

Peter Scherübel

Planung, Bau und Inbetriebnahme einer Laborrektifikationskolonne

Diplomarbeit

zur Erlangung des akademischen Grades eines Diplom-Ingenieurs
der Studienrichtung Verfahrenstechnik

erreicht an der

Technischen Universität Graz

Betreuer

Mag.rer.nat. Dr.techn. Peter Letonja

Institut für Chemische Verfahrenstechnik und Umwelttechnik

Technische Universität Graz

2012

EIDESSTÄTTLICHE 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 the used sources.

.....

date

.....

signature

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich meinen besonderen Dank an Herrn Univ.-Prof. Dipl.-Ing. Dr. techn. Matthäus Siebenhofer für die Ermöglichung dieser Diplomarbeit und die mehrjährige Anstellung als Studienassistent am Institut für Chemische Verfahrenstechnik und Umwelttechnik zum Ausdruck bringen.

Ebenso möchte ich Herrn Mag.rer.nat. Dr.techn. Peter Letonja recht herzlich für die ausgezeichnete Betreuung der Arbeit und die tatkräftige Unterstützung danken. Weiters danke ich dem gesamten Personal des Instituts für seine Hilfsbereitschaft und die hervorragende Zusammenarbeit.

Überdies hinaus möchte ich meinen Dank an meine gesamte Familie, allen voran an meine Frau richten, die mich während meines Studiums stets unterstützt und motiviert hat.

Kurzfassung

Ziel der vorliegenden Arbeit war, eine vorhandene Semibatch-Rektifikationskolonne für den kontinuierlichen Betrieb umzurüsten und mit neuer Mess-, Steuer- und Regelungstechnik zu versehen. Es wurde ein Prozessleitsystem (PLS) in LabVIEW programmiert, das die computergestützte Steuerung der Anlage sowie die Aufzeichnung sämtlicher Messdaten ermöglicht.

Die genannten Modifikationen und das PLS wurden in Testläufen (Testsystem EtOH-Wasser) validiert und die Anzahl der theoretischen Trennstufen der Kolonne durch das McCabe-Thiele-Verfahren ermittelt. Die gemessenen Druckverluste und die Anzahl theoretischer Trennstufen wurden den Ergebnissen der Berechnung nach dem Beck-Verfahren gegenübergestellt. Der Vergleich der Daten ergab für die Verstärkersäule der Kolonne eine gute Übereinstimmung.

Abschließend wurde das ternäre System Ameisensäure-Essigsäure-Wasser, welches ein Sattelpunktazeotrop bildet, auf die Abtrennbarkeit der Ameisensäure untersucht. Hierzu wurden in Testläufen die Verfahren der klassischen Rektifikation und der Reaktivrektifikation (Zugabe von Methanol) hinsichtlich der Produktmenge und -qualität verglichen. Aufgrund der Messergebnisse wird die Reaktivrektifikation als wirtschaftlicheres Verfahren beurteilt. Eine in Aspen Plus durchgeführte Sensitivitätsanalyse bestätigt diese Aussage.

Abstract

The aim of this thesis was to revamp an existing semi-batch rectification column to provide the possibility of continuous operation. Therefore, a new kettle reboiler was designed and installed. Further the laboratory plant was equipped with a new control system. A process control system was programmed with LabVIEW to enable the computer aided process control, data acquisition and recording.

To check the mentioned modifications and the performance of the plant, several test runs were carried out with the binary system ethanol-water. The number of theoretical stages was determined by the McCabe-Thiele method. The pressure drop and the number of theoretical stages were compared with the results of the calculation method of Beck. The calculated data for the rectifying section fit the measured data well.

Finally the ternary system formic acid – acetic acid – water, which forms a saddle azeotrope, was investigated. For this purpose the common rectification and the reactive rectification (addition of methanol) were compared regarding the quality and amount of the product. Due to the measured data, the reactive rectification is called the more efficient process. To confirm this statement, a sensitivity analysis was performed with Aspen Plus.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung.....	1
1.1	Aufgabenstellung und Zielsetzung	1
1.2	Bestehende Anlage und ihre Mängel	1
2	Grundlagen.....	3
2.1	Dampf-Flüssig-Phasengleichgewicht ^{[1], [2]}	3
2.1.1	Gleichgewichtsbedingungen ^[1]	3
2.1.2	Die Fugazität.....	3
2.1.3	Fugazitätskoeffizienten- und Aktivitätskoeffizientenmodelle ^{[1], [2]}	6
2.2	Das Prinzip der Destillation und der Teilkondensation ^[4]	7
2.3	Einstufige Destillation ^{[4], [5]}	8
2.3.1	Kontinuierliche einstufige Destillation ^{[2], [4]}	8
2.3.2	Diskontinuierliche einstufige Destillation ^{[2], [4]}	9
2.4	Rektifikation ^{[2], [4], [5], [6]}	9
2.5	Das Konzept der theoretischen Trennstufe ^{[2], [4]}	10
2.6	Berechnungsmethoden und Algorithmen.....	11
2.6.1	Das McCabe-Thiele-Verfahren ^{[2], [4], [5]}	11
2.6.2	Das Beck-Verfahren ^[7]	20
2.7	Stoffsystem Ethanol-Wasser ^{[3], [8]}	22
2.7.1	Analyse der Proben des Stoffsystems Ethanol-Wasser	23
3	Beschreibung der Anlage	25
3.1	Aufbau der Anlage ^[10]	25
3.1.1	Der Sumpfverdampfer.....	25
3.1.2	Die Abtriebssäule	25
3.1.3	Die Verstärkersäule	26
3.1.4	Der Kolonnenkopf	26
3.1.5	Feedzulauf und -vorwärmung	26
3.2	Fließbild der Anlage ^[11]	27
3.3	Mess-, Steuer- und Regelungstechnik.....	28
3.3.1	Pt-100 Widerstandsthermometer ^[12]	28

3.3.2	Druckmessumformer ^{[13], [14]}	28
3.3.3	Füllstandssensoren ^[15]	28
3.3.4	Durchflussmessung Kühlwasser	29
3.3.5	Der Aufbau des Schaltschranks	29
3.3.6	Das Prozessleitsystem (PLS) ^[16]	30
3.3.7	Das Fieldpoint-System ^[12]	31
3.3.8	Steuerung der Sumpfheizung.....	32
3.3.9	Rücklaufteiler – Relaisschaltung ^[10]	32
3.3.10	Schaltung der Feedpumpen	32
3.3.11	Online - Massenbilanz	33
3.3.12	Sicherheitsabschaltungen	33
4	Verfahrenstechnische Überprüfung der Anlage: Ethanol-Wasser.....	34
4.1	Testläufe 1 – 8: Totaler Rücklauf	34
4.1.1	Auswertung der Testläufe 1 – 8	35
4.1.2	Ergebnisse der Testläufe 1 – 8	38
4.1.3	Diskussion der Testläufe 1 – 8.....	42
4.2	Testläufe 9 – 13: Kontinuierlicher Betrieb.....	43
4.2.1	Auswertung der Testläufe 9 – 13	44
4.2.2	Ergebnisse der Testläufe 9 – 13	60
4.2.3	Diskussion der Testläufe 9 – 13.....	65
5	Trennung des Stoffsystems Ameisensäure-Essigsäure-Wasser	68
5.1	Feedzusammensetzung und Zerlegungsbereich ^{[3], [6]}	68
5.2	Trennung durch Rektifikation – Testläufe T1 – T4	69
5.2.1	Messwerte und Ergebnisse der Testläufe T1 – T4	70
5.2.2	Simulation des Trennvorgangs mit Aspen Plus ^[3]	72
5.2.3	Diskussion der Testläufe T1 – T4 und der Sensitivitätsanalyse.....	73
5.3	Trennung durch Reaktivrektifikation – Testläufe R1, R2.....	74
5.3.1	Messwerte und Ergebnisse der Testläufe R1 , R2.....	75
5.3.2	Diskussion der Testläufe R1, R2	77
6	Zusammenfassung.....	79
7	Abbildungsverzeichnis.....	80

8	Tabellenverzeichnis	81
9	Literaturverzeichnis.....	82
	Anhang A: Fit-Gleichungen.....	84
	Anhang B: Daten für Beck-Verfahren.....	89
	Anhang C: Stoffdaten	90
	Anhang D: Feedeinwaagen.....	92
	Anhang E: MSR – Kanalbelegung und Stromkreise	93

Nomenklatur

Formelzeichen:

\dot{B}	Sumpfproduktstrom	[mol/h]
B	Belastung der Kolonne	[-], [%]
B	Blaseninhalt (disk. Dest.)	[mol]
d	Füllkörperdurchmesser	[m], [mm]
d	Ordinatenabschnitt	[-]
D	Destillatmenge	[mol]
D	Kolonnendurchmesser	[m]
\dot{D}	Destillatstrom	[mol/h]
E	Stufenaustauschgrad	[-]
\dot{F}	Feedstrom	[mol/h], [kg/h]
g^E	Gibbs'sche Exzessenthalpie	[J/mol]
GGW	Gleichgewichtskurve	[-]
h	Enthalpie	[J/mol], [kJ/kmol]
H	Packungshöhe	[m]
k	Steigung	[-]
K_1 - K_7	Füllkörperkonstanten	[-]
L	Flüssigkeitsmenge	[mol]
\dot{L}	Flüssigkeitsstrom	[mol/h]
\dot{m}	Massenstrom in Berechnung	[kg/h]
MG	Molekulargewicht	[g/mol]
n	Laufvariable für Trennstufen in Bilanzen	[-]
\dot{n}	Molstrom	[mol/h]
n_t	Wertungszahl	[1/m]
N_t	Anzahl theoretischer Trennstufen	[-]
p	Druck	[mbar],[bar]
Poy	Poyntingfaktor	[-]
q	Kalorischer Faktor	[-]
\dot{Q}	Wärmestrom	[W]
r	Externes Rücklaufverhältnis	[-]
R	Allgemeine Gaskonstante = 8,314	[J/molK]
R	Regendichte, Berieselungsdichte	[m ³ /m ² h]
\dot{R}	Rücklaufstrom	[mol/h]

T	Temperatur	[°C], [K]
v	Molares Volumen	[m ³ /mol], [l/mol]
V	Dampfmenge	[mol]
\dot{v}	Volumenstrom in Berechnung	[m ³ /h], [l/h]
\dot{V}	Dampfstrom	[mol/h]
w	Geschwindigkeit	[m/s]
w	Massenanteil	[-]
x	Molanteil Flüssigphase	[-]
y	Molanteil Dampfphase	[-]
Δh_M	Mischungsenthalpie	[J/mol], [kJ/kmol]
Δh_v	Verdampfungsenthalpie	[J/mol], [kJ/kmol]
Δp	Differenzdruck, Druckverlust	[mmWS], [mbar]

Griechische Symbole:

Φ	Realfaktor	[-]
γ	Aktivitätskoeffizient	[-]
ζ	Konzentrationsmaß z.B.: Molanteil	[-], [mol/l], ...
η	Dynamische Viskosität	[mPas]
ρ	Dichte	[g/cm ³], [kg/m ³]
φ	Fugazitätskoeffizient	[-]

Indizes tiefgestellt:

0	Normzustand
1	Komponente 1
2	Komponente 2
A	Anfang
AA	Essigsäure
ab	abgeführt
AS	Abtriebssäule
B	Sumpfprodukt
Beck	Beck-Verfahren
Betr	Betrieb
BP	Siedepunkt
D	Destillat
E	Ende
eff	effektiv
EtOH	Ethanol
f	Feedboden
F	Feed, Einsatzgemisch
FA	Ameisensäure
H ₂ O	Wasser
i	Komponente i
K	Kolonnenkopf
L	Flüssigphase
leer	Leerrohr
LS	leichtersiedende Komponente
m	gemittelt
M	Kolonnenmitte
max	maximal
McCCT	McCabe-Thiele-Verfahren
MeOH	Methanol
mess	Messung
min	minimal
q	q-Linie
RB	Reboiler, Sumpfverdampfer
SS	schwerersiedende Komponente

t	theoretisch
tat	tatsächlich, vorhanden
Thermo	Thermostat
Ü	Überdruck
V	Dampfphase
verl	Verlust
VS	Verstärkersäule
zu	zugeführt

Indizes hochgestellt:

*	Gleichgewichtszustand
0	Standardzustand
n	Exponent im Beck-Verfahren
S	Sättigungszustand

1 Einleitung

1.1 Aufgabenstellung und Zielsetzung

Eine Semibatch-Laborrektifikationskolonne soll mit neuer Mess-, Steuer- und Regelungstechnik versehen werden, um sie mit einem in LabVIEW programmierten Prozessleitsystem zu steuern. Ebenso sollen zusätzliche Temperatur- und Druckmessstellen installiert werden. Die Anlage sollte kontinuierlich zu betreiben sein. Zu diesem Zweck soll ein neuer, elektrisch beheizter Sumpfordampfer in der Ausführung eines „Kettle-Reboilers“ eingesetzt werden. Eine im Prozessleitsystem implementierte Wägung des Sumpf- bzw. Kopfprodukts soll in Kombination mit kalibrierten Feedpumpen eine „online“-Massenbilanz ermöglichen. Dadurch ließe neben den Temperaturmessungen auch die erfüllte Massenbilanz auf den stationären Betrieb der Kolonne schließen.

Die genannten Modifikationen und das programmierte Prozessleitsystem sollen anhand des Testsystems „Ethanol-Wasser“ validiert werden. Die Kolonne ist hinsichtlich Trennleistung und hydraulischer Belastung zu charakterisieren. Dafür werden die Ermittlung der theoretischen Trennstufenzahl nach dem „McCabe-Thiele-Verfahren“ und die Berechnung der Kolonnenhydraulik und der theoretischen Trennstufenzahl nach dem „Beck-Verfahren“ durchgeführt.

Abschließend soll das ternäre Stoffsystem Ameisensäure-Essigsäure-Wasser untersucht werden. Dieses bildet unter atmosphärischem Druck ein Sattelpunktazeotrop. Für die gewünschte Abtrennung der Ameisensäure aus dem Einsatzgemisch wird die herkömmliche Rektifikation mit der Reaktivrektifikation unter Zugabe von Methanol verglichen.

1.2 Bestehende Anlage und ihre Mängel

Die bestehende Anlage wurde 2007 von der Firma „Normag Labor- und Prozesstechnik GmbH“ errichtet. Es handelt sich um eine Anlage zur Flüssig/Flüssig-Extraktion mit nachfolgender Rektifikation. Da sich die Arbeit auf die Rektifikationskolonne beschränkt, wird ausschließlich dieser Anlagenteil behandelt.

Die ursprüngliche Semibatch-Rektifikationskolonne ist sowohl für den Betrieb unter Umgebungsdruck als auch unter Vakuum ausgelegt. Der Zulaufstrom (Feed) wird über eine Magnetdosierpumpe in der Mitte der Kolonne zugeführt. Am Kolonnenkopf befindet sich ein elektromagnetisch betätigter Flüssigkeitsteiler, um den Rücklauf einzustellen und einen quasikontinuierlichen Abzug des Kopfprodukts zu ermöglichen. Der Kolonnensumpf erlaubt aufgrund der konstruktiven Ausführung keinen (quasi-)kontinuierlichen Produktabzug. Eine

weitere Unzulänglichkeit stellt die speicherprogrammierbare Steuerung (SPS) der Firma Siemens dar. Aufgrund einer zu geringen Anzahl an freien Eingangskanälen der Steuereinheit kann die Erweiterung von Druck- und Temperatursensoren nicht im gewünschten Ausmaß erfolgen. Das signifikanteste Problem der bestehenden SPS ist die Programmierung der Heizungsregelung des Sumpfverdampfers, deren Steuergröße die Sumpftemperatur ist. Bedingt durch eine große Hysterese der Regelung ist es nicht möglich, die zur Verdampfung notwendige Energie konstant zuzuführen. Dies äußert sich in Schwankungen der Sumpftemperatur bzw. einer stark schwankenden Verdampfungsrate und führt zu einer ungeeigneten Betriebsweise der Kolonne.

Diese Mängel führten schließlich zur Motivation, die Anlage zu überarbeiten und ein Prozessleitsystem in LabVIEW zu programmieren.

2 Grundlagen

2.1 Dampf-Flüssig-Phasengleichgewicht ^{[1], [2]}

Eine wichtige Grundlage zur Berechnung thermischer Trennprozesse bildet die Kenntnis von Phasengleichgewichten. Im Fall der Destillation bzw. Rektifikation liegen Dampf und Flüssigkeit nebeneinander vor. Für die mathematische Beschreibung dieses Trennprozesses ist folglich das Dampf-Flüssig-Gleichgewicht (engl. VLE: Vapor-Liquid-Equilibrium) von Relevanz.

2.1.1 Gleichgewichtsbedingungen ^[1]

Dampf- und Flüssigphase befinden sich im Phasengleichgewicht, wenn Temperatur, Druck und die Fugazität der verschiedenen Komponenten in beiden Phasen denselben Wert annehmen (s. (2-1) bis (2-3)).

$$T_L = T_V \quad (2-1)$$

$$p_L = p_V \quad (2-2)$$

$$f_{i,L} = f_{i,V} \quad (2-3)$$

mit:	T ... <i>Temperatur</i>	p ... <i>Druck</i>
	f ... <i>Fugazität</i>	L ... <i>Flüssigphase</i>
	V ... <i>Dampfphase</i>	i ... <i>Komponente i</i>

2.1.2 Die Fugazität

Zur Darstellung der Fugazität in Abhängigkeit der messbaren Größen Druck, Temperatur und der Zusammensetzung, wurden folgende Hilfsgrößen eingeführt.

$$\gamma_i \equiv \frac{f_i}{\zeta_i \cdot f_i^0} \quad (2-4)$$

$$\varphi_i \equiv \frac{f_i}{\zeta_i \cdot p} \quad (2-5)$$

mit:	γ_i ... <i>Aktivitätskoeffizient</i>	ζ_i ... <i>beliebiges Konzentrationsmaß</i>
	φ_i ... <i>Fugazitätskoeffizient</i>	f_i^0 ... <i>Standardfugazität</i>
	p ... <i>Systemdruck</i>	

Das Konzentrationsmaß ζ_i kann beliebig gewählt werden. Eine zweckmäßige Wahl dieser Größe stellt der Molanteil x_i bzw. y_i dar. Die Fugazität kann sowohl über Aktivitätskoeffizienten (Gleichung (2-6)) als auch über Fugazitätskoeffizienten (Gleichung (2-7)) berechnet werden.

$$f_i = x_i \cdot \gamma_i \cdot f_i^0 \quad (2-6)$$

$$f_i = x_i \cdot \varphi_i \cdot p \quad (2-7)$$

bzw. $f_i = y_i \cdot \varphi_i \cdot p \quad (2-8)$

mit: γ_i ... *Aktivitätskoeffizient* ζ_i ... *beliebiges Konzentrationsmaß*
 φ_i ... *Fugazitätskoeffizient* f_i^0 ... *Standardfugazität*
 p ... *Systemdruck*

Mit der in Gleichung (2-6) beschriebenen Methode wird vorrangig die Fugazität flüssiger (kondensierter) Phasen berechnet. Dafür werden die Aktivitätskoeffizienten γ_i und die Standardfugazität f_i^0 benötigt. Eine gängige Variante ist, die Fugazität der reinen Flüssigkeit bei Systemdruck und Systemtemperatur als Standardfugazität festzulegen.

Zunächst ergibt sich für die Standardfugazität der reinen Flüssigkeit bei Systemtemperatur und Sättigungsdampfdruck Gleichung (2-9).

$$f_i^0(p_i^S) = f_i^S = \varphi_i^S \cdot p_i^S \quad (2-9)$$

mit: 0 ... *Standardzustand* S ... *Sättigungszustand*

Um die Abweichung des Sättigungsdampfdruckes der reinen Komponente vom als Standardzustand gewählten Systemdruck zu berücksichtigen, wird die sogenannte Poynting-Korrektur (Poynting-Faktor) eingeführt.

$$Poy_i = \exp \frac{v_i \cdot (p - p_i^S)}{RT} \quad (2-10)$$

mit: Poy_i ... Poyntingfaktor der Komponente i
 v_i ... molares Volumen der Komponente i
 R ... allgemeine Gaskonstante

Somit ergibt sich für die Standardfugazität bei Systemdruck und Systemtemperatur

$$f_i^0(p) = f_i^0(p_i^S) \cdot Poy_i. \quad (2-11)$$

Die Fugazität der Flüssigphase gemäß Gleichung (2-6) kann nun unter Berücksichtigung der Gleichungen (2-9) und (2-11) folgendermaßen ausgedrückt werden:

$$f_{i,L} = x_i \cdot \gamma_i \cdot \varphi_i^S \cdot p_i^S \cdot Poy_i \quad (2-12)$$

Setzt man laut der Gleichgewichtsbeziehung (2-3) die Fugazitäten der Dampf- und der Flüssigphase (2-12) und (2-8) gleich, erhält man

$$x_i \cdot \gamma_i \cdot \varphi_i^S \cdot p_i^S \cdot Poy_i = y_i \cdot \varphi_{i,V} \cdot p. \quad (2-13)$$

Diese Beziehung lässt sich mit der Einführung des sogenannten Realfaktors ^[2]

$$\Phi_i \equiv \frac{\varphi_i^S \cdot Poy_i}{\varphi_{i,V}} \quad (2-14)$$

zu Gleichung (2-13) vereinfachen.

$$x_i \cdot \gamma_i \cdot p_i^S \cdot \Phi_i = y_i \cdot p \quad (2-15)$$

Um das Phasengleichgewicht nach (2-15) berechnen zu können, werden die Fugazitätskoeffizienten $\varphi_{i,V}$ und φ_i^S , die Sättigungsdampfdrücke p_i^S , der Poyntingfaktor und die Aktivitätskoeffizienten γ_i benötigt. Der Poyntingfaktor nimmt für nicht zu große Druckdifferenzen $p - p_i^S$ Werte an, die nur gering vom Wert 1 abweichen. Für das System Ethanol-Wasser beträgt der Poyntingfaktor von Ethanol bei einer Temperatur von 70 °C und einer Druckdifferenz $p - p_i^S$ von 1 bar beispielsweise 1,0022 ^[1]. Weiters weichen die Werte der Fugazitätskoeffizienten $\varphi_{i,V}$ und φ_i^S bei Systemen, deren Komponenten nicht zu stark zur

Assoziation neigen, nur gering voneinander ab. Unter diesen Voraussetzungen kann der Realfaktor in guter Näherung mit dem Wert 1 angenommen werden.

Unter bestimmten Umständen stellt sich die Formulierung der Fugazität durch Aktivitätskoeffizienten als ungünstig heraus. Dies trifft beispielsweise auf die Anwendung in der Nähe des kritischen Punktes einer oder mehrerer Komponenten zu. In diesen Fällen sollte die Berechnung von Phasengleichgewichten über die Fugazitätskoeffizienten erfolgen (s. (2-16)).

$$x_i \cdot \varphi_{i,L} = y_i \cdot \varphi_{i,V} \quad (2-16)$$

2.1.3 Fugazitätskoeffizienten- und Aktivitätskoeffizientenmodelle ^{[1], [2]}

Die Fugazitätskoeffizienten können über Zustandsgleichungen berechnet werden. Bedingung ist, dass die Zustandsgleichung das Verhalten von Druck, Temperatur und Volumen (PVT-Verhalten) in Abhängigkeit von Druck, Temperatur und Zusammensetzung der betrachteten Mischungen hinreichend genau beschreibt. Wird das Phasengleichgewicht nach (2-16) bestimmt, kommen meist Erweiterungen der kubischen Zustandsgleichung nach van der Waals zum Einsatz (z.B.: Soave-Redlich-Kwong, Peng-Robinson), die das PVT-Verhalten von Dampf- und Flüssigphase darstellen können. Die zur Berechnung erforderlichen Mischungsparameter werden im Allgemeinen durch sog. Mischungsregeln aus Reinstoffdaten bestimmt. Ein Nachteil dieser Methode besteht darin, dass die Fugazität der flüssigen Phase – insbesondere bei polaren Systemen – zum Teil nur unzureichend beschrieben werden kann.

Aktivitätskoeffizienten werden meist über analytische Ausdrücke, die auf einem Ansatz der Gibbsschen Exzessenthalpie g^E (2-17) beruhen, berechnet.

$$g^E = R \cdot T \cdot \sum x_i \cdot \ln \gamma_i \quad (2-17)$$

Für die praktische Anwendung kommen Ansätze zum Einsatz, die es ermöglichen, Aktivitätskoeffizienten in Mehrkomponentensystemen aus binären VLE-Daten ermittelten Parametern zu berechnen. Gängige Aktivitätskoeffizientenmodelle sind beispielsweise NRTL, Wilson, UNIFAC, UNIQUAC.^[3]

2.2 Das Prinzip der Destillation und der Teilkondensation ^[4]

Die Destillation ist ein thermisches Trennverfahren, das es ermöglicht, flüssige Mischungen aufgrund der verschiedenen Siedepunkte der beinhaltenen Komponenten zu trennen. Voraussetzung ist, dass die Komponenten unter den gegebenen Bedingungen thermisch stabil sind. Es wird Energie in Form von Wärme zugeführt, um das zu trennende Gemisch zu erhitzen und in weiterer Folge zu verdampfen. Am Siedepunkt der Mischung entsteht Dampf, dessen Zusammensetzung im Allgemeinen von jener der Flüssigkeit abweicht. (Anm.: Der Sonderfall von Mischungen, die Azeotrope bilden, ist hiervon ausgenommen). In der Dampfphase reichern sich die leichtersiedenden Komponenten an. Im Gegenzug steigt in der verbleibenden Flüssigphase die Konzentration der schwerersiedenden Komponenten.

Anhand Abbildung 2-1 soll dieser Vorgang für eine ideale Mischung veranschaulicht werden. Eine binäre, flüssige Mischung mit dem Stoffmengenanteil x_A der leichtersiedenden Komponente und der Anfangstemperatur T_A wird bis zur Temperatur $T_{B,C}$ erhitzt. Die Flüssigkeit beginnt bereits bei der Temperatur T_S zu sieden, worauf sie an der leichter-siedenden Komponente verarmt. Der Molanteil der leichterflüchtigen Komponente in der Flüssigphase und die Siedetemperatur folgen dem Verlauf der Siedelinie vom Siedepunkt S bis zum Zustandspunkt B. Bei Einstellung des Phasengleichgewichts (Kap. 2.1) bildet sich eine mit der Flüssigphase im Gleichgewicht stehende Destillatdampfphase ($T_{B,C}$, y_C), deren Anteil an der leichterflüchtigen Komponente größer ist als in der Ausgangsmischung ($y_B > x_A$). Der Anteil dieser Komponente in der verbleibenden Flüssigphase ist kleiner als in der Ausgangsmischung ($x_A > x_B$).

Der umgekehrte Vorgang wird als partielle Kondensation bezeichnet. Wird beispielsweise ein Dampfgemisch mit dem leichtersiedenden Stoffmengenanteil y_D von der Temperatur T_D auf die Temperatur $T_{E,F}$ abgekühlt, entsteht wiederum eine Flüssigphase (x_E , $T_{E,F}$) die mit einer verbleibenden Dampfphase (y_F , $T_{E,F}$) im Gleichgewicht steht. Es wird ersichtlich, dass der Stoffmengenanteil der leichtersiedenden Komponente in der Dampfphase größer und in der Flüssigphase kleiner ist, als in der dampfförmigen Ausgangsmischung. Der Verlauf der Temperatur bzw. des Stoffmengenanteils der Dampfphase folgt der Taulinie vom Zustandspunkt D bis Zustandspunkt F. ^[4]

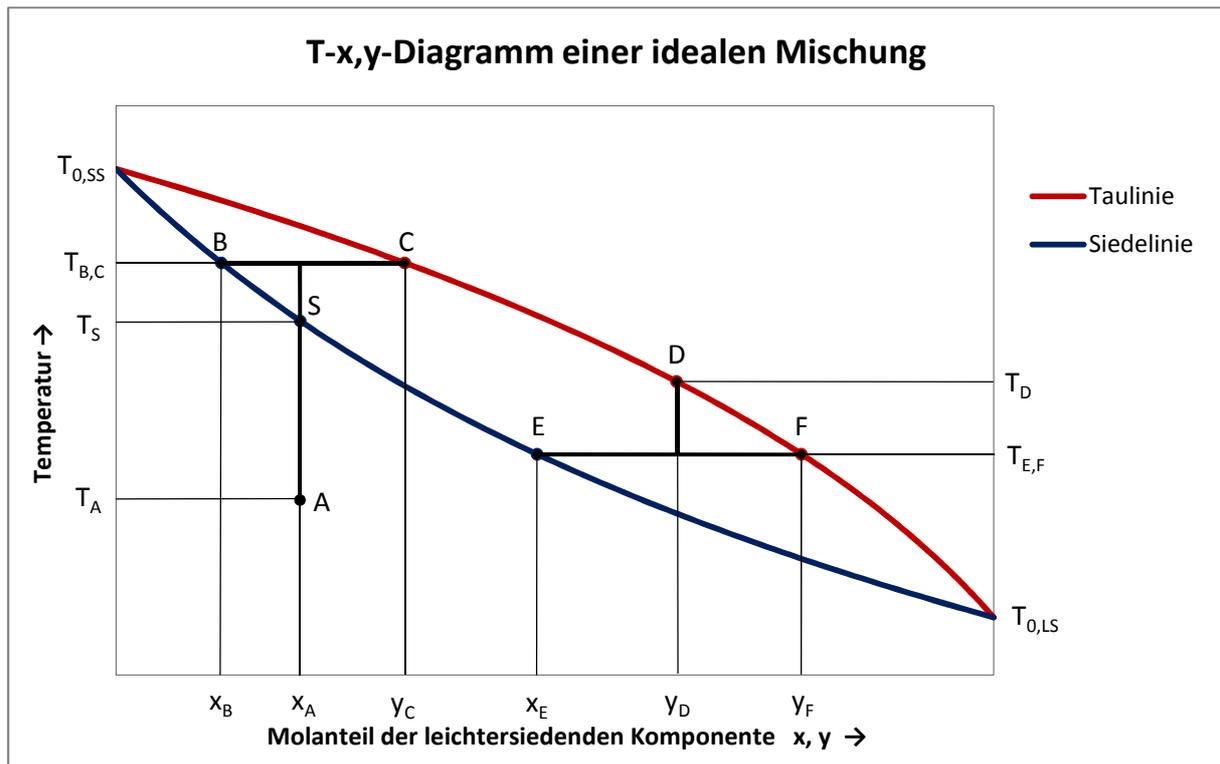


Abbildung 2-1: Siedediagramm (T-x,y-Diagramm) einer binären, idealen Mischung

2.3 Einstufige Destillation ^{[4], [5]}

Die einstufige Destillation binärer Gemische stellt die einfachste Form des destillativen Trennvorgangs dar. In der Durchführung wird zwischen der kontinuierlichen und der diskontinuierlichen einstufigen Destillation unterschieden.

2.3.1 Kontinuierliche einstufige Destillation ^{[2], [4]}

Bei dieser Form der Destillation wird einer Destilliereinrichtung (Abbildung 2-2) kontinuierlich ein zu trennendes Flüssigkeitsgemisch als Einsatzstrom (\dot{F}) zugeführt und teilweise verdampft. Der durch Wärmezufuhr erzeugte Destillatdampf (\dot{V}) wird im Kondensatorkühler kondensiert und gekühlt. Das flüssige Destillat (\dot{D}) und der flüssige Destillationsrückstand (\dot{B}) werden kontinuierlich abgeführt. Die Destillationsbedingungen sowie die Produktspezifikationen bleiben nach der Anlaufphase stationär.

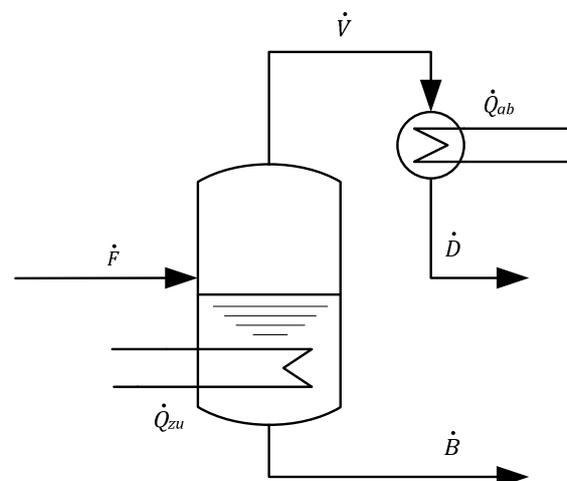


Abbildung 2-2: Schematische Darstellung der kont. einstufigen Destillation

2.3.2 Diskontinuierliche einstufige Destillation [2], [4]

Die diskontinuierliche einfache Destillation zeichnet sich dadurch aus, dass ein zu trennendes Flüssigkeitsgemisch (B_A) in einer Destillierblase vorgelegt, erhitzt und partiell verdampft wird (Abbildung 2-3). Der erzeugte Dampf (V) wird kontinuierlich abgezogen und ist im Allgemeinen reicher an leichterflüchtigen Komponenten als das Ausgangsgemisch. Im Gegenzug verarmt der Destillationsrückstand in der Destillierblase an den leichterflüchtigen Komponenten. Der im Kondensatorkühler kondensierte Dampf wird als Destillat (D) abgezogen. Die Blasen- und Destillatkonzentration und somit auch

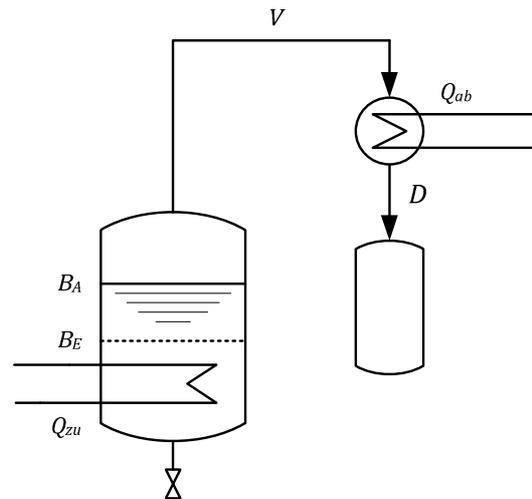


Abbildung 2-3: Schematische Darstellung der diskontinuierlichen einstufigen Destillation

die Blasen- und Destillattemperatur ändern sich im Laufe der Destillationszeit, wobei die beiden Produkte zunehmend an tiefsiedenden Komponenten verarmen. Wird das gesamte anfallende Destillat in unterschiedlichen Behältern aufgefangen, also in sog. Destillatfraktionen („Schnitte“) unterteilt, bezeichnet man dies als fraktionierte Destillation. Sie wird vorrangig bei der partiellen Zerlegung von Mehrstoffgemischen angewandt. Andernfalls spricht man von Abtrieb. Am Ende des diskontinuierlichen Vorgangs bleibt in der Blase der Restinhalt B_E zurück.

