,033	54,127	33,356	4,577	17,638	54,571	1,020	1,362	1,441	55,639	74,327	78,661
<b>120.000</b>	36,050	10,917	53,018	31,483	4,111	15,647	58,609	1,055	1,348	1,412	61,853	78,993	82,752

Tabelle 13-69: Ergebnisse der Simulation von Membran 10 mit Modell 1 ideal

$A_{\text{mem}}$	$Y_{\omega, \text{CH}_4}$	$Y_{\omega, \text{C}_2\text{H}_6}$	$Y_{\omega, \text{C}_2\text{H}_4}$	$X_{\omega, \text{CH}_4}$	$X_{\omega, \text{C}_2\text{H}_6}$	$X_{\omega, \text{C}_2\text{H}_4}$	SC	Anreicherung CH <sub>4</sub>	Anr. C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	Anr. C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>	Recovery CH <sub>4</sub>	Rec. C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	Rec. C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>
[m <sup>2</sup> ]	[mol %]						[%]	-	-	-	[%]	[%]	[%]
<b>100</b>	24,512	11,491	63,993	34,169	8,097	37,525	0,093	0,718	1,419	1,704	0,067	0,132	0,158
<b>200</b>	24,523	11,491	63,981	34,178	8,094	37,501	0,185	0,718	1,419	1,704	0,133	0,263	0,316
<b>500</b>	24,557	11,491	63,947	34,205	8,084	37,427	0,463	0,719	1,419	1,703	0,333	0,657	0,789
<b>1.000</b>	24,613	11,491	63,889	34,249	8,068	37,304	0,924	0,721	1,419	1,701	0,666	1,311	1,572
<b>2.000</b>	24,726	11,492	63,774	34,337	8,036	37,059	1,839	0,724	1,419	1,698	1,331	2,610	3,124
<b>5.000</b>	25,066	11,492	63,428	34,592	7,939	36,321	4,535	0,734	1,419	1,689	3,328	6,434	7,660
<b>10.000</b>	25,638	11,489	62,849	34,988	7,771	35,091	8,858	0,751	1,418	1,674	6,648	12,564	14,826
<b>30.000</b>	27,955	11,441	60,534	36,127	7,041	30,265	24,068	0,818	1,412	1,612	19,696	33,996	38,800
<b>50.000</b>	30,214	11,343	58,324	36,391	6,267	25,805	36,118	0,884	1,400	1,553	31,945	50,577	56,099
<b>80.000</b>	33,194	11,141	55,466	35,090	5,173	20,306	49,044	0,972	1,375	1,477	47,657	67,457	72,445
<b>100.000</b>	34,770	11,003	53,978	33,419	4,571	17,576	54,871	1,018	1,358	1,437	55,850	74,535	78,876
<b>120.000</b>	35,981	10,882	52,839	31,541	4,099	15,559	58,989	1,053	1,343	1,407	62,133	79,249	83,007

Tabelle 13-70: Ergebnisse der Simulation von Membran 10 mit Modell 3

## 13.3 Matlab®-Programme und Unterprogramme zur Simulation von Membrantrennungen

### 13.3.1 Modell 1

#### 13.3.1.1 Programm zur Beschreibung von 2 Komponenten-Gemischen, wobei die Nichtidealität der Gasphase nicht berücksichtigt wird

```

% Programm zur Berechnung einer Membrantrennung von 2 Komponenten
% unter Verwendung von Modell 1 OHNE Berücksichtigung der
% Nichtidealität der Gasphase (Fugazitätskoeffizienten)
%
% Einheiten der Eingabeparameter:
% [Fa] = m³/day          Feedstrom
% [P1] = kPa            Druck auf der Feedseite
% [P2] = kPa            Druck auf der Permeatseite
% [Amem] = m²          Membranfläche
% [R1] = m³/m² day kPa  Permeanz von Komponente 1
% [R2] = m³/m² day kPa  Permeanz von Komponente 2
% [xf1] = Molanteil     Molanteil von Komponente 1
% [phi] = keine Einheit Fugazitätskoeffizienten [1,1,1,1]
% [T] = K               Temperatur des Feed
% [nsteps] = Anzahl     Anzahl der Teilschritte
% [Titel] = String       Gibt den Titel des Excelfiles an
%
% -----
% Erklärung der Variablen:
%
% A          Flächenvariable [m²]
% Depl       Depletion (Schwund)
% dN         lokaler Übergangstrom [m³/day]
% Enr        Enrichement (Anreicherung)
% F          lokaler Strom auf der Retentatseite der Membran
[m³/day]
% Fw         Retentatstrom [m³/day]
% Rec        Recovery
% Vw         Permeatstrom [m³/day]
% x1         lokaler Molanteil von Komponente 1 im lokalen Strom
%            auf der Retentatseite der Membran
% xw         Molanteil von Komponente 1 im Retentat
% yw         Molanteil von Komponente 1 im Permeat
%
% -----

function Sol = modell1_2k(Fa,P1,P2,Amem,R1,R2,xf1,phi,T,nsteps,Titel)

% Definition, wie die Variablen heißen sollen und welche Annahmen
% zutreffen müssen

syms y1 y2 xx1 xx2 Fw dNN yyw positive
x1(1)=xf1;
x2(1)=1-xf1;

```

```

A0 = 0;

% Definition der Teilflächen A

A = linspace(A0,Amem,nsteps);

F(1) = Fa;

for lvar = 2:nsteps

% Eingabe und Lösung des Gleichungssystems

    Sol(lvar-1) = solve(y1*((F(lvar-1)-Fw)/(A(lvar)-A(lvar-1)))-...
        R1*(phi(1,1)*x1(lvar-1)*P1-phi(1,2)*y1*P2), ...
        y1/y2-(R1/R2)*((phi(1,1)*P1*x1(lvar-1)-phi(1,2)*P2*y1)/...
        (phi(2,1)*P1*x2(lvar-1)-phi(2,2)*P2*y2)), ...
        F(lvar-1)-Fw-dNN, ...
        F(lvar-1)*x1(lvar-1)-dNN*y1-Fw*xx1, ...
        1-y1-y2, ...
        1-xx1-xx2);

% Schreiben der Lösung in Vektoren, um eine weitere Verwendung zu
% ermöglichen

    yy1(lvar-1) = double(Sol(lvar-1).y1);
    yy2(lvar-1) = double(Sol(lvar-1).y2);
    F(lvar) = double(Sol(lvar-1).Fw);
    dN(lvar-1) = double(Sol(lvar-1).dNN);
    x1(lvar) = double(Sol(lvar-1).xx1);
    x2(lvar) = double(Sol(lvar-1).xx2);

    fprintf('%d Schritte von %d\n', lvar, nsteps)
end

%-----
% Berechnung des Permeatstroms und der Permeatkonzentration aus der
% Gesamt- und Komponentenbilanz über die Membran

Vw = Fa-F(end);
yw = double(solve(Vw*yyw+F(end)*x1(end)-Fa*xf1,yyw));

% Berechnung von Stagecut, Anreicherung und Schwund sowie Recovery:

Stagecut = Vw/Fa;
Enr = yw/xf1;
Depl = x1(end)/xf1;
Rec = Vw*yw/(Fa*xf1);

%-----
% Aufbereitung der Ergebnisse, um das Einlesen in ein Excelfile zu
% ermöglichen

ergebnisse = zeros(nsteps,4);

for i = 1:nsteps

```

```

if i > length(yy1)

    ergebnisse(i,1) = 0;
    ergebnisse(i,2) = x1(i);
    ergebnisse(i,3) = F(i)*10^3/(22.4*3600*24);
    ergebnisse(i,4) = 0;
else

    ergebnisse(i,1) = yy1(i);
    ergebnisse(i,2) = x1(i);
    ergebnisse(i,3) = F(i)*10^3/(22.4*3600*24);
    ergebnisse(i,4) = dN(i)*10^3/(22.4*3600*24);
end
end

ergebnisse2 = [Vw*10^3/(22.4*3600*24), yw, Stagecut, Enr,...
    Depl, Rec, phi];

%-----
% Ergebnisse werden in ein Excelfile geschrieben:

Beschriftung = {'y1(A)', 'x1(A)', 'F(A) [mol/s]', 'dN(A) [mol/s]', ...
    'Vw [mol/s]', 'yp', 'Stagecut', 'Enrichement', 'Depletion',...
    'Recovery'};

e1 = '_Modell1';
Endung = '.xlsx';

Nsteps = num2str(nsteps);
e2 = '_';
e3 = num2str(Fa*10^3/(22.4*3600*24)); % Umrechnung in mol/s
e4 = num2str(round(xf1*10^2));
e5 = num2str(round(P1*10^-2)); % Umrechnung in bar
e6 = num2str(T);
e7 = num2str(R1*10^5/(22.4*3600*24)); % Umrechnung in mol/m^2 s bar
e8 = strcat(num2str(Amem*10^-5), 'e05');

warning off MATLAB:xlswrite:AddSheet;
xlswrite(strcat(Titel,e1,Endung), Beschriftung,...
    strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'A1');
xlswrite(strcat(Titel,e1,Endung), ergebnisse,...
    strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'A2');
xlswrite(strcat(Titel,e1,Endung), ergebnisse2,...
    strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'E2');