2.4 Rektifikation [2], [4], [5], [6]

Die einstufige Destillation liefert meist nicht die gewünschte Reinheit der anfallenden Produkte. Um höhere Produktreinheiten zu erzielen, muss der Destillationsvorgang wiederholt bzw. mehrstufig durchgeführt werden. Dies wird in der Praxis in Rektifikationskolonnen realisiert (Abbildung 2-4). Die Beheizung der Kolonne erfolgt über einen Sumpfverdampfer. Der im Sumpfverdampfer erzeugte Dampf steigt in der Kolonne auf und wird am Kopf der Kolonne in einem Kondensator kondensiert. Ein Teil des Kondensats wird als sog. externer Rücklauf (\dot{R}) der Kolonne am Kopf erneut zugeführt. Der verbleibende Teil wird als Destillat/Kopfprodukt (\dot{D}) abgezogen. Der flüssige Rücklaufstrom läuft im Gegenstrom zum aufsteigenden Dampf. Dadurch kommt es zum ständigen Stoff- und Wärmetransport zwischen beiden Phasen. In der Dampfphase werden die leichterflüchtigen, in der flüssigen Phase die schwererflüchtigen Komponenten in Bezug auf die Strömungsrichtung der Phasen angereichert. Die Ursache dieses Vorgangs liegt in der partiellen Verdampfung der leichtersiedenden Komponenten des Rücklaufstroms bzw. der

partiellen Kondensation der schwerersiedenden Komponenten des Dampfstroms (vgl. Abbildung 2-1). Im Sumpf der Kolonne wird somit das an leichterflüchtigen Komponenten verarmte flüssige Sumpfprodukt (\dot{B}) abgezogen. Die Reinheit des Sumpf- bzw. Kopfprodukts wird maßgeblich durch die Rücklaufmenge beeinflusst. Ein weiterer Faktor für die Trennleistung einer Rektifikationskolonne ist die Anzahl der theoretischen Trennstufen N_t (siehe Kap. 2.5). Diese hängt unter anderem von der Stoffaustauschfläche ab, welche durch Einbauten vergrößert werden kann. Grundsätzlich wird zwischen Kolonnen ohne Einbauten, Bodenkolonnen, Benetzungskolonnen (Füllkörperkolonnen und Packungskolonnen) und Kolonnen mit rotierenden Einbauten unterschieden.

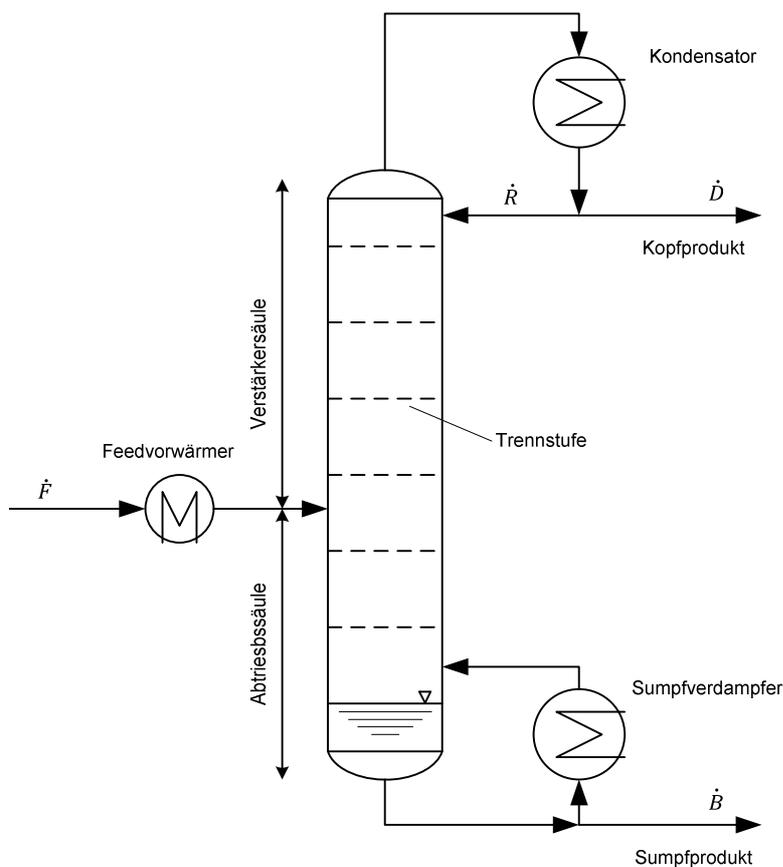


Abbildung 2-4: Schematische Darstellung einer Rektifikationskolonne

2.5 Das Konzept der theoretischen Trennstufe ^{[2], [4]}

Die Trennleistung einer Kolonne kann, wie bereits erwähnt, durch die Anzahl der theoretischen (idealen) Trennstufen N_t beschrieben werden. Als theoretische Trennstufe wird jener Teil eines Trennapparates bezeichnet, in dem es durch intensiven Stoff- und Wärmeaustausch zur vollständigen Einstellung des Phasengleichgewichtes (siehe Kap. 2.1) kommt. Die eintretenden Phasen befinden sich im Gegensatz zu den austretenden Phasen nicht im Gleichgewicht. In einer praktischen Stufe wird dieser Zustand meist nicht erreicht.

Die Trennwirksamkeit einer praktischen Trennstufe wird mit jener der theoretischen Trennstufe über den sog. Stufenaustauschgrad E verglichen.

$$E = \frac{\text{Trennwirkung der praktischen Stufe}}{\text{Trennwirkung der theoretischen Stufe}} \quad (2-18)$$

Dieses Konzept ist vor allem bei Bodenkolonnen relevant, da sich der Stoff- und Wärmeaustausch im Allgemeinen auf die Böden beschränkt. Führt man die Wertungszahl n_t (2-19) ein, erhält sie allerdings auch für Füllkörper- und Packungskolonnen große Bedeutung.

$$n_t = \frac{N_t}{H} \quad (2-19)$$

Die Wertungszahl beschreibt laut Gleichung (2-19) die Anzahl der theoretischen Trennstufen N_t , die in ihrer Wirkung einer Füllkörperschüttung bzw. Packung der Höhe H entsprechen. Der Kehrwert der Wertungszahl wird als *HETP-* oder *HETS-Wert* bezeichnet (*HETP*: Height Equivalent to one Theoretical Plate, *HETS*: Height Equivalent to one Theoretical Stage). Er gibt die Höhe einer Füllkörperschüttung bzw. Packung an, die in ihrer Trennwirkung einer theoretischen Stufe entspricht.

2.6 Berechnungsmethoden und Algorithmen

In diesem Kapitel werden die grundlegenden Berechnungsmethoden zur Auswertung der verfahrenstechnischen Überprüfung (s. Kap. 4) vorgestellt.

2.6.1 Das McCabe-Thiele-Verfahren ^{[2], [4], [5]}

Das McCabe-Thiele-Verfahren bietet die Möglichkeit, die Anzahl der theoretischen Trennstufen einer Gegenstromkolonne zur Trennung von binären Gemischen grafisch zu ermitteln. Das Prinzip des Verfahrens beruht auf der Kombination der Lösung der nachfolgend beschriebenen, stationären Stoffmengenbilanzen und der Beschreibung der Dampf-Flüssig-Gleichgewichtskurve. Anhand der Bilanzgleichungen können die Betriebsgeraden der Verstärker- und der Abtriebsäule der Kolonne im McCabe-Thiele-Diagramm eingezeichnet werden. Der Schnittpunkt der Betriebsgeraden wird vom thermischen Zustand (s. Kap. 2.6.1.6) des Einsatzgemisches beeinflusst. Die grafische Stufenkonstruktion erfolgt durch einen Treppenzug zwischen diesen Betriebsgeraden und der Dampf-Flüssig-Gleichgewichtskurve (s. Abbildung 2-9).

Für die Gültigkeit des Verfahrens sind zunächst folgende Vereinfachungen und Annahmen zu treffen:

- Die molaren Verdampfungsenthalpien der Komponenten sind näherungsweise gleich groß:

$$\Delta h_{V,1} \approx \Delta h_{V,2} \approx \Delta h_V \quad (2-20)$$

- Die Mischungsenthalpie ist im Vergleich zu den molaren Verdampfungsenthalpien vernachlässigbar klein:

$$\Delta h_m \ll \Delta h_V \quad (2-21)$$

- Der Einfluss der Druckänderung auf die Verdampfungsenthalpien (bedingt durch den Druckabfall über die Kolonnenhöhe) ist vernachlässigbar.

$$\Delta h_V(p) \approx \text{const.} \quad (2-22)$$

- Die Änderungen der Enthalpien von Dampf und Flüssigkeit sind vernachlässigbar.

$$h_V \approx \text{const.} \quad (2-23)$$

$$h_L \approx \text{const.} \quad (2-24)$$

- Wärmeverluste sind vernachlässigbar. Die Kolonne arbeitet annähernd adiabat.

$$\dot{Q}_{Verl} \approx 0 \quad (2-25)$$

Aus den genannten Vereinfachungen folgt, dass die bei der partiellen Kondensation der schwererflüchtigen Komponente aus dem Dampfstrom frei werdende Energie die gleiche Stoffmenge der leichterflüchtigen Komponente aus dem Rücklaufstrom verdampft. Wird einem Kolonnenabschnitt weder ein Stoffstrom entnommen noch zugeführt, folgt, dass die Stoffmengenströme in diesem Abschnitt konstant sind. Diese Erkenntnis führt dazu, dass die Stoffmengenströme der Abtriebssäule (AS) bzw. Verstärkersäule (VS) konstant sind, da diese Bilanzgebiete als ebensolche Abschnitte definiert werden können.

$$\dot{L}_{VS} = \text{const.} \quad (2-26)$$

$$\dot{V}_{VS} = \text{const.} \quad (2-27)$$

$$\dot{L}_{AS} = \text{const.} \quad (2-28)$$

$$\dot{V}_{AS} = \text{const.} \quad (2-29)$$

Die für die Berechnung relevanten Bilanzgebiete sind in Abbildung 2-5 dargestellt.

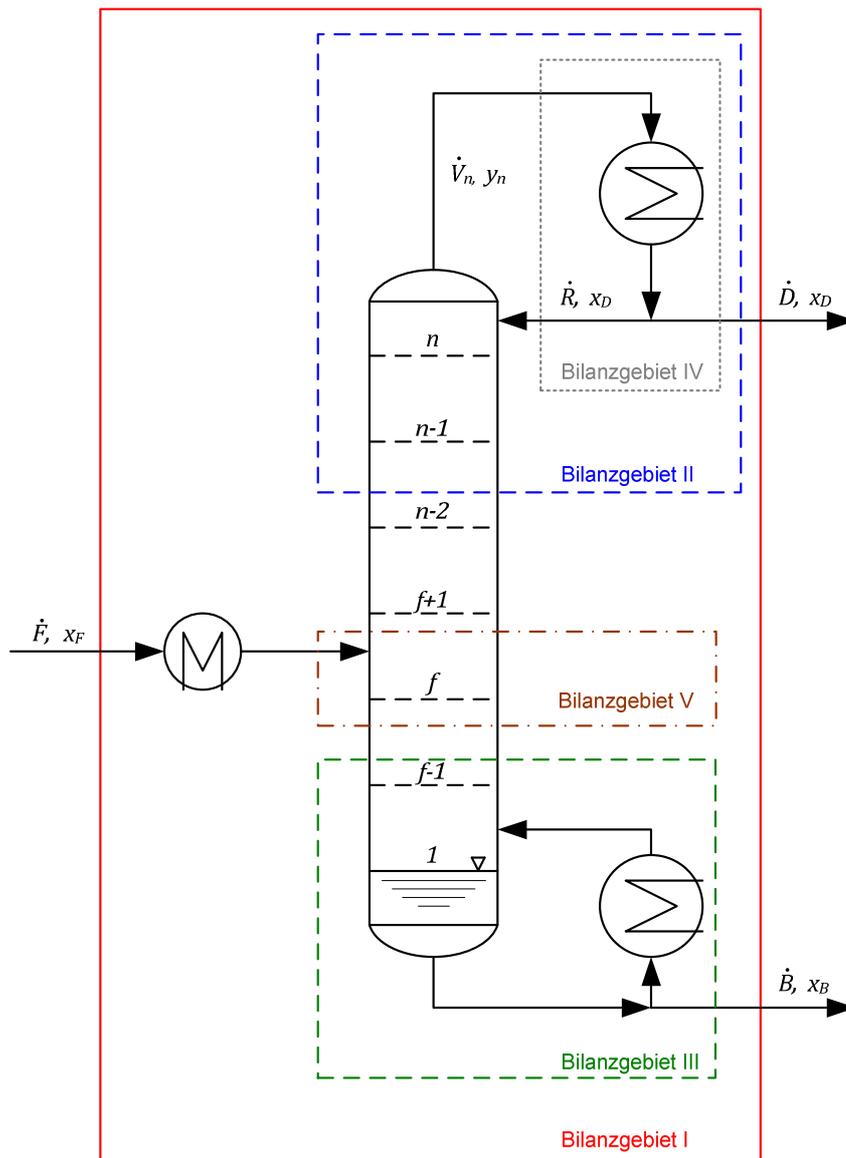


Abbildung 2-5: Wichtige Bilanzgebiete einer Rektifikationskolonne

Anmerkung: In der Darstellung der folgenden Bilanzen wurde aus Gründen der Übersichtlichkeit auf den Index für die Komponenten verzichtet. Sämtliche Komponentenbilanzen und Molanteile beziehen sich auf dieselbe (leichtersiedende) Komponente.

2.6.1.1 Bilanzgebiet I

Dieses Bilanzgebiet umfasst die gesamte Rektifikationskolonne. Die Gesamtbilanz ergibt

$$\dot{F} = \dot{D} + \dot{B}. \quad (2-30)$$

Weiters lässt sich die Komponentenbilanz formulieren.

$$\dot{F} \cdot x_F = \dot{D} \cdot x_D + \dot{B} \cdot x_B \quad (2-31)$$

Durch die Gleichungen (2-30) und (2-31) lässt sich der Stoffmengenstrom des Kopfprodukts darstellen.

$$\dot{D} = \dot{F} \cdot \frac{x_F - x_B}{x_D - x_B} \quad (2-32)$$

2.6.1.2 Bilanzgebiet II - Verstärkersäule

Das Bilanzgebiet II ermöglicht die Berechnung der Betriebsgeraden der Verstärkersäule. Hierzu soll das Bilanzgebiet in Abbildung 2-6 etwas näher betrachtet werden.

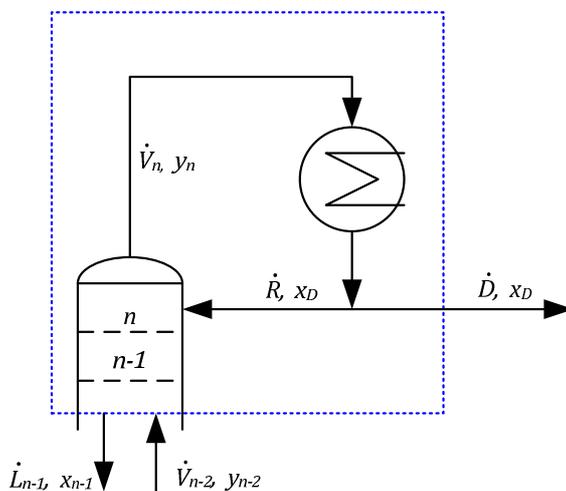


Abbildung 2-6: Bilanzgebiet II (Verstärkersäule)

Gesamt- und Komponentenbilanz liefern:

$$\dot{V}_{n-2} = \dot{L}_{n-1} + \dot{D} \quad (2-33)$$

$$\dot{V}_{n-2} \cdot y_{n-2} = \dot{L}_{n-1} \cdot x_{n-1} + \dot{D} \cdot x_D \quad (2-34)$$

Unter Berücksichtigung der Gleichungen (2-26) und (2-27) kann die Betriebsgerade der Verstärkersäule durch

$$y_{VS} \cdot \dot{V}_{VS} = \dot{L}_{VS} \cdot x + \dot{D} \cdot x_D \quad (2-35)$$

bzw.

$$y_{VS} = \frac{\dot{L}_{VS}}{\dot{V}_{VS}} \cdot x + \frac{\dot{D}}{\dot{V}_{VS}} \cdot x_D \quad (2-36)$$

beschrieben werden.

2.6.1.3 Bilanzgebiet III - Abtriebssäule

Die Betriebsgerade der Abtriebssäule wird unter Verwendung der folgenden Gleichungen analog zur Betriebsgeraden der Verstärkersäule ermittelt.

$$\dot{V}_{AS} = \dot{L}_{AS} - \dot{B} \quad (2-37)$$

$$y_{AS} \cdot \dot{V}_{AS} = \dot{L}_{AS} \cdot x - \dot{B} \cdot x_B \quad (2-38)$$

bzw.

$$y_{AS} = \frac{\dot{L}_{AS}}{\dot{V}_{AS}} \cdot x - \frac{\dot{B}}{\dot{V}_{AS}} \cdot x_B \quad (2-39)$$

2.6.1.4 Bilanzgebiet IV

Aus der Stoffmengenbilanz dieses Gebietes folgt

$$\dot{V} = \dot{D} + \dot{R} . \quad (2-40)$$

Trifft man die Annahme, dass der Rücklauf am Siedepunkt zugeführt wird, gilt nach Gleichung (2-26)

$$\dot{L} = \dot{R} . \quad (2-41)$$

Führt man das externe Rücklaufverhältnis r

$$r \equiv \frac{\dot{R}}{\dot{D}} \quad (2-42)$$

ein, lässt sich die Gleichung der Verstärkersäule laut Gleichung (2-43) darstellen.

$$y_{VS} = \frac{r}{r+1} \cdot x + \frac{x_D}{r+1} \quad (2-43)$$

Die Betriebsgerade der Verstärkersäule kann somit in Abhängigkeit des externen Rücklaufverhältnisses und der gewünschten Kopfproduktspezifikation im McCabe-Thiele Diagramm eingezeichnet werden.

2.6.1.5 Bilanzgebiet V

Aus Bilanzgebiet V (Abbildung 2-7) wird die sogenannte q-Linie ermittelt. Ihre Steigung repräsentiert den thermischen Zustand des Feedstroms und legt dadurch – wie im Folgenden dargestellt – den Schnittpunkt der Betriebsgeraden von Abtriebs- und Verstärkersäule fest. Hierzu werden sowohl Stoff- und Enthalpiebilanz in diesem Bilanzgebiet betrachtet.

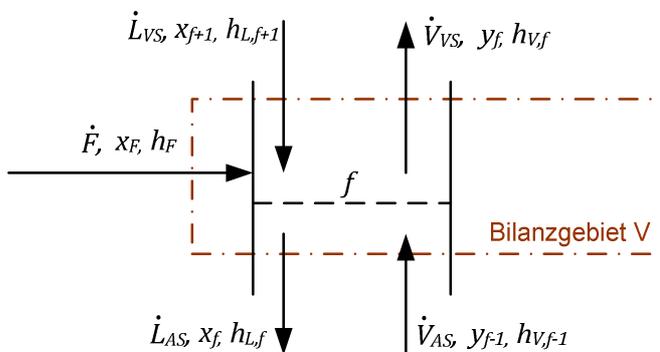


Abbildung 2-7: Bilanzgebiet V (Feedboden)

Gesamtbilanz, Komponentenbilanz und Enthalpiebilanz ergeben:

$$\dot{F} + \dot{L}_{VS} + \dot{V}_{AS} = \dot{L}_{AS} + \dot{V}_{VS} \quad (2-44)$$

$$\dot{F} \cdot x_F + \dot{L}_{VS} \cdot x_{f+1} + \dot{V}_{AS} \cdot y_{f-1} = \dot{L}_{AS} \cdot x_f + \dot{V}_{VS} \cdot y_f \quad (2-45)$$

$$\dot{F} \cdot h_F + \dot{L}_{VS} \cdot h_{L,f+1} + \dot{V}_{AS} \cdot h_{V,f-1} = \dot{L}_{AS} \cdot h_{L,f} + \dot{V}_{VS} \cdot h_{V,f} \quad (2-46)$$

Weiters wird der kalorische Faktor q eingeführt:

$$q \equiv \frac{\dot{L}_{AS} - \dot{L}_{VS}}{\dot{F}} \quad (2-47)$$

Dieser lässt sich mit der Gesamtbilanz (2-44), der Enthalpiebilanz (2-46) sowie der Annahme konstanter Enthalpien laut (2-48) bzw. (2-49) formulieren.

$$q = \frac{h_V - h_F}{h_V - h_L} \quad (2-48)$$

$$q = 1 + \frac{h_{F,BP} - h_F}{\Delta h_V} \quad (2-49)$$

Die Annahme, dass sich die Betriebsgeraden der Abtriebssäule und der Verstärkersäule im Punkt (x_q, y_q) schneiden, führt zu

$$y_q \cdot \dot{V}_{AS} = \dot{L}_{AS} \cdot x_q - \dot{B} \cdot x_B \quad (2-50)$$

bzw.

$$y_q \cdot \dot{V}_{VS} = \dot{L}_{VS} \cdot x_q + \dot{D} \cdot x_D \quad (2-51)$$

Wird Gleichung (2-51) von (2-50) subtrahiert, liefert dies

$$y_q \cdot (\dot{V}_{AS} - \dot{V}_{VS}) = (\dot{L}_{AS} - \dot{L}_{VS}) \cdot x_q - (\dot{B} \cdot x_B + \dot{D} \cdot x_D) \quad (2-52)$$

Unter Berücksichtigung der Komponentenbilanz (2-31) und der Gleichungen (2-44) und (2-47), kann die q -Linie durch

$$y_q = \frac{q}{q-1} \cdot x - \frac{x_F}{q-1} \quad (2-53)$$

beschrieben werden.

2.6.1.6 Der thermische Zustand des Feed

Der Feedstrom kann in folgenden thermischen Zuständen aufgegeben werden:

- Unterkühlte Flüssigkeit: $q > 1$
- Flüssig siedend: $q = 1$
- Teilweise verdampft: $q < 1$

- Sattdampf: $q = 0$
- Überhitzter Dampf: $q < 0$

Die Auswirkung des thermischen Zustands des Einsatzgemisches auf die Lage des Schnittpunktes der Betriebsgeraden wird in Abbildung 2-8 veranschaulicht.

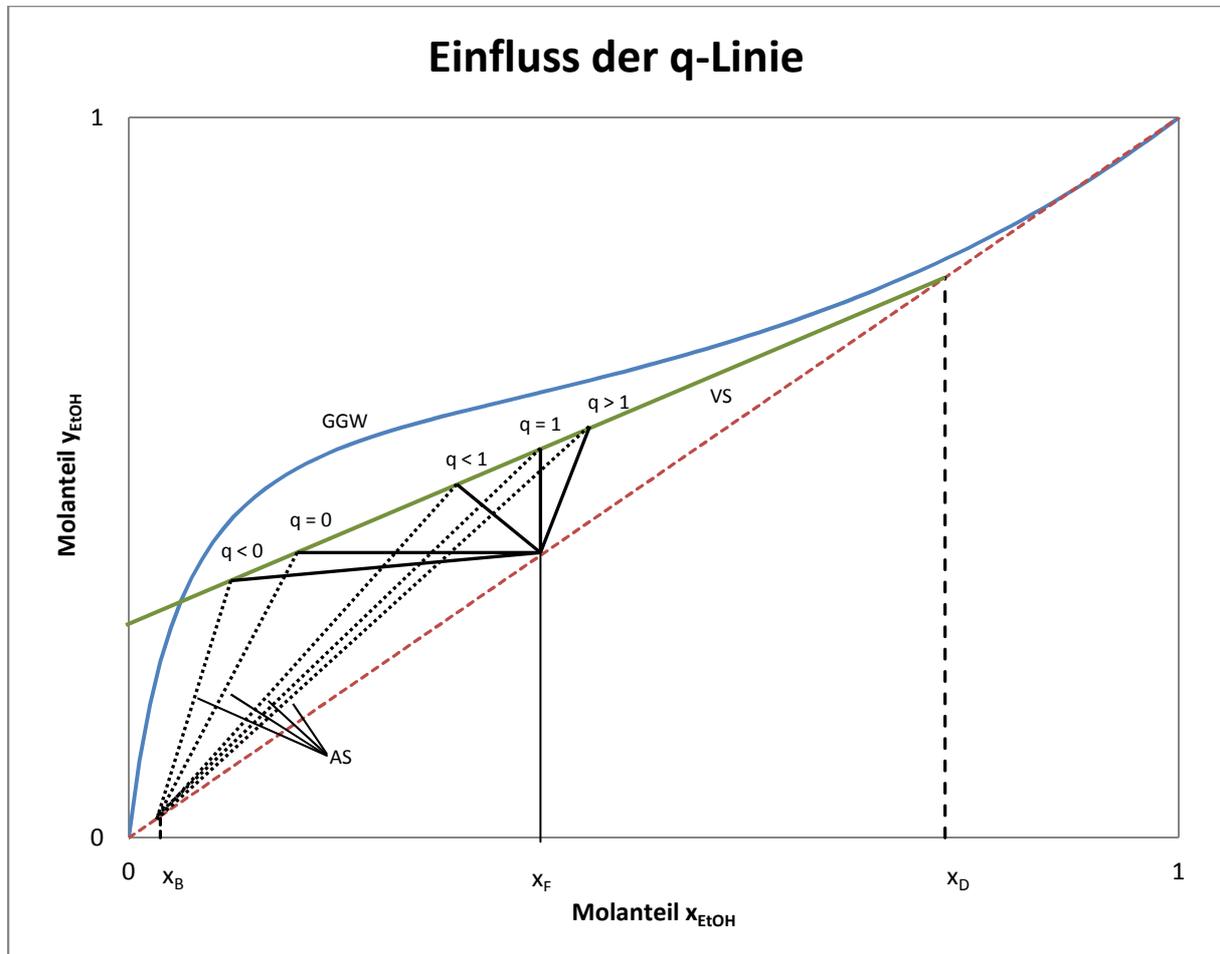


Abbildung 2-8: Einfluss der q-Linie auf den Schnittpunkt der Betriebsgeraden

VS... Betriebsgerade Verstärkersäule

GGW... Gleichgewichtskurve

AS... Betriebsgerade Abtriebssäule

2.6.1.7 Die Stufenkonstruktion

Für die Ermittlung der Anzahl theoretischer Trennstufen wird nach der Konstruktion der Betriebslinien der Treppenzug im McCabe-Thiele-Diagramm eingezeichnet. Dies erfolgt beispielsweise ausgehend vom Sumpfprodukt am Schnittpunkt der Betriebsgeraden mit der $y=x$ -Diagonalen. Unter der Bedingung, dass sich auf einer theoretischen Trennstufe das Phasengleichgewicht vollständig einstellt (s. Kap. 2.5), beginnt die Konstruktion des Treppenzugs mit einer senkrechten Linie bis zum Schnittpunkt mit der Gleichgewichtskurve. Von diesem Punkt wird eine waagrechte Linie bis zur Betriebsgeraden der Abtriebssäule

gezogen. Dies entspricht der ersten theoretischen Trennstufe. Die Punkte auf der Betriebsgeraden stellen die Übergangszustände zwischen den theoretischen Trennstufen dar. Sie ergeben sich aus der Zusammensetzung des Flüssigkeitsstroms, der eine Stufe verlässt und der Zusammensetzung des Dampfes, der in diese Stufe eintritt. Der Vorgang der Stufenkonstruktion wird wiederholt, bis der Molanteil y^* auf der Gleichgewichtskurve den Wert y_q übersteigt. Ab diesem Punkt wird der waagrechte Teil des Treppenzugs mit der Betriebsgeraden der Verstärkersäule geschnitten. Die letzte Stufe ist erreicht, wenn der Molenbruch $y_D (=x_D)$ des Kopfprodukts überschritten wird. In Abbildung 2-9 wurde die Konstruktion exemplarisch ausgeführt.

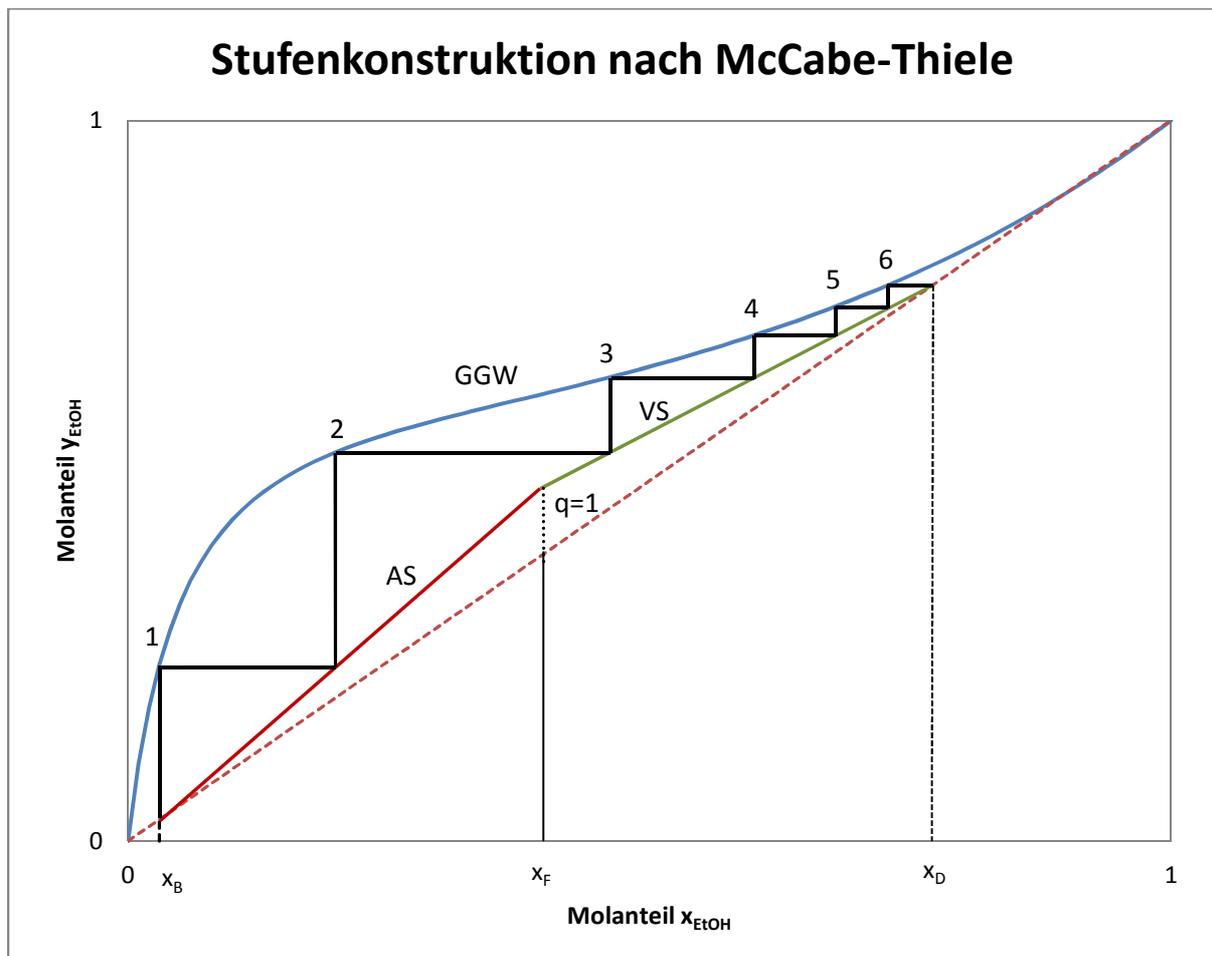


Abbildung 2-9: Exemplarische Stufenkonstruktion nach McCabe-Thiele

2.6.1.8 Das minimale Rücklaufverhältnis

Um durch Rektifikation einen definierten Molanteil x_D im Destillat zu erreichen, darf ein gewisses minimales Rücklaufverhältnis nicht unterschritten werden. Zur Berechnung des minimalen Rücklaufverhältnisses bringt man die q -Linie des Einsatzgemisches mit der Gleichgewichtskurve zum Schnitt. Durch diesen Schnittpunkt verläuft auch die Betriebsgerade der Verstärkersäule.

Aus dem Ordinatenabschnitt

$$d_{min} = \frac{x_D}{r_{min} + 1} \quad (2-54)$$

dieser Betriebsgeraden kann das minimale Rücklaufverhältnis

$$r_{min} = \frac{x_D}{d_{min}} - 1 \quad (2-55)$$

berechnet werden. Das minimale Rücklaufverhältnis ergäbe im McCabe-Thiele-Diagramm unendlich viele theoretische Trennstufen, da die Betriebsgeraden die Gleichgewichtskurve schneiden. In der Praxis muss daher stets ein größeres Rücklaufverhältnis als das minimale gewählt werden.

2.6.2 Das Beck-Verfahren ^[7]

Das Beck-Verfahren dient zur Vorausberechnung von Füllkörperkolonnen hinsichtlich der max. zulässigen Dampfgeschwindigkeit w_{max} , der zu erwartenden Wertungszahl n_t (s. Kap.2.6.2.2) sowie des zu erwartenden Druckverlusts Δp . Es basiert auf empirischen Ansätzen, die in folgenden Bereichen auf ihre Gültigkeit geprüft wurden:

- Kolonnendurchmesser: 0,15 – 1,20 m
- Höhe der Schüttung: 1,0 – 6,0 m
- Dichte der Flüssigphase: 400 – 1400 kg/m³
- Dichte der Dampfphase: 0,015 – 25 kg/m³
- Dynamische Viskosität d. Flüssigphase: 0,1 – 90 mPas
- Regendichte: 0,83 – 320 m³/m²h

2.6.2.1 Berechnung der zulässigen Dampfgeschwindigkeit

Die maximal zulässige Leerrohr-Dampfgeschwindigkeit $w_{leer,max}$ wird durch

$$w_{leer,max} = K_1 \cdot \sqrt{\frac{\rho_L}{\rho_V}} \cdot [1 - K_2 \cdot f(\eta_L) \cdot \sqrt{R}] \quad (2-56)$$

mit

$$f(\eta_L) = 0,8 + 0,225 \cdot \sqrt[4]{\eta_L} \quad (2-57)$$

berechnet.

$w_{leer,max}$...	max. zulässige Leerrohr – Dampfgeschwindigkeit [m/s]
K_1, K_2 ...	Füllkörperkonstanten
ρ_L ...	Dichte der Flüssigkeit am Kopf des betrachteten Füllkörperpakets [kg/m ³]
ρ_V ...	Dichte des Dampfes am Kopf des betrachteten Füllkörperpakets [kg/m ³]
η_L ...	dyn. Visk. der Flüssigphase am Kopf des betrachteten Füllkörperpakets [mPas]
R ...	Regendichte am Kopf des betrachteten Füllkörperpakets [m ³ /m ² h]

Gleichung (2-57) ist zu beachten, wenn $\eta_L > 1,0$ mPas. Andernfalls gilt $f(\eta_L) = 1$.

2.6.2.2 Berechnung der Wertungszahl n_t

Die Berechnung der Wertungszahl erfolgt nach Gleichung (2-58) - (2-60).

$$n_{t,min} = \frac{K_3}{w_{max}} \sqrt{\frac{\rho_{L,m}}{\rho_{V,m}}} \cdot \frac{1}{1+D} \cdot \sqrt[4]{\frac{1}{H}} \cdot (1 - K_4 \cdot \sqrt{R}) \cdot f(d/D) \quad (2-58)$$

mit

$$f(d/D) = \frac{1,72}{1 + 7,5 \cdot (d/D)^2} - 0,72 \quad (2-59)$$

und

$$w_{max} = w_{leer,max} \cdot [1 + 7,5 \cdot (d/D)^2] \quad (2-60)$$

$n_{t,min}$...	zu erwartende minimale theoretische Stufenzahl pro Meter Schüttung
K_3, K_4 ...	Füllkörperkonstanten
w_{max} ...	zulässige Dampfgeschwindigkeit am Kopf des Füllkörperpakets [m/s]
d ...	Durchmesser der Füllkörper [m]
D ...	Durchmesser der Kolonne [m]
$\rho_{L,m}$...	über Füllkörperpaket gemittelte Dichte der Flüssigkeit [kg/m ³]
$\rho_{V,m}$...	über Füllkörperpaket gemittelte Dichte des Dampfes [kg/m ³]
H ...	Höhe des Füllkörperpakets [m]

2.6.2.3 Berechnung des spezifischen Druckverlusts

Der spezifische Druckverlust wird über die folgenden Gleichungen ermittelt:

$$\Delta p = K_5 \cdot \left(1000 \cdot \frac{\rho_{V,m}}{\rho_{L,m}} \cdot w_{leer,max}^2 \right)^n \cdot f(R, \eta_L) \quad (2-61)$$

mit

$$f(R, \eta_L) = 10^{(K_6 + K_7 \cdot R)} \cdot f(n_L) \quad (2-62)$$

Δp ... zu erwartender Druckverlust pro Meter Schüttung [mm WS/m]

K_5, K_6, K_7 ... Füllkörperkonstanten

n ... Exponent – im Anhang erläutert (s. Anhang B)

$f(n_L)$ wird wiederum nur für $\eta_L > 1,0$ mPas berücksichtigt (s. Gleichung (2-57)).

2.7 Stoffsystem Ethanol-Wasser^{[3], [8]}

Zur Validierung des programmierten Prozessleitsystems wurden die in Kap. 4 erläuterten Testläufe mit dem binären Testsystem Ethanol-Wasser durchgeführt. Dieses Stoffsystem weist bei einem Druck von 973 mbar ein homogenes Tiefsiedeazeotrop bei einem Molanteil von $x_{\text{EtOH}} = 0,8962$ ($w_{\text{EtOH}} = 0,9567$) auf. Diese Daten wurden mit dem Aktivitätskoeffizientenmodell NRTL in Aspen Plus 2006^[3] berechnet und bilden die Basis zur Ermittlung der theoretischen Stufenanzahl nach dem McCabe-Thiele-Verfahren (s. Anhang A). Abbildung 2-10 zeigt das entsprechende McCabe-Thiele-Diagramm.

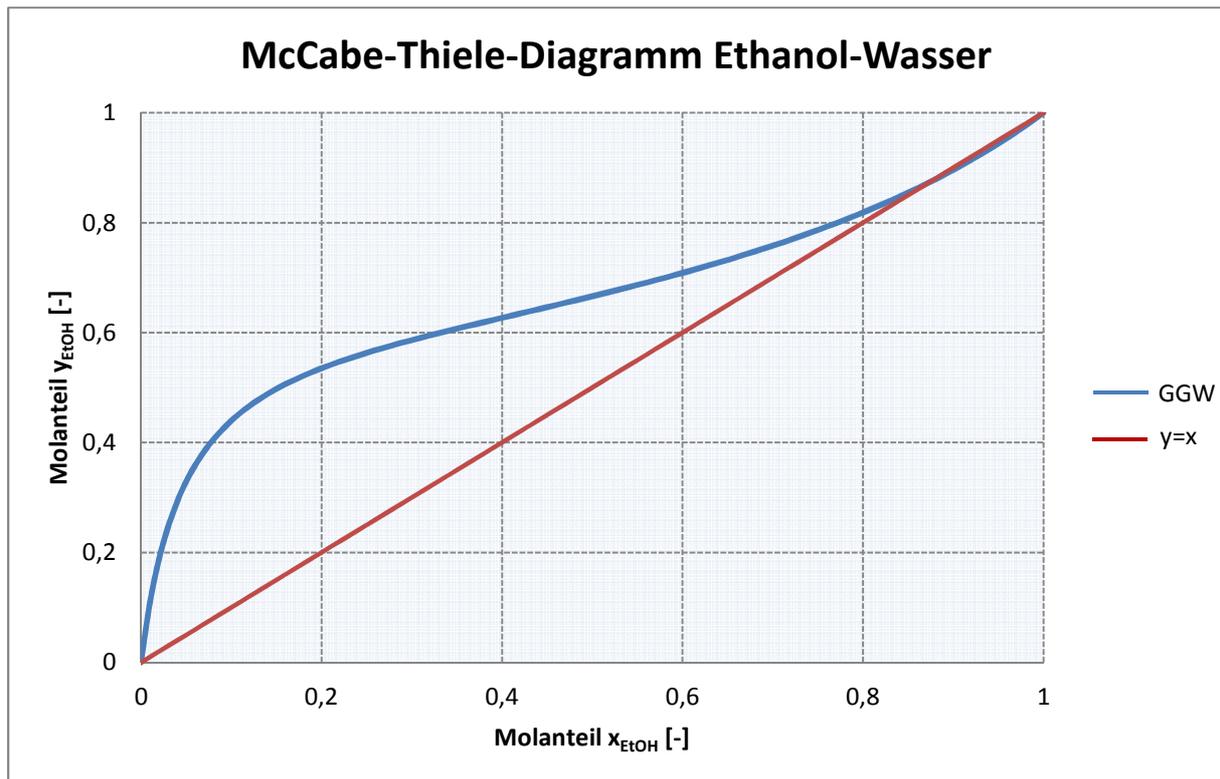
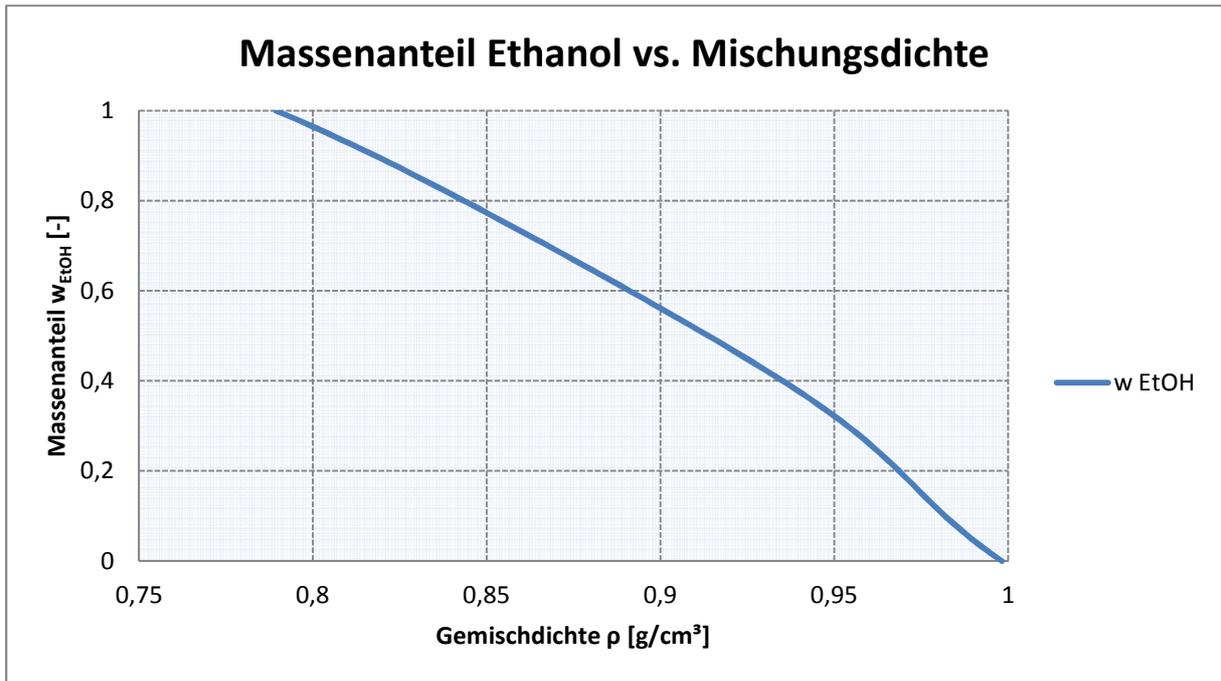


Abbildung 2-10: McCabe-Thiele Diagramm für Ethanol Wasser, $p = 973 \text{ mbar}$

Um die Schnittpunktberechnung des Treppenzugs mit der Gleichgewichtslinie in MS Excel durchführen zu können, wurde im Programm TableCurve^[8] eine Fit-Gleichung der Gleichgewichtsdaten erstellt. Die Fit-Gleichung und die Reinstoffdaten für Ethanol und Wasser sind im Anhang angeführt (s. Anhang A, Anhang C).

2.7.1 Analyse der Proben des Stoffsystems Ethanol-Wasser

Die Analyse der Feed- bzw. Produktproben wurde über Dichtemessung durchgeführt. Zur Auswertung der Ergebnisse wurde auf Literaturdaten^[9] zurückgegriffen, die den Zusammenhang zwischen dem Massenbruch der Komponente Ethanol und der Dichte des binären Gemisches tabellarisch anführen. Anhand dieser Daten wurde eine weitere mathematische Beziehung im Programm TableCurve generiert (s. Anhang A). Die Dichten sämtlicher Proben dieses Stoffsystems wurden mit dem Viskosimeter SVM 3000 der Firma Anton Paar vermessen und deren Zusammensetzung über die Gleichung der Fit-Kurve berechnet.

Abbildung 2-11: Massenanteil w_{EtOH} vs. Mischungsdichte EtOH-Wasser, T = 20°C

3 Beschreibung der Anlage

3.1 Aufbau der Anlage ^[10]

3.1.1 Der Sumpfverdampfer

Der Sumpfverdampfer wurde nach den Konstruktionsvorgaben des Bearbeiters dieses Projekts von der Firma Bartelt GmbH in der Form eines Kettle-Reboilers angefertigt (s. Abbildung 3-1). Er fasst ein Volumen von ca. 3 l. Die Beheizung erfolgt durch elektrische Heizelemente, die vom Prozessleitsystem angesteuert werden (s. Kap. 3.3.8). Es können bis zu vier Anschlussstutzen für Messungen genutzt werden. Diese werden zur Überwachung des Füllstands sowie zur Druck- und Temperaturmessung im Sumpf verwendet. Zwei weitere Stutzen bieten die Möglichkeit, den Verdampfer zu befüllen bzw. zu entleeren. Der Ablauf des Sumpfprodukts erfolgt über einen Siphon mit integriertem Sumpfproduktkühler. Die maximale Heizleistung des Verdampfers beträgt rund 2 kW.



Abbildung 3-1: Sumpfverdampfer der Kolonne

3.1.2 Die Abtriebssäule

Die Abtriebssäule besteht aus Borosilikatglas (s. Abbildung 3-2). Die Abmessungen betragen DN 35 x 750 mm, wobei die aktive Höhe der Füllkörperschüttung mit rund 500 mm angegeben werden kann. Der silberspiegelte Vakuummantel (10^{-6} mbar) der Abtriebssäule gewährleistet eine ausgezeichnete Wärmeisolation. Ein Balgkompensator gleicht etwaige Wärmdehnungen aus. Die Füllkörperschüttung besteht aus Glas-Raschigringen ($d = 6$ mm), die auf einem Tragrost ruhen. Die Abtriebssäule ist mit zwei Anschlussstutzen versehen, über die der Zulauf des Feedstroms bzw. die Druck- und Temperaturmessung in der Kolonnenmitte erfolgen. Die Verbindung zu Sumpfverdampfer bzw. Verstärkersäule erfolgt durch Kugelschliffe und Flansche.



Abbildung 3-2: Abtriebssäule

3.1.3 Die Verstärkersäule

Die Verstärkersäule besteht ebenfalls aus Borosilikatglas und hat denselben Durchmesser wie die Abtriebssäule (s. Abbildung 3-3). Die Länge beträgt jedoch nur 600 mm, wobei die aktive Höhe der Füllkörperschüttung wie bei der Abtriebssäule ebenfalls 500 mm beträgt. Die konstruktive Ausführung des Isoliermantels und der Schliffverbindungen der Verstärkersäule gleicht jener der Abtriebssäule. Die Verstärkersäule verfügt allerdings über keine Messstutzen. Die Verstärkersäule ist ebenso wie die Abtriebssäule mit transparenten Sichtstreifen versehen, um die Vorgänge in der Kolonne beobachten zu können.



Abbildung 3-3: Verstärkersäule

3.1.4 Der Kolonnenkopf

Der Kolonnenkopf besteht aus Kopfkondensator, Rücklaufteiler und Destillatkühler. Der Kopfkondensator ist in Form eines gläsernen Rohrwendelwärmetauschers ausgeführt. Das Kühlmedium fließt sowohl durch den Mantel als auch die Rohrwendel, wodurch sich eine Wärmeaustauschfläche von 1,20 m² ergibt. Der Destillatkühler ist als Koaxialwärmetauscher ausgeführt. Der Rücklaufteiler besteht aus einem gläsernen Pendeltrichter. Seine Funktionsweise wird in Kap. 3.3.9 näher erläutert. Um den zulässigen Überdruck in der Kolonne nicht zu überschreiten, wurde am Kolonnenkopf ein Sicherheitsventil installiert, welches bei einem Druck von 0,1 bar_ü auslöst.

3.1.5 Feedzulauf und -vorwärmung

Das zu trennende Stoffgemisch kann einerseits in der Kolonnenmitte, andererseits am Kopf der Kolonne aufgegeben werden. Des Weiteren besteht die Möglichkeit, beide Einlassstutzen zu nutzen um zwei Feedströme aufzugeben. Diese Option wird vor allem relevant, wenn in der Kolonne Reaktivrektifikationsverfahren umgesetzt werden sollen. Die Feedströme werden durch separate Schlauchquetschpumpen in die Kolonne gefördert. Um die Ströme auf die gewünschte Temperatur vorzuwärmen, durchlaufen sie vor Eintritt in die Kolonne jeweils einen Rohrwendelwärmetauscher. Das Heizmedium wird in einem Thermostaten erwärmt und mantelseitig durch die in Serie geschalteten Wärmetauscher gefördert. Die Heiz- bzw. Pumpenleistung des Thermostaten und die Schaltzustände der Feedpumpen werden über das Prozessleitsystem (s. Kap. 3.3.6) gesteuert.

3.2 Fließbild der Anlage ^[11]

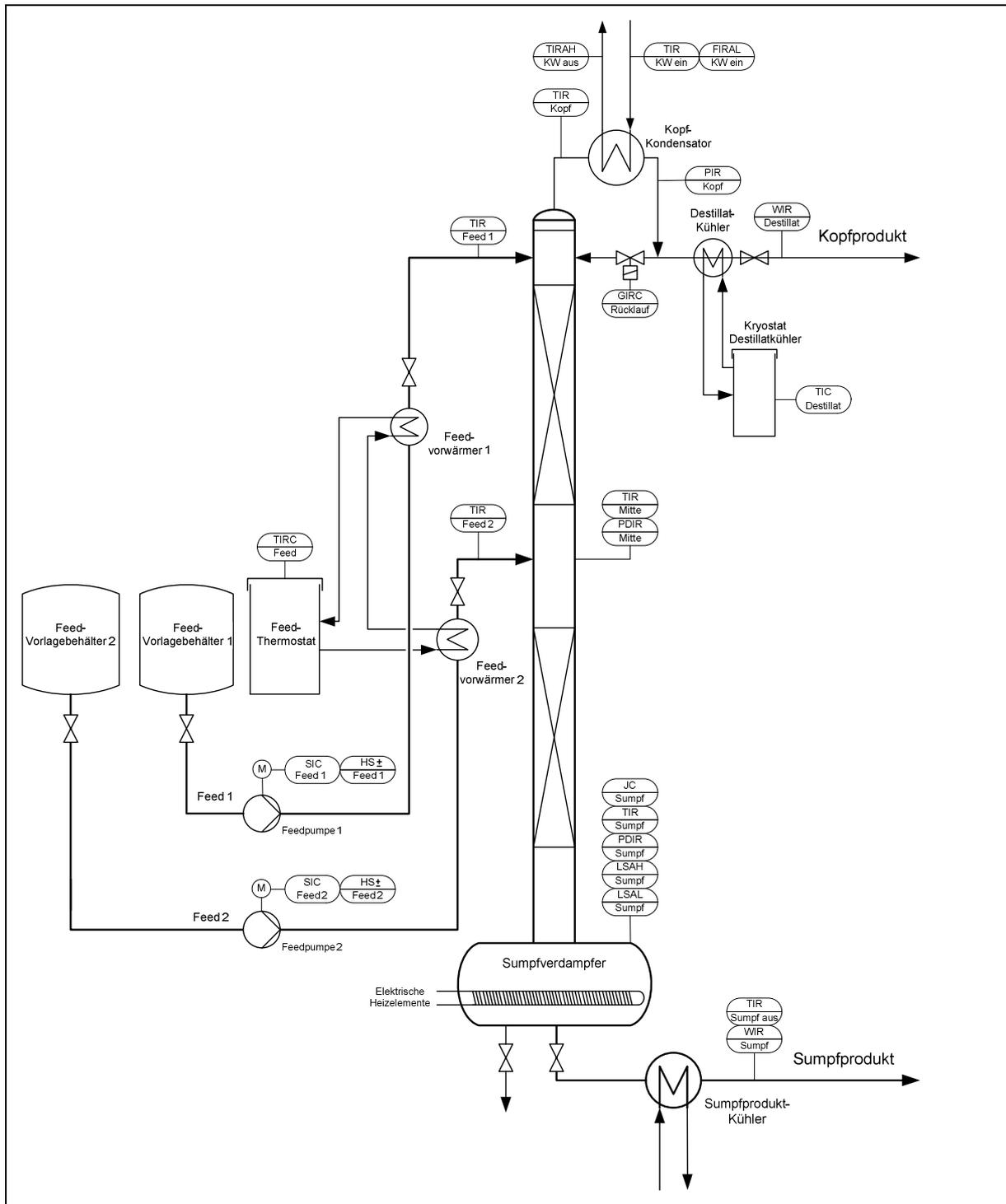


Abbildung 3-4: Fließbild der Rektifikationsanlage

In Abbildung 3-4 werden das Fließbild und die elektrischen Mess-, Steuer- und Regelungsstellen veranschaulicht. Die MSR-Abkürzungen werden im Anhang erläutert (s. Anhang E).

3.3 Mess-, Steuer- und Regelungstechnik

In diesem Kapitel werden die Messsensoren, die A/D-Wandlermodule für die Messdatenerfassung und die D/A-Wandlermodule für die Steuerung der Anlage beschrieben. Weiters werden das Prozessleitsystem und die Sicherheitsabschaltungen für Störfälle betrachtet.

3.3.1 Pt-100 Widerstandsthermometer^[12]

In der Kolonne kommen insgesamt acht Pt100 – Widerstandsthermometer zum Einsatz. Durch geeignete Module (s. Kap. 3.3.7) werden die Widerstandsthermometer von einem konstanten Messstrom durchflossen, der Spannungsabfall gemessen und somit der Widerstand ermittelt. Die gemessenen Signale werden im Modul zu einer dem Widerstand äquivalenten Temperatur umgewandelt, digitalisiert und im Prozessleitsystem erfasst.

3.3.2 Druckmessumformer^{[13], [14]}

Um den Druck im Kopfkondensator bzw. den Druckverlust über Verstärker- und Abtriebssäule der Kolonne zu erfassen, wurden (Differenz-) Druckmessumformer installiert. Diese Messumformer funktionieren nach dem Prinzip des piezoresistiven Effekts, welcher eine Änderung des Widerstands aufgrund von Druck- bzw. Zugbeanspruchung hervorruft. Das Ausgangssignal bewegt sich im Bereich von 4 mA (unterer Grenzwert) bis 20 mA (oberer Grenzwert) und wird wiederum in einem A/D-Wandlermodul digitalisiert und im Prozessleitsystem erfasst.

3.3.3 Füllstandssensoren^[15]

Der Füllstand des Kolonnensumpfes wird von zwei Füllstandssensoren überwacht (maximaler und minimaler Füllstand). Die Sensoren bestehen aus einem Lichtleitstab aus Quarzglas und einem optoelektronischen Sender bzw. Empfänger, der im Infrarotbereich arbeitet. Das Funktionsprinzip des Sensors beruht darauf, dass der Sender Wellen im IR-Bereich durch den Lichtleitstab sendet, dessen Ende ein Prisma darstellt. Solange dieses Prisma nicht von Flüssigkeit umgeben ist, wird die IR-Strahlung zum Empfänger reflektiert. Andernfalls wird die IR-Strahlung von der Flüssigkeit gebrochen und erreicht den Empfänger nur mehr in abgeschwächter Form. Durch das Modul FP AI-100 (s. Kap. 3.3.7) werden die Sensoren mit Strom versorgt. Der elektrische Anschluss erfolgt nach dem Dreileitersystem. Zwei Leiter werden an die Spannungsquelle des Moduls angeschlossen, der dritte Leiter

fungiert als Messleitung. Wird das Glasprisma von Flüssigkeit umgeben, liegt an der zuvor spannungslosen Messleitung eine definierte Spannung an, welche vom A/D-Wandlermodul digitalisiert wird.

3.3.4 Durchflussmessung Kühlwasser

Der Kühlwasserstrom durch den Kopfkondensator wird durch einen induktiven Durchflussmesser überwacht. Dadurch wird in Kombination mit der Temperaturmessung des Kühlwasserstroms am Eintritt bzw. Austritt eine Energiebilanz über den Kopfkondensator ermöglicht. Es wird eine Warnung im Prozessleitsystem angezeigt, wenn der Kühlwasserstrom unter einem definierten Grenzwert liegt.

3.3.5 Der Aufbau des Schaltschranks

Die A/D- bzw. D/A-Wandlermodule der Firma National Instruments (s. Kap. 3.3.7) wurden in einem Schaltschrank installiert. Der Aufbau des Schaltschranks ist in der nebenstehenden Abbildung zu sehen. Unter den genannten Modulen befindet sich eine Klemmleiste, über welche die Anlage mit dem Stromnetz verbunden wird (CEE-Stecker 16 A, 3L+N+PE). Daneben befinden sich ein Fehlerstrom-Schutzschalter, drei Leistungs-Schutzschalter (16 A), das Rücklaufteilerrelais und der Thyristorsteller für die Sumpfheizung. Eine Beschreibung der Kanalbelegung der Wandlermodule und der Stromkreise wird im Anhang angeführt (s. Anhang E).

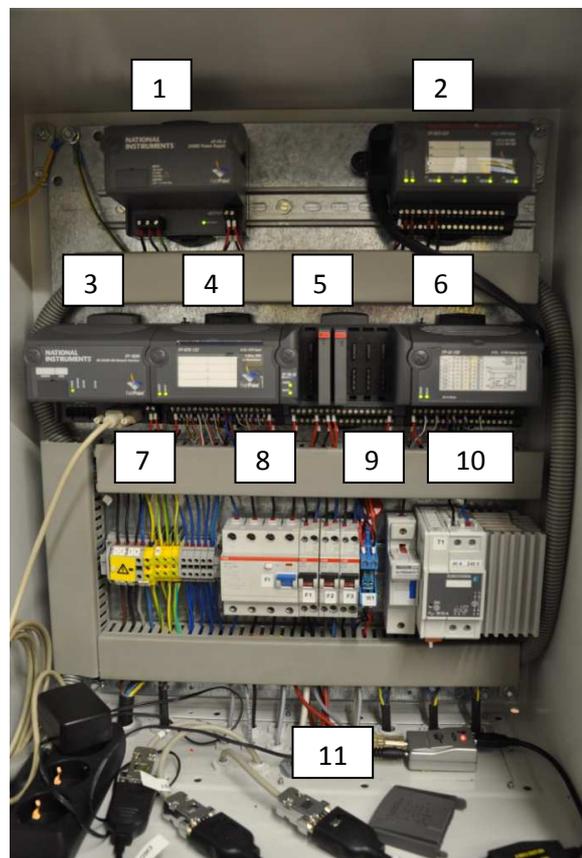


Abbildung 3-5: Aufbau des Schaltschranks

- | | |
|-------------------------------------|--|
| 1... NI FP-PS-4 Netzteil | 2... NI FP-RLY-422 Relaismodul |
| 3... NI FP 1000 Schnittstellenmodul | 4... NI FP-RTD-122 Pt100-Modul |
| 5... NI FP-TB10 | 6... NI FP-AI100 |
| 7... Klemmleiste | 8... FI und LSS |
| 9... Rücklaufteilerrelais | 10... Thyristorsteller (Heizungssteuerung) |
| 11... RS232-USB Konverter | |

3.3.6 Das Prozessleitsystem (PLS) ^[16]

Das programmierte Prozessleitsystem „PLS Destillation“ ermöglicht die computergestützte Messdatenerfassung und Steuerung der Anlage. Sämtliche Messdaten und eingegebenen Parameter werden auf Wunsch in einer Textdatei gespeichert. Das für den Anlagenbetreiber wichtigste Element des PLS ist die grafische Oberfläche (Front Panel – s. Abbildung 3-6).

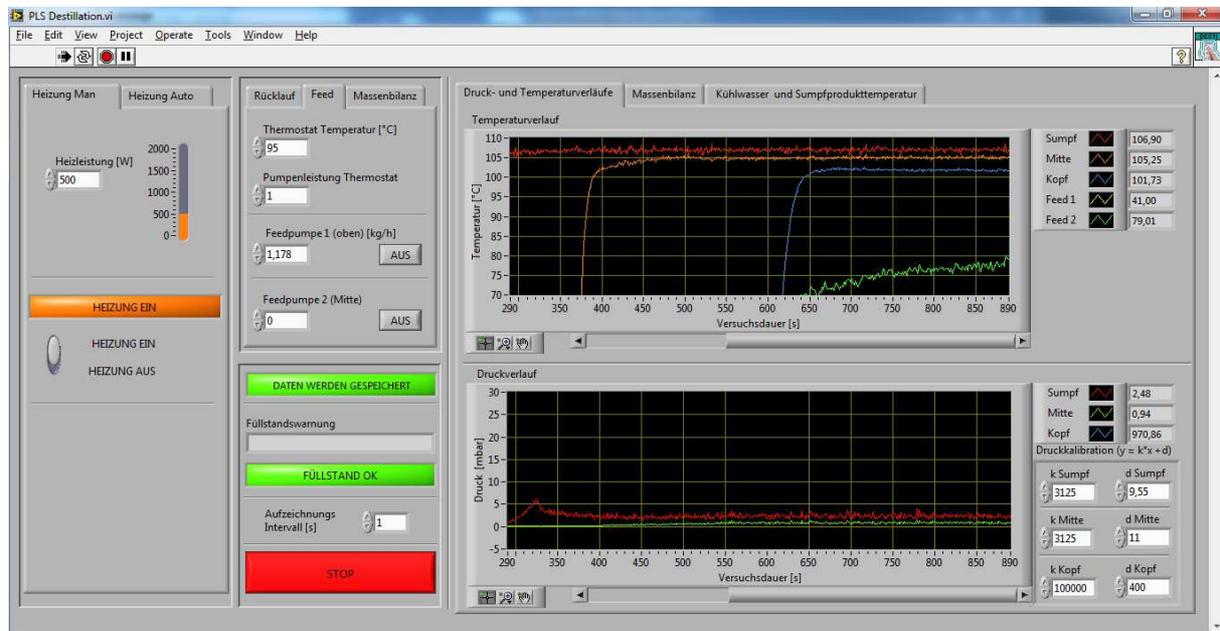


Abbildung 3-6: Bedienoberfläche des programmierten Prozessleitsystems

Auf dem Front Panel erfolgt die Eingabe der folgenden Parameter:

- Heizleistung (automatische oder manuelle Regelung)
- Taktung des Rücklaufteilers
- Steuerung der Feedpumpen
- Temperatur und Pumpenleistung des Thermostaten der Feedvorwärmer
- Maximal zulässige Temperatur des aus dem Kopfkondensator austretenden Kühlwasserstroms

Weiters werden auf dieser Benutzeroberfläche folgende Messwerte angezeigt und deren Verläufe über die Versuchsdauer in Diagrammen dargestellt:

- Temperaturmessungen
- Druckmessungen
- Durchflussmessung des Kühlwasserstroms durch den Kopfkondensator

- Massenströme von Kopf- und Sumpfprodukt (optional)
- Kondensatorleistung (ohne Diagramm)

3.3.7 Das Fieldpoint-System ^[12]

Das Fieldpoint-System der Firma National Instruments gewährleistet die Kommunikation zwischen dem Prozessleitsystem und den Messstellen bzw. der zu steuernden Anlagenausrüstung. Es besteht aus einem Netzwerkschnittstellenmodul (FP-1000), einem Netzteil (FP-PS-4), einem Relaismodul (FP-RLY-422) und sogenannten Input/Output-Modulen (I/O-Module). Letztere dienen zur Wandlung von analogen zu digitalen (A/D) bzw. digitalen zu analogen (D/A) Signalen. Somit ist es möglich analoge Messsignale wie Ströme und Spannungen zu digitalisieren und im PLS zu erfassen. Im Gegenzug werden digitale Befehle des PLS in analoge Steuerströme bzw. Steuerspannungen umgewandelt. Dadurch werden die Steuerung der Sumpfheizung über einen Thyristor (s. Kap. 3.3.8), die Schaltung des Rücklafterrelais (siehe Kap. 3.3.9) sowie das Schalten der Feedpumpen (s. Kap. 3.3.10) realisiert.

- Modul FP-1000

Dieses Modul stellt die Netzwerkschnittstelle des Fieldpoint-Systems dar. Es wird von einem Netzteil (FP-PS-4) mit Strom versorgt und bietet die Möglichkeit, bis zu neun Fieldpoint-I/O-Module anzuschließen. Die Kommunikation mit dem PLS erfolgt über eine RS-232-Verbindung.

- Netzteil FP-PS-4

Das Netzteil wird an ein 230 V Wechselstromnetz angeschlossen und stellt die Stromversorgung des Fieldpoint-Systems sicher. Die Ausgangsspannung beträgt 24 VDC.

- Modul FP-RTD-122

Es dient zur Wandlung der Messwerte von bis zu acht Pt100-Widerstandsthermometern (siehe Kap. 3.3.1). Es können sowohl 2- als auch 3-Leiterwiderstandsthermometer angeschlossen werden.

- Modulbasis FP-TB-10

In die Basis des Moduls können bis zu sechs verschiedene I/O-Modulsteckkarten eingesetzt werden. Die Basis kann mit Ein- und Ausgangsmodulen für Strom und Spannung sowie Eingangsmodulen für Thermoelemente und Widerstandsthermometer bestückt werden. Im konkreten Fall wurde je ein Ausgangsmodul für

Strom und Spannung installiert. Diese Module schalten den Steuerstrom für den Thyristorsteller der Sumpfheizung und die Spulenspannung des Rücklaufterrelais (s. Kap. 3.3.8 und 3.3.9).

- Modul FP-AI100

Dieses Modul hat acht Eingänge um Spannungs- und Stromsignale zu digitalisieren. Es erfasst die Signale der Druckmessungen, der Füllstandssensoren und des Durchflussmessers.