```

### 13.3.1.2 Programm zur Beschreibung von 2 Komponenten-Gemischen, wobei die Nichtidealität der Gasphase berücksichtigt wird

```

% Programm zur Berechnung einer Membrantrennung von 2 Komponenten
% unter Verwendung von Modell 1 MIT Berücksichtigung der
% Nichtidealität der Gasphase (Fugazitätskoeffizienten)

% Einheiten der Eingabeparameter:
% [Fa] = m³/day          Feedstrom
% [P1] = kPa            Druck auf der Feedseite
% [P2] = kPa            Druck auf der Permeatseite
% [Amem] = m²           Membranfläche
% [R1] = m³/m² day kPa  Permeanz von Komponente 1
% [R2] = m³/m² day kPa  Permeanz von Komponente 2
% [xf1] = Molanteil     Molanteil von Komponente 1
% [phi] = keine Einheit Startwerte für die
%                        Fugazitätskoeffizientenberechnung
%                        [1,1;1,1;1,1;1,1]
% [T] = K               Temperatur des Feed
% [Tk] = K              kritische Temperaturen der Komponenten
% [Pk] = bar            kritische Drücke der Komponenten
% [omega]               azentrische Faktoren der Komponenten
% [k]                  binäre Wechselwirkungsparameter der
%                        Komponenten
% [nsteps] = Anzahl     Anzahl der Teilschritte
% [Titel] = String      Gibt den Titel des Excelfiles an
%
% -----
% Erklärung der Variablen:
%
% A                    Flächenvariable [m²]
% Depl                 Depletion (Schwund)
% dN                   lokaler Übergangsstrom [m³/day]
% Enr                  Enrichement (Anreicherung)
% F                    lokaler Strom auf der Retentatseite der Membran
%                        [m³/day]
% Fw                   Retentatstrom [m³/day]
% Rec                  Recovery
% Vw                   Permeatstrom [m³/day]
% x1                   lokaler Molanteil von Komponente 1 im lokalen Strom
%                        auf der Retentatseite der Membran
% xw                   Molanteil von Komponente 1 im Retentat
% yw                   Molanteil von Komponente 1 im Permeat
%
% -----

function Sol =
modell1_2k_Fugkoeff (Fa, P1, P2, Amem, R1, R2, xf1, phi, T, Tk, Pk, ...
                    omega, k, nsteps, Titel)

% Definition, wie die Variablen heißen sollen und welche Annahmen
% zutreffen müssen

syms y1 y2 xx1 xx2 Fw dNN yyw positive

```

```

x1(1)=xf1;
x2(1)=1-xf1;

A0 = 0;

% Definition der Teilflächen A

A = linspace(A0,Amem,nsteps);
F(1) = Fa;

for lvar = 2:nsteps

% Eingabe und Lösung des Gleichungssystems

    Sol(lvar-1) = solve(y1*((F(lvar-1)-Fw)/(A(lvar)-A(lvar-1)))-
R1*(phi(1,1)*x1(lvar-1)*P1-phi(1,2)*y1*P2), ...
    y1/y2-(R1/R2)*((phi(1,1)*P1*x1(lvar-1)-
phi(1,2)*P2*y1)/(phi(2,1)*P1*x2(lvar-1)-phi(2,2)*P2*y2)), ...
    F(lvar-1)-Fw-dNN, ...
    F(lvar-1)*x1(lvar-1)-dNN*y1-Fw*xx1, ...
    1-y1-y2, ...
    1-xx1-xx2);

% Schreiben der Lösung in Vektoren, um eine weitere Verwendung zu
% ermöglichen

    yy1(lvar-1) = double(Sol(lvar-1).y1);
    yy2(lvar-1) = double(Sol(lvar-1).y2);
    F(lvar) = double(Sol(lvar-1).Fw);
    dN(lvar-1) = double(Sol(lvar-1).dNN);
    x1(lvar) = double(Sol(lvar-1).xx1);
    x2(lvar) = double(Sol(lvar-1).xx2);

% Berechnung der Fugazitätskoeffizienten

    phi(:,1) = FugkPR_gem(T,P1*10^-2,Tk,Pk,omega,[x1(lvar),
x2(lvar)],k);
    phi(:,2) = FugkPR_gem(T,P2*10^-2,Tk,Pk,omega,...
[y1(lvar-1),y2(lvar-1)],k);

    fprintf('%d Schritte von %d\n', lvar, nsteps)
end

%-----
% Berechnung des Permeatstroms und der Permeatkonzentration aus der
% Gesamt- und Komponentenbilanz über die Membran

Vw = Fa-F(end);
yw = double(solve(Vw*yyw+F(end)*x1(end)-Fa*xf1,yyw));

% Berechnung von Stagecut, Anreicherung und Schwund sowie Recovery:

Stagecut = Vw/Fa;
Enr = yw/xf1;
Depl = x1(end)/xf1;

```

```

Rec = Vw*yw/(Fa*xf1);

%-----
% Aufbereitung der Ergebnisse, um das Einlesen in ein Excelfile zu
% ermöglichen

ergebnisse = zeros(nsteps,4);

for i = 1:nsteps

    if i > length(yy1)

        ergebnisse(i,1) = 0;
        ergebnisse(i,2) = x1(i);
        ergebnisse(i,3) = F(i)*10^3/(22.4*3600*24);
        ergebnisse(i,4) = 0;
    else

        ergebnisse(i,1) = yy1(i);
        ergebnisse(i,2) = x1(i);
        ergebnisse(i,3) = F(i)*10^3/(22.4*3600*24);
        ergebnisse(i,4) = dN(i)*10^3/(22.4*3600*24);
    end
end

ergebnisse2 = [Vw*10^3/(22.4*3600*24), yw, Stagecut, Enr, Depl, Rec];

%-----
% Ergebnisse werden in ein Excelfile geschrieben:

Beschriftung = {'y1(A)', 'x1(A)', 'F(A) [mol/s]', 'dN(A) [mol/s]',...
    'Vw [mol/s]', 'yp', 'Stagecut', 'Enrichement', 'Depletion',...
    'Recovery'};

e1 = '_Modell1';
Endung = '.xlsx';

Nsteps = num2str(nsteps);
e2 = '_';
e3 = num2str(Fa*10^3/(22.4*3600*24)); % Umrechnung in mol/s
e4 = num2str(round(xf1*10^2));
e5 = num2str(round(P1*10^-2)); % Umrechnung in bar
e6 = num2str(T);
e7 = num2str(R1*10^5/(22.4*3600*24)); % Umrechnung in mol/m^2 s bar
e8 = strcat(num2str(Amem*10^-5), 'e05');

warning off MATLAB:xlswrite:AddSheet;
xlswrite(strcat(Titel,e1,Endung), Beschriftung,...
    strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'A1');
xlswrite(strcat(Titel,e1,Endung), ergebnisse,...
    strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'A2');
xlswrite(strcat(Titel,e1,Endung), ergebnisse2,...
    strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'E2');

```

### 13.3.1.3 Programm zur Beschreibung von 4 Komponenten-Gemischen, wobei die Nichtidealität der Gasphase nicht berücksichtigt wird

```

% Programm zur Berechnung einer Membrantrennung von 4 Komponenten
% unter Verwendung von Modell 1 OHNE Berücksichtigung der
% Nichtidealität der Gasphase (Fugazitätskoeffizienten)
%
% Einheiten der Eingabeparameter:
% [Fa] = m³/day          Feedstrom
% [P1] = kPa            Feeddruck (P1)
% [P2] = kPa            Druck auf der Permeatseite
% [Amem] = m²           Gesamtfläche der Membran
% [R] = m³/day m² kPa   Permeanz der einzelnen Komponenten
% [xfi] = mol/mol       Molanteil von Komponente i im Feed
% [phi] = keine Einheit Startwerte für die
%                        Fugazitätskoeffizientenberechnung
%                        [1,1;1,1;1,1;1,1]
% [nsteps]              Anzahl der Teile, in die Membranfläche
%                        geteilt werden soll
% [Titel] = String      Gibt den Titel des Excelfiles an

% -----
% Erklärung der Variablen:
%
% A          Flächenvariable [m²]
% Depl       Depletion (Schwund)
% dN         lokaler Übergangsstrom [m³/day]
% Enr        Enrichement (Anreicherung)
% F          lokaler Strom auf der Retentatseite der Membran
%            [m³/day]
% Fw         Retentatstrom [m³/day]
% Rec        Recovery
% Vw         Permeatstrom [m³/day]
% xi         lokaler Molanteil von Komponente i im lokalen Strom
%            auf der Retentatseite der Membran
% xwi        Molanteil von Komponente i im Retentat
% ywi        Molanteil von Komponente i im Permeat

% -----

function Sol = modell1_4k(Fa,P1,P2,Amem,R,xf1,xf2,xf3,xf46,...
    phi,nsteps,Quelle)

syms y1 y2 y3 y46 xx1 xx2 xx3 xx46 Fw dNN positive

% Übergabe der Feedparameter in den Lösungsvektor, der in weiterer
% Folge für die Berechnung des jeweils nächsten Teilschrittes
% verwendet wird

x1(1) = xf1;
x2(1) = xf2;
x3(1) = xf3;
x4(1) = xf4;7

```

<sup>6</sup> Dieser Eintrag ist für die Beschreibung von 3-Komponentengemischen entfernt

<sup>7</sup> Diese Zeile ist für die Beschreibung von 3-Komponentengemischen entfernt

```

F(1) = Fa;

% Unterteilung der Membranfläche in nsteps Teilschritte

A0 = 0;
A = linspace(A0,Amem,nsteps);

for lvar = 2:nsteps

% Eingabe und Lösung des Gleichungssystems

    Sol(lvar-1) = solve(y1*((F(lvar-1)-Fw)/(A(lvar)-A(lvar-1)))-...
        R(1)*(phi(1,1)*x1(lvar-1)*P1-phi(1,2)*y1*P2), ...
        y2/y1-(R(2)/R(1))*((phi(2,1)*P1*x2(lvar-1)-phi(2,2)*P2*y2)/...
        (phi(1,1)*P1*x1(lvar-1)-phi(1,2)*P2*y1)), ...
        y3/y1-(R(3)/R(1))*((phi(3,1)*P1*x3(lvar-1)-phi(3,2)*P2*y3)/...
        (phi(1,1)*P1*x1(lvar-1)-phi(1,2)*P2*y1)), ...
        y4/y1-(R(4)/R(1))*((phi(4,1)*P1*x4(lvar-1)-phi(4,2)*P2*y4)/...7
        (phi(1,1)*P1*x1(lvar-1)-phi(1,2)*P2*y1)), ...7
        F(lvar-1)-Fw-dNN, ...
        F(lvar-1)*x1(lvar-1)-dNN*y1-Fw*xx1, ...
        F(lvar-1)*x2(lvar-1)-dNN*y2-Fw*xx2, ...
        F(lvar-1)*x3(lvar-1)-dNN*y3-Fw*xx3, ...7
        1-y1-y2-y3-y46, ...
        1-xx1-xx2-xx3-xx46);

% Schreiben der Lösung in Vektoren, um eine weitere Verwendung zu
% ermöglichen

    yy1(lvar-1) = double(Sol(lvar-1).y1);
    yy2(lvar-1) = double(Sol(lvar-1).y2);
    yy3(lvar-1) = double(Sol(lvar-1).y3);
    yy4(lvar-1) = double(Sol(lvar-1).y4);7
    F(lvar) = double(Sol(lvar-1).Fw);
    dN(lvar-1) = double(Sol(lvar-1).dNN);
    x1(lvar) = double(Sol(lvar-1).xx1);
    x2(lvar) = double(Sol(lvar-1).xx2);
    x3(lvar) = double(Sol(lvar-1).xx3);
    x4(lvar) = double(Sol(lvar-1).xx4);7

    fprintf('%d Schritte von %d\n', lvar, nsteps)
end

%-----
% Berechnung des Permeatstroms und der Permeatkonzentration aus der
% Gesamtbilanz und den Komponentenbilanzen über die Membran

syms yw1 yw2 yw36
Vw = Fa-F(end);
yw(1) = double(solve(Vw*yw1+F(end)*x1(end)-Fa*xf1));
yw(2) = double(solve(Vw*yw2+F(end)*x2(end)-Fa*xf2));
yw(3) = double(solve(Vw*yw3+F(end)*x3(end)-Fa*xf3));7
yw(4) = 1-yw(1)-yw(2)-yw(3);8

```

<sup>8</sup> Diese Gleichung wird bei der Beschreibung von 3-Komponentengemischen für yw(3) angeschrieben:

```

% Berechnung von Stagecut, Anreicherung und Schwund sowie Recovery:

Stagecut = Vw/Fa;
Enr = [yw(1)/xf1, yw(2)/xf2, yw(3)/xf3, yw(4)/xf46];
Depl = [x1(end)/xf1, x2(end)/xf2, x3(end)/xf3, x4(end)/xf46];
Rec = [Vw*yw(1)/(Fa*xf1), Vw*yw(2)/(Fa*xf2), ...
      Vw*yw(3)/(Fa*xf3), Vw*yw(4)/(Fa*xf4)6];

%-----
% Aufbereitung der Ergebnisse, um das Einlesen in ein Excelfile zu
% ermöglichen

ergebnisse = zeros(nsteps,10);9

for i = 1:nsteps

    if i > length(yy1)

        ergebnisse(i,1) = 0;
        ergebnisse(i,2) = 0;
        ergebnisse(i,3) = 0;
        ergebnisse(i,4) = 0;7
        ergebnisse(i,5) = x1(i);
        ergebnisse(i,6) = x2(i);
        ergebnisse(i,7) = x3(i);
        ergebnisse(i,8) = x4(i);7
        ergebnisse(i,9) = F(i)*103/(22.4*3600*24);    % Umrechnung in
mol/s

        ergebnisse(i,10) = 0;
    else

        ergebnisse(i,1) = yy1(i);
        ergebnisse(i,2) = yy2(i);
        ergebnisse(i,3) = yy3(i);
        ergebnisse(i,4) = yy4(i);7
        ergebnisse(i,5) = x1(i);
        ergebnisse(i,6) = x2(i);
        ergebnisse(i,7) = x3(i);
        ergebnisse(i,8) = x4(i);7
        ergebnisse(i,9) = F(i)*103/(22.4*3600*24);
        ergebnisse(i,10) = dN(i)*103/(22.4*3600*24);
    end
end

ergebnisse2 = [Vw*103/(22.4*3600*24), yw, Stagecut, Enr, Depl, Rec];
% -----
% Ergebnisse werden in ein Excelfile geschrieben:

```

---


$$yw(3) = 1 - yw(1) - yw(2)$$

<sup>9</sup> Statt 10 steht hier bei der Beschreibung von 3-Komponentengemischen 8. In der Schleife wird die Nummerierung durch die Entfernung einzelner Zeilen verändert

```

Beschriftung = {'y1(A)', 'y2(A)', 'y3(A)', 'y4(A)'6, 'x1(A)',
'x2(A)', ...
'x3(A)', 'x4(A)'6, 'F(A) [mol/s]', 'dN(A) [mol/s]', 'Vw
[mol/s]', ...
'yw1', 'yw2', 'yw3', 'yw4' ,6 'Stagecut', 'Enrichement K1', ...
'Enrichement K2', 'Enrichement K3', 'Enrichement K4' ,6, ...
'Depletion K1', 'Depletion K2', 'Depletion K3', 'Depletion K4' ,6, ...
'Recovery K1', 'Recovery K2', 'Recovery K3', 'Recovery K4' ,6};

e1 = '_Modell1';
Endung = '.xlsx';

Nsteps = num2str(nsteps);
e2 = '_';
e3 = num2str(Fa*103/(22.4*3600*24)); % Umrechnung in mol/s
e4 = num2str(round(xf1*102));
e5 = num2str(round(P1*10-2)); % Umrechnung in bar
e6 = num2str(T);
e7 = num2str(R(1)*105/(22.4*3600*24)); % Umrechnung in mol/m2 s
bar
e8 = strcat(num2str(Amem*10-5), 'e05');

warning off MATLAB:xlswrite:AddSheet;
xlswrite(strcat(Quelle,e1,Endung), Beschriftung, ...
strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'A1');
xlswrite(strcat(Quelle,e1,Endung), ergebnisse, ...
strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'A2');
xlswrite(strcat(Quelle,e1,Endung), ergebnisse2, ...
strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'K2');