- Modul FP-RLY-422

Das Modul besteht aus vier Relais, die Ströme bis zu 3 A schalten können. Es dient zur Schaltung der Feedpumpen.

3.3.8 Steuerung der Sumpfheizung

Die Sumpfheizung besteht aus zwei elektrischen Heizelementen, die jeweils einen Widerstand von 50 Ω aufweisen. Somit ergibt sich bei einer Netzspannung von 230 V eine Gesamtheizleistung von rund 2000 W. Die Heizleistung wird durch einen Thyristorsteller geregelt, der nach dem Prinzip der Phasenanschnittsteuerung funktioniert. Dieser wird an die zu steuernde Phase (L1) und den Neutralleiter (N) angeschlossen. Lastseitig werden die Heizelemente angeschlossen. Über einen Steuerstrom (4 mA – 20 mA) wird die gewünschte Ausgangsleistung des Thyristors linear von 0 – 100 % eingestellt.

3.3.9 Rücklaufter – Relaischaltung^[10]

Der Flüssigkeits-Rücklaufter besteht aus einem gläsernen Pendeltrichter, der über dem Destillatkühler gelagert ist. Im Pendeltrichter ist ein Dauermagnet eingeschmolzen, der durch einen Elektromagneten außerhalb der Kolonne in die gewünschte Position gebracht wird. Dieser Elektromagnet wird über eine Relaischaltung gesteuert. Das Relais wechselt zwischen den Ausgangsspannungen +24 VDC und –24 VDC. Dadurch wird der Dauermagnet im Pendeltrichter entweder abgestoßen (Pos. totaler Rücklauf) oder angezogen (Pos. Produktentnahme). Die Relaispule wird vom Modul FP-TB-10 (siehe Kap. 3.3.7) mit einer Erregerspannung von 10 VDC gesteuert.

3.3.10 Schaltung der Feedpumpen

Die Feedpumpen werden über das PLS ein- bzw. ausgeschaltet. Die Schaltung der Pumpen erfolgt durch das Relaismodul FP-RLY-422 (siehe Kap. 3.3.7).

3.3.11 Online - Massenbilanz

Das PLS bietet die Möglichkeit den Massenstrom des Sumpf- bzw. Kopfprodukts zu erfassen. Die Massen der Produkte werden gewogen und deren Änderung in einem definierten Intervall berechnet. Das Intervall ist standardmäßig auf 60 Sekunden eingestellt und kann vom Anlagenbetreiber beliebig geändert werden.

3.3.12 Sicherheitsabschaltungen

Um sicherzustellen, dass die Anlage bei einer Störung der Kommunikation mit dem PLS einen sicheren Betriebszustand einnimmt, wurden bei der Programmierung folgende Vorkehrungen getroffen:

- Die Heizung des Sumpfverdampfers wird automatisch abgeschaltet, wenn das Flüssigkeitsniveau unter einen definierten Grenzwert sinkt. Die Höhe des minimal zulässigen Füllstands wurde so gewählt, dass die Heizelemente im Betrieb stets von Flüssigkeit umgeben sind. Der Grenzwert wird über die Eintauchtiefe des Füllstandssensors „Level Switch Alarm Low“ festgelegt (s. Kap. 3.3.3 und Abbildung 3-4).
- Die Feedpumpen werden automatisch deaktiviert, sobald der Füllstand das maximal zulässige Niveau im Sumpfverdampfer übersteigt. Dieses Niveau wird über die Position des Füllstandssensors „Level Switch Alarm High“ definiert (s. Kap. 3.3.3 und Abbildung 3-4).
- Das Fieldpoint-System bietet die Möglichkeit, bei unterbrochener Kommunikation mit dem PLS vordefinierte Werte für die Steuersignale auszugeben. Diese Werte wurden bei der Programmierung so gewählt, dass die Heizung sowie die Feedpumpen deaktiviert werden und der Rücklaufteiler die Position „totaler Rücklauf“ einnimmt.
- Im PLS wird eine zu quittierende Warnung ausgegeben, wenn der Kopfkondensator nicht von Kühlwasser durchströmt wird, oder die Austrittstemperatur des Kühlwassers zu hoch ist. Der Grenzwert kann im PLS eingestellt werden.

4 Verfahrenstechnische Überprüfung der Anlage: Ethanol-Wasser

Um die Funktionsfähigkeit der Anlage und des programmierten Prozessleitsystems zu validieren, wurden Testläufe mit dem System Ethanol-Wasser durchgeführt (s. Kap. 2.7). Die Anlage wurde in zwei grundsätzlich verschiedenen Arten betrieben. Im ersten Fall wurden zum Teil doppelt bestimmte Probeläufe mit unterschiedlicher Heizleistung im totalen Rücklauf durchgeführt. Die hydraulische Belastung der Kolonne resultierte ausschließlich aus dem flüssigen Rücklaufstrom, da kein Feedstrom aufgegeben wurde. Ziel dieser Versuchsreihen war, den Einfluss der Heizleistung auf die theoretische Trennstufenzahl zu untersuchen bzw. die maximale Trennleistung der Kolonne zu ermitteln (s. Kap. 4.1). Die Heizleistung wurde bis zur Flutgrenze gesteigert, um eine Aussage über den maximal zulässigen Differenzdruck der Anlage treffen zu können.

Im zweiten Fall wurde die Kolonne kontinuierlich unter gleichbleibenden Bedingungen betrieben und lediglich das Rücklaufverhältnis variiert, um dessen Einfluss auf die Produktreinheiten zu untersuchen. Die Anzahl der theoretischen Trennstufen wurde durch das McCabe-Thiele-Verfahren ermittelt. Ferner wurde die Berechnung der theoretischen Trennstufenzahl sowie des Druckverlusts über die Kolonne nach Beck ^[7] durchgeführt. Die Berechnungsdaten wurden mit den Messdaten aus den Testläufen verglichen (s. Kap. 4.2.2).

4.1 Testläufe 1 – 8: Totaler Rücklauf

Wie eingangs erwähnt, wurde die Kolonne im totalen Rücklauf betrieben. Der Sumpf der Kolonne wurde vor jedem Versuch mit einem Gemisch aus Ethanol und Wasser (ca. 2 mol-% EtOH) befüllt. Die gewünschte Heizleistung \dot{Q}_{RB} des Sumpfvaporisierers wurde laut Tabelle 4-1 im Prozessleitsystem eingestellt und die instationäre Anlaufphase der Kolonne abgewartet. Nach Einstellen des stationären Betriebszustands wurde jeweils eine Sumpf- bzw. Kopfproduktprobe entnommen und die Zusammensetzung, wie in Kap. 2.7.1 beschrieben, ermittelt.

Die Kolonne wurde bei Umgebungsdruck betrieben. Die ersten drei Betriebspunkte wurden einer Doppelbestimmung unterzogen, um die Reproduzierbarkeit zu untersuchen. Der Testlauf Nr. 4 wurde nicht wiederholt, da die Kolonne bei der angeführten Heizleistung bereits über die Flutgrenze belastet wurde. Die wichtigsten Messdaten und Ergebnisse der Testläufe sind in Kap. 4.1.2 ersichtlich. Die Einwaagen des Einsatzgemisches sind im Anhang angeführt (s. Anhang D).

Tabelle 4-1: Parameter der Testläufe 1 – 8, totaler Rücklauf, $x_{\text{EtOH,F}} = 0,02$

Testreihe Nr.	Testlauf Nr.	\dot{Q}_{RB} [W]	p_{U} [mbar]
1	1	500	976,43
	2	600	976,69
	3	700	974,20
	4	800	974,57
2	5	500	972,32
	6	600	972,03
	7	700	971,74
	8	750	972,32

4.1.1 Auswertung der Testläufe 1 – 8

Im Folgenden wird der Testlauf Nr. 2 exemplarisch ausgewertet, um die Berechnung bzw. die Stufenkonstruktion im McCabe-Thiele-Diagramm nachvollziehbar darzustellen. Bei den Testläufen 1-8 wurden weder Stoffströme zu- noch abgeführt. Unter der genannten Vereinfachung, dass die Stoffströme in der Kolonne in diesem Fall konstant bleiben, folgt aus Gleichung (4-1)

$$y_{VS} = \frac{\dot{L}_{VS}}{\dot{V}_{VS}} \cdot x + \frac{\dot{D}}{\dot{V}_{VS}} \cdot x_D \quad (4-1)$$

mit

$$\dot{D} = 0 \quad (4-2)$$

$$y_{VS} = x. \quad (4-3)$$

Analog wird die Gleichung der Abtriebssäule zu

$$y_{AS} = x. \quad (4-4)$$

Die Betriebsgeraden der Verstärker- und der Abtriebssäule fallen folglich mit der $y=x$ -Diagonalen zusammen.

Im McCabe-Thiele-Diagramm wurden die aus den Analysen ermittelten Molanteile des Sumpf- bzw. Kopfprodukts auf dieser Geraden eingezeichnet. Die Stufenkonstruktion erfolgte, wie bereits erwähnt ausgehend vom Sumpfprodukt (s. Abbildung 4-1).

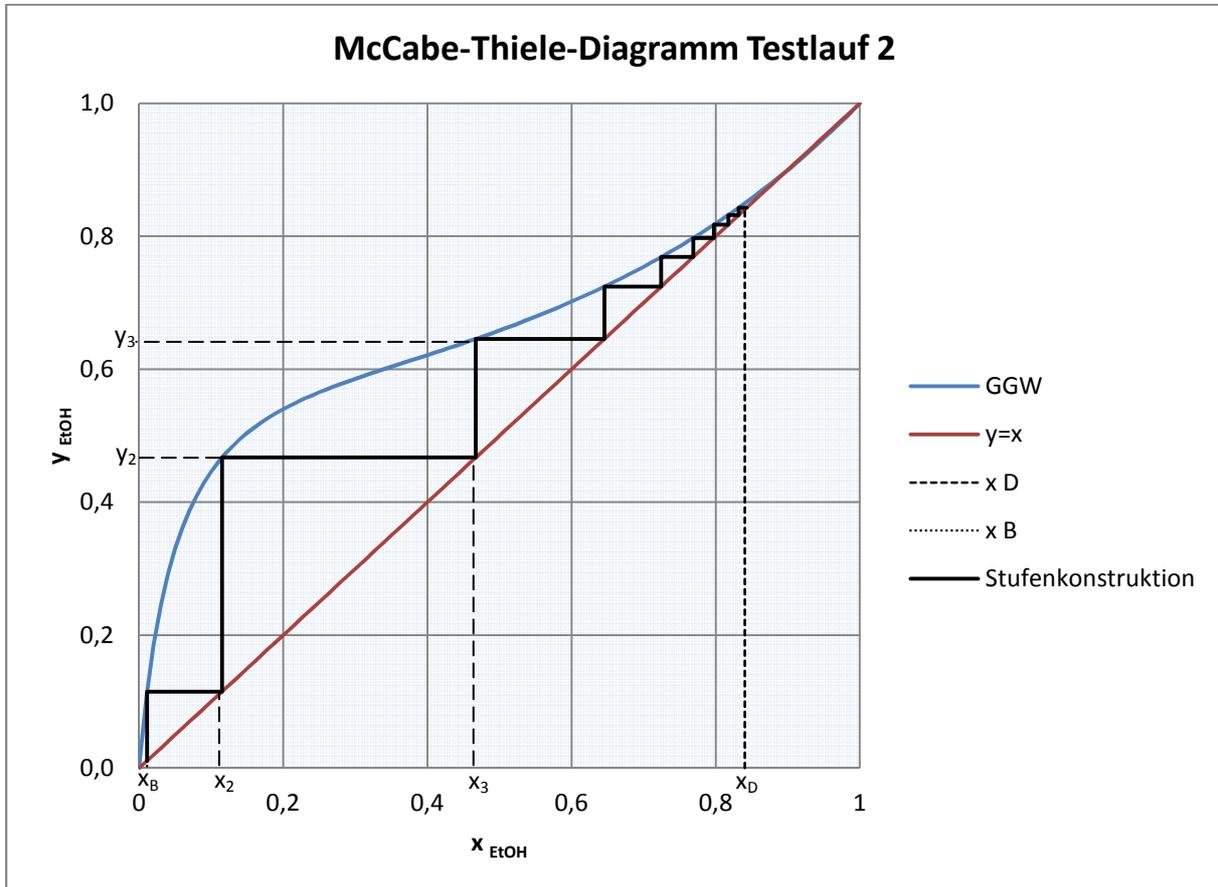


Abbildung 4-1: McCabe-Thiele-Diagramm Testlauf 2, tot. Rücklauf, $p = 973 \text{ mbar}$

Die Gleichgewichtskurve basiert auf den in Kap. 2.7 genannten Gleichgewichtsdaten. Die Gleichgewichtsmolanteile y^* der Dampfphase wurden über die im Anhang A angeführte Fit-Gleichung berechnet. Um die Stufenkonstruktion in MS Excel im Diagramm darstellen zu können, wurde die grafische Methode nach McCabe-Thiele mathematisch ausgeführt, indem die Schnittpunkte mit der Gleichgewichtskurve bzw. der $y=x$ -Diagonalen berechnet wurden. Der Treppenzug wurde anhand dieser Schnittpunkte im Diagramm eingezeichnet.

Die Berechnung der einzelnen Stufen erfolgte anhand der nachstehenden Schritte:

Analysenergebnisse der Produkte (s. Tabelle 4-2, Kap. 4.1.2):

$$x_B = y_B = 0,011 \qquad y_D = x_D = 0,840$$

1. Stufe:

$$y_B = x_B = x_1 = 0,011 \rightarrow y_1 = y^*(x_B) = 0,115 \rightarrow x_2 = y^*(x_1) = 0,115$$

2. Stufe:

$$x_2 = 0,115 \rightarrow y_2 = y^*(x_2) = 0,467 \rightarrow x_3 = y_2 = 0,467$$

3. Stufe:

$$x_3 = 0,467 \rightarrow y_3 = y^*(x_3) = 0,646 \rightarrow x_4 = y_3 = 0,646$$

4. Stufe:

$$x_4 = 0,646 \rightarrow y_4 = y^*(x_4) = 0,724 \rightarrow x_5 = y_4 = 0,724$$

5. Stufe:

$$x_5 = 0,724 \rightarrow y_5 = y^*(x_5) = 0,769 \rightarrow x_6 = y_5 = 0,769$$

6. Stufe:

$$x_6 = 0,769 \rightarrow y_6 = y^*(x_6) = 0,798 \rightarrow x_7 = y_6 = 0,798$$

7. Stufe:

$$x_7 = 0,798 \rightarrow \quad y_7 = y^*(x_7) = 0,817 \rightarrow \quad x_8 = y_7 = 0,817$$

8. Stufe:

$$x_8 = 0,817 \rightarrow \quad y_8 = y^*(x_8) = 0,832 \rightarrow \quad x_9 = y_8 = 0,832$$

9. Stufe:

$$x_9 = 0,832 \rightarrow \quad y_9 = y^*(x_9) = 0,843 \quad y_9 > y_D$$

Es ist zu erkennen, dass der Gleichgewichtsmolanteil $y^*(x_9)$ den Molanteil y_D des Kopfprodukts übersteigt. Hieraus folgt, dass sich auf der letzten theoretischen Trennstufe das Gleichgewicht nicht vollständig einstellte. Die Anzahl an theoretischen Trennstufen wird folglich als Dezimalzahl angegeben, indem die letzte Trennstufe als Verhältnis der erreichten Differenz $y_D - y_8$ zur maximal möglichen Differenz $y^*(x_9) - y_8$ ausgedrückt wird.

$$\frac{y_D - y_8}{y^*(x_9) - y_8} = \frac{0,840 - 0,832}{0,843 - 0,832} \cong 0,8$$

Somit wird die Anzahl der theoretischen Trennstufen der Kolonne für Testlauf Nr. 2 mit $N_t=8,8$ angegeben. Die Auswertung der übrigen Testläufe im totalen Rücklauf wurde nach demselben Schema ermittelt.

4.1.2 Ergebnisse der Testläufe 1 – 8

Die Auswertung der theoretischen Stufenzahl erfolgte nach dem in Kapitel 4.1.1 angeführten Weg. Die Gleichgewichtsdaten wurden mit dem Programm Aspen Plus - Aktivitätskoeffizientenmodell NRTL für einen Druck von 973 mbar berechnet. Die folgenden Abbildungen und Tabellen veranschaulichen die Ergebnisse.

In Abbildung 4-2 und Abbildung 4-3 wurden die Molanteile y_{EtOH} , x_{EtOH} der Produkte über der Heizleistung aufgetragen. Weiters wurden die Verläufe des Druckverlusts über Verstärker- bzw. Abtriebssäule und die Anzahl theoretischer Trennstufen dargestellt (s. Abbildung 4-4 bis Abbildung 4-6).

Anmerkung: Der Buchstabe „R“ in den Diagrammlegenden steht für die Testreihe

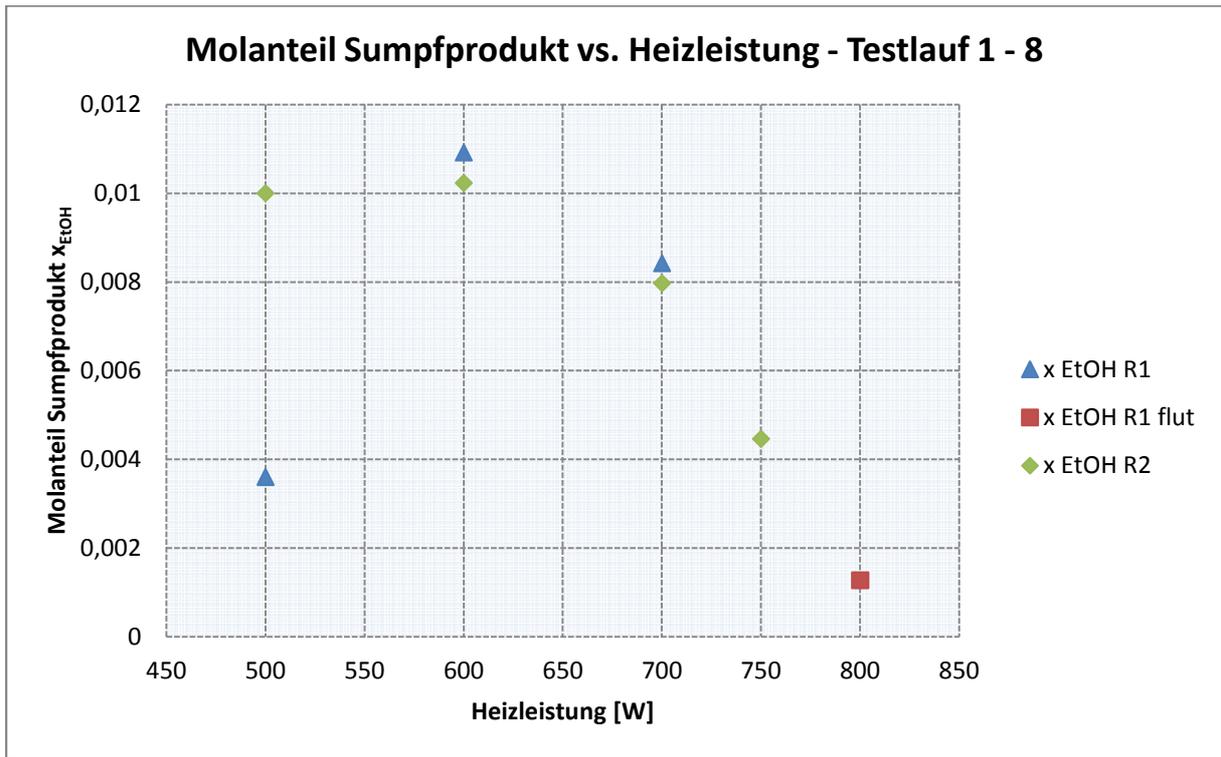


Abbildung 4-2: Molanteil x_{EtOH} vs. Heizleistung, Testlauf 1 – 8, tot. Rücklauf

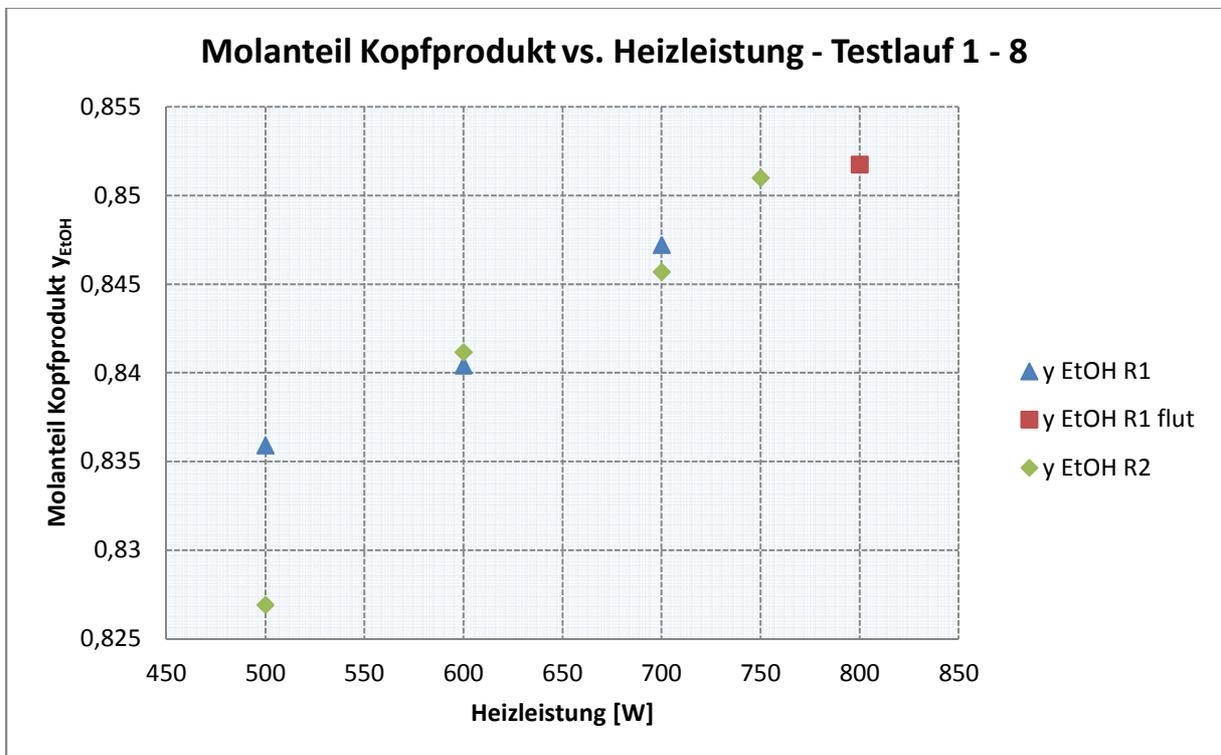


Abbildung 4-3: Molanteil y_{EtOH} vs. Heizleistung, Testlauf 1 – 8, tot. Rücklauf

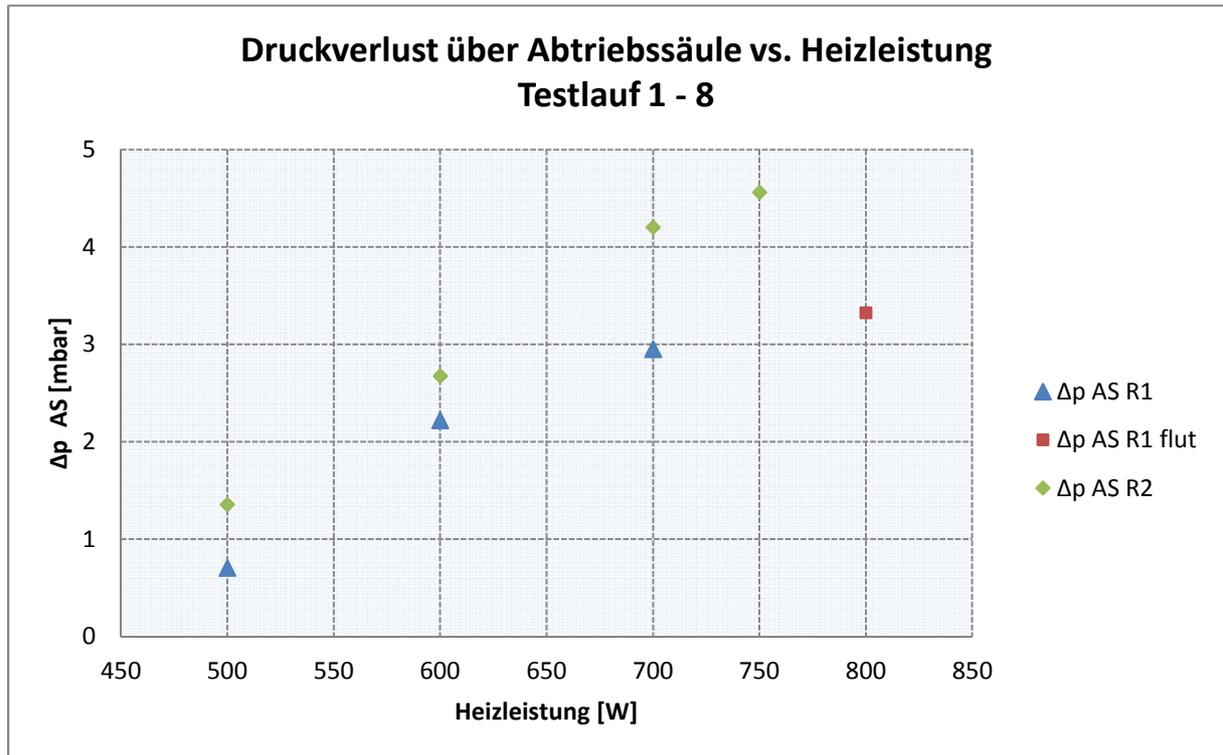


Abbildung 4-4: Druckverlust Abtriebssäule vs. Heizleistung, Testlauf 1 – 8, tot. Rücklauf

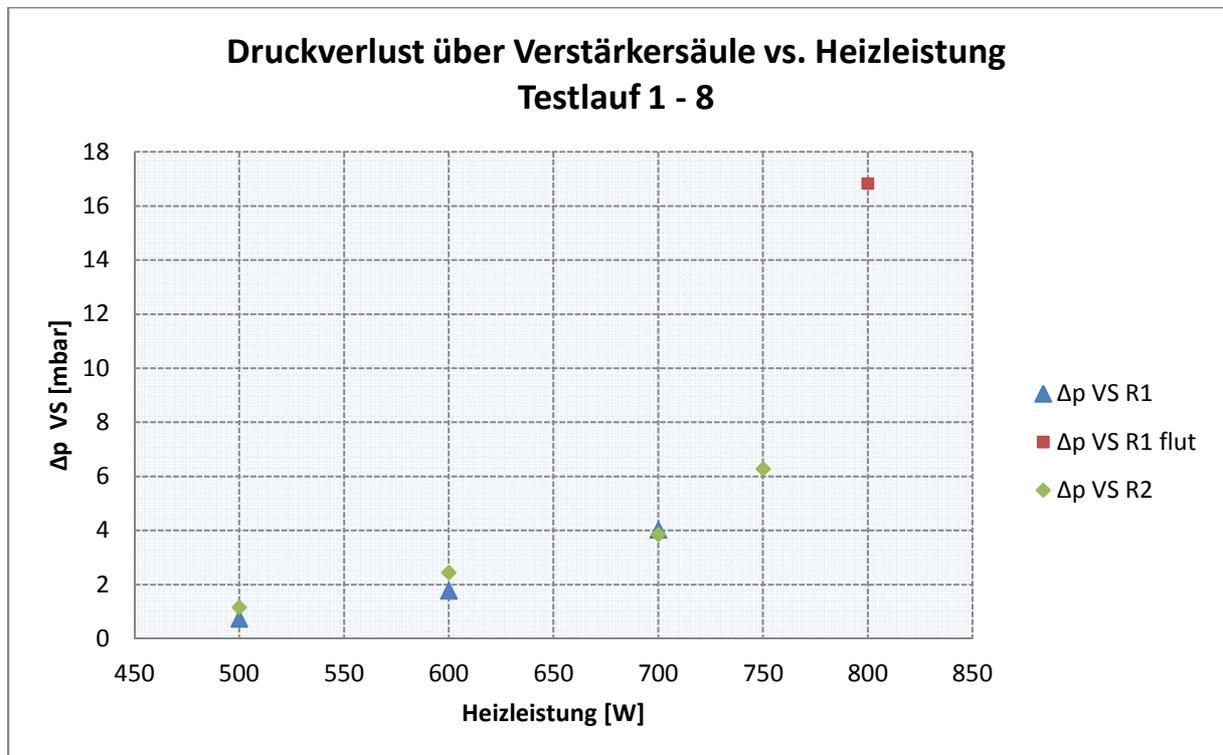


Abbildung 4-5: Druckverlust Verstärkersäule vs. Heizleistung, Testlauf 1 – 8, tot. Rücklauf

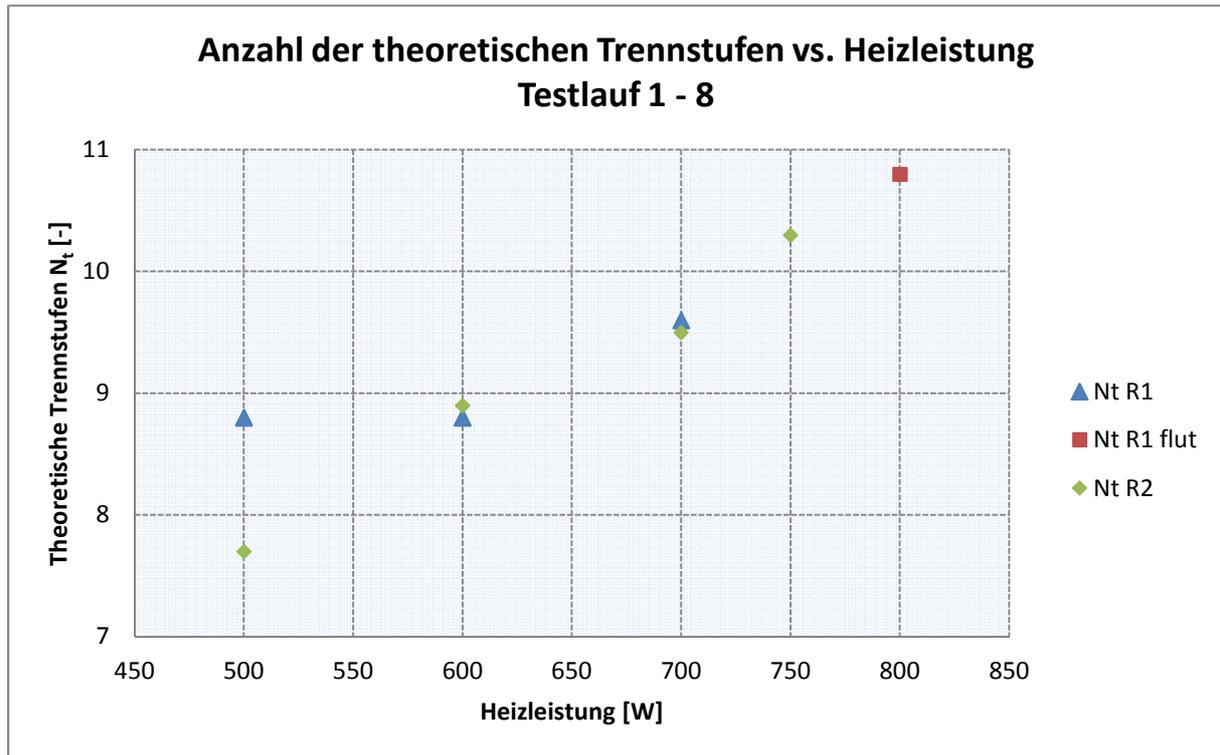


Abbildung 4-6: Theoretische Trennstufen vs. Heizleistung, Testlauf 1 – 8, tot. Rücklauf

In Tabelle 4-2 sind die Ergebnisse der Dichtemessungen der Produkte sowie die daraus resultierenden Massen- und Molanteile angeführt.

 Tabelle 4-2: Produktzusammensetzungen, Testlauf 1 – 8, tot. Rücklauf, $x_{\text{EtOH, F}} = 0,02$

Testreihe Nr.	Testlauf Nr.	\dot{Q}_{RB} [W]	ρ_{B} [g/cm ³]	x_{EtOH} [-]	$w_{\text{EtOH, B}}$ [-]	ρ_{D} [g/cm ³]	y_{EtOH} [-]	$w_{\text{EtOH, D}}$ [-]
1	1	500	0,9965	0,004	0,009	0,8102	0,836	0,929
	2	600	0,9932	0,011	0,028	0,8096	0,840	0,931
	3	700	0,9943	0,008	0,021	0,8087	0,847	0,934
	4	800	0,9976	0,001	0,003	0,8081	0,852	0,936
2	5	500	0,9936	0,010	0,025	0,8114	0,827	0,924
	6	600	0,9935	0,010	0,026	0,8095	0,841	0,931
	7	700	0,9945	0,008	0,020	0,8089	0,846	0,933
	8	750	0,9961	0,005	0,011	0,8082	0,851	0,936

Tabelle 4-3 zeigt die Druckdifferenzen über die Abtriebs- bzw. Verstärkersäule und die Anzahl der theoretischen Trennstufen der entsprechenden Testläufe. Die Temperaturen in

Sumpf (T_B), Mitte (T_M) und am Kopf (T_K) der Kolonne sind derselben Tabelle zu entnehmen. Die Temperaturen bzw. Drücke stellen Mittelwerte der Messdaten über den Zeitraum des stationären Betriebszustands dar.