```

### 13.3.1.4 Programm zur Beschreibung von 4 Komponenten-Gemischen, wobei die Nichtidealität der Gasphase berücksichtigt wird

```

% Programm zur Berechnung einer Membrantrennung von 4 Komponenten
% unter Verwendung von Modell 1 MIT Berücksichtigung der
% Nichtidealität der Gasphase (Fugazitätskoeffizienten)

% Einheiten der Eingabeparameter:
% [Fa] = m³/day          Feedstrom
% [P1] = kPa            Druck auf der Feedseite
% [P2] = kPa            Druck auf der Permeatseite
% [Amem] = m²           Membranfläche
% [R] = m³/m² day kPa   Permeanzen der einzelnen Komponenten
% [xf1] = Molanteil     Molanteil von Komponente 1
% [phi] = keine Einheit Startwerte für die
%                       Fugazitätskoeffizientenberechnung
%                       [1,1;1,1;1,1;1,1]
% [T] = K               Temperatur des Feed
% [Tk] = K              kritische Temperaturen der Komponenten
% [Pk] = bar            kritische Drücke der Komponenten
% [omega]               azentrische Faktoren der Komponenten
% [k]                   binäre Wechselwirkungsparameter der
%                       Komponenten
% [nsteps] = Anzahl     Anzahl der Teilschritte
% [Titel] = String      Gibt den Titel des Excelfiles an
%
% -----
% Erklärung der Variablen:
%
% A                     Flächenvariable [m²]
% Depl                  Depletion (Schwund)
% dN                    lokaler Übergangsstrom [m³/day]
% Enr                   Enrichement (Anreicherung)
% F                     lokaler Strom auf der Retentatseite der Membran
%                       [m³/day]
% Fw                    Retentatstrom [m³/day]
% Rec                   Recovery
% Vw                    Permeatstrom [m³/day]
% xi                    lokaler Molanteil von Komponente i im lokalen Strom
%                       auf der Retentatseite der Membran
% xwi                   Molanteil von Komponente i im Retentat
% ywi                   Molanteil von Komponente i im Permeat
%
% -----

function ergmat =
modell1_4k_Fugkoeff (Fa, P1, P2, Amem, R, xf1, xf2, xf3, xf46, ...
    phi, T, Tk, Pk, omega, k, nsteps, Quelle)

syms y1 y2 y3 y46 xx1 xx2 xx3 xx46 Fw dNN positive

```

```

% Übergabe der Feedparameter in den Lösungsvektor, der in weiterer
% Folge für die Berechnung des jeweils nächsten Teilschrittes
% verwendet wird.

x1(1) = xf1;
x2(1) = xf2;
x3(1) = xf3;
x4(1) = xf4; 7

F(1) = Fa;

% Unterteilung der Membranfläche in nsteps Teilschritte

A0 = 0;
A = linspace(A0,Amem,nsteps);

for lvar = 2:nsteps

% Eingabe und Lösung des Gleichungssystems

    ergmat(lvar-1) = solve(y1*((F(lvar-1)-Fw)/(A(lvar)-A(lvar-1)))-...
        R(1)*(phi(1,1)*x1(lvar-1)*P1-phi(1,2)*y1*P2), ...
        y2/y1-(R(2)/R(1))*((phi(2,1)*P1*x2(lvar-1)-phi(2,2)*P2*y2)/...
        (phi(1,1)*P1*x1(lvar-1)-phi(1,2)*P2*y1)), ...
        y3/y1-(R(3)/R(1))*((phi(3,1)*P1*x3(lvar-1)-phi(3,2)*P2*y3)/...
        (phi(1,1)*P1*x1(lvar-1)-phi(1,2)*P2*y1)), ...
        y4/y1-(R(4)/R(1))*((phi(4,1)*P1*x4(lvar-1)-phi(4,2)*P2*y4)/...
        (phi(1,1)*P1*x1(lvar-1)-phi(1,2)*P2*y1)), ... 7
        F(lvar-1)-Fw-dNN, ...
        F(lvar-1)*x1(lvar-1)-dNN*y1-Fw*xx1, ...
        F(lvar-1)*x2(lvar-1)-dNN*y2-Fw*xx2, ...
        F(lvar-1)*x3(lvar-1)-dNN*y3-Fw*xx3, ... 7
        1-y1-y2-y3-y46, ...
        1-xx1-xx2-xx3-xx46);

% Schreiben der Lösung in Vektoren, um eine weitere Verwendung zu
% ermöglichen

    yy1(lvar-1) = double(ergmat(lvar-1).y1);
    yy2(lvar-1) = double(ergmat(lvar-1).y2);
    yy3(lvar-1) = double(ergmat(lvar-1).y3);
    yy4(lvar-1) = double(ergmat(lvar-1).y4); 7

    F(lvar) = double(ergmat(lvar-1).Fw);
    dN(lvar-1) = double(ergmat(lvar-1).dNN);
    x1(lvar) = double(ergmat(lvar-1).xx1);
    x2(lvar) = double(ergmat(lvar-1).xx2);
    x3(lvar) = double(ergmat(lvar-1).xx3);
    x4(lvar) = double(ergmat(lvar-1).xx4); 7

    xvek = [x1(lvar), x2(lvar), x3(lvar), x4(lvar)]6;
    yvek = [yy1(lvar-1), yy2(lvar-1), yy3(lvar-1), yy4(lvar-1)]6;

    phi(:,1) = FugkPR_gem(T,P1*10^-2,Tk,Pk,omega,xvek,k);
    phi(:,2) = FugkPR_gem(T,P2*10^-2,Tk,Pk,omega,yvek,k);

```

```

fprintf('%d Schritte von %d\n', lvar, nsteps)

end

%-----
% Berechnung des Permeatstroms und der Permeatkonzentration aus der
% Gesamtbilanz und den Komponentenbilanzen über die Membran

syms yw1 yw2 yw36
Vw = Fa-F(end);
yw(1) = double(solve(Vw*yw1+F(end)*x1(end)-Fa*xf1));
yw(2) = double(solve(Vw*yw2+F(end)*x2(end)-Fa*xf2));
yw(3) = double(solve(Vw*yw3+F(end)*x3(end)-Fa*xf3));7
yw(4) = 1-yw(1)-yw(2)-yw(3);8

% Berechnung von Stagecut, Anreicherung und Schwund sowie Recovery:

Stagecut = Vw/Fa;
Enr = [yw(1)/xf1, yw(2)/xf2, yw(3)/xf3, yw(4)/xf46];
Depl = [x1(end)/xf1, x2(end)/xf2, x3(end)/xf3, x4(end)/xf46];
Rec = [Vw*yw(1)/(Fa*xf1), Vw*yw(2)/(Fa*xf2), ...
       Vw*yw(3)/(Fa*xf3), Vw*yw(4)/(Fa*xf4)6];

%-----
% Aufbereitung der Ergebnisse, um das Einlesen in ein Excelfile zu
% ermöglichen

ergebnisse = zeros(nsteps,10);9

for i = 1:nsteps

    if i > length(yy1)

        ergebnisse(i,1) = 0;
        ergebnisse(i,2) = 0;
        ergebnisse(i,3) = 0;
        ergebnisse(i,4) = 0;7
        ergebnisse(i,5) = x1(i);
        ergebnisse(i,6) = x2(i);
        ergebnisse(i,7) = x3(i);
        ergebnisse(i,8) = x4(i);7
        ergebnisse(i,9) = F(i)*103/(22.4*3600*24); % Umrechnung in
mol/s
        ergebnisse(i,10) = 0;
    else

        ergebnisse(i,1) = yy1(i);
        ergebnisse(i,2) = yy2(i);
        ergebnisse(i,3) = yy3(i);
        ergebnisse(i,4) = yy4(i);7
        ergebnisse(i,5) = x1(i);
        ergebnisse(i,6) = x2(i);
        ergebnisse(i,7) = x3(i);
        ergebnisse(i,8) = x4(i);7
        ergebnisse(i,9) = F(i)*103/(22.4*3600*24);
    end
end