Tabelle 4-3: Differenzdrücke und Temperaturen, Testlauf 1 – 8, tot. Rücklauf, $x_{EtOH,F} = 0,02$

Testreihe Nr.	Testlauf Nr.	\dot{Q}_{RB} [W]	T_B [°C]	T_M [°C]	T_K [°C]	Δp_{AS} [mbar]	Δp_{VS} [mbar]	N_t [-]
1	1	500	99,21	78,65	77,23	0,71	0,73	8,8
	2	600	97,04	79,05	77,24	2,23	1,77	8,8
	3	700	97,72	79,10	77,23	2,95	4,03	9,6
	4	800	99,91	79,63	77,19	3,33	16,83	10,8
2	5	500	98,02	78,88	76,44	1,36	1,16	7,7
	6	600	97,96	78,77	76,48	2,68	2,44	8,9
	7	700	98,90	79,21	76,96	4,21	3,85	9,5
	8	750	100,32	79,31	76,96	4,56	6,28	10,3

4.1.3 Diskussion der Testläufe 1 – 8

Es ist zu erkennen, dass mit zunehmender Heizleistung eine Erhöhung der Kopfproduktreinheit einhergeht (siehe Abbildung 4-3). Der Verlauf des Druckverlusts über Abtriebs- und Verstärkersäule in Abbildung 4-4 bzw. Abbildung 4-5 bestätigt die Annahme, dass mit der Heizleistung die hydraulische Belastung der Kolonne erhöht wird. Dadurch kommt es zu einem intensiveren Stoff- und Wärmetransport zwischen den Phasen und somit zur Steigerung der Trennleistung.

Die Zusammensetzung der Sumpfprodukte zeigt ebenso die Tendenz, mit zunehmender Heizleistung höhere Reinheiten aufzuweisen. Der Effekt wird erst ab einer Heizleistung von 600 W beobachtet (siehe Abbildung 4-2). Das Sumpfprodukt aus Testlauf 1 (500 W) weist trotz geringerer Heizleistung eine höhere Reinheit auf, als die Sumpfprodukte in Testlauf 2 und 3. Dies wird dadurch begründet, dass in Testlauf 1 der aufsteigende Dampfstrom am Eingang des Destillatkühlers zum Teil kondensiert und als Produkt abgezogen wurde. Da dies aber nicht dem Betrieb im totalen Rücklauf entspricht, wurde der Kühlmantel des Destillatkühlers für die Testläufe 2 - 8 entleert und erst unmittelbar vor der Probenahme von Kühlwasser durchströmt.

Die ersten 3 Testläufe wurden in einer zweiten Versuchsreihe wiederholt. Bei Heizleistungen von 600 W und 700 W zeigte sich eine Übereinstimmung der Produktreinheiten. Der Verlauf der Produktreinheiten in der zweiten Versuchsreihe entsprach den Erwartungen.

In Testlauf 4 wurde die Belastungsgrenze der Kolonne überschritten. Dies äußerte sich durch Fluten der Verstärkersäule und dem damit verbundenen stetig steigenden Druckverlust über die Kolonne. In diesem Testlauf wurden sowohl im Sumpf- als auch im Kopfprodukt die höchsten Reinheiten erzielt (s. Abbildung 4-2, Abbildung 4-3). Diese Tatsache wird dadurch erklärt, dass sich zum Zeitpunkt der Probenahme die negativen Einflüsse auf Stoff- und Wärmetransport bei Überschreiten des Flutpunktes noch nicht ausgewirkt haben. Der Testlauf wurde keiner Doppelbestimmung unterzogen, da der Betrieb im Flutzustand in der Praxis nicht relevant ist. Testlauf 8 wurde durchgeführt, um einen Betriebspunkt nahe der Flutgrenze zu untersuchen. Wie erwartet wurde mit Ausnahme des bereits diskutierten Testlaufs 4 die beste Trennwirkung erreicht.

Die maximal zulässige Druckdifferenz für den stationären Betrieb wird laut Testlauf 8 auf rund 11 mbar (4,5 mbar in AS, 6,3 mbar in VS) festgelegt.

4.2 Testläufe 9 – 13: Kontinuierlicher Betrieb

Die Testläufe 9 – 13 wurden im kontinuierlichen Betrieb bei einer Heizleistung $\dot{Q}_{RB} = 600 \text{ W}$ und Umgebungsdruck durchgeführt. In Tabelle 4-4 sind die relevanten Betriebsparameter angeführt. Die Einwaagen des Einsatzgemisches sind in Anhang D zu sehen.

Tabelle 4-4: Parameter der Testläufe 9 – 13, $x_{\text{EtOH,F}} = 0,02$, $q = 1,03$, $Q_{RB} = 600 \text{ W}$

Testlauf Nr.	Feed [kg/h]	r_{eff} [-]	T_{Thermo} [°C]	T_{F} [°C]	p_{U} [mbar]
9	4,30	4	96	80,02	972,71
10	4,30	5	96	80,30	972,72
11	4,30	6	96	80,41	972,51
12	4,30	7	96	80,70	972,50
13	4,29	10	95	80,59	973,54

Der Kolonnensumpf wurde vor den Testläufen 9, 11 und 13 mit dem Einsatzgemisch (ca. 2 mol-% EtOH) befüllt und die Kolonne im totalen Rücklauf ohne Zufuhr des Feedstroms in Betrieb genommen. Nach Einstellen des stationären Zustands im totalen Rücklauf, wurde das Einsatzgemisch kontinuierlich in der Mitte der Kolonne aufgegeben. Das entsprechende

Rücklaufverhältnis wurde laut Tabelle 4-4 im PLS eingestellt und der stationäre Zustand im kontinuierlichen Betrieb erreicht. Die Sumpfb- bzw. Kopfproduktprobe wurde im stationären Zustand entnommen und deren Dichte analysiert.

Um die instationäre Anlaufphase der Kolonne zu verkürzen, wurden die Testläufe 10 und 12 unmittelbar nach den Testläufen 9 bzw. 11 durchgeführt. Hierzu wurde nach der Probenahme der Testläufe 9 und 11 das PLS und somit die Datenaufzeichnung gestoppt und erneut gestartet. Diese Vorgehensweise ermöglichte die Messdatenaufzeichnung der jeweiligen Testläufe in separaten Textdateien. Das entsprechende Rücklaufverhältnis (s. Tabelle 4-4) wurde nach dem Neustart des PLS eingestellt. Vor der Probenahme wurde erneut der stationäre Zustand erreicht.

Der Feedstrom wurde, wie in Kap. 3.1.5 beschrieben, vorgewärmt. Die Eintrittstemperaturen des Feedstroms sowie die Thermostattemperaturen des Feedvorwärmers sind ebenfalls Tabelle 4-4 zu entnehmen.

4.2.1 Auswertung der Testläufe 9 – 13

4.2.1.1 Theoretische Trennstufen nach McCabe-Thiele

Die Anzahl der theoretischen Trennstufen wurde wiederum nach dem McCabe-Thiele-Verfahren ermittelt. Die Auswertung des Testlaufs 10 soll die Berechnung bzw. die Stufenkonstruktion im McCabe-Thiele-Diagramm nachvollziehbar darstellen. Die zur Berechnung herangezogenen Gleichgewichts- und Stoffdaten des Systems sind in Anhang A bzw. Anhang C dargestellt.

Die Berechnung wurde ausgehend von den Spezifikationen des Feedstroms und den Analysen der Produkte durchgeführt.

Anmerkung: Die Berechnung wurde gerundet dargestellt. Die Teil- und Endergebnisse sind der Berechnung durch MS Excel entnommen. Die angegebenen Molanteile (ohne Komponenten-Index) beziehen sich stets auf die Komponente Ethanol. Die Berechnung der spezifischen Wärmekapazitäten und der (Verdampfungs-) Enthalpien sowie die VLE-Daten werden in Anhang A angeführt.

Tabelle 4-5: Spezifikationen des Feedstroms und der Produkte, Testlauf 10

Angaben zum Feedstrom:

Massenstrom \dot{m}_F	4,3	kg/h
Temperatur T_F	80,30	°C
Molanteil $X_{\text{EtOH},F}$	0,020	-

Dichte ρ_F	0,9890	g/cm ³
Enthalpie h_F bei T_F	6173,12	kJ/kmol
Enthalpie $h_{F,BP}$ bei T_{BP}	7251,56	kJ/kmol
Verdampfungsenthalpie $\Delta h_{V,F,BP}$	40856,26	kJ/kmol

Analysenergebnisse Sumpfprodukt:

Dichte ρ_B	0,9966	g/cm ³
Massenanteil $w_{EtOH,B}$	0,009	-
Molanteil $x_{EtOH,B}$	0,003	-

Analysenergebnisse Kopfprodukt:

Dichte ρ_D	0,8178	g/cm ³
Massenanteil $w_{EtOH,D}$	0,901	-
Molanteil $x_{EtOH,D}$	0,780	-

Rücklaufverhältnis r: $r = 5$

Das Molekulargewicht des Einsatzstroms wird durch Gleichung (4-5) ermittelt.

$$MG_F = x_{EtOH,F} \cdot MG_{EtOH} + x_{H_2O,F} \cdot MG_{H_2O} \quad (4-5)$$

$$MG_F = 18,577 \frac{g}{mol}$$

Berechnung des Feedmolstroms:

$$\dot{F} = \frac{4300 \frac{g}{h}}{18,577 \frac{g}{mol}} \quad (4-6)$$

$$\dot{F} = 231,48 \frac{mol}{h}$$

Für die Komponente Ethanol gilt:

$$\dot{F}_{EtOH} = \dot{F} \cdot x_{EtOH,F} = 231,48 \cdot 0,02 = 4,63 \frac{mol}{h}$$

Aus der Komponentenbilanz nach Gl. (2-32) folgt für den Molstrom des Kopfprodukts:

$$\dot{D} = 231,48 \cdot \frac{0,02 - 0,003}{0,78 - 0,003} \quad \text{lt. (2-32)}$$

$$\dot{D} = 4,95 \frac{\text{mol}}{\text{h}}$$

Die Gesamtbilanz aus Gl. (2-30) liefert:

$$\dot{B} = 231,48 - 4,63 \quad \text{lt. (2-30)}$$

$$\dot{B} = 226,52 \frac{\text{mol}}{\text{h}}$$

Die Bilanzgleichung der Verstärkersäule ergibt:

$$y_{VS} = \frac{5}{6} \cdot x + \frac{0,78}{6} \quad \text{lt. (2-43)}$$

$$y_{VS} = 0,833 \cdot x + 0,13$$

Die Steigung und der Ordinatenabschnitt dieser Betriebsgeraden betragen:

$$k_{VS} = 0,833$$

$$d_{VS} = 0,13$$

Gleichung der q-Linie:

Die Berechnung der Verdampfungsenthalpie des Feedstroms am Siedepunkt ($\Delta h_{V,BP}$) erfolgte aus den Verdampfungsenthalpien der Reinstoffe am Siedepunkt bzw. bei 25 °C. Für die Komponente Ethanol wurde die Verdampfungsenthalpie auf den jeweiligen Siedepunkt linear extrapoliert. Für die Komponente Wasser wurde die Verdampfungsenthalpie linear interpoliert. Die Mischungsenthalpie wurde nicht berücksichtigt. Der Siedepunkt des Feedstroms wurde Aspen Plus entnommen. Nach Gleichung (2-49) und Tabelle 4-5 ergibt sich für q:

$$q = 1 + \frac{7251,56 - 6173,12}{40856,258} \quad \text{lt. (2-49)}$$

$$q = 1,026$$

Für die Gleichung der q-Linie folgt nach Gl. (2-53):

$$y_q = \frac{1,026}{1,026 - 1} \cdot x - \frac{0,02}{1,026 - 1} \quad \text{lt. (2-53)}$$

$$y_q = 38,884 \cdot x - 0,758$$

Schnittpunktberechnung der Verstärkersäule und der q-Linie:

$$y_{VS} - y_q = 0 = 0,833 \cdot x + 0,13 - (38,884 \cdot x - 0,758)$$

$$x_q = 0,023$$

$$y_q = 0,149$$

Berechnung der Gleichung der Abtriebssäule:

Aus den Punkten (x_B, y_B) und (x_q, y_q) lässt sich die Betriebsgerade der Abtriebssäule formulieren.

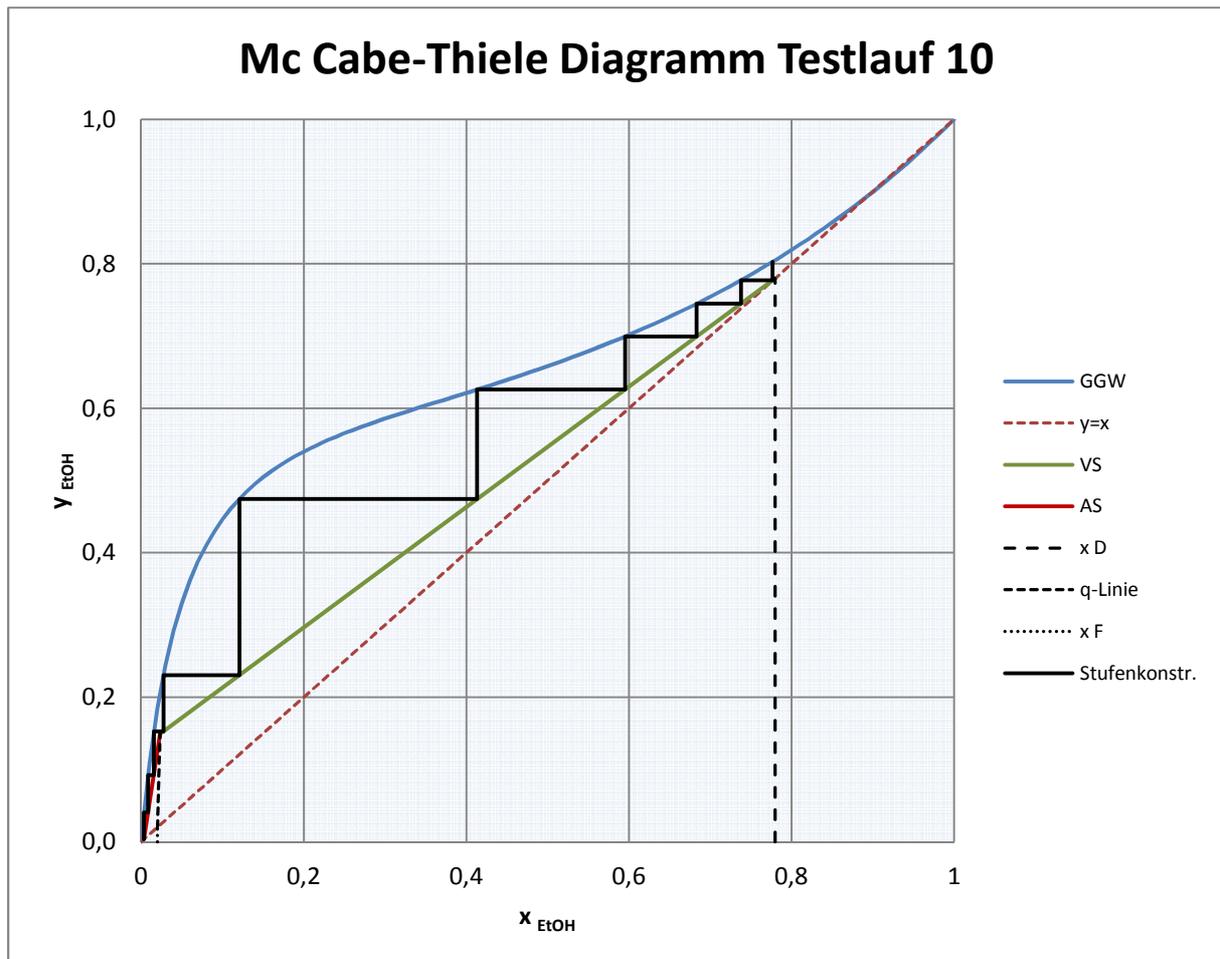
$$y_{AS} = 7,324 \cdot x - 0,022 \quad \text{lt. (2-39)}$$

Die Steigung und der Ordinatenabschnitt dieser Betriebsgeraden betragen:

$$k_{AS} = 7,324$$

$$d_{AS} = -0,022$$

Somit können die Betriebsgeraden der Abtriebs- und Verstärkersäule im McCabe-Thiele-Diagramm eingezeichnet und die Stufenkonstruktion durchgeführt werden (s. Abbildung 4-7).


 Abbildung 4-7: McCabe-Thiele-Diagramm, Testlauf 10, $p = 973 \text{ mbar}$

Wie in Kap. 2.6.1.7 beschrieben, werden bei einem Molanteil $y < y_q$ die Schnittpunkte der Stufenkonstruktion mit der Betriebsgeraden der Abtriebssäule ermittelt. Bei Molanteilen $y \geq y_q$ werden die Schnittpunkte der Stufen mit der Betriebsgeraden der Verstärkersäule berechnet.

Die Berechnung der einzelnen Stufen erfolgte anhand der nachstehenden Schritte:

$$x_B = y_B = 0,003 \qquad y_D = x_D = 0,780$$

Abtriebssäule:

1. Stufe:

$$y_B = x_B = x_1 = 0,003 \rightarrow y_1 = y^*(x_B) = 0,040 \rightarrow x_2 = \frac{y_1 - d_{AS}}{k_{AS}} = 0,008$$

2. Stufe:

$$x_2 = 0,008 \rightarrow \quad y_2 = y^*(x_2) = 0,092 \rightarrow \quad x_3 = \frac{y_2 - d_{AS}}{k_{AS}} = 0,016$$

Verstärkersäule:

3. Stufe:

$$x_3 = 0,016 \rightarrow \quad y_3 = y^*(x_3) = 0,153 \rightarrow \quad x_4 = \frac{y_3 - d_{VS}}{k_{VS}} = 0,027$$

4. Stufe:

$$x_4 = 0,027 \rightarrow \quad y_4 = y^*(x_4) = 0,231 \rightarrow \quad x_5 = \frac{y_4 - d_{VS}}{k_{VS}} = 0,121$$

5. Stufe:

$$x_5 = 0,121 \rightarrow \quad y_5 = y^*(x_5) = 0,474 \rightarrow \quad x_6 = \frac{y_5 - d_{VS}}{k_{VS}} = 0,413$$

6. Stufe:

$$x_6 = 0,413 \rightarrow \quad y_6 = y^*(x_6) = 0,626 \rightarrow \quad x_7 = \frac{y_6 - d_{VS}}{k_{VS}} = 0,595$$

7. Stufe:

$$x_7 = 0,595 \rightarrow \quad y_7 = y^*(x_7) = 0,699 \rightarrow \quad x_8 = \frac{y_7 - d_{VS}}{k_{VS}} = 0,683$$

8. Stufe:

$$x_8 = 0,683 \rightarrow \quad y_8 = y^*(x_8) = 0,745 \rightarrow \quad x_9 = \frac{y_8 - d_{VS}}{k_{VS}} = 0,738$$

9. Stufe:

$$x_9 = 0,738 \rightarrow \quad y_9 = y^*(x_9) = 0,777 \quad x_{10} = \frac{y_9 - d_{VS}}{k_{VS}} = 0,777$$

10. Stufe:

$$x_{10} = 0,777 \rightarrow \quad y_{10} = y^*(x_{10}) = 0,803 \quad y_{10} > y_D$$

Der Gleichgewichtsmolanteil $y^*(x_{10})$ übersteigt den Molanteil y_D des Kopfprodukts. Die letzte Stufe wird somit analog zu Kap. 4.1.1 als Dezimalzahl dargestellt.

$$\frac{y_D - y_9}{y^*(x_{10}) - y_9} = \frac{0,78 - 0,777}{0,803 - 0,777} \cong 0,1$$

Die Auswertung von Testlauf 10 ergibt $N_t = 9,1$. Die Anzahl an theoretischen Trennstufen der restlichen Testläufe im kontinuierlichen Betrieb wurde nach demselben Schema ermittelt.

4.2.1.2 Berechnung nach dem Beck-Verfahren

Technische Daten der Kolonne ^[10]:

Abtriebssäule:

Durchmesser AS:	D	35	[mm]
Durchmesser Füllkörper:	d	6	[mm]
Höhe der Füllkörperschüttung:	H	0,5	[m]
Anzahl der Packungen:		1	[-]

Verstärkersäule:

Durchmesser VS:	D	35	[mm]
Durchmesser Füllkörper:	d	6	[mm]
Höhe der Füllkörperschüttung:	H	0,5	[m]
Anzahl der Packungen:		1	[-]

Füllkörperkonstanten für Steinzeug-Raschigringe 8mm ^[7]:

$K_1 = 0,04$	$K_2 = 0,135$	$K_3 = 0,3$	$K_4 = 0,14$
$K_5 = 170$	$K_6 = 0,165$	$K_7 = 0,035$	

Stoff- und Stromdaten:

Abtriebssäule:

Flüssigkeitsstrom	\dot{L}_{AS}	= 262,34	[mol/h]
Dampfstrom	\dot{V}_{AS}	= 35,82	[mol/h]
Dyn. Viskosität der Flüssigphase	$\eta_{L,AS}$	< 1	[mPas]
Flüssigkeitsdichte (20°C)	$\rho_{L,AS}$	= 989	[kg/m ³]
Flüssigkeitsdichte (20°C) gemittelt	$\rho_{L,AS,m}$	= 992,8	[kg/m ³]
Dampfdichte bei Betriebstemp.	$\rho_{V,AS}$	= 0,612	[kg/m ³]
Dampfdichte gemittelt bei Betriebstemp.	$\rho_{V,AS,m}$	= 0,898	[kg/m ³]

Verstärkersäule:

Flüssigkeitsstrom	\dot{L}_{VS}	= 24,76	[mol/h]
Dampfstrom	\dot{V}_{VS}	= 29,71	[mol/h]
Dyn. Viskosität der Flüssigphase	$\eta_{L,VS}$	< 1	[mPas]
Flüssigkeitsdichte (20°C)	$\rho_{L,VS}$	= 817,8	[kg/m ³]
Flüssigkeitsdichte (20°C) gemittelt	$\rho_{L,VS,m}$	= 903,4	[kg/m ³]
Dampfdichte bei Betriebstemp.	$\rho_{V,VS}$	= 1,332	[kg/m ³]
Dampfdichte gemittelt bei Betriebstemp.	$\rho_{V,VS,m}$	= 1,984	[kg/m ³]

Anmerkung: Die gemittelten Dichten der Abtriebssäule entsprechen den arithmetischen Mittelwerten der Dichten des Sumpfprodukts und des Feedstroms. Die gemittelten Dichten der Verstärkersäule entsprechen den arithmetischen Mittelwerten der Dichten des Kopfprodukts und des Feedstroms. Die Flüssigkeitsdichten wurden bei 20 °C gemessen. Die Dampfdichten beziehen sich auf die Betriebstemperatur der Kolonne. Die Berechnung der Dampfdichten für Betriebsdruck und Betriebstemperatur erfolgte nach dem idealen Gasgesetz:

$$\rho_{Betr} = \frac{MG}{v} \cdot \frac{T_0}{T_{Betr}} \cdot \frac{p_{Betr}}{p_0}$$

mit

ρ_{Betr} ... Dichte im Betriebszustand bei T_{Betr} in K und p_{Betr}

v ... mol. Vol. des id. Gases bei Normzust.: $T_0 = 273,15$ K und $p_0 = 1,01325$ bar,

$v = 22,414$ l/mol

Berechnung der Abtriebssäule

Berechnung der Dampfgeschwindigkeiten:

Maximal zulässige Dampfgeschwindigkeit $w_{leer,max,AS}$:

Ausgehend von den Molenströmen \dot{L} und \dot{V} am Kopf der Abtriebssäule werden die Volumenströme an dieser Stelle berechnet. Da zur Berechnung der Dampfgeschwindigkeit die Daten am Kopf des betrachteten Füllkörperpakets herangezogen werden, gilt für das Molekulargewicht:

$$MG_{AS} = MG_F \tag{4-7}$$

$$MG_{AS} = 18,577 \frac{g}{mol}$$

Der Massenstrom an Flüssigkeit am Kopf der Abtriebssäule beträgt somit:

$$\dot{m}_{L,AS} = \dot{L}_{AS} \cdot MG_{AS} \tag{4-8}$$

$$\dot{m}_{L,AS} = 262,34 \cdot 18,577$$

$$\dot{m}_{L,AS} = 4,873 \frac{kg}{h}$$

Der Volumenstrom der Flüssigkeit am Kopf der Abtriebssäule wird über die Dichte berechnet:

$$\dot{v}_{L,AS} = \frac{\dot{m}_{L,AS}}{\rho_{L,AS}} = \frac{4,873}{989} \tag{4-9}$$

$$\dot{v}_{L,AS} = 0,0049 \frac{m^3}{h}$$

Für den Dampfvolumentrom gilt:

$$MG_{AS} = MG_F$$

$$MG_{AS} = 18,577 \frac{g}{mol}$$

Der dampfförmige Massenstrom am Kopf der Abtriebssäule beträgt:

$$\dot{m}_{V,AS} = \dot{V}_{AS} \cdot MG_{AS} \quad (4-10)$$

$$\dot{m}_{V,AS} = 35,82 \cdot 18,577$$

$$\dot{m}_{V,AS} = 0,665 \frac{kg}{h}$$

Der dampfförmige Volumenstrom am Kopf der Abtriebssäule beträgt:

$$\dot{v}_{V,AS} = \frac{\dot{m}_{V,AS}}{\rho_{V,AS}} = \frac{0,665}{0,612} \quad (4-11)$$

$$\dot{v}_{V,AS} = 1,088 \frac{m^3}{h}$$

Berechnung der Regendichte R_{AS} am Kopf der Abtriebssäule:

$$R_{AS} = \frac{\dot{v}_{L,AS} \cdot 4}{D^2 \cdot \pi} = \frac{0,0049 \cdot 4}{0,035^2 \cdot \pi} \quad (4-12)$$

$$R_{AS} = 5,122 \frac{m^3}{m^2h}$$

Maximal zulässige Leerrohr-Dampfgeschwindigkeit nach Gl. (2-56):

$$w_{leer,max,AS} = 0,04 \cdot \sqrt{\frac{989}{0,612}} \cdot \left[1 - 0,135 \cdot \sqrt{5,122} \right] \quad \text{lt.(2-56)}$$

$$w_{leer,max,AS} = 1,12 \frac{m}{s}$$

Anmerkung: Der Faktor $f(\eta_L) = 1$, da die dynamische Viskosität der Flüssigphase am Kopf der Abtriebssäule < 1 mPas.

Tatsächliche Leerrohr-Dampfgeschwindigkeit:

$$w_{leer,tat,AS} = \frac{\dot{v}_{V,AS} \cdot 4}{D^2 \cdot \pi} = \frac{1,088 \cdot 4}{0,035^2 \cdot \pi \cdot 3600} \quad (4-13)$$

$$w_{leer,tat,AS} = 0,31 \frac{m}{s}$$

Berechnung der Belastung:

Belastung B_{AS} der Abtriebssäule:

$$B_{AS} = \frac{w_{leer,tat,AS}}{w_{leer,max,AS}} = \frac{0,31}{1,12} = 0,281 \quad (4-14)$$

$$B_{AS} = 28,1 \%$$

Berechnung der zu erwartenden Anzahl theoretischer Trennstufen pro Meter Schüttung in der Abtriebssäule:

Aus Gl. (2-58) - (2-60) folgt:

$$w_{tat,AS} = 0,31 \cdot [1 + 7,5 \cdot (0,006/0,035)^2] \quad \text{lt.(2-60)}$$

$$w_{tat,AS} = 0,38 \frac{m}{s}$$

$$f(d/D) = \frac{1,72}{1 + 7,5 \cdot (0,006/0,035)^2} - 0,72 \quad \text{lt.(2-59)}$$

$$f(d/D) = 0,689$$

$$n_{t,AS} = \frac{0,3}{0,38} \sqrt{\frac{992,8}{0,898}} \cdot \frac{1}{1 + 0,035} \cdot \sqrt[4]{\frac{1}{0,5}} \cdot (1 - 0,14 \cdot \sqrt{5,122}) \cdot 0,689 \quad \text{lt.(2-58)}$$

$$n_{t,AS} = 14,08 \frac{1}{m}$$

Anmerkung: Da sich die berechnete Wertungszahl und somit die Anzahl der theoretischen Trennstufen auf die tatsächliche Dampfgeschwindigkeit $w_{tat,AS}$ beziehen, wird der Index „min“ nicht angeführt.

Anzahl theoretischer Trennstufen in der Abtriebssäule:

$$N_{t,AS} = n_{t,AS} \cdot H \quad (4-15)$$

$$N_{t,AS} = 14,08 \cdot 0,5$$

$$N_{t,AS} = 7,04$$

Berechnung des Druckverlusts:

Druckverlust pro Meter Schüttung:

Laut Gl. (2-62) und (2-61):

$$f(R, \eta_L) = 10^{(0,165+0,035 \cdot 5,122)} \quad \text{lt. (2-62)}$$

$$f(R, \eta_L) = 2,209$$

$$\Delta p = 170 \cdot \left(1000 \cdot \frac{0,898}{992,8} \cdot 0,314^2\right)^{1,175} \cdot 2,209 \quad \text{lt. (2-61)}$$

$$\Delta p = 21,95 \text{ mmWS/m}$$

$$\Delta p_{AS} = \frac{\Delta p \cdot H}{9,81} \quad (4-16)$$

$$\Delta p_{AS} = \frac{21,95 \cdot 0,5}{9,81}$$

$$\Delta p_{AS} = 1,12 \text{ mbar}$$

Berechnung der Verstärkersäule

Berechnung der Dampfgeschwindigkeiten:

$$MG_{VS} = MG_D \quad (4-17)$$

$$MG_{VS} = 39,896 \frac{g}{mol}$$

Der Massenstrom an Flüssigkeit am Kopf der Verstärkersäule beträgt:

$$\dot{m}_{L,VS} = \dot{L}_{VS} \cdot MG_{VS} \quad (4-18)$$

$$\dot{m}_{L,VS} = 24,757 \cdot 39,896$$

$$\dot{m}_{L,VS} = 0,988 \frac{kg}{h}$$

Der Volumenstrom der Flüssigkeit am Kopf der Verstärkersäule wird über die Dichte berechnet:

$$\dot{v}_{L,VS} = \frac{\dot{m}_{L,VS}}{\rho_{L,VS}} = \frac{0,988}{817,8} \quad (4-19)$$

$$\dot{v}_{L,VS} = 0,0012 \frac{m^3}{h}$$

Für den Dampfvolumenstrom gilt:

$$MG_{VS} = MG_D$$

$$MG_{VS} = 39,896 \frac{g}{mol}$$

Der dampfförmige Massenstrom am Kopf der Verstärkersäule beträgt:

$$\dot{m}_{V,VS} = \dot{V}_{VS} \cdot MG_{VS} \quad (4-20)$$

$$\dot{m}_{V,VS} = 29,709 \cdot 39,896$$

$$\dot{m}_{V,VS} = 1,185 \frac{kg}{h}$$

Der dampfförmige Volumenstrom am Kopf der Verstärkersäule beträgt:

$$\dot{v}_{V,VS} = \frac{\dot{m}_{V,VS}}{\rho_{V,VS}} = \frac{1,185}{1,332} \quad (4-21)$$

$$\dot{v}_{V,VS} = 0,890 \frac{m^3}{h}$$

Berechnung der Regendichte R_{VS} am Kopf der Verstärkersäule:

$$R_{VS} = \frac{\dot{v}_{L,VS} \cdot 4}{D^2 \cdot \pi} = \frac{0,0012 \cdot 4}{0,035^2 \cdot \pi} \quad (4-22)$$

$$R_{VS} = 1,256 \frac{m^3}{m^2 h}$$

Maximal zulässige Leerrohr-Dampfgeschwindigkeit nach Gl. (2-56):

$$w_{leer,max,VS} = 0,04 \cdot \sqrt{\frac{817,8}{1,332}} \cdot \left[1 - 0,135 \cdot \sqrt{1,256} \right] \quad \text{lt.(2-56)}$$

$$w_{leer,max,VS} = 0,841 \frac{m}{s}$$

Anmerkung: Der Faktor $f(\eta_L) = 1$, da die dynamische Viskosität der Flüssigphase am Kopf der Abtriebssäule < 1 mPas.

Tatsächliche Leerrohr-Dampfgeschwindigkeit:

$$w_{leer,tat,VS} = \frac{\dot{v}_{V,VS} \cdot 4}{D^2 \cdot \pi} = \frac{0,890 \cdot 4}{0,035^2 \cdot \pi \cdot 3600} \quad (4-23)$$

$$w_{leer,tat,VS} = 0,257 \frac{m}{s}$$

Berechnung der Belastung:

Belastung B_{VS} der Verstärkersäule:

$$B_{VS} = \frac{w_{leer,tat,VS}}{w_{leer,max,VS}} = \frac{0,257}{0,841} = 0,305 \quad (4-24)$$

$$B_{VS} = 30,5 \%$$

Berechnung der zu erwartenden Anzahl theoretischer Trennstufen pro Meter Schüttung:

Anmerkung: Die Geschwindigkeit zur Berechnung der Wertungszahl entspricht der tatsächlichen Geschwindigkeit in der Verstärkersäule $w_{tat,VS}$ und nicht der maximal zulässigen.

Aus Gl. (2-58) - (2-60) folgt:

$$w_{tat,VS} = 0,257 \cdot [1 + 7,5 \cdot (0,006/0,035)^2] \quad \text{lt.(2-60)}$$

$$w_{tat,VS} = 0,31 \frac{m}{s}$$

$$f(d/D) = \frac{1,72}{1 + 7,5 \cdot (0,006/0,035)^2} - 0,72 \quad \text{lt.(2-59)}$$

$$f(d/D) = 0,689$$

$$n_{t,VS} = \frac{0,3}{0,31} \sqrt{\frac{903,4}{1,984}} \cdot \frac{1}{1 + 0,035} \cdot \sqrt[4]{\frac{1}{0,5}} \cdot (1 - 0,14 \cdot \sqrt{1,256}) \cdot 0,689 \quad \text{lt.(2-58)}$$

$$n_{t,VS} = 13,6 \frac{1}{m}$$

Anmerkung: Da sich die berechnete Wertungszahl und somit die Anzahl der theoretischen Trennstufen auf die tatsächliche Dampfgeschwindigkeit $w_{tat,VS}$ beziehen, wird der Index „min“ nicht angeführt.