```

```

        ergebnisse(i,10) = dN(i)*10^3/(22.4*3600*24);
    end
end

ergebnisse2 = [Vw*10^3/(22.4*3600*24), yw, Stagecut, Enr, Depl, Rec];

% -----
% Ergebnisse werden in ein Excelfile geschrieben und Plots erstellt:

Beschriftung = {'y1(A)', 'y2(A)', 'y3(A)', 'y4(A)'6, 'x1(A)',
'x2(A)',...
'x3(A)', 'x4(A)'6, 'F(A) [mol/s]', 'dN(A) [mol/s]', 'Vw
[mol/s]',...
'yw1', 'yw2', 'yw3', 'yw4', 'Stagecut', 'Enrichement K1',...
'Enrichement K2', 'Enrichement K3', 'Enrichement K4'6,...
'Depletion K1', 'Depletion K2', 'Depletion K3', 'Depletion K4'6,...
'Recovery K1', 'Recovery K2', 'Recovery K3', 'Recovery K4'6};

% -----
% Der Name des Excel-Files wird aus der Gesamtfläche der Membran
erstellt

e1 = '_Modell1';
Endung = '.xlsx';

Nsteps = num2str(nsteps);
e2 = '_';
e3 = num2str(round(Fa*10^3/(22.4*3600*24))); % Umrechnung in mol/s
e4 = num2str(round(xf1*10^2));
e5 = num2str(round(P1*10^-2)); % Umrechnung in bar
e6 = strcat(num2str(Amem*10^-5), 'e05');

warning off MATLAB:xlswrite:AddSheet;
xlswrite(strcat(Quelle,e1,Endung), Beschriftung,...
strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6), 'A1');
xlswrite(strcat(Quelle,e1,Endung), ergebnisse,...
strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6), 'A2');
xlswrite(strcat(Quelle,e1,Endung), ergebnisse2,...
strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6), 'K2');

```

## 13.3.1.5 Unterprogramm zur Berechnung der Fugazitätskoeffizienten

```

% Berechnung der Fugazitätskoeffizienten einer Mischungen mittels
% Peng-Robinson-Gleichung
%
% Einheiten der Eingabeparameter:
% [T] = K                Temperatur
% [P] = kPa              Feeddruk (P1)
% [phi] = keine Einheit  Startwerte für die
%                        Fugazitätskoeffizientenberechnung
%                        [1,1;1,1;1,1;1,1]
% [Tk] = K               kritische Temperaturen der Komponenten
% [Pk] = bar             kritische Drücke der Komponenten
% [omega] =              azentrische Faktoren der Komponenten
% [y] = mol/mol          Molanteile der Komponenten der
%                        Mischung
% [k] =                  binäre Wechselwirkungsparameter der
%                        Komponenten
%-----

function PHI = FugkPR_gem(T,P,Tk,Pk,omega,y,k)

n = length(y);

Tr = T./Tk;

R = 8.314462*10^-2; % 10^-2 aufgrund der der Einheit des Drucks (bar)
und
%                    % jener des Volumens (l/mol)

% Berechnung der Reinstoff-Parameter ai und bi

alpha = (1+(0.37464+1.54266*omega-0.26992*omega.^2).*(1-Tr.^0.5)).^2;

a = ((0.457235*(R^2).*(Tk.^2).*alpha)./Pk);

b = 0.077796*R.*Tk./Pk;

% Berechnung der Mischungs-Parameter am und bm

for i = 1:n
    for j = 1:n
        ami(i,j) = (y(i)*y(j)*(a(i)*a(j))^(0.5)*(1-k(i,j)));
    end
end

am = sum(sum(ami));

for i = 1:n
    bmi(i) = y(i)*b(i);
end

```

```

bm = sum(bmi);

% Berechnung des Volumens der Mischung mittels Zustandsgleichung:

syms v real
assumeAlso(v>=0)

zst = P-R*T/(v-bm)+am/(v^2+2*bm*v-bm^2);

V = double(solve(zst,v));

% Berechnung des Kompressibilitätsfaktors Z

Z = P*V/(R*T);

% Berechnung des Fugazitätskoeffizienten PHI

PHI = exp((b/bm)*(Z-1)-log(Z*(1-
bm/V))+(1/(bm*R*T))*((2^0.5*am*b)/(4*bm)...
-(am*a/2).^0.5)*log((1+bm/V*(1+2^0.5))/(1+bm/V*(1-2^0.5))));

```

## 13.3.2 Modell 2

## 13.3.2.1 Hauptprogramm zur Beschreibung von 4 Komponentengemischen

```

% Programm zur Berechnung einer Membrantrennung von 4 Komponenten
% unter Verwendung von Modell 2
%
% Einheiten der Eingabeparameter:
% [Fa] = mol/s           Feedstrom
% [T] = K                Temperatur
% [P1] = Pa             Feeddruck
% [P2] = Pa             Permeatdruck
% [Di] = m              Innendurchmesser der Hohlfaser
% [Do] = m              Außendurchmesser der Hohlfaser
% [NF] = Anzahl         Anzahl der Hohlfasern im Modul
% [d] = m               Dicke der aktiven Trennschicht
% [Lfib] = m            aktive Länge der Faser
% [Amem] = m2          Membranfläche
% [Q] = mol/s m Pa     Permeabilitäten der Komponenten
% [xfi] = Molanteil     Molanteil von Komponente i im Feed
% [my] = Pa s          Viskositäten der Komponenten
% [nsteps] = Anzahl    Anzahl der Teilschritte
% [Titel] = String     Gibt den Titel des Excelfiles an
%
% -----
% alph          Permselektivität Qi/Q(am schlechtesten permeierende
%               Komponente
% Depl          Depletion (Schwund)
% dNq          auf den Feedstrom bezogener lokaler Übergangsstrom
% Enr          Enrichement (Anreicherung)
% F            lokaler Strom auf der Retentatseite der Membran
%             [mol/s]
% Fq          auf den Feedstrom bezogener lokaler Strom des
%             aktuellen Teilschrittes
% Fqer        Vektor aus den auf den Feedstrom bezogenen lokalen
%             Strömen
%             der vorangegangenen Teilschritte
% Fw          Retentatstrom [mol/s]
% gam         Druckverhältnis P2/P1
% K           Konstante
% Rec        Recovery
% S          dimensionslose Fläche
% Vw        Permeatstrom [mol/s]
% xi        lokaler Molanteil von Komponente i im lokalen Strom
%           auf der Retentatseite der Membran
% xw(i)     Molanteil von Komponente i im Retentat
% yw(i)     Molanteil von Komponente i im Permeat
%
% -----

function Sol =
modell12_4k(Fa,T,P1,P2,Di,Do,d,NF,Amem,Lfib,Q,xf1,xf2,...
           xf3,xf46,my,nsteps,Titel)

```

```

Rk = 8.314;                % [J/mol*K] allgemeine Gaskonstante

%-----
% Berechnung der Membranpermselektivität (Permeabilität von Komponente
% i zu Permeabilität der am von Komponente i zu Permeabilität der am
% schlechtesten permeierenden Komponente

for i=1:length(Q)
    alph(i) = Q(i)/Q(end);
end

%-----

% Berechnung von Konstante K, die sich aus der dimensionslosen
% Darstellung
% des Druckverlaufs nach Hagen-Poiseuille ergibt

K = (256*my(end)*Rk*T*Fa^2)/(pi^2*(Q(end)/d)*P1^3*Do*Di^4*NF^2);

%-----

gam0 = P2/P1;             %          Druckverhältnis am Eintritt des
Feed
Fquer(1) = 1;

%-----
% Bestimmung der Anfangs- und Endpunkte der Integration:

S0 = S_KKS(0, Do, NF, Q(end), d, P1, Fa);
Send = S_KKS(Lfib, Do, NF, Q(end), d, P1, Fa);
S = linspace(S0, Send, nsteps);

%-----
% Lösen des Differenzialgleichungssystems mittels
Differenzenquotienten

x1(1) = xf1;
x2(1) = xf2;
x3(1) = xf3;
x4(1) = xf4; 7
gam(1) = gam0;

syms y0
syms y1 y2 y3 y46 positive
assumeAlso(y1 <= 1)
assumeAlso(y2 <= 1)
assumeAlso(y3 <= 1)
assumeAlso(y4 <= 1) 7

Nq = 0;
syms xx1 xx2 xx3 xx46 Fq dNq gamm positive
assumeAlso(xx1, 'real')
assumeAlso(gamm, 'real')

myg = 0;                 % [Pa s] Startwert für die Viskosität der Mischung