Anzahl theoretischer Trennstufen in der Verstärkersäule:

$$N_{t,VS} = n_{t,VS} \cdot H \quad (4-25)$$

$$N_{t,VS} = 13,63 \cdot 0,5$$

$$N_{t,VS} = 6,82$$

Berechnung des Druckverlusts:

Druckverlust pro Meter Schüttung:

Laut Gl. (2-62):

$$f(R, \eta_L) = 10^{(0,165+0,035 \cdot 1,256)} \quad \text{lt. (2-62)}$$

$$f(R, \eta_L) = 1,612$$

$$\Delta p = 170 \cdot \left(1000 \cdot \frac{1,984}{903,4} \cdot 0,257^2\right)^{1,175} \cdot 1,612 \quad \text{lt. (2-61)}$$

$$\Delta p = 28,46 \text{ mmWS/m}$$

Druckverlust über die Verstärkersäule:

$$\Delta p_{VS} = \frac{\Delta p \cdot H}{9,81} \quad (4-26)$$

$$\Delta p_{VS} = \frac{28,46 \cdot 0,5}{9,81}$$

$$\Delta p_{VS} = 1,45 \text{ mbar}$$

Zusammenfassung der Berechnungsergebnisse nach Beck, Testlauf 10:

Tabelle 4-6: Zusammenfassung Beck, Testlauf 10, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $q = 1,03$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$

	Abtriebssäule	Verstärkersäule	Gesamt	Einheit
Belastung	28,1	30,5	-	[%]
Theoretische Trennst.	7,04	6,82	13,86	[-]
Druckverlust	1,12	1,45	2,57	[mbar]

4.2.2 Ergebnisse der Testläufe 9 – 13

4.2.2.1 Messergebnisse und Produktzusammensetzungen

In Tabelle 4-7 sind die die aufgenommenen Werte der Temperaturmessstellen sowie Angaben zu den Rücklaufverhältnissen dargestellt.

Tabelle 4-7: Temperaturen und Rücklaufverhältnisse, Testlauf 9 – 13, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $q = 1,03$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$

Testlauf Nr.	Feed [kg/h]	r_{eff} [-]	r_{min} [-]	$r_{\text{eff}}/r_{\text{min}}$ [-]	T_{B} [°C]	T_{M} [°C]	T_{K} [°C]
9	4,30	4	2,59	1,54	99,86	94,51	77,62
10	4,30	5	2,80	1,79	99,33	82,65	77,34
11	4,30	6	2,79	2,15	98,58	81,29	77,07
12	4,30	7	2,81	2,49	97,89	80,93	76,95
13	4,29	10	2,92	3,42	97,96	80,87	77,49

Anmerkung zu Tabelle 4-7: Das minimale Rücklaufverhältnis wurde unter Berücksichtigung des entsprechenden Molanteils y_{EtOH} im Kopfprodukt berechnet (s. Tabelle 4-8). Die Temperaturen T_{B} und T_{M} beziehen sich auf den Betriebsdruck ($p_{\text{U}} + \Delta p$), die Kopftemperatur T_{K} auf den Umgebungsdruck (p_{U}).

Tabelle 4-8 beinhaltet die aus den gemessenen Dichten errechneten Mol- und Massenanteile der Produkte.

Tabelle 4-8: Produktspezifikationen, Testlauf 9 – 13 , $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $q = 1,03$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$

Testlauf Nr.	\dot{B} [kg/h]	ρ_B [g/cm ³]	x_{EtOH} [-]	$w_{\text{EtOH},B}$ [-]	\dot{D} [kg/h]	ρ_D [g/cm ³]	y_{EtOH} [-]	$w_{\text{EtOH},D}$ [-]
9	4,07	0,9976	0,001	0,003	0,23	0,8235	0,740	0,879
10	4,10	0,9966	0,003	0,009	0,20	0,8178	0,780	0,901
11	4,12	0,9958	0,005	0,013	0,18	0,8184	0,776	0,898
12	4,15	0,9949	0,007	0,018	0,15	0,8181	0,778	0,900
13	4,17	0,9933	0,011	0,027	0,12	0,8157	0,795	0,909

In Abbildung 4-8 und Abbildung 4-9 sind die Molanteile y_{EtOH} der Kopfprodukte bzw. x_{EtOH} der Sumpfprodukte in Abhängigkeit des Rücklaufverhältnisses dargestellt.

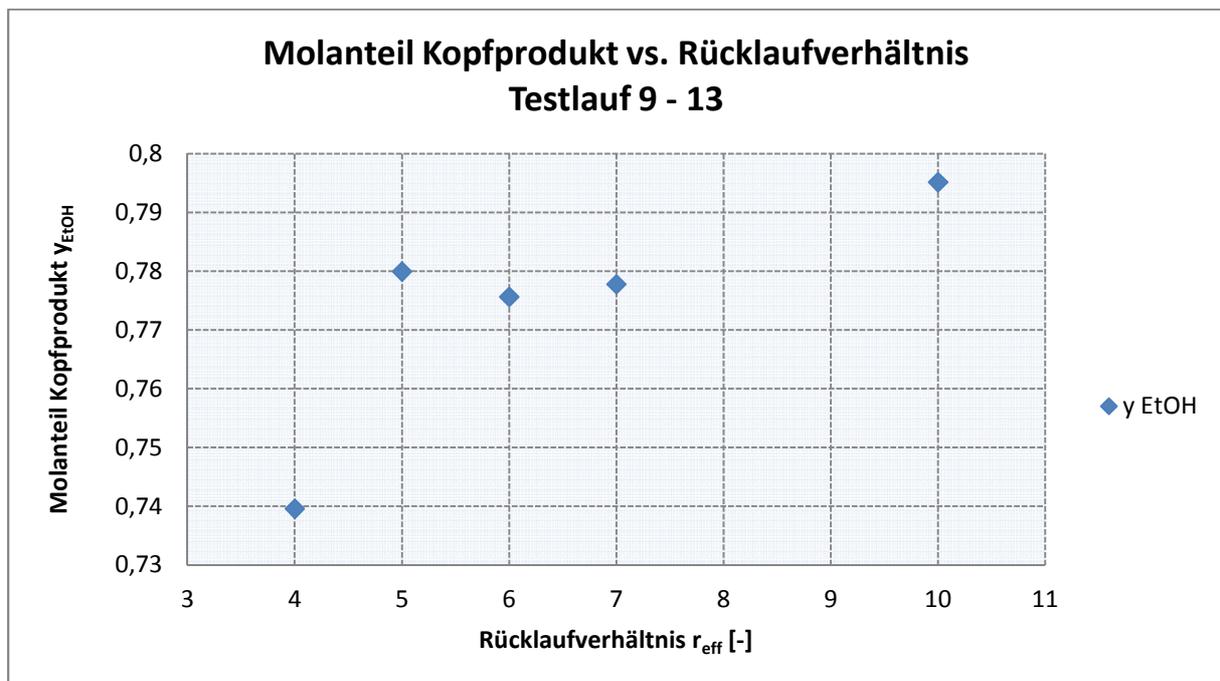


Abbildung 4-8: Molanteil y_{EtOH} vs. Rücklaufverhältnis, Testlauf 9 – 13, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$

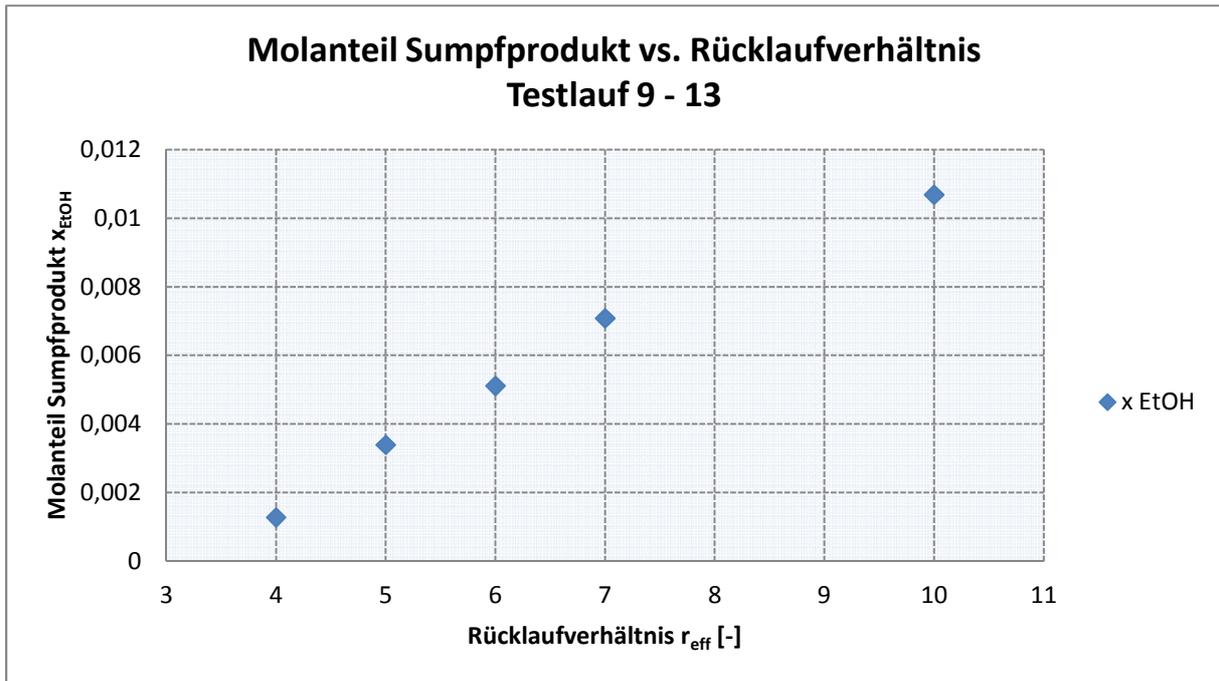


Abbildung 4-9: Molanteil x_{EtOH} vs. Rücklaufverhältnis, Testlauf 9 – 13, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$

4.2.2.2 Vergleich der Verfahren nach McCabe-Thiele und Beck

In Abbildung 4-10 ist die Anzahl der theoretischen Trennstufen nach dem McCabe-Thiele-Verfahren im Vergleich zur Berechnung nach Beck dargestellt.

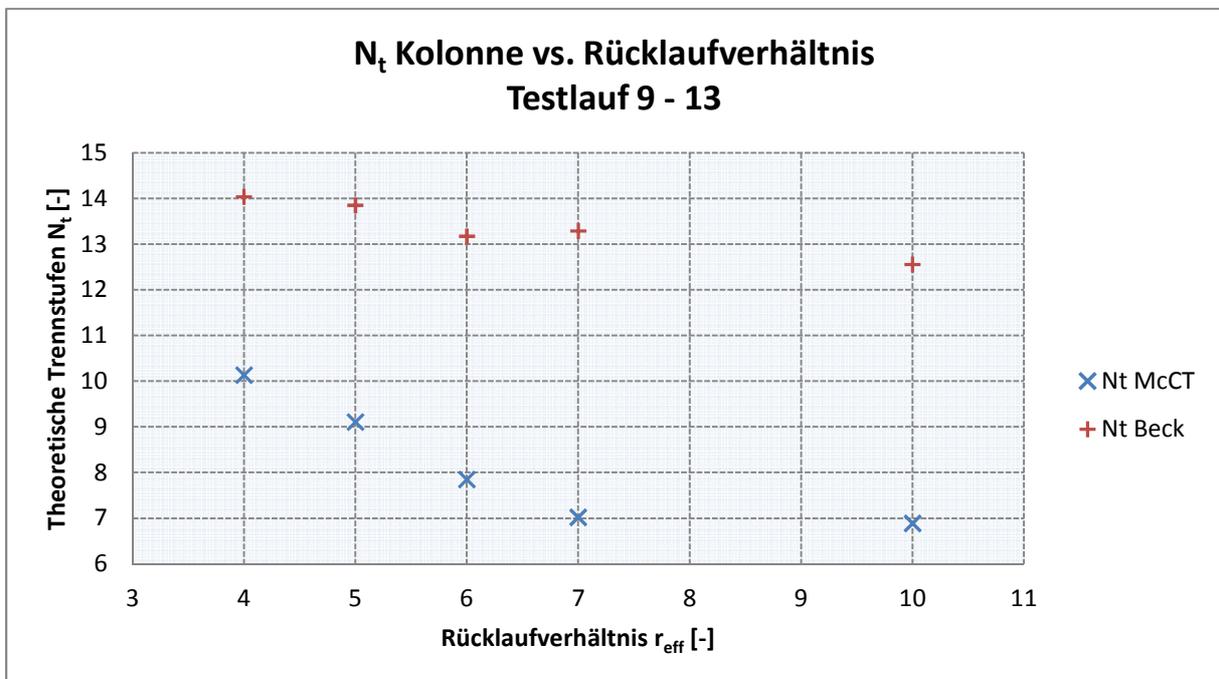


Abbildung 4-10: N_t ges. vs. Rücklaufverhältnis, Testlauf 9 – 13, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$

Abbildung 4-11 Abbildung 4-12 zeigen die Anzahl der theoretischen Trennstufen nach McCabe-Thiele und Beck für Abtriebs- und Verstärkersäule. Die entsprechenden Daten sind in Tabelle 4-9 angeführt.

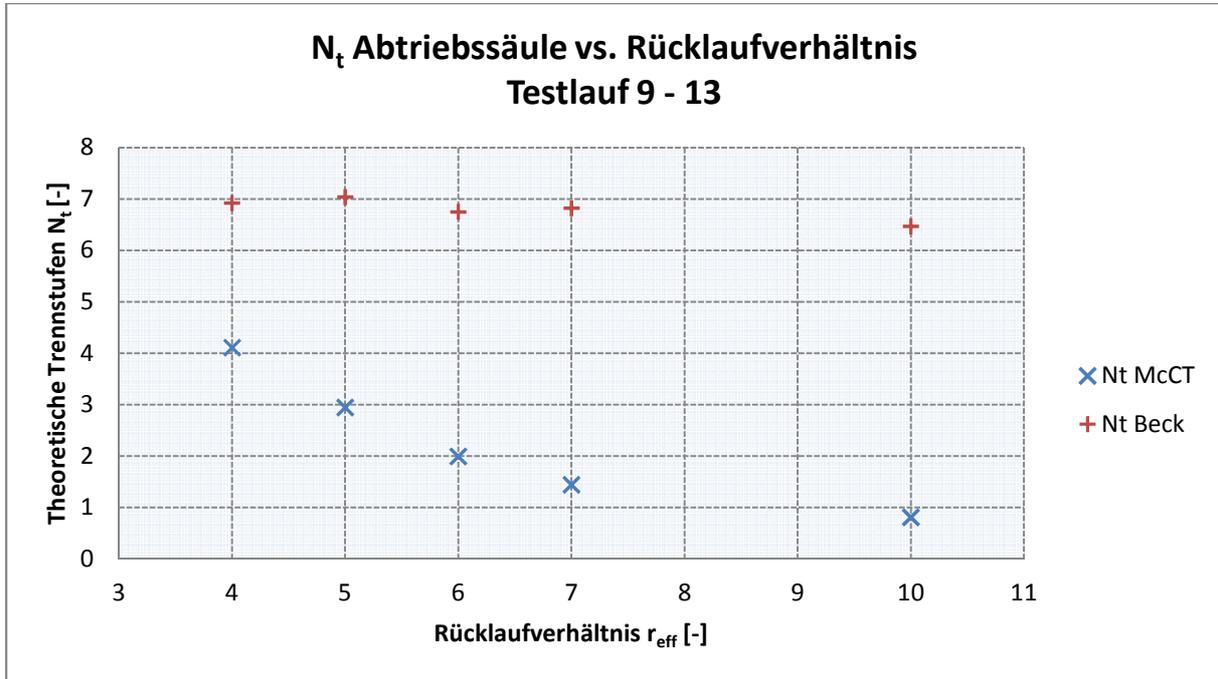


Abbildung 4-11: N_t AS vs. Rücklaufverhältnis, Testlauf 9 – 13, $x_{EtOH,F} = 0,02$, $Q_{RB} = 600$ W

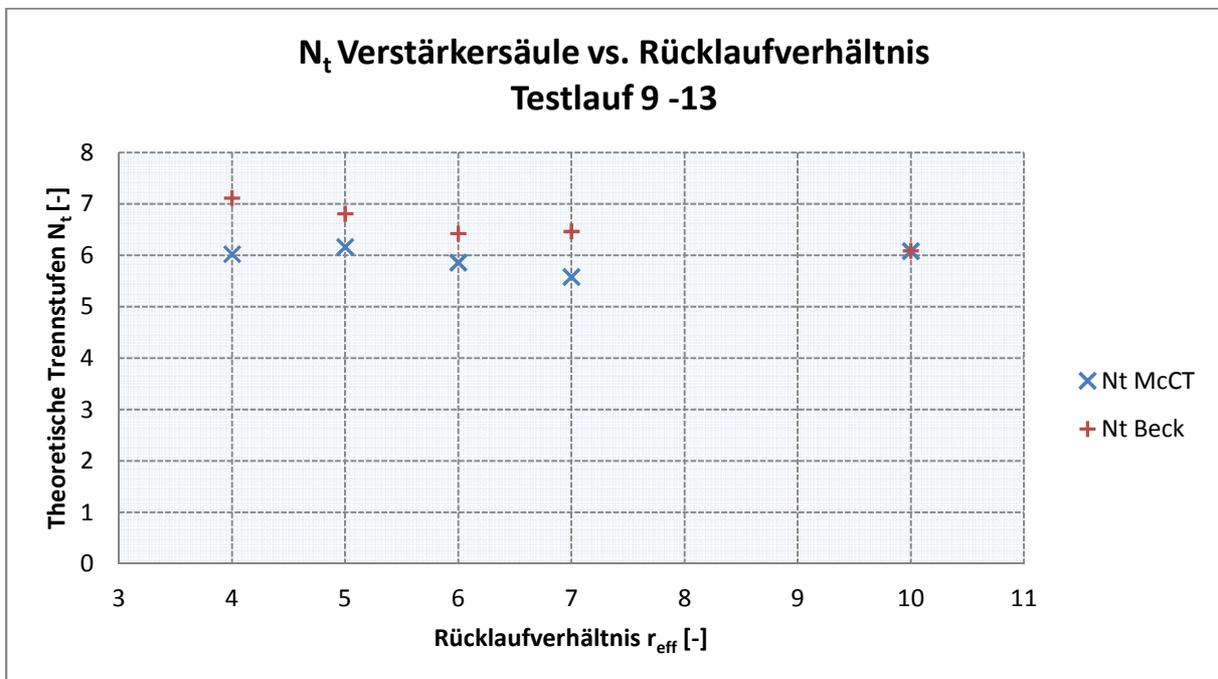


Abbildung 4-12: N_t VS vs. Rücklaufverhältnis, Testlauf 9 – 13, $x_{EtOH,F} = 0,02$, $Q_{RB} = 600$ W

Tabelle 4-9: Th. Trennstufen, McCabe-Thiele vs. Beck, Testlauf 9 – 13, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $q = 1,03$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$

Testlauf Nr.	Abtriebssäule		Verstärkersäule		Kolonne	
	$N_{t,\text{McCT}}$ [-]	$N_{t,\text{Beck}}$ [-]	$N_{t,\text{McCT}}$ [-]	$N_{t,\text{Beck}}$ [-]	$N_{t,\text{McCT}}$ [-]	$N_{t,\text{Beck}}$ [-]
9	4,1	6,9	6,0	7,1	10,1	14,0
10	2,9	7,0	6,2	6,8	9,1	13,9
11	2,0	6,8	5,9	6,4	7,9	13,2
12	1,4	6,8	5,6	6,5	7,0	13,3
13	0,8	6,5	6,1	6,1	6,9	12,6

In Tabelle 4-10 werden die Berechnungsergebnisse der HETP-Werte nach dem McCabe-Thiele Verfahren und jene des Beck-Verfahrens gegenübergestellt.

Tabelle 4-10: HETP-Werte, McCabe-Thiele vs. Beck, Testlauf 9 – 13, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $q = 1,03$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$

Testlauf Nr.	Abtriebssäule		Verstärkersäule	
	$\text{HETP}_{\text{McCT}}$ [m]	$\text{HETP}_{\text{Beck}}$ [m]	$\text{HETP}_{\text{McCT}}$ [m]	$\text{HETP}_{\text{Beck}}$ [m]
9	0,122	0,072	0,083	0,070
10	0,170	0,071	0,081	0,073
11	0,252	0,074	0,085	0,078
12	0,348	0,073	0,090	0,077
13	0,622	0,077	0,082	0,082

Der Vergleich der gemessenen und der nach Beck berechneten Druckverluste über die Kolonne ist in Tabelle 4-11 angeführt.

Tabelle 4-11: Druckverluste, Messdaten vs. Beck, Testlauf 9 – 13, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $q = 1,03$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$

Testlauf Nr.	Abtriebssäule		Verstärkersäule		Kolonne	
	Δp_{mess} [mbar]	Δp_{Beck} [mbar]	Δp_{mess} [mbar]	Δp_{Beck} [mbar]	Δp_{mess} [mbar]	Δp_{Beck} [mbar]
9	2,45	1,16	1,28	1,32	2,60	2,49
10	2,41	1,12	1,41	1,45	2,86	2,57
11	2,31	1,23	1,43	1,65	3,08	2,88
12	2,33	1,20	1,44	1,62	3,06	2,82
13	3,20	1,36	0,32	1,88	2,21	3,25

Die berechneten Dampfgeschwindigkeiten sowie die Belastungen der Kolonne sind Tabelle 4-12 zu entnehmen.

Tabelle 4-12: Dampfgeschw. und Belastung nach Beck, Testlauf 9 – 13, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $q = 1,03$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$

Testlauf Nr.	Abtriebssäule				Verstärkersäule			
	w_{leer} [m/s]	$w_{\text{leer,max}}$ [m/s]	w_{tat} [m/s]	Belastung [%]	w_{leer} [m/s]	$w_{\text{leer,max}}$ [m/s]	w_{tat} [m/s]	Belastung [%]
9	0,32	1,14	0,39	28,38	0,25	0,86	0,31	29,43
10	0,31	1,12	0,38	28,12	0,26	0,84	0,31	30,54
11	0,33	1,11	0,40	29,33	0,27	0,84	0,33	32,35
12	0,32	1,11	0,39	29,00	0,27	0,83	0,33	32,13
13	0,34	1,11	0,41	30,57	0,29	0,83	0,35	34,15

4.2.3 Diskussion der Testläufe 9 – 13

4.2.3.1 Diskussion der Produktreinheiten

Aus den Verläufen der Molanteile der Sumpf- und Kopfprodukte wird deutlich, dass mit steigendem Rücklaufverhältnis die Kopfproduktreinheit steigt, die Sumpfproduktreinheit jedoch abnimmt (s. Abbildung 4-8, Abbildung 4-9, Tabelle 4-8). Der Grund ist die Verschiebung der Konzentrationsprofile innerhalb der Kolonne. Diese geschieht durch den Rücklauf derart, dass der Anteil der leichtersiedenden Komponente sowohl im Kopf- als auch im Sumpfprodukt steigt. Die mit steigendem Rücklaufverhältnis abnehmende Temperatur in

der Kolonnenmitte verdeutlicht dies. (s. Tabelle 4-8). Der Molanteil von Ethanol im Kopfprodukt von Testlauf 10 ($r = 5$) wird als Ausreißer behandelt.

- Diskussion der ermittelten Anzahl theoretischen Trennstufen:

Vergleicht man die Algorithmen nach McCabe-Thiele und Beck, fällt auf, dass letzterer eine höhere Anzahl theoretischer Trennstufen ergibt (s. Abbildung 4-10). Für die Verstärkersäule ergeben die Verfahren eine gute Übereinstimmung. In der Abtriebssäule tritt jedoch eine starke Abweichung auf. Beck ermittelte die empirischen Beziehungen durch Testdestillationen, die ausschließlich an Verstärkersäulen durchgeführt wurden, in denen die Flüssigkeit über Präzisionsverteiler gleichmäßig über den Querschnitt verteilt wurde^[7]. Die Ursache der genannten Abweichung wird somit in der fehlenden Verteilung des Feedstroms vermutet, der über eine zentrale Tropfstelle in der Mitte des Kolonnenquerschnitts aufgegeben wird.

Weiters wird darauf hingewiesen, dass sich die Füllkörperkonstanten in Kap. 4.2.1.2 mangels Daten für 6 mm-Glas-Raschigringe auf Steinzeug-Raschigringe mit einem Durchmesser von 8 mm beziehen. Trotz der Verwendung der Füllkörperkonstanten für 8 mm-Raschigringe ergab die Berechnung nach Beck im Vergleich zu McCabe-Thiele sowohl in Abtriebssäule als auch in Verstärkersäule (in geringerem Ausmaß) eine höhere Anzahl th. Trennstufen. Dies wird durch das Verhältnis von Kolonnen- zu Füllkörperdurchmesser begründet, das lt. Billet^[17] den Wert 10 zur Verhinderung der Randgängigkeit nicht unterschreiten sollte. Dieses Verhältnis beträgt in der betrachteten Kolonne 5,8. Daher ist mit ausgeprägter Randgängigkeit der Flüssigkeit und verminderter Trennleistung zu rechnen.

- Diskussion des Druckverlusts:

Die nach Beck berechneten Druckverluste der Verstärkersäule stimmen in guter Näherung mit den Messdaten überein. Dies ist bemerkenswert, da die Berechnung des Druckverlusts ebenfalls unter Verwendung der Füllkörperdaten für Steinzeug-Raschigringe, $d = 8$ mm durchgeführt wurde. Dadurch sollte sich im Vergleich zu den Messdaten ein geringerer Druckverlust ergeben. Diese Erwartungen wurden bei der Druckverlustberechnung der Abtriebssäule erfüllt.

Bezüglich des Druckverlusts führt Beck in seiner Arbeit an, dass die Berechnungsergebnisse von den Messwerten bis zu 25 % - vereinzelt noch stärker – abweichen. Weiters wird erwähnt, dass beispielsweise allein durch die Art der Einbringung der Füllkörper, unter sonst gleichen Betriebsbedingungen, die spez. Druckverluste bis zu 40 % schwanken können.

- Diskussion der Stoffdaten

Die für die Berechnung nach Beck verwendeten Flüssigkeitsdichten wurden bei 20°C gemessen. Da der Einfluss der Temperatur auf die Flüssigkeitsdichten im Verhältnis zum Einfluss auf die Dampfdichten vernachlässigbar ist, scheint diese Vereinfachung gerechtfertigt.

- Anmerkung zum Verfahren nach Beck

Die Berechnung nach Beck wurde sowohl hinsichtlich Kolonnendurchmesser als auch Schütthöhe außerhalb des Gültigkeitsbereichs durchgeführt. Ferner wurden Füllkörperkonstanten von Raschigringen verwendet, die in Material und Durchmesser von den eingesetzten Füllkörpern abweichen. Unter diesem Aspekt kann behauptet werden, dass das Verfahren nach Beck eine gute Übereinstimmung mit den Druckmessdaten bzw. der theoretischen Trennstufenzahl nach McCabe-Thiele lieferte.

5 Trennung des Stoffsystems Ameisensäure-Essigsäure-Wasser

Abschließend wurde das ternäre Stoffsystem Ameisensäure-Essigsäure-Wasser untersucht. Dieses bildet bei der Zusammensetzung $w_{FA}=0,6711$, $w_{AA}=0,176$, $w_{H_2O}=0,1529$ und einem Druck von 973 mbar ein ternäres Sattelpunktazeotrop (UNIQUAC- Hayden-O’Connell). Die Siedetemperatur dieses Azeotrops beträgt 105,95 °C [3]. Das Ziel war, die Ameisensäure aus dem System zu entfernen. Zu diesem Zweck wurde die herkömmliche Rektifikation mit der Reaktivrektifikation verglichen.

5.1 Feedzusammensetzung und Zerlegungsbereich [3], [6]

Die Zusammensetzung des zu trennenden Einsatzgemisches ist in Tabelle 5-1 dargestellt. Die Einwaagen der Komponenten sind ebenso wie die Stoffdaten im Anhang D angeführt.

Tabelle 5-1: Zusammensetzung des ternären Einsatzgemisches \dot{F}

Komponente	Massenanteil w [-]	Molanteil x [-]
Ameisensäure (FA)	0,255	0,231
Essigsäure (AA)	0,588	0,407
Wasser (H2O)	0,157	0,362
FA/AA	0,434	0,568

Abbildung 5-1 zeigt das Dreiecksdiagramm des Systems bei 973 mbar. Die violetten Linien im Diagramm stellen die Grenzdestillationslinien dar. Ihr Schnittpunkt liegt im Sattelpunktazeotrop. Die grau schattierten Bereiche veranschaulichen den Zerlegungsbereich des Einsatzgemisches \dot{F} . Die Zusammensetzung der jeweiligen Produkte kann ausschließlich innerhalb der grau schattierten Flächen (\dot{B} =Sumpfprodukt, \dot{D} =Destillat) liegen. Der Zerlegungsbereich wird durch eine Destillationslinie durch \dot{F} und zwei Geraden begrenzt. Die Destillationslinie entspricht der Folge von Gleichgewichtszuständen des ternären Gemisches (vgl. Kap. 2.2). Die Geraden, die ebenfalls durch \dot{F} verlaufen, stellen die Grenzfälle der Massenbilanz dar. Der Zerlegungsbereich für die Rektifikation (ohne Reaktion) ergibt sich durch folgende Überlegungen:

- Im Dreiecksdiagramm müssen die Produkte einer Rektifikation auf *einer* Geraden durch den Feed liegen. Die Entfernung der Produkte vom Feed gibt Auskunft über die Produktmenge (Hebelgesetz).
- Grenzdestillationslinien können durch die Rektifikation nicht überschritten werden.
- Die Destillationslinie durch den Feed kann nicht überschritten werden, da dies eine Überschreitung des Gleichgewichts bedeutete.

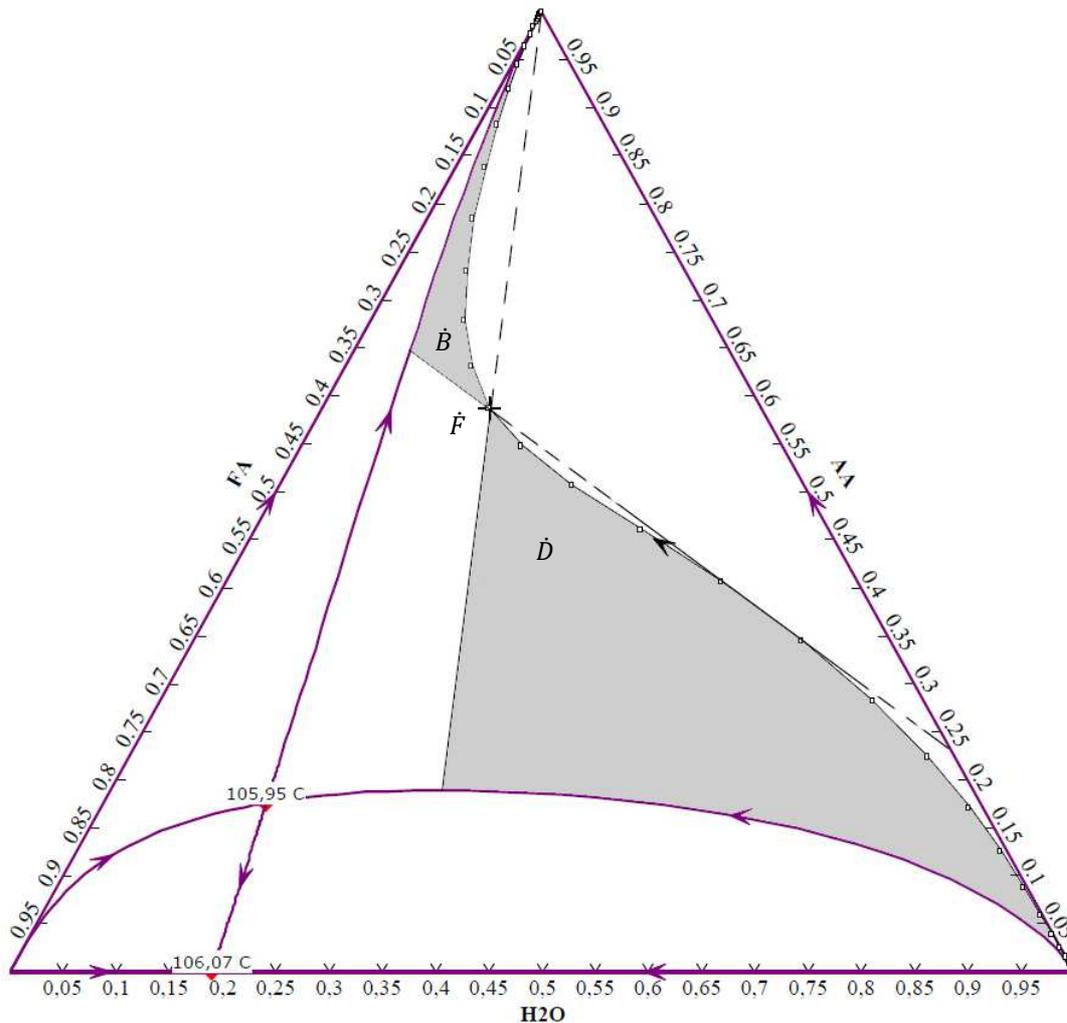


Abbildung 5-1: Zerlegungsbereich (Massenbasis) Ameisensäure-Essigsäure-Wasser, $p = 973 \text{ mbar}$ ^[3]

5.2 Trennung durch Rektifikation – Testläufe T1 – T4

Es wurden drei Rektifikationen im kontinuierlichen Betrieb und eine Rektifikation mit totalem Rücklauf durchgeführt. Die Heizleistung betrug jeweils $\dot{Q}_{RB} = 500 \text{ W}$. In den ersten drei Testläufen wurde der Kolonne in der Mitte kontinuierlich ein Feedmassenstrom von $\dot{F} = 1,18 \text{ kg/h}$ zugeführt. Die übrigen Parameter sind in Tabelle 5-2 zu sehen. Die Drücke und Temperaturen stellen einen Mittelwert über den Zeitraum stationären Betriebs dar.