```

```

for lvar=2:nsteps

% Eingabe und Lösung des Gleichungssystems

    eqn1a = (xx1-x1(lvar-1))/(S(lvar)-S(lvar-1))-...
            ((alph(1)/Fquer(lvar-1))*(x1(lvar-1)-gamm*y1)*(x1(lvar-1)/y1-
1));
    eqn1b = (xx2-x2(lvar-1))/(S(lvar)-S(lvar-1))-...
            ((alph(2)/Fquer(lvar-1))*(x2(lvar-1)-gamm*y2)*(x2(lvar-1)/y2-
1));
    eqn1c = (xx3-x3(lvar-1))/(S(lvar)-S(lvar-1))-...7
            ((alph(3)/Fquer(lvar-1))*(x3(lvar-1)-gamm*y3)*(x3(lvar-1)/y3-
1));7
    eqn2 = 1-xx1-xx2-xx3-xx46;
    eqn3a = alph(1)*x1(lvar-1)*y0/(1-gamm+gamm*alph(1)*y0)-y1;
    eqn3b = alph(2)*x2(lvar-1)*y0/(1-gamm+gamm*alph(2)*y0)-y2;
    eqn3c = alph(3)*x3(lvar-1)*y0/(1-gamm+gamm*alph(3)*y0)-y3;7
    eqn4 = y1+y2+y3+y46-1;
    eqn5 = (Fq-Fquer(lvar-1))/(S(lvar)-S(lvar-1))+(1-gamm)/y0;
    eqn6 = (gamm^2-gam(lvar-1)^2)/(S(lvar)-S(lvar-1))-
(K*myg/my(end))*Nq;

% Eigentlich sollte ein Plus vor dem K stehen (laut Sakellaropoulos et
% al., aber da der Druckverlust im Gegenstrom bestimmt wird, ist Nq
% entgegen der Zählrichtung und daher negativ

    eqn7 = y1/alph(1)+y2/alph(2)+y3/alph(3)+y46-y0;
    eqn8 = Fquer(lvar-1)-Fq-dNq;

    Sol = solve(eqn1a, eqn1b, eqn1c6, eqn2, eqn3a, eqn3b, eqn3c6,
eqn4, ...
            eqn5, eqn6, eqn7,
eqn8, y0, y1, y2, y3, y46, xx1, xx2, xx3, xx46, Fq, gamm, dNq);

% Schreiben der Lösung in Vektoren, um eine weitere Verwendung zu
% ermöglichen

    x1(lvar) = double(Sol.xx1);
    x2(lvar) = double(Sol.xx2);
    x3(lvar) = double(Sol.xx3);
    x4(lvar) = double(Sol.xx4);7
    Fquer(lvar) = double(Sol.Fq);
    gam(lvar) = double(Sol.gamm);
    dNquer(lvar-1) = double(Sol.dNq);
    Nq = sum(dNquer);
    yy1(lvar-1) = double(Sol.y1);
    yy2(lvar-1) = double(Sol.y2);
    yy3(lvar-1) = double(Sol.y3);
    yy4(lvar-1) = double(Sol.y4);7

% Berechnung der Viskosität der Mischung

    myg = mygem(yy1(lvar-1), yy2(lvar-1), yy3(lvar-1), yy4(lvar-1))6, ...
            my(1), my(2), my(3), my(4)6);6 % [Pa s] Viskosität der
Mischung

    fprintf('%d. Schritt von %d\n', lvar, nsteps)

```

```

end

%-----
% Berechnung der Ein- und Ausgangsströme sowie des Permeatdrucks

Fw = Fquer(end)*Fa;
Fax1 = Fa*xf1;
Fax2 = Fa*xf2;
Fax3 = Fa*xf3;
Fax4 = Fa*xf4; 7

Fwx1 = Fw*x1(end);
Fwx2 = Fw*x2(end);
Fwx3 = Fw*x3(end);
Fwx4 = Fw*x4(end); 7

Pw=gam(end)*P1;           % Berechnung des Permeatdrucks

xw1 = x1(end);
xw2 = x2(end);
xw3 = x3(end);
xw4 = x4(end); 7

syms yw1 yw2 yw36

Vw=Fa-Fw;                 % Berechnung des Permeatflusses

yw(1) = double(solve(Fw*xw1+Vw*yw1-Fa*x1(1),yw1));
yw(2) = double(solve(Fw*xw2+Vw*yw2-Fa*x2(1),yw2));
yw(3) = double(solve(Fw*xw3+Vw*yw3-Fa*x3(1),yw3)); 7
yw(4) = 1-yw(1)-yw(2)-yw(3); 8

% Berechnung von Stagecut, Anreicherung und Schwund sowie Recovery:

Stagecut = Nq;
Enr = [yw(1)/xf1, yw(2)/xf2, yw(3)/xf3, yw(4)/xf46];
Depl = [xw1/xf1, xw2/xf2, xw3/xf3, xw4/xf46];
Rec = [Vw*yw(1)/(Fa*xf1), Vw*yw(2)/(Fa*xf2), ...
       Vw*yw(3)/(Fa*xf3), Vw*yw(4)/(Fa*xf4) 6];

%-----
% Aufbereitung der Ergebnisse, um das Einlesen in ein Excelfile zu
% ermöglichen

ergebnisse = zeros(nsteps,11); 10

for i = 1:nsteps

    if i > length(yy1)

        ergebnisse(i,1) = 0;
        ergebnisse(i,2) = 0;

```

<sup>10</sup> Statt 11 steht hier bei der Beschreibung von 3-Komponentengemischen 9. In der Schleife wird die Nummerierung durch die Entfernung einzelner Zeilen verändert

```

    ergebnisse(i,3) = 0;
    ergebnisse(i,4) = 0; 7
    ergebnisse(i,5) = x1(i);
    ergebnisse(i,6) = x2(i);
    ergebnisse(i,7) = x3(i);
    ergebnisse(i,8) = x4(i); 7
    ergebnisse(i,9) = Fquer(i)*Fa;
    ergebnisse(i,10) = 0;
    ergebnisse(i,11) = gam(i);
else
    ergebnisse(i,1) = yy1(i);
    ergebnisse(i,2) = yy2(i);
    ergebnisse(i,3) = yy3(i);
    ergebnisse(i,4) = yy4(i); 7
    ergebnisse(i,5) = x1(i);
    ergebnisse(i,6) = x2(i);
    ergebnisse(i,7) = x3(i);
    ergebnisse(i,8) = x4(i); 7
    ergebnisse(i,9) = Fquer(i)*Fa;
    ergebnisse(i,10) = dNquer(i)*Fa;
    ergebnisse(i,11) = gam(i);
end
end

ergebnisse2 = [Vw, yw, Pw, Stagecut, Enr, Depl, Rec];

%-----
% Ergebnisse werden in ein Excelfile geschrieben:

Beschriftung = {'y1(S)', 'y2(S)', 'y3(S)', 'y4(S)'6, 'x1(S)',
'x2(S)',...
    'x3(S)', 'x4(S)'6, 'F(S) [mol/s]', 'dN(S) [mol/s]', 'gamma',
'Vw',...
'yw1', 'yw2', 'yw3', 'yw4'6, 'Pw [Pa]', 'Stagecut', 'Enrichement
K1',...
'Enrichement K2', 'Enrichement K3', 'Enrichement K4'6,...
'Depletion K1', 'Depletion K2', 'Depletion K3', 'Depletion K4'6,...
'Recovery K1', 'Recovery K2', 'Recovery K3', 'Recovery K4'6};

e1 = '_Modell12';
Endung = '.xlsx';

Nsteps = num2str(nsteps);
e2 = '_';
e3 = num2str(Fa);
e4 = num2str(round(xf1*102));
e5 = num2str(round(P1*10-5)); % Umrechnung in [bar]
e6 = num2str(T);
e7 = num2str(Q(1)*d*105); % Umrechnung in [mol/m2 s bar]
e8 = num2str(Amem);

warning off MATLAB:xlswrite:AddSheet;
xlswrite(strcat(Titel,e1,Endung), Beschriftung,...
    strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'A1');
xlswrite(strcat(Titel,e1,Endung), ergebnisse,...
    strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'A2');

```

```

xlswrite(strcat(Titel,e1,Endung), ergebnisse2,...
        strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'L2');

```

### 13.3.2.2 Unterprogramm S\_KKS.m

```

% Berechnung der dimensionslosen Flächenvariable S, die in Modell 2
% verwendet wird
%
% Einheiten der Eingabeparameter:
% [z] = m                Längenvariable
% [Do] = m               Außendurchmesser der Hohlfaser
% [NF] = Anzahl         Anzahl der Hohlfasern im Modul
% [Q] = mol/s m Pa     Permeabilität der am langsamsten
%                       permeierenden Komponente
% [d] = m               Dicke der aktiven Trennschicht
% [P1] = Pa            Feeddruck
% [Fa] = mol/s         Feedstrom

function S=S_KKS(z,Do,NF,Q,d,P1,Fa)

S = pi*Do*z*NF*(Q/d)*(P1/Fa);