Tabelle 5-2: Parameter der Testläufe T1 - T4, $Q_{RB} = 500 \text{ W}$

Testlauf	Feed [kg/h]	r_{eff} [-]	T_{Thermo} [°C]	T_{F} [°C]	p_{U} [mbar]
T1	1,18	2	95	88,66	972,41
T2	1,18	3	95	88,60	972,37
T3	1,18	4	95	88,64	972,17
T4	-	∞	-	-	971,91

Die Proben der Sumpf- und Kopfprodukte der Testläufe wurden im stationären Zustand entnommen. Deren Zusammensetzung wurde per HPLC analysiert.

5.2.1 Messwerte und Ergebnisse der Testläufe T1 – T4

In Tabelle 5-3 sind die Massenanteile der Komponenten für die Sumpf- und Kopfprodukte zu sehen. Die Massenverhältnisse von Ameisensäure zu Essigsäure in den Produkten sind derselben Tabelle zu entnehmen.

Tabelle 5-3: Zusammensetzung der Sumpf- und Kopfprodukte, T1 – T4, $Q_{RB} = 500 \text{ W}$

Testlauf	$w_{\text{AA,B}}$ [-]	$w_{\text{FA,B}}$ [-]	$w_{\text{H}_2\text{O,B}}$ [-]	$w_{\text{FA,B}}/w_{\text{AA,B}}$ [-]	$w_{\text{AA,D}}$ [-]	$w_{\text{FA,D}}$ [-]	$w_{\text{H}_2\text{O,D}}$ [-]	$w_{\text{FA,D}}/w_{\text{AA,D}}$ [-]
T1	0,617	0,255	0,128	0,414	0,498	0,225	0,277	0,451
T2	0,400	0,257	0,343	0,644	0,486	0,215	0,299	0,442
T3	0,594	0,246	0,160	0,414	0,477	0,205	0,318	0,431
T4	0,602	0,253	0,145	0,420	0,400	0,146	0,454	0,366

Anmerkung: Die Bodenproduktanalyse T2 wird als Ausreißer behandelt, da die Zusammensetzung außerhalb des Zerlegungsbereichs des Sumpfprodukts liegt (s. Abbildung 5-2)

Tabelle 5-4 zeigt die Produktmassenströme. Die zwei letzten Spalten der Tabelle beschreiben das Verhältnis der Massenströme der jeweiligen Säuren im Sumpfprodukt, zu jenen des Feedstroms. Diese Verhältnisse werden im Folgenden als Trennverhältnisse bezeichnet.

Tabelle 5-4: Produktmassenströme und Trennverhältnisse, T1 – T3, $Q_{RB} = 500 \text{ W}$

Testlauf	\dot{B} [kg/h]	\dot{D} [kg/h]	Δm [kg/h]	$\dot{B}_{FA} / \dot{F}_{FA}$ [-]	$\dot{B}_{AA} / \dot{F}_{AA}$ [-]
T1	0,90	0,28	-	0,76	0,80
T2	1,02	0,20	- 0,04	-	-
T3	1,12	0,06	-	0,92	0,96

Anmerkung zu Tabelle 5-4: Die Produktströme von T1 und T3 wurden über die Komponentenbilanz (Essigsäure) berechnet. Die Produktströme von T2 wurden aufgrund der fehlerhaften Sumpfproduktanalyse über die online-Massenbilanz des PLS ermittelt. Die Abweichung der Massenbilanz wurde durch Subtraktion der Produktströme vom Feedstrom berechnet und ist in der Tabelle mit Δm angeführt.

Tabelle 5-5 beinhaltet die Werte der Druck- und Temperaturmessung. Diese sind über den Zeitraum stationären Betriebs gemittelt.

Tabelle 5-5: Messwerte der Temperaturen und Drücke, T1 – T4, $Q_{RB} = 500 \text{ W}$

Testlauf	T_B [°C]	T_M [°C]	T_K [°C]	Δp_{AS} [mbar]	Δp_{VS} [mbar]
T1	107,41	107,37	104,85	1,73	1,07
T2	107,50	107,40	104,63	1,75	1,02
T3	107,22	107,07	104,38	1,71	1,00
T4	107,72	106,29	102,74	1,48	0,89

In Abbildung 5-2 sind die Zusammensetzungen der Produkte im Dreiecksdiagramm markiert.

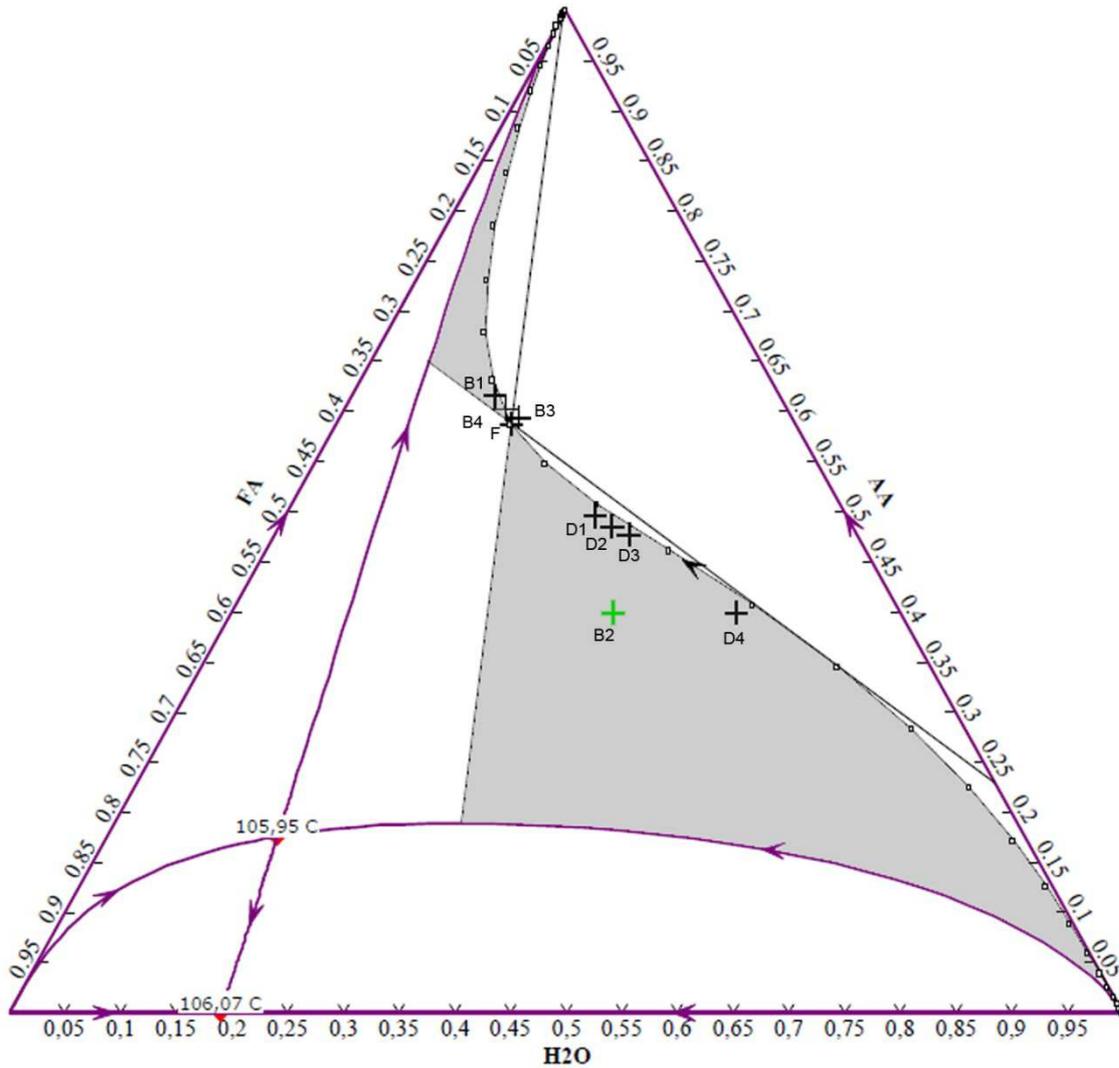


Abbildung 5-2: Produkte T1 – T4 (Massenbasis) Ameisensäure-Essigsäure-Wasser, $p = 973 \text{ mbar}$ ^[3]

5.2.2 Simulation des Trennvorgangs mit Aspen Plus ^[3]

Die Trennung des ternären Systems wurde in Aspen Plus simuliert. Unter Verwendung des Aktivitätskoeffizientenmodells UNIQUAC-Hayden-O'Connell wurde der Vorgang mit der Shortcut-Methode „DISTL“ berechnet.

Angaben zur Kolonne:

Theoretische Trennstufen:	10	[-]
Feedboden Nr.:	5	[-]
Druck im Sumpferdampfer:	976	[mbar]
Druck im Kondensator:	973	[mbar]
Feedstrom:	1,18	[kg/h]
Temperatur des Feedstroms:	88,6	[°C]
Druck des Feedstroms:	975	[mbar]

In einer Sensitivitätsanalyse wurde der Einfluss folgender Parameter auf die Produktzusammensetzung untersucht:

- Molares Verhältnis von Destillat- zu Feedstrom \dot{D}/\dot{F} (0,05 – 0,95)
- Rücklaufverhältnis RLV (2 – 6)

Die Klammerausdrücke geben die betrachteten Intervalle der jeweiligen Parameter an.

Die Ergebnisse der Sensitivitätsanalyse sind in Tabelle 5-6 dargestellt.

Tabelle 5-6: Ergebnisse der Sensitivitätsanalyse ^[3]

\dot{D} / \dot{F} [-]	r_{eff} [-]	\dot{B} [kg/h]	$w_{\text{AA,B}}$ [-]	$w_{\text{FA,B}}$ [-]	$w_{\text{H}_2\text{O,B}}$ [-]	\dot{D} [kg/h]	$w_{\text{AA,D}}$ [-]	$w_{\text{FA,D}}$ [-]	$w_{\text{H}_2\text{O,D}}$ [-]	\dot{Q}_{RB} [W]	$\dot{B}_{\text{AA}} / \dot{F}_{\text{AA}}$ [-]
0,05	2	1,132	0,592	0,257	0,151	0,048	0,483	0,210	0,307	54,9	0,97
0,05	4	1,135	0,593	0,258	0,149	0,045	0,454	0,185	0,361	84,4	0,97
0,05	6	1,137	0,594	0,258	0,148	0,043	0,437	0,168	0,395	114,2	0,97
0,35	2	0,842	0,632	0,268	0,100	0,338	0,480	0,222	0,298	299,4	0,77
0,35	4	0,861	0,640	0,273	0,087	0,319	0,448	0,208	0,344	503,0	0,79
0,35	6	0,871	0,644	0,275	0,081	0,309	0,429	0,200	0,371	708,4	0,81
0,65	2	0,500	0,719	0,228	0,053	0,680	0,491	0,275	0,234	519,9	0,52
0,65	4	0,511	0,743	0,213	0,044	0,669	0,469	0,287	0,244	864,1	0,55
0,65	6	0,515	0,755	0,204	0,041	0,665	0,459	0,295	0,246	1206,8	0,56
0,95	2	0,081	0,907	0,082	0,011	1,099	0,564	0,268	0,168	710,7	0,11
0,95	4	0,082	0,927	0,066	0,007	1,098	0,563	0,269	0,168	1176,2	0,11
0,95	6	0,083	0,935	0,059	0,006	1,097	0,562	0,270	0,168	1641,6	0,11

5.2.3 Diskussion der Testläufe T1 – T4 und der Sensitivitätsanalyse

Aus dem Zerlegungsbereich im Dreiecksdiagramm ist zu erkennen, dass der Abzug eines nahezu reinen Sumpfprodukts, bezogen auf Essigsäure theoretisch möglich ist. Der Sensitivitätsanalyse (s. unterste Zeile Tabelle 5-6) ist zu entnehmen, dass das reinste Sumpfpprodukt der Simulation rund 94 w-% Essigsäure enthält, der Sumpfpproduktstrom jedoch nur rund 11 w-% der zugeführten Essigsäure beinhaltet. Die geringe Ausbeute an

Essigsäure im Sumpfprodukt ist mit hohem Energieaufwand verbunden, da rund 93 w-% des Einsatzstroms die Kolonne im Destillatstrom verlassen. Zusätzlich weicht die Zusammensetzung des Destillatstroms nur gering von jener des Einsatzgemisches ab. Die Erhöhung des Rücklaufverhältnisses hat nur einen geringen Einfluss auf die Produktreinheiten, wirkt sich allerdings äußerst negativ auf die erforderliche Heizleistung des Sumpfverdampfers aus.

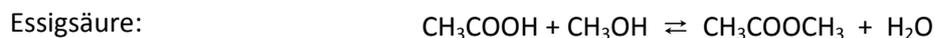
Die Analysen der Testläufe T1 – T4 ergaben, dass die Sumpfprodukte eine ähnliche Zusammensetzung wie das Einsatzgemisch aufweisen. Folglich wurde die Heizleistung im Sumpfverdampfer ($\dot{Q}_{RB} = 500 \text{ W}$) zu gering gewählt. Die Trennverhältnisse verdeutlichen zudem, dass die Trennung von Ameisensäure und Essigsäure unter den gewählten Betriebsbedingungen nur in geringem Ausmaß erfolgte. (s. Tabelle 5-4).

Die genannten Feststellungen bestätigen die Aussage der Sensitivitätsanalyse, wonach eine Abtrennung der Ameisensäure aus dem System durch gewöhnliche Rektifikation als unwirtschaftlich erachtet wird.

5.3 Trennung durch Reaktivrektifikation – Testläufe R1, R2

Das in Kap. 5.1 beschriebene Feedgemisch wurde durch Reaktivrektifikation getrennt. Der Kolonne wurden das zu trennende Gemisch und Methanol in separaten Feedströmen zugeführt. Die leichtersiedende Komponente Methanol wurde in der Mitte der Kolonne aufgegeben, das schwerersiedende Säuregemisch trat am Kopf der Kolonne ein. Dadurch bildete sich in der Kolonne eine Reaktionszone, in der Veresterungsreaktionen der Säuren abliefen. Die Stoffdaten der Komponenten und ein Azeotrop-Report befinden sich in Anhang C.

Die Veresterungsreaktionen lauten:



Die Betriebsbedingungen der Testläufe R1 und R2 sind in Tabelle 5-7 zu sehen. In der Tabelle wird auch das molare Verhältnis von Methanol zu Ameisensäure in den Feedströmen angeführt.

Tabelle 5-7: Spezifikationen der Testläufe R1, R2, $Q_{RB} = 500 \text{ W}$, $F_{\text{Säuren}} = 1,12 \text{ kg/h}$, $F_{\text{MeOH}} = 0,22 \text{ kg/h}$

Testlauf	$\dot{n}_{\text{MeOH}}/\dot{n}_{\text{FA}}$ [-]	r_{eff} [-]	T_{Thermo} [°C]	$T_{\text{F,Säuren}}$ [°C]	$T_{\text{F,MeOH}}$ [°C]	p_{U} [mbar]
R1	1,12	4	40	37,27	36,19	971,66
R2	1,12	2	40	37,52	35,87	971,57

Der Sumpfordampfer wurde vor dem ersten Testlauf mit dem Feedgemisch befüllt und die Kolonne unter totalem Rücklauf in Betrieb genommen. Nach Einstellen des stationären Betriebszustands wurden die beiden Feedpumpen aktiviert. Der Testlauf wurde abgebrochen, da die Heizleistung irrtümlich auf 400 W eingestellt war. Das PLS und die Datenaufzeichnung wurden für R1 neu gestartet. Nach dem Neustart wurden die Parameter aus Tabelle 5-7 eingestellt und die Heizung bzw. die Feedpumpen erneut aktiviert. Nach dem Erreichen des stationären Betriebszustands im kontinuierlichen Betrieb wurden Kopf- und Sumpfproduktproben entnommen.

5.3.1 Messwerte und Ergebnisse der Testläufe R1 , R2

Die Proben der Produkte wurden vorerst per GC-FID, GC-MS und GC-WLD analysiert. Es wurde jedoch keine geeignete Methode gefunden, mit der die Proben zufriedenstellend analysiert werden konnten. Für die Kopfprodukte konnte durch den MS-Detektor ein qualitativer Nachweis von Methylformiat (Ameisensäuremethylester) und Methylacetat (Essigsäuremethylester) erbracht werden.

Um eine Aussage über die Abtrennung der Ameisensäure machen zu können, wurden die Sumpfproduktproben analog zu Kapitel 5.2 im HPLC analysiert. Es wurde die vereinfachende Annahme getroffen, dass das Sumpfprodukt ausschließlich aus den Komponenten des zu trennenden Ausgangsgemisches besteht. Für die Reaktionsprodukte Methylformiat und Methylacetat, sowie überschüssiges Methanol wurde angenommen, dass diese Komponenten die Kolonne zur Gänze im Destillat verlassen. Auf die Berechnung der Reaktionsumsätze musste aufgrund der unzureichenden Analyseergebnisse verzichtet werden. Die Bilanzierung der Ameisensäure und der Essigsäure erfolgte analog zu Kapitel 5.2 auf Massenbasis.

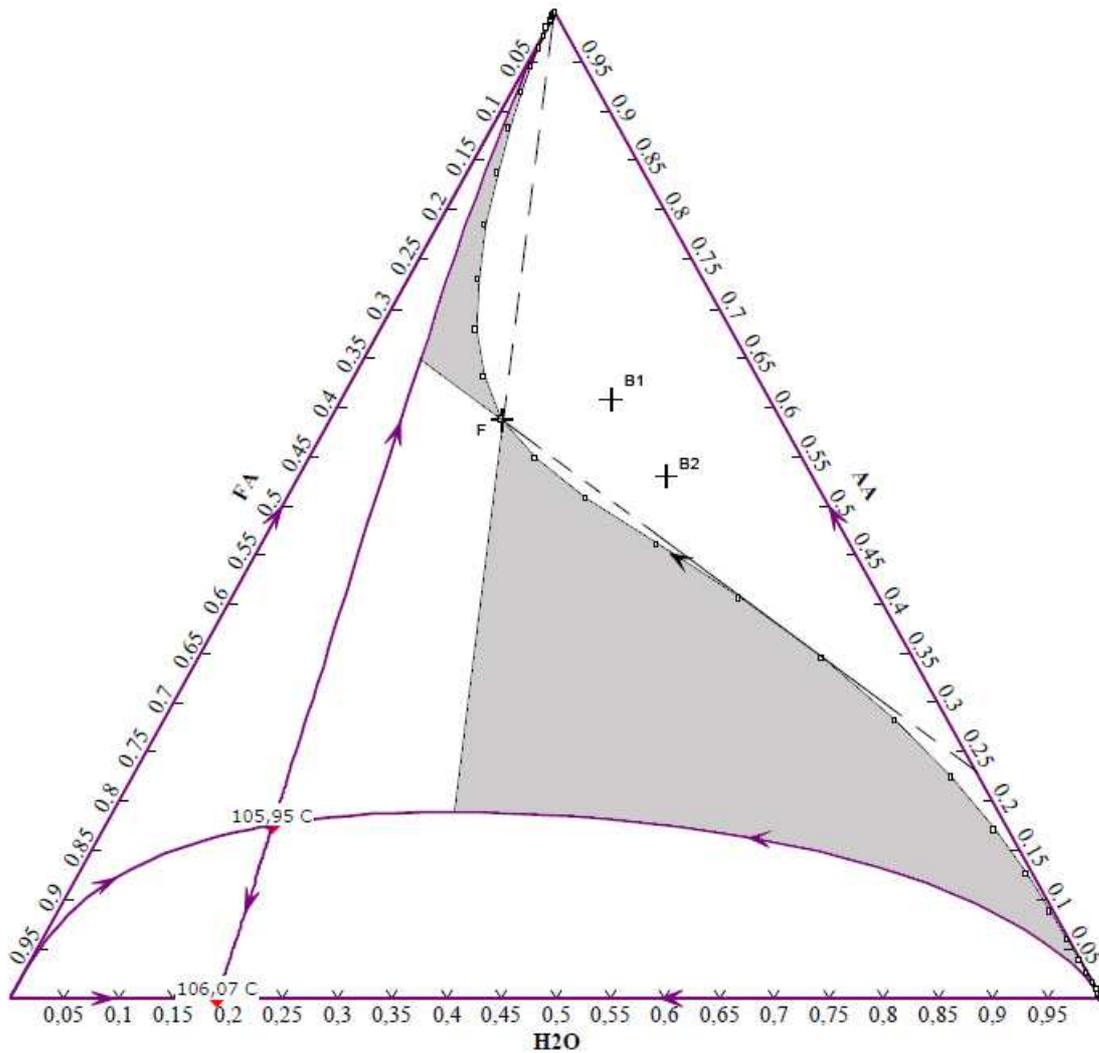
Die Analyseergebnisse, die gemittelten Produktmassenströme und die Abweichung der Massenbilanz sind in Tabelle 5-8 angeführt. Die gemittelten Temperatur- und Differenzdruckmessungen sind Tabelle 5-9 zu entnehmen. Die Zusammensetzung des Sumpfprodukts wurde im Dreiecksdiagramm in Abbildung 5-3 dargestellt.

Tabelle 5-8: Produktspezifikationen und Trennverhältnisse, R1, R2, $Q_{RB} = 500 \text{ W}$, $F_{\text{Säuren}} = 1,12 \text{ kg/h}$, $F_{\text{MeOH}} = 0,22 \text{ kg/h}$

Testlauf	\dot{B} [kg/h]	\dot{D} [kg/h]	Δm [kg/h]	$w_{AA,B}$ [-]	$w_{FA,B}$ [-]	$w_{H_2O,B}$ [-]	$w_{FA,B}/w_{AA,B}$ [-]	$\dot{B}_{FA} / \dot{F}_{FA}$ [-]	$\dot{B}_{AA} / \dot{F}_{AA}$ [-]
R1	1,03	0,31	0,0012	0,609	0,144	0,247	0,237	0,52	0,95
R2	1,06	0,33	-0,046	0,530	0,134	0,336	0,253	0,50	0,85

Tabelle 5-9: Temperaturen und Drücke, R1, R2, $Q_{RB} = 500 \text{ W}$, $F_{\text{Säuren}} = 1,12 \text{ kg/h}$, $F_{\text{MeOH}} = 0,22 \text{ kg/h}$

Testlauf	T_B [°C]	T_M [°C]	T_K [°C]	Δp_{AS} [mbar]	Δp_{VS} [mbar]
R1	102,36	73,76	56,24	1,60	1,37
R2	104,60	85,05	72,23	1,39	1,11


 Abbildung 5-3: Produkte Reaktivrektifikation R1, R2 (Massenbasis), $p = 973 \text{ mbar}$ ^[3]

5.3.2 Diskussion der Testläufe R1, R2

Die Zusammensetzung der Sumpfprodukte in Abbildung 5-3 zeigt, dass die Destillationslinie überschritten wurde. Man beachte die daraus resultierenden Trennverhältnisse der Ameisensäure (s. Tabelle 5-8). Sie ergeben, dass rund 50 % der eintretenden Ameisensäure die Kolonne über den Sumpfstrom verließen. Für die Essigsäure liegt dieses Verhältnis zwischen 85 % und 95 %. Im Vergleich zu den Testläufen der herkömmlichen Rektifikation aus Kap. 5.2 fällt auf, dass die Trennverhältnisse für die Essigsäure mit 80 % - 96 % ähnliche Ergebnisse wie die Reaktivrektifikation lieferten. Für die Ameisensäure betragen die Trennverhältnisse allerdings 76 % - 92 % (s. Tabelle 5-4). Daraus wird geschlossen, dass die Ameisensäure in stärkerem Ausmaß verestert wurde, was aufgrund ihres niedrigeren pK_s -Wertes erklärbar wäre.

Betrachtet man die Ergebnisse der Sumpfproduktanalysen der Testläufe R1 und R2, ist zu erkennen, dass durch ein höheres Rücklaufverhältnis das Massenverhältnis von

Ameisensäure zu Essigsäure abnimmt (s. Tabelle 5-8). Die Steigerung des Rücklaufverhältnisses hat somit einen positiven Effekt auf die Abtrennung der Ameisensäure.

Aufgrund der genannten Analytikprobleme, die keine detaillierte Auswertung der Proben zuließen, wurde auf die Durchführung weitere Versuche verzichtet. Da die Umsätze der Veresterungsreaktionen nicht berechnet werden können, sind die Grenzen des Verfahrens für dieses Anwendungsgebiet nicht abzuschätzen. Es kann allerdings die Aussage getroffen werden, dass durch Reaktivrektifikation die Abtrennung der Ameisensäure effizienter durchführbar ist, als durch gewöhnliche Rektifikation.

Die Annahme bezüglich der Zusammensetzung des Sumpfprodukts wird als gültig erachtet. Sie basiert auf den Siedetemperaturen von Methylformiat, Methylacetat und Methanol, die deutlich unter jenen der Komponenten des ternären Einsatzgemisches liegen.

6 Zusammenfassung

Das Ziel der vorliegenden Arbeit war, eine Semibatch-Rektifikationsanlage mit neuer Mess-, Steuer- und Regelungstechnik (MSR) auszustatten und für den kontinuierlichen Betrieb zu adaptieren. Hierfür wurde ein elektrisch beheizter Sumpfverdampfer (Kettle-Reboiler) geplant und angefertigt. Die Wandlermodule der neuen MSR wurden auf Basis des Fieldpoint-Systems der Firma National Instruments ausgelegt und in einem neuen Schaltschrank installiert (s. Kap. 3). Über das programmierte Prozessleitsystem ist es nun möglich, die Anlage computergestützt zu steuern und sämtliche Messdaten aufzuzeichnen. Der Neuaufbau der Anlage und das Prozessleitsystem wurden in Testläufen mit dem binären System Ethanol-Wasser validiert und die Kolonne hinsichtlich Trennleistung und hydraulischer Belastung charakterisiert. Zu diesem Zweck wurde die theoretische Trennstufenzahl nach dem McCabe-Thiele-Verfahren für den Betrieb unter totalem Rücklauf (ohne Feedstrom) und für den kontinuierlichen Betrieb ermittelt. Die Ergebnisse des McCabe-Thiele-Verfahrens für den kontinuierlichen Betrieb wurden den Berechnungsergebnissen des Beck-Verfahrens gegenübergestellt. Die Berechnung der Kolonnenhydraulik nach Beck wurde mit Messdaten aus den Testläufen verglichen (s. Kap. 4.1.2 und Kap. 4.2.2). Der Vergleich lieferte unter den gewählten Betriebsbedingungen für die Verstärkersäule eine bessere Übereinstimmung der Werte als für die Abtriebsäule.

Weiters wurde das ternäre System Ameisensäure-Essigsäure-Wasser untersucht. Ziel war, die Ameisensäure aus dem System, das ein ternäres Sattelpunktazeotrop bildet, abzutrennen (s. Kap. 5.1). Im Zuge dessen wurden die herkömmliche Rektifikation und die Reaktivrektifikation verglichen. Für erstere wurde im Simulationsprogramm Aspen Plus eine Sensitivitätsanalyse durchgeführt, um eine Aussage über die Wirtschaftlichkeit des Trennverfahrens treffen zu können (s. Kap. 5.2.2).

Die Reaktivrektifikation basierte auf der Zugabe von Methanol in einem separaten Feedstrom, um in der Kolonne Veresterungsreaktionen der Säuren zu ermöglichen. Die Reaktionsprodukte Ameisensäuremethylester und Essigsäuremethylester sowie überschüssiges Methanol sollten aufgrund ihrer niedrigeren Siedepunkte im Vergleich zum ternären Ausgangsgemisch die Kolonne im Destillatstrom verlassen. Der niedrigere pK_s -Wert der Ameisensäure – verglichen mit Essigsäure – sollte die vorrangige Veresterung der erstgenannten Komponente bewirken. Diese Vermutung hat sich in den durchgeführten Versuchen bestätigt. Die Abtrennung der Ameisensäure durch Reaktivrektifikation erzielte bessere Ergebnisse bezogen auf Energieaufwand, Produktmenge und -qualität (s. Kap. 5.2.1 und Kap. 5.3.1).

7 Abbildungsverzeichnis

Abbildung 2-1: Siedediagramm (T-x,y-Diagramm) einer binären, idealen Mischung.....	8
Abbildung 2-2: Schematische Darstellung der kont. einstufigen Destillation.....	8
Abbildung 2-3: Schematische Darstellung der disk. einstufigen Destillation.....	9
Abbildung 2-4: Schematische Darstellung einer Rektifikationskolonne	10
Abbildung 2-5: Wichtige Bilanzgebiete einer Rektifikationskolonne	13
Abbildung 2-6: Bilanzgebiet II (Verstärkersäule).....	14
Abbildung 2-7: Bilanzgebiet V (Feedboden).....	16
Abbildung 2-8: Einfluss der q-Linie auf den Schnittpunkt der Betriebsgeraden	18
Abbildung 2-9: Exemplarische Stufenkonstruktion nach McCabe-Thiele	19
Abbildung 2-10: McCabe-Thiele Diagramm für Ethanol Wasser, $p = 973 \text{ mbar}$	23
Abbildung 2-11: Massenanteil w_{EtOH} vs. Mischungsdichte EtOH-Wasser, $T = 20^\circ\text{C}$	24
Abbildung 3-1: Sumpfordampfer der Kolonne	25
Abbildung 3-2: Abtriebssäule	25
Abbildung 3-3: Verstärkersäule	26
Abbildung 3-4: Fließbild der Rektifikationsanlage	27
Abbildung 3-5: Aufbau des Schaltschranks	29
Abbildung 3-6: Bedienoberfläche des programmierten Prozessleitsystems	30
Abbildung 4-1: McCabe-Thiele-Diagramm Testlauf 2, tot. Rücklauf, $p = 973 \text{ mbar}$	36
Abbildung 4-2: Molanteil x_{EtOH} vs. Heizleistung, Testlauf 1 – 8, tot. Rücklauf.....	39
Abbildung 4-3: Molanteil y_{EtOH} vs. Heizleistung, Testlauf 1 – 8, tot. Rücklauf.....	39
Abbildung 4-4: Druckverlust Abtriebssäule vs. Heizleistung, Testlauf 1 – 8, tot. Rücklauf.....	40
Abbildung 4-5: Druckverlust Verstärkersäule vs. Heizleistung, Testlauf 1 – 8, tot. Rücklauf	40
Abbildung 4-6: Theoretische Trennstufen vs. Heizleistung, Testlauf 1 – 8, tot. Rücklauf.....	41
Abbildung 4-7: McCabe-Thiele-Diagramm, Testlauf 10, $p = 973 \text{ mbar}$	48
Abbildung 4-8: Molanteil y_{EtOH} vs. Rücklaufverhältnis, Testlauf 9 – 13, $x_{\text{EtOH,F}} = 0,02$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$	61
Abbildung 4-9: Molanteil x_{EtOH} vs. Rücklaufverhältnis, Testlauf 9 – 13, $x_{\text{EtOH,F}} = 0,02$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$	62
Abbildung 4-10: N_t ges. vs. Rücklaufverhältnis, Testlauf 9 – 13, $x_{\text{EtOH,F}} = 0,02$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$	62
Abbildung 4-11: N_t AS vs. Rücklaufverhältnis, Testlauf 9 – 13, $x_{\text{EtOH,F}} = 0,02$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$	63
Abbildung 4-12: N_t VS vs. Rücklaufverhältnis, Testlauf 9 – 13, $x_{\text{EtOH,F}} = 0,02$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$	63
Abbildung 5-1: Zerlegungsbereich (Massenbasis) Ameisensäure-Essigsäure-Wasser, $p = 973 \text{ mbar}$ ^[3]	69
Abbildung 5-2: Produkte T1 – T4 (Massenbasis) Ameisensäure-Essigsäure-Wasser, $p = 973 \text{ mbar}$ ^[3] .	72
Abbildung 5-3: Produkte Reaktivrektifikation R1, R2 (Massenbasis), $p = 973 \text{ mbar}$ ^[3]	77

8 Tabellenverzeichnis

Tabelle 4-1: Parameter der Testläufe 1 – 8, totaler Rücklauf, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$	35
Tabelle 4-2: Produktzusammensetzungen, Testlauf 1 – 8, tot. Rücklauf, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$	41
Tabelle 4-3: Differenzdrücke und Temperaturen, Testlauf 1 – 8, tot. Rücklauf, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$	42
Tabelle 4-4: Parameter der Testläufe 9 – 13, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $q = 1,03$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$	43
Tabelle 4-5: Spezifikationen des Feedstroms und der Produkte, Testlauf 10.....	44
Tabelle 4-6: Zusammenfassung Beck, Testlauf 10, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $q = 1,03$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$	60
Tabelle 4-7: Temperaturen und Rücklaufverhältnisse, Testlauf 9 – 13, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $q = 1,03$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$	60
Tabelle 4-8: Produktspezifikationen, Testlauf 9 – 13 , $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $q = 1,03$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$	61
Tabelle 4-9: Th. Trennstufen, McCabe-Thiele vs. Beck, Testlauf 9 – 13, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $q = 1,03$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$	64
Tabelle 4-10: HETP-Werte, McCabe-Thiele vs. Beck, Testlauf 9 – 13, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $q = 1,03$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$	64
Tabelle 4-11: Druckverluste, Messdaten vs. Beck, Testlauf 9 – 13, $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $q = 1,03$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$	65
Tabelle 4-12: Dampfgeschw. und Belastung nach Beck, Testlauf 9 – 13 , $x_{\text{EtOH},F} = 0,02$, $q = 1,03$, $Q_{\text{RB}} = 600 \text{ W}$	65
Tabelle 5-1: Zusammensetzung des ternären Einsatzgemisches F	68
Tabelle 5-2: Parameter der Testläufe T1 - T4, $Q_{\text{RB}} = 500 \text{ W}$	70
Tabelle 5-3: Zusammensetzung der Sumpf- und Kopfprodukte, T1 – T4, $Q_{\text{RB}} = 500 \text{ W}$	70
Tabelle 5-4: Produktmassenströme und Trennverhältnisse, T1 – T3, $Q_{\text{RB}} = 500 \text{ W}$	71
Tabelle 5-5: Messwerte der Temperaturen und Drücke, T1 – T4, $Q_{\text{RB}} = 500 \text{ W}$	71
Tabelle 5-6: Ergebnisse der Sensitivitätsanalyse ^[3]	73
Tabelle 5-7: Spezifikationen der Testläufe R1, R2, $Q_{\text{RB}} = 500 \text{ W}$, $F_{\text{Säuren}} = 1,12 \text{ kg/h}$, $F_{\text{MeOH}} = 0,22 \text{ kg/h}$	75
Tabelle 5-8: Produktspezifikationen und Trennverhältnisse, R1, R2, $Q_{\text{RB}} = 500 \text{ W}$, $F_{\text{Säuren}} = 1,12 \text{ kg/h}$, $F_{\text{MeOH}} = 0,22 \text{ kg/h}$	76
Tabelle 5-9: Temperaturen und Drücke, R1, R2, $Q_{\text{RB}} = 500 \text{ W}$, $F_{\text{Säuren}} = 1,12 \text{ kg/h}$, $F_{\text{MeOH}} = 0,22 \text{ kg/h}$...	76

9 Literaturverzeichnis

- [1] **Gmehling, Jürgen und Kolbe, Bärbel.** *Thermodynamik.* Weinheim : VCH Verlagsgesellschaft mbH, 1992.
- [2] **Schönbucher, Axel.** *Thermische Verfahrenstechnik.* Heidelberg : Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2002.
- [3] *Aspen Plus 2006.* [Software] Cambridge, Massachusetts : Aspen Technoloy, Inc., Aspen Technology, Inc., 2006.
- [4] **Sattler, Klaus.** *Thermische Trennverfahren - Grundlagen, Auslegung, Apparate.* Weinheim : Wiley-VCH Verlag GmbH, 2001.
- [5] **Siebenhofer, Matthäus.** *Vorlesungsskriptum Thermische Verfahrenstechnik 1 - Teil V Destillation.* Graz : TU Graz, Institut für Chemische Verfahrenstechnik und Umwelttechnik, 2011.
- [6] **Mersmann, Alfons, Kind, Matthias und Stichlmair, Johann.** *Thermische Verfahrenstechnik - Grundlagen und Methoden, 2.Auflage.* Berlin, Heidelberg : Springer-Verlag Berling-Heidelberg, 2005.
- [7] **Beck, Robert.** *Ein neues Verfahren zur Berechnung von Füllkörpersäulen.* Baumbach/Westerwald : Vereinigte Füllkörper-Fabriken GmbH + Co, 1969.
- [8] *Table Curve 2D - V5.* [Software] s.l. : Systat Software Inc.
- [9] **Perry, Robert.** *Perry's Chemical Engineer's Handbook, Seventh Edition.* New York : The McCraw-Hill Companies Inc., 1997.
- [10] **Normag Labor- und Prozesstechnik GmbH.** *Anlagendokumentation - Anlage zur Flüssig-Flüssig-Extraktion mit nachfolgender Rektifikation.* Illmenau : s.n., 2007.
- [11] **DIN Deutsches Institut für Normung.** *Graphische Symbole und Kennbuchstaben für die Prozessleittechnik Teil 1.* Berlin : Beuth Verlag GmbH, 1993.
- [12] **National Instruments.** *Fieldpoint Module - Produktbeschreibung.* Austin, Texas : National Instruments.
- [13] **Aplisens.** *User's Manual - Pressure Transmitter PCE-28.* Warsaw : Aplisens S.A, 2011.
- [14] **Jumo GmbH & Co.KG.** *Betriebsanleitung Druckmessumformer dTrans p30.* Fulda : s.n., 2011.

- [15] **Amberger, Ellen.** *Füllstandmeßtechnik: Grundlagen und Anwendungsbeispiele.* s.l. : Verlag Moderne Industrie, 1999.
- [16] *LabVIEW 2009.* [Software] Austin, Texas : National Instruments, 2009.
- [17] **Billet, Reinhard.** *Die industrielle Destillation .* Weinheim : Verlag Chemie, 1973.
- [18] **Lide, David.** *CRC Handbook of Chemistry and Physics - 84th Edition.* s.l. : CRC Press, 2003 - 2004.
- [19] **Mortimer, Charles.** *Chemie - Basiswissen der Chemie 8.Auflage.* Stuttgart : Georg Thieme Verlag, 2003.

Anhang A: Fit-Gleichungen

- Dichte-Fit EtOH-Wasser ^[9], TableCurve-Fit Nr.7929: ^[8]

$$w_{EtOH} = \frac{a + c\rho^2 + e\rho^4 + g\rho^6 + i\rho^8 + k\rho^{10}}{1 + b\rho^2 + d\rho^4 + f\rho^6 + h\rho^8 + j\rho^{10}}$$

mit: $a = 2,020736281$ $b = 5,382756610$ $c = 12,260140300$
 $d = 11,19334518$ $e = 29,67055802$ $f = -11,01321260$
 $g = -35,7156296$ $h = 4,954708703$ $i = 21,360236370$
 $j = -0,750721450$ $k = -5,07577359$

Tabelle A 1: Dichte des binären Gemisches ^[9]

w_{EtOH} [-]	ρ [g/cm ³]								
0	0,99823	0,2	0,96864	0,4	0,93518	0,6	0,89113	0,8	0,84344
0,01	0,99636	0,21	0,96729	0,41	0,93314	0,61	0,88882	0,81	0,84096
0,02	0,99453	0,22	0,96592	0,42	0,93107	0,62	0,8865	0,82	0,83848
0,03	0,99275	0,23	0,96453	0,43	0,92897	0,63	0,88417	0,83	0,83599
0,04	0,99103	0,24	0,96312	0,44	0,92685	0,64	0,88183	0,84	0,83348
0,05	0,98938	0,25	0,96168	0,45	0,92472	0,65	0,87948	0,85	0,83095
0,06	0,9878	0,26	0,9602	0,46	0,92257	0,66	0,87713	0,86	0,8284
0,07	0,98627	0,27	0,95867	0,47	0,92041	0,67	0,87477	0,87	0,82583
0,08	0,98478	0,28	0,9571	0,48	0,91823	0,68	0,87241	0,88	0,82323
0,09	0,98331	0,29	0,95548	0,49	0,91604	0,69	0,87004	0,89	0,82062
0,1	0,98187	0,3	0,95382	0,5	0,91384	0,7	0,86766	0,9	0,81797
0,11	0,98047	0,31	0,95212	0,51	0,9116	0,71	0,86527	0,91	0,81529
0,12	0,9791	0,32	0,95038	0,52	0,90936	0,72	0,86287	0,92	0,81257
0,13	0,97775	0,33	0,9486	0,53	0,90711	0,73	0,86047	0,93	0,80983
0,14	0,97643	0,34	0,94679	0,54	0,90485	0,74	0,85806	0,94	0,80705
0,15	0,97514	0,35	0,94494	0,55	0,90258	0,75	0,85564	0,95	0,80424
0,16	0,97387	0,36	0,94306	0,56	0,90031	0,76	0,85322	0,96	0,80138
0,17	0,97259	0,37	0,94114	0,57	0,89803	0,77	0,85079	0,97	0,79846
0,18	0,97129	0,38	0,93919	0,58	0,89574	0,78	0,84835	0,98	0,79547
0,19	0,96997	0,39	0,9372	0,59	0,89344	0,79	0,8459	0,99	0,79243
								1	0,78934

▪ Gleichgewichts-Fit EtOH-Wasser^[3], TableCurve-Fitgleichung Nr.7909^[8]

$$y_{EtOH} = \frac{a + c \cdot x_{EtOH} + e \cdot x_{EtOH}^2 + g \cdot x_{EtOH}^3 + i \cdot x_{EtOH}^4 + k \cdot x_{EtOH}^5}{1 + b \cdot x_{EtOH} + d \cdot x_{EtOH}^2 + f \cdot x_{EtOH}^3 + h \cdot x_{EtOH}^4 + j \cdot x_{EtOH}^5}$$

mit: $a = 0,00000540221$ $b = 26,72519257$ $c = 12,61531695$
 $d = 168,967042$ $e = 107,8916683$ $f = 294,5927427$
 $g = 177,4569463$ $h = 74,09942321$ $i = 69,70908872$
 $j = -135,046485$ $k = 62,66614519$

Tabelle A 2: VLE-Daten, EtOH-Wasser, p = 973mbar, NRTL^[3]

x_{EtOH} [-]	y_{EtOH} [-]	T [°C]	x_{EtOH} [-]	y_{EtOH} [-]	T [°C]	x_{EtOH} [-]	y_{EtOH} [-]	T [°C]
0,000	0,000	98,885	0,335	0,598	80,059	0,670	0,737	77,715
0,005	0,058	97,370	0,340	0,600	80,010	0,675	0,740	77,691
0,010	0,107	96,037	0,345	0,602	79,963	0,680	0,743	77,668
0,015	0,149	94,853	0,350	0,604	79,916	0,685	0,746	77,645
0,020	0,185	93,796	0,355	0,605	79,869	0,690	0,749	77,623
0,025	0,217	92,845	0,360	0,607	79,824	0,695	0,751	77,601
0,030	0,245	91,986	0,365	0,609	79,779	0,700	0,754	77,579
0,035	0,270	91,206	0,370	0,611	79,734	0,705	0,757	77,558
0,040	0,292	90,496	0,375	0,612	79,690	0,710	0,760	77,538
0,045	0,312	89,846	0,380	0,614	79,647	0,715	0,763	77,517
0,050	0,330	89,249	0,385	0,616	79,603	0,720	0,766	77,497
0,055	0,347	88,700	0,390	0,618	79,560	0,725	0,769	77,478
0,060	0,362	88,194	0,395	0,620	79,518	0,730	0,772	77,459
0,065	0,375	87,726	0,400	0,621	79,477	0,735	0,775	77,441
0,070	0,388	87,291	0,405	0,623	79,436	0,740	0,779	77,423
0,075	0,399	86,888	0,410	0,625	79,395	0,745	0,782	77,405
0,080	0,410	86,512	0,415	0,627	79,355	0,750	0,785	77,388
0,085	0,420	86,162	0,420	0,628	79,315	0,755	0,788	77,372
0,090	0,429	85,835	0,425	0,630	79,275	0,760	0,792	77,355
0,095	0,438	85,529	0,430	0,632	79,236	0,765	0,795	77,340
0,100	0,446	85,242	0,435	0,634	79,197	0,770	0,798	77,325
0,105	0,454	84,972	0,440	0,636	79,159	0,775	0,802	77,310
0,110	0,461	84,719	0,445	0,637	79,121	0,780	0,805	77,296
0,115	0,467	84,481	0,450	0,639	79,083	0,785	0,809	77,283
0,120	0,473	84,256	0,455	0,641	79,045	0,790	0,812	77,270
0,125	0,479	84,045	0,460	0,643	79,008	0,795	0,816	77,257
0,130	0,485	83,845	0,465	0,645	78,971	0,800	0,819	77,245
0,135	0,490	83,655	0,470	0,647	78,934	0,805	0,823	77,234
0,140	0,495	83,476	0,475	0,649	78,898	0,810	0,826	77,223

0,145	0,500	83,306	0,480	0,651	78,862	0,815	0,830	77,213
0,150	0,504	83,144	0,485	0,652	78,826	0,820	0,834	77,203
0,155	0,509	82,990	0,490	0,654	78,791	0,825	0,838	77,194
0,160	0,513	82,844	0,495	0,656	78,756	0,830	0,841	77,185
0,165	0,517	82,705	0,500	0,658	78,721	0,835	0,845	77,177
0,170	0,520	82,572	0,505	0,660	78,686	0,840	0,849	77,170
0,175	0,524	82,445	0,510	0,662	78,652	0,845	0,853	77,163
0,180	0,527	82,324	0,515	0,664	78,618	0,850	0,857	77,157
0,185	0,531	82,208	0,520	0,666	78,584	0,855	0,861	77,151
0,190	0,534	82,097	0,525	0,668	78,551	0,860	0,865	77,146
0,195	0,537	81,990	0,530	0,671	78,518	0,865	0,869	77,142
0,200	0,540	81,888	0,535	0,673	78,485	0,870	0,874	77,138
0,205	0,543	81,789	0,540	0,675	78,452	0,875	0,878	77,135
0,210	0,546	81,694	0,545	0,677	78,420	0,880	0,882	77,132
0,215	0,548	81,603	0,550	0,679	78,388	0,885	0,886	77,131
0,220	0,551	81,515	0,555	0,681	78,356	0,890	0,891	77,129
0,225	0,554	81,431	0,560	0,683	78,325	0,895	0,895	77,129
0,230	0,556	81,349	0,565	0,686	78,293	0,900	0,900	77,129
0,235	0,558	81,269	0,570	0,688	78,263	0,905	0,904	77,130
0,240	0,561	81,193	0,575	0,690	78,232	0,910	0,909	77,131
0,245	0,563	81,118	0,580	0,692	78,202	0,915	0,913	77,134
0,250	0,565	81,046	0,585	0,695	78,172	0,920	0,918	77,137
0,255	0,568	80,976	0,590	0,697	78,142	0,925	0,923	77,140
0,260	0,570	80,908	0,595	0,699	78,113	0,930	0,927	77,145
0,265	0,572	80,842	0,600	0,702	78,084	0,935	0,932	77,150
0,270	0,574	80,777	0,605	0,704	78,056	0,940	0,937	77,155
0,275	0,576	80,714	0,610	0,706	78,027	0,945	0,942	77,162
0,280	0,578	80,653	0,615	0,709	77,999	0,950	0,947	77,169
0,285	0,580	80,593	0,620	0,711	77,972	0,955	0,952	77,177
0,290	0,582	80,535	0,625	0,714	77,944	0,960	0,957	77,186
0,295	0,584	80,478	0,630	0,716	77,917	0,965	0,962	77,195
0,300	0,586	80,422	0,635	0,719	77,891	0,970	0,967	77,206
0,305	0,587	80,367	0,640	0,721	77,865	0,975	0,973	77,217
0,310	0,589	80,313	0,645	0,724	77,839	0,980	0,978	77,229
0,315	0,591	80,260	0,650	0,727	77,813	0,985	0,983	77,241
0,320	0,593	80,209	0,655	0,729	77,788	0,990	0,989	77,255
0,325	0,595	80,158	0,660	0,732	77,763	0,995	0,994	77,269
0,330	0,597	80,108	0,665	0,735	77,739	1,000	1,000	77,284

- Molare Wärmekapazitäten^[9]

T in [°C], c_p in [kJ/kmolK]

$$cp_{EtOH} = (C_1 + C_2 \cdot (T + 273,15) + C_3 \cdot (T + 273,15)^2 + C_4 \cdot (T + 273,15)^3 + C_5 \cdot (T + 273,15)^4) / 1000$$

mit:

$$C_1 = 1,0264 \cdot 10^5 \quad C_2 = -1,3963 \cdot 10^2 \quad C_3 = -3,0341 \cdot 10^{-2}$$

$$C_4 = 2,0386 \cdot 10^{-3} \quad C_5 = 0$$

$$cp_{H2O} = (C_1 + C_2 \cdot (T + 273,15) + C_3 \cdot (T + 273,15)^2 + C_4 \cdot (T + 273,15)^3 + C_5 \cdot (T + 273,15)^4) / 1000$$

mit:

$$C_1 = 2,7637 \cdot 10^5 \quad C_2 = -2,0901 \cdot 10^3 \quad C_3 = 8,125$$

$$C_4 = -1,4116 \cdot 10^{-2} \quad C_5 = 9,3701 \cdot 10^{-6}$$

- Molare Verdampfungsenthalpien^[18]

T in [°C], Δh_v in [kJ/kmol]

$$\Delta h_{v,EtOH}(T) = -70,557 \cdot T + 44084$$

$$\Delta h_{v,H2O}(T) = -44,4 \cdot T + 45090$$

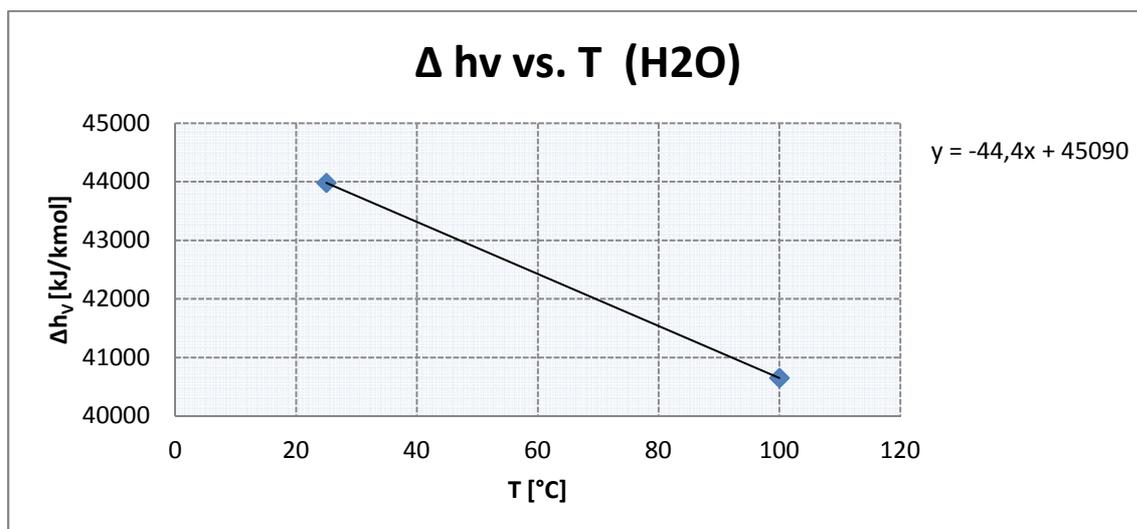
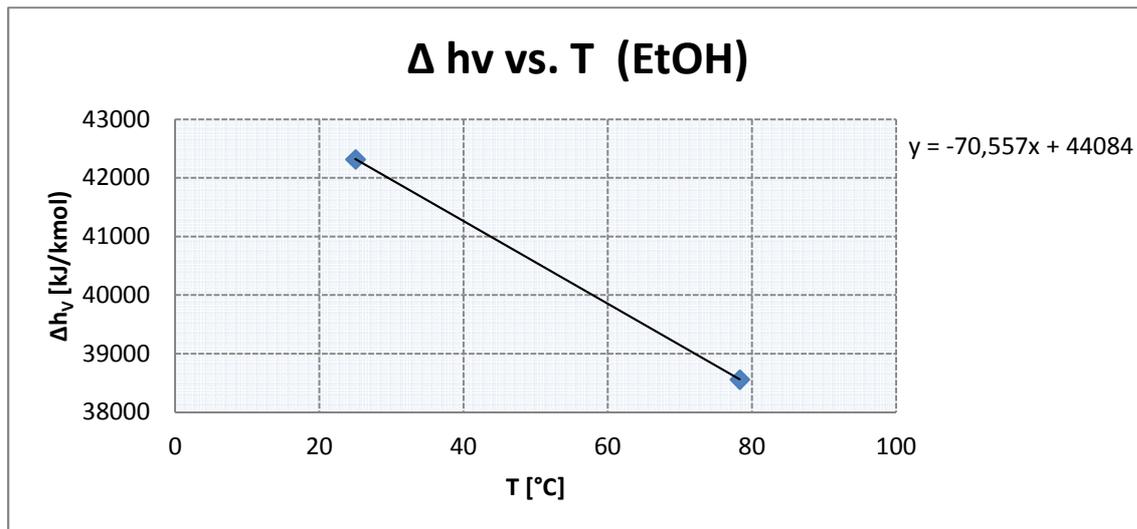


Abbildung A 1: Interpolation $\Delta h_{v,H2O}$

Abbildung A 2: Interpolation $\Delta h_{v,\text{EtOH}}$

Anhang B: Daten für Beck-Verfahren

- Füllkörperdaten-Konstanten Raschigringe Steinzeug 15mm ^[7]

$$K_1 = 0,05$$

$$K_2 = 0,110$$

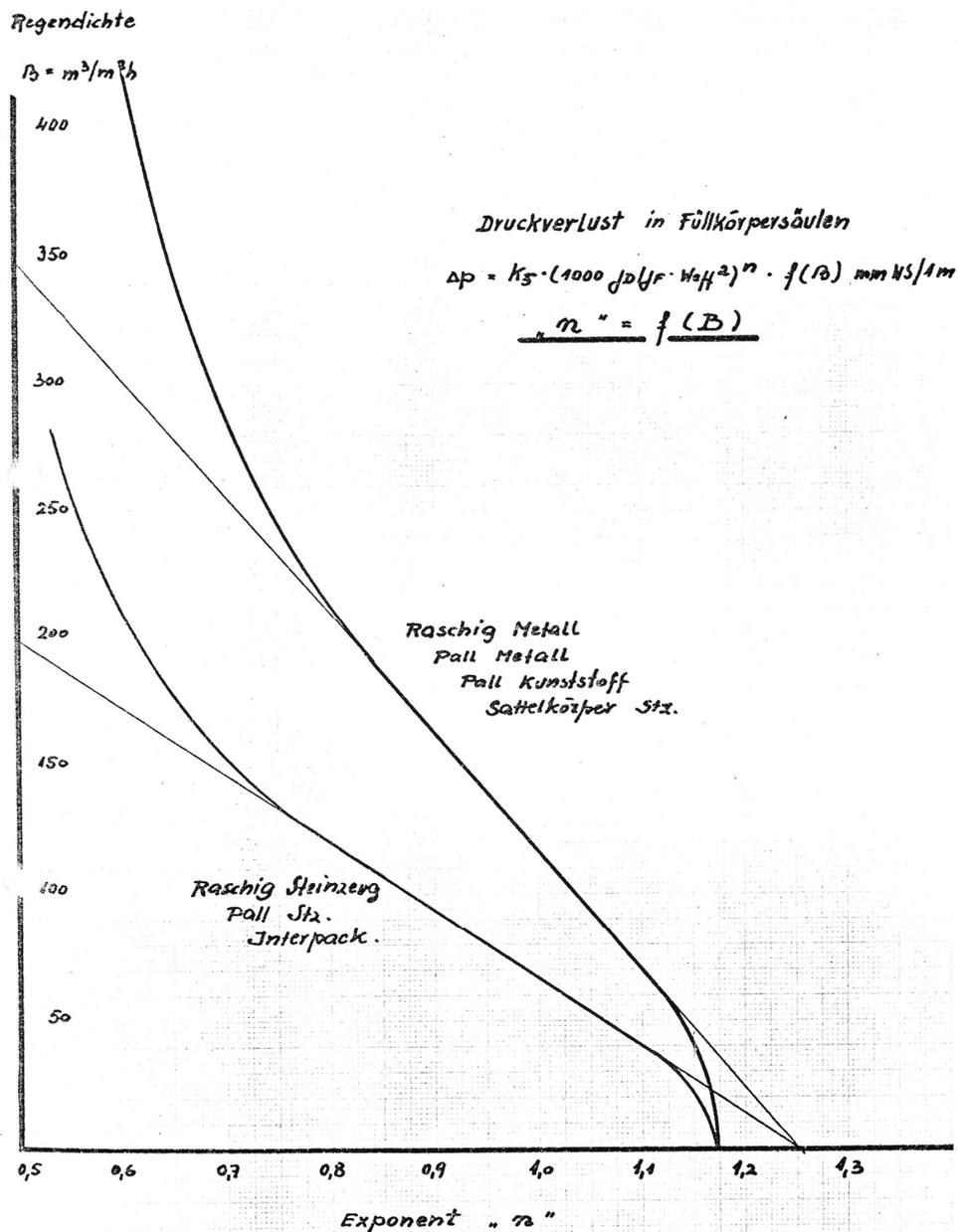
$$K_3 = 0,3$$

$$K_4 = 0,115$$

$$K_5 = 56$$

$$K_6 = 0,135$$

$$K_7 = 0,021$$

Abbildung A 3: Exponent n für Druckbelastberechnung nach Beck ^[7]

Der Exponent n zur Druckverlustberechnung wird Abbildung A 3 entnommen. Für $R < 20 m^3/m^2h$ gilt $n=1,175$.

Anhang C: Stoffdaten

Tabelle A 3: Reinstoffdaten Ethanol-Wasser

Stoffdaten	Ethanol	Wasser	Einheit
Molekulargewicht MG ^[18]	46,0680	18,0153	[g/mol]
Dichte @ 20 °C ^[9]	0,7893	0,9982	[g/cm ³]
T _{BP} (p=1 atm) ^[18]	78,29	100,00	[°C]
$\Delta h_{v, BP}$ ^[18]	38560	40650	[kJ/kmol]
$\Delta h_{v, 25^\circ C}$ ^[18]	42320	43980	[kJ/kmol]

ASPEN SPLIT ANALYSIS

AZEOTROPE SEARCH REPORT

Physical Property Model: NRTL Valid Phase: VAP-LIQ

Mixture Investigated For Azeotropes At A Pressure Of 973 MBAR

Comp ID	Component Name	Classification	Temperature
ETHANOL	ETHANOL	Stable Node	77,28 C
WATER	WATER	Stable Node	98,89 C

The Azeotrope

01	Number Of Components: 2	Temperature 77,13 C	
	Homogeneous	Classification: Unstable Node	
		MOLE BASIS	MASS BASIS
		ETHANOL 0,8962	0,9567
	WATER 0,1038	0,0433	

©2001 Aspen Technology, Inc., Ten Canal Park, Cambridge, Massachusetts 02141-2200 USA Tel: 617.949.1000

Abbildung A 4: Azeotropanalyse EtOH-Wasser ^[3]

Tabelle A 4: Stoffdaten ternäres Gemisch und Reaktivrektifikation

Komponente	Molekulargewicht MG ^[18] [g/mol]	T _{BP} (p=973mbar) ^[3] [°C]	pK _S -Wert (25°C) ^[19] [-]
Ameisensäure	46,0260	99,42	3,7
Essigsäure	60,0520	116,69	4,7
Wasser	18,0153	98,89	-
Methanol	32,0420	63,51	-
Methylformiat	60,0520	30,71	-
Methylacetat	74,0790	55,90	-

ASPEN SPLIT ANALYSIS

AZEOTROPE SEARCH REPORT

Physical Property Model: UNIQ-HOC Valid Phase: VAP-LIQ

Mixture Investigated For Azeotropes At A Pressure Of 973 MBAR

Comp ID	Component Name	Classification	Temperature
H2O	WATER	Saddle	98,89 C
AA	ACETIC-ACID	Stable Node	116,69 C
FA	FORMIC-ACID	Saddle	99,42 C
MF	METHYL-FORMATE	Unstable Node	30,71 C
MA	METHYL-ACETATE	Saddle	55,90 C
MEOH	METHANOL	Saddle	63,51 C

4 Azeotropes Sorted by Temperature

01	Number Of Components: 2	Temperature 106,07 C	
	Homogeneous	Classification: Stable Node	
		MOLE BASIS	MASS BASIS
	H2O	0,3742	0,1897
	FA	0,6258	0,8103

02	Number Of Components: 3	Temperature 105,95 C	
	Homogeneous	Classification: Saddle	
		MOLE BASIS	MASS BASIS
	H2O	0,3265	0,1529
	AA	0,1127	0,1760
	FA	0,5608	0,6711

03	Number Of Components: 2	Temperature 55,65 C	
	Homogeneous	Classification: Saddle	
		MOLE BASIS	MASS BASIS
	H2O	0,0720	0,0185
	MA	0,9280	0,9815

04	Number Of Components: 2	Temperature 52,53 C	
	Homogeneous	Classification: Saddle	
		MOLE BASIS	MASS BASIS
	MA	0,6650	0,8211
	MEOH	0,3350	0,1789

©2001 Aspen Technology, Inc., Ten Canal Park, Cambridge, Massachusetts 02141-2200 USA Tel: 617.949.1000

Abbildung A 5: Azeotropanalyse ternäres System und Reaktivrektifikation^[3]

Anhang D: Feedeinwaagen

Tabelle A 5: Einwaagen Feed, Testlauf 1 – 4

Komponente	Einwaage [g]	Massenanteil w [-]	Molanteil x [-]
Ethanol 100% abs.	322,72	0,0496	0,020
Wasser	6183,92	0,9504	0,980
Summe	6506,64		

Tabelle A 6: Einwaagen Feed, Testlauf 5 – 13

Komponente	Einwaage [g]	Massenanteil w (Reinstoff) [-]	Molanteil x (Reinstoff) [-]
Ethanol 96% techn.	2063,63	0,0495	0,020
Wasser	37940	0,9505	0,980
Summe	40003,63		

Tabelle A 7: Einwaagen Feed, Rektifikation ternäres Gemisch

Komponente	Einwaage [g]	Massenanteil w (Reinstoff) [-]	Molanteil x (Reinstoff) [-]
Ameisensäure 85%	1651,850	0,255	0,231
Essigsäure 96%	3369,370	0,588	0,407
Wasser	478,870	0,157	0,362
Summe	7000,057		

Tabelle A 8: Einwaagen Feed, Reaktivrektifikation

Komponente	Einwaage [g]	Massenanteil w (Reinstoff) [-]	Molanteil x (Reinstoff) [-]
Ameisensäure 85%	2102,320	0,255	0,231
Essigsäure 100%	4116,740	0,588	0,407
Wasser	780,997	0,157	0,362
Summe	5500,090		

Anhang E: MSR – Kanalbelegung und Stromkreise

Tabelle A 9: Fehlerstromschutzschalter und Leistungsschutzschalter

FI	Fehlerstromschutzschalter – 3 Phasen und Nullleiter
F1	Leistungsschutzschalter (16 A) für Phase 1: Fieldpoint-Komponenten und Steckdosen für Feedpumpe 1 (oben) und Feedpumpe 2 (Mitte)
F2	Leistungsschutzschalter (16 A) für Phase 2: Steckdosen S1 – S4 (Waagen, Thermostat)
F3	Leistungsschutzschalter (16 A) für Phase 3: Heizungsregelung/-Steuerung
R1	Relais (Wechsler) für Rücklaufteiler: Spulenspannung 10 V, Wechsler (+24/-24 V)
T1	Thyristorsteller 230 V: zur Heizungsregelung/-Steuerung

Tabelle A 10: Kanalbelegung der Fieldpointmodule

TB 10 CH 2	Spulenspannung für Relais RLT (0-10 V)
TB 10 CH 4	Thyristorsteuerung für Sumpfheizung (0-20 mA)
RTD 122 CH 0	Temperatur Kolonne Sumpf (Pt100)
RTD 122 CH 1	Kolonne Kopftemperatur (Pt100)
RTD 122 CH 2	Temperatur Feed Oben (Pt100)
RTD 122 CH 3	Temperatur Feed Mitte (Pt100)
RTD 122 CH 4	Temperatur Kolonne Mitte (Pt100)
RTD 122 CH 5	Temperatur nach Sumpfproduktkühler
RTD 122 CH 6	Temperatur Rücklauf Kühlwasser Kopfkondensator
RTD 122 CH 7	Temperatur Vorlauf Kühlwasser Kopfkondensator
AI 100 CH 0	Druckmessung Kolonnenkopf
AI 100 CH 1	Druckmessung Kolonnensumpf
AI 100 CH 2	Druckmessung Kolonnenmitte
AI 100 CH 3	Füllstandssensor Minimum (Level Switch Alarm Low)
AI 100 CH 4	Füllstandssensor Maximum (Level Switch Alarm High)
AI 100 CH 5	Durchflussmesser Kühlwasser Kopfkondensator
AI 100 CH 6	Frei
AI 100 CH 7	Frei
RLY 422 CH 0	Steckdose Pumpe 1 (O)
RLY 422 CH 1	Steckdose Pumpe 2 (M)
RLY 422 CH 2/3	Frei

Anmerkung: Der Hauptschalter am Schaltschrank trennt alle Phasen, der Notausschalter nur die Heizung (Phase 3).

Tabelle A 11: Beschreibung der MSR-Stellen im Fließbild der Anlage

Bezeichnung	Bedeutung
FIRAL	Durchflussanzeige mit Alarm bei Grenzwertunterschreitung und Messwertaufzeichnung im PLS
GIRC	Steuerung der Stellung des Rücklaufteilers mit Anzeige und Aufzeichnung der Zustände im PLS
HS ±	Manuelles Ein- und Ausschalten der Feedpumpen
JC	Steuerung der Heizleistung
LSAH	Abschaltung der Feedpumpen und Alarm bei Überschreitung des oberen Grenzwertes des Füllstands im Sumpf
LSAL	Abschaltung der Heizung und Alarm bei Unterschreitung des unteren Grenzwertes des Füllstands im Sumpf
PDIR	Differenzdruckmessung mit Messwertaufzeichnung im PLS
PIR	Druckmessung mit Messwertaufzeichnung im PLS
SIC	Drehzahlanzeige und -steuerung
TIC	Temperaturanzeige und -steuerung
TIR	Temperaturanzeige und Messwertaufzeichnung im PLS
TIRAH	Temperaturanzeige mit Messwertaufzeichnung und Alarm bei Überschreitung des oberen Grenzwertes
TIRC	Temperaturanzeige und -steuerung mit Messwertaufzeichnung im PLS
WIR	Anzeige der Masse mit Messwertaufzeichnung im PLS