```

### 13.3.3 Modell 3

#### 13.3.3.1 Programm zur Beschreibung von 2 Komponenten-Gemischen

```

% Programm zur Berechnung einer Membrantrennung von 2 Komponenten
% unter Verwendung von Modell 3

% Einheiten der Eingabeparameter:
% [Fa] = mol/s           Feedstrom
% [P1] = bar             Feeddruck
% [P2] = bar             Permeatdruck
% [Lfib] = m             aktive Länge der Faser
% [Amem] = m2           Membranfläche
% [R1] = mol/s m2 bar   Permeanz von Komponente 1
% [R2] = mol/s m2 bar   Permeanz von Komponente 2
% [xf1] = Molanteil      Molanteil von Komponente 1
% T = [K]                Temperatur
% [nsteps] = Anzahl      Anzahl der Teilschritte
% [Titel] = String       Gibt den Titel des Excelfiles an

% -----
% Erklärung der Variablen:

% alph          Permselektivität R1/R2
% Depl          Depletion (Schwund)
% dNq           auf den Feedstrom bezogener lokaler Übergangstrom
% Enr           Enrichement (Anreicherung)
% F             lokaler Strom auf der Retentatseite der Membran
%              [mol/s]
% Fq           auf den Feedstrom bezogener lokaler Strom des
%              aktuellen Teilschrittes
% Fquer        Vektor aus den auf den Feedstrom bezogenen lokalen
%              Strömen der vorangegangenen Teilschritte
% Fw           Retentatstrom [mol/s]
% gam          Druckverhältnis P2/P1
% K            dimensionslose Fläche
% Rec          Recovery
% Vw           Permeatstrom [mol/s]
% x1           lokaler Molanteil von Komponente 1 im lokalen Strom
%              auf der Retentatseite der Membran
% xw           Molanteil von Komponente 1 im Retentat
% yw           Molanteil von Komponente 1 im Permeat
% z           Längenvariable [m]
% zquer        reduzierte Längenvariable

function Sol = modell3_2k(Fa,P1,P2,Lfib,Amem,R1,R2,xf1,T,nsteps,Titel)

gamw = P2/P1;
alph = R1/R2;
K = Amem*P1*R1/Fa;
Fquer(1)=1;
x1(1) = xf1;

% Definition, wie die Variablen heißen sollen und welche Annahmen
% zutreffen müssen

```

```

syms xx1 real
syms y1 yyw Fq dNq positive

% Lösung der Gleichungen

z = linspace(0,Lfib,nsteps);
zquer = z/Lfib;
gam = gamw;

for lvar =2:nsteps           % lvar ist die Laufvariable für die
Teilschritte

% Eingabe des Gleichungssystems

    eqn1 = (Fq-Fquer(lvar-1))/(zquer(lvar)-zquer(lvar-1))+...
            K*((x1(lvar-1)-gam*y1)+1/alph*((1-x1(lvar-1))-gam*(1-y1)));
    eqn2 = Fquer(lvar-1)*((xx1-x1(lvar-1))/(zquer(lvar)-zquer(lvar-
1)))+...
            K*((1-x1(lvar-1))*(x1(lvar-1)-gam*y1)-(x1(lvar-1)/alph)*...
            ((1-x1(lvar-1))-gam*(1-y1)));
    eqn3 = Fq*xx1+dNq*y1-Fquer(lvar-1)*x1(lvar-1);
    eqn4 = Fq+dNq-Fquer(lvar-1);

% Berechnung der Lösung des Teilschrittes lvar:

    Sol(lvar-1) = solve(eqn1,eqn2,eqn3,eqn4, xx1,y1,Fq,dNq);

% Schreiben der Lösung in Vektoren, um eine weitere Verwendung zu
% ermöglichen

    x1(lvar) = double(Sol(lvar-1).xx1);
    y1(lvar) = double(Sol(lvar-1).y1);
    Fquer(lvar) = double(Sol(lvar-1).Fq);
    dNquer(lvar-1) = double(Sol(lvar-1).dNq);

    fprintf('%d Schritte von %d\n', lvar, nsteps)

end

%-----
% Berechnung des Permeatstroms und der Permeatkonzentration aus der
% Gesamtbilanz über die Membran

Fw = Fquer(end)*Fa;
Vw = Fa-Fw;
xw = x1(end);

yw = double(solve(Fw*xw+Vw*yyw-Fa*x1(1),yyw));

F=Fquer*Fa;

% Berechnung des Übergangstromes über die Membran in jedem
% Teilschritt

dN = dNquer*Fa;

```

```

% Berechnung von Stagecut, Anreicherung und Schwund sowie Recovery:
Stagecut = Vw/Fa;
Enr = yw/xf1;
Depl = xw/xf1;
Rec = Vw*yw/(Fa*xf1);

%-----
% Aufbereitung der Ergebnisse, um das Einlesen in ein Excelfile zu
% ermöglichen
ergebnisse = zeros(nsteps,4);

for lvar = 1:nsteps

    if lvar > length(yy1)

        ergebnisse(lvar,1) = 0;
        ergebnisse(lvar,2) = x1(lvar);
        ergebnisse(lvar,3) = F(lvar);
        ergebnisse(lvar,4) = 0;
    else

        ergebnisse(lvar,1) = yy1(lvar);
        ergebnisse(lvar,2) = x1(lvar);
        ergebnisse(lvar,3) = F(lvar);
        ergebnisse(lvar,4) = dN(lvar);
    end
end

ergebnisse2 = [Vw, yw, Stagecut, Enr, Depl, Rec];

%-----
% Ergebnisse werden in ein Excelfile geschrieben:
Beschriftung = {'y1(z)', 'x1(z)', 'F(z) [mol/s]', 'dN(z) [mol/s]', ...
    'Vw [mol/s]', 'yp', 'Stagecut', 'Enrichement', 'Depletion',...
    'Recovery'};

e1 = '_Modell13';
Endung = '.xlsx';

Nsteps = num2str(nsteps);
e2 = '_';
e3 = num2str(Fa);
e4 = num2str(round(xf1*10^2));
e5 = num2str(round(P1));
e6 = num2str(T);
e7 = num2str(R1);
e8 = num2str(Amem);

warning off MATLAB:xlswrite:AddSheet;
xlswrite(strcat(Titel,e1,Endung), Beschriftung,...
    strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'A1');
xlswrite(strcat(Titel,e1,Endung), ergebnisse,...
    strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'A2');
xlswrite(strcat(Titel,e1,Endung), ergebnisse2,...
    strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'E2');

```

## 13.3.3.2 Programm zur Beschreibung von 4 Komponenten-Gemischen

```

% Programm zur Berechnung einer Membrantrennung von 4 Komponenten
% unter Verwendung von Modell 3
%
% Einheiten der Eingabeparameter:
% [Fa] = mol/s           Feedstrom
% [P1] = bar            Feeddruck
% [P2] = bar            Permeatdruck
% [Lfib] = m            aktive Länge der Faser
% [Amem] = m2          Membranfläche
% [R] = mol/s m2 bar   Permeanz von Komponente 1
% [xfi] = Molanteil     Molanteil von Komponente i im Feed
% [T] = K              Temperatur
% [nsteps] = Anzahl    Anzahl der Teilschritte
% [Titel] = String     Gibt den Titel des Excelfiles an
%
% -----
% alphli      Permselektivität R1/Ri
% Depl        Depletion (Schwund)
% dNq         auf den Feedstrom bezogener lokaler Übergangstrom
% Enr         Enrichement (Anreicherung)
% F           lokaler Strom auf der Retentatseite der Membran
%            [mol/s]
% Fq          auf den Feedstrom bezogener lokaler Strom des
%            aktuellen Teilschrittes
% Fquer       Vektor aus den auf den Feedstrom bezogenen lokalen
%            Strömen der vorangegangenen Teilschritte
% Fw          Retentatstrom [mol/s]
% gam         Druckverhältnis P2/P1
% K           dimensionslose Fläche
% Rec         Recovery
% Vw          Permeatstrom [mol/s]
% xi          lokaler Molanteil von Komponente i im lokalen Strom
%            auf der Retentatseite der Membran
% xw(i)       Molanteil von Komponente i im Retentat
% yw(i)       Molanteil von Komponente i im Permeat
% z           Längenvariable [m]
% zquer       reduzierte Längenvariable
% -----

function Sol = modell3_4k(Fa,P1,P2,Lfib,Amem,R,xf1,xf2,xf3,xf46,...
    T,nsteps,Titel)

gam = P2/P1;
alph12 = R(1)/R(2);
alph13 = R(1)/R(3);
alph14 = R(1)/R(4); 7

K = Amem*P1*R(1)/Fa;
Fquer(1)=1;
x1(1) = xf1;
x2(1) = xf2;
x3(1) = xf3;
x4(1) = xf4; 7

```

```

% Definition, wie die Variablen heißen sollen und welche Annahmen
% zutreffen müssen

syms xx1 xx2 xx3 xx46 positive
assumeAlso(xx1,'real')
syms y1 y2 y3 y46 yyw1 yyw2 yyw3 yyw46 Fq dNq positive

% Lösung der Gleichungen

z = linspace(0,Lfib,nsteps);
zquer = z/Lfib;

for lvar =2:nsteps          % lvar ist die Laufvariable für die
Teilschritte

    % Eingabe des Gleichungssystems

    eqn1 = (Fq-Fquer(lvar-1))/(zquer(lvar)-zquer(lvar-1))+...
        K*((x1(lvar-1)-gam*y1)+1/alph12*(x2(lvar-1)-gam*y2)+...
        1/alph13*(x3(lvar-1)-gam*y3)+1/alph14*(x4(lvar-1)-gam*y4)6);
    eqn2a = Fquer(lvar-1)*((xx1-x1(lvar-1))/(zquer(lvar)-zquer(lvar-
1)))...
        +K*((1-x1(lvar-1))*(x1(lvar-1)-gam*y1)-...
        x1(lvar-1)*((1/alph12)*(x2(lvar-1)-gam*y2)+...
        (1/alph13)*(x3(lvar-1)-gam*y3)+(1/alph14)*(x4(lvar-1)-gam*y4)6
));
    eqn2b = Fquer(lvar-1)*((xx2-x2(lvar-1))/(zquer(lvar)-zquer(lvar-
1)))...
        -K*x2(lvar-1)*((x1(lvar-1)-gam*y1)+...
        (1/alph12)*(x2(lvar-1)-gam*y2)+...
        (1/alph13)*(x3(lvar-1)-gam*y3)+(1/alph14)*(x4(lvar-1)-gam*y4)6
)+...
        ((Amem*P1*R(2))/Fa)*(x2(lvar-1)-gam*y2);
    eqn2c = Fquer(lvar-1)*((xx3-x3(lvar-1))/(zquer(lvar)-zquer(lvar-
1)))...7
        -K*x3(lvar-1)*((x1(lvar-1)-gam*y1)+...7
        ((1/alph12)*(x2(lvar-1)-gam*y2)+...7
        (1/alph13)*(x3(lvar-1)-gam*y3)+(1/alph14)*(x4(lvar-1)-
gam*y4)))+...7
        ((Amem*P1*R(3))/Fa)*(x3(lvar-1)-gam*y3);
    eqn3a = Fq*xx1+dNq*y1-Fquer(lvar-1)*x1(lvar-1);
    eqn3b = Fq*xx2+dNq*y2-Fquer(lvar-1)*x2(lvar-1);
    eqn3c = Fq*xx3+dNq*y3-Fquer(lvar-1)*x3(lvar-1);7
    eqn4 = Fq+dNq-Fquer(lvar-1);
    eqn5 = 1-xx1-xx2-xx3-xx46;
    eqn6 = 1-y1-y2-y3-y46;

% Berechnung der Lösung des Teilschrittes lvar:

Sol = solve(eqn1,eqn2a,eqn2b,eqn2c6,eqn3a,eqn3b,eqn3c6,...
    eqn4,eqn5,eqn6, xx1,xx2,xx3,xx46,y1,y2,y3,y46,Fq,dNq);

% Schreiben der Lösung in Vektoren, um eine weitere Verwendung zu
% ermöglichen

x1(lvar) = double(Sol.xx1);
x2(lvar) = double(Sol.xx2);

```

```

x3(lvar) = double(Sol.xx3);
x4(lvar) = double(Sol.xx4); 7

yy1(lvar-1) = double(Sol.y1);
yy2(lvar-1) = double(Sol.y2);
yy3(lvar-1) = double(Sol.y3);
yy4(lvar-1) = double(Sol.y4); 7

Fquer(lvar) = double(Sol.Fq);
dNquer(lvar-1) = double(Sol.dNq);
fprintf('%d. Schritt von %d\n', lvar, nsteps)

end

% Berechnung der Ausgangsströme und Konzentrationen

Fw = Fquer(end)*Fa;
Vw = Fa-Fw;
xw1 = x1(end);
xw2 = x2(end);
xw3 = x3(end);
xw4 = x4(end); 7

yw(1) = double(solve(Fw*xw1+Vw*yyw1-Fa*x1(1), yyw1));
yw(2) = double(solve(Fw*xw2+Vw*yyw2-Fa*x2(1), yyw2));
yw(3) = double(solve(Fw*xw3+Vw*yyw3-Fa*x3(1), yyw3));
yw(4) = double(solve(Fw*xw4+Vw*yyw4-Fa*x4(1), yyw4)); 7

F=Fquer*Fa;

% Berechnung des Übergangstromes über die Membran in jedem
Teilschritt

dN = dNquer*Fa;

% Berechnung von Stagecut, Anreicherung und Schwund sowie Recovery:

Stagecut = Vw/Fa;

Enr(1) = yw(1)/xf1;
Enr(2) = yw(2)/xf2;
Enr(3) = yw(3)/xf3;
Enr(4) = yw(4)/xf4; 7

Depl(1) = xw1/xf1;
Depl(2) = xw2/xf2;
Depl(3) = xw3/xf3;
Depl(4) = xw4/xf4; 7

Rec(1) = Vw*yw(1)/(Fa*xf1);
Rec(2) = Vw*yw(2)/(Fa*xf2);
Rec(3) = Vw*yw(3)/(Fa*xf3);
Rec(4) = Vw*yw(4)/(Fa*xf4); 7

%-----
-----

```

```
% Aufbereitung der Ergebnisse, um das Einlesen in ein Excelfile zu
% ermöglichen
```

```
ergebnisse = zeros(nsteps,10);9
```

```
for i = 1:nsteps
```

```
    if i > length(yy1)
```

```
        ergebnisse(i,1) = 0;
        ergebnisse(i,2) = 0;
        ergebnisse(i,3) = 0;
        ergebnisse(i,4) = 0;7
        ergebnisse(i,5) = x1(i);
        ergebnisse(i,6) = x2(i);
        ergebnisse(i,7) = x3(i);
        ergebnisse(i,8) = x4(i);7
        ergebnisse(i,9) = F(i);
        ergebnisse(i,10) = 0;
```

```
    else
```

```
        ergebnisse(i,1) = yy1(i);
        ergebnisse(i,2) = yy2(i);
        ergebnisse(i,3) = yy3(i);
        ergebnisse(i,4) = yy4(i);7
        ergebnisse(i,5) = x1(i);
        ergebnisse(i,6) = x2(i);
        ergebnisse(i,7) = x3(i);
        ergebnisse(i,8) = x4(i);7
        ergebnisse(i,9) = F(i);
        ergebnisse(i,10) = dN(i);
```

```
    end
```

```
end
```

```
ergebnisse2 = [Vw, yw, Stagecut, Enr, Depl, Rec];
```

```
%-----
% Ergebnisse werden in ein Excelfile geschrieben:
```

```
Beschriftung = {'y1(z)', 'y2(z)', 'y3(z)', 'y4(z)'6, 'x1(z)',
'x2(z)', ...
'x3(z)', 'x4(z)'6, 'F(z) [mol/s]', 'dN(z) [mol/s]', 'Vw
[mol/s]', ...
'yw1', 'yw2', 'yw3', 'yw4'6, 'Stagecut', 'Enrichement1', ...
'Enrichement2', 'Enrichement3', 'Enrichement4'6, ...
'Depletion1', 'Depletion2', 'Depletion3', 'Depletion4'6, ...
'Recovery1', 'Recovery2', 'Recovery3', 'Recovery4'6};
```

```
e1 = '_Modell13';
Endung = '.xlsx';

Nsteps = num2str(nsteps);
e2 = '_';
e3 = num2str(Fa);
e4 = num2str(round(xf1*10^2));
e5 = num2str(round(P1));
e6 = num2str(T);
e7 = num2str(R1);
e8 = num2str(Amem);

warning off MATLAB:xlswrite:AddSheet;
xlswrite(strcat(Titel,e1,Endung), Beschriftung,...
    strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'A1');
xlswrite(strcat(Titel,e1,Endung), ergebnisse,...
    strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'A2');
xlswrite(strcat(Titel,e1,Endung), ergebnisse2,...
    strcat(Nsteps,e2,e3,e2,e4,e2,e5,e2,e6,e2,e7,e2,e8), 'K2');

disp ('Ende')
